

UNIVERSIDAD DE SEVILLA

Departamento de Ingeniería Aeroespacial y Mecánica de Fluidos



ANÁLISIS DE LOS MECANISMOS DE GENERACIÓN Y ROTURA DE
BURBUJAS Y GOTAS EN CORRIENTES GAS-LÍQUIDO Y
LÍQUIDO-LÍQUIDO

(Analysis of the mechanisms of generation and breakup of bubbles and
droplets in gas-liquid and liquid-liquid streams)

Elena de Castro Hernández

Tesis doctoral

Dirigida por: José Manuel Gordillo Arias de Saavedra

Sevilla, 2011

ANÁLISIS DE LOS MECANISMOS DE GENERACIÓN Y ROTURA DE
BURBUJAS Y GOTAS EN CORRIENTES GAS-LÍQUIDO Y
LÍQUIDO-LÍQUIDO

(Analysis of the mechanisms of generation and breakup of bubbles and
droplets in gas-liquid and liquid-liquid streams)

Memoria presentada por:

Elena de Castro Hernández

Para optar al grado de Doctor en Ingeniería

Director:

Dr. D. José Manuel Gordillo Arias de Saavedra

Tutor:

Dr. D. Miguel Pérez-Saborid Sánchez-Pastor

DEPARTAMENTO DE INGENIERÍA AEROESPACIAL Y MECÁNICA
DE FLUIDOS
ESCUELA SUPERIOR DE INGENIEROS
UNIVERSIDAD DE SEVILLA

Entregada en depósito en Marzo de 2011

A mi familia.

Prólogo

Esta memoria se presenta en cumplimiento de la normativa vigente para la obtención del título de doctor por la Universidad de Sevilla. Contiene los resultados relacionados con el objeto de la Tesis llevada a cabo por el candidato a doctor Elena de Castro Hernández durante sus estudios de postgrado (septiembre 2006-marzo 2011). Este trabajo ha sido desarrollado en el departamento de Ingeniería Aeroespacial y Mecánica de Fluidos de dicha Universidad y ha sido dirigido por el Profesor José Manuel Gordillo Arias de Saavedra, profesor titular del mismo departamento. La investigación se engloba dentro de las líneas de trabajo del grupo de Mecánica de Fluidos que dirigía D. Antonio Barrero Ripoll, quien fue catedrático de dicha área de conocimiento hasta su fallecimiento. Los resultados experimentales fueron obtenidos en el laboratorio que dicho grupo posee en la Escuela Superior de Ingenieros de la Universidad de Sevilla.

Parte del trabajo experimental se ha realizado durante estancias en el grupo del Profesor Alberto Fernández de las Nieves en el instituto tecnológico de Georgia Tech (Soft Condensed Matter, Georgia Institute of Technology, Atlanta, U.S.A), así como en el del Profesor Detlef Lohse de la Universidad de Twente (Physics of Fluids, University of Twente, Enschede, The Netherlands).

Con objeto de dar una mayor difusión de los resultados entre la comunidad internacional, la memoria de la Tesis está escrita tanto en castellano como en inglés.

En los apéndices se proporcionan resultados auxiliares que son empleados en el desarrollo de los cuatro capítulos que conforman esta memoria.

Foreword

The present document is submitted in partial fulfillment of the requirements for obtaining the PhD degree from the University of Seville (Spain). It contains the original results obtained by the PhD candidate Elena de Castro Hernández during his postgraduate studies (september 2006-March 2011). The work has been carried out at the department of Aerospace Engineering and Fluid Mechanics of the University of Seville under the supervision of Prof. José Manuel Gordillo Arias de Saavedra. This type of research follows the main guidelines of the Fluid Mechanics group, led by Prof. Antonio Barrero Ripoll until his recent death. The experimental results were carried out at the group's laboratory.

Part of the experimental work was done in Prof. Alberto Fernández de las Nieves's group at the technological Institute of Georgia Tech (Soft Condensed Matter, Georgia Institute of Technology, Atlanta, U.S.A) and in Prof. Detlef Lohse's group at the University of Twente (Physics of Fluids, University of Twente, Enschede, The Netherlands).

The document is written in Spanish and English. The use of the former is compulsory whereas English is chosen to facilitate the rapid dissemination of the main findings within the dissertation.

Some auxiliary results, needed to deduce some of the developments in the four chapters of this document, are exposed in the appendices.

Resumen

La presente tesis doctoral trata de profundizar en los mecanismos de generación y rotura tanto de gotas como de burbujas empleando distintas configuraciones.

El capítulo primero resume de manera somera las principales aplicaciones de gotas y burbujas. Se describen distintos mecanismos de producción de las mismas y se resaltan sus principales ventajas y limitaciones. Se hace hincapié en los motivos que han dado lugar a la consecución del presente documento.

En el segundo capítulo se estudia en profundidad la generación de gotas en la configuración de coflujo. Se presentan los distintos regímenes que podemos encontrar y se caracterizan en función de conocidos números adimensionales. El régimen de narrowing o estrechamiento había sido estudiado por otros autores, sin embargo, el régimen de widening o ensanchamiento no había sido explicado en su totalidad hasta la realización de esta Tesis. Así pues, además de analizar el mecanismo de rotura, se propone un escalado que permite predecir el tamaño de gota en función de parámetros medibles, que funciona para ambos regímenes.

En el capítulo tercero se presentan resultados experimentales del mencionado régimen de narrowing y se comparan con las simulaciones obtenidas mediante un código de elementos de contorno que resuelve la ecuación de Stokes. Asimismo, se estudia la influencia de la relación de viscosidades en la formación de este tipo de chorros y por tanto, en las gotas obtenidas. La información relevante para la construcción de este código se encuentra incluida en los apéndices.

El cuarto y último capítulo está dedicado a la producción de burbujas mediante una variante de la configuración de Flow Focusing planar emplean-

do técnicas de litografía blanda. Los canales generados serán pues de sección rectangular en vez de cilíndricos. Se presenta un diseño eficiente que permite la generación de burbujas de $5\mu m$ de diámetro a través de un estrechamiento de $50\mu m$ y se propone una ley de escala que predice el tamaño de burbuja en función de valores experimentales.

Summary

The present thesis deals with the generation and breakup mechanisms of droplets and bubbles using different configurations.

The first chapter summarizes some of the most relevant applications of droplets and bubbles. Different techniques to generate them as well as their fundamental advantages and limitations are also described. The motivation of this work can be gathered from this review.

In the second chapter the generation of droplets in the coflowing configuration is studied. The existing regimes are characterized using known dimensionless numbers. The so-called narrowing regime had been widely studied but the widening regime remained mostly unexplored. Most importantly, besides analyzing the mechanisms leading to drop breakup a scaling law that predicts the droplet size as a function of measurable parameters, which works well for both regimes, is proposed.

In chapter three experimental results of the cited narrowing regime are presented. A good agreement between the experiments and the numerical simulations obtained by means of a boundary element code for the Stokes equations is observed. Besides, the influence of the viscosity ratio in the generation of this kind of jets, and consequently, in the emitted droplets is obtained. Relevant information about this code is included in the appendices.

The fourth and final chapter is devoted to the study of bubble production by means of a planar coflowing configuration using soft lithography techniques. The cross-section of the channels generated using this technology is rectangular instead of circular. We present an efficient design that allows the generation of bubbles of $5\mu m$ in a long channel of $50\mu m$ in width. Moreover we propose a scaling law that predicts the bubble size as a function

of the control parameters, such as gas and liquid flow rates, fluid properties and channel width.

Contents

1. Introducción	3
1.1. Motivación	5
1.2. Generación de chorros y gotas	7
1.3. Generación de burbujas	11
2. Scaling the drop size in coflow experiments	17
2.1. Abstract	19
2.2. Introduction	19
2.3. Experimental setup	22
2.4. Experimental results and scaling	22
2.4.1. Revision of the narrowing regime	22
2.4.2. Revisiting the dripping to jetting transition in the widening regime	24
2.4.3. Unified scaling for the drop size	26
2.5. Conclusions	34
3. Condiciones para la formación de microchorros en coflujos viscosos	39
3.1. Introducción	41
3.2. Resultados experimentales	44
3.3. Comparación entre los resultados numéricos y experimentales	48
3.3.1. Balance de fuerzas en una sección transversal del chorro	57
4. Microbubble generation in a coflow device operated in a new regime	63
4.1. Abstract	65
4.2. Introduction	65
4.3. Materials and methods	72
4.4. Results	74

4.5. Discussion of the results	75
4.5.1. Scaling of the gas ligament diameter	75
4.5.2. Bubble size	77
4.6. Conclusions and Outlook	78
Conclusions and outlook	83
A. El método de los elementos de contorno	89
A.1. Introducción	91
A.2. Ecuaciones de Navier-Stokes	91
A.3. Identidad de reciprocidad	92
A.4. Funciones de Green del flujo de Stokes	93
A.5. Ecuación integral de contorno	95
A.6. Aplicación al caso de un flujo incidente constante sobre un cuerpo	97
A.7. Ecuación de contorno para un dominio axilsimétrico	97
A.8. Resolución de las integrales	100
A.8.1. El punto de observación precede al punto fuente	103
A.8.2. El punto de observación coincide con el punto fuente	105
A.8.3. El punto fuente tiene coordenada radial nula	106
A.9. Validación del código	107
A.9.1. Flujo de Stokes alrededor de una esfera	107
A.9.2. Flujo de Stokes alrededor de una burbuja	109
A.9.3. Corriente de Hagen-Poiseuille en un conducto de sec- ción circular constante	110
A.9.4. Deformación de una gota esférica sumergida en un flu- jo extensional	112
A.9.5. Formación de gotas en flujos viscosos a partir de un tubo capilar	114
A.10. Formación de gotas mediante la configuración de coflujo	119
B. Solution of the generalized Tomotika's dispersion relation	123
B.1. Solution of the generalized Tomotika's dispersion relation	125
C. Configuración de coflujo	127
C.1. Introducción	129
C.2. Dispositivos de coflujo para el régimen de widening	129
C.3. Dispositivos de coflujo para el régimen de narrowing	131

CONTENTS	1
D. Dispositivos microfluídicos	133
D.1. Resumen	135
D.2. Fabricación del negativo	135
D.3. Fabricación del PDMS	136
D.4. Sellado de los microcanales	138
D.5. Montaje	139
Bibliography	143

Capítulo 1

Introducción

1.1. Motivación

La realización de una Tesis implica un trabajo de investigación dirigido al estudio de un determinado problema. La selección del mismo puede llevarse a cabo de dos formas claramente diferenciadas. En el primer caso, el alumno profundiza en un tema concreto perteneciente a una línea tradicionalmente aceptada. Llevado por la curiosidad contribuirá a la difusión de la línea elegida y desarrollará aptitudes y conocimientos que le serán de utilidad posteriormente. En el segundo caso el investigador es consciente de las necesidades del mercado y detecta qué puntos son susceptibles de mejora desde el punto de vista de la línea en la cual posee una ventaja comparativa, el conocimiento. En los últimos años esta última forma de seleccionar los trabajos de investigación está creciendo notablemente resultando en un claro beneficio social. Creemos que la motivación del presente trabajo ha sido llevado por este espíritu.

Tanto las burbujas como las gotas son elementos de gran relevancia en numerosos procesos físicos. Aparecen en multitud de tratamientos industriales y forman parte de nuestra vida cotidiana. La lluvia, la evaporación, la fermentación y la extracción líquido-líquido son sólo algunos pocos ejemplos de los fenómenos y operaciones en los cuales las gotas juegan un papel principal. Los meteorólogos y los geofísicos estudian la formación de las gotas de lluvia y del granizo. Tanto los ingenieros químicos como de los materiales utilizan burbujas y gotas en operaciones como la destilación, la absorción, la flotación y el secado de aerosoles. Los ingenieros mecánicos estudian el comportamiento de las gotas en procesos de combustión y el de las burbujas en electromecanizado y evaporación.

Las gotas y las burbujas aparecen con frecuencia en la industria alimentaria con el objeto de enmascarar sabores y olores, producir alimentos probióticos o hacer más agradable la textura del producto en cuestión. Pomadas y jarabes, productos finales de la industria farmacéutica, implican en alguna fase de su producción la generación de gotas y burbujas que a menudo pasan por la producción de emulsiones simples o múltiples de una fase acuosa en una oleosa o viceversa. La generación de burbujas para su utilización como agentes de contraste o liberación controlada de fármacos tiene notables beneficios en otras ramas de la ciencia como la biología o la medicina.

Desde un punto de vista puramente productivo, los métodos más interesantes son aquellos que producen gotas de forma masiva. Dentro de este tipo



Figura 1.1: Mezclador.

se incluyen los emulsificadores, los agitadores y los mezcladores mostrados en las figuras 1.1 y 1.2. Todos estos dispositivos generan una emulsión de una fase dispersa en una fase continua y tienen como denominador común su sencillez y bajo coste. Poseen un alto rendimiento pero como contrapartida, las gotas resultantes tienen una distribución de tamaños amplia.



Figura 1.2: Emulsificador de ultrasonido.

El propósito del presente trabajo es el estudio y diseño de métodos efi-

cientes para la producción *controlada* y *masiva* de emulsiones y burbujas con aplicaciones industriales y médicas. Para ello es necesario comprender en detalle los mecanismos físicos que conducen a la generación de gotas y burbujas. Este conocimiento se empleará para diseñar dispositivos que mejoren los actuales procesos productivos.

Los capítulos 2 y 3 tratan sobre la formación de emulsiones y burbujas mediante la configuración de coflujo. Como se verá más adelante, el análisis de los resultados muestra que la técnica de coflujo simple es sumamente útil para la generación de microemulsiones ya que proporciona gotas cuyo diámetro es mucho menor que el diámetro de la aguja a partir de la cual se producen. Sin embargo, tal y como se discute en el capítulo 4, esta técnica no es útil para generar microburbujas de tamaños sensiblemente inferiores al de la aguja a través de la que se generan. Por ello, se recurre a una técnica alternativa que se describe en el capítulo 4.

1.2. Generación de chorros y gotas

Un chorro puede definirse como una corriente de materia de forma columnar [1] que se da en multitud de situaciones y en un amplio rango de escalas. Su estudio es relevante en aplicaciones tan diversas como el riego, la impresión de tinta, la diagnosis médica, los motores diesel o la propulsión a chorro. Asimismo, aparecen de forma cotidiana en cocinas, duchas, sprays farmacéuticos, productos cosméticos e incluso en temas relacionados con nuestra seguridad como en el caso de airbags o aspersores de incendio.

Los métodos más recientes de producción de gotas y burbujas hacen uso de las técnicas de fabricación desarrolladas en el campo que ha venido a llamarse microfluídica. Estos procedimientos nos proporcionan un gran control de los flujos fluidos, al ser el número de Reynolds de las mismas bajo. En muchas situaciones la fase dispersa fluye dentro de un flujo coaxial de una fase continua, lo que nos proporciona numerosas ventajas con respecto a aquellos métodos en los que la fase continua se halla en reposo [2, 3, 4, 5]. En efecto, estos métodos permiten controlar el tamaño de gota de forma precisa, reducen la coalescencia entre gotas sin necesidad de utilizar surfactantes y aumentan la frecuencia de producción [6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13].

Hay dos grandes categorías de dispositivos microfluídicos que mejoran

el proceso de generación de las gotas haciendo uso de un coflujo coaxial. Aquellos en los que ambas corrientes fluyen a través de un pequeño orificio, denominados dispositivos Flow-Focusing [11, 14, 15, 16], y aquellos en los que ambos flujos fluyen paralelamente, llamados dispositivos de coflujo [6, 7, 8, 9, 10, 17]. Estos últimos pueden ser clasificados a su vez en términos del grado de confinamiento que les proporciona el canal exterior. Hay situaciones donde éste será significativo [12, 18, 19], y otras en las que no [10, 17, 20, 21].

Estos dispositivos también pueden ser clasificados según el régimen en el que operan. En efecto, cuando los caudales son bajos encontramos generalmente el régimen de goteo (dripping en inglés) donde las gotas se generan, normalmente de forma periódica, justo en la punta del tubo de inyección. Por el contrario, en el régimen de jetting la fase dispersa forma largos chorros y como consecuencia de ello las gotas se emiten justo en la punta del ligamento líquido.

En ausencia de efectos de confinamiento, podemos identificar dos tipos de jetting [17]: El régimen de estrechamiento (narrowing en inglés) y el de ensanchamiento (widening en inglés). Estos nombres simplemente reflejan la forma que adopta el chorro aguas abajo en cada caso. Los chorros narrowing (figura 1.3) se forman cuando los esfuerzos viscosos ejercidos en la superficie del chorro por el flujo exterior, superan las fuerzas de confinamiento debidas a la tensión superficial. Como en estas situaciones la velocidad exterior es mayor que la interior, el chorro se estrecha aguas abajo una cierta cantidad. Los chorros widening (figura 1.4) se producen cuando los esfuerzos debidos al flujo interior, superan a las fuerzas de confinamiento debidas a la tensión superficial. En estos casos, el fluido interior circula normalmente a mayor velocidad que el exterior. Por tanto, estos chorros se deceleran aguas abajo, dando lugar al ensanchamiento del mismo.



Figura 1.3: Configuración de coflujo operando en el régimen de narrowing.

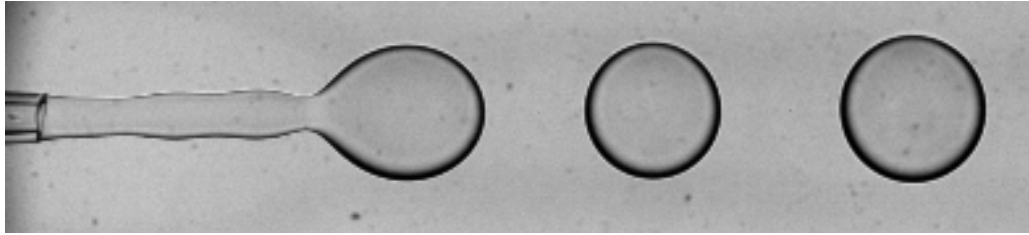


Figura 1.4: Configuración de coflujo operando en el régimen de widening.

La figura 1.5 ilustra una forma sencilla de construir un dispositivo de coflujo. Como puede apreciarse, este tipo de dispositivos están constituidos por dos tubos coaxiales cuyo alineamiento está asegurado al imponer que el diámetro exterior del tubo interior sea igual al lado interior del capilar exterior de sección cuadrada. El fluido interior se inyecta a través del capilar cilíndrico y el exterior a través del espacio existente entre ambos capilares. Debido a su fácil montaje, el multiplexado de este tipo de dispositivos es relativamente sencillo. En efecto, acoplando varios de estos dispositivos en serie pueden obtenerse emulsiones múltiples tal y como se muestra en la figura 1.6.

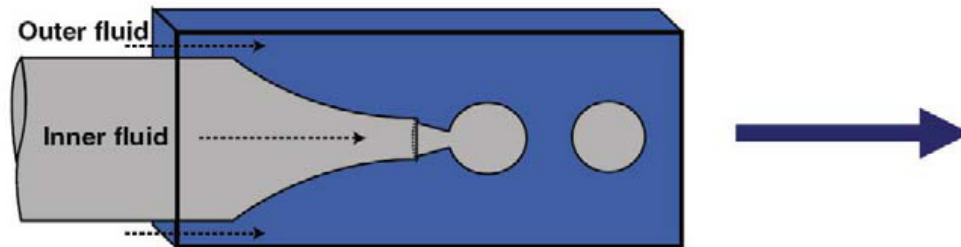


Figura 1.5: Esquema de la configuración de coflujo [22].

Al comienzo de nuestro estudio optamos por reproducir condiciones experimentales del régimen de widening con el objeto de familiarizarnos con la técnica. Como fluidos de trabajo se emplean aceites de silicona de distintas viscosidades y agua. Este régimen había sido estudiado por otros autores [17] quienes propusieron una ley de escala que permitía predecir el tamaño de gota en función de parámetros de control en algunos casos particulares. Sin embargo, en aquellos casos en los que por ejemplo, la viscosidad del fluido

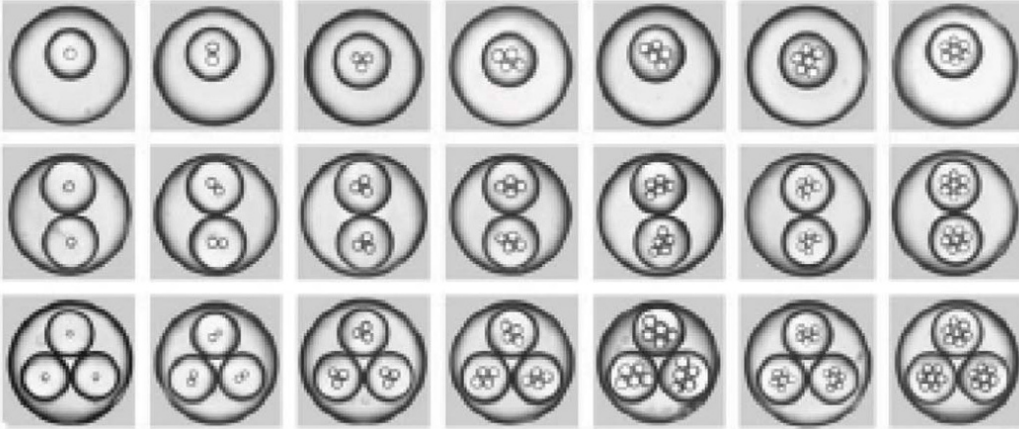


Figura 1.6: Fabricación de emulsión triple [22].

exterior era similar a la del agua, la predicción dejaba de funcionar.

Uno de los resultados principales de esta Tesis es proporcionar un escalado que permite predecir el tamaño de las gotas obtenidas válido para cualquier condición de operación y relación de viscosidades, ya sea de narrowing o de widening.

Por otra parte, aunque el régimen de narrowing había sido estudiado tanto desde el punto de vista teórico como experimental por diversos autores [23, 24], algunos aspectos no habían sido explorados hasta el momento de la realización de esta Tesis. En particular, no se conocía el efecto de la relación de viscosidades entre el fluido interior y el exterior en la formación del chorro, y por tanto, en las gotas emitidas. En esta Tesis se ha analizado este aspecto en detalle, tanto desde el punto de vista experimental como numérico. Gracias a las simulaciones que han sido realizadas utilizando un código numérico de elementos de contorno para las ecuaciones de Stokes y que reproduce los experimentos, se ha llegado a dar respuesta a por qué no es posible obtener un chorro estable de aire. Mediante este código se obtiene información adicional que nos permite elaborar una teoría que también explica este comportamiento y que nos lleva a abordar la producción de burbujas mediante técnicas de litografía blanda. Gracias a esta técnica, es posible producir dispositivos microfluídicos con una red de canales micrométricos de sección rectangular más o menos compleja, fabricados con gran precisión.

Una de las geometrías más utilizadas en la fabricación de dispositivos mediante técnicas de litografía blanda es la configuración Flow Focusing planar

mostrada en la figura 1.7 donde el líquido interior, que en este caso es agua, es enfocado por el líquido exterior, aceite, a través de un estrechamiento. El líquido interior ocupa la totalidad del estrechamiento de forma que la presión aguas arriba aumenta, hasta que se produce la rotura del ligamento y la formación de la gota [25]. Aunque este método permite generar gotas monodispersas, la frecuencia de producción es baja y los tamaños son parecidos o mayores que el canal de salida. En esta Tesis emplearemos una variante de esta geometría para producir burbujas de $5\ \mu m$ de diámetro, mucho menores que la anchura del canal de salida, que en nuestro caso es de $50\ \mu m$.

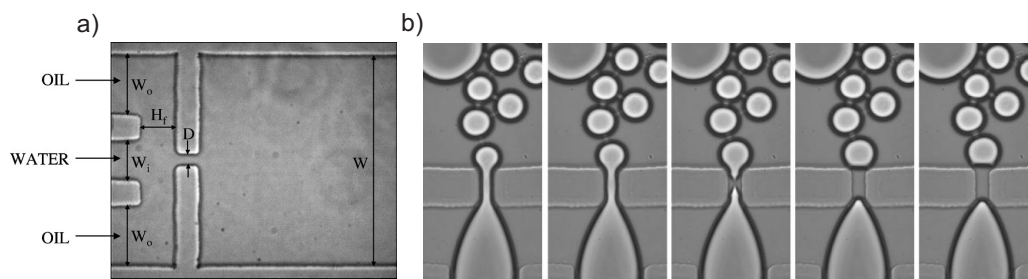


Figura 1.7: (a) Geometría Flow-Focusing implementada en un dispositivo microfluidico [14]. (b) Secuencia de imágenes mostrando la rotura de una gota en un dispositivo microfluídico Flow-Focusing [14].

1.3. Generación de burbujas

La generación de burbujas es un área de creciente interés debido a sus incontables aplicaciones en sectores como la alimentación, la farmacia o la medicina. En las últimas décadas cabe destacar su uso en la liberación controlada de fármacos o como agentes de contraste.

Un agente de contraste acústico no es más que una sustancia utilizada en medicina, cuya densidad difiere del medio que la rodea, de forma que al enviar una señal acústica, el eco recibido nos permite distinguir aquellas zonas donde se halla alojado. Puesto que nuestro organismo tiene básicamente la densidad del agua, los agentes de contraste son simplemente microburbujas, aumentando de esta forma la diferencia entre las densidades de ambos medios.

Las microburbujas están embebidas en una solución, cuya formulación varía de un caso a otro y se introducen en el torrente sanguíneo del paciente. Por

este motivo, su diámetro ha de estar comprendido entre 2 y 5 μm , ya que las burbujas de mayor diámetro pueden provocar un edema y las de menor tamaño tienen una baja reflectividad. Por otro lado, la frecuencia natural de oscilación de una burbuja está íntimamente relacionada con su tamaño y por tanto si las microburbujas son monodispersas, las señales acústicas enviadas pueden ser más estrechas y las imágenes reflejadas más nítidas. En la figura 1.8 observamos claramente las ventajas que tiene desde el punto de vista del diagnóstico médico la utilización de microburbujas a la hora de obtener una imagen ecográfica.

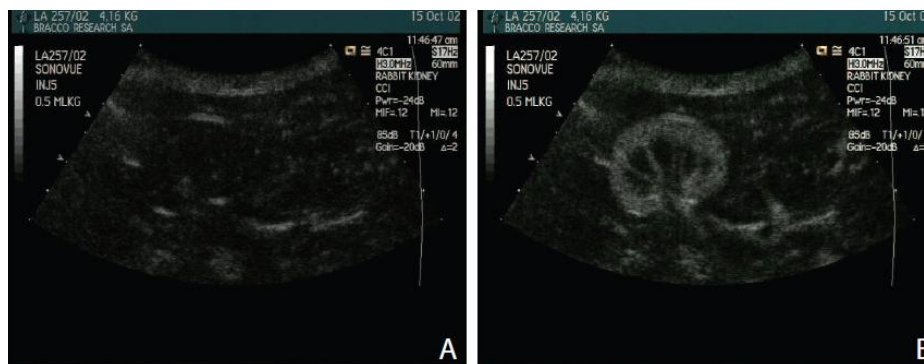


Figura 1.8: Imagen ecográfica del riñón de un conejo [26] antes (a) y después del empleo de un agente de contraste (b).

Si el objetivo es liberar un determinado fármaco, el uso de microburbujas es una herramienta sumamente interesante. En este caso, el fármaco también está ligado a la superficie de la burbuja. Al añadir una o varias capas adicionales, formadas por compuestos químicos que sientan afinidad por determinados tejidos o por sustancias liberadas por cierto tipo de células, es posible dirigir las microburbujas a la zona de interés. La liberación del fármaco puede tener lugar mediante procesos puramente químicos o bien por destrucción de las microburbujas mediante el envío de una señal acústica de intensidad controlada. En ambas situaciones es necesario estabilizar las microburbujas, ya que debido a su pequeño tamaño tenderán a disolverse rápidamente. Actualmente hay numerosas formulaciones que tratan de alcanzar este objetivo de la forma más sencilla y eficiente posible. Todas ellas pasan por la sustitución del aire por otro gas cuyas moléculas sean más grandes, como en el caso de los perfluorocarbonos, así como por la adición

de proteínas, fosfolípidos o polímeros a la fase líquida en la cual se hallan inmersas las microburbujas.

Industrialmente la generación de burbujas se realiza mediante sonicación o agitación, ya que estos métodos son baratos, sencillos y de gran productividad. Sin embargo, el control del tamaño de burbuja es más pobre y su distribución de tamaños es muy amplia. En la figura 1.9 podemos observar la diferencia existente entre un agente de contraste comercial y la emulsión de microburbujas obtenidas mediante el procedimiento propuesto en este documento.

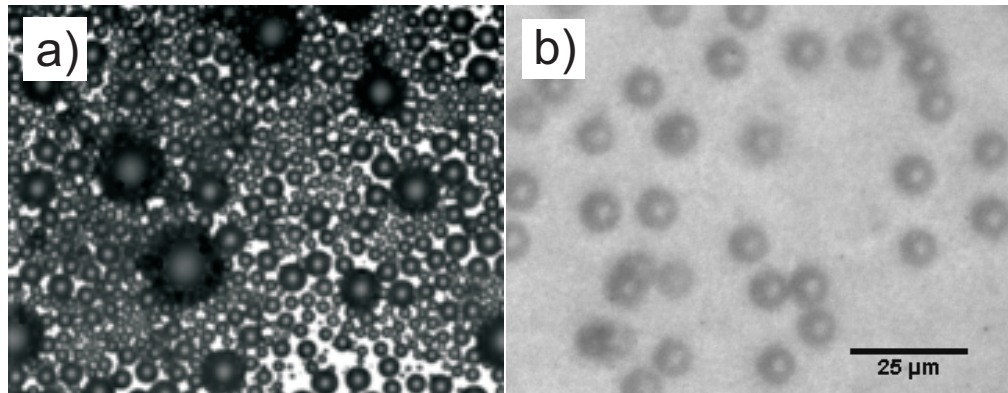


Figura 1.9: Las microburbujas que constituyen los agentes de contrastes actuales (Optison) tienen una distribución de tamaños muy amplia (a) que contrasta con las generadas a través del método propuesto en esta Tesis (b).

Probablemente, la manera más sencilla de producir burbujas monodispersas es inyectar un pequeño caudal de gas a través de un capilar sumergido en agua [9, 27]. Desafortunadamente, las burbujas generadas desde una aguja de $5 \mu m$ en un depósito de agua en reposo tienen unas $50 \mu m$ de diámetro, mucho mayores que el diámetro de la aguja. Claramente, éste no es un método adecuado para la producción de burbujas monodispersas con potenciales aplicaciones terapéuticas.

Inyectando un gas en un flujo cruzado líquido [6] o un coflujo líquido [7] obtenemos burbujas de tamaño comparable al diámetro del capilar. Si el capilar o canal son lo suficientemente pequeños, podemos obtener burbujas

micrométricas monodispersas tanto con un coflujo líquido [9, 12, 17, 18, 23, 28, 29, 30] como con un flujo cruzado [31, 32, 33, 34, 35, 36, 37, 38], aunque en ambos casos la frecuencia de producción no es lo suficientemente elevada.

Farook *et al.* y Pancholi *et al.* [39, 40, 41] implementaron el electro-spray coaxial, configuración descrita por Loscertales *et al.* [42], para generar microburbujas. En este caso particular, el coflujo líquido es inducido por esfuerzos tangenciales eléctricos. Sin embargo esta técnica no produce burbujas con una distribución de tamaños adecuada.

Una forma alternativa de producir microburbujas monodispersas a una alta frecuencia, es utilizar la tecnología Flow-Focusing [43, 44, 45, 46], en la que ambas corrientes de líquido y gas, son forzadas a atravesar un pequeño estrechamiento. Colocando el capilar cilíndrico por el que se inyecta el gas enfrentado a un agujero de pequeño tamaño, Gañán y Gordillo [11] generaron microburbujas con tamaños inferiores al diámetro del orificio. Debido a que el alineamiento del capilar y el orificio no es sencillo, la paralelización de estos dispositivos axilsimétricos para la producción masiva de microburbujas no es tarea fácil.

Posteriormente Anna *et al.* [47], Gordillo *et al.* [15] y Garstecki *et al.* [16] implementaron la geometría Flow-Focusing en dispositivos planos. Los dispositivos microfluídicos planos obtenidos mediante litografía blanda que incorporan la geometría Flow-Focusing, son utilizados en la actualidad por numerosos grupos de investigación para generar microburbujas con aplicaciones terapéuticas [48, 49, 50, 51]. Aunque la geometría Flow-Focusing en su versión axilsimétrica [11] es muy similar a la planar [16], los mecanismos físicos que llevan a la formación de burbujas en cada una de ellas son sustancialmente distintos. En un dispositivo Flow-Focusing planar, la corriente de gas tapona prácticamente la totalidad del canal, lo que aumenta la presión del líquido aguas arriba hasta que este aumento de presión propicia la formación de la burbuja [36]. Este método de producción permite generar burbujas prácticamente monodispersas. Sin embargo, mientras que en la versión axilsimétrica las burbujas son algo menores que el orificio, en la planar son algo mayores y, por tanto, para generar microburbujas de $5\ \mu\text{m}$ en dispositivos planos son necesarios orificios con tamaños del orden de la micra, que tienden a obturarse con facilidad.

En este documento se propone un diseño alternativo cuya principal di-

ferencia con los anteriores estriba en que la longitud del canal en el cual se producen las microburbujas es 30 veces más largo que la anchura del mismo (véase la figura 1.10), mientras que en los diseños precedentes esta relación de aspecto es de orden unidad.

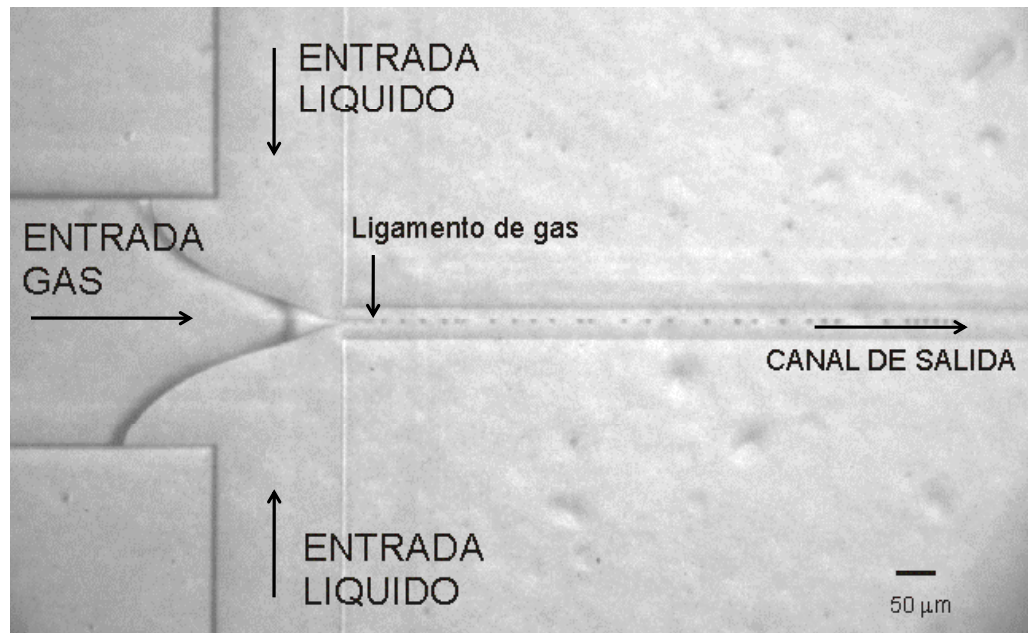


Figura 1.10: Generación de burbujas mediante el nuevo dispositivo descrito en esta Tesis fabricado mediante técnicas de litografía blanda.

Tal y como se muestra en las figuras 1.9 y 1.10 los resultados son sumamente satisfactorios. Al operar este tipo de dispositivos en el rango de caudales adecuado, se observa la generación de un chorro gaseoso, cuyo diámetro es mucho menor que la anchura del canal. A partir de la rotura del mismo pueden obtenerse burbujas de tan sólo $5 \mu m$ en un canal de sección cuadrada de $50 \mu m$ de lado.

Hasta donde llegan nuestros conocimientos, esta es la primera vez que se reporta la formación de un chorro gaseoso de este tipo. Esto es posible gracias al carácter hidrofóbico del material empleado para fabricar parte del dispositivo (PDMS), a una relación de caudales gas-líquido muy baja así como al fuerte gradiente favorable de presiones que existe en la entrada del canal donde tiene lugar la rotura del chorro.

El material empleado para fabricar el dispositivo es PDMS (polidimetil siloxano), polímero biocompatible y ópticamente transparente en el cual se encuentra impresa la red de microcanales. Para cerrarlo completamente se emplea un cristal que se une químicamente y de forma irreversible tras su tratamiento en un plasma. La corriente de gas procedente del canal de entrada se ve estrechada gracias al fuerte gradiente favorable de presiones. El chorro de gas así generado, sólo tiene dos opciones: permanecer en el centro del canal rodeado completamente por el líquido exterior adoptando una forma cilíndrica o bien adherirse a una de las paredes. Debido al carácter hidrofóbico del PDMS y a que el cristal es hidrofílico, el chorro de gas opta por la segunda opción y se fija a una de las paredes del PDMS (ver figura 1.11), lo que confiere al ligamento de gas una mayor estabilidad.

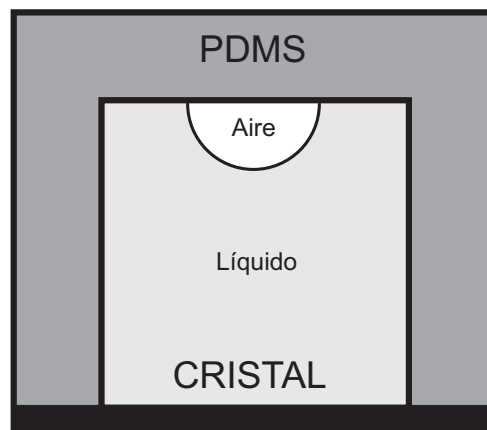


Figura 1.11: Sección transversal del canal de salida. A través de este esquema se muestra la importancia de las características de mojado para la generación de un chorro de gas estable.

Mediante este diseño se obtienen microburbujas de hasta $5\ \mu m$ de diámetro, monodispersas y a altas frecuencias de producción, lo que convierte a esta técnica en un método sumamente interesante para la producción de microburbujas con aplicaciones terapéuticas.

Chapter 2

Scaling the drop size in coflow experiments

In this chapter we reproduce the text in the paper entitled “Scaling the drop size in coflow experiments” by Elena de Castro, Venkata Gundabala, Alberto Fernández de las Nieves and José Manuel Gordillo Arias de Saavedra published by New Journal of Physics in 2009 [52].

2.1. Abstract

We perform extensive experiments with coflowing liquids in microfluidic devices, and provide a closed expression for the drop size as a function of measurable parameters in the jetting regime that accounts for the experimental observations; this expression works irrespective on how the jets are produced, providing a powerful design tool for this type of experiments.

2.2. Introduction

The generation of emulsions is an area of active research due to its countless technological applications (see [43, 53, 54, 55, 56] for detailed reviews). Recent fabrication methods rely on microfluidics, as this technology provides great control over fluid flow and mixing of components. In many situations, the dispersed phase flows inside a coaxial coflow of the continuous phase; this provides several advantages with respect to using a quiescent bath [2, 3, 4, 5]: (i) Control of the drop size by appropriate tuning of the coflow properties; (ii) reduced coalescence between drops, in the absence of surfactants; and (iii) increased production frequency [6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13].

There are two major types of microfluidic devices that improve the drop or bubble generation process by making use of an outer, coaxial coflow: (i) Those in which both streams flow through a small orifice, referred to as flow-focusing devices [11, 14, 15, 16], and (ii) those in which both streams flow in parallel, typically referred to as coflowing devices [6, 7, 8, 9, 10, 17]. The latter can also be classified in terms of the confinement provided by the outer bounding channel; there are situations where this confinement is significant [12, 18, 19], and situations where it is not [10, 17, 20, 21]. Despite these differences, the focus of all these studies is on understanding the transition between the dripping and the jetting regimes [57, 58, 59]. Dripping is characterized by the fact that no long jets of the dispersed phase are formed. Thus, drops are generated right at the tip of the injection tube. By

contrast, when jetting occurs, the dispersed phase forms long liquid jets and consequently, drops are emitted right at the tip of the liquid thread.

In the absence of confinement effects, two different types of jetting regimes have been identified [17]: The *narrowing* and *widening* regimes. These names simply reflect the shape adopted by the jet in either regime. The narrowing jets are formed when the viscous stresses on the interface due to the outer stream overcome surface tension confinement forces, or equivalently, when the capillary number based on the outer velocity, $U_o = Q_o/D_o^2$, and outer viscosity, μ_o , is $Ca_o = \mu_o U_o/\sigma \gtrsim O(1)$, with σ the interfacial tension between the two liquids. Since in these situations, the outer velocity is larger than the inner velocity, the jet *stretches*, thus narrowing downstream by a certain amount. The widening jets are produced in a different way; they result when the stresses due to the flow of the inner stream at the interface overcome surface tension confinement forces. This can happen when the Weber number of the inner fluid satisfies the condition: $We_i = 8\rho_i Q_i^2/(\pi^2\sigma D_i^3) \gtrsim 1$, with Q_i and ρ_i the inner-fluid flow rate and density, respectively, and D_i the inner diameter of the injection tube. In this situation, the inner stream usually flows faster than the outer stream; consequently, these jets are decelerated as they move downstream, resulting in their widened shape.

