

点面电极系统低频流体驱动机理

姜洪源^{1,3}, 霍彦婷¹, 任玉坤¹, 李姗姗¹, 陶冶¹, Antonio Ramos²

(1. 哈尔滨工业大学 机电工程学院, 150001 哈尔滨, jhy_hit@hit.edu.cn;

2. 西班牙塞维利亚大学 电子电磁学院, 41012 塞维利亚; 3. 流体动力与机电系统国家重点实验室, 310058 杭州)

摘要: 为了弥补传统交流电动力学理论在解释微流体反向流动方面的不足, 开发了一种新型三维点面电极系统并进行微流体驱动实验, 分析了低频条件下电化学、交流电热等因素对微流体驱动的影响. 实验结果表明, 点面电极系统中广频范围内($10 \sim 3 \times 10^6$ Hz)的微流体流动方向均为由点电极流向面电极, 这一现象与利用交流电渗理论预测的流体流动方向相反. 实验验证了低频条件下电化学反应在流体流动中的重要作用. 结果表明, 电化学反应是点面电极系统中低频条件下微流体流动现象的主要因素.

关键词: 点面电极; 低频; 电化学反应; 交流电热

中图分类号: TH302

文献标志码: A

文章编号: 0367-6234(2011)05-0056-05

Mechanism of fluid flow at low frequency in point-plane electrode system

JIANG Hong-yuan^{1,3}, HUO Yan-ting¹, REN Yu-kun¹, LI Shan-shan¹, TAO Ye¹, Antonio Ramos²

(1. School of Mechatronics Engineering, Harbin Institute of Technology, 150001 Harbin, China, jhy_hit@hit.edu.cn;

2. Dept. of Electronics and Electromagnetism, University of Seville, 41012 Seville, Spain;

3. The State Key Lab of Fluid Power Transmission and Control, 310058 Hangzhou, China)

Abstract: To make up the deficiency of traditional ac electrohydrodynamics in explaining fluid flowing in opposite direction, a 3D point plane electrode system is devised to carry out microfluidic driving experiments, and the influence of electrochemistry and ac electro-thermal on microfluidic driving under low ac frequency has been analyzed. It is found that the flow direction under ac range of 10 Hz ~ 3 MHz in the device is point to plane all the time, which is opposite to the prediction from theory of ac electro-osmotic (ACEO). The experiments verifies the leading role of electrochemical reaction under low ac frequency, and the result indicates that the leading influencing factor of the phenomenon of microfluidic under low ac frequency in point plane electrode system is electrochemistry.

Key words: point plane electrode; low frequency; electrochemical reaction; ac electrothermal

微系统中的电液动力学研究是微机电系统 (MEMS) 以及芯片实验室 (Lab-on-a-chip) 技术研究的理论基础^[1-2]. 近年来, 随着微加工技术的发展, 微电极的加工精度不断提高, 交流电渗微泵已广泛应用于各种微流控芯片. 经典的双电层理论和交流电渗理论可以有效地解释较低电压范围内 ($< 2V_{pp}$) 的微流体流动现象^[3-4].

传统的交流电渗理论以双电层理论为基础.

当输入电信号频率低于电荷的弛豫频率 (电荷穿越特征长度所需的最小时间为弛豫时间, 对应频率为弛豫频率) 时, 双电层有足够的时间完成充放电, 诱导电荷在电场作用下产生定向移动, 由于流体具有粘性, 电极附近的流体会形成交流电渗流. 当频率高于电荷弛豫频率时, 电极与流体界面处来不及形成双电层, 因此不会产生交流电渗流. 然而, 实验过程中, 高于弛豫频率范围内的流体流动现象是很明显的, 传统的双电层理论不能对此进行解释. 并且, 随着电极尺寸的减小以及电压的升高, 实验中出现了流体反向^[5]等现象.

文献[5]指出, 在几万 Hz 的频率和高于

收稿日期: 2010-02-01.