In this chapter, we extend the criterium needed to induce the formation of a widening jet and show that the condition $We_i > 1$ is only applicable if the Reynolds number of the inner fluid, Re_i , is also larger than one. In the opposite limit, when $Re_i < 1$, the Weber number no longer reflects when a jet is formed. In this case, we find that the appropriate criterium is provided by the capillary number of the inner fluid; jetting occurs when $Ca_i > 1$. More importantly, we provide here a general expression to estimate the drop size in either regime as a function of measurable parameters; this shows that despite the differences between these regimes, the drop size is governed by a unique scaling relationship. Our experiments confirm this prediction, which can thus be used to design coflow experiments aimed at obtaining droplets with a particular size distribution. This capability coupled to the possibility of multiplexing [23] can contribute to the widespread use of this methodology.

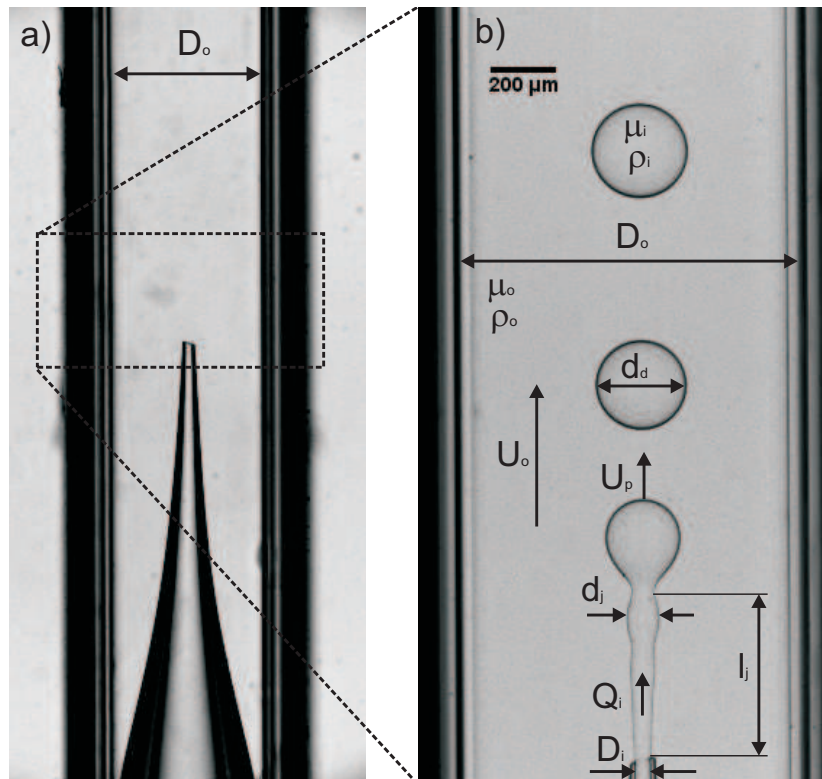


Figure 2.1: a: Close up view of the tapered portion of the injection tube. Note that the untapered portion adjusts to the inner side of the outer squared capillary tube. b: Coflowing device operated in the *widening regime* [17], characterized by a long liquid jet growing in diameter downstream the injection tube. The definitions of the different variables used along the text are also indicated here.

The rest of the chapter is structured as follows: The experimental setup is described in section 2.3. Section 2.4 is devoted to the analysis of the experimental results; we review the scaling of the drop size in the *narrowing regime*, provide the need to extend the current criterium to induce the formation of a widening jet, and derive and experimentally validate a simple equation to calculate the drop size in both *narrowing* and *widening* regimes. Finally, we conclude in section 2.5.

2.3. Experimental setup

Our experimental device is made of two coaxially aligned capillary tubes, as shown in figure 2.1. The inner capillary tube is cylindrical, with a tip tapered to an inner diameter D_i which is varied between 40 and 60 μm and an outer diameter of approximately 80 μm . The outer capillary tube has a square cross section; coaxial alignment of the tubes is achieved by matching the outer diameter of the untapered portion of the inner capillary to the inner dimension of the square capillary, $D_o = 1$ mm, as shown in figure 2.1.a. At this length scale, which is below the capillary length, the effects of gravity are negligible. Therefore, the orientation of the experimental device with respect to that of gravity is irrelevant. Nonetheless, all experiments were aligned horizontally. Although the flow in the square tube is not axisymmetric, since the tip is centered and $D_i \ll D_o$, the local flow around the tip should be approximately axisymmetric. Both liquids are injected through syringe pumps (Harvard Apparatus PHD2000). For visualization and measurement purposes, we use a high speed video camera Phantom V7.1, working between 2000 and 51000 fps.

The liquids we employ are deionized water, glycerol and different polydimethylsiloxane (PDMS) oils, with viscosities varying between 1.5 and 100 cp; by interchanging the different liquids we can vary the viscosity ratio, μ_i/μ_o , from 0.1 to 20. The surface tension between the different liquids, σ , slightly varies around 40 $mN m^{-1}$.

2.4. Experimental results and scaling

2.4.1. Revision of the narrowing regime

It is well established that when the capillary number of the outer fluid in a coflow experiment exceeds a threshold value of order unity, a long liquid jet emerges from the injection tube [17, 23]. If in addition, $Q_i/U_o D_i^2 \ll 1$, the diameter of the liquid jet is much smaller than that of the injection tube, as illustrated in figure 2.2. In this situation, drops with sizes down to one micron can be obtained [23].

Within this *narrowing* regime, if the inner-fluid flow rate is kept constant while U_o increases, the diameter of the ejected jet decreases [17, 23]. This results from the low Reynolds numbers in these experiments, which guar-

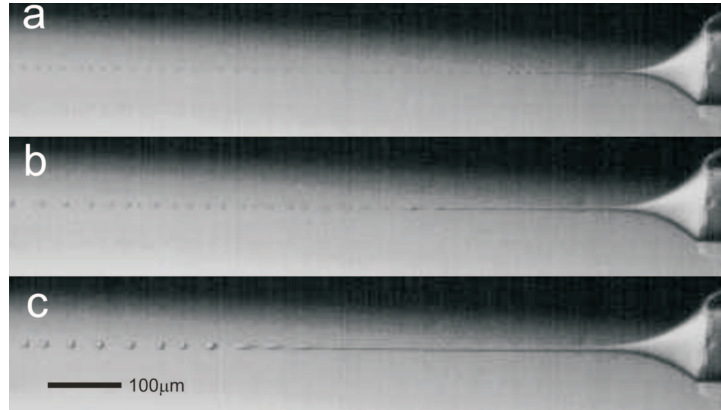


Figure 2.2: Example of the *stretching regime* [17], characterized by the ejection of a liquid jet with a diameter decreasing downstream. In the case illustrated in this figure, which shows a cone-jet transition, the coflowing device is operated under the tip-streaming regime, firstly described numerically by Suryo and Basaran [12]. The outer capillary number is $Ca_o = 4.32$, $Q_i/(U_o D_i^2) < 3 \times 10^{-3}$ and the inner flow rate is decreased from bottom to top. Picture taken from Marin *et al.* [23].

antee the effective diffusion of momentum across the whole section of the jet. As a result, the inner-liquid and outer-liquid velocities become equal some distance downstream of the injection tube and the jet diameter simply results from:

$$\frac{\pi d_j^2}{4} U_o = Q_i \rightarrow d_j = \left(\frac{4Q_i}{\pi U_o} \right)^{1/2}. \quad (2.1)$$

The thin jets observed in this *narrowing regime* are convectively unstable and consequently, the size of the drops obtained from their break-up, d_d , can be deduced from the mass balance: $\pi d_d^3/6 = \pi^2 d_j^3/4k^*$, with $k^*(\mu_i/\mu_o, Oh)$ the dimensionless wavenumber corresponding to the maximum growth rate of sinusoidal capillary perturbations and $\pi d_j/k^*$ its corresponding wavelength. Here, $Oh = \mu_i/\sqrt{\rho_i \sigma d_j/2}$ is the Ohnesorge number based on the material properties of the inner fluid, which expresses the relative importance of the viscous and inertial time scales [60]. Since k^* depends weakly on Oh for relatively large values of this parameter, as shown in the Appendix (figure B.1), it is sensible to write $k^* = k_t^*(\mu_i/\mu_o)$, with k_t^* the wavenumber of maximum growth rate in the limit, firstly considered by Tomotika [61],

$Oh \rightarrow \infty$. With these considerations, we obtain:

$$d_d = \left(\frac{144}{\pi}\right)^{1/6} (k_t^*)^{-1/3} \left(\frac{Q_i}{U_o}\right)^{1/2}, \quad (2.2)$$

which has been confirmed experimentally for a wide range of viscosity ratios [23].

This equation can be obtained using an alternative way of reasoning. Indeed, the drop volume can be obtained from the mass balance:

$$\frac{\pi}{6} d_d^3 = Q_i f^{-1} = Q_i T, \quad (2.3)$$

with f the drop formation frequency and T the corresponding period. We can approximate the period of drop formation by the time needed to elongate the jet a distance equal to the wavelength of maximum growth rate, $T = \pi d_j / (k^* U_p)$, where U_p is the velocity of the jet at its most downstream position, as shown in figure 2.1(b). By combining this result with equation (2.3), we obtain [17, 23]:

$$\frac{\pi}{6} d_d^3 = Q_i \frac{\pi d_j}{k^* U_p} \rightarrow \frac{d_d}{D_i} = \frac{1}{D_i} \left(\frac{6 Q_i d_j}{k^* U_p}\right)^{1/3}. \quad (2.4)$$

Since $U_p = U_o$ for the *narrowing* jets considered so far, this equation (2.4) is identical to equation (2.2).

2.4.2. Revisiting the dripping to jetting transition in the widening regime

A different kind of jet, referred to as *widening* jet [17], is obtained if the inner momentum overcomes surface tension confinement forces: $We_i \gtrsim O(1)$. Generally, for these jets, $U_o \ll Q_i / D_i^2$ and thus, the jet is decelerated by the action of the shear stress exerted by the outer stream, leading to the observed jet widening, as shown in figure 1(b). We emphasize here that the condition for formation of these jets, $We_i = 8\rho_i Q_i^2 / (\pi^2 \sigma D_i^3) \gtrsim 1$, only applies when, in addition, $Re_i = 2\rho_i Q_i / (\pi \mu_i D_i) \gtrsim 1$. If this is not fulfilled, the condition $We_i \gtrsim O(1)$ no longer predicts the dripping-to-jetting transition, as shown in figure 2.3(a), where we plot the values of the Weber number of the inner fluid for which we observe a jetting behavior; even for $We_i < 1$, there are jets that form. In these cases, $Re_i < 1$, as shown in figure 2.3(b).

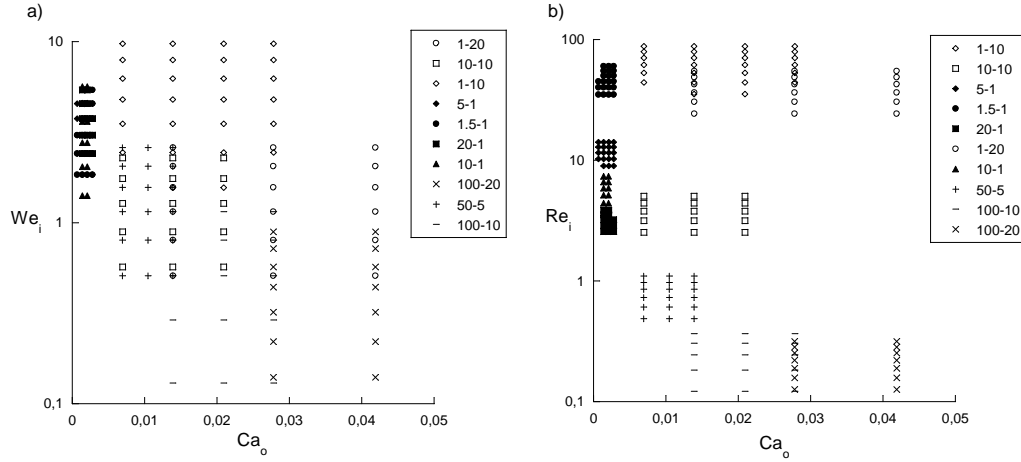


Figure 2.3: a: Values of the Weber number evaluated at the exit of the injection tube, $We_i = 8\rho_i Q_i^2/(\pi^2\sigma D_i^3)$. All the experiments considered in this study lie within the widening regime [17] in spite some of the values of We_i are much smaller than unity. b: Values of the inner Reynolds number, $Re_i = 2\rho_i Q_i/(\pi\mu_i D_i)$, at the exit of the injection tube. Numbers in the legend indicate inner/outer viscosities in centipoises.

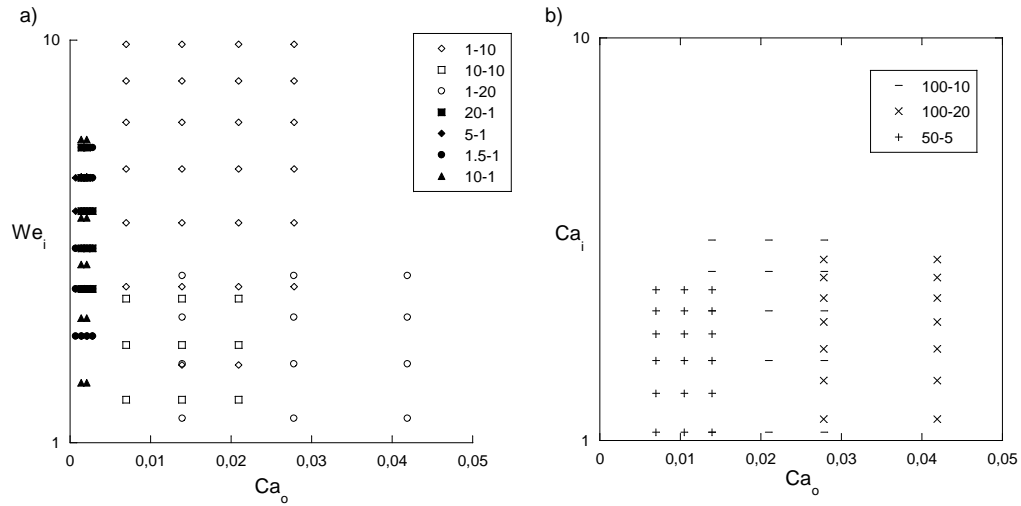


Figure 2.4: a: Values of the Weber number evaluated at the exit of the injection tube, We_i for those experiments in which $Re_i > 1$. b: Values of the inner capillary number evaluated at the exit of the injection tube, $Ca_i = 4\mu_i Q_i/(\pi D_i^2\sigma)$ for those experiments in which $Re_i < 1$. Thus, in order for widening jets to be generated, either $We_i \gtrsim 1$ and $Re_i \gtrsim 1$ or $Ca_i \gtrsim 1$ and $Re_i \lesssim 1$. Numbers in the legend indicate inner/outer viscosities in centipoises.

Interestingly, for these jets, the capillary number of the inner fluid is larger than one, $Ca_i = 4\mu_i Q_i / (\pi D_i^2 \sigma) \gtrsim 1$. We thus divide our data into two sets depending on whether the inner Reynolds number is smaller or larger than one. When $Re_i > 1$, we observe jetting if $We_i > 1$, as shown in figure 2.4(a). However, when $Re_i < 1$, widening jets form when $Ca_i > 1$, as shown in figure 2.4(b). As a result, widening jets can form either driven by inertial or viscous forces of the inner fluid; depending on Re_i , they form when either We_i or Ca_i is larger than a threshold number, which is close to unity. Our results, thus extend the dripping-to-jetting criteria [17] to cases where $Re_i < 1$.

2.4.3. Unified scaling for the drop size

In the widening-jet regime, we observe that the drop diameter decreases as the coflow velocity increases, as shown in figures 2.5(a,b). This trend is consistent with what has been observed previously for both the narrowing and widening regimes [17, 23], and independent of the values of the inner and outer viscosities, as shown in figure 2.5(c). We also observe that the drop size increases with the inner-fluid flow rate, for $\mu_i = 1\text{ cp}$ and $\mu_o = 10\text{ cp}$, as shown by the images in figure 2.6, which correspond to two different values of Q_i ; this is consistent with previous results too [17]. However, when $\mu_i = 10\text{ cp}$ and $\mu_o = 1\text{ cp}$, we observe that the drop size is reduced if Q_i is increased, as shown by the images in figure 2.7, which correspond to two different values of Q_i . The viscosities of both inner and outer liquids thus plays a relevant role in determining the drop-size dependence with Q_i . Our experiments indicate that d_d increases with Q_i when the outer viscosity is sufficiently larger than that of water, irrespective of the viscosity ratio, as shown in figure 2.7(c), where we show data corresponding to $\mu_i/\mu_o = 0.1, 1$ and 10, all exhibiting the same behavior. By contrast, when the viscosity of the outer fluid is $\sim 1\text{ cp}$, the drop size decreases with Q_i , as also shown in figure 2.7(c).

To understand these observations, let us consider the drop formation period in equation (2.3). Similarly to bubble formation, this time corresponds to the time required to convect the inner fluid a distance λ at a velocity U_p , $t_{conv} = \lambda/U_p$, plus the time required to collapse or pinch the liquid thread, t_{pinch} : $T = t_{conv} + t_{pinch}$ [13], where λ is taken as the distance traveled by the downstream location of the jet within two consecutive pinch-off events, as shown in figure 2.8. The pinch-off time depends on the Ohnesorge number. For $Oh \ll 1$, it is of the order of the capillary time,

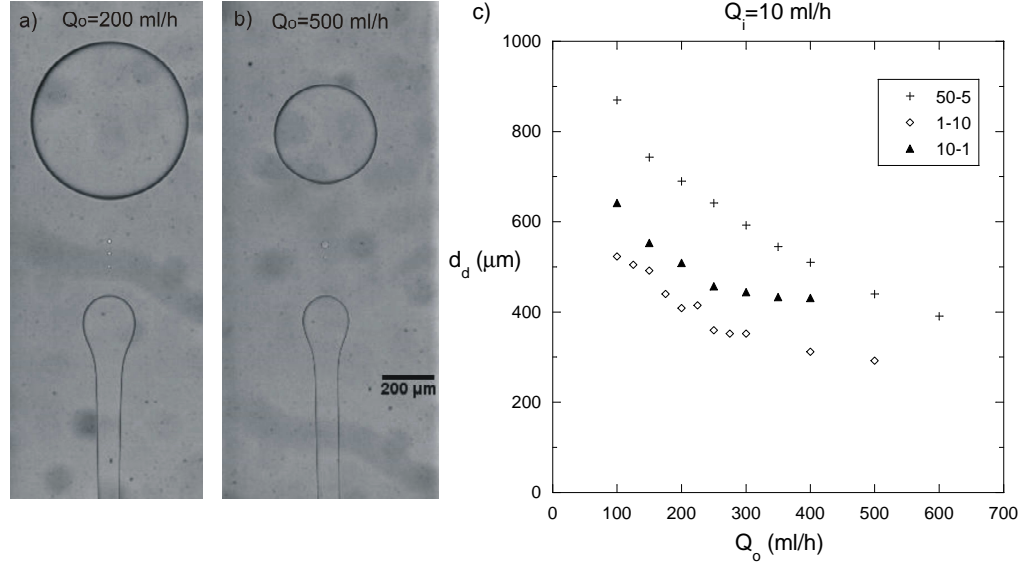


Figure 2.5: a-b: These pictures illustrate the effect of increasing the outer flow rate while keeping constant the inner flow rate, $Q_i = 10 \text{ ml/h}$. The outer flow rate increases from left ($Q_o = U_o D_o^2 = 200 \text{ ml/h}$) to right ($Q_o = U_o D_o^2 = 500 \text{ ml/h}$). The values of the outer and inner viscosities are, respectively, $\mu_o = 5 \text{ cp}$ and $\mu_i = 50 \text{ cp}$. c: Drop size as a function of the outer flow rate for a fixed value of the inner flow rate, $Q_i = 10 \text{ ml/h}$ and various inner/outer viscosities. Observe that the effect of increasing the outer flow rate is, in all cases, to decrease drop size.

$t_{pinch} \sim t_c = (\rho_i D_i^3 / \sigma)^{1/2}$, while for $Oh \gtrsim O(1)$, it is of the order of the viscous diffusion time, $t_{pinch} \sim t_{visc} = \mu_i D_i / \sigma$. Therefore, either

$$T \sim \frac{\lambda}{U_p} \left(1 + \frac{D_i}{\lambda} \left(\frac{\rho_i U_p^2 D_i}{\sigma} \right)^{1/2} \right) \quad \text{if } Oh \ll 1 \quad (2.5)$$

or

$$T \sim \frac{\lambda}{U_p} \left(1 + \frac{D_i}{\lambda} \left(\frac{\mu_i U_p}{\sigma} \right) \right) \quad \text{if } Oh \gtrsim O(1). \quad (2.6)$$

In our experiments, the second term in the right-hand side of these equations is much smaller than unity. This implies that irrespective of the Ohnesorge number, the process of extending the liquid ligament a distance λ is much slower than the break-up time of the liquid thread:

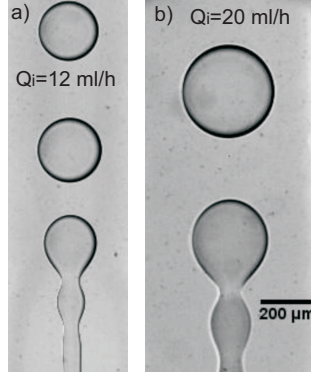


Figure 2.6: a-b: These pictures illustrate the effect of increasing Q_i while keeping constant the outer flow rate ($Q_o = 400 \text{ ml/h}$). The inner flow rate increases from left ($Q_i = 12 \text{ ml/h}$) to right ($Q_i = 20 \text{ ml/h}$). The values of the outer and inner viscosities are, respectively, $\mu_o = 10 \text{ cp}$ and $\mu_i = 1 \text{ cp}$

$$t_{conv} \gg t_{pinch} \implies f \propto U_p/\lambda. \quad (2.7)$$

The scaling of d_d thus depends on how λ and U_p scale with the different control parameters in the problem. For U_p , when the outer fluid viscosity is large compared to that of water, we find that $U_p \simeq U_o$, as shown in figures 2.9(a) and 2.9(b), where we plot U_p/U_o versus Q_i and Q_o , respectively. As a result, $f \propto \lambda/U_o$, as in the case of bubble formation in the presence of a liquid coflow [9, 13] or for the case of drop formation in the narrowing regime [17, 23]. However, when the outer viscosity is similar to that of water, U_p exhibits dependence on both U_o and Q_i , as shown in figure 2.9. This experimental observation can be qualitatively explained in terms of the viscous-stress balance on the jet surface. If we assume that the jet surface travels at a speed U_s , the continuity of shear stresses at the interface demands that $\mu_i(U_i - U_s)/D_i \sim \mu_o(U_s - U_o)/\delta$, with $U_i = 4Q_i/(\pi D_i^2)$ the average inner-fluid velocity and $\delta \sim D_i\sqrt{\mu_o/(\rho_o U_s D_i)}$ the thickness of the shear layer, which we schematically represent in figure 2.10. From this last equation, we obtain an estimate for U_s :

$$U_s \sim \frac{U_o + (\mu_i/\mu_o) \times (\delta/D_i)U_i}{1 + (\mu_i/\mu_o) \times (\delta/D_i)}. \quad (2.8)$$

Based on this equation, we see that in the limit $(\mu_i/\mu_o) \times (\delta/D_i) \ll 1$, $U_s \simeq U_o$ and consequently, $U_p \simeq U_o$, since in this case the differences between

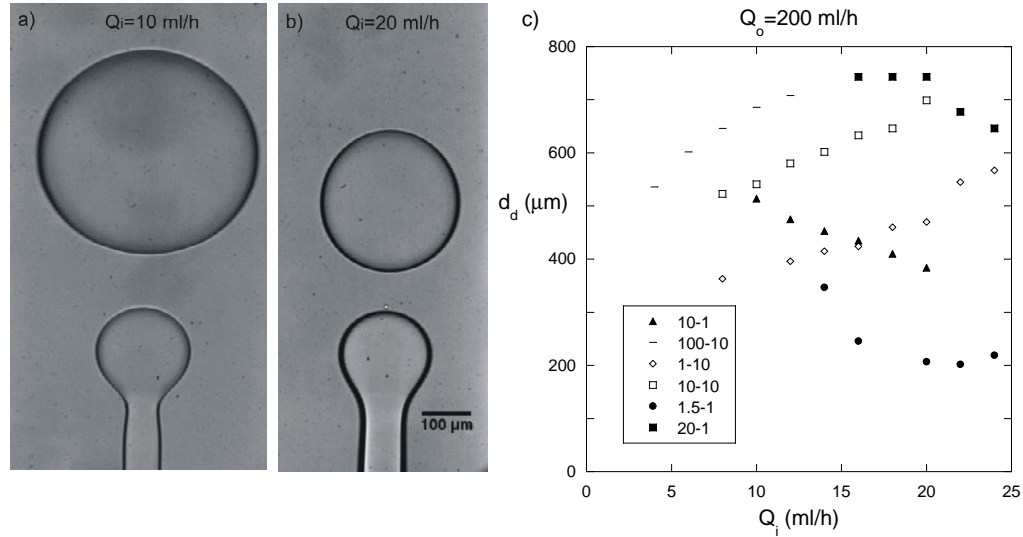


Figure 2.7: a-b: These pictures illustrate the effect of increasing Q_i ($Q_i = 10 \text{ ml/h}$ in (a) and $Q_i = 20 \text{ ml/h}$ in (b)) while keeping constant the outer flow rate ($Q_o = 300 \text{ ml/h}$). $\mu_o = 1 \text{ cp}$ and $\mu_i = 10 \text{ cp}$. Contrarily to the case depicted in figure (2.6), drop size decreases when the inner flow rate is increased. c: Dependence of drop diameter on Q_i for a fixed value of Q_o and various inner/outer viscosities. Observe that the trends are different depending on the values of the inner and outer viscosities. Numbers in the legend indicate inner/outer viscosities in centipoises.

the interfacial and outer velocities are negligible. However, when the outer-fluid viscosity is not so large, then $(\mu_i/\mu_o) \times (\delta/D_i) \gtrsim O(1)$ and, due to the fact that $U_i \gg U_o$, $U_s \sim U_i[(\mu_i/\mu_o) \times (\delta/D_i) + U_o/U_i]/[1 + (\mu_i/\mu_o) \times (\delta/D_i)] \gtrsim O(U_o)$. Under these circumstances, the inner stream *drags* the outer fluid creating a strong velocity gradient adjacent to the jet interface, as schematically shown in figure 2.10(b). Since the outer velocities in the neighborhood of the jet interface are larger than U_o , U_p is also larger than U_o . As Q_o increases, however, this difference decreases and U_p approaches U_o , as shown in figure 2.9(b). In addition, since U_s grows with U_i , so does U_p , consistent also with our observations, as shown in figure 2.9(a).

Despite this qualitative agreement with our model, we have not been able to find a simple way of expressing U_p as a function of the control parameters, other than solving the Navier-Stokes equations, which would have

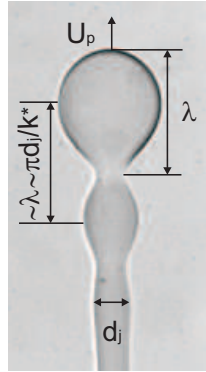


Figure 2.8: Picture showing the definition of d_j -jet diameter at the location where drops are emitted- and λ -axial distance travelled by the tip of the jet from two consecutive pinch-off events-. As discussed in the text, the value of λ can be approached to the wavelength of maximum growth rate of capillary perturbations, $\pi d_j/k^*$.

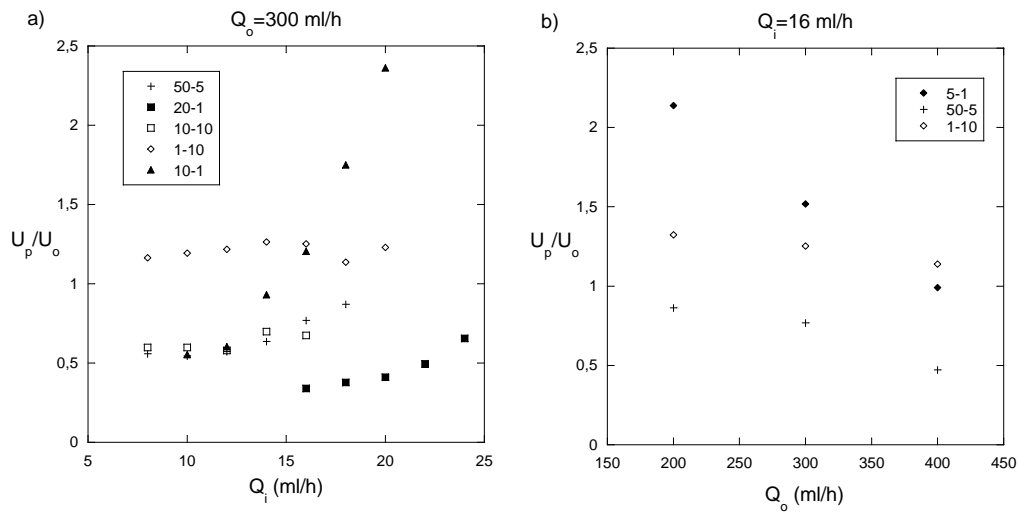


Figure 2.9: Ratio U_p/U_o , with U_p the velocity at the tip of the drop -see figure 2.1- as a function of Q_i and Q_o for various inner/outer viscosities. See the discussion in the main body of the text.

to be done numerically. Under confinement [18], the presence of the outer walls attenuates the growth of capillary waves and both the inner and outer velocity profiles are able to reach the parallel Poiseuille solution, simplify-

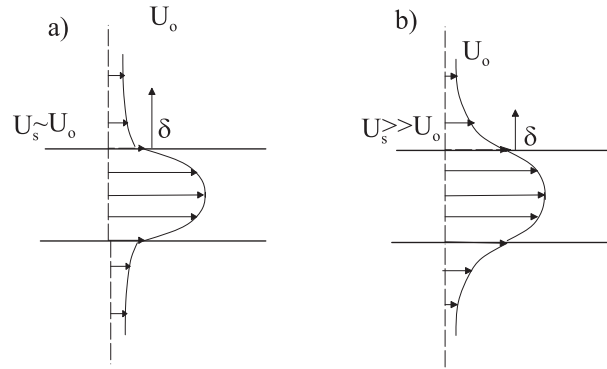


Figure 2.10: Sketch showing the effect of the shear exerted by the inner stream on the outer stream. Depending on the value of the outer viscosity, the interfacial velocities, U_s are (a) similar to U_o if $\mu_o \gg \mu_i$ or (b) sensibly larger than U_o if $\mu_i \gg \mu_o$.

ing the problem. In our experiments, this is not the case and the larger growth rate of the capillary waves disrupt the jet before the velocity profiles reach this analytic solution. Therefore, the velocities of the inner and outer streams evolve in the axial direction in a non trivial manner and so does the jet tip velocity U_p .

To obtain the appropriate scaling for λ , we take into account that the pinch-off process is driven by surface tension. Indeed, in order for surface tension to break a cylindrical piece of liquid into spherical drops, the wavelength of the growing, unstable mode, λ_v , must satisfy the condition $\lambda_v > \pi d_j$, with d_j the jet diameter upstream the location where the drops form [1, 62, 63] (see figure 2.8). In addition, $t_{pinch} \ll t_{conv}$. As a result of these two ingredients, we can consider that right after a drop has been formed, the wavelength of the corrugations on the jet surface, shown in figure 2.8, is such that $k = \pi d_j / \lambda_v > 1$. Therefore, during the first instants of drop formation, surface tension smoothen all capillary waves. However, since the front of the jet is elongated at a velocity U_p , the wavelength of the corrugations increases in time and thus, k decreases. When $k \simeq 1$, the liquid jet is close to be unstable and prone to break into drops; however the growth rates for $k \simeq 1$ are very small (see figure 2.11 for details)¹. Consequently, k

¹The dimensionless wavenumber k is continuously decreasing in time as a consequence of the elongation imposed by the outer coflow. The elongation process starts from a value

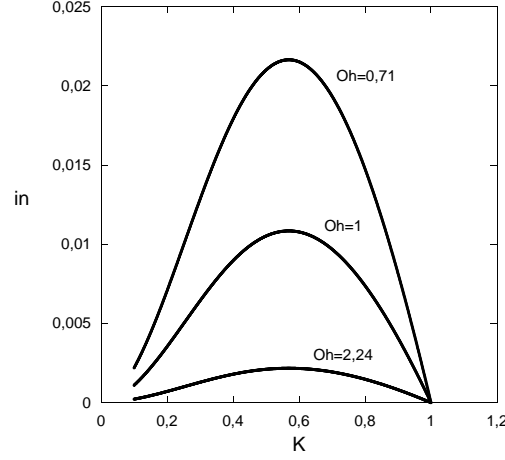


Figure 2.11: Dispersion relation curves for different values of the Ohnesorge number and values of the inner and outer viscosity $\mu_i = 1 \text{ cp}$ and $\mu_o = 10 \text{ cp}$. Note that the wavelength of maximum amplification of capillary disturbances, k^* , varies very slightly with Oh . Moreover, note that perturbations with wavenumbers $k \simeq 1$, possess growth rates close to zero.

continues to decrease in time until the growth rate of capillary perturbations is significant, namely, until $k \simeq k^*$. Since t_{pinch} is so short compared to t_{conv} , the pinch-off process only represents a small fraction of the period for drop formation, T , and breakup essentially takes place *instantaneously* as soon as $\lambda \sim \pi d_j/k^*$. Therefore, the drop formation period can be approximated by the time needed to elongate the jet a distance equal to $\lambda = \pi d_j/k^*$. As a result:

$$f = \frac{U_p}{\lambda} = \frac{k^*(Oh, \mu_i/\mu_o) U_p}{\pi d_j}. \quad (2.9)$$

Since continuity demands that $\pi/6 d_d^3 = Q_i f^{-1}$, the drop diameter is given by:

$$\frac{d_d}{D_i} = \frac{1}{D_i} \left(\frac{6 Q_i d_j}{k^* U_p} \right)^{1/3}, \quad (2.10)$$

which is *the same* equation (2.4) used to calculate the diameter of the drops

$k > 1$, and, thus, during the instants in which the "effective" wavenumber is close to 1, which is the limit of stable/unstable disturbances, it is expected that the neck connecting the drop and the jet experiences oscillations.

generated in the narrowing regime. We thus arrive at the relevant conclusion that the drop size is given by the same equation either in the widening or narrowing regimes; the only difference resides on how k^* , d_j and U_p depend on the control parameters.

For the widening jets, the best approach to obtain k^* would be to solve the dispersion relation corresponding to the capillary perturbations evolving in a geometry which is between a cylinder and a spherical droplet. Moreover, these capillary perturbations develop within coflowing streams with shear. Therefore, contrarily to the simplified analysis in the Appendix, which assumes that the geometry is cylindrical, that there is no relative motion between both streams and that perturbations decay at infinity in the radial direction, a rigorous dispersion relation describing wave evolution in the case of widening jets, should take into account all the real effects enumerated above. Nevertheless, this refinement in the calculation of k^* would necessarily imply simplifications since, for instance, the precise geometry of the transition region between the jet and the drop is not known *a priori*. Thus, we adopt here the simplest approach and calculate k^* through equation (B.1), which gives the dimensionless wavenumber corresponding to the maximum growth rate. Note that in the case of the widening jets the values of Oh are not too large and thus the simplification $k^* \simeq k_t^*$, assumed for the case of the narrowing jets, is not applicable, as shown in the Appendix.

Finally, we need to estimate d_j . While for the narrowing jets we can use equation (1), for the widening jets this is not possible, since the inner stream velocity never equals the outer stream velocity, U_o . This results from the fact that for these jets, the flow is locally absolutely unstable [1, 21], implying that at some axial location, the speed of the capillary disturbances becomes similar to the speed at which they are convected downstream. Therefore, the jet breaks before the inner velocity of the jet can become equal to the outer-fluid velocity. Based on this fact, we will estimate the value of d_j from the condition $U_i = d_j/t_{pinch}$, with $U_i = 4Q_i/(\pi d_j^2)$ the (approximate) propagation velocity of capillary disturbances and with d_j/t_{pinch} the characteristic velocity at which perturbations grow in time. By using that $t_{pinch} = 1/(in^*)(\rho_i/\mu_i)(d_j/2)^2$ (see Appendix), with (in^*) the maximum value of growth rate, and the definition of Oh , we arrive at:

$$\frac{Oh^{-2}}{in^*} \frac{\mu_i d_j}{2\sigma} = \frac{\pi d_j^3}{4Q_i}. \quad (2.11)$$

Note that equation (2.11) needs to be solved iteratively since in^* is also a function of d_j through its dependence with Oh . This maximum growth rate depends on Oh , as shown in the Appendix [figure 13(b)] for different viscosity ratios; it appreciably decreases as Oh increases.

Equipped with the theoretical description of k^* , U_p and d_j , we can critically test the drop size dependence predicted by equation (2.10).

We thus plot the experimental dimensionless ratio d_d/D_i as a function of $(6Q_i d_j/(D_i^3 k^* U_p))^{1/3}$, as shown in figure 2.12(a), where we measure U_p directly from the experiments, and in figure 2.12(b), where we use that $U_p = U_o$ when $\mu_o \geq 5 cp$. Remarkably, when doing so, all the data collapses into the same mastercurve, irrespective of whether d_d increased or decreased with Q_i , and for a large number of μ_i and μ_o combinations. We obtain that the spread of the data is $\pm 25\%$ [figure 2.12(a)] and $\pm 35\%$ [figure 2.12(b)] with respect to the mean. In addition, there is a linear relation between these variables, consistent with our expectations. By performing a linear fit of the data, we obtain:

$$\frac{d_d}{D_i} = 0.97 \frac{1}{D_i} \left(\frac{6Q_i d_j}{k^* U_p} \right)^{1/3} - 0.22, \quad (2.12)$$

$$\frac{d_d}{D_i} = 0.9 \frac{1}{D_i} \left(\frac{6Q_i d_j}{k^* U_p} \right)^{1/3} + 0.75. \quad (2.13)$$

for figure 2.12(a) and figure 2.12(b), respectively. The slopes of the linear fits are close to one and the ordinates are close to zero, in further agreement with equation (2.10).

In spite of the relative errors in figure 2.12, we have shown that equations (2.12) and (2.13) can be used to approximately predict the drop size, even for the largest values of $(6Q_i d_j/(D_i^3 k^* U_p))^{1/3}$, which correspond to drop sizes that are close to the outer geometrical dimension of the device. As a result, our conceptual description of the drop formation mechanism in coflowing liquids is correct, unifying the so called narrowing and widening regimes in terms of the drop size.

2.5. Conclusions

We have studied in detail the process of drop formation from long, widening jets, in microfluidic coflowing devices [17]. By changing the values of the control parameters, which include inner-fluid and outer-fluid viscosities and

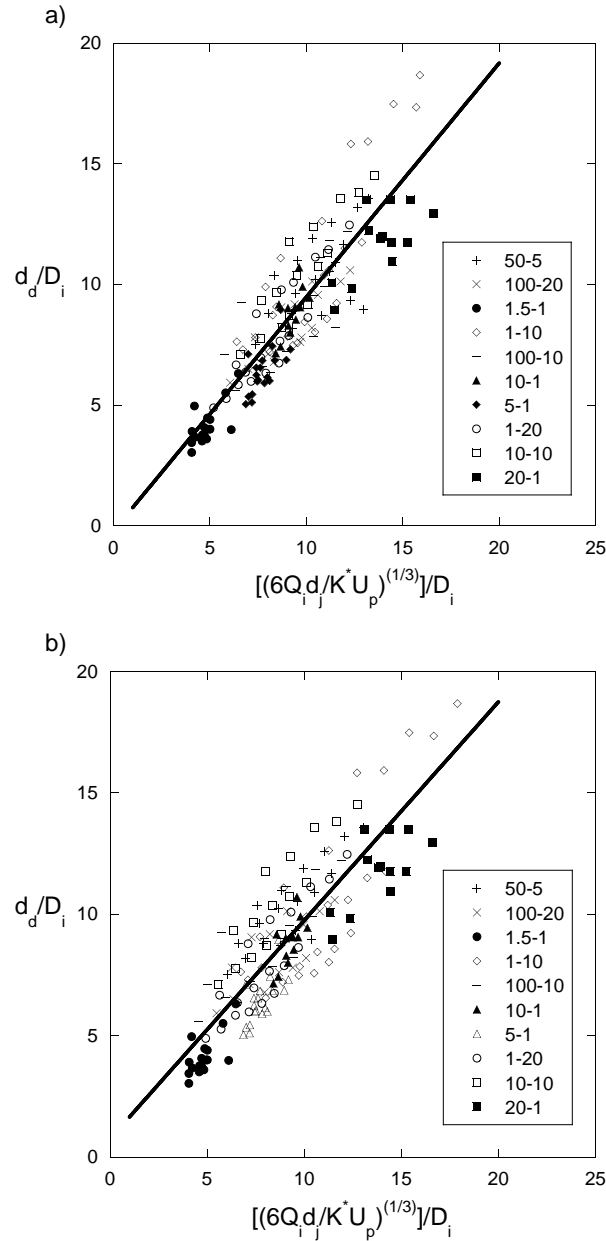


Figure 2.12: Experimentally measured drop diameters d_d/D_i as a function of the parameter $(6 Q_i d_j / (D_i^3 k^* U_p))^{1/3}$. In both graphs, the slope of the linear regression fit to the experimental data is very close to 1, which is the experimental prediction given in equation (2.10). The relative errors, however, are $\pm 30\%$. Since the maximum experimental error is committed in the measurement of the tip velocity but is only of the order of $\sim 10\%$, the dispersion is attributable to necessary simplifications in the way the wavelength of maximum growth rate and the tip velocity, U_p , are calculated. Numbers in the legend indicate inner/outer viscosities in centipoises.

flow rates, we have extended the criterium for jetting to occur as a function of the Reynolds number of the inner fluid. When $Re_i > 1$, our results indicate that jetting occurs if $We_i > 1$, consistent with previous experiments [17], while for $Re_i < 1$, the correct measure to predict the transition from dripping to jetting is not We_i , but rather the capillary number of the inner fluid; jetting occurs in this case when $Ca_i > 1$.

By combining experiments and modelling, we have arrived at the conclusion that the physical idea underlying drop generation in both *narrowing* and the *widening* regimes [17] is the same: The period of drop formation is given by the time required to elongate the jet a distance equal to the wavelength of maximum growth rate. From a quantitative point of view, we have obtained that the size of the drops, d_d , generated either in the *narrowing* or in the *widening* jetting regimes can be calculated, with relative errors of about $\pm 30\%$, using a simple model relating d_d to the dimensionless wavenumber corresponding to the maximum growth rate, k^* , to the jet diameter, d_j , and to the velocity of the most downstream point in the jet, U_p . As a result, the only difference between the drop size generated in either the narrowing or widening regimes is the way k^* , d_j and U_p depend on the control parameters.

For the narrowing jets, since the values of the Ohnesorge number are usually moderate or large, and due to the small variation of k^* with Oh , we can approximate k^* by k_t^* , which is the wavenumber corresponding to the maximum growth rate in the limit $Oh \rightarrow \infty$ considered by Tomotika [61]. For the widening jets, this simplification in the determination of k^* is not applicable since the values of Oh are not large enough.

Additionally, in the case of the *narrowing* jets, $d_j = (4Q_i/\pi D_i^2)^{1/2}$ and $U_p = U_o$, while for the widening jets, $U_p = U_o \simeq Q_o/D_o^2$ only if the viscosity of the outer fluid is large enough; otherwise it needs to be determined experimentally. For these jets, we have obtained the value of d_j by using that these jets break-up through an absolute instability, implying that the relevant capillary velocity can be approximated by the inner-fluid, average velocity; using this fact and the approximate pinch-off time, we have estimated the jet diameter.

Our results provide a general description of the drop formation mechanism in coflowing liquids for both the narrowing and widening regimes

through a unique relation for the drop size. This understanding can aid future experimental approaches to the generation of emulsions using coflowing devices.

Capítulo 3

Condiciones para la formación de microchorros en coflujos viscosos

3.1. Introducción

Tal y como se expuso en el capítulo anterior, el tamaño de las gotas de un líquido obtenidas a través de un coflujo de otro líquido inmisible con él, es mayor o igual que el diámetro del capilar de inyección, que suele tener un tamaño comprendido entre las 10 y las 100 micras cuando el dispositivo opera en el denominado régimen de widening. En la mayoría de las aplicaciones tecnológicas enumeradas en el capítulo introductorio interesa, sin embargo, generar gotas con diámetros del orden de la micra o menores. Esto puede lograrse utilizando la configuración de coflujo. En efecto, los resultados numéricos de Suryo y Basaran [12] fueron confirmados experimentalmente por Marín *et al.* [23], quienes además demostraron que es posible formar de manera estable un chorro de líquido cuyo diámetro puede ser cientos de veces inferior al de la aguja de inyección. Bajo estas condiciones, las gotas obtenidas pueden tener un diámetro varios órdenes de magnitud inferior al diámetro del capilar de inyección. Tal y como se detalla en Marín *et al.* [23], este régimen de formación de gotas submicrométricas puede reproducirse experimentalmente bajo las condiciones que se enumeran a continuación. En primer lugar, con el objeto de que el flujo exterior no se desprenda de la superficie de la gota, el número de Reynolds exterior definido como $Re_o = \rho_o U_o R_i / \mu_o$, ha de ser tal que $Re_o \ll 1$. Nótese que, en lo que sigue, los subíndices o e i servirán para indicar las magnitudes correspondientes a los flujos exterior e interior. Por otra parte, ρ , μ y U denotan, respectivamente, densidad, viscosidad y velocidad mientras que R_i es el radio del capilar de inyección (véase la figura 3.1). Además, para que el diámetro del chorro sea mucho menor que el de la aguja de inyección, la relación entre las velocidades de los flujos interior y exterior ha de cumplir que $U_i / U_o = Q_i / (\pi R_i^2 U_o) \ll 1$, donde Q_i es el caudal del fluido interior. Por otra parte, para asegurar que el momento exterior se difunde de manera eficiente en el fluido interior, el número de Reynolds interior $Re_i = \rho_i U_i R_i / \mu_i$ ha de ser mucho menor que la unidad. Por último, para que los esfuerzos viscosos puedan balancear las fuerzas de confinamiento debidas a la tensión superficial, el número Capilar exterior, definido como $Ca_o = \mu_o U_o / \sigma$, donde σ indica la tensión interfacial entre los dos fluidos, ha de estar por encima de un valor crítico de orden unidad. En efecto, la figura 3.2 muestra que, si Ca_o no excede el valor umbral, las gotas de la fase dispersa se forman directamente desde la punta del capilar de inyección [17]. Esta es la razón de que el menor valor del número capilar exterior en los experimentos y simulaciones detalladas a continuación sea $Ca_o = 5$.

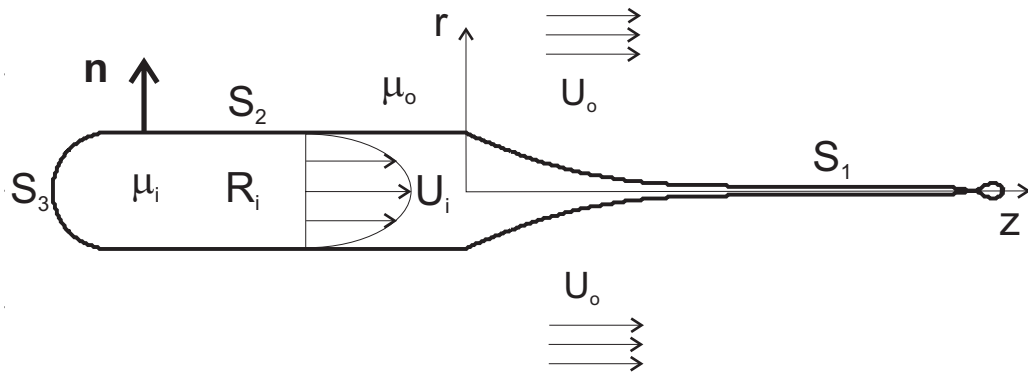


Figura 3.1: Esquema en el que se indican las distintas variables dimensionales del problema, así como la geometría utilizada para resolver numéricamente el coflujo de dos fluidos inmiscibles mediante el código de elementos de contorno para la ecuación de Stokes descrito en el apéndice A.

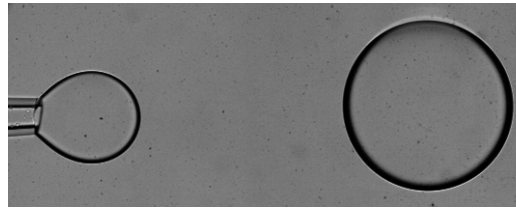


Figura 3.2: Chorro operado en régimen de dripping con agua como fluido interior y aceite de silicona de 10 cp como fluido exterior para $Ca_o = 2 \cdot 10^{-2}$, $U_i/U_o = 16$, $\lambda = 10^{-1}$, $Q_i = 6 \text{ ml/h}$, $Q_o = 300 \text{ ml/h}$, $\rho_o = \rho_i = 1000 \text{ Kg/m}^3$ y $\sigma = 40 \text{ mN/m}$. La aguja de inyección tiene un diámetro interior de $40 \mu\text{m}$ y la gota generada tiene $387 \mu\text{m}$ de diámetro.

Como fluidos de trabajo se emplean aceites de silicona de diferentes viscosidades, glicerina, agua y aire. Las propiedades físicas de las distintas parejas de fluidos inmiscibles empleadas se detallan en la tabla 3.1. Estas combinaciones nos permiten variar el parámetro de relación de viscosidad, $\lambda = \mu_i/\mu_o$, entre 10^{-1} y 10^{-5} . Por otra parte, la velocidad característica del fluido exterior en los experimentos mostrados a continuación, varía entre

$U_o \sim 10^{-1} \text{ m s}^{-1}$ y $U_i \sim 1 \text{ m s}^{-1}$. Por tanto, el número de Reynolds exterior es tal que $Re_o < 10^{-1}$. Debido a que en todos los experimentos correspondientes a este capítulo la relación de velocidades es tal que $U_i/U_o \ll 1$, el número de Reynolds interior Re_i varía entre 10^{-3} y 10^{-5} . Puesto que $Re_o \ll 1$, $Re_i \ll 1$ y el número de Bond definido con la diferencia de densidades $Bo = \Delta\rho g R_i^2/\sigma$, con g indicando la aceleración de la gravedad, es tal que $Bo \ll 1$, los únicos parámetros adimensionales que caracterizan la situación experimental esquematizada en la figura 3.1 son la relación de velocidades U_i/U_o , el número capilar exterior Ca_o y la relación de viscosidades λ .

Fluido interior/Fluido exterior	μ_i (cp)	μ_o (cp)	ρ_i (Kg/m^3)	ρ_o (Kg/m^3)	σ (mN/m)
Aceite silicona 10/Glicerina	10	1000	913	1255	25
Aceite silicona 100/Glicerina	100	1000	960	1255	25
Agua/Aceite silicona 1000	1	1000	1000	1000	40
Aire/Aceite silicona 1000	0.018	1000	1.19	1000	20

Cuadro 3.1: Propiedades físicas de las distintas parejas de fluidos empleadas en los experimentos para una temperatura ambiente de $24^\circ C$.

Este capítulo está estructurado de la siguiente manera: en 3.3 se muestran diversos experimentos que ilustran cómo influyen cada uno de los tres parámetros anteriormente mencionados en la geometría del ligamento de líquido. Para elucidar el papel crítico que juega la relación de viscosidades en estos experimentos de coflujo, en la sección 3.4 se comparan las formas de los chorros obtenidos mediante el código de elementos de contorno para las ecuaciones de Stokes descrito en el apéndice A, con las medidas experimentales. El buen acuerdo entre simulaciones y experimentos indica que los resultados numéricos pueden ser utilizados para el cálculo de magnitudes difícilmente medibles experimentalmente. Por tanto, para interpretar adecuadamente los experimentos, en la sección 3.5 se muestran los campos de velocidad obtenidos numéricamente para distintos valores de los parámetros de control. Finalmente, en la sección 3.6 se hace un balance de fuerzas que ilustra por qué es imposible formar ligamentos estables de gas en esta configuración de coflujo. Por tanto, ésta técnica -que es útil para generar microemulsiones- no es adecuada para formar microburbujas y microespumas. Gracias a las conclusiones de este capítulo, propondremos un procedimiento original para producir microburbujas monodispersas de manera estable y que será el tema que se desarrollará extensamente en el capítulo 4.

3.2. Resultados experimentales

Puesto que el propósito de este apartado sólo es mostrar de manera cualitativa el efecto que tiene sobre la geometría del ligamento de líquido cada uno de los tres parámetros de control, en esta sección únicamente se expondrán una pequeña parte de los numerosos experimentos llevados a cabo como parte del estudio de la generación de microemulsiones a través de coflujos viscosos. El montaje experimental correspondiente a este tipo de experimentos está detallado en el apéndice C.

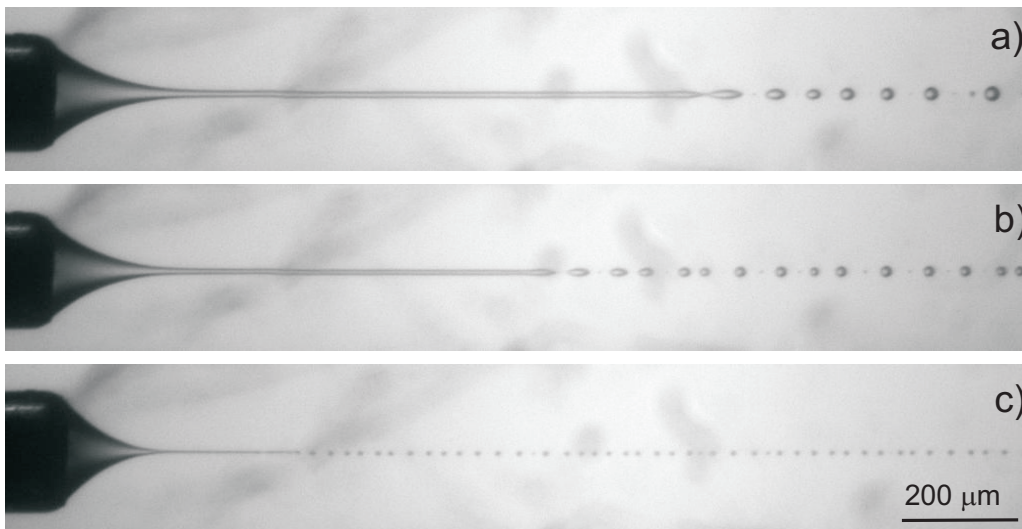


Figura 3.3: Serie de experimentos con aceite de silicona de 10 cp como fluido interior y glicerina como fluido exterior (caso $\lambda = 10^{-2}$ en la tabla 3.1) para $Ca_o = 5$ y distintas relaciones de velocidad: (a) $U_i/U_o = 10^{-2}$, $Q_i = 5 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 7 \text{ ml}/\text{min}$; (b) $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$, $Q_i = 3 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 7 \text{ ml}/\text{min}$; (c) $U_i/U_o = 5 \cdot 10^{-4}$, $Q_i = 2 \cdot 10^{-2} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 7 \text{ ml}/\text{min}$.

La figura 3.3 muestra que al disminuir la relación de velocidades U_i/U_o manteniendo fijos los valores de λ y Ca_o , el diámetro del chorro decrece. De hecho, tal y como se describe en Marín *et al.* [23], es posible obtener gotas con diámetros inferiores a la micra (véase la figura 3.4) si se eligen apropiadamente las condiciones de operación.

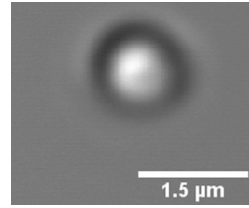


Figura 3.4: Gota de aceite de $1 \mu m$ de diámetro obtenida mediante la configuración de coflujo por Marín *et al.* [23] empleando glicerina como fluido exterior.

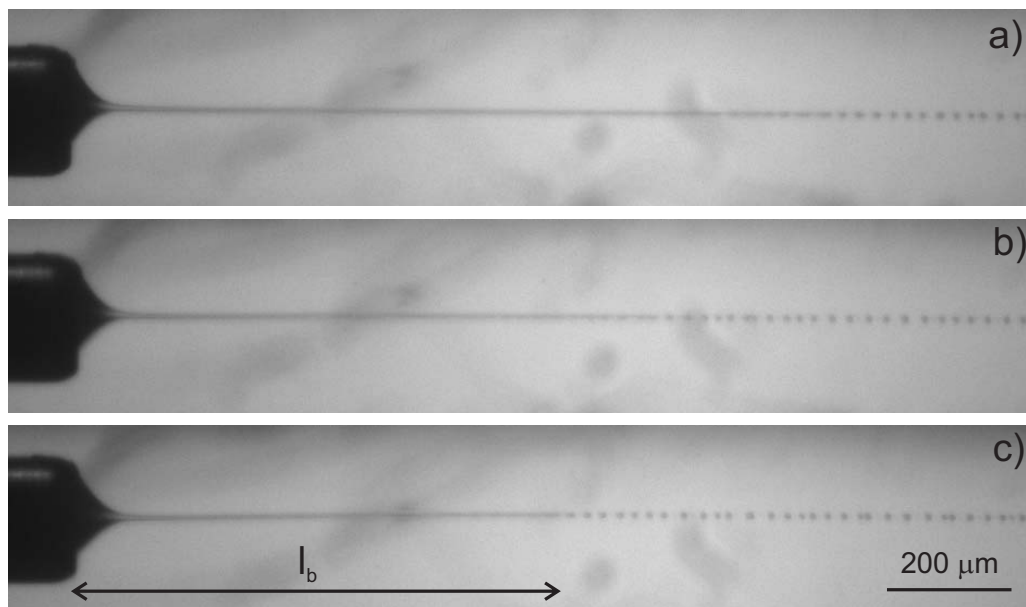


Figura 3.5: Serie de experimentos con aceite de silicona de 100 cp como fluido interior y glicerina como fluido exterior (caso $\lambda = 10^{-1}$ en la tabla 3.1) para $U_i/U_o = 10^{-3}$ y distintos valores del Capilar exterior: (a) $Ca_o = 8$, $Q_i = 8 \cdot 10^{-2} \mu l/min$, $Q_o = 11 ml/min$, $l_b = 1200 \mu m$; (b) $Ca_o = 6$, $Q_i = 7 \cdot 10^{-2} \mu l/min$, $Q_o = 8 ml/min$, $l_b = 924 \mu m$; (c) $Ca_o = 5$, $Q_i = 5 \cdot 10^{-2} \mu l/min$, $Q_o = 7 ml/min$, $l_b = 790 \mu m$.

En efecto, tal y como se demuestra en Marín *et al.* [23] y en el capítulo 2 de esta Tesis, cuando la relación de viscosidades y el número capilar están por encima de un cierto umbral, los coflujos a bajos números de Reynolds permiten generar chorros estables con diámetros $d_j/R_i \propto (Q_i/(U_o R_i^2))^{1/2}$. Por

tanto, puesto que el diámetro d_g de las gotas formadas por el crecimiento de una inestabilidad capilar es tal que $d_g \propto d_j$, si $U_i/U_o \ll 1$, es posible generar gotas que cumplan con la condición $d_g/R_i \ll 1$.

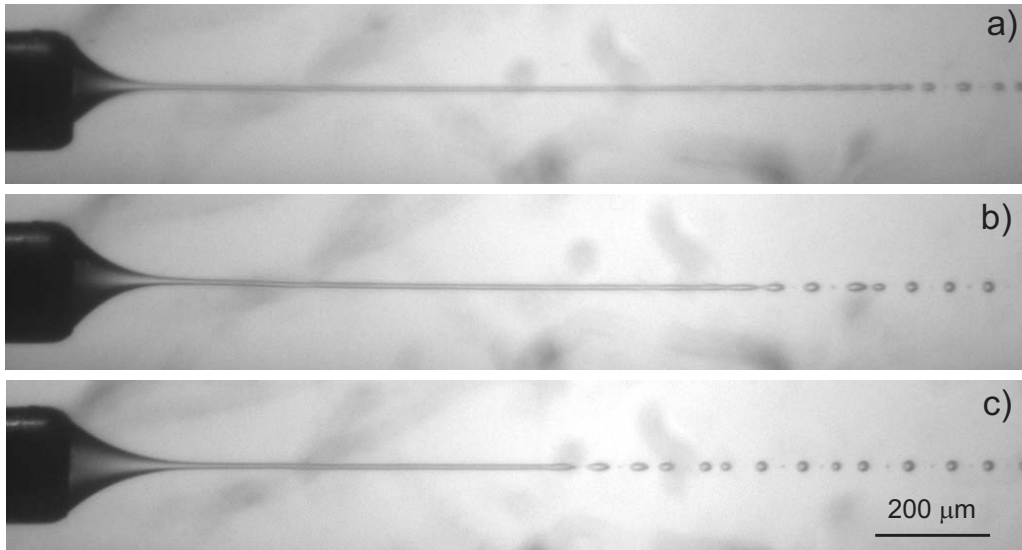


Figura 3.6: Serie de experimentos con aceite de silicona de 10 cp como fluido interior y glicerina como fluido exterior (caso $\lambda = 10^{-2}$ en la tabla 3.1) para $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$ y distintos valores del Capilar exterior: (a) $Ca_o = 12$, $Q_i = 5 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 16 \text{ ml}/\text{min}$, $l_b = 1408 \mu\text{m}$; (b) $Ca_o = 9$, $Q_i = 4 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 12 \text{ ml}/\text{min}$, $l_b = 1167 \mu\text{m}$; (c) $Ca_o = 5$, $Q_i = 3 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 7 \text{ ml}/\text{min}$, $l_b = 903 \mu\text{m}$.

Por otra parte, las figuras 3.5 y 3.6 ilustran el efecto de aumentar el número capilar exterior manteniendo λ y U_i/U_o constantes. Nótese que, tal y como se puntualizó en la introducción de este capítulo, en estos experimentos el valor del número capilar está siempre por encima del valor crítico que determina la transición entre dripping y jetting. Del análisis de los experimentos se concluye que, mientras que el diámetro del chorro no depende apreciablemente del número capilar, la longitud intacta l_b del ligamento líquido (véanse las figuras 3.5 y 3.6 para una definición gráfica de l_b) es proporcional a Ca_o . También se observa en estas figuras que la geometría de la región de transición entre el cono y el chorro tiende a hacerse más esbelta al disminuir el número capilar exterior.

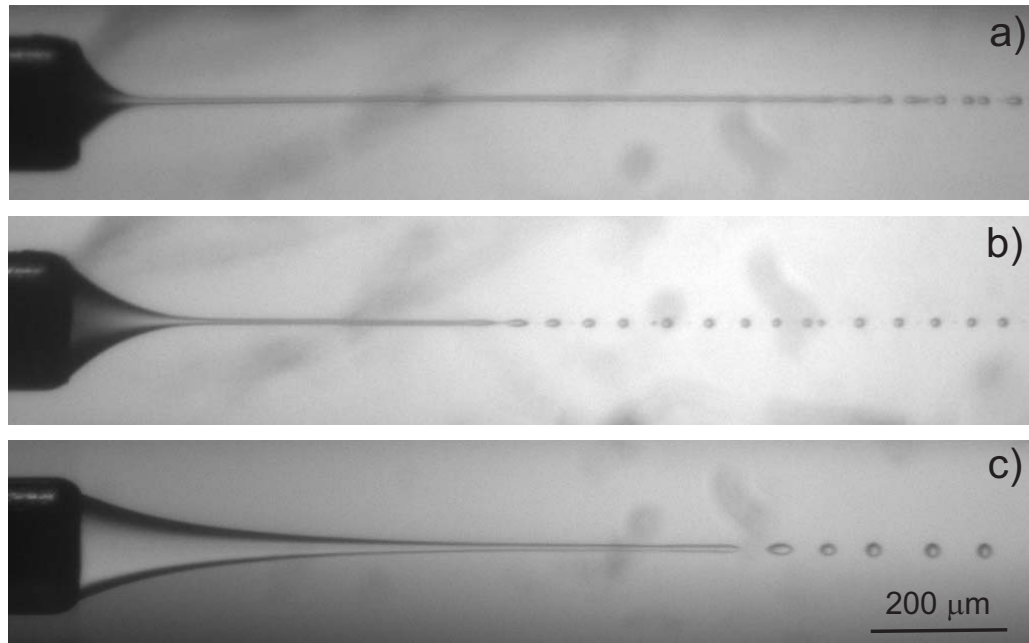


Figura 3.7: Serie de experimentos con $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 4 \cdot 10^{-3}$, $Q_i = 2 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$ y $Q_o = 7 \text{ ml}/\text{min}$ para distintos valores de la relación de viscosidades: (a) $\lambda = 10^{-1}$, donde el fluido interior es aceite de silicona de 100 cp y el fluido exterior glicerina; (b) $\lambda = 10^{-2}$, empleando como fluido interior aceite de silicona de 10 cp y como fluido exterior glicerina; (c) $\lambda = 10^{-3}$, donde el fluido interior es agua y el exterior aceite de silicona de 1000 cp.

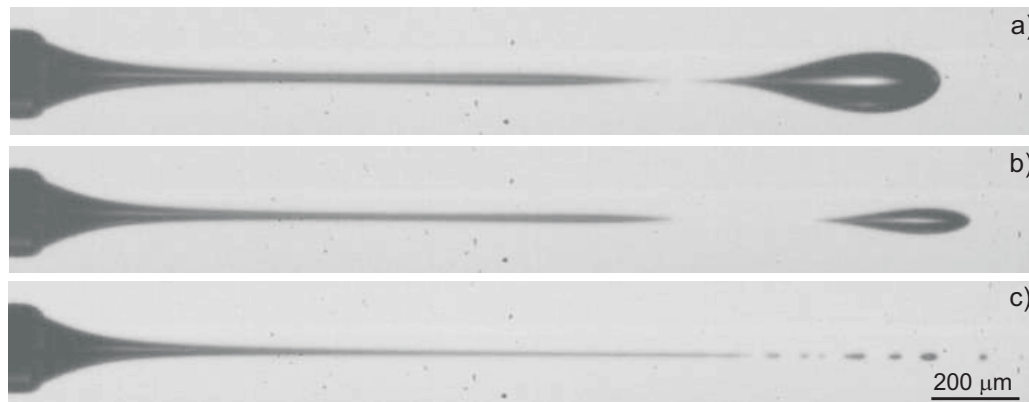


Figura 3.8: Secuencia de imágenes con aire como fluido interior y aceite de silicona de 1000 cp como fluido exterior (caso $\lambda = 1.8 \cdot 10^{-5}$ en la tabla 3.1) para $Ca_o = 15$, $U_i/U_o = 8 \cdot 10^{-2}$, $Q_i = 9 \mu\text{l}/\text{min}$ y $Q_o = 18 \text{ ml}/\text{min}$.

De manera análoga, de los experimentos para distintos valores de λ manteniendo Ca_o y U_i/U_o constantes mostrados en la figura 3.7, se concluye que la zona de transición cono-chorro es tanto más esbelta cuanto menor es λ . Además, a pesar de que la relación de velocidades es idéntica en todos los experimentos mostrados, obsérvese que el diámetro del chorro en el caso de menor relación de viscosidad ($\lambda = 10^{-3}$) es mayor que en los casos $\lambda = 10^{-1}$, 10^{-2} . Por otra parte, cuando la relación de viscosidades es suficientemente pequeña -como la que se da cuando por el interior se inyecta aire y por el exterior glicerina, en cuyo caso se tiene que $\lambda \simeq 1.8 \times 10^{-5}$ - el ligamento de gas no es estable y, por tanto, el proceso de formación de burbujas deja de ser periódico, tal y como se aprecia en la figura 3.8. Con el objeto de explicar todas estas observaciones, en la sección siguiente se comparan los resultados experimentales con los obtenidos a través de un código numérico de elementos de contorno que se ha desarrollado como parte de esta Tesis.

3.3. Comparación entre los resultados numéricos y experimentales

Los resultados numéricos mostrados en esta sección han sido obtenidos mediante un código de elementos de contorno para la ecuación de Stokes que se describe en detalle en el apéndice A. Como puede observarse en la figura 3.1, la geometría utilizada para el cálculo numérico difiere de la real en los siguientes aspectos: mientras que la aguja de inyección tiene un espesor finito, para el cálculo consideraremos que el espesor es nulo y, mientras que el flujo exterior es en la realidad parabólico, en el código numérico éste se aproximará por uno uniforme cuya velocidad, lejos de la aguja, es igual al de aquellas gotas que se encuentran muy lejos de la salida del tubo de inyección. Nótese que, para comparar experimentos con simulaciones, la velocidad de las gotas se ha determinado a través del análisis de las imágenes experimentales. Asimismo, el cálculo del caudal interior Q_i , se ha realizado de forma indirecta a partir del diámetro de las gotas d_g , y de la frecuencia de producción f como $Q_i = \pi d_g^3 f / 6$.

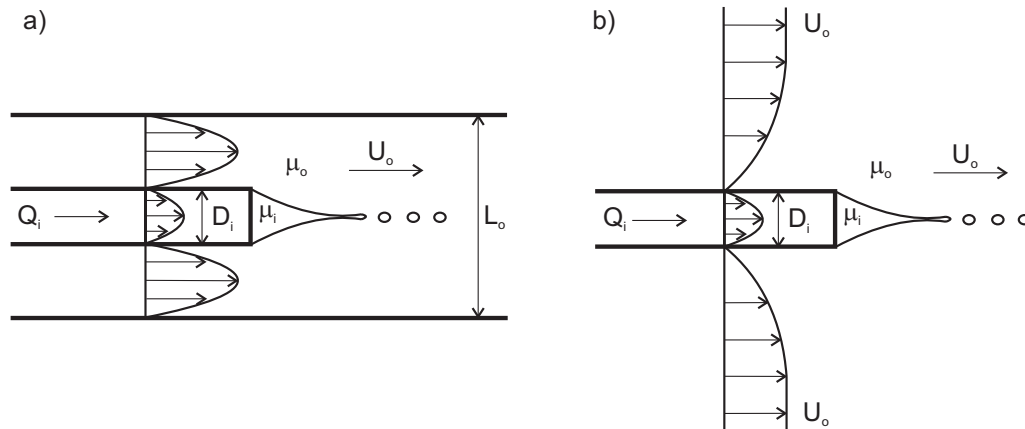


Figura 3.9: Esquema del experimento -nótese que la aguja de inyección no está a escala- (a) y simplificación hecha para el cálculo numérico (b).

Aunque el tubo capilar a través del que se inyecta el líquido interior ha sido afilado para disminuir la diferencia entre los diámetros interior y exterior, en la práctica, el chorro de líquido de fase dispersa tiende a mojar la aguja de inyección (véase la figura 3.10). Por tanto, a efectos de comparación, las imágenes de las simulaciones numéricas se superpondrán con las experimentales en aquella posición axial en la cual el diámetro del chorro coincide con el diámetro interior de la aguja ($R_i = 100 \mu m$).

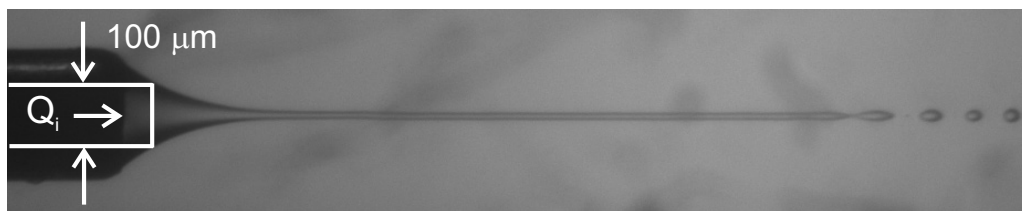


Figura 3.10: Posición axial en la que ha de situarse la aguja de inyección del código numérico para que el resultado de éste pueda ser comparado con la imagen experimental.

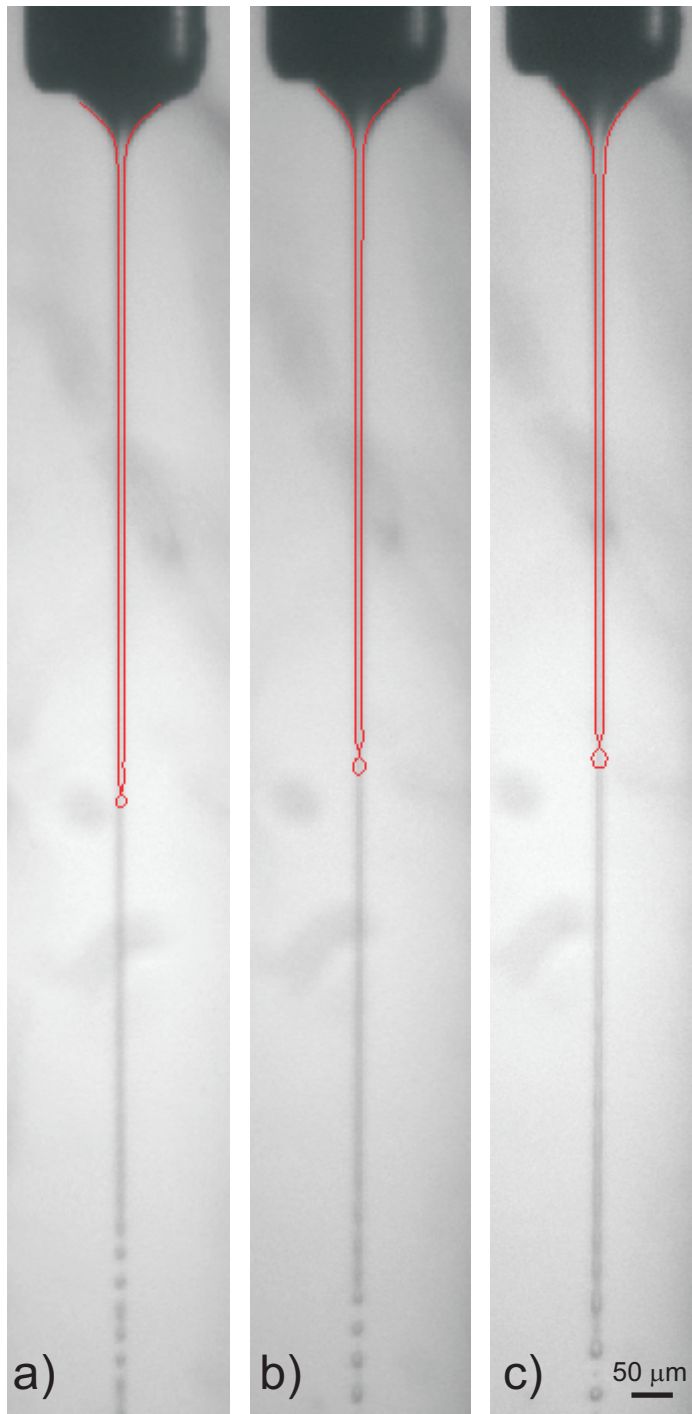


Figura 3.11: Superposición de experimentos y simulaciones con aceite de silicona de 100 cp como fluido interior y glicerina como fluido exterior (caso $\lambda = 10^{-1}$ en la tabla 3.1): (a) $Ca_o = 8$, $U_i/U_o = 2 \cdot 10^{-3}$, $Q_i = 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 11 \text{ ml}/\text{min}$; (b) $Ca_o = 6$, $U_i/U_o = 3 \cdot 10^{-3}$, $Q_i = 2 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 8 \text{ ml}/\text{min}$; (c) $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$, $Q_i = 3 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 7 \text{ ml}/\text{min}$.

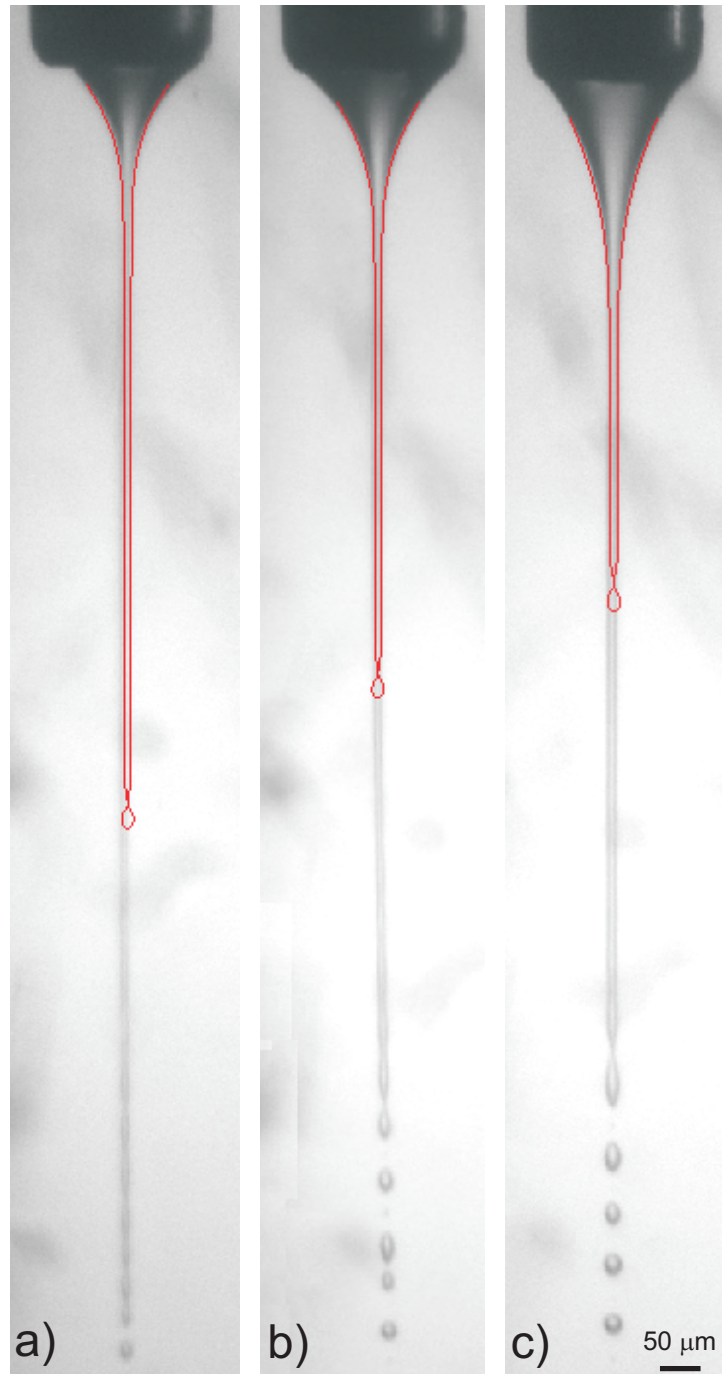


Figura 3.12: Superposición de experimentos y simulaciones con aceite de silicona de 10 cp como fluido interior y glicerina como fluido exterior (caso $\lambda = 10^{-2}$ en la tabla 3.1): (a) $Ca_o = 12$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$, $Q_i = 5 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 16 \text{ ml}/\text{min}$; (b) $Ca_o = 9$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$, $Q_i = 4 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 12 \text{ ml}/\text{min}$; (c) $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 10^{-2}$, $Q_i = 5 \cdot 10^{-1} \mu\text{l}/\text{min}$, $Q_o = 7 \text{ ml}/\text{min}$.

Las figuras 3.11 y 3.12 muestran que, a pesar de las simplificaciones realizadas, existe un buen ajuste entre los experimentos y los resultados numéricos para toda la gama de condiciones de operación explorada (relaciones de viscosidad $\lambda = 10^{-1}$ y 10^{-2} y distintos valores de Ca_o y U_i/U_o). Puesto que la rotura del chorro en gotas se debe al crecimiento de una inestabilidad convectiva, las diferencias entre las longitudes de rotura numérica y experimental son atribuibles al distinto nivel de ruido que existe entre la realidad y la simulación numérica. A pesar de ello, como se aprecia en las figuras 3.11 y 3.12, la simulación reproduce fielmente tanto la geometría de la transición cono-chorro como el radio del chorro antes de que éste rompa en gotas.

Gracias al buen ajuste de las simulaciones con los experimentos, es plausible usar la información extraída de las primeras para averiguar la forma de los perfiles de velocidad en una situación real. En la figura 3.13 se representa la forma numérica del chorro para $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$ y distintos valores de λ . De manera análoga a lo que se observa experimentalmente en la figura 3.7, a medida que λ decrece manteniendo constantes los otros dos parámetros de control, la zona de transición cono-chorro es más elongada. Nótese que los valores de Ca_o , U_i/U_o y λ son iguales a los de la figura 3.13 en todas las simulaciones que se exponen a continuación.

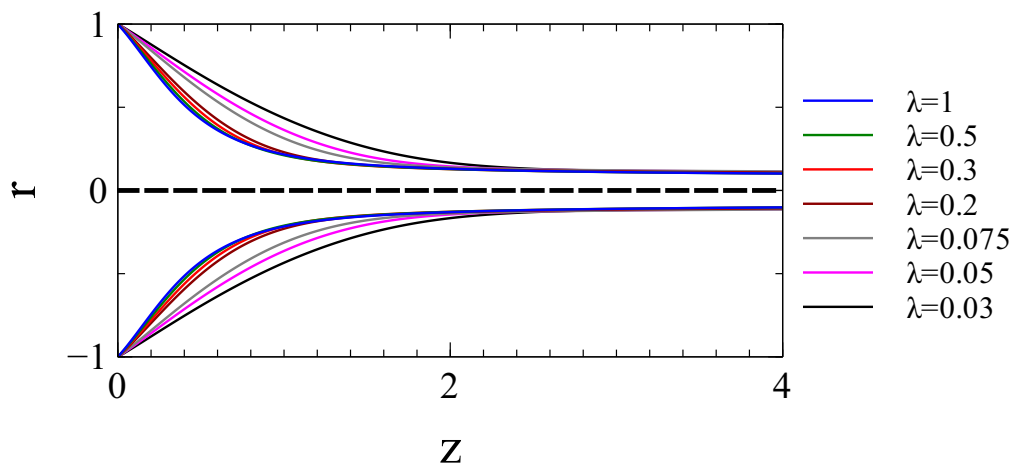


Figura 3.13: Forma final del chorro, obtenida numéricamente, para $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$ y distintos λ . Obsérvese que la forma es tanto más esbelta cuanto menor es la relación de viscosidades.