基金项目: 流体动力与机电系统国家重点实验室开放基金项目 (GZKF-201004).

作者简介: 姜洪源(1960—), 男, 教授, 博士生导师.

2.5 V 的电压作用下, 微泵驱动流体流动明显, 但方向与施加频率为几千 Hz、电压较低时的电信号时相反, 基于双电层理论的传统交流电理论无法解释. 文献[6]中提到, 通过对平行电极阵列施加四相等相位差的交流信号, 可构造行波电势电场. 实验发现, 在电压峰峰值为 2.40 V、频率为 1 kHz 的情况下, 流体流向与根据经典交流电渗理论预测得到的方向相同; 而电压为 4.13 V、频率为 800 Hz 时, 流体流向与经典理论所预测的流向相反, 称为反向现象. 而针对非对称电极的实验显示, 高频电信号下流体产生反向, 而低频信号下, 只有当离子浓度达到 400 $\mu\text{mol/L}$ 时, 才产生反向现象. 可见, 只在特定电压幅值及频率下流体才会发生反向现象^[6].

目前, 研究人员利用法拉第电荷效应^[6]、电化学反应^[7]、及电热效应^[8]等理论, 从不同角度尝试对流体反向现象进行解释, 但每种理论解释都仅适用于在某一窄频段范围内流体的流向判断, 不能对广频域范围内流体的流动现象进行解释, 关于流体在低频电场内的流动机理目前学术界尚未达成共识.

本文设计了点面电极系统, 在广频范围内进行了微流体驱动的实验研究, 并引入电化学反应理论, 对低频条件下的微流体流动机理进行了定性分析. 在使用点面电极系统对低频电场中流体流动反向现象以及电化学反应进行验证的基础上, 对微流体的低频反向流动现象进行了解释.

1 交流电渗流速仿真及反向现象实验

为了对广频范围内的微流体驱动进行深入研究, 设计了三维点面电极系统进行微流体的驱动实验, 其模型如图 1 所示.

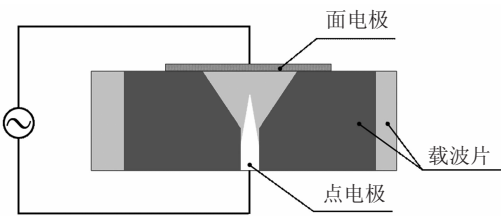


图 1 实验装置

平面电极前方, 垂直放置一具有尖端的圆柱型电极. 平面电极材料为镀锌铁, 其尺寸为 4 mm × 2 mm × 500 μm , 表面粗糙度为 0.8 μm , 可视为面电极. 圆柱电极材料为镀铬 45 号钢, 尖端直径 10 μm , 而当尖端直径 < 10 μm 时, 与面电极尺寸相比, 此电极可近似为点电极^[9], 点电极与面电极之间的距离为 200 μm ; 选用电导率 3.0 mS/m 的 KCl 溶液和直径 500 nm 的聚苯乙烯

微球作为电介质溶液和示踪粒子进行实验. 通过信号发生器 (EE1640C) 对点面电极系统施加正弦电压信号, 调节信号频率, 并利用带有 CCD 摄像装置的荧光显微镜 (TYU-50C 上海豫光仪器) 实时记录微流体的流动状态.

固-液两相接触时, 接触面上会形成双电层, 双电层包括致密层以及扩散层, 通常扩散层电荷在电场作用下会发生定向移动而带动电极表面流体流动, 由于流体具有粘性, 进而带动整个流体进行流动, 这是交流电渗的产生机理^[10]. 据此, 低频条件下电极电势降主要在双电层, 交流电渗在低频电场微流体驱动中起主导作用.