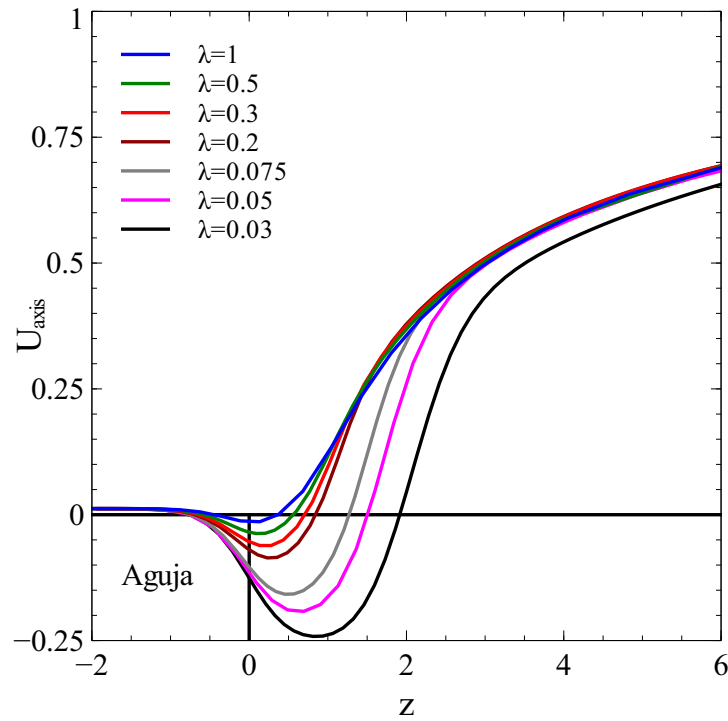


Figura 3.14: Variación de la velocidad en el eje U_{axis} frente a z para $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$ y distintas relaciones de viscosidad λ .

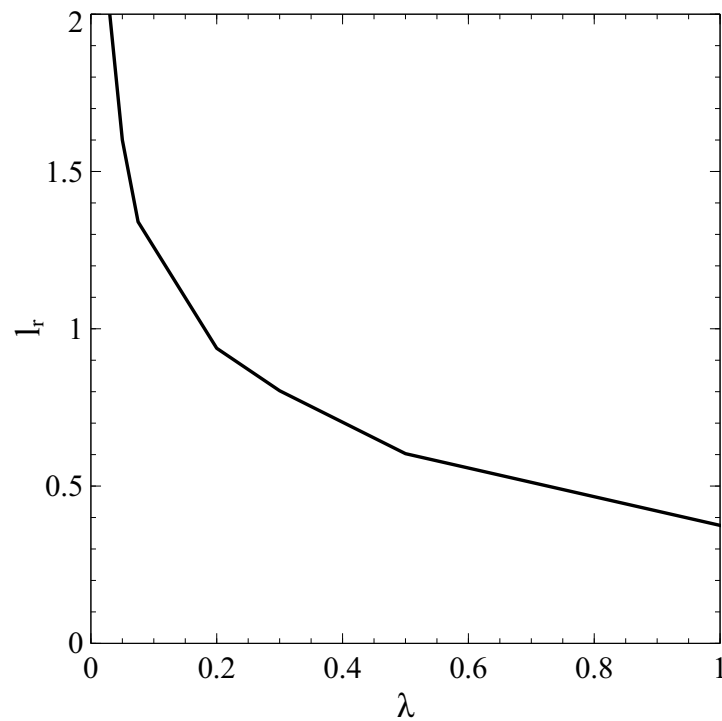


Figura 3.15: Variación de la longitud de recirculación frente a λ para $Ca_o = 5$ y $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$.

La figura 3.14 muestra la influencia de λ en la evolución de la velocidad en el eje U_{axis} con la distancia a la salida de la aguja z . De esta figura se desprende que en la región cercana a la salida el tubo existe una región de recirculación -es decir, una región en la que $U_{axis} \leq 0$ - cuya longitud adimensional l_r crece al disminuir λ (véase la figura 3.15).

Por otra parte, de la figura 3.16 se concluye que la velocidad en la superficie del chorro es poco sensible a λ , a pesar de que este parámetro varía en dos órdenes de magnitud. Por el contrario, la figura 3.17 muestra que la diferencia de velocidades $U_s - U_{axis}$ depende fuertemente de la relación de viscosidades. Asimismo, en la figura 3.19 se representan los perfiles de velocidad en el interior del chorro para las posiciones axiales indicadas en la figura 3.18.

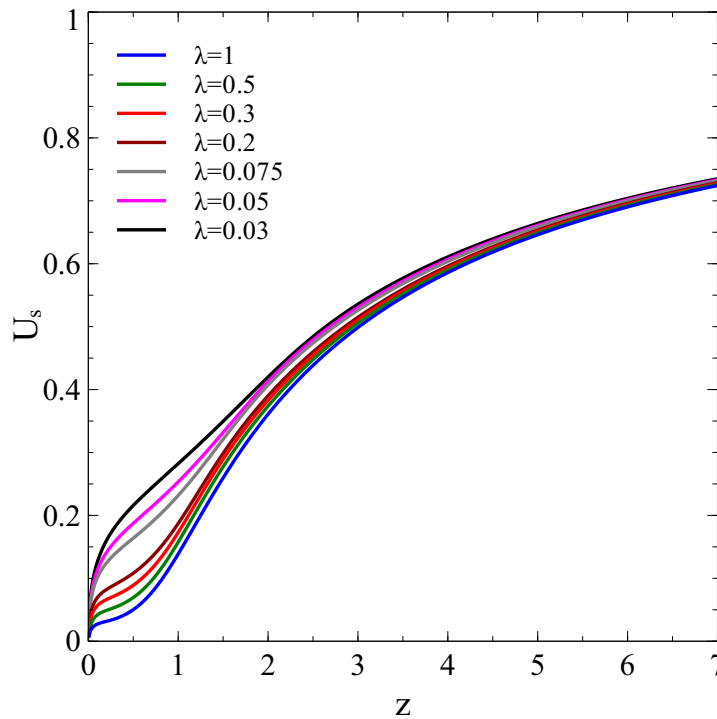


Figura 3.16: Variación de la velocidad axial en la superficie del chorro U_s frente a z para $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$ y distintas relaciones de viscosidad λ .

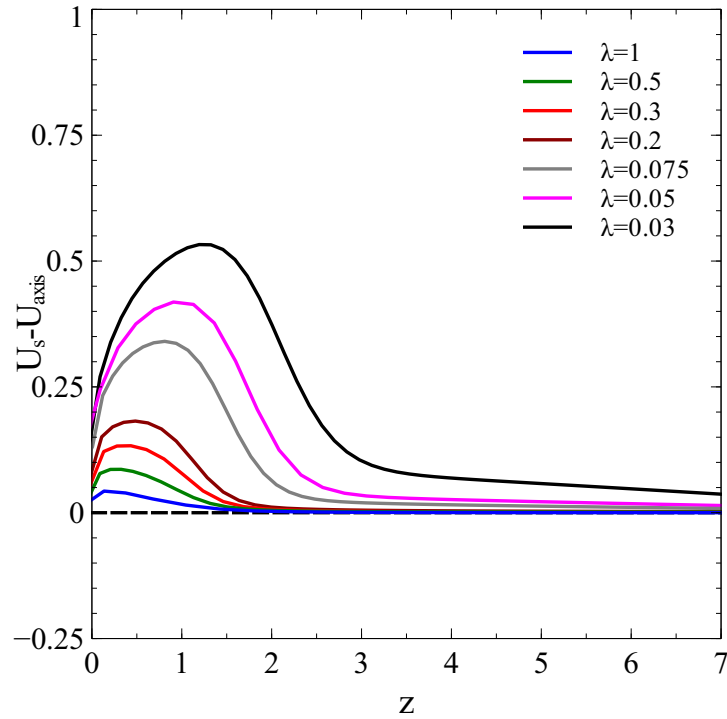


Figura 3.17: Evolución con z de la diferencia entre la componente axial de la velocidad en la interfase U_s y la del eje U_{axis} para $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$ y distintas relaciones de viscosidad λ .

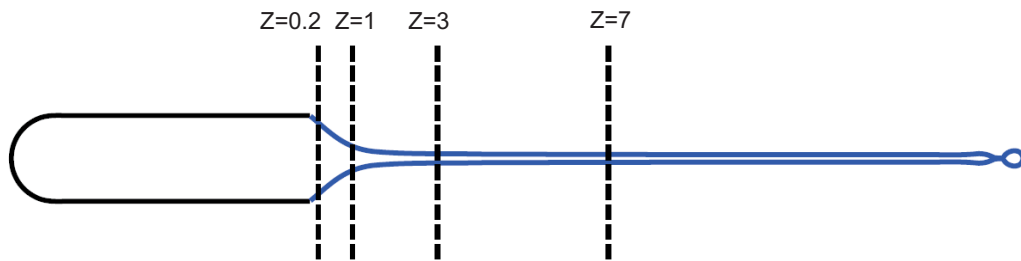


Figura 3.18: Posiciones axiales para las cuales se han calculado los perfiles de velocidad longitudinal.

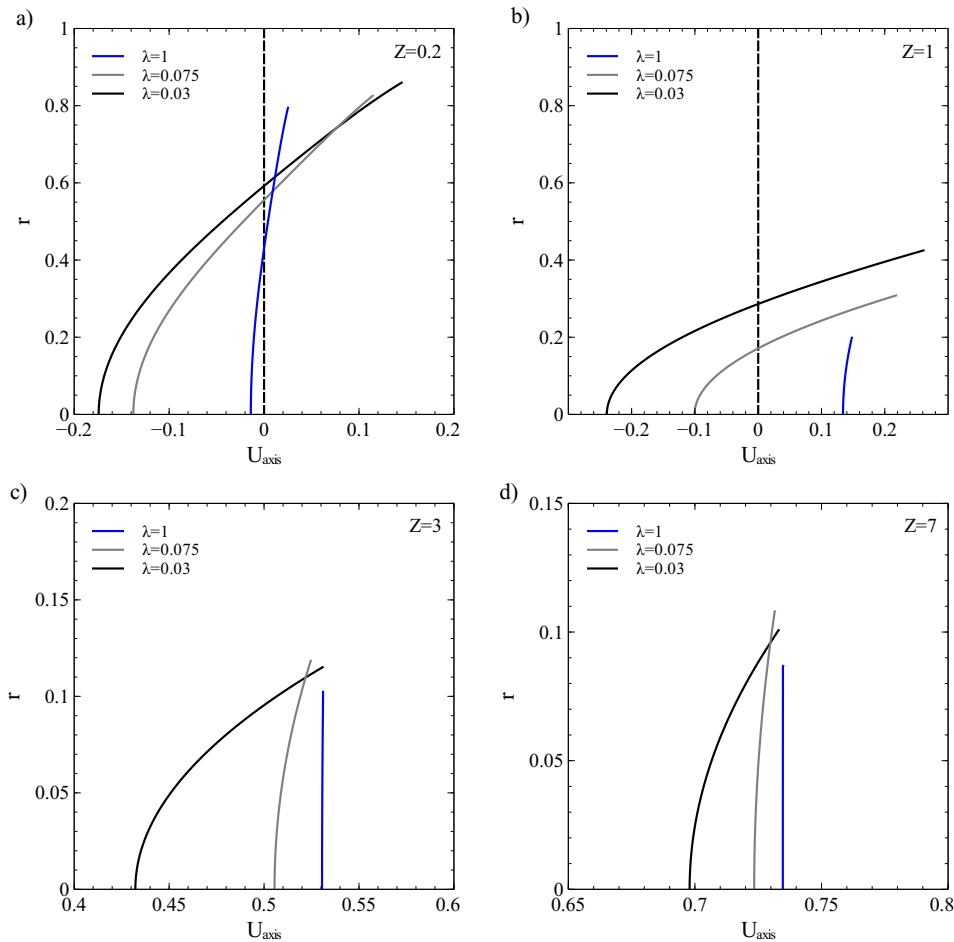


Figura 3.19: Perfiles de velocidad axial en el interior del chorro en (a) $z = 0.2$, (b) $z = 1$, (c) $z = 3$ y (d) $z = 7$ para diversos valores de λ , con $Ca_o = 5$ y $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$. Mientras que la velocidad en la superficie del chorro es poco sensible al valor de la relación de viscosidades, la velocidad en el eje depende fuertemente de λ . De la forma de parábola invertida de estos perfiles de velocidad, se deduce que el gradiente de presiones para este flujo de Stokes, es adverso.

Los perfiles de velocidad con forma de parábola invertida mostrados en la figura 3.19 indican que el gradiente de presiones para el movimiento del fluido interior es adverso. Tanto esta conclusión como el origen del gradiente adverso de presiones quedan aclarados en la siguiente sección.

3.3.1. Balance de fuerzas en una sección transversal del chorro

Debido a que los chorros mostrados en este capítulo son esbeltos, las ecuaciones de continuidad y cantidad de movimiento en coordenadas cilíndricas

$$\frac{\partial(ru_r)}{\partial r} + r \frac{\partial u_z}{\partial z} = 0 \quad (3.1)$$

y

$$ru_r \frac{\partial u_z}{\partial r} + ru_z \frac{\partial u_z}{\partial z} = -\frac{r}{\rho} \frac{\partial P_i}{\partial z} + r\nu_i \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} + \nu_i \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial u_z}{\partial r} \right), \quad (3.2)$$

pueden ser aproximadas usando la simplificación $\dot{R} = u_r/u_z \ll 1$, donde R es la forma del chorro. Integrando las ecuaciones anteriores entre 0 y R , se obtiene

$$ru_r + \frac{r^2}{2} \frac{\partial u_z}{\partial z} = 0 \quad (3.3)$$

y

$$\frac{\partial(R^2 u_z^2)}{\partial z} = -\frac{R^2}{\rho_i} \frac{\partial P_i}{\partial z} + \nu_i 2R \frac{\partial u_z}{\partial r} + \nu_i R^2 \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2}, \quad (3.4)$$

Despreciando términos del orden de \dot{R}^2 , las proyecciones normal y tangencial a la superficie del chorro del vector de esfuerzo sobre la superficie quedan

$$\tau_p = (\bar{\tau}'_i \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{t} \simeq \mu_i \frac{\partial u_z}{\partial r} - 3\mu_i \dot{R} \frac{\partial u_z}{\partial z} - \mu_i \frac{R}{2} \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} \quad (3.5)$$

y

$$(\bar{\tau}_i \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n} \simeq -2\mu_i \dot{R} \frac{\partial u_z}{\partial r} - \mu_i \frac{\partial u_z}{\partial z} + \mu_i R \dot{R} \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} - \frac{\partial P_i}{\partial z}. \quad (3.6)$$

Despejando de la ecuación (3.6) el valor de $\partial P_i/\partial z$, sustituyendo en la expresión (3.4) y despreciando aquellos términos de orden $(R/L)^2 \ll 1$ resulta

$$\frac{\partial(R^2 u_z^2)}{\partial z} = -\frac{R^2}{\rho_i} \frac{\partial [(\bar{\tau}_i \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}]}{\partial z} + \frac{2R\tau_p}{\rho_i} + 3\nu_i \frac{\partial}{\partial z} \left(R^2 \frac{\partial u_z}{\partial z} \right), \quad (3.7)$$

Adimensionalizando con la velocidad exterior U_o , el radio interior de la aguja R_i , la viscosidad del fluido exterior μ_o y teniendo en cuenta que el número de Reynolds $Re_o \ll 1$ se obtiene

$$0 = \frac{\partial [(\bar{\tau}_i \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}]}{\partial z} + \frac{2\tau_p}{R} + 3\lambda \frac{\partial}{\partial z} \left(R^2 \frac{\partial u_z}{\partial z} \right). \quad (3.8)$$

El término $2\tau_p/R$ representa la contribución de los esfuerzos tangenciales que la corriente exterior ejerce sobre la interior, el término $\partial[(\bar{\tau}_i \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}]/\partial z$ es el gradiente de presiones interior y $3\lambda(\partial/\partial z)(R^2\partial u_z/\partial z)$ representa la contribución del término viscoso extensional. Utilizando el balance de esfuerzos normales a la interfase

$$\frac{\partial[(\bar{\tau}_i \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}]}{\partial z} = \frac{\partial[(\bar{\tau}_o \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}]}{\partial z} - \frac{1}{Ca_o} \frac{d}{dz}(\nabla \cdot \mathbf{n}), \quad (3.9)$$

es posible descomponer el gradiente de presiones interior como suma del gradiente de presiones del flujo exterior más el gradiente de presiones de origen capilar.

Para comprobar la validez de la ecuación (3.8), en la figura 3.20 se ha representado la suma de los tres términos que aparecen involucrados que, como se observa, es aproximadamente igual a cero. En aquellas situaciones para las que $\lambda < 10^{-1}$ la desviación con respecto a cero es algo mayor. Esto es debido a que el cálculo numérico de las derivadas con respecto a la posición axial presenta un mayor nivel de ruido y ha sido necesario suavizar todos los términos implicados mediante un polinomio interpolante.

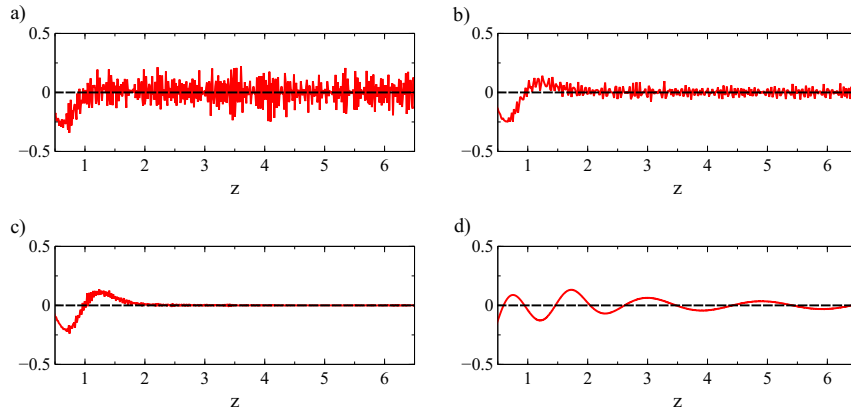


Figura 3.20: Suma de los distintos términos del balance de fuerzas unidireccional para $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$ y relaciones de viscosidad: (a) $\lambda = 1$, (b) $\lambda = 5 \cdot 10^{-1}$, (c) $\lambda = 3 \cdot 10^{-1}$ y (d) $\lambda = 5 \cdot 10^{-2}$. El resultado de la suma es prácticamente cero, lo que valida la aproximación unidireccional.

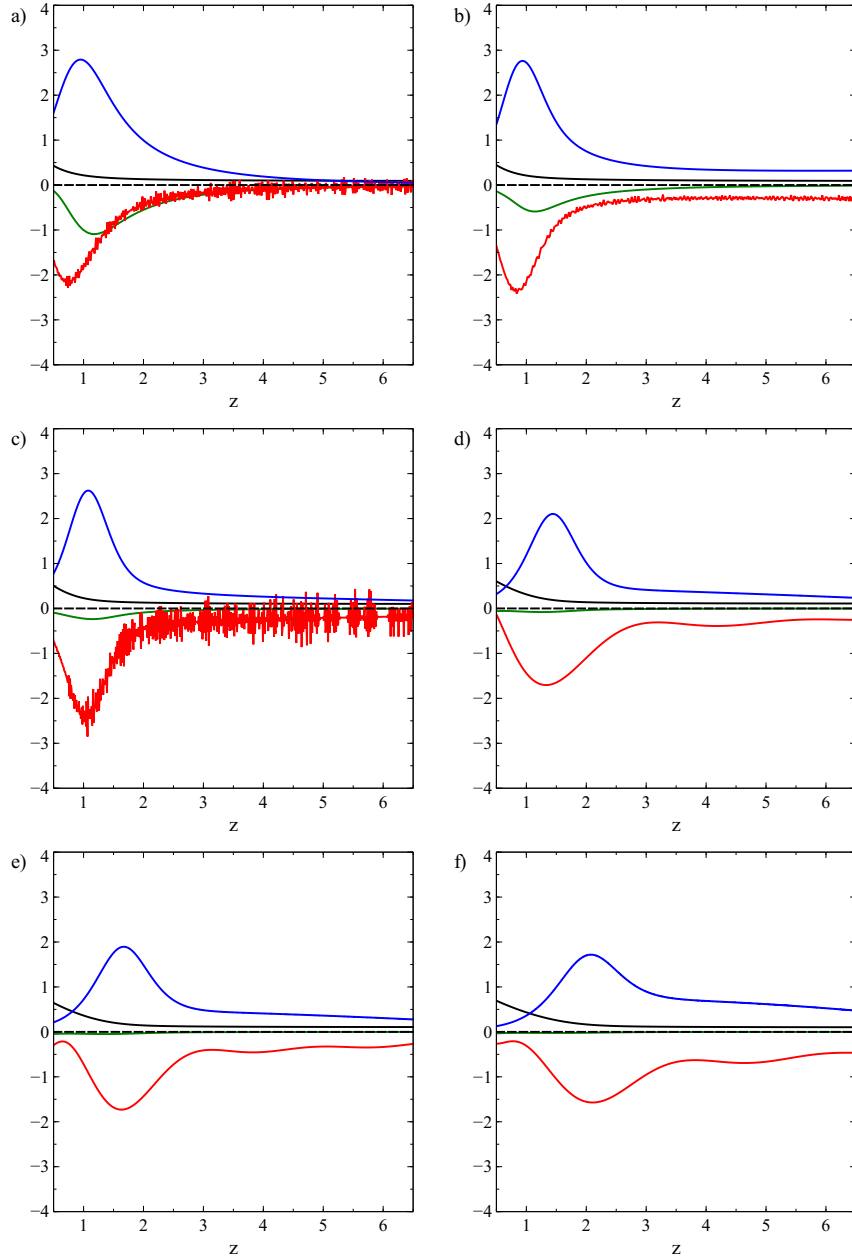


Figura 3.21: Fuerzas por unidad de volumen ejercidas en cada sección del chorro para $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^3$ y distintas relaciones de viscosidad: (a) $\lambda = 1$; (b) $\lambda = 5 \cdot 10^{-1}$; (c) $\lambda = 2 \cdot 10^{-1}$; (d) $\lambda = 7.5 \cdot 10^{-2}$; (e) $\lambda = 5 \cdot 10^{-2}$; (f) $\lambda = 3 \cdot 10^{-2}$. En azul se representan la resultante de los esfuerzos tangenciales $2\tau_p/f$, en rojo el gradiente de presiones interior $\simeq \partial[(\bar{\tau}_i \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}]/\partial z$, que es adverso, en verde la componente axial de las fuerzas viscosas $3\lambda\partial(f^2\partial u_z/\partial z)/\partial z$ y en negro la forma del chorro.

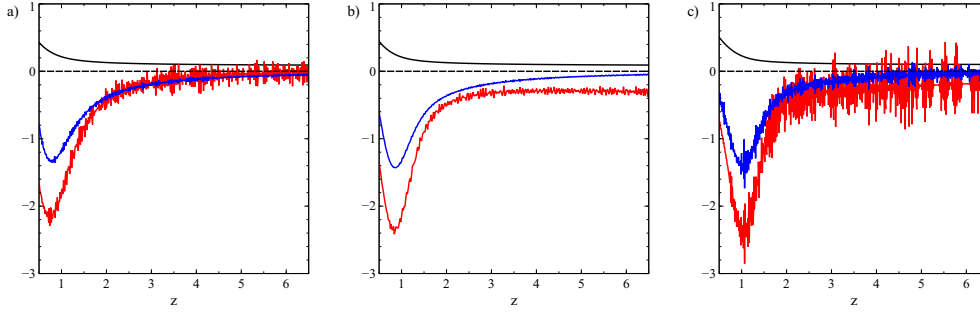


Figura 3.22: Gradiente interior de presiones $\simeq \partial[(\bar{\tau}_i \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{n}]/\partial z$ (rojo), contribución del término capilar $-(1/Ca_o)d(\nabla \cdot \mathbf{n})/dz$ (azul) y forma del chorro (negro) con $Ca_o = 5$ y $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$ para distintas relaciones de viscosidad: (a) $\lambda = 1$; (b) $\lambda = 5 \cdot 10^{-2}$; (c) $\lambda = 2 \cdot 10^{-2}$. Puesto que el valor absoluto del gradiente adverso de presión interior es mayor que el gradiente adverso de presión capilar, se deduce a través de la ecuación de balance de esfuerzos normales (3.9) que el gradiente de esfuerzos normales ejercido por la corriente exterior sobre el fluido interior, también es adverso. Se concluye, por tanto, que las únicas fuerzas que favorecen el flujo aguas abajo de la corriente interior son las correspondientes a los esfuerzos tangenciales en la interfase.

La figura 3.21 muestra las contribuciones por separado de los esfuerzos tangenciales (azul), del gradiente interior de presiones (rojo) y de la componente axial de las fuerzas viscosas (verde), para distintos z . Se observa que los esfuerzos tangenciales ejercidos por el fluido exterior son los únicos que contribuyen al movimiento aguas abajo del fluido interior, ya que tanto el gradiente de presiones interior como el término extensional de las fuerzas viscosas, se oponen al mismo. Por otra parte, en la figura 3.22 se representa el gradiente de presiones interior (rojo), la contribución del gradiente de presión capilar (azul) y la forma del chorro (negro). Del análisis de las figuras 3.21 y 3.22 se deduce que los esfuerzos cortantes ejercidos por el fluido exterior sobre la superficie del chorro tienen que vencer tanto al gradiente adverso de presiones impuesto por el flujo exterior como al gradiente adverso de presión capilar. A la luz de los resultados mostrados en estas últimas figuras podemos explicar por qué no es posible generar chorros estables de gas mediante esta técnica. En efecto, el estrechamiento aguas abajo del chorro implica un gradiente de presión capilar adverso. Asimismo, tal y como se deduce de la figura 3.22, el gradiente de presiones impuesto por el coflujo exterior, también es adverso. Los perfiles de velocidad correspondientes a

estos gradientes de presión desfavorables son parábolas invertidas, con un caudal asociado negativo que es tanto mayor cuanto menor sea la viscosidad del fluido interior. Debido a que éste caudal negativo puede ser, en módulo, superior al caudal arrastrado aguas abajo por la interfase, puede resultar imposible forzar que el caudal a través de cualquier sección del chorro se mantenga constante e igual a Q_i cuando la relación de viscosidades es suficientemente baja.

Esta interpretación de los resultados tanto experimentales como numéricos, nos lleva a la conclusión de que para hacer fluir un caudal de gas a través de un chorro que se estrecha aguas abajo, es estrictamente necesario que el gradiente de presiones impuesto por la corriente exterior sea favorable. El diseño del dispositivo para generar microburbujas que se propone en el próximo capítulo, hace uso de esta idea.

Chapter 4

Microbubble generation in a
coflow device operated in a
new regime

In this chapter we reproduce the text in the paper entitled “Microbubble generation in a co-flow device operated in a new regime” by Elena de Castro, Wim Van Hoeve, Detlef Lohse and José Manuel Gordillo Arias de Saavedra accepted for publication in the journal *Lab On a Chip* in 2011.

4.1. Abstract

A new regime of operation of PDMS-based flow-focusing microfluidic devices is presented. We show that monodisperse microbubbles with diameters below one-tenth of the channel width (here $w = 50 \mu\text{m}$) can be produced in low viscosity liquids thanks to a strong pressure gradient in the entrance region of the channel. In this new regime bubbles are generated at the tip of a long and stable gas ligament whose diameter, which can be varied by tuning appropriately the gas and liquid flow rates, is substantially smaller than the channel width. Through this procedure the volume of the bubbles formed at the tip of the gas ligament can be varied by more than two orders of magnitude. The experimental results for the bubble diameter d_b as function of the control parameters are accounted for by a scaling theory, which predicts $d_b/w \propto (\mu_g/\mu_\ell)^{1/12} (Q_g/Q_\ell)^{5/12}$, where μ_g and μ_ℓ indicate, respectively, the gas and liquid viscosities and Q_g and Q_ℓ are the gas and liquid flow rates. As a particularly important application of our results we produce monodisperse bubbles with the appropriate diameter for therapeutical applications ($d_b \simeq 5 \mu\text{m}$) and at a production rate exceeding 10^5 Hz.

4.2. Introduction

Microbubble formation is an area of growing interest due to its countless applications in food processing, [64] material science, [65] pharmacy and medicine [66].

In the last decades, microbubbles have become the most effective type of contrast agent available for medical ultrasound imaging [67, 68, 69] or as carriers for targeted drug delivery [70, 71].

In order to ensure that microbubbles can safely flow through the smallest capillaries, the diameter of the microbubbles injected into the patient’s blood stream needs to be between 1 and $10 \mu\text{m}$; the preferred diameter is between $2 \mu\text{m}$ and $5 \mu\text{m}$. Larger bubbles may provoke edema and smaller ones possess a poor reflectivity.

Microbubbles with sizes in the correct range for therapeutical purposes can be easily produced by either sonication or by mechanical agitation [72, 73, 74, 75]. The generation of bubbles with a size below $1 \mu m$ can be achieved through the injection of a gas using porous membranes, which requires an extremely high working pressure typically of the order of 10 MPa [76]. However, all these procedures generate a polydisperse emulsion of bubbles in the liquid, limiting the potential use of microbubbles in medicine. Indeed, it is of current interest for therapeutical applications to design a simple procedure for the mass production of microbubbles with controllable diameters ranging from 2 to $5 \mu m$ and *with a low polydispersity index*, typically $PDI = s/r_b < 5 \times 10^{-2}$, with r_b the averaged bubble radius and s the standard deviation [66]. When the values of the PDI are sufficiently low (say, below 5%), the bubbles are considered as monodisperse. Perfect monodispersity $PDI = 0$ can obviously never be achievable. Note that the monodispersity is essential when microbubbles are used as ultrasound contrast agents to improve the quality of an echographical image. In the case that microbubbles are used as drug carriers, very low values of the PDI index are also demanded in order to precisely control the amount of the drug delivered into the patient.

In this manuscript we will describe and characterize in detail a novel process for the production of the type of microbubbles needed for therapeutical applications. More specifically, we propose a novel method for the production of $\simeq 5 \mu m$ bubbles with a PDI of 5% and better and at a production rate that exceeds 10^5 Hz.

Probably, the simplest way of producing monodisperse bubbles is to inject a small gas flow rate through an underwater nozzle [9, 27]. Unfortunately, the bubbles released from a needle with a diameter of 5 microns into a stagnant reservoir of water is $\sim 50 \mu m$, *much larger* than the injection needle diameter. Clearly, this method is not feasible for the production of monodisperse bubbles with potential therapeutical applications. However, it is known from the early works of Bragg and Nie [6] –who modeled the dynamic structure of crystals through a wet foam composed of monodisperse bubbles [77]– that bubbles with sizes comparable to the needle diameter can be generated when a small amount of gas is injected within a liquid crossflow [6] or a liquid coflow [7].

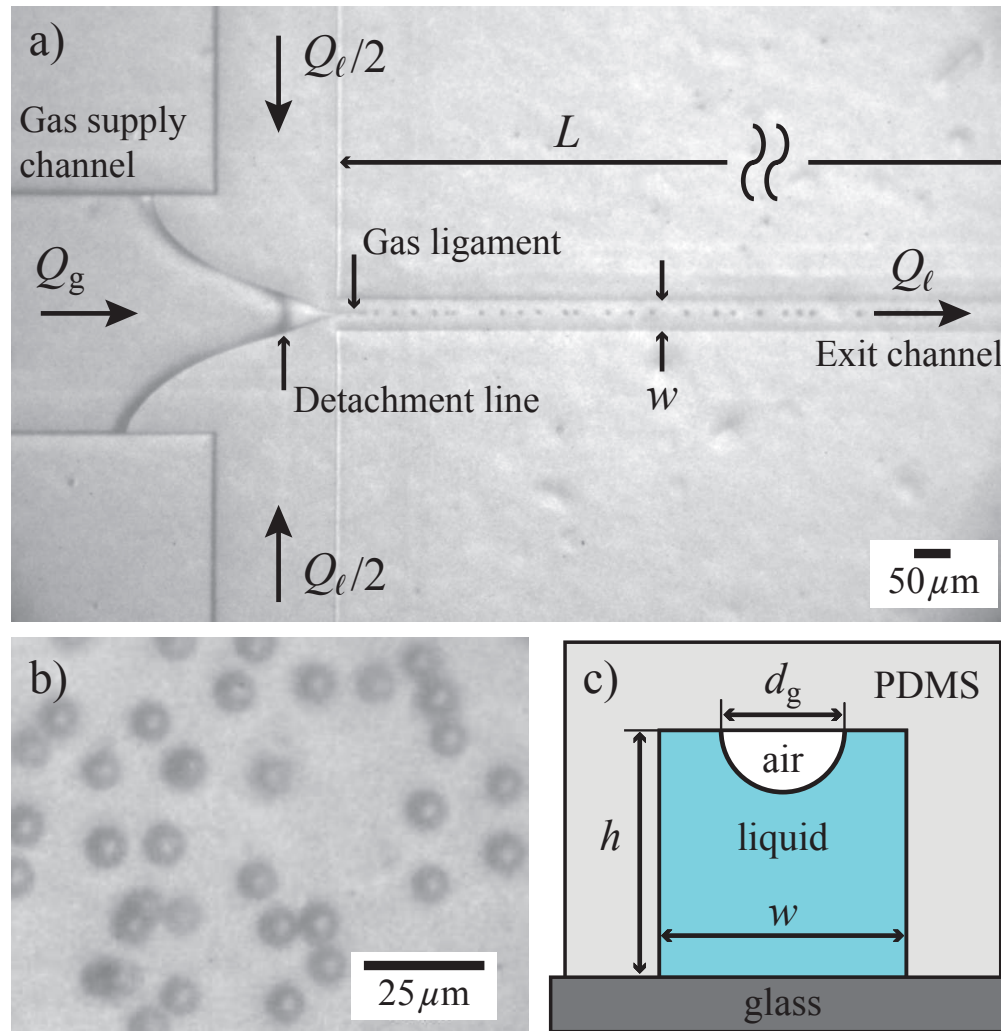


Figure 4.1: (a) High speed photograph showing the formation of microbubbles using our microfluidic flow-focusing geometry, $w = 50\ \mu\text{m}$, $L/w = 30$. The outer liquid flow forces the inner gas flow to form a tiny gas ligament that detaches from the channel wall and breaks up into microbubbles. The size of the microbubbles $d_b = 7.2\ \mu\text{m}$ is much smaller than the channel width. The gas and liquid pressures are $p_g = 1555\ \text{mbar}$ and $p_\ell = 1597\ \text{mbar}$, respectively, and the liquid flow rate is $U_\ell = 7.67\ \text{m s}^{-1}$. (b) Microbubbles immediately after exiting the channel. (c) Schematic representation of a cross-section of the microfluidic channel downstream the detachment line. The gaseous ligament dewets the PDMS channel wall.

Since then, it has been shown that micron-sized bubbles can be produced if a sufficiently small tube or channel through which a gas is injected, is placed in a strong liquid coflow [9, 12, 17, 18, 23, 28, 29, 30] or crossflow [31, 32, 33, 34, 35, 36, 37, 38]. Usually, the liquid is forced to flow thanks to an imposed pressure gradient. Farook *et al.* and Pancholi *et al.* [39, 40, 41] implemented the coaxial electrospray configuration described by Loscertales *et al.* [42] to generate $5\ \mu\text{m}$ bubbles. In this particular case, the liquid coflow is induced by the electrical tangential stresses. However, this production technique does not result in the formation of microbubbles with a sufficiently narrow size distribution.

An alternative way for the production of virtually monodisperse microbubbles at high and controlled production rates is to use a procedure called flow-focusing [43, 44, 45, 46]. Here, a strong coflow of liquid is created when both the liquid and gas streams are forced to flow through a small constriction. Placing a cylindrical gas injection tube in front of an orifice of smaller diameter, Gañán and Gordillo [11] produced bubbles with $d_b \sim O(10)\ \mu\text{m}$, which are typically *smaller* than the orifice diameter, by simply controlling the flow rate ratio. Indeed, the diameter d_b of the bubbles obtained in this way is given, approximately, by $d_b \propto (Q_g/Q_\ell)^\beta$, with $\beta \simeq 0.38 \simeq 2/5$, $Q_g/Q_\ell < 1$ and with Q_g and Q_ℓ indicating the gas and liquid flow rates, respectively [11, 78]. However, due to the fact that the alignment of the injection tube with the exit orifice is not an easy task, the parallelization of this type of axisymmetric devices for the mass production of microbubbles is not straightforward.

Later on, Anna *et al.*, [47] Gordillo *et al.* [15] and Garstecki *et al.* [16] circumvented this limitation of axisymmetric flow focusing bubble makers by implementing the same geometry in planar devices.

Planar microfluidic devices built using soft lithography techniques and incorporating the flow focusing geometry, are nowadays used by many research groups to produce monodisperse bubbles with therapeutical purposes [48, 49, 50, 51]. We stress that, though the flow focusing geometry in the planar version [16] is very similar to the axisymmetric one, [11] the physical mechanism leading to bubble formation is substantially different in both types of devices.

For the axisymmetric case, [11] liquid velocities are such that the dimensionless groups We and Re satisfy $We \gg 1$ and $Re \gg 1$. Note that the Weber number We quantifies the relative importance of surface tension stresses with respect to liquid inertia and is defined as $We = \rho U^2 w / \sigma$, with ρ , U

and σ indicating the liquid density, the liquid mean velocity and surface tension coefficient respectively and w the transversal dimension of the exit channel. On the other hand, the dimensionless group that compares viscous stresses with respect to liquid inertia is the Reynolds number, defined as $Re = \rho U w / \mu_\ell$, with μ_ℓ the liquid viscosity. Due to the fact that $We \gg 1$ and $Re \gg 1$, bubble formation in the experiments reported by Gañán and Gordillo [11] is controlled by liquid inertia. However, the typical liquid flow rates injected in the planar version of flow focusing are so small (10^{-2} to $1 \mu\text{L s}^{-1}$), that $We \ll 1$ and $Re \lesssim 1$ and, in addition, the capillary numbers ($Ca = \mu_\ell U / \sigma$) are typically such that ($Ca < 10^{-2}$) [16, 25, 79]. Therefore, liquid inertia is negligible when compared to viscous shear stresses and viscous shear is not strong enough to overcome capillary pressure [36]. Under these conditions, bubbles block almost the whole cross section of the exit channel, forcing the carrier fluid to flow through thin wetting films straddling at the walls of the device. This fact results in a significant increase of the liquid pressure upstream of the emerging bubble, leading to the 'squeezing' of the gas thread [36]. Except in the final stage of the collapse, in which gas inertia accelerates the bubble pinch-off process, [80, 81] the mechanism of bubble formation is mainly controlled by the gas and liquid flow rates and by the device geometry.

A direct consequence of the geometrically controlled mechanism of bubble formation is that the polydispersity index of the bubbles generated through the 'squeezing' mechanism is below 5%; moreover, Garstecki *et al.* found that the bubble size can be expressed as a function of the ratio of gas and liquid flow rates as $d_b \propto (Q_g/Q_\ell)^{1/3}$. Note that the exponent 1/3, which differs from the exponent $\simeq 2/5$ that characterize bubble size in the axisymmetric flow focusing devices, already reflects the differences in the way bubbles are formed in both types of geometries. But there is an even more important difference between the two types of implementations: since bubbles block the exit channel in the planar version of flow focusing, the diameters of the bubbles formed in this way are necessarily larger than the width of the exit channel. Contrarily, in the axisymmetric version of flow focusing devices, d_b is smaller than the exit orifice diameter as pointed out above. This fact has an important consequence when bubbles are produced using the planar flow focusing geometry, namely, bubbles with sizes of the order of $5 \mu\text{m}$ obviously require the use of tiny microchannels of widths $w \approx 5 \mu\text{m}$ (see *e.g.* Hettiarachchi *et al.* [48]). We implemented the flow focusing geometry incorporating exit channels of widths of $5 \mu\text{m}$ and experienced that these tiny channels tend to clog very easily due to the accumulation of im-

purities. Thus, we decided to find a different way for the production of 5 micron bubbles that differs from the methods already existing in the literature [16, 25, 48, 49, 50, 51, 80].

Here we describe a new method for the controlled production of $\sim 5 \mu\text{m}$ bubbles with a polydispersity index below 5 % at high production rates ($> 10^5$ bubbles/s) by means of a planar flow focusing device. The essential geometrical difference of our device with respect to *all* previous implementations is that the length of the exit channel L is much larger than its width, namely, $L/w \gg 1$, as depicted in figure 4.1. This, together with the fact that the imposed liquid and gas flow rates are such that $Re \gtrsim 10^2$, $We \gg 1$ and $Q_g/Q_\ell \ll 1$, enables the production of bubbles in water with sizes one order of magnitude smaller than the channel width. In this way, we are able to produce, in a single step, bubbles with sizes within the range needed for therapeutical applications avoiding clogging problems. The final result, which we present in detail in the “Results” section and derive in the “Discussion” section, is that bubble size can be predicted based on the gas to liquid flow rate ratio and the fluid properties as

$$d_b/w \simeq 2.75(\mu_g/\mu_\ell)^{1/12}(Q_g/Q_\ell)^{5/12}. \quad (4.1)$$

Equation (4.1) is applicable *if* the gas and liquid flow rates satisfy the conditions $Q_g/Q_\ell \ll 1$ and

$$\frac{Q_\ell}{Q_0} > 3 \left(\frac{Q_g}{Q_0} \right)^{-1/7}, \quad (4.2)$$

where the reference flow rate Q_0 is given by

$$Q_0 = \left(\frac{\sigma w^3}{\rho} \right)^{1/2}. \quad (4.3)$$

Note that the exponent 5/12 in equation (4.1), which differs from the exponents 1/3 and 2/5 to calculate bubble diameter as a function of the ratio Q_g/Q_ℓ reported in previous publications [11, 16], reveals that our method is different from those already published. The differences can be visually appreciated in figure 4.2: in our device, bubbles are formed after the formation of a long gas jet, whose diameter is much smaller than the channel width, and bubbles breakup up from its tip. The gas jet, which has a diameter of only a few microns, is formed at the entrance of the exit channel, where the liquid pressure gradient reaches its maximum value.

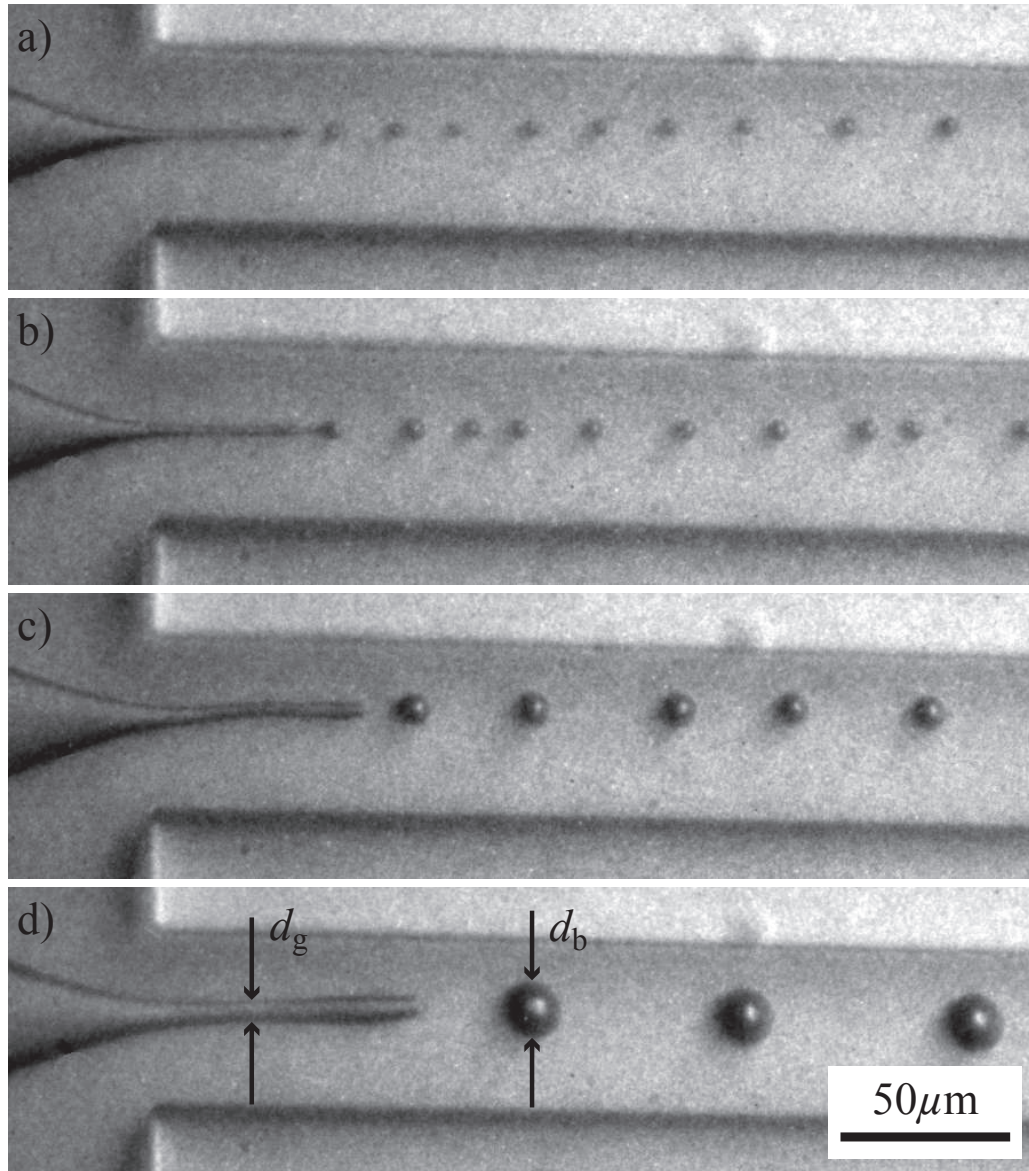


Figure 4.2: The size of the microbubbles produced can be accurately varied by adapting the gas and liquid flow rates by controlling their driving pressures. In order for $Q_g/Q_\ell \ll 1$, the gas pressure in the supplying vessel, p_g , is chosen to be very similar to that of the liquid, p_ℓ . The operating conditions corresponding to each of the four images are: a) $p_\ell = 1800$ mbar, $p_g = 1757$ mbar, $U = 8.67$ m s⁻¹, $d_b = 4.33$ μ m, $d_g = 2.60$ μ m; b) $p_\ell = 1800$ mbar, $p_g = 1763$ mbar, $U = 8.67$ m s⁻¹, $d_b = 5.73$ μ m, $d_g = 2.92$ μ m; c) $p_\ell = 1410$ mbar, $p_g = 1383$ mbar, $U = 6.83$ m s⁻¹, $Q_g = 0.0044$ ml min⁻¹, $d_b = 10.05$ μ m, $d_g = 3.90$ μ m; d) $p_\ell = 1410$ mbar, $p_g = 1463$ mbar, $U = 6.83$ m s⁻¹, $Q_g = 0.0134$ ml min⁻¹, $d_b = 15.58$ μ m, $d_g = 5.84$ μ m. From this figure note that, as expected, for a fixed value of Q_ℓ (or p_ℓ), d_b increases as p_g increases.

To our knowledge, this is the first time that the existence of such tiny and stable gas jets within a microchannel is reported. Moreover, this is the first time that bubbles with a size of one-tenth the channel width are produced in a low viscosity liquid such as water.

Since a long gas jet is created before bubbles are emitted from its tip, bubbles are not formed in the way described in Ref. [11].

Clearly, since bubbles do not block the exit channel, they are not produced in the 'squeezing' regime described by Garstecki *et al.* [16, 25, 36] either. Let us point out that the advantage of microbubble formation in the way presented in this chapter as compared to the *squeezing* regime is that bubbles with sizes in the range of interest for medical applications ($d_b \lesssim 5 \mu\text{m}$) at frequencies that exceed 10^5 Hz are formed from a square microchannel of $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ cross sectional area. This one order of magnitude reduction in bubble size with respect to channel width, avoids the clogging of the exit channel and enormously decreases the pressures at which both the gas and the liquid need to be injected into the microfluidic device. Our procedure also allows to easily vary the bubble volume over more than two orders of magnitude by simply varying the gas and liquid flow rates.

The chapter is organized as follows: in section 'Materials and methods', we describe in detail the experimental procedure followed to generate micron-sized bubbles. In section 'Results' we report the bubble formation frequencies as well as their associated PDI as a function of bubble diameter. In addition, we indicate the ranges of both the gas and liquid flow rates needed to create bubbles of less than 10 microns. For those readers interested in technical details, equations (4.1) and conditions (4.2)-(4.3) are deduced in section 'Discussion'. The final section of the chapter is dedicated to present the conclusions of our study.

4.3. Materials and methods

The bubble generators were produced by soft lithography techniques. A mold was created from a negative photosensitive material (SU-8 GM 1060, Gersteltec SARL) and spin-coated on a silicon oxide substrate, to imprint a reticulable polymer PDMS (Polydimethylsiloxane, Sylgard 184, Dow Corning) which was irreversibly bounded to a glass cover plate in a plasma cleaner. We placed the microbubble-generating devices in an oven

at 65° during one hour and they were used only after 24 hours to ensure the hydrophobicity of the PDMS. Note that, contrarily to most microfluidic applications, we impose the hydrophobicity of the PDMS [79] since, in our case, the gas ligament should remain attached to the PDMS surface for stability purposes. The height of the microbubble maker is uniform and equal to $h = 50 \mu\text{m}$ and the width and length of the exit channel are, respectively, $w = 50 \mu\text{m}$ and $L = 1500 \mu\text{m}$ (see figure 4.1). Note that the main geometrical difference between our bubble generator and those used in previous studies [16, 25, 48, 80] is that, in order for bubbles to be formed at the entrance region of the exit channel, our devices satisfy the condition $L/w \gg 1$.

To avoid fluctuations in the gas flow rate, air was injected through a tube with 0.5 m in length and $50 \mu\text{m}$ of inner diameter. The air pressure p_g was controlled through a pressure regulator (Bosch Rexroth) and was measured using a digital manometer (Digitron 2000P).

The continuous phase was distilled water with a 2% (w/v) of Tween 80 (Sigma Aldrich) added. The addition of the surfactant lowered the water-air interfacial tension coefficient to $\sigma \simeq 40 \text{ mN/m}$ and the contact angles with the PDMS and glass substrates were, respectively, $\theta_{\text{PDMS}} = 89^\circ$ and $\theta_{\text{glass}} = 39.5^\circ$. Since the liquid was supplied from a pressurized vessel instead of from a syringe pump, the liquid injection pressure, p_ℓ , was controlled and measured in the same way as the gas. The liquid flow rate Q_ℓ was determined by measuring the volume of liquid collected at the exit of the device during several minutes.

The setup was placed under an inverted microscope (3000B Leica) which was connected to either a high-speed camera (Phantom V 7.3, with a resolution of 80×16 pixels and a field of view of $163 \times 33 \mu\text{m}^2$ when operated at an acquisition rate of 2×10^5 fps) or to an Intensified Retiga Fast camera (resolution of 1280×800 pixels, with a field of view of $415 \times 260 \mu\text{m}^2$). We checked the perfect reproducibility of the experiments. To take data, experiments were repeated twice for each couple of values p_ℓ, p_g : First, the bubbling frequency ω was determined using the high-speed camera. Second, in an independent experiment for the same parameters the bubble diameter d_b was measured from the high-resolution images taken with the intensified camera. Knowing ω and d_b , the volumetric gas flow rate was determined as $Q_g = \pi d_b^3 \omega / 6$. We checked that the values of Q_g calculated in this way were practically identical – albeit more accurate – to those obtained assuming Poiseuille flow along the gas injection pipe.

4.4. Results

Figure 4.1 shows a global view of the microchannel entrance region, which is where the microbubbles are formed. The figure reveals that – thanks to our choice $Q_g/Q_\ell < 0.03$ – the gas filament contracts from the width of the gas supply channel ($400\ \mu\text{m}$) to a steady ligament whose diameter is substantially smaller than w . Due to the fact that the height (h) of the device is equal to the width of the exit channel ($h = w \gg d_b$), the gas thread separates from the lower glass surface at the region indicated as *detachment line* in figure 4.1. Indeed, since the PDMS substrate is less hydrophilic than the glass one ($\theta_{\text{PDMS}} \simeq 90^\circ$ and $\theta_{\text{glass}} = 39.5^\circ$), the narrow gas ligament, of diameter $d_g \ll w$, is attached to the upper PDMS surface, as sketched in figure 4.1c. Once the steady gas ligament is formed, it breaks into uniformly sized bubbles with diameters $d_b \sim d_g$, as depicted in figure 4.2.

In figures 4.3a-b we plot, as a function of d_b , the bubbling frequencies extracted from the analysis of the high speed videos and their corresponding values of the PDI calculated from the image analysis of the high resolution pictures. Clearly, figures 4.3a-b reveal that our procedure enables the production of bubbles with diameters $\simeq 5\ \mu\text{m}$ and very low polydispersity index at frequencies that exceed $10^5\ \text{Hz}$.

We will now indicate the range of values of Q_ℓ and Q_g for which bubbles with sizes substantially smaller than the channel width, are produced. Note first that the mean liquid velocity along the exit channel, $U = Q_\ell/(w^2)$, needs to be above a certain threshold. Indeed, the liquid pressure decreases by an amount of $\Delta p_\ell \simeq \rho U^2$ from the detachment line to the inlet of the exit channel. Since the liquid pressure drop is much larger than the gas pressure variation in the same region, namely, $\Delta p_g \sim \mu_g Q_g/w^3$, the normal stress condition at the gas-liquid interface, when evaluated at the channel inlet can be expressed as $\rho U^2 \simeq 2\sigma/d_g$, implying $\text{We}_j = \rho U^2 d_g/\sigma > \text{We}_{\text{min}} \simeq 2.5$. If d_g is expressed as a function of the ratio Q_g/Q_ℓ by means of equation (4.5) – deduced in the beginning of the next section – it is straightforward to show that the condition $\text{We}_j > 2.5$ is equivalent to the one given by equation (4.2), which expresses that the liquid flow rate has to be above a certain threshold that depends on the gas flow rate. Moreover, in order to generate bubbles with sizes substantially smaller than the channel width, we also choose to impose the condition $Q_g/Q_\ell \leq 0.03$ i.e, the liquid flow rate has to be substantially larger than the gas one.

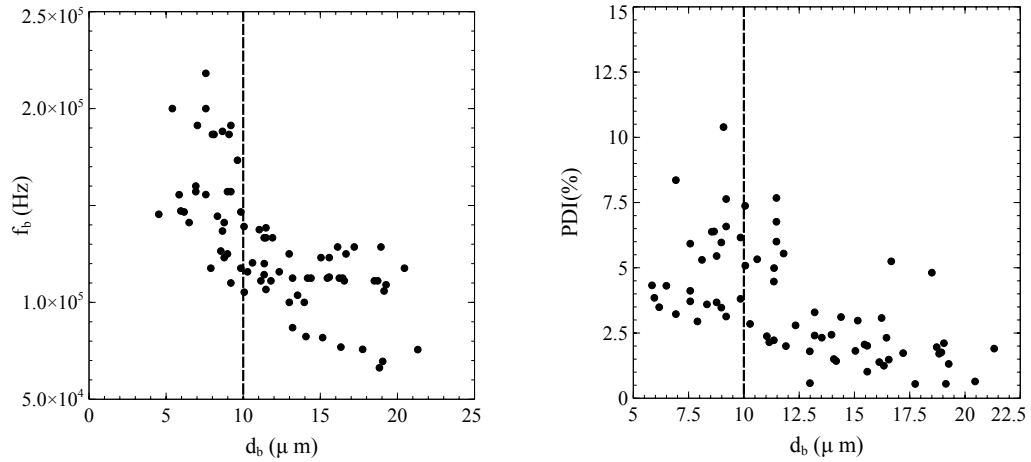


Figure 4.3: (a) Bubble formation frequencies as a function of bubble diameter. Note that all bubbles with diameters below $10 \mu\text{m}$ are produced at frequencies that exceed 10^5 Hz. (b) PDI index, in %, as a function of bubble diameter. Note that for many experimental conditions bubbles with diameters $d_b \simeq 5 \mu\text{m}$ can be produced with values of the PDI index below 5%. The reason for which the (apparent) PDI index is larger for some experiments is attributable to the fact that some images are out of the focus plane and are a bit blurred.

Clearly, as depicted in figure 4.4, the different experiments considered in this study satisfy the conditions $Q_g/Q_\ell \ll 1$ and that given in equation (4.2). The data points in red indicate those experimental conditions for which bubbles with diameters below $10 \mu\text{m}$ are produced, which are of particular interest for the use as ultrasound contrast agents.

4.5. Discussion of the results

4.5.1. Scaling of the gas ligament diameter

Note first that, for the range of liquid velocities investigated here, $\text{Re} = Ud_b/\nu_\ell \sim \mathcal{O}(10^2)$ with $\nu_\ell \simeq 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ the kinematic viscosity of water. This estimate indicates that the flow in the exit channel is laminar. Moreover, for the range of Reynolds numbers considered here, the entrance length is such that $L_e \simeq 0.1Q_\ell/\nu_\ell \simeq 1.5L$. Therefore, since the gas ligament breaks

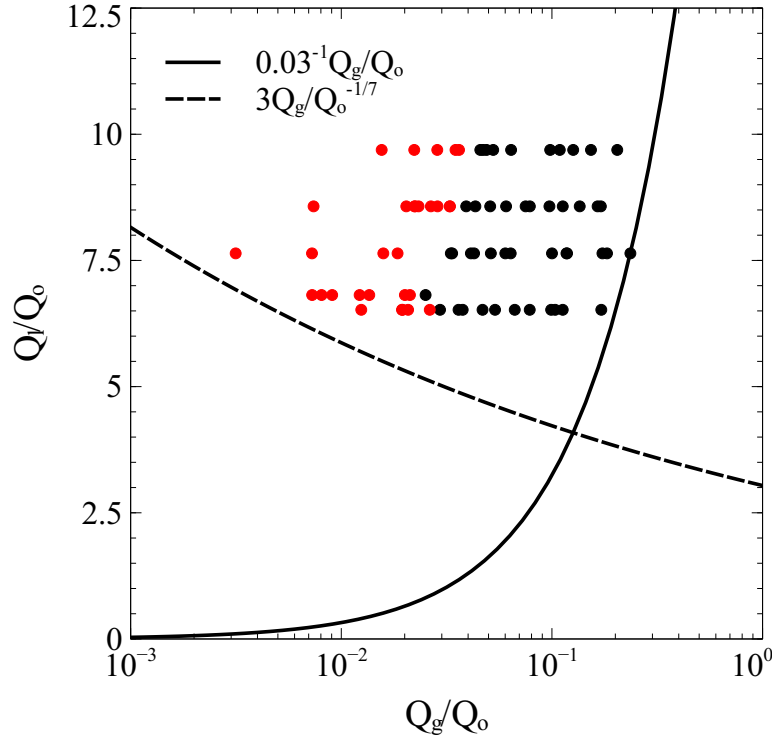


Figure 4.4: Values of the liquid and gas flow rates considered in this study. Liquid velocities were varied between 6 m s^{-1} and 8.5 m s^{-1} , whereas the gas flow rate varied between $4 \times 10^{-4} \text{ ml min}^{-1}$ and $4 \times 10^{-2} \text{ ml min}^{-1}$. Red dots indicate the operating conditions for which $d_b < 10 \mu\text{m}$ whereas black dots indicate $d_b > 10 \mu\text{m}$. Note that the liquid and gas flow rates considered here satisfy the condition $Q_g/Q_\ell \ll 1$ as well as the condition $Q_\ell/Q_0 > 3(Q_g/Q_\ell)^{-1/7}$ given in equation (4.2). This latter condition is deduced from the fact that, in order for the gas ligament to be formed, the Weber number based on the gas ligament diameter namely, $We_j = \rho U^2 d_g / \sigma$ (see figure 4.2 for a definition of d_g), needs to be above a certain constant or order unity.

at a distance of $\sim h \ll L_e$ from the duct inlet (see figure 4.2), bubbles are produced within the entrance region of the microchannel. In this entrance region, the liquid velocity profile is approximately uniform except at the thin boundary layers of typical width $\delta \ll w$ near the walls [82]. Moreover, since the gas Reynolds number is such that $Re_g = Q_g / (\nu_g d_b) \sim \mathcal{O}(1)$, being ν_g the kinematic viscosity of air, the flow rate along the gas ligament can be

calculated as

$$Q_g = -K \frac{d_g^4}{\mu_g} \frac{dp_g}{dx}, \quad (4.4)$$

where μ_g is the gas viscosity, K is a constant and dp_g/dx indicates the pressure gradient along the gas jet.

Due to the fact that the cross-section of the ligament hardly varies downstream (see figure 4.2), $-dp_g/dx$ approximately coincides with the liquid pressure gradient evaluated at the channel inlet, $-dp_\ell/dx = C\mu_\ell U/w^2$, with μ_ℓ the liquid viscosity and C is a constant that depends on the geometry of the channel and on the width δ of the liquid boundary layers at the channel walls. Note that the smaller δ , the larger C and therefore the liquid pressure gradient is maximal at the duct entrance [82]. For instance, in the particular case of a circular channel with a fully developed Poiseuille flow, for which $\delta \simeq w$, the pressure gradient is given by $-dp_g/dx = 32\mu_\ell U/w^2$. Consequently, since $\delta \ll w$, the constant C satisfies $C \gg 32$ [82]. Now, as expressed by equation (4.4), d_g decreases for a fixed value of Q_g when $-dp_g/dx = -dp_\ell/dx = C\mu_\ell U/w^2$ increases.

We conclude that, thanks to the large values of C – i.e., thanks to the fact that bubbles are produced at the duct entrance – d_g can be reduced down to only a few microns, as depicted in figure 4.2. With $-dp_g/dx = C\mu_\ell U/w^2$ equation (4.4) yields the following expression for d_g :

$$\frac{d_g}{w} \propto \left(\frac{\mu_g}{\mu_\ell} \right)^{1/4} \lambda^{1/4}, \quad (4.5)$$

where $\lambda = Q_g/Q_\ell$. Figure 4.5 shows that the best fit to the experimental data follows very closely the prediction $d_g \propto \lambda^{1/4}$ of equation 4.5, validating our physical reasoning.

4.5.2. Bubble size

We now must only find the size of the bubbles as a function of d_g , U , and Q_g . First, note from figure 4.2 that the gas ligament breaks only slightly downstream the channel inlet. At this location, the liquid pressure gradient is smaller than $C\mu_\ell U/w^2$ and thus, according to equation (4.4), d_g must increase in order to keep Q_g constant. Indeed, this is seen in figure 4.2. The increase in the jet diameter triggers the bubble formation process and also induces variations in the gas pressure gradient of the order of $\Delta(dp_g/dx) \sim$

$\sigma/(d_g w)$ ¹. Thus, since $C \gg 32$, [82] the relative variation of the gas flow rate is given by

$$\frac{\Delta Q_g}{Q_g} = \frac{\Delta(dp_g/dx)}{dp_g/dx} \sim \frac{1}{C} \frac{\sigma}{\mu_\ell U} \frac{w}{d_g} \ll 1. \quad (4.6)$$

The condition expressed by equation (4.6) means that bubbles are formed under constant flow rate conditions [30] and, consequently, the bubbling frequency is given by $\omega \propto U/d_g$ [9, 11, 30]. Therefore, the bubble diameter can be easily calculated from the mass balance as

$$\frac{\pi d_b^3}{6} \propto Q_g \frac{d_g}{U} \rightarrow \frac{d_b}{w} \propto \left(\frac{\mu_g}{\mu_\ell} \right)^{1/12} \lambda^{5/12}. \quad (4.7)$$

Figure 4.5b shows that once the proportionality constant is fixed to 2.75, equation (4.7) predicts the size of the bubbles formed with a maximum relative error of $\pm 10\%$. This maximum relative error corresponds to the minimum value of λ . We attribute this small discrepancy between experiments and theory to the fact that, for the smallest values of d_g , the gas ligament is embedded within the liquid boundary layer, resulting into a smaller local liquid velocity and thus an underestimation of λ .

4.6. Conclusions and Outlook

To conclude, we succeeded to produce monodisperse microbubbles in a controllable and reproducible way with microchannels with dimensions of tens of microns, avoiding clogging problems, and easily being able to adjust the microbubble size by varying the liquid and gas flow rates.

We have provided the operating conditions in terms of the gas and liquid flow rates for which microbubbles with $d_b < 10 \mu\text{m}$ and, thus, in the size range required for medical applications, can be produced with very low values of the PDI index at frequencies that exceed 10^5 Hz.

From the point of view of applications, our method is able to produce $\sim 10^{10}$ virtually monodisperse microbubbles with $d_b \simeq 5 \mu\text{m}$ with a total energy consumption of only ~ 200 J.

¹In this estimate it has been taken into account that the length of the gas ligament is $\simeq w$ (see figure 4.2)

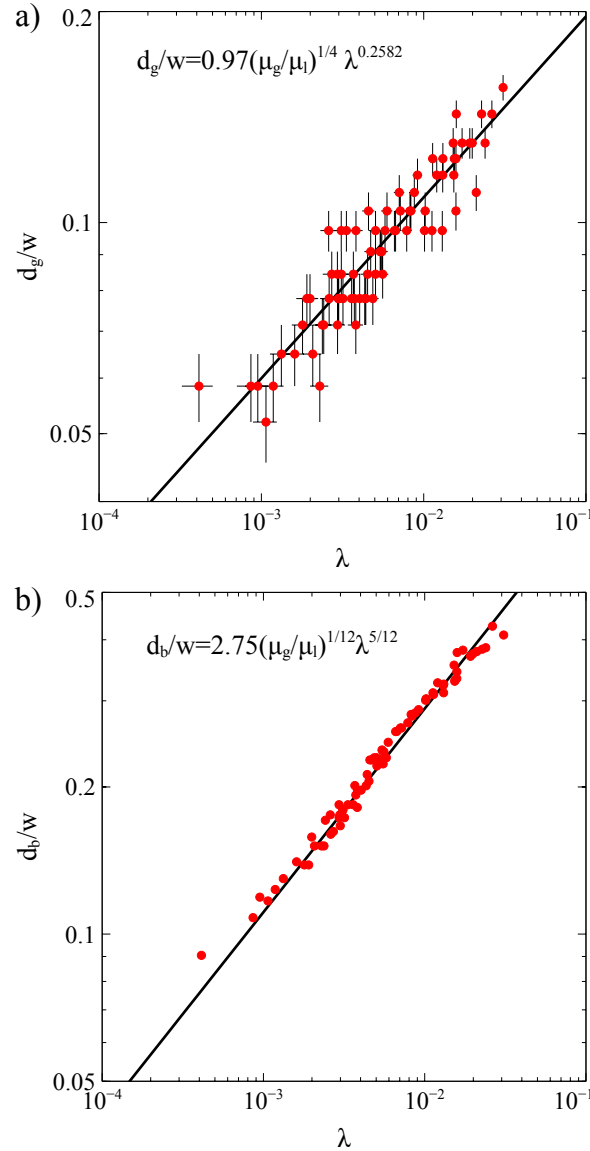


Figure 4.5: (a) Optically measured (minimal) width d_g of the gas ligament as function of the gas flow ratio λ . In spite of the large error bars associated to the fact that d_g is of the order of only a few microns, the best fit to the experimental data (straight line) closely follows the prediction $\propto \lambda^{1/4}$ given by equation 4.4. (b) Optically measured microbubble diameter d_b as function of the gas flow ratio, together with the scaling law $d_b/w \propto \lambda^{5/12}$ following from the presented scaling theory. Here the error bars are smaller as the bubbles are spherical and larger than the minimal width of the gas ligament.

Moreover, we could theoretically account for this new regime of operation of the coflow device: The central issues are an extremely low gas flow rate (as compared to the liquid flow rate) and a strong pressure gradient in the entrance region of the channel where the microbubbles form. The theory allows to derive the correct scaling laws for the microbubble size as function of the control parameters.

The next step will be to stabilize the formed bubbles by phospholipids or surfactants to prevent that the bubbles dissolve or coalesce in the pool where they are trapped.

If one succeeds, the new device allows for an alternative way to produce ultrasound contrast agents, with presumably a much sharper distribution of bubble sizes, *i.e.*, monodisperse bubbles. For commercial applications one obviously has to go beyond PDMS devices (*e.g.*, silicon), to guarantee stable long time behavior. Another issue is the mass production for real applications, but the fact that our devices incorporate the flow focusing region in a planar geometry, facilitates the multiplexation of these types of devices.[83] Anyway, typically, the number of bubbles injected into a patient's blood stream is $\sim 10^{10}$ bubbles. Since this is the amount of bubbles generated by just one device during one day, one hundred of these devices working in parallel would create 100 doses a day with a power consumption of only ~ 1 W.

Conclusions and outlook

Conclusiones

Los métodos actuales de producción de gotas y de burbujas tienen limitaciones tales como una baja frecuencia de producción, una distribución amplia de tamaños o un multiplexado complejo de los dispositivos.

En este documento, se presentan nuevos métodos de producción que evitan estas limitaciones. Debido a su simplicidad, robustez y fácil implementación, la configuración de coflujo es un método adecuado para la generación de microgotas prácticamente monodispersas, a partir de tubos de inyección con diámetros cientos de veces mayores que el diámetro de las gotas resultantes. En estas condiciones de operación (régimen de narrowing) se observan chorros largos y delgados aguas abajo del tubo de inyección gracias a los esfuerzos tangenciales ejercidos por el fluido exterior en la interfase y a una baja relación de caudales entre los líquidos interior y exterior. Mediante un código propio de elementos de contorno, cuyos detalles se proporcionan en los apéndices, se muestra que este método de producción de gotas micro o submicrométricas es sólo aplicable cuando la relación de viscosidades entre los fluidos interior y exterior está por encima de un cierto valor. En efecto, cuando un fluido de muy baja viscosidad, como es el caso del aire, se inyecta a través del tubo interior, los esfuerzos tangenciales ejercidos por la corriente exterior son tan bajos, con independencia del valor del número capilar, que no son capaces de superar ni las fuerzas de confinamiento debidas a la tensión superficial ni el gradiente de presión adverso impuesto por el coflujo exterior. Esto explica por qué no se observan experimentalmente largos ligamentos de gas. Debido a que este método de producción no es factible para la generación de microburbujas con tamaños en el rango de las aplicaciones médicas; es decir, menores que $10\ \mu\text{m}$, se diseña un nuevo tipo de dispositivo en el cual el gradiente de presiones es favorable y esto permite formar ligamentos muy delgados de gas a partir de los cuales pueden producirse burbujas con tamaños de $\sim 5\ \mu\text{m}$ a frecuencias que pueden incluso superar los $10^5\ \text{Hz}$. Este nuevo tipo de dispositivo se fabrica mediante técnicas de litografía blanda. Además, se proporciona una teoría que explica por qué en este caso sí es posible generar microburbujas y se deduce una ecuación que permite expresar el diámetro de la burbuja en función de la relación de caudales medida experimentalmente y de la relación de viscosidades de ambos fluidos.

Finalmente, se proporciona una expresión cerrada para los tamaños de las gotas generadas mediante la configuración de coflujo, que es válida para predecir, con pequeños errores, los resultados experimentales cuando las gotas

se forman tanto en el régimen de widening como en el de narrowing. Esta contribución completa un aspecto de la técnica de generación de emulsiones mediante coflujos que no había sido tratada en la literatura.

Conclusions

Current production methods for the generation of droplets and bubbles possess limitations, like a low production frequency, poor monodispersity or difficulties in the scaling-up of the devices.

In this document, new methods of production that avoid these shortcomings are presented. Indeed, we have shown that due to its simplicity, robustness and ease of implementation, the coflowing configuration is an adequate method for the generation of nearly monodisperse micron-sized droplets from injection tubes with diameters hundreds of times larger than the resulting drop diameter. Under these conditions of operation -the so-called narrowing regime- very long and thin jets are formed downstream the injection tube thanks to the shear stresses exerted by the outer stream on the interface and to a very low inner to outer flow rate ratio. Aided by an original boundary integral code, whose details are provided in the appendices, we have found that this method of production of micron or submicron drops is only applicable when the inner to outer viscosity ratio is above a certain threshold. Indeed, when a fluid with a very low viscosity -as is the case of air- is injected through the inner tube, the shear stresses exerted by the outer stream are so low, with independence of how large the outer Capillary number is, that viscous stresses are unable to overcome both surface tension confinement forces and the adverse pressure gradient which is imposed by the outer coflow. This fact explains why no long gas jets are ever observed in experiments. Since this method of production is not feasible for the generation of microbubbles with sizes in the range for medical applications -i.e. below $10\ \mu\text{m}$ - we have designed a new type of device in which the outer fluid pressure gradient favors the formation of very thin gas ligaments from which bubbles with sizes $\sim 5\ \mu\text{m}$ can be produced at frequencies exceeding $10^5\ \text{Hz}$. Our new type of device has been built using soft lithography techniques and, in addition, we have provided the theoretical arguments that, do not only explain why in this case it is possible to generate micron-sized bubbles but also give the scaling for the bubble diameter as a function of the flow rate ratio and the viscosity ratio.

Finally, we have also provided a close expression for the sizes of the drops generated using the coflow configuration, which is valid to predict the experimental results, when drops are formed in either the so-called widening or narrowing regimes. This contribution has completed a missing aspect of this production technique which had not been explored in the literature.

Appendices

Apéndice A

El método de los elementos de contorno

A.1. Introducción

En este capítulo se revisan algunos conceptos básicos del método de los elementos de contorno [84] y se deducen las ecuaciones integrales para flujos con geometría axilsimétrica en los que $Re = 0$. El código obtenido se valida comparándolo con problemas de solución conocida.

A.2. Ecuaciones de Navier-Stokes

El movimiento de un fluido newtoniano e incompresible, viene gobernado por la ecuación de continuidad o de conservación de la masa

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (\text{A.1})$$

y por la ecuación de la cantidad de movimiento

$$\rho \left(\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} \right) = -\nabla P + \mu \nabla^2 \mathbf{u} + \rho \mathbf{b}, \quad (\text{A.2})$$

donde \mathbf{u} es la velocidad del fluido, μ su viscosidad y ρ la densidad del mismo. Asimismo, asumimos que las fuerzas másicas \mathbf{b} permanecen constantes. Por conveniencia, incorporamos el efecto de las fuerzas másicas en una presión modificada dada por

$$P^{MOD} = P - \rho \mathbf{b} \cdot \mathbf{x}.$$

Definamos una longitud característica L , relacionada con el tamaño del contorno, una velocidad característica U y un tiempo característico T .

Introduciendo las variables adimensionales

$$\mathbf{u}' = \frac{\mathbf{u}}{U}, \quad \mathbf{x}' = \frac{\mathbf{x}}{L}, \quad t' = \frac{t}{T} \quad \text{y} \quad P' = \frac{P}{\mu U / L}$$

en la ecuación (A.2) obtenemos

$$\beta \frac{\partial \mathbf{u}'}{\partial t'} + Re \mathbf{u}' \cdot \nabla' \mathbf{u}' = -\nabla' P' + \nabla'^2 \mathbf{u}', \quad (\text{A.3})$$

donde el primer y segundo término a la izquierda de la igualdad representan respectivamente, la aceleración local y la convectiva.

Dos parámetros adimensionales aparecen involucrados en la ecuación (A.3): el parámetro de frecuencia $\beta = \rho L^2 / \mu T$, que expresa la relación entre las fuerzas de aceleración inercial y las fuerzas viscosas, y el número de Reynolds $Re = \rho UL / \mu$, que nos proporciona la relación entre las fuerzas inerciales

convectivas frente a las fuerzas viscosas.

Si consideramos el caso en el que $Re, \beta \ll 1$, los términos a la izquierda de la igualdad de la ecuación (A.3) pueden despreciarse frente a los del lado derecho y obtenemos que el movimiento del fluido viene gobernado por la ecuación de Stokes

$$-\nabla' P' + \nabla'^2 \mathbf{u}' = 0. \quad (\text{A.4})$$

Por simplicidad en la notación, prescindiremos del uso de “ ’ ” aunque de ahora en adelante nos referiremos a variables adimensionales.

La estructura del flujo en un instante determinado, depende únicamente de la geometría del contorno y del valor de las variables sobre el mismo, siendo independiente de la historia del movimiento, que entra en el problema exclusivamente a través de la determinación del contorno en el instante actual.

A.3. Identidad de reciprocidad

Hemos visto que el flujo de un fluido newtoniano para pequeños valores del parámetro de frecuencia β y del número de Reynolds Re , viene gobernado por la ecuación de continuidad $\nabla \cdot \mathbf{u} = 0$ y por la ecuación de Stokes

$$-\nabla P + \nabla^2 \mathbf{u} = \nabla \cdot \bar{\tau} = 0, \quad (\text{A.5})$$

donde $\bar{\tau}$ es el tensor de tensiones

$$\tau_{ij} = -P\delta_{ij} + \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) = -P\delta_{ij} + 2e_{ij} \quad (\text{A.6})$$

y e_{ij} el tensor de deformación.

Asumamos que \mathbf{u} y \mathbf{u}' son dos soluciones del flujo de Stokes con tensores de tensión asociados $\bar{\tau}$ y $\bar{\tau}'$ y calculemos

$$\begin{aligned} u'_i \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} &= \frac{\partial (u'_i \tau_{ij})}{\partial x_j} - \tau_{ij} \frac{\partial u'_i}{\partial x_j} = \frac{\partial (u'_i \tau_{ij})}{\partial x_j} - \left[-P\delta_{ij} + \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \right] \frac{\partial u'_i}{\partial x_j} = \\ &= \frac{\partial (u'_i \tau_{ij})}{\partial x_j} - \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \frac{\partial u'_i}{\partial x_j}, \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

donde se ha hecho uso de la ecuación de continuidad para eliminar la presión. Intercambiando los papeles de \mathbf{u} y \mathbf{u}' obtenemos

$$u_i \frac{\partial \tau'_{ij}}{\partial x_j} = \frac{\partial(u_i \tau'_{ij})}{\partial x_j} - \left(\frac{\partial u'_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u'_j}{\partial x_i} \right) \frac{\partial u_i}{\partial x_j}. \quad (\text{A.8})$$

Restando las expresiones (A.8) y (A.7) resulta

$$\frac{\partial}{\partial x_j} (u'_i \tau_{ij} - u_i \tau'_{ij}) = u'_i \frac{\partial \tau_{ij}}{\partial x_j} - u_i \frac{\partial \tau'_{ij}}{\partial x_j}. \quad (\text{A.9})$$

Si los flujos \mathbf{u} y \mathbf{u}' son regulares, es decir, no contienen puntos singulares, el término a la derecha de la igualdad se anula en virtud de (A.5), dando lugar a la identidad de reciprocidad

$$\nabla \cdot (\mathbf{u}' \cdot \bar{\boldsymbol{\tau}} - \mathbf{u} \cdot \bar{\boldsymbol{\tau}}') = 0. \quad (\text{A.10})$$

Una formulación alternativa de la identidad de reciprocidad, surge al integrar la ecuación (A.10) sobre un volumen fluido V , acotado por una superficie cerrada D . Empleando el teorema de la divergencia para transformar la integral de volumen en una de superficie se obtiene

$$\int_D \mathbf{u}' \cdot \mathbf{t} \, dS = \int_D \mathbf{u} \cdot \mathbf{t}' \, dS, \quad (\text{A.11})$$

donde $\mathbf{t} = \bar{\boldsymbol{\tau}} \cdot \mathbf{n}$ es el esfuerzo ejercido sobre D y \mathbf{n} es el vector normal unitario que apunta hacia el interior de V .

A.4. Funciones de Green del flujo de Stokes

Las funciones de Green del flujo de Stokes, representan soluciones de las ecuaciones de continuidad $\nabla \cdot \mathbf{u} = 0$ y de la ecuación de Stokes forzada

$$-\nabla P + \nabla^2 \mathbf{u} + \mathbf{g} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_o) = 0, \quad (\text{A.12})$$

donde \mathbf{g} es una constante arbitraria, \mathbf{x}_o es el polo o punto fuente, \mathbf{x} es el punto de observación y δ es la función delta de Dirac tridimensional. El campo de velocidades solución de la ecuación (A.12) puede expresarse como

$$u_i(\mathbf{x}) = \frac{1}{8\pi} G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) g_j, \quad (\text{A.13})$$

donde $\bar{\bar{G}}$ es la función de Green.

Físicamente la ecuación (A.13) representa el campo de velocidad en el punto \mathbf{x} , debido a una fuerza puntual de valor \mathbf{g} , localizada en \mathbf{x}_o .

Las funciones de Green suelen clasificarse en tres categorías dependiendo de la topología del dominio fluido. Así pues, nos encontramos con funciones de Green para dominios infinitos o no acotados, para dominios semi-infinitos o acotados por una única superficie y por último, funciones de Green para flujos internos que se encuentran totalmente confinados por una superficie. Las funciones de Green de la segunda y tercera categoría han de cumplir con las condiciones de contorno sobre las superficies que determinan el dominio fluido. Sin embargo, a medida que el punto de observación \mathbf{x} se aproxima al polo \mathbf{x}_o , las funciones de Green tienden a exhibir un comportamiento singular similar al de la función de Green para dominios infinitos. En esta Tesis se utiliza este último tipo de funciones de Green.

El campo de presión y de tensiones asociado al flujo (A.13) puede expresarse como

$$P(\mathbf{x}) = \frac{1}{8\pi} p_j(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) g_j, \quad (\text{A.14})$$

$$\tau_{ij}(\mathbf{x}) = \frac{1}{8\pi} T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) g_j, \quad (\text{A.15})$$

donde el tensor de tensiones $\bar{\bar{T}}$ se define mediante

$$T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) = -\delta_{ik} p_j(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) + \frac{\partial G_{ij}}{\partial x_k}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) + \frac{\partial G_{kj}}{\partial x_i}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o). \quad (\text{A.16})$$

La función de Green para medios no acotados, también llamada Stokeslet viene dada por [84]

$$G_{ij}(\hat{\mathbf{x}}) = \frac{\delta_{ij}}{r} + \frac{\hat{x}_i \hat{x}_j}{r^3}, \quad (\text{A.17})$$

donde $r = |\hat{\mathbf{x}}|$ y $\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x} - \mathbf{x}_o$.

El campo de presión y de tensiones queda por tanto

$$p_i(\hat{\mathbf{x}}) = 2 \frac{\hat{x}_i}{r^3}, \quad (\text{A.18})$$

$$T_{ijk}(\hat{\mathbf{x}}) = -6 \frac{\hat{x}_i \hat{x}_j \hat{x}_k}{r^5}. \quad (\text{A.19})$$

Al definirlos de esta forma, la fuerza \mathbf{F} ejercida sobre una esfera de radio ϵ centrada en el polo \mathbf{x}_o será igual a $-\mathbf{g}$ con independencia del radio adimensional ϵ .