依据交流电渗基本原理, 建立实验观察区域的二维轴对称模型. 简便起见, 选取点电极的一侧边界以及面电极建立模型, 如图 2 所示. 图示时刻, 点电极电压为正、面电极电压为负, 以双电层理论为基础进行分析可知, 此时点电极感应电荷为负值. 双电层中扩散层电荷分布如图 2 所示, 由于点电极附近电场强度远大于面电极附近的场强, 点电极附近的电荷密度远大于面电极附近电荷密度, 因此, 点电极附近电荷的受力情况代表了流体在电场力作用下的综合受力情况. 选取点电极附近任何一个点电荷, 电荷所受切向库仑力的方向远离面电极指向点电极. 当进入下一个二分之一周期时, 点电极为负、面电极为正电压时, 扩散层电荷性质以及电场方向均发生相应变化, 因此所选取点电荷受切向库仑力方向不变. 以双电层理论为基础预测流体在点面电极系统中的流动方向如图 3(a) 所示, 图 3(b) 给出了 Comsol 仿真得到的流场分布 ($V_{pp} = 8 \text{ V}$, $f = 3 \text{ kHz}$), 在沿对称轴方向, 微流体从面电极流向点电极, 形成一个逆时针的漩涡; 在远离对称轴线区域, 微流体微腔内形成一个顺时针流动的漩涡. 在流速幅值上, 点电极附近区域流速最大, 峰值可达 150.4 $\mu\text{m/s}$, 轴线处流体在宏观上呈现从面电极流向点电极流动的趋势, 轴线两侧流体满足镜像关系.

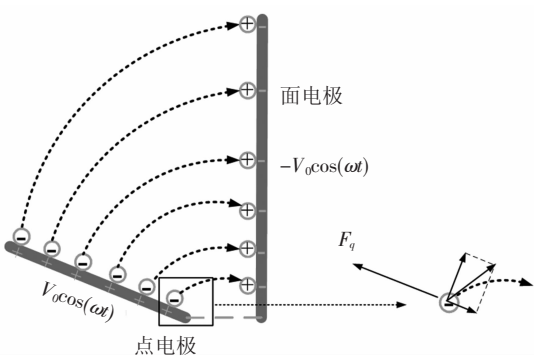
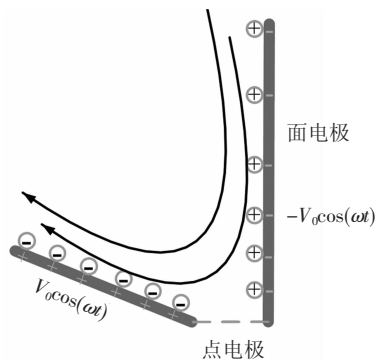
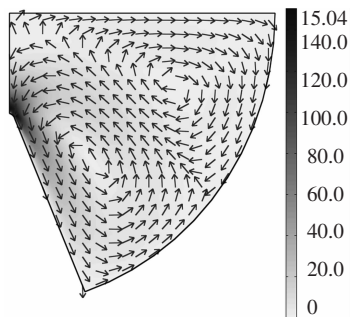


图 2 实验装置二维模型

调节外加电信号幅值和频率,观察流体的流动情况,示踪粒子流动的迹线和流向如图 4 所示,与图 3(a)中基于双电层理论的预期流向恰好相反.经典的交流电渗理论作为较为成熟的交流电动力学理论已经很难完全解释点面电极系统中的流体驱动现象,因此,有必要对点面电极系统中低频条件下的微流体流动机理进行更为深入的探究.