A.5. Ecuación integral de contorno

La ecuación integral de contorno buscada puede deducirse partiendo de la identidad de reciprocidad

$$\frac{\partial}{\partial x_k} (u'_i \tau_{ik} - u_i \tau'_{ik}) = 0, \quad (\text{A.20})$$

e identificando \mathbf{u}' y $\bar{\tau}'$ con los dados por las ecuaciones (A.13) y (A.15) respectivamente. En efecto, sustituyendo estas expresiones en la ecuación (A.20) y descartando la constante arbitraria \mathbf{g} resulta

$$\frac{\partial}{\partial x_k} [G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) \tau_{ik}(\mathbf{x}) - u_i(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o)] = 0. \quad (\text{A.21})$$

Tomemos un volumen de control V acotado por la superficie cerrada $D = D_1 \cup D_2$

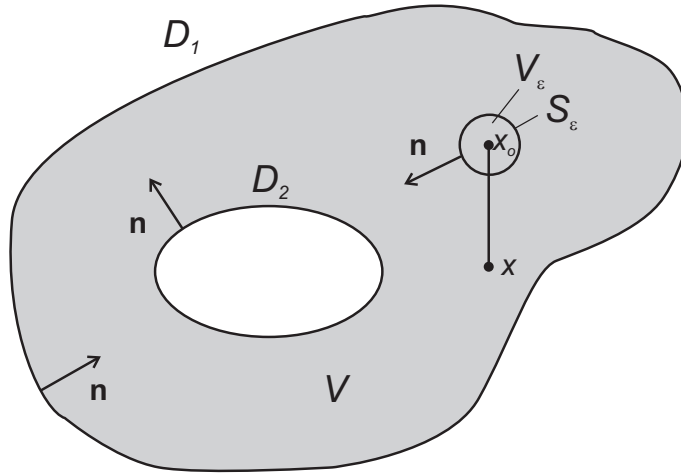


Figura A.1: Volumen de control V .

y definamos una pequeña esfera, en el interior de V , de volumen V_ϵ , radio ϵ y centro \mathbf{x}_o , donde se aplica la fuerza puntual $\mathbf{g}\delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_o)$. La función entre corchetes en (A.21) es regular en el dominio $V - V_\epsilon$. Por tanto, podemos integrar sobre este dominio y emplear el teorema de la divergencia, con lo que resulta

$$\int_{D+S_\epsilon} [G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) \tau_{ik}(\mathbf{x}) - u_i(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o)] n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) = 0, \quad (\text{A.22})$$

donde S_ϵ es la superficie esférica que encierra a V_ϵ y el vector normal \mathbf{n} apunta hacia el interior del volumen de control V (ver figura A.1). Si hacemos tender el radio ϵ a cero, los tensores $\bar{\bar{G}}$ y $\bar{\bar{T}}$ en el integrando de la ecuación (A.22), quedan reducidos al Stokeslet y a su tensor de tensiones asociado dados por (A.17) y (A.19) respectivamente. Sobre S_ϵ , $\mathbf{n} = \hat{\mathbf{x}}/\epsilon$ y $dS = \epsilon^2 d\omega$, donde ω es el diferencial de ángulo sólido. Sustituyendo estas expresiones en (A.22) queda

$$\begin{aligned} & \int_D [G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) \tau_{ik}(\mathbf{x}) - u_i(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o)] n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) = \\ & = - \int_{S_\epsilon} \left[\left(\delta_{ij} + \frac{\hat{x}_i \hat{x}_j}{\epsilon^2} \right) \tau_{ik}(\mathbf{x}) + 6u_i(\mathbf{x}) \frac{\hat{x}_i \hat{x}_j \hat{x}_k}{\epsilon^4} \right] \hat{x}_k d\omega. \end{aligned} \quad (\text{A.23})$$

A medida que $\epsilon \rightarrow 0$, \mathbf{u} y $\bar{\tau}$ tienden a sus correspondientes valores en el centro de V_ϵ , es decir, a $\mathbf{u}(\mathbf{x}_o)$ y $\bar{\tau}(\mathbf{x}_o)$ respectivamente. Debido a que $\hat{\mathbf{x}}$ decrece linealmente con ϵ cuando $\epsilon \rightarrow 0$, la contribución del término de las tensiones dentro de la integral a la derecha de la igualdad en (A.23) decrece linealmente con ϵ , mientras que el término que acompaña a la velocidad tiende a un valor constante. De esta manera, en el límite $\epsilon \rightarrow 0$

$$\begin{aligned} & \int_D [G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) \tau_{ik}(\mathbf{x}) - u_i(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o)] n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) = \\ & = -6u_i(\mathbf{x}_o) \frac{1}{\epsilon^4} \int_{S_\epsilon} \hat{x}_i \hat{x}_j dS(\mathbf{x}). \end{aligned} \quad (\text{A.24})$$

Usando el teorema de la divergencia obtenemos

$$\int_{S_\epsilon} \hat{x}_i \hat{x}_j dS(\mathbf{x}) = \epsilon \int_{S_\epsilon} \hat{x}_i n_j dS(\mathbf{x}) = \epsilon \int_{V_\epsilon} \frac{\partial \hat{x}_i}{\partial \hat{x}_j} dV(\mathbf{x}) = \delta_{ij} \frac{4}{3} \pi \epsilon^4. \quad (\text{A.25})$$

Sustituyendo (A.25) en (A.24) obtenemos la representación integral que buscábamos

$$u_j(\mathbf{x}_o) = \frac{1}{8\pi} \int_D u_i(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) - \frac{1}{8\pi} \int_D t_i(\mathbf{x}) G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) dS(\mathbf{x}), \quad (\text{A.26})$$

donde $\mathbf{t} = \bar{\tau} \cdot \mathbf{n}$ es el esfuerzo sobre la superficie D .

La ecuación (A.26) nos proporciona una representación del flujo en términos de dos distribuciones que involucran a la función de Green $\bar{\bar{G}}$ y al tensor de tensiones asociado $\bar{\bar{T}}$. Las densidades de estas distribuciones son proporcionales a los valores del esfuerzo en el contorno y del campo de velocidades

respectivamente.

Por último, si evaluamos esta expresión en el límite cuando $\mathbf{x} \rightarrow \mathbf{x}_o$, obtenemos la forma que adopta la ecuación integral de contorno cuando \mathbf{x}_o se encuentra en la frontera D

$$u_j(\mathbf{x}_o) = \frac{1}{4\pi} \int_D u_i(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) - \frac{1}{4\pi} \int_D t_i(\mathbf{x}) G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) dS(\mathbf{x}). \quad (\text{A.27})$$

A.6. Aplicación al caso de un flujo incidente constante sobre un cuerpo

A continuación, deducimos la ecuación integral de contorno para el caso de un objeto inmerso en un fluido que se mueve con velocidad uniforme \mathbf{u}^∞ . Descomponiendo el campo de velocidades total en la suma de un campo de velocidad perturbado y el flujo incidente $\mathbf{u} = \mathbf{u}^D + \mathbf{u}^\infty$, podemos escribir la ecuación (A.26) para el flujo perturbado \mathbf{u}^D como

$$u_j^D(\mathbf{x}_o) = \frac{1}{8\pi} \int_D u_i^D(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) - \frac{1}{8\pi} \int_D t_i^D(\mathbf{x}) G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) dS(\mathbf{x}). \quad (\text{A.28})$$

Si consideramos el flujo incidente \mathbf{u}^∞ , integramos sobre el volumen del objeto y aplicamos el teorema de la divergencia resulta

$$0 = \frac{1}{8\pi} \int_D u_i^\infty(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) - \frac{1}{8\pi} \int_D t_i^\infty(\mathbf{x}) G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) dS(\mathbf{x}). \quad (\text{A.29})$$

Sumando ambas expresiones y teniendo en cuenta $\mathbf{u} = \mathbf{u}^D + \mathbf{u}^\infty$ obtenemos

$$u_j(\mathbf{x}_o) = u_j^\infty + \frac{1}{8\pi} \int_D u_i(\mathbf{x}) T_{ijk}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) n_k(\mathbf{x}) dS(\mathbf{x}) - \frac{1}{8\pi} \int_D t_i(\mathbf{x}) G_{ij}(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) dS(\mathbf{x}). \quad (\text{A.30})$$

A.7. Ecuación de contorno para un dominio axilsimétrico

En esta sección se obtiene la versión simplificada de las ecuaciones integrales de contorno para flujos axilsimétricos [85]. Para reducir el número de incógnitas nótese que $t_\phi = u_\phi = n_\phi = 0$. Introduciendo en (A.26) el cambio

de coordenadas $[x, y, z] = [r \cos \phi, r \sin \phi, z]$, escribiendo $dS = r d\phi dl$ donde dl es el elemento diferencial de arco de la traza del contorno en el plano acimutal D e integrando en ϕ entre 0 y 2π se tiene

$$\begin{aligned} u_\alpha(\mathbf{x}_o) &= \int_D M_{\alpha\beta\gamma}^u(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) u_\beta(\mathbf{x}) n_\gamma(\mathbf{x}) dl(\mathbf{x}) - \int_D M_{\alpha\beta}^t(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) t_\beta(\mathbf{x}) dl(\mathbf{x}) \\ &= \int_D M_{\alpha\beta}^u(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) u_\beta(\mathbf{x}) dl(\mathbf{x}) - \int_D M_{\alpha\beta}^t(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) t_\beta(\mathbf{x}) dl(\mathbf{x}), \quad (\text{A.31}) \end{aligned}$$

donde los subíndices α, β y γ indican la componente axial z o radial r . Nótese que, en términos físicos,

$$u_\alpha(\mathbf{x}_o) = M_{\alpha\beta}^t(\mathbf{x}, \mathbf{x}_o) t_\beta \quad (\text{A.32})$$

representa la velocidad en el punto (r_o, z_o) debida a un anillo de fuerzas puntuales de valor \mathbf{t} localizado en (r, z) .

Las seis componentes del tensor \bar{M}^u ($M_{rrr}^u, M_{rrz}^u, M_{rzz}^u, M_{zrr}^u, M_{zrz}^u, M_{zzz}^u$) y las cuatro componentes del tensor \bar{M}^t ($M_{rr}^t, M_{rz}^t, M_{zr}^t, M_{zz}^t$) vienen dadas por:

$$\begin{aligned} M_{rr}^t &= \frac{2\pi r}{8\pi^2} \frac{1}{rr_o L} \left[K(S^2 + Z^2) - E \left(L^2 + \frac{Z^2 S^2}{D^2} \right) \right], \\ M_{rz}^t &= \frac{2\pi r}{8\pi^2} \frac{Z}{r_o L} \left[-K + E \frac{S^2 - 2r_o^2}{D^2} \right], \\ M_{zr}^t &= \frac{2\pi r}{8\pi^2} \frac{Z}{r L} \left[K - E \frac{S^2 - 2r^2}{D^2} \right], \\ M_{zz}^t &= \frac{2\pi r}{4\pi^2} \frac{1}{L} \left[K + E \frac{Z^2}{D^2} \right], \\ M_{rrr}^u &= \frac{-2\pi r}{4\pi^2} \frac{1}{L} \frac{K}{r_o} \left[\frac{Z^2(S^2 - 2r_o^2)}{D^2 L^2} - \frac{r^2 - r_o^2 - 2Z^2}{r^2} \right] + \\ &\quad + \frac{-2\pi r}{4\pi^2} \frac{1}{L} \frac{K}{r_o} \frac{E}{D^2} \left[\frac{8r_o Z^2(S^2 - 2r^2)}{D^2 L^2} + \frac{r^2(r^2 + r_o^2) - S^2(r_o^2 + 2Z^2)}{r^2 r_o} \right], \\ M_{rrz}^u &= M_{rzr}^u = \frac{-2\pi r}{4\pi^2} \frac{Z}{rr_o L} \left\{ K \left[\frac{Z^2 S^2}{D^2 L^2} - 2 \right] + \frac{E}{D^2} \left[2S^2 - Z^2 - \frac{16r^2 r_o^2 Z^2}{D^2 L^2} \right] \right\}, \\ M_{rzz}^u &= \frac{-2\pi r}{4\pi^2} \frac{Z^2}{r_o D^2 L} \left\{ K \frac{2r_o^2 - S^2}{L^2} + E \left[1 + \frac{8r_o^2(2r^2 - S^2)}{D^2 L^2} \right] \right\}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
M_{zrr}^u &= \frac{-2\pi r}{4\pi^2} \frac{Z}{L} \left\{ K \left[\frac{1}{r^2} + \frac{2Z^2}{D^2 L^2} \right] + \frac{E}{D^2} \left[6 - S^2 \left(\frac{1}{r^2} + \frac{8Z^2}{D^2 L^2} \right) \right] \right\}, \\
M_{zrz}^u &= M_{zzr}^u = \frac{-2\pi r}{4\pi^2} \frac{Z^2}{r D^2 L} \left(K \frac{S^2 - 2r^2}{L^2} + E \frac{8r^2 S^2 - S^4 - 12r^2 r_o^2}{D^2 L^2} \right), \\
M_{zzz}^u &= \frac{-2\pi r}{2\pi^2} \frac{Z^3}{D^2 L^3} \left(-K + E \frac{4S^2}{D^2} \right), \\
M_{rr}^u &= M_{rrr}^u n_r + M_{rrz}^u n_z, \\
M_{rz}^u &= M_{rzz}^u n_r + M_{rzz}^u n_z, \\
M_{zr}^u &= M_{zrr}^u n_r + M_{zrz}^u n_z, \\
M_{zz}^u &= M_{zzr}^u n_r + M_{zzz}^u n_z.
\end{aligned} \tag{A.33}$$

donde

$$\begin{aligned}
Z &= z - z_o, \\
L &= [(r + r_o)^2 + Z^2]^{1/2}, \\
D &= [(r - r_o)^2 + Z^2]^{1/2}, \\
S &= [r^2 + r_o^2 + Z^2]^{1/2}, \\
m &= \frac{2(rr_o)^{1/2}}{L}, \\
K(m) &= \int_0^{\pi/2} \frac{d\theta}{(1 - m^2 \sin^2 \theta)^{1/2}}, \\
E(m) &= \int_0^{\pi/2} (1 - m^2 \sin^2 \theta)^{1/2} d\theta,
\end{aligned} \tag{A.34}$$

y $K(m)$ y $E(m)$ son las integrales elípticas completas de primera y segunda especie respectivamente.

A.8. Resolución de las integrales

Llegados a este punto, sólo nos resta calcular numéricamente las integrales

$$\mathbf{I}^u = \int_D \bar{\mathbf{M}}^u \cdot \mathbf{u} \, dl \quad \text{e} \quad \mathbf{I}^t = \int_D \bar{\mathbf{M}}^t \cdot \mathbf{t} \, dl \quad (\text{A.35})$$

para resolver la ecuación integral (A.31). Para ello, primero dividimos el contorno D en $N - 1$ segmentos mediante la elección de N nodos. Estos nodos pueden estar equiespaciados o seguir alguna otra regla de colocación según el caso que nos ocupe. Por tanto, las integrales a resolver adoptan la forma

$$\mathbf{I}^u = \sum_{j=1}^{N-1} \int_{l_j}^{l_{j+1}} \bar{\mathbf{M}}^u \cdot \mathbf{u} \, dl \quad \text{e} \quad \mathbf{I}^t = \sum_{j=1}^{N-1} \int_{l_j}^{l_{j+1}} \bar{\mathbf{M}}^t \cdot \mathbf{t} \, dl. \quad (\text{A.36})$$

Asumamos que en cada uno de los $N - 1$ segmentos en los que hemos dividido el contorno D , tanto la velocidad \mathbf{u} como la tensión \mathbf{t} , varían de forma lineal. Para calcular las $2(N - 1)$ integrales dadas por la ecuación (A.36) emplearemos una cuadratura de Gauss de 6 puntos.

En lo que sigue, usaremos el subíndice j para indicar el segmento en que nos encontramos, de longitud $\Delta s(j) = l(j + 1) - l(j)$, y el subíndice k se usará para señalar el punto de colocación de Gauss. Los vectores velocidad \mathbf{u} y tensión \mathbf{t} evaluados en un punto de Gauss k vienen dados por

$$u_\beta(k) = u_\beta(j) + v_l(k)[u_\beta(j + 1) - u_\beta(j)] \quad (\text{A.37})$$

y

$$t_\beta(k) = t_\beta(j) + v_l(k)[t_\beta(j + 1) - t_\beta(j)], \quad (\text{A.38})$$

con β la componente radial o axial y donde

$$v_l(k) = 0.5(1 + v_c(k)). \quad (\text{A.39})$$

El vector \mathbf{v}_c , que varía entre -1 y 1 , nos da los puntos de Gauss y el vector \mathbf{w} los pesos de la integración [86]

$$v_c = \begin{bmatrix} -0.932469514203152 \\ -0.661209386466265 \\ -0.238619186083197 \\ 0.238619186083197 \\ 0.661209386466265 \\ 0.932469514203152 \end{bmatrix}, \quad w = \begin{bmatrix} 0.171324492379170 \\ 0.360761573048139 \\ 0.467913934572691 \\ 0.467913934572691 \\ 0.360761573048139 \\ 0.171324492379170 \end{bmatrix}. \quad (\text{A.40})$$

Por tanto, podemos reescribir las integrales a resolver como

$$I_{\alpha}^u = \sum_{j=1}^{N-1} \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 [w(k)M_{\alpha\beta}^u(k) ([1 - v_l(k)]u_{\beta}(j) + v_l(k)u_{\beta}(j+1))] \quad (\text{A.41})$$

e

$$I_{\alpha}^t = \sum_{j=1}^{N-1} \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 [w(k)M_{\alpha\beta}^t(k) ([1 - v_l(k)]t_{\beta}(j) + v_l(k)t_{\beta}(j+1))] . \quad (\text{A.42})$$

Los vectores \mathbf{I}^u , \mathbf{I}^t , \mathbf{u} y \mathbf{t} tienen $2N$ filas, las N primeras correspondientes a la componente radial y las N últimas pertenecientes a la componente axial. Por tanto, los vectores \mathbf{I}^u y \mathbf{I}^t pueden expresarse como

$$I^u(i) = I^u(i, j)u(j) + I^u(i, j+N)u(j+N) + I^u(i, j+1)u(j+1) + I^u(i, j+N+1)u(j+N+1) \quad (\text{A.43})$$

e

$$I^t(i) = I^t(i, j)t(j) + I^t(i, j+N)t(j+N) + I^t(i, j+1)t(j+1) + I^t(i, j+N+1)t(j+N+1) \quad (\text{A.44})$$

para las componentes radiales y como

$$I^u(i+N) = I^u(i+N, j)u(j) + I^u(i+N, j+N)u(j+N) + I^u(i+N, j+1)u(j+1) + I^u(i+N, j+N+1)u(j+N+1) \quad (\text{A.45})$$

e

$$I^t(i+N) = I^t(i+N, j)t(j) + I^t(i+N, j+N)t(j+N) + I^t(i+N, j+1)t(j+1) + I^t(i+N, j+N+1)t(j+N+1) \quad (\text{A.46})$$

para las componente axiales, donde el subíndice i recorre los puntos fuente y varía entre 1 y N .

Por tanto, la resolución de las integrales se reduce al cálculo de dos matrices de $2N$ filas por $2N$ columnas cuyas componentes son de la forma

$$\begin{aligned}
I^u(i, j) &= I^u(i, j) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{rr}^u(k) (1 - v_l(k)), \\
I^u(i, j + N) &= I^u(i, j + N) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{rz}^u(k) (1 - v_l(k)), \\
I^u(i, j + 1) &= I^u(i, j + 1) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{rr}^u(k) v_l(k), \\
I^u(i, j + N + 1) &= I^u(i, j + N + 1) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{rz}^u(k) v_l(k), \\
I^u(i + N, j) &= I^u(i + N, j) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{zr}^u(k) (1 - v_l(k)), \\
I^u(i + N, j + N) &= I^u(i + N, j + N) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{zz}^u(k) (1 - v_l(k)), \\
I^u(i + N, j + 1) &= I^u(i + N, j + 1) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{zr}^u(k) v_l(k), \\
I^u(i + N, j + N + 1) &= I^u(i + N, j + N + 1) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{zz}^u(k) v_l(k), \\
I^t(i, j) &= I^t(i, j) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{rr}^t(k) (1 - v_l(k)), \\
I^t(i, j + N) &= I^t(i, j + N) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{rz}^t(k) (1 - v_l(k)), \\
I^t(i, j + 1) &= I^t(i, j + 1) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{rr}^t(k) v_l(k), \\
I^t(i, j + N + 1) &= I^t(i, j + N + 1) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{rz}^t(k) v_l(k), \\
I^t(i + N, j) &= I^t(i + N, j) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{zr}^t(k) (1 - v_l(k)),
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
I^t(i + N, j + N) &= I^t(i + N, j + N) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{zz}^t(k) (1 - v_l(k)), \\
I^t(i + N, j + 1) &= I^t(i + N, j + 1) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{zr}^t(k) v_l(k), \\
I^t(i + N, j + N + 1) &= I^t(i + N, j + N + 1) + \frac{\Delta s_j}{2} \sum_{k=1}^6 w(k) M_{zz}^t(k) v_l(k).
\end{aligned} \tag{A.47}$$

A la hora de calcular los elementos de las matrices \bar{I}^u e \bar{I}^t , nos encontramos con dos situaciones en las que los elementos de las matrices \bar{M}^t presentan singularidades logarítmicas: cuando el punto de observación j precede al punto fuente $i = j + 1$ y cuando el punto fuente i coincide con punto de observación $j = i$. En efecto,

$$M_{rr}^t \rightarrow \frac{-2\pi}{8\pi^2} (\ln \Delta l - \ln r_o - \ln 8 + 2 + n_{r_o}^2) \tag{A.48}$$

y

$$M_{zz}^t \rightarrow \frac{-2\pi}{8\pi^2} (\ln \Delta l - \ln r_o - \ln 8 - n_{r_o}^2) \tag{A.49}$$

con $\Delta l \rightarrow 0$.

Esta situación no se da para la matriz \bar{I}^u porque debido a la forma que presentan sus elementos, las singularidades aparecen en parejas que se cancelan dos a dos. Para evitar estas singularidades acudimos a lo que se conoce como método Nystrom. Básicamente consiste en sumar y restar el valor del integrando evaluado en el punto fuente, de forma que descomponemos la integral original en la suma de dos integrales. La primera de ellas puede resolverse por cuadratura de Gauss y la segunda analíticamente.

Veamos con mayor detalle como aplicar este método a las dos situaciones en las que nos vamos a encontrar una singularidad.

A.8.1. El punto de observación precede al punto fuente

Para el caso en el que el punto de observación $j = i - 1$ preceda al punto fuente i las integrales que contienen términos logarítmicos son

$$\int_0^1 M_{rr}^t (1 - v_l) dv_l,$$

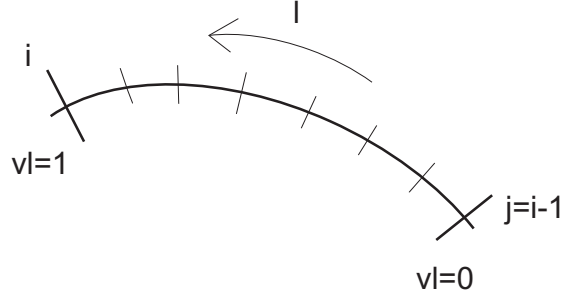


Figura A.2: Punto de observación precede al punto fuente.

$$\begin{aligned}
 & \int_0^1 M_{rr}^t v_l dv_l, \\
 & \int_0^1 M_{zz}^t (1 - v_l) dv_l, \\
 & \int_0^1 M_{zz}^t v_l dv_l.
 \end{aligned} \tag{A.50}$$

La primera y la tercera no presentan ningún tipo de problema, ya que cuando $\Delta l \rightarrow 0$ se cumple que $v_l \rightarrow 1$, lo produce una indeterminación del tipo $\ln 0 \cdot 0$ que es resoluble. Para la segunda y la cuarta tendremos que recurrir al método Nystrom que se aplica como sigue

$$\begin{aligned}
 \int_0^1 M_{rr}^t v_l dv_l &= \int_0^1 (M_{rr}^t v_l - M_{rr0}^t) dv_l + \int_0^1 M_{rr0}^t dv_l, \\
 \int_0^1 M_{zz}^t v_l dv_l &= \int_0^1 (M_{zz}^t v_l - M_{zz0}^t) dv_l + \int_0^1 M_{zz0}^t dv_l,
 \end{aligned} \tag{A.51}$$

donde el subíndice o indica que el integrando ha sido evaluado en el punto fuente. La integral original ha quedado descompuesta en una integral que se resuelve por cuadratura de Gauss y otra que se calcula de forma analítica. Teniendo en cuenta

$$\int_0^1 \ln[\Delta l(1 - v_l)] dv_l = \ln \Delta l - 1, \tag{A.52}$$

resulta

$$\int_0^1 M_{rr0}^t dv_l = -\frac{2\pi}{8\pi^2} \Delta l (\ln \Delta l - 1 - \ln r_o - \ln 8 + 2 + n_{ro}^2) \quad (\text{A.53})$$

y

$$\int_0^1 M_{zz0}^t dv_l = -\frac{2\pi}{8\pi^2} \Delta l (\ln \Delta l - 1 - \ln r_o - \ln 8 - n_{ro}^2) . \quad (\text{A.54})$$

A.8.2. El punto de observación coincide con el punto fuente

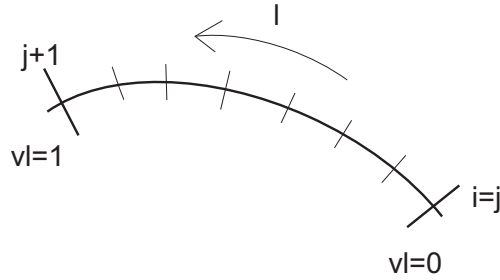


Figura A.3: Punto de observación coincide con el punto fuente.

Al igual que en el apartado anterior, las integrales a resolver que contienen términos logarítmicos son

$$\begin{aligned} & \int_0^1 M_{rr}^t (1 - v_l) dv_l , \\ & \int_0^1 M_{rr}^t v_l dv_l , \\ & \int_0^1 M_{zz}^t (1 - v_l) dv_l , \\ & \int_0^1 M_{zz}^t v_l dv_l . \end{aligned} \quad (\text{A.55})$$

Sin embargo, en este caso son la segunda y cuarta integral las que no presentan ningún tipo de problema, ya que cuando $\Delta l \rightarrow 0$ se cumple que $v_l \rightarrow 0$, mientras que la primera y la tercera han de resolverse empleando el método Nystrom. Nos encontramos por tanto

$$\int_0^1 M_{rr}^t(1-v_l)dv_l = \int_0^1 [M_{rr}^t(1-v_l) - M_{rro}^t] dv_l + \int_0^1 M_{rro}^t dv_l \quad (\text{A.56})$$

y

$$\int_0^1 M_{zz}^t(1-v_l)dv_l = \int_0^1 [M_{zz}^t(1-v_l) - M_{zzo}^t] dv_l + \int_0^1 M_{zzo}^t dv_l. \quad (\text{A.57})$$

La integral original se descompone en otras dos, donde una se resuelve por cuadratura de Gauss y la otra de forma analítica. Teniendo en cuenta

$$\int_0^1 \ln(\Delta l v_l) dv_l = \ln \Delta l - 1, \quad (\text{A.58})$$

se obtienen las mismas expresiones que en el apartado anterior.

A.8.3. El punto fuente tiene coordenada radial nula

Otra situación que hay que tratar de forma separada, es el caso en el que el punto fuente i tenga coordenada radial r_o nula. En la mayoría de las situaciones que vamos a estudiar esto sucede cuando $i = 1$ o $i = N$. En este caso, el Stokeslet y su campo de tensiones asociado, no se evalúan a través de las expresiones (A.59), presentadas por Maldarelli *et al.* [85], sino que recurriremos a la formulación de Pozrikidis [84] que se detalla a continuación:

$$\begin{aligned} M_{rr}^t &= 0, \\ M_{rz}^t &= 0, \\ M_{zr}^t &= \frac{2\pi r}{16\pi^2} (z - z_o) r I_{30}, \\ M_{zz}^t &= \frac{2\pi r}{16\pi^2} [I_{10} + (z - z_o)^2 I_{30}], \\ M_{rrr}^u &= 0, \\ M_{rrz}^u &= 0, \\ M_{rzz}^u &= 0, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
M_{zrr}^u &= -\frac{\pi}{2} \frac{1}{4\pi^2} 6r^3 (z - z_o) I_{50}, \\
M_{zrz}^u &= -\frac{\pi}{2} \frac{1}{4\pi^2} 6r^2 (z - z_o)^2 I_{50}, \\
M_{zzz}^u &= -\frac{\pi}{2} \frac{1}{4\pi^2} 6r (z - z_o)^3 I_{50},
\end{aligned} \tag{A.59}$$

donde

$$\begin{aligned}
I_{10} &= \frac{2\pi}{[r^2 + (z - z_o)^2]^{1/2}}, \\
I_{30} &= \frac{2\pi}{[r^2 + (z - z_o)^2]^{3/2}}, \\
I_{50} &= \frac{2\pi}{[r^2 + (z - z_o)^2]^{5/2}}.
\end{aligned} \tag{A.60}$$

A.9. Validación del código

Con el objeto de validar nuestro código, se estudian problemas sencillos, de solución analítica conocida, y se comparan dichas soluciones con los resultados proporcionados por nuestro código. Asimismo se comprueba que nuestros resultados coinciden con los publicados por otros autores [10, 87, 88, 89].

A.9.1. Flujo de Stokes alrededor de una esfera

Considérese el flujo con fuerzas de viscosidad dominante de un líquido de viscosidad μ que se mueve con velocidad constante U en la dirección \mathbf{e}_x , alrededor de una esfera de radio R . La formulación matemática de este movimiento es:

$$\begin{aligned}
\nabla \cdot \mathbf{u} &= 0, \\
-\nabla P + \mu \nabla^2 \mathbf{u} &= 0, \\
\mathbf{u} &= U \mathbf{e}_x \quad \text{para } |\mathbf{x}| \rightarrow \infty, \\
\mathbf{u} &= 0 \quad \text{para } |\mathbf{x}| = R.
\end{aligned} \tag{A.61}$$

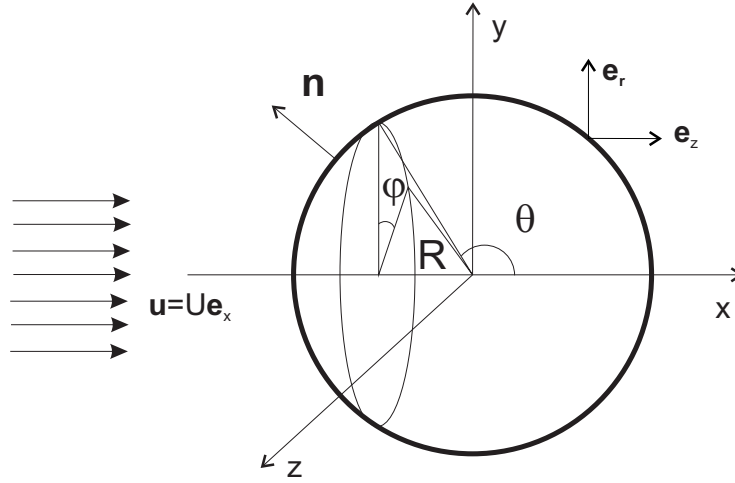


Figura A.4: Geometría del flujo alrededor de una esfera.

Haciendo uso de la simetría del movimiento respecto al eje x , es posible calcular las componentes radial u_r y meridional u_θ de la velocidad del líquido (claramente la componente acimutal de la velocidad u_ϕ es nula), así como los valores de la tensión normal t_r y tangencial t_θ sobre la superficie de la esfera [87]:

$$\begin{aligned}
 u_r &= \left[1 + \frac{R^3}{2r^3} - \frac{3R}{2r} \right] U \cos \theta, \\
 u_\theta &= - \left[1 - \frac{R^3}{4r^3} - \frac{3R}{4r} \right] U \sin \theta, \\
 (t_r)_{r=R} &= (\tau_{rr})_{r=R} n_r + (\tau_{r\theta})_{r=R} n_\theta = \frac{3\mu U}{2R} \cos \theta, \\
 (t_\theta)_{r=R} &= (\tau_{r\theta})_{r=R} n_r + (\tau_{\theta\theta})_{r=R} n_\theta = -\frac{3\mu U}{2R} \sin \theta. \quad (\text{A.62})
 \end{aligned}$$

Expresando estos resultados en coordenadas cilíndricas y teniendo en cuenta que para adimensionalizar hemos empleado la viscosidad del líquido μ , la velocidad del mismo U y el radio de la esfera R , resulta

$$(t_r)_{r=R} = 0 \quad \text{y} \quad (t_z)_{r=R} = \frac{3}{2}. \quad (\text{A.63})$$

Aplicando la ecuación integral de contorno al fluido exterior

$$\frac{1}{2} \mathbf{u} = \mathbf{u}^\infty + \int_S \bar{M}^u \cdot \mathbf{u} ds - \int_S \bar{M}^t \cdot \mathbf{t} ds, \quad (\text{A.64})$$

e imponiendo como condición de contorno que la velocidad en la superficie de la esfera es nula, podemos despejar el vector tensión \mathbf{t} y comprobar, tal y como se muestra en la figura A.5, que efectivamente el resultado numérico coincide con el analítico.

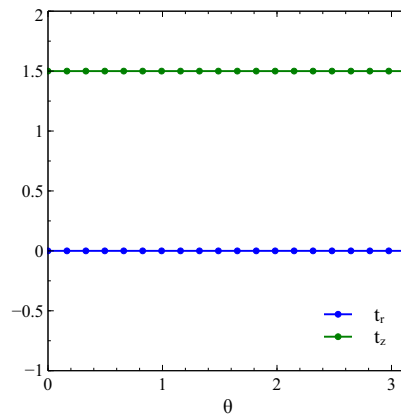


Figura A.5: Vector de tensión obtenido numéricamente para una esfera de 20 nodos.

A.9.2. Flujo de Stokes alrededor de una burbuja

El análisis para el flujo alrededor de una burbuja, de viscosidad nula, es el mismo que para el caso de una esfera con excepción de las condiciones de contorno que en este caso son

$$u_r = 0 \quad \text{y} \quad t_\theta = 0 \quad \text{para} \quad r = R. \quad (\text{A.65})$$

La velocidad meridional u_θ y los valores de la tensión normal t_r y tangencial t_θ sobre la superficie de la burbuja, en este caso, son de la forma [88]:

$$\begin{aligned}
u_r &= -U \cos \theta \left[\frac{R}{r} - 1 \right], \\
u_\theta &= U \sin \theta \left[\frac{R}{2r} - 1 \right], \\
(t_r)_{r=R} &= 3 \frac{\mu U}{R} \cos \theta, \\
(t_\theta)_{r=R} &= 0.
\end{aligned} \tag{A.66}$$

Proyectando sobre nuestros ejes y adimensionalizando queda

$$\begin{aligned}
(u_r)_{r=R} &= -\frac{1}{2} \cos \theta \sin \theta, \\
(u_z)_{r=R} &= \frac{1}{2} \sin^2 \theta, \\
(t_r)_{r=R} &= \cos \theta \sin \theta, \\
(t_z)_{r=R} &= \cos^2 \theta.
\end{aligned} \tag{A.67}$$

Procediendo de forma análoga al caso anterior, la ecuación integral de contorno aplicada al fluido exterior viene dada por

$$\frac{1}{2} \mathbf{u} = \mathbf{u}^\infty + \int_S \bar{\bar{M}}^u \cdot \mathbf{u} \, ds - \int_S \bar{\bar{M}}^t \cdot \mathbf{t} \, ds. \tag{A.68}$$

Si imponemos como condición de contorno el vector tensión sobre la superficie de la burbuja \mathbf{t} , podremos despejar el vector velocidad \mathbf{u} sobre la misma, tal y como se muestra en la figura A.6.

A.9.3. Corriente de Hagen-Poiseuille en un conducto de sección circular constante

Considérese el movimiento unidireccional estacionario de un líquido en un conducto, infinitamente largo, de sección circular y radio R constante, originado por un gradiente de presión reducida independiente del tiempo. Si empleamos coordenadas cilíndricas (r, θ, z) y adimensionalizamos utilizando como magnitudes características para la longitud, la velocidad y la presión R , $U = Q_i/\pi R^2$ y $\mu U/R$ respectivamente, donde Q_i es el caudal, las ecuaciones

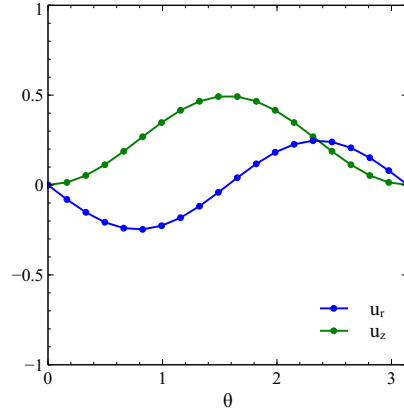


Figura A.6: Vector de velocidad obtenido numéricamente para una burbuja de 20 nodos. Las diferencias entre la solución analítica y la numérica no son apreciables.

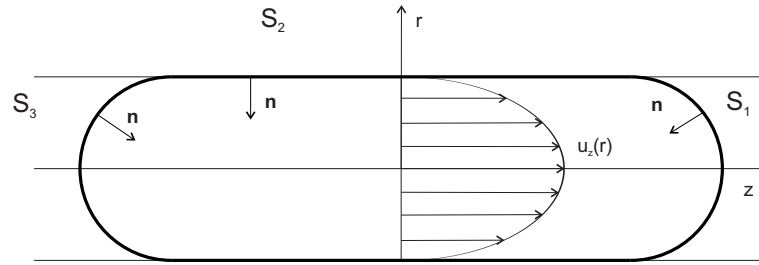


Figura A.7: Corriente de Hagen-Poiseuille.

y condiciones de contorno que rigen nuestro problema son:

$$\begin{aligned}
 \nabla \cdot \mathbf{u} &= 0, \\
 -\nabla P + \nabla^2 \mathbf{u} &= 0, \\
 P(z=0) &= 0, \\
 u_z(r=0) &\neq \infty, \\
 u_z(r=1) &= 0, \\
 Q_i &= \int_0^1 2ru_z dr = 1.
 \end{aligned} \tag{A.69}$$

La solución a este problema es el perfil parabólico de velocidades, denominado de Hagen-Poiseuille, que es de la forma

$$\begin{aligned} u_r &= 0, \\ u_z &= \frac{2}{\pi}(1 - r^2), \\ t_r &= \frac{8z}{\pi}n_r - \frac{4r}{\pi}n_z, \\ t_z &= -\frac{4r}{\pi}n_r + \frac{8z}{\pi}n_z. \end{aligned} \quad (\text{A.70})$$

Para la resolución del problema mediante el método de los elementos de contorno hemos de trabajar con una frontera cerrada. Así pues, tal y como se muestra en la figura A.7, tomaremos dos casquetes esféricos que junto con la pared del conducto conforman una superficie cerrada. La normal a la superficie apunta al fluido bajo estudio; es decir, hacia el interior del conducto.

La ecuación integral de contorno aplicada a este problema viene dada por

$$\frac{1}{2} \mathbf{u} = \int_S \bar{\bar{M}}^u \cdot \mathbf{u} ds - \int_S \bar{\bar{M}}^t \cdot \mathbf{t} ds. \quad (\text{A.71})$$

Imponiendo como condiciones de contorno que la velocidad en la pared del conducto S_2 es nula y el valor del vector tensión $\mathbf{t} = \bar{\bar{r}} \cdot \mathbf{n}$ en los casquetes esféricos S_1 y S_3 , podemos obtener la velocidad en S_1 comprobando que coincide con la del perfil de Poiseuille, tal y como muestra la figura A.8.

A.9.4. Deformación de una gota esférica sumergida en un flujo extensional

En este apartado se estudia la deformación que sufre una gota, inicialmente esférica, de viscosidad $\lambda\mu$ cuando se halla sometida a flujo extensional en un fluido de viscosidad μ [89]. Si adimensionalizamos con μ , U y R , siendo U una velocidad característica del fluido exterior y R el radio inicial de la gota, las componentes radial u_r^∞ y axial u_z^∞ de la velocidad exterior vienen dadas por

$$u_r^\infty = -\frac{r}{2} \quad \text{y} \quad u_z^\infty = z. \quad (\text{A.72})$$

Aplicando la ecuación integral de contorno al fluido exterior y teniendo en cuenta que $\mathbf{t}^o = \bar{\bar{r}}^o \cdot \mathbf{n}$ resulta

$$\frac{1}{2} \mathbf{u} = \mathbf{u}^\infty + \int_S \bar{\bar{M}}^u \cdot \mathbf{u} ds - \int_S \bar{\bar{M}}^t \cdot \mathbf{t}^o ds, \quad (\text{A.73})$$

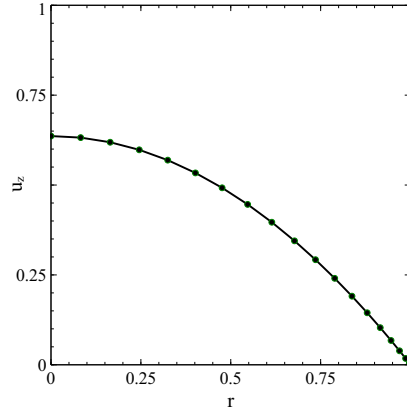


Figura A.8: Vector de velocidad obtenido numéricamente en el casquete esférico S_1 de 20 nodos. Las diferencias entre la solución analítica y la numérica no son apreciables.

mientras que para el fluido interior se tiene que

$$\frac{1}{2} \lambda \mathbf{u} = -\lambda \int_S \bar{\bar{M}}^u \cdot \mathbf{u} ds - \int_S \bar{\bar{M}}^t \cdot \mathbf{t}^i ds, \quad (\text{A.74})$$

donde el cambio de signo en la primera integral se debe a que la normal se ha tomado apuntado al fluido exterior.

Sumando ambas expresiones y teniendo en cuenta que el salto de las tensiones normales en la interfase viene dado por

$$\mathbf{t}^o + \mathbf{t}^i = \frac{1}{Ca_o} (\nabla \cdot \mathbf{n}) \mathbf{n}, \quad (\text{A.75})$$

obtenemos la ecuación integral

$$\frac{1 + \lambda}{2} \mathbf{u} = \mathbf{u}^\infty + (1 - \lambda) \int_S \bar{\bar{M}}^u \cdot \mathbf{u} ds - \frac{1}{Ca_o} \int_S \bar{\bar{M}}^t \cdot (\nabla \cdot \mathbf{n}) \mathbf{n} ds, \quad (\text{A.76})$$

donde $Ca_o = \mu U / \sigma$ es el número capilar exterior y σ la tensión superficial.

Para gotas ligeramente deformadas, una medida apropiada de la deformación es $D = (L - B) / (L + B)$, donde L y B son respectivamente, la semilongitud y semi-anchura que alcanza la gota en estado estacionario. Para validar nuestro código, hemos representado el valor de esta deformación D frente al número Capilar Ca_o para tres valores del cociente de viscosidades $\lambda = 0.1, 1$ y 10 . Como se muestra en las figuras A.10, A.11 y A.12 nuestros resultados concuerdan con los publicados por Stone *et al.* [89].

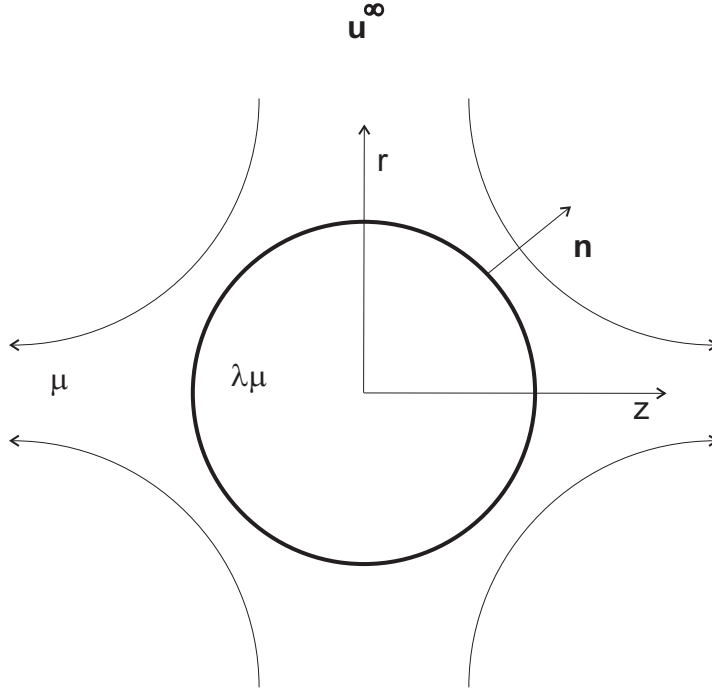


Figura A.9: Gota inicialmente esférica sometida a un flujo extensional.

A.9.5. Formación de gotas en flujos viscosos a partir de un tubo capilar

En esta sección se estudia la deformación de una gota de viscosidad $\lambda\mu$ que pende de un tubo cilíndrico de radio R [10]. El líquido interior fluye debido a un gradiente de presión con un caudal constante $Q = U_i\pi R^2$ y se encuentra inmerso en un segundo líquido de viscosidad μ , que se mueve con velocidad constante $\mathbf{u}^\infty = U_o\mathbf{e}_z$ suficientemente lejos del tubo capilar (ver figura A.13).

Empleando coordenadas cilíndricas (r, θ, z) y adimensionalizando con la velocidad exterior U_o , la viscosidad exterior μ y la tensión superficial σ , la ecuación integral que describe nuestro problema es

$$\frac{1 + \lambda}{2} \mathbf{u} = \mathbf{u}^\infty + (1 - \lambda) \int_S \bar{\bar{M}}^u \cdot \mathbf{u} ds - \int_S \bar{\bar{M}}^t \cdot (\mathbf{t}^o + \mathbf{t}^i) ds. \quad (\text{A.77})$$

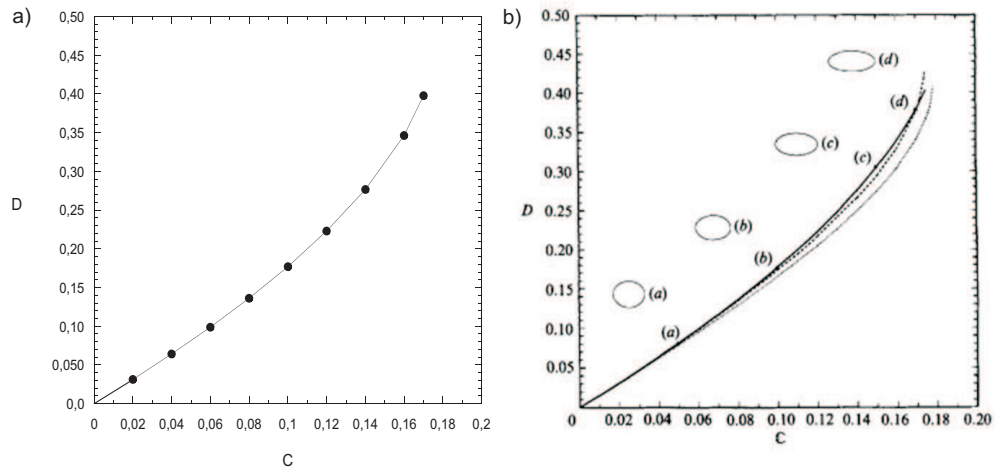


Figura A.10: Deformación de una gota inicialmente esférica inmersa en un flujo extensional para una relación de viscosidades $\lambda = 0.1$ obtenida mediante nuestro código (a) y el publicado por Stone *et al.* [89] (b).

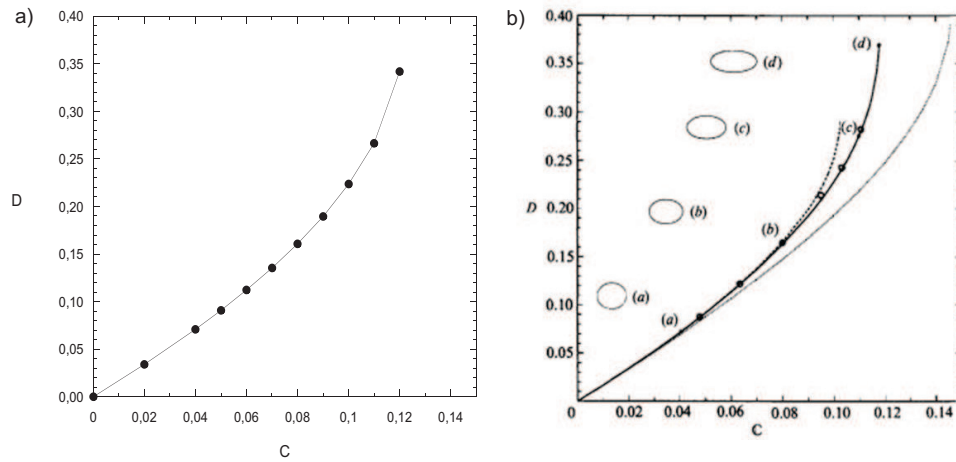


Figura A.11: Deformación de una gota inicialmente esférica inmersa en un flujo extensional para una relación de viscosidades $\lambda = 1$ obtenida mediante nuestro código (a) y el publicado por Stone *et al.* [89] (b).

En cuanto a las condiciones de contorno, sobre la semiesfera S_3 empleamos para el flujo interior un perfil de velocidades de Hagen-Poiseuille $\mathbf{u} = 2u_i(1 - r^2)\mathbf{e}_z$, donde $u_i = U_i/U_o$, y para el flujo exterior hacemos uso la condición

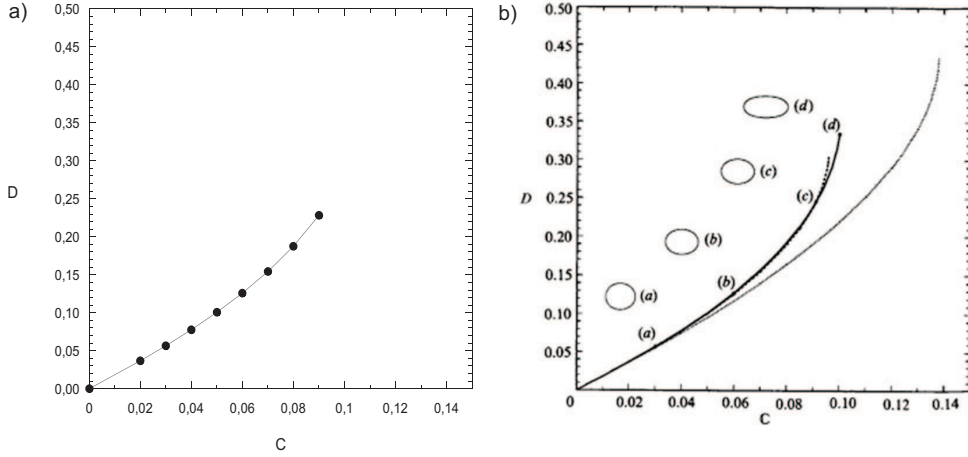


Figura A.12: Deformación de una gota inicialmente esférica inmersa en un flujo extensional para una relación de viscosidades $\lambda = 10$ obtenida mediante nuestro código (a) y el publicado por Stone *et al.* [89] (b).

de no deslizamiento $\mathbf{u} = 0$. Sobre la pared del conducto S_2 y para ambos flujos, interior y exterior, imponemos condiciones de no deslizamiento $\mathbf{u} = 0$, mientras que sobre la superficie de la gota S_1 el salto de tensiones normales viene dado por

$$\mathbf{t}^o + \mathbf{t}^i = \frac{1}{Ca_o} (\nabla \cdot \mathbf{n} - Bo z) \mathbf{n} \quad \text{sobre } S_1, \quad (\text{A.78})$$

donde $Bo = \Delta\rho g R^2 / \sigma$ mide la relación entre las fuerzas gravitatorias y las fuerzas de tensión superficial, con $\Delta\rho$ el salto de densidades y donde $\mathbf{t}^i = -\bar{\bar{\tau}}^i \cdot \mathbf{n}$ y $\mathbf{t}^o = \bar{\bar{\tau}}^o \cdot \mathbf{n}$ son los vectores tensión para los fluidos interior y exterior respectivamente.

Por último, la condición cinemática sobre la superficie de la gota semiesférica se puede expresar como

$$\frac{d\mathbf{x}}{dt} = \mathbf{u} \quad \text{sobre } S_1, \quad (\text{A.79})$$

donde \mathbf{x} es el vector de posición de la interfase fluida.

Para llegar a la solución del problema hay que indicar que en este apartado no conocemos ni el vector velocidad \mathbf{u} ni el salto de tensiones normales en la totalidad del contorno. Por tanto, tendremos incógnitas y datos para

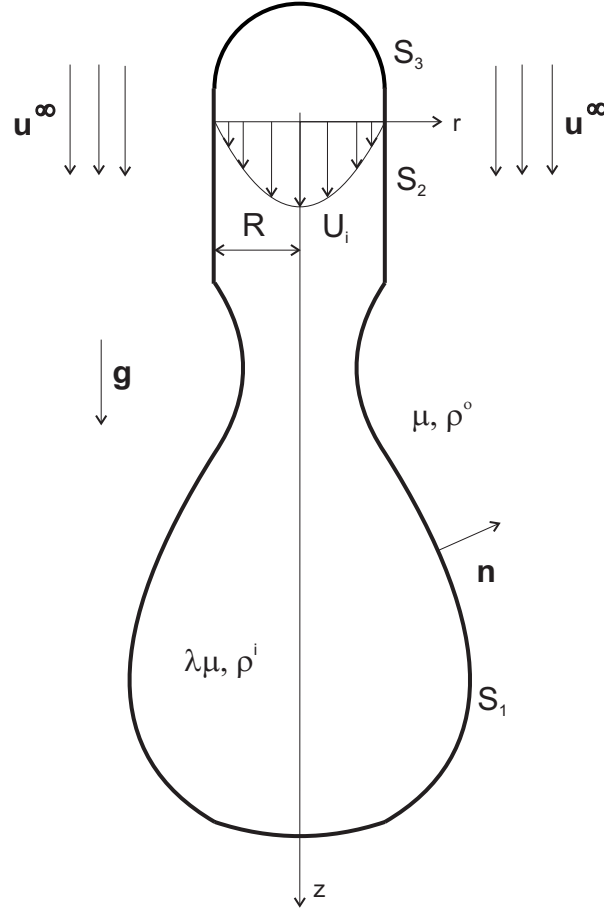


Figura A.13: Deformación de una gota que pende de un tubo capilar cilíndrico.

ambas variables a lo largo del contorno. Para resolver nuestro sistema de ecuaciones en este caso, hemos de reordenar las matrices $\bar{\bar{I}}^u$ e $\bar{\bar{I}}^t$. En efecto, podemos reescribir nuestra ecuación integral de contorno en la forma

$$0 = \mathbf{u}^\infty + \bar{\bar{I}}^{um} \cdot \mathbf{u} - \bar{\bar{I}}^{tm} \cdot \mathbf{t}, \quad (\text{A.80})$$

donde

$$\bar{\bar{I}}^{um} = \left[(1 - \lambda) \bar{\bar{I}}^u - \bar{\bar{\delta}} \right], \quad (\text{A.81})$$

siendo $\bar{\bar{\delta}}$ la matriz identidad.

Si descomponemos las matrices y vectores de la ecuación (A.80) en la forma

$$\begin{aligned}\bar{\bar{I}}^{um} &= \begin{bmatrix} \bar{\bar{I}}_{1r}^{um} & \bar{\bar{I}}_{2r}^{um} & \bar{\bar{I}}_{3r}^{um} & \bar{\bar{I}}_{1z}^{um} & \bar{\bar{I}}_{2z}^{um} & \bar{\bar{I}}_{3z}^{um} \end{bmatrix}, \\ \bar{\bar{I}}^{tm} &= \begin{bmatrix} \bar{\bar{I}}_{1r}^{tm} & \bar{\bar{I}}_{2r}^{tm} & \bar{\bar{I}}_{3r}^{tm} & \bar{\bar{I}}_{1z}^{tm} & \bar{\bar{I}}_{2z}^{tm} & \bar{\bar{I}}_{3z}^{tm} \end{bmatrix},\end{aligned}\tag{A.82}$$

$$\mathbf{u} = \begin{bmatrix} \mathbf{u}_{r1} \\ \mathbf{u}_{r2} \\ \mathbf{u}_{r3} \\ \mathbf{u}_{z1} \\ \mathbf{u}_{z2} \\ \mathbf{u}_{z3} \end{bmatrix} \quad \text{y} \quad \mathbf{t} = \begin{bmatrix} \mathbf{t}_{r1} \\ \mathbf{t}_{r2} \\ \mathbf{t}_{r3} \\ \mathbf{t}_{z1} \\ \mathbf{t}_{z2} \\ \mathbf{t}_{z3} \end{bmatrix}\tag{A.83}$$

y definimos

$$\begin{aligned}\bar{\bar{I}}_{incog}^{um} &= \begin{bmatrix} \bar{\bar{I}}_{1r}^{um} & \bar{\bar{I}}_{1z}^{um} \end{bmatrix}, \\ \bar{\bar{I}}_{dat}^{um} &= \begin{bmatrix} \bar{\bar{I}}_{2r}^{um} & \bar{\bar{I}}_{3r}^{um} & \bar{\bar{I}}_{2z}^{um} & \bar{\bar{I}}_{3z}^{um} \end{bmatrix}, \\ \bar{\bar{I}}_{incog}^{tm} &= \begin{bmatrix} \bar{\bar{I}}_{2r}^{tm} & \bar{\bar{I}}_{3r}^{tm} & \bar{\bar{I}}_{2z}^{tm} & \bar{\bar{I}}_{3z}^{tm} \end{bmatrix}, \\ \bar{\bar{I}}_{dat}^{tm} &= \begin{bmatrix} \bar{\bar{I}}_{1r}^{tm} & \bar{\bar{I}}_{1z}^{tm} \end{bmatrix}, \\ \bar{\bar{I}}_{incog} &= \begin{bmatrix} \bar{\bar{I}}_{incog}^{um} & -\bar{\bar{I}}_{incog}^{tm} \end{bmatrix}, \\ \bar{\bar{I}}_{dat} &= \begin{bmatrix} \bar{\bar{I}}_{dat}^{um} & -\bar{\bar{I}}_{dat}^{tm} \end{bmatrix},\end{aligned}\tag{A.84}$$

donde los subíndices 1, 2 y 3 hacen referencia a la superficie de la gota, la superficie del conducto y la semiesfera respectivamente, podemos escribir nuestra ecuación integral de contorno como

$$\bar{\bar{I}}_{incog} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{u}_{r1} \\ \mathbf{u}_{z1} \\ \mathbf{t}_{r2} \\ \mathbf{t}_{r3} \\ \mathbf{t}_{z2} \\ \mathbf{t}_{z3} \end{bmatrix} + \bar{\bar{I}}_{dat} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{u}_{r2} \\ \mathbf{u}_{r3} \\ \mathbf{u}_{z2} \\ \mathbf{u}_{z3} \\ \mathbf{t}_{r1} \\ \mathbf{t}_{z1} \end{bmatrix} = -\mathbf{u}^\infty.\tag{A.85}$$

Por tanto, el sistema puede resolverse fácilmente como

$$\begin{bmatrix} \mathbf{u}_{r1} \\ \mathbf{u}_{z1} \\ \mathbf{t}_{r2} \\ \mathbf{t}_{r3} \\ \mathbf{t}_{z2} \\ \mathbf{t}_{z3} \end{bmatrix} = \bar{\bar{I}}_{incog}^{-1} \cdot \left(-\mathbf{u}^\infty - \bar{\bar{I}}_{dat} \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{u}_{r2} \\ \mathbf{u}_{r3} \\ \mathbf{u}_{z2} \\ \mathbf{u}_{z3} \\ \mathbf{t}_{r1} \\ \mathbf{t}_{z1} \end{bmatrix} \right).\tag{A.86}$$

Para validar nuestro código, se ha representado tanto el tiempo de rotura, como la forma que adopta la gota en este instante para $Bo = 0.5$, $\lambda = 0.1$ y distintos números Capilares Ca_o , tal y como se muestra en la figura A.14.

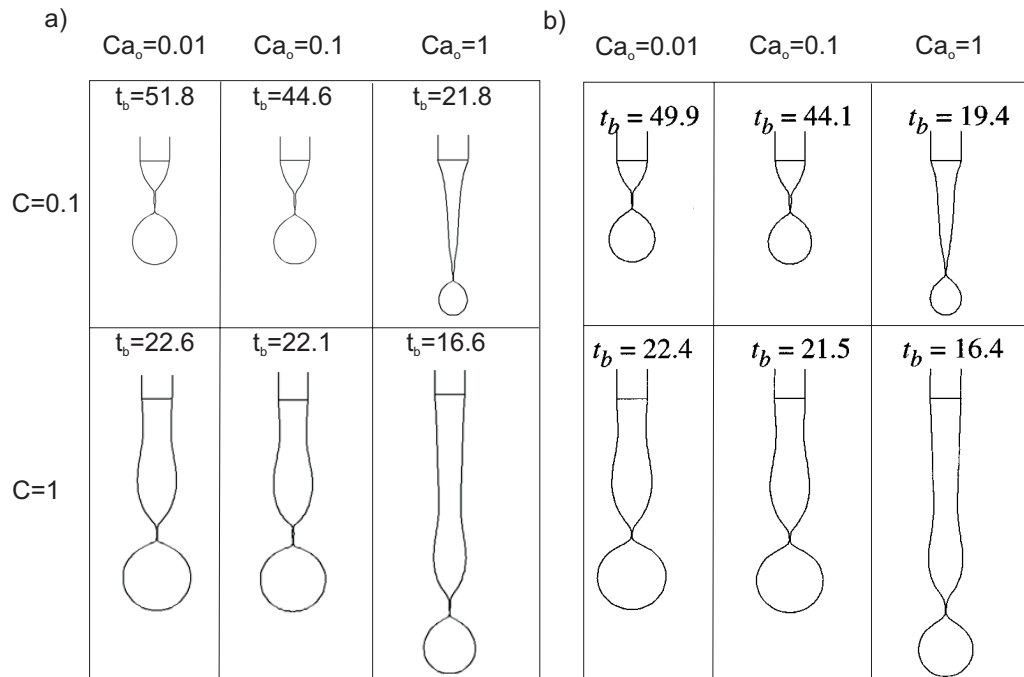


Figura A.14: Tiempo de rotura y forma que adopta la gota en dicho instante obtenidos mediante nuestro código (a) y el obtenido por Stone *et al.* [10] (b) para $Bo = 0.5$ y $\lambda = 0.1$.

A.10. Formación de gotas mediante la configuración de coflujo

El problema bajo estudio consiste en un chorro de un fluido newtoniano e incompresible de viscosidad μ_i , que fluye a caudal constante $Q_i = U_i \pi R_i^2$ desde un capilar cilíndrico de radio R_i . Este chorro se encuentra inmerso en el seno de un fluido newtoniano e incompresible inmiscible con él, de viscosidad μ_o y que fluye a caudal constante $Q_o = U_o L_i^2$ en un tubo de sección

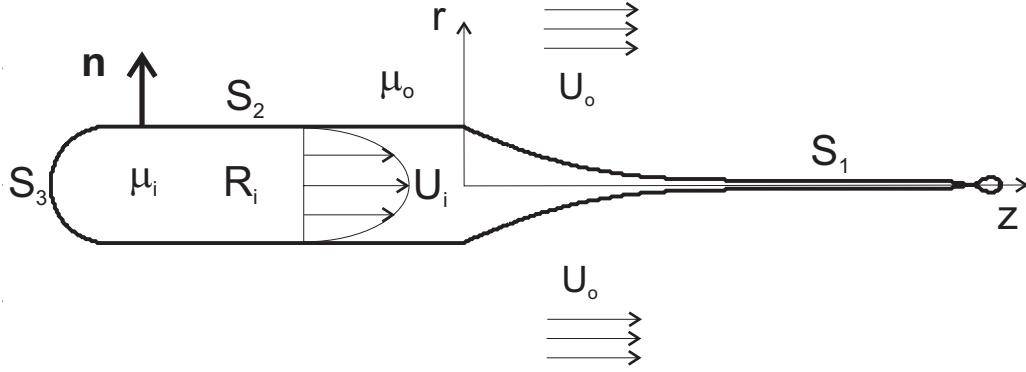


Figura A.15: Esquema en el que se indican las distintas variables dimensionales del problema, así como la geometría utilizada para resolver numéricamente el coflujo de dos fluidos inmiscibles mediante el código de elementos de contorno para la ecuación de Stokes.

cuadrada L_i .

Los números de Reynolds de ambas corrientes $Re_o = \rho_o U_o R_i / \mu_o$ y $Re_i = \rho_i U_i R_i / \mu_i$, así como el número de Bond gravitatorio $Bo = \Delta \rho g R_i^2 / \sigma$, resultan ser mucho menores que la unidad lo que nos permite asumir que su movimiento viene dado por la ecuación de Stokes

$$-\nabla P + \mu \nabla^2 \mathbf{u} = 0. \quad (\text{A.87})$$

Adoptando coordenadas cilíndricas y tomando el radio del capilar cilíndrico R_i , la velocidad media del fluido exterior U_o y la viscosidad del fluido exterior μ_o para adimensionalizar nuestras ecuaciones, nuestro problema se reduce a la resolución de la ecuación integral

$$\frac{1 + \lambda}{2} \mathbf{u} = \mathbf{u}^\infty + (1 - \lambda) \int_S \bar{\bar{M}}^u \cdot \mathbf{u} ds - \int_S \bar{\bar{M}}^t \cdot (\mathbf{t}^o + \mathbf{t}^i) ds, \quad (\text{A.88})$$

donde $\mathbf{u}^\infty = \mathbf{e}_z$, sujeto a las condiciones de contorno

$$\begin{aligned} \mathbf{u} &= 2u_i(1 - r^2)\mathbf{e}_z & \text{para } S_3, \\ \mathbf{u} &= 0 & \text{para } S_2, \\ \mathbf{t}^o + \mathbf{t}^i &= \frac{1}{Ca_o}(\nabla \cdot \mathbf{n})\mathbf{n} & \text{para } S_1, \end{aligned} \quad (\text{A.89})$$

donde \mathbf{n} es el vector normal unitario que apunta al fluido exterior, $Ca_o = \mu_o U_o / \sigma$ es el número Capilar exterior que mide la importancia relativa entre los esfuerzos viscosos y las fuerzas de tensión superficial, $\lambda = \mu_i / \mu_o$ es la relación de viscosidades y $u_i = U_i / U_o$ es la relación de velocidades.

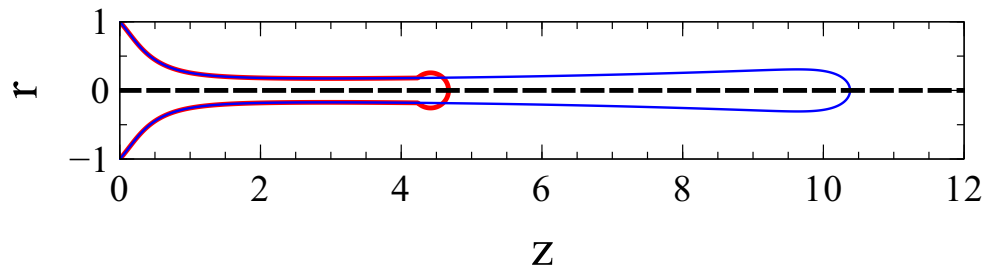


Figura A.16: Forma final del chorro para el primer ciclo (azul) y forma resultante tras cortarla y unirla a una esfera (rojo). $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$ y $\lambda = 0.075$

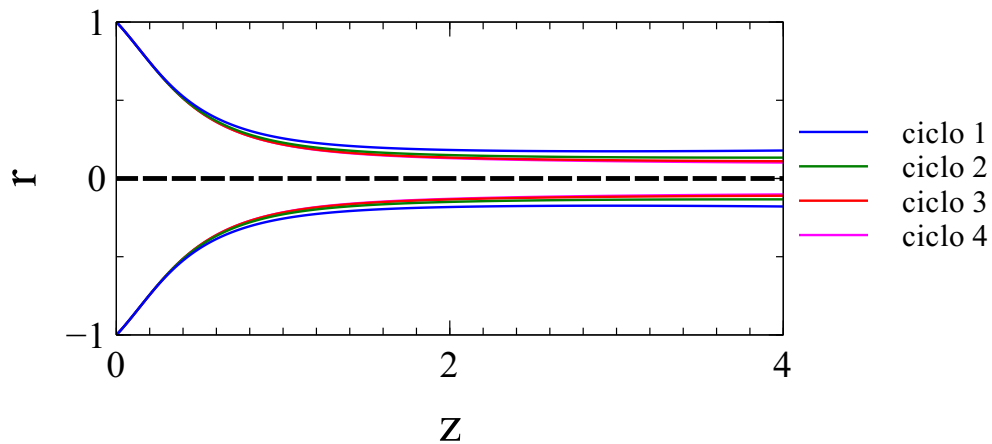


Figura A.17: Forma final del chorro, obtenida numéricamente, para cuatro ciclos consecutivos con $Ca_o = 5$, $U_i/U_o = 6 \cdot 10^{-3}$ y $\lambda = 1$.

Para calcular numéricamente la forma estacionaria del ligamento de líquido, se procede tal y como se describe a continuación. Como forma inicial de

la interfase que separa ambos fluidos, se toma una semiesfera adherida a la salida del tubo. A través de la condición cinemática, $d\mathbf{x}/dt = \mathbf{u}$, la forma de la superficie del chorro se actualiza en cada paso de tiempo a través del campo de velocidades obtenido como solución de la ecuación integral (A.88). Este proceso continúa hasta que se desprende una gota del extremo del ligamento. Puesto la forma del ligamento a la que se llega en este primer ciclo no será la estacionaria, repetimos el proceso descrito anteriormente pero partiendo esta vez de una forma inicial que es muy similar a la final del primer ciclo. En efecto, con objeto de acelerar el proceso de convergencia hasta la solución estacionaria, se elimina la parte del chorro situado a una distancia superior a 4 veces el radio de la aguja. Por motivos de estabilidad, se redondea la punta del chorro resultante mediante una esfera de diámetro algo mayor que el diámetro del chorro (ver figura A.16). Este proceso se repite hasta que la diferencia entre el diámetro del chorro para dos ciclos consecutivos sea $\sim 1\%$, lo cual sucede en la mayoría de los casos tras lanzar 4 ciclos, tal y como se muestra en la figura A.17.

Appendix B

Solution of the generalized Tomotika's dispersion relation

B.1. Solution of the generalized Tomotika's dispersion relation

Both the wavenumber of maximum growth rate k^* and the maximum value of the growth rate in^* of capillary sinusoidal perturbations of the form $e^{i\bar{n}t + \bar{k}z}$ propagating along a fluid cylinder which is surrounded by an infinite mass of another liquid, is reiteratively used in chapter 2. Thus, by means of clarity, we reproduce here the dispersion relation $F(in, k, Oh, \mu_i/\mu_o) = 0$, firstly deduced by Tomotika [61] and firstly solved numerically by Meister and Scheele [60]:

$$\begin{vmatrix} I_1(k) & I_1(k_1) & K_1(k) & K_1(k_2) \\ kI_0(k) & k_1I_0(k_1) & -kK_0(k) & -k_2K_0(k_2) \\ 2(\mu_i/\mu_o)k^2I_1(k) & (\mu_i/\mu_o)(k^2 + k_1^2)I_1(k_1) & 2k^2K_1(k) & (k^2 + k_2^2)K_1(k_2) \\ F_1 & F_2 & F_3 & F_4 \end{vmatrix} = 0 \quad (\text{B.1})$$

where

$$\bar{k} = kd_j/2, \quad (\text{B.2})$$

$$Oh = \frac{\mu_i}{\sqrt{\rho_i \sigma d_j/2}}, \quad (\text{B.3})$$

$$\bar{n} = \frac{\mu_i}{\rho_i (d_j/2)^2} n, \quad (\text{B.4})$$

$$k_1 = \sqrt{k^2 + in}, \quad (\text{B.5})$$

$$k_2 = \sqrt{k^2 + in \frac{\mu_i \rho_o}{\mu_o \rho_i}}, \quad (\text{B.6})$$

$$F_1 = ik^2 \frac{\mu_i}{\mu_o} [I_0(k) + I_2(k)] - n \frac{\mu_i}{\mu_o} I_0(k) + \frac{(k^2 - 1)k \mu_i}{n Oh^2 \mu_o} I_1(k), \quad (\text{B.7})$$

$$F_2 = ik_1 k \frac{\mu_i}{\mu_o} [I_0(k_1) + I_2(k_1)] + \frac{(k^2 - 1)k \mu_i}{n Oh^2 \mu_o} I_1(k_1), \quad (\text{B.8})$$

$$F_3 = -ik^2 [K_0(k) + K_2(k)] + n \frac{\rho_o \mu_i}{\rho_i \mu_o} K_0(k), \quad (\text{B.9})$$

and

$$F_4 = -ik_2 k [K_0(k_2) + K_2(k_2)]. \quad (\text{B.10})$$

Given a dimensionless wavenumber k , a viscosity ratio μ_i/μ_o , a density ratio $\rho_i/\rho_o \simeq 1$ and a value of the Ohnesorge number Oh , we have solved equation (B.1) using Mathematica. The results for different values of the viscosity ratio are shown in figure B.1.

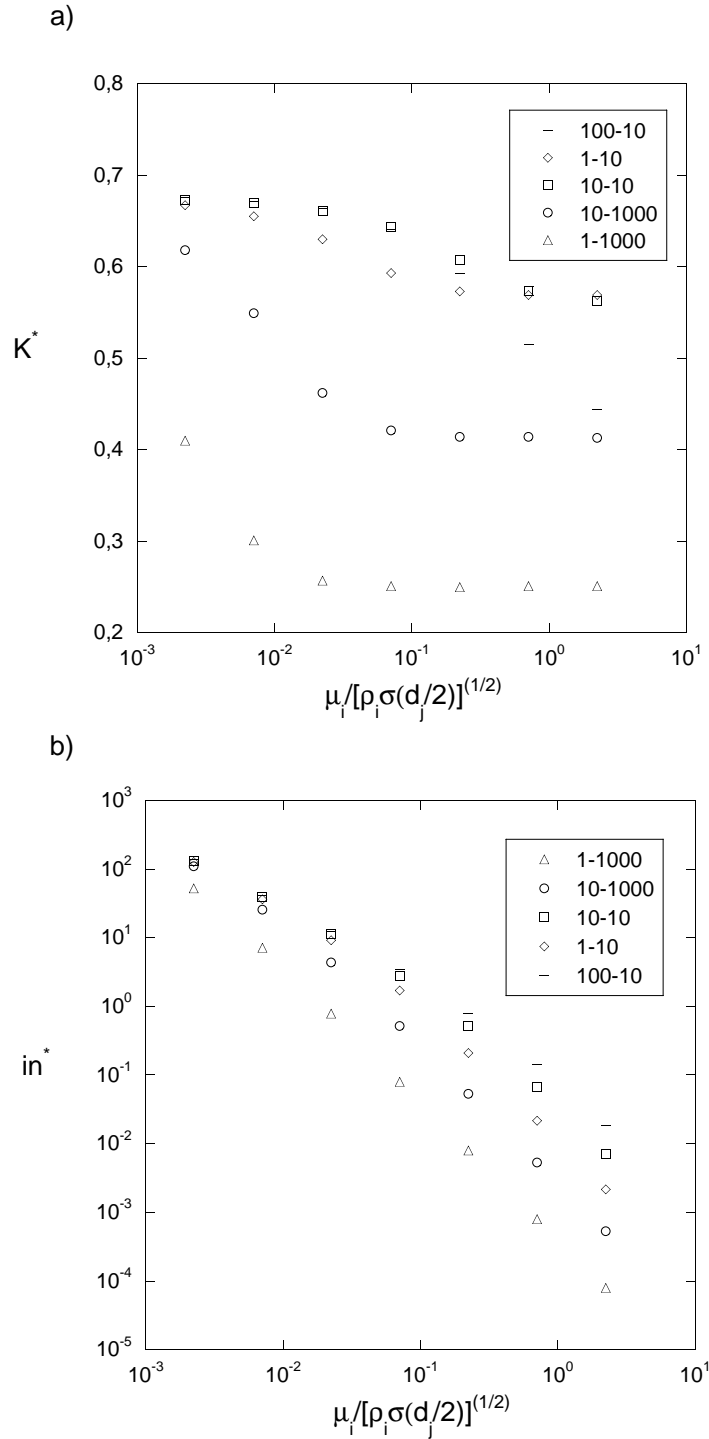


Figure B.1: a: Variation of the wavenumber of maximum growth rate k^* as a function of the Ohnesorge number and for different values of the inner/outer viscosities. b: Variation of the maximum growth rate $in^* = in(k^*)$ as a function of the Ohnesorge number and for different values of the inner/outer viscosities.

Apéndice C

Configuración de coflujo

C.1. Introducción

En este apéndice se detalla la fabricación de los dispositivos de coflujo empleados para los experimentos relacionados con los capítulos 2 (régimen de ensanchamiento) y 3 (régimen de estrechamiento), así como aquellos aspectos más relevantes del montaje experimental.

C.2. Dispositivos de coflujo para el régimen de widening

Los dispositivos empleados en los experimentos relativos al régimen de widening o ensanchamiento expuestos en el capítulo 2, constan básicamente de dos tubos coaxiales. El líquido interior se inyecta a través de un capilar cilíndrico con uno de sus extremos afilado a un diámetro D_i , comprendido entre 40 y 60 μm , y un diámetro exterior de aproximadamente 80 μm . Para fabricar la punta se emplea un Flaming/Brown Micropipette Puller (Model P-97, Sutter Instrument Co., USA) cuya función es dividir el capilar original en dos partes iguales, cada una de ellas con un extremo terminado en una punta cónica prácticamente cerrada. El diámetro deseado se selecciona mediante un filamento incandescente (Microforge Narishige MF-830, Japan) sobre el cual vertimos cristal en polvo. Cuando el filamento está lo suficientemente caliente, el cristal se funde formando una gota sobre la que fundiremos la punta cónica del capilar cilíndrico hasta alcanzar el diámetro deseado. Obviamente esto ha de hacerse con sumo cuidado ya que para obtener chorros axilimétricos la punta ha de ser prácticamente plana. El líquido exterior se inyecta a través del espacio existente entre el capilar interior cilíndrico y el tubo capilar exterior que es de sección cuadrada. El alineamiento entre ambos capilares está asegurado puesto que el diámetro exterior de la región sin afilar del capilar cilíndrico es igual al lado interior del capilar exterior $D_o = 1 mm$.

Tras introducir aproximadamente la mitad del capilar cilíndrico en el interior del capilar de sección cuadrada, con cuidado de no dañar la punta afilada, pegamos el conjunto resultante sobre un cristal grueso.

Con objeto de conectar el dispositivo con el resto del montaje, tomamos tres agujas hipodérmicas y les practicamos pequeños orificios, junto a la base, que nos permitan colocarlas sobre las entradas y salida del dispositivo (ver figura C.1). Para ello empleamos un pegamento epoxy de dos componentes (Devcon 14250) cuya gran viscosidad cerca de su punto de endurecimiento

nos permite su manejo sin riesgo de que se introduzca en los capilares obturándolos. Ambos líquidos se inyectan mediante bombas de jeringa (Harvard Apparatus PHD2000).

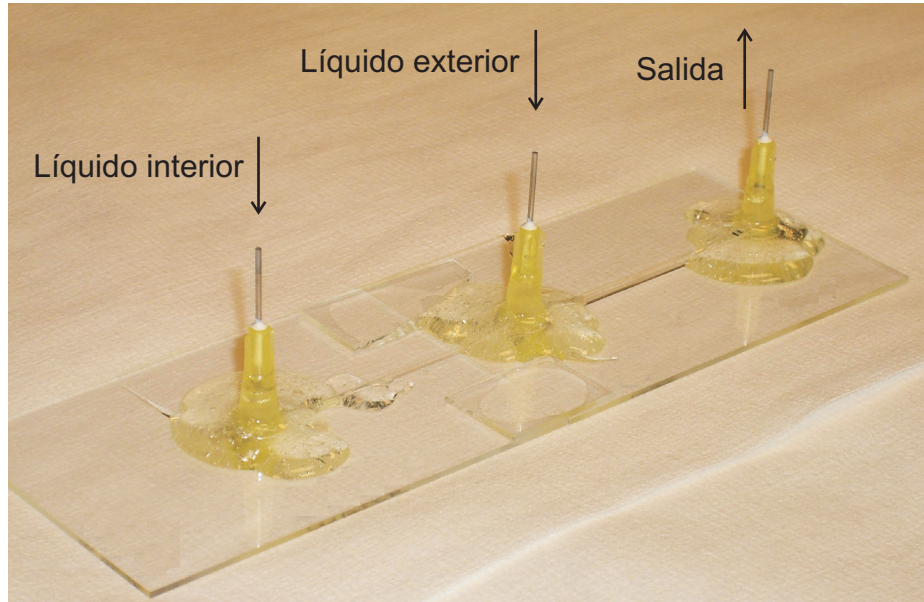


Figura C.1: Dispositivo de coflujo para el régimen de widening.

Con objeto de visualizar y medir las gotas resultantes utilizamos una cámara de alta velocidad Phantom V7.1, a una frecuencia de adquisición que varía entre 2000 y 51000 fps que se encuentra conectada a un microscopio invertido (Zeiss Axio Observer A1) donde se sitúa el dispositivo.

Los fluidos de trabajo son agua destilada, glicerol y aceites de silicona con viscosidades comprendidas entre 1.5 y 100 *cp*. La tensión superficial σ entre las distintas parejas de líquidos es prácticamente constante e igual a 40 mN m^{-1} .

A pesar de su tosca fabricación, los dispositivos de coflujo descritos funcionan correctamente durante semanas sin ninguna fuga. Debido al hecho de que el líquido exterior ha de pasar por el reducido espacio comprendido entre el capilar interior y el exterior, no es posible emplear líquidos exteriores cuyas viscosidades superen los 20 *cp*.

El empleo de bombas de jeringa no nos permite alcanzar las velocidades exteriores necesarias para el régimen de narrowing. Así pues, se diseña un montaje más adecuado para este régimen que se detalla en la sección siguiente.