(a) 紧密层电荷受力示意图



电渗流速/(m·s⁻¹)

(b) 流场仿真结果

图 3 基于双电层理论流体的预期流向

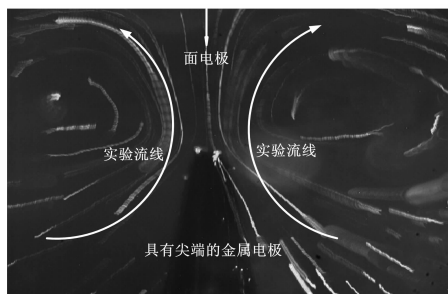


图 4 实验中流体的流向

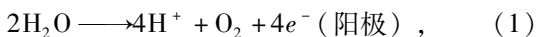
2 电化学反应致流体流动机理

当对微电极施加交流电信号频率高于 100 kHz^[11],或者被驱动流体电导率高于 140 mS/m^[5]时,交流电热起主导作用.交流电热作用是由于非均匀电场与流体中电导率梯度的综合作用产生空间电荷,空间电荷在电场作用下产生力的作用,进而拖动流体的流动的.在研究平行对称电极微流体驱动时,Gonzalez 等^[12]把某一频率段内的流体流动视为交流电渗与交流电热的综合作用的结果,并指出低于 1 MHz 时,交流电渗对粒子运动

起主导作用;高于 1 MHz 时,电热主导粒子的运动^[12].点面电极系统前期理论研究表明,低频条件下,交流电热导致的微流体流动方向亦与实验相反,又因为低频时交流电热不主导粒子运动,所以可忽略.

点面电极系统在交流电场作用下,电极附近溶液的电化学反应会导致离子浓度梯度的变化,从而使溶液中存在一定量的净电荷,并且净电荷产生的介电力会对流体产生驱动作用^[13-15].所以,深入研究电极附近的电化学反应及其对流体流动的影响,对准确把握低频条件下流体驱动的主要因素具有重要意义.

电化学反应的进行与溶液的 pH 值密切相关^[7],本文采用水的电解反应方程式作为流体反向现象验证实验的基础,即



点电极处的电化学反应导致了附近区域离子浓度的变化,进一步导致流体电导率的分布不均,即产生一定的电导率梯度,而电场与电导率梯度综合作用于电解液,驱动流体流动.

通常,电介质流体中,金属尖端发生离子注入效应时,产生同号离子,从而导致流体由点到面的流动;反之,如果尖端发生离子排出效应,则会产生由面到点的流动^[9].对于电解液而言,笔者认为,在金属尖端产生离子(增加电导率)导致的流体流动与消耗离子(降低电导率)产生的流体流动方向是相反的.由此可以解释低频条件下,随着离子浓度的增加,流体产生与预期方向相反的流动,即反向现象,并可以预测伴随反向现象的加剧,可能产生部分流体的正向流动,流体流动出现间或反向.

3 电化学反应验证实验

实验研究发现,高频范围内(10 kHz ~ 3 MHz)的微流体流动主要方向为由点电极流向面电极,低频(<10 kHz)信号条件下,点到面的流动现象也是明显的,并且实验中经常有流体正反向流动共存的现象.为了研究低频条件下点面电极系统中电极附近流体电导率和 pH 值的变化,选取异硫氰酸荧光素作为荧光染料定性地表征化学反应的进行程度.该样品部分溶解于水,在水中离解为带有负电荷的分子以及自由质子,溶液呈弱酸性.离解与未离解的分子平衡参数为 $P_k = 6.4$,因为离解的荧光染料分子具有荧光性质,并且荧光素的离解程度随着 pH 值的变化而有所不同,所以,电

极周围荧光的亮度会随电化学反应的进行程度而变化,可以利用荧光染料来检测电极附近电化学反应导致的 pH 值梯度、电导率梯度和参与电化学反应的电荷密度的变化情况.

为使荧光素不对被驱动溶液电导率产生较大影响,必须保证二者浓度具有至少一个数量级的明显差异. 被驱动溶液 KCl 的浓度为 10^{-4} mol/L, 电导率为 3.0 mS/m, 配置荧光素的浓度为 10^{-5} mol/L,可以保证加入荧光素后溶液电导率无明显变化.

在点面电极系统中进行电化学反应验证实验,施加交流信号电压峰峰值为 4 V, 频率为 0.5 Hz, 荧光素亮度变化如图 5 所示. 从图 5 可以看出,点电极附近的荧光素亮