Los experimentos relativos al capítulo 2, así como el necesario período de aprendizaje para fabricar los dispositivos de coflujo descritos en esta sección, se realizaron bajo la supervisión del Profesor Alberto Fernández de las Nieves (Soft Condensed Matter, Georgia Institute of Technology, Atlanta, U.S.A), con la inestimable colaboración del Dr. Venkata Gundabala, en los laboratorios que su grupo posee (junio 2008 - septiembre 2008).

C.3. Dispositivos de coflujo para el régimen de narrowing

Para realizar los experimentos de coflujo en el régimen de narrowing o estrechamiento [23] se hace uso del montaje esquematizado en la figura C.2. El líquido interior se suministra a través de un capilar cilíndrico de acero cuyos diámetros interior y exterior son 100 y 200 μm respectivamente, mientras que el líquido exterior se inyecta a través del espacio comprendido entre el capilar de acero y un capilar de vidrio de sección cuadrada de lado $L_o = 1 mm$. Para conseguir el alineamiento necesario entre ambos capilares se emplea una unión en T (Upchurch Scientific).

Con objeto de alcanzar velocidades exteriores lo suficientemente altas, $U_o \sim 0.1 m/s$, y tener un control preciso del caudal interior Q_i , ambos líquidos se suministran mediante depósitos presurizados. El control y medida de la presión aplicada se realiza mediante dos reguladores de presión (Bosch Rexroth) y dos manómetros digitales (Digitron 2000P). Debido a los pequeños caudales interiores necesarios en el régimen de narrowing, se aumenta la resistencia de la línea interior introduciendo una sílica de 100 μm de diámetro interior, 360 μm de diámetro exterior y varios metros de longitud.

La velocidad del líquido exterior se calcula de forma indirecta suponiéndola igual a la velocidad de las gotas generadas aguas abajo. La frecuencia de producción de gotas ω , se determina empleando una cámara de alta velocidad Phantom V 7.3 con una resolución de 800×200 pixels y un campo de visión de $372 \times 372 \mu m^2$ a 6000 fps . El diámetro de gota d_d , se mide a partir

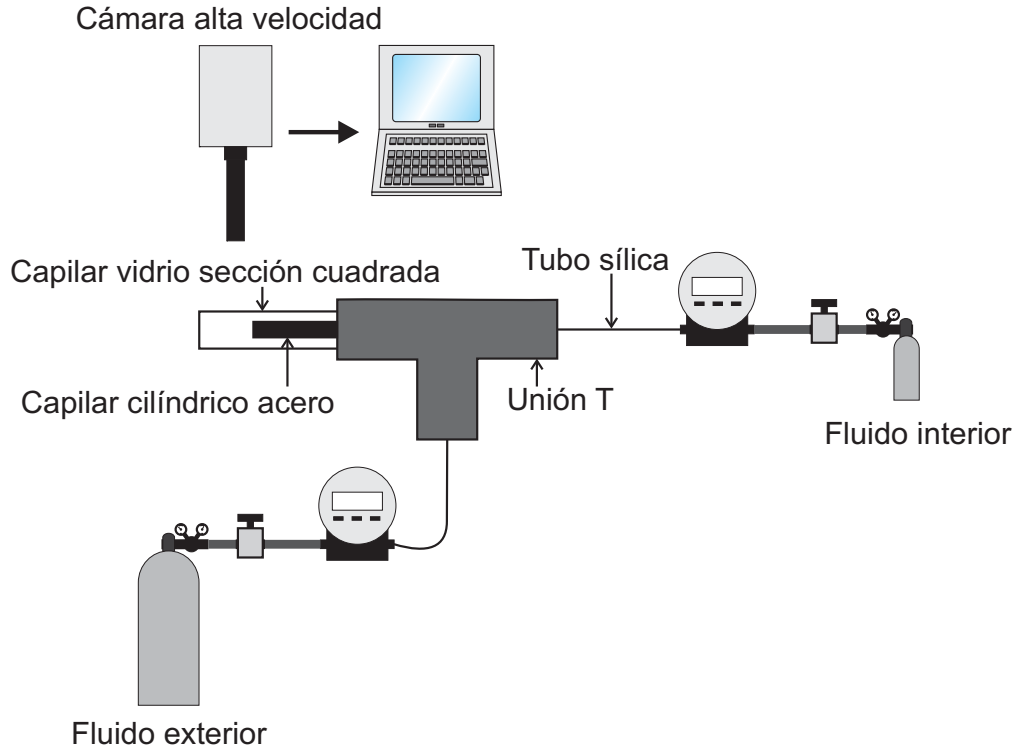


Figura C.2: Montaje experimental para el régimen de narrowing.

de imágenes de alta resolución tomadas por una cámara intensificada (Intensified Retiga Fast camera) de resolución 1280×800 pixels y un campo de visión de $1856 \times 2290 \mu\text{m}^2$. Conocido ω y d_d , el caudal interior se calcula como $Q_i = \pi d_d^3 \omega / 6$.

Como líquidos de trabajo se emplean glicerina, agua, aire y aceites de silicona con viscosidades 10 y 100 *cp*. La tensión superficial entre glicerina y aire es de 25 mN m^{-1} mientras que para el caso de agua y aceite es de 40 mN m^{-1} .

Los experimentos relativos al capítulo 3, los realizó Francisco del Campo Cortés, con la inestimable ayuda del Dr. Álvaro Gómez Marín, en los laboratorios del Departamento de Ingeniería Aeroespacial y Mecánica de Fluidos de la Escuela Superior de Ingenieros de la Universidad de Sevilla.

Apéndice D

Dispositivos microfluídicos

D.1. Resumen

En este apéndice se describe en detalle el proceso de fabricación de los dispositivos microfluídicos [90] empleados para llevar a cabo los experimentos relativos al capítulo 4.

D.2. Fabricación del negativo

Los canales de los dispositivos microfluídicos tienen típicamente unas dimensiones transversales que van desde 1 a cientos de micras. Para su fabricación empleamos técnicas de fotolitografía blanda.

El primer paso para fabricar un dispositivo microfluídico mediante técnicas de fotolitografía blanda es diseñar nuestra red de microcanales con CleWin, un programa que permite el diseño de estructuras multicapas. El programa devuelve como salida un archivo CIF (Caltech Intermediate File-format) que nos permite grabar nuestro diseño en una máscara de Cromo. Las dimensiones de la red de microcanales se eligen con especial cuidado. Si estamos diseñando un canal cuya anchura es mucho mayor que su altura, la parte superior del PDMS puede flectar y unirse al cristal con el que sellamos el dispositivo. Por el contrario, si el área de una columna de PDMS es demasiado pequeña, no puede soportar su propio peso y colapsa.

Es muy importante trabajar en condiciones estériles durante todo el proceso de fabricación de los dispositivos, puesto que pequeñas partículas de polvo pueden producir irregularidades en los canales, incluso su obturación.

Los pasos a seguir en un proceso de fotolitografía se encuentran esquematizados en la figura D.1. Primero se recubre un sustrato de óxido de Silicio con un material fotoresistente (SU-8) mediante un plato giratorio a 3000 rpm durante 30 s. El grosor de este recubrimiento gobierna la altura de los microcanales ya que la estructura impresa en este material se emplea para obtener el molde en PDMS. A continuación el sustrato se coloca en un hornillo (fig.D.1.a) y se somete a un pre-horneado a 65°C durante 6 min, seguido por un horneado a 95°C durante 20 min, con el objeto de endurecer el SU-8. Los gradientes de temperatura han de ser bajos para evitar que se produzcan pequeñas fracturas en el SU-8. Una vez que el sustrato se ha enfriado hasta alcanzar la temperatura ambiente (10 min), se ilumina mediante una fuente de luz ultravioleta (figura D.1.b) a través de la máscara

de Cromo. Los tiempos de exposición dependen del grosor de la capa fotore-sistente y de la potencia de la fuente de luz UV. En nuestro caso, los mejores resultados se obtienen para 24 s.

La exposición UV promueve una reacción química en el material fotore-sistente. Esta reacción es lenta a temperatura ambiente y por ello se lleva a cabo un horneado a 65°C durante 1 min y a 95°C durante 5 min, que aceleran el proceso (figura D.1.d). Como consecuencia, las partes expuestas a la luz UV del material fotore-sistente son insolubles al revelador de PGMA RER600 (propilenglicol metil eter acetato). Tras un tiempo de relajación de 10 min y un revelado de 3.5 min, todas las partes que no han sido expuestas a la luz UV se disuelven y se aclaran (figura D.1.e). Por último se procede a un horneado final a 120°C durante 10 min.

En este punto del proceso de fabricación tenemos una placa de óxido de silicio cubierta por el material fotore-sistente en el cual se halla impreso el negativo de nuestra red de microcanales.

D.3. Fabricación del PDMS

El PDMS pertenece a un grupo de polímeros organometálicos conocidos con el nombre genérico de siliconas. Es ópticamente transparente, inerte, biocompatible, inflamable, permeable a gases y con interesantes propiedades elásticas.

El PDMS es una mezcla de dos componentes: un polímero base y un agente de curado (Sylgard 184 Silicon elastomer kit, Dow Corning). Su resistencia final se determina a través de la relación polímero:agente de curado. Para la fabricación de nuestros dispositivos se emplean 36 gramos de polímero base con una relación 10:1 (9 partes de polímero base por cada parte de agente de curado).

Tras mezclar enérgicamente los dos componentes con un emulsificador, el PDMS líquido resultante se degasifica para eliminar las burbujas que se han introducido durante la emulsificación.

Rodeamos la placa de óxido de Silicio con cinta adhesiva Scotch vertiendo lentamente el PDMS con cuidado de no introducir nuevas burbujas. Para acelerar la reacción entre el polímero base y el agente de curado introducimos el PDMS en un horno a 65°C durante una hora. Una vez alcance la temperatura ambiente podemos desmoldarlo y cubrir los canales con cinta Scotch evitando que queden impurezas en su interior.

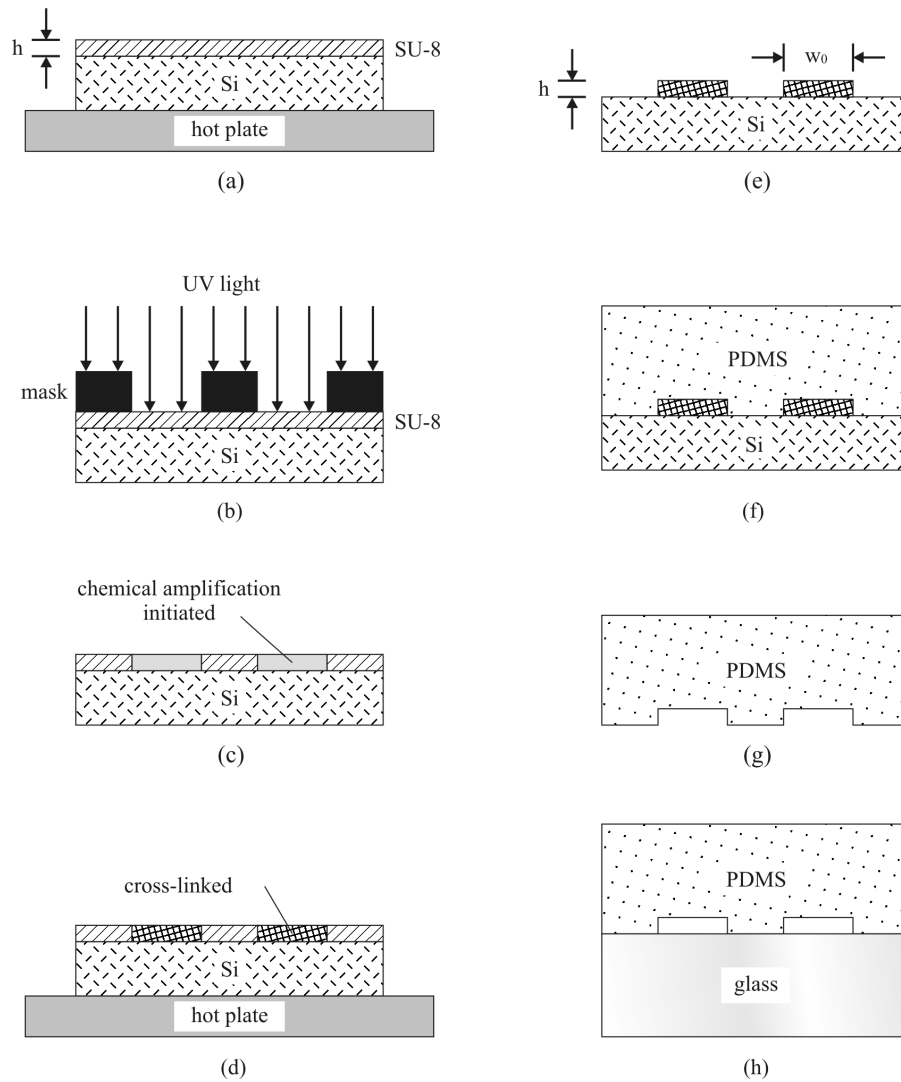


Figura D.1: Esquema de la fabricación de un sello de PDMS [90]. (a) Horneado del fotorresistente SU-8 que cubre la placa de óxido de Silicio. (b) Exposición UV a través de una máscara de Cromo. (c) Una reacción química cruzada comienza en el SU-8 expuesto a la luz UV. (d) Aceleración de la reacción química mediante horneado. (e) Revelado. (f) El PDMS es vertido sobre el molde negativo. (g) El PDMS se despegado del molde. (h) La capa de PDMS se une a un cubreobjetos de cristal para cerrar los microcanales.

D.4. Sellado de los microcanales

Para obtener el dispositivo microfluídico final, hemos de unir químicamente la lámina de PDMS, obtenida en la sección anterior, a un portaobjetos de cristal. Los orificios para las corrientes de entrada y salida se practican en el PDMS, puesto que éste es el material menos frágil. Perforamos el PDMS con una aguja plana (diámetro exterior 1.2 mm) desde el lado donde se encuentran los microcanales, disminuyendo así el riesgo de que queden residuos en ellos. Debido a la elasticidad del PDMS, estos orificios encajan a la perfección con las puntas flexibles de polipropileno (diámetro exterior 1.27 mm) que conectan con el resto del circuito sin que se produzcan fugas.

La unión PDMS/cristal se realiza tratando la superficie del cristal y del

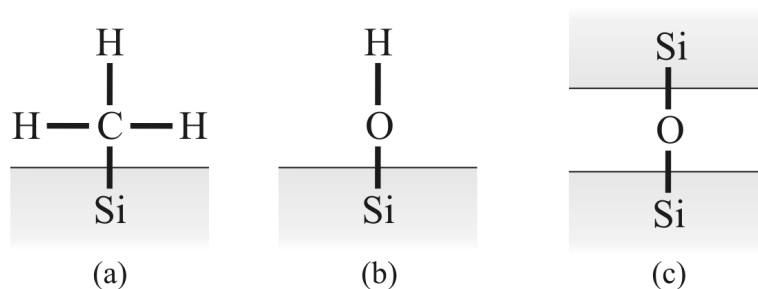


Figura D.2: Características químicas superficiales del PDMS [90]. (a) Superficie hidrofóbica. (b) Superficie hidrofílica. (c) Unión PDMS/cristal.

PDMS en un plasma de oxígeno (Harrick plasma PDC-002) a la máxima potencia durante 40 s. Tras este proceso, disponemos de menos de 30 segundos para colocar el cristal sobre el PDMS (ver figura D.1.h).

Inicialmente, la superficie del PDMS es hidrofóbica pero tras el tratamiento de plasma cambian las características de mojado. Los grupos metil de la superficie del PDMS se rompen por la acción de los radicales libres de oxígeno, dejando átomos de Silicio reactivos en su superficie. Al poner en contacto el PDMS y el cristal surge una unión irreversible Silicio-Oxígeno-Silicio entre los átomos de Silicio del cristal y los del PDMS. Justo después del tratamiento de plasma la superficie del PDMS se vuelve hidrofílica durante unas horas. Para asegurar la hidrofobicidad del PDMS esperamos 24

horas antes de utilizar los dispositivos microfluídicos (ver figura D.2).

D.5. Montaje

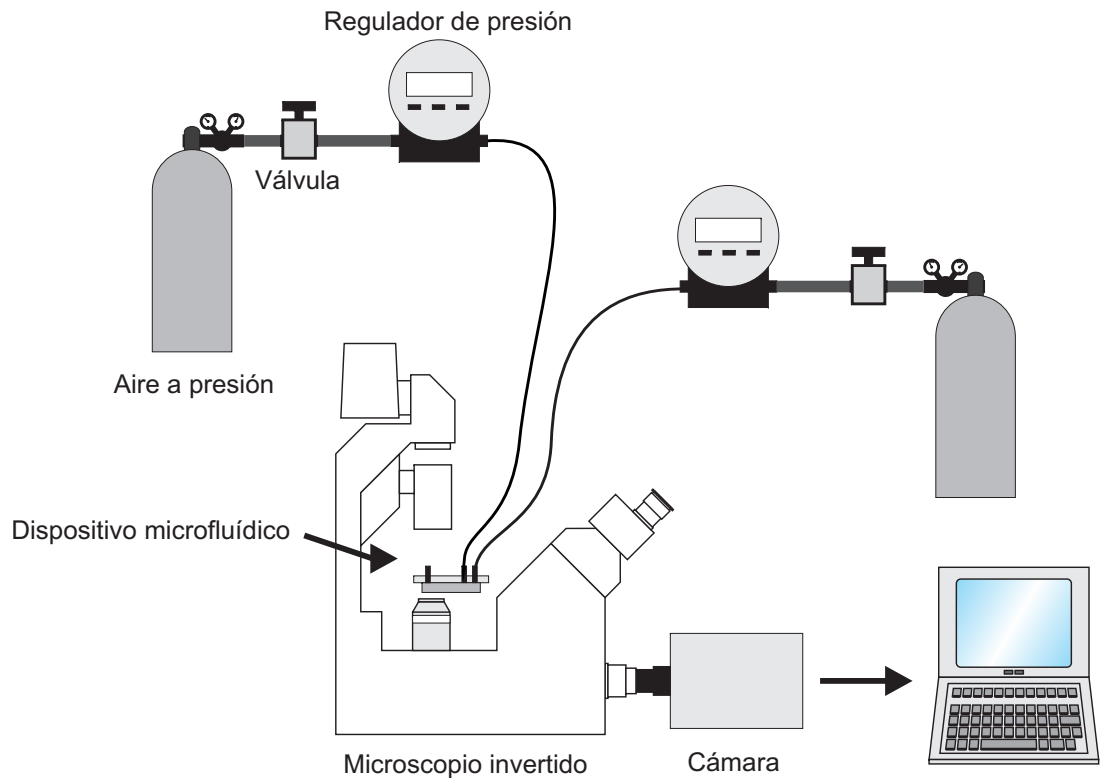


Figura D.3: Esquema del montaje [90].

El montaje experimental empleado para llevar a cabo los experimentos relativos al capítulo 4 se encuentra esquematizado en la figura D.3. Con objeto de observar correctamente la formación de burbujas, el dispositivo microfluídico se coloca sobre un microscopio invertido (3000B Leica) haciendo uso de los objetivos de $20\times$ y $40\times$. Asimismo se emplea una fuente de luz fría de cuello flexible para iluminar el experimento (figura D.4).

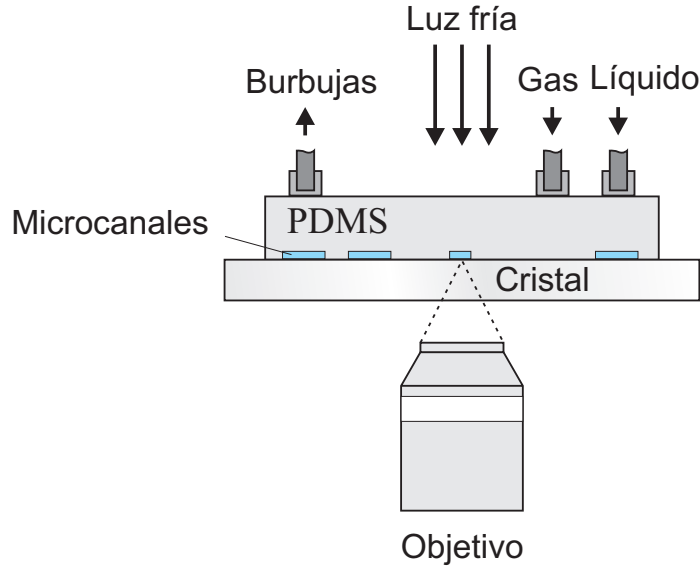


Figura D.4: El dispositivo microfluídico se ilumina con una fuente de luz fría [90].

Como fase continua empleamos agua destilada con un 2% (w/v) de Tween 80 (Sigma Aldrich) y como fase dispersa aire. La adición de este surfactante biocompatible disminuye el valor de la tensión superficial a $\sigma \simeq 40 \text{ mN/m}$ y los ángulos de contacto para el PDMS y el cristal se reducen a $\theta_{\text{PDMS}} = 89^\circ$ y $\theta_{\text{glass}} = 39.5^\circ$ respectivamente.

Para evitar fluctuaciones en el caudal de gas, se aumenta la resistencia de la conducción de gas utilizando un tubo de 0.5 m de longitud y $50 \mu\text{m}$ de diámetro interior.

Ambos fluidos se suministran desde depósitos presurizados y para su control y medida empleamos dos reguladores de presión (Bosch Rexroth) y dos manómetros digitales (Digitron 2000P). El caudal de líquido Q_ℓ se calcula midiendo el volumen de líquido recogido a la salida del dispositivo tras varios minutos de operación.

La visualización y medida de las burbujas se realiza mediante una cámara de alta velocidad Phantom V 7.3 con una resolución de 80×16 pixels y un campo de visión de $163 \times 33 \mu\text{m}^2$ a $2 \times 10^5 \text{ fps}$ o bien a través de una cámara intensificada (Intensified Retiga Fast camera) de resolución of 1280×800 pixels,

y campo de visión de $415 \times 260 \mu\text{m}^2$.

Los experimentos se repiten dos veces para cada pareja de valores Q_g y Q_l . Primero se determina la frecuencia de rotura de las burbujas generadas a través de videos proporcionados por la cámara de alta velocidad y posteriormente, en un experimento independiente, se mide el diámetro de la burbuja a partir de las imágenes tomadas con la cámara intensificada que tiene mayor resolución.

Los experimentos relativos al capítulo 4 se realizaron en los laboratorios del Departamento de Ingeniería Aeroespacial y Mecánica de Fluidos de la Escuela Superior de Ingenieros de la Universidad de Sevilla. El período de aprendizaje para producir los dispositivos microfluídicos descritos en esta sección se llevó a cabo bajo la supervisión del Profesor Detlef Lohse (Physics of Fluids, University of Twente, Enschede, The Netherlands), con la inestimable colaboración del estudiante de doctorado Wim Van Hoeve, en los laboratorios que este grupo posee.

Bibliography

- [1] J. Eggers and E. Villermaux, “Physics of liquid jets,” *Rep. Prog. Phys.*, vol. 71, p. 036601, 2008.
- [2] B. J. Meister and G. F. Scheele, “Drop formation from cylindrical jets in immiscible liquid systems.,” *AIChE J.*, vol. 15, pp. 700–706, 1969.
- [3] J. R. Richards, A. M. Lenhoff, and A. N. Beris, “Dynamic breakup of liquid-liquid jets,” *Phys. Fluids*, vol. 6, pp. 2640–2655, 1994.
- [4] S. Hommaa, J. Kogaa, S. Matsumotoa, M. Songb, and G. Tryggvason, “Breakup mode of an axisymmetric liquid jet injected into another immiscible liquid,” *Chem. Eng. Sci.*, vol. 61, pp. 3986–3996, 2006.
- [5] D. R. Webster and E. K. Longmire, “Jet pinch-off and drop formation in immiscible liquid-liquid systems,” *Exp. Fluids*, vol. 30, pp. 47–56, 2001.
- [6] L. Bragg and J. F. Nye, “A dynamical model of a crystal structure.,” *Proc. Roy. Soc. London*, vol. 190, pp. 474–481, 1947.
- [7] C. S. Smith, “On blowing bubbles for Bragg’s dynamic crystal model,” *Jour. Appl. Phys.*, vol. 20, p. 631, 1949.
- [8] S. C. Chuang and V. W. Goldschmidt, “Bubble formation due to a submerged capillary tube in quiescent and coflowing streams,” *Trans. ASME D: J. Basic Eng.*, vol. 92, pp. 705–711, 1970.
- [9] H. N. Oguz and A. Prosperetti, “Dynamics of bubble growth and detachment from a needle,” *J. Fluid Mech.*, vol. 257, pp. 111–145, 1993.
- [10] D. F. Zhang and H. A. Stone, “Drop formation in viscous flows at a vertical capillary tube,” *Phys. Fluids*, vol. 9, pp. 2234–2242, 1997.
- [11] A. M. Gañán Calvo and J. M. Gordillo, “Perfectly monodisperse microbubbling by capillary Flow Focusing,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 87, p. 274501, 2001.

- [12] R. Suryo and O. A. Basaran, “Tip streaming from a liquid drop forming from a tube in a co-flowing outer fluid,” *Phys. Fluids*, vol. 18, p. 082102, 2006.
- [13] J. M. Gordillo, A. Sevilla, and C. Martínez-Bazán, “Bubbling in a coflow at high Reynolds numbers,” *Phys. Fluids*, vol. 19, p. 077102, 2007.
- [14] S. L. Anna, N. Bontoux, and H. A. Stone, “Formation of dispersions using Flow Focusing in microchannels,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 82, pp. 364–366, 2003.
- [15] J. M. Gordillo, Z. Cheng, M. Márquez, A. M. Gañán Calvo, and D. A. Weitz, “A new device for the generation of microbubbles,” *Phys. Fluids*, vol. 16, pp. 2828–2834, 2004.
- [16] P. Garstecki, I. Gitlin, W. DiLuzio, G. M. Whitesides, E. Kumacheva, and H. A. Stone, “Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic Flow-Focusing device,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 85, pp. 2649–2651, 2004.
- [17] A. S. Utada, A. Fernández-Nieves, H. A. Stone, and D. Weitz, “Dripping to jetting transitions in co-flowing liquid streams,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 99, p. 094502, 2007.
- [18] P. Guillot, A. Colin, A. S. Utada, and A. Ajdari, “Stability of a jet in confined pressure-driven biphasic flows at low Reynolds number,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 99, p. 104502, 2007.
- [19] P. Guillot, A. Colin, and A. Ajdari, “Stability of a jet in confined pressure-driven biphasic flows at low Reynolds number in various geometries,” *Phys. Rev. E*, vol. 78, p. 016307, 2008.
- [20] A. M. Gañán Calvo and P. Riesco-Chueca, “Jetting-dripping transition of a liquid jet in a lower viscosity co-flowing immiscible liquid: the minimum flow rate in Flow Focusing,” *J. Fluid Mech.*, vol. 553, pp. 75–84, 2006.
- [21] A. S. Utada, A. Fernández-Nieves, J. M. Gordillo, and D. Weitz, “Absolute instability of a liquid jet in a coflowing stream,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 100, p. 014502, 2008.
- [22] R. K. Shah, H. C. Shum, A. C. Rowat, D. Lee, J. J. Agresti, A. S. Utada, L. Chu, W. K. Kim, A. Fernández-Nieves, C. J. Martínez, and D. A. Weitz, “Designer emulsions using microfluidics,” *Materialstoday*, vol. 11, 2008.

- [23] A. G. Marín, F. Campo-Cortés, and J. M. Gordillo, “Generation of micron-sized drops and bubbles through viscous coflows,” *Colloids Surf. A: Physicochem. Eng. Aspects*, vol. 344, pp. 2–7, 2009.
- [24] R. Suryo, P. Doshi, and O. A. Basaran, “Non-self-similar, linear dynamics during pinch-off of a hollow annular jet,” *Phys. Fluids*, vol. 16, pp. 4177–4184, 2004.
- [25] P. Garstecki, H. A. Stone, and G. M. Whitesides, “Mechanism for flow-rate controlled breakup in confined geometries: A route to monodisperse emulsions,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 94, p. 164501, 2005.
- [26] M. Overvelde, *Dynamics of coated bubbles*.
PhD thesis, Physics of Fluids, University of Twente, 2010.
- [27] R. Bolaños, A. Sevilla, C. Martínez-Bazán, and J. M. Gordillo, “Axisymmetric bubble collapse in a quiescent liquid pool. Part II: experimental study,” *Phys. Fluids*, vol. 20, p. 112104, 2008.
- [28] S. C. Chuang and V. W. Goldschmidt, “Bubble formation due to a submerged capillary tube in quiescent and coflowing streams,” *ASME J. Basic Eng.*, vol. 92, pp. 705–711, 1970.
- [29] A. Sevilla, J. M. Gordillo, and C. Martínez-Bazán, “Bubble formation in a coflowing air-water stream,” *J. Fluid Mech.*, vol. 530, pp. 181–195, 2005.
- [30] J. M. Gordillo, A. Sevilla, and C. Martínez-Bazán, “Bubbling in a co-flow at high Reynolds numbers,” *Phys. Fluids*, vol. 19, p. 077102, 2007.
- [31] S. E. Forrester and C. D. Rielly, “Bubble formation from cylindrical, flat and concave sections exposed to a strong liquid cross-flow,” *Chem. Eng. Sci.*, vol. 53, no. 8, pp. 1517–1527, 1998.
- [32] T. Thorsen, R. W. Roberts, F. H. Arnold, and S. R. Quake, “Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 86, no. 18, pp. 4163–4166, 2001.
- [33] J. H. Xu, S. W. Li, Y. J. Wang, and G. S. Luo, “Controllable gas-liquid phase flow patterns and monodisperse microbubbles in a microfluidic T-junctions device,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 88, p. 133506, 2006.
- [34] K. P. Pancholi, E. Stride, and M. J. Edirisinghe, “Dynamics of bubble formation in highly viscous liquids,” *Langmuir*, vol. 24, pp. 4388–4393, 2008.

- [35] P. Guillot and A. Colin, “Stability of parallel flows in a microchannel after a T-junctions,” *Phys. Rev. E*, vol. 72, p. 066301, 2005.
- [36] P. Garstecki, M. J. Fuerstman, H. A. Stone, and G. M. Whitesides, “Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junctions scaling and mechanism of break-up,” *Lab Chip*, vol. 6, pp. 437–446, 2006.
- [37] V. Steijn, C. R. Kleijn, and M. T. Kreutzer, “Flows around confined bubbles and their importance in triggering pinch-off,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 103, p. 214501, 2009.
- [38] V. Steijn, C. R. Kleijn, and M. T. Kreutzer, “Predictive model for the size of bubbles and droplets created in microfluidic T-junctions,” *Lab Chip*, vol. 10, pp. 2513–2518, 2010.
- [39] U. Farook, E. Stride, and M. Edirisinghe, “Preparation of suspensions of phospholipid-coated microbubbles by coaxial electrohydrodynamic atomization,” *J. R. Soc. Interface*, vol. 6, pp. 271–277, 2009.
- [40] K. P. Pancholi, U. Farook, E. Stride, and M. J. Edirisinghe, “Novel methods for preparing phospholipid coated microbubbles,” *Eur. Biophys. J.*, vol. 37, pp. 515–520, 2008.
- [41] U. Farook, E. Stride, and M. J. Edirisinghe, “Stability of microbubbles prepared by co-axial electrohydrodynamic atomization,” *Eur. Biophys. J.*, vol. 38, pp. 713–718, 2009.
- [42] I. G. Loscertales, A. Barrero, I. Guerrero, R. Cortijo, M. Márquez, and A. M. Ganañ-Calvo, “Micro/nano encapsulation via electrified coaxial liquid jets,” *Science*, vol. 295, pp. 1695–1698, 2002.
- [43] O. A. Basaran, “Small-scale free surface flows with breakup: drop formation and emerging applications,” *AIChE J.*, vol. 48, pp. 1842–1848, 2002.
- [44] A. Gunther and K. F. Jensen, “Multiphase microfluidics: from flow characteristics to chemical and materials synthesis,” *Lab Chip*, vol. 6, pp. 1487–1503, 2006.
- [45] A. Barrero and I. G. Loscertales, “Micro- and nanoparticles via capillary flows,” *Annu. Rev. Fluid Mech.*, vol. 39, pp. 89–106, 2007.
- [46] C. J. Martínez, “Bubble generation in microfluidic devices,” *Bubble Science, Engineering and Technology*, vol. 1, pp. 40–52, 2009.

- [47] S. L. Anna, N. Bontoux, and H. A. Stone, “Formation of dispersions using Flow Focusing in microchannels,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 82, no. 3, pp. 364–366, 2003.
- [48] K. Hettiarachchi, E. Talu, M. L. Longo, P. A. Dayton, and A. P. Lee, “On-chip generation of microbubbles as a practical technology for manufacturing contrast agents for ultrasonic imaging,” *Lab Chip*, vol. 7, pp. 463–468, 2007.
- [49] E. Talu, K. Hettiarachchi, R. Powell, A. Lee, P. Dayton, and M. Longo, “Maintaining monodispersity in a microbubble population formed by Flow-Focusing,” *Langmuir*, vol. 24, pp. 1745–1749, 2008.
- [50] J. I. Park, Z. Nie, A. Kumachev, and E. Kumacheva, “A microfluidic route to small CO_2 microbubbles with narrow size distribution,” *Soft Matter*, vol. 6, pp. 630–634, 2010.
- [51] J. I. Park, E. Tumarkin, and E. Kumacheva, “Small, stable and monodisperse bubbles encapsulated with biopolymers,” *Macromol. Rapid Commun.*, vol. 31, pp. 222–227, 2010.
- [52] E. Castro-Hernández, V. Gundabala, A. Fernández-Nieves, and J. M. Gordillo, “Scaling the drop size in coflow experiments,” *New J. Phys.*, vol. 11, 2009.
- [53] T. M. Squires and S. R. Quake, “Microfluidics: Fluid physics at the nanoliter scale,” *Rev. Modern Phys.*, vol. 77, pp. 977–1026, 2005.
- [54] H. A. Stone, A. D. Stroock, and A. Adjari, “Engineering flows in small devices: microfluidics toward a lab-on-a-chip,” *Annu. Rev. Fluid Mech.*, vol. 36, pp. 381–411, 2004.
- [55] A. Gunther and K. F. Jensen, “Multiphase microfluidics: from flow characteristics to chemical and materials synthesis,” *Lab Chip*, vol. 6, pp. 1487–1503, 2006.
- [56] A. Barrero and I. G. Loscertales, “Micro- and nanoparticles via capillary flows,” *Annu. Rev. Fluid Mech.*, vol. 39, pp. 89–106, 2007.
- [57] C. Clanet and J. C. Lasheras, “Transition from dripping to jetting,” *J. Fluid Mech.*, vol. 383, pp. 307–326, 1999.
- [58] B. Ambravaneswaran, H. J. Subramani, S. D. Phillips, and O. A. Basaran, “Dripping-jetting transitions in a dripping faucet,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 93, pp. 034501(1–4), 2004.

- [59] A. Sevilla, J. M. Gordillo, and C. Martínez-Bazán, “Transition from bubbling to jetting in a coaxial air-water jet,” *Phys. Fluids*, vol. 17, p. 018105, 2005.
- [60] B. J. Meister and G. F. Scheele, “Generalized solution of the tomotika stability analysis for a cylindrical jet,” *AICHE J*, vol. 13, pp. 682–686, 1967.
- [61] S. Tomotika, “On the instability of a cylindrical thread of a viscous liquid surrounded by another viscous fluid,” *Proc. Roy. Soc.*, vol. 150, pp. 322–337, 1935.
- [62] F. Savart, “Mémoire sur la constitution des veines liquides lancées par des orifices circulaires en mince paroi,” *Ann. Chim.*, vol. 53, pp. 337–386, 1833.
- [63] W. S. Rayleigh, “On the instability of jets,” *Proc. of the London Math. Soc.*, vol. 10, pp. 4–13, 1878.
- [64] R. N. Zúñiga and J. M. Aguilera, “Aerated food gels: fabrication and potential applications,” *Trends Food Sci. Tech.*, vol. 19, pp. 176–187, 2008.
- [65] K. S. Suslick and G. J. Price, “Applications of ultrasound to material chemistry,” *Ann. Rev. Mat. Sci.*, vol. 29, pp. 295–326, 1999.
- [66] E. Stride and M. Edirisinghe, “Novel microbubble preparation technologies,” *Soft Matter*, vol. 4, pp. 2350–2359, 2008.
- [67] E. Stride and R. Tang, M. X. Eckersley, “Physical phenomena affecting quantitative imaging of ultrasound contrast agents,” *Appl. Acoust.*, vol. 70, pp. 1352–1362, 2009.
- [68] S. M. van der Meer, B. Dollet, M. M. Voormolen, C. T. Chin, A. Bouakaz, N. de Jong, M. Versluis, and D. Lohse, “Microbubble spectroscopy of ultrasound contrast agents,” *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 121, pp. 648–656, 2007.
- [69] J. R. Lindner, J. Song, F. Xu, A. L. Klibanov, K. Singbartl, K. Ley, and S. Kaul, “Noninvasive ultrasound imaging of inflammation using microbubbles targeted to activated leukocytes,” *Circulation*, vol. 102, pp. 2745–2750, 2000.
- [70] K. W. Ferrara, M. A. Borden, and H. Zhang, “Lipid-shelled vehicles: Engineering for ultrasound molecular imaging and drug delivery,” *Acc. Chem. Res.*, vol. 42, pp. 881–892, 2009.

- [71] K. Ferrara, R. Pollard, and M. Borden, "Ultrasound microbubble contrast agents: Fundamentals and application to gene and drug delivery," *Ann. Rev. Biomed. Eng.*, vol. 9, pp. 415–447, 2007.
- [72] Y. Z. Zhao, H. D. Liang, X. G. Mei, and M. Halliwell, "Preparation, characterization and in vivo observation of phospholipid-based gas-filled microbubbles containing hirudin," *Ultrasound Med. Biol.*, vol. 31, pp. 1237–1243, 2005.
- [73] W. Nyborg, "Biological effects of ultrasound: Development of safety guidelines. part ii: General review," *Ultrasound Med. Biol.*, vol. 27, pp. 301–333, 2001.
- [74] B. B. Jiang, C. Y. Gao, and J. C. Shen, "Polylactide hollow spheres fabricated by interfacial polymerization in an oil-in-water emulsion system," *Colloid Polym. Sci.*, vol. 284, pp. 513–519, 2006.
- [75] C. Christiansen, H. Kryvi, P. Sontum, and T. Skotland, "Physical and biochemical characterization of albumex (tm): A new ultrasound contrast agent consisting of air filled albumin microspheres suspended in a solution of human albumin," *Biotechnol. Appl. Biochem.*, vol. 19, pp. 307–320, 1994.
- [76] M. Kukizaki and M. Goto, "Size control of nanobubbles generated from shirasu-porous-glass (spg) membranes," *J. Membr. Sci.*, vol. 281, pp. 386–396, 2006.
- [77] A. Net, W. Drenckhan, D. Weaire, and S. Hutzler, "A dynamic model of crystal structure," *Soft Matter*, vol. 2, pp. 129–134, 2006.
- [78] A. M. Gañán Calvo, "Perfectly monodisperse microbubbling by capillary Flow Focusing: An alternate physical description and universal scaling," *Phys. Rev. E*, vol. 69, p. 027301, 2004.
- [79] P. Tabeling, "A brief introduction to slippage, droplets and mixing in microfluidic systems," *Lab Chip*, vol. 9, pp. 2428–2436, 2009.
- [80] B. Dollet, W. van Hoeve, J. P. Raven, P. Marmottant, and M. Versluis, "Role of the channel geometry on the bubble pinch-off in Flow-Focusing devices," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 100, p. 034504, 2008.
- [81] J. M. Gordillo, A. Sevilla, J. Rodríguez-Rodríguez, and C. Martínez-Bazán, "Asisymmetric bubble pinch-off at high Reynolds numbers," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, p. 194501, 2005.
- [82] L. Rosenhead, *Laminar boundary layers*.
Dover Publications, New York, 1988.

- [83] I. Kobayashi, T. Takano, R. Maeda, Y. Wada, K. Uemura, and M. Nakajima, “Straight-through microchannel devices for generating monodisperse emulsion droplets several microns in size,” *Microfluid. Nanofluid.*, vol. 4, pp. 167–177, 2008.
- [84] C. Pozrikidis, *Boundary Integral and Singularity Methods for Linearized Viscous Flows*. Cambridge University Press, 1992.
- [85] D. R. Harris Wong and C. Maldarelli, “Theory and experiment on the low-Reynolds-number expansion and contraction of a bubble pinned at a submerged tip,” *J. Fluid Mech.*, vol. 356, pp. 93–124, 1997.
- [86] M. Abramowitz and I. A. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions*. Dover Publications Inc., New York, 1970.
- [87] A. Barrero and M. Pérez-Saborid, *Fundamentos y aplicaciones de la Mecánica de Fluidos*. Mc Graw Hill, 2005.
- [88] E. Guyon, J. P. Hulin, and L. Petit, *Hydrodynamique Physique*. EDP Sciences, 1982.
- [89] H. A. Stone and L. G. Leal, “Relaxation and breakup of an initially extended drop in an otherwise quiescent fluid,” *J. Fluid Mech.*, vol. 198, pp. 399–427, 1989.
- [90] W. Van Hoeve, “Monodisperse microbubble formation in microfluidic Flow-Focusing devices,” Master’s thesis, Physisc of Fluids, University of Twente, 2006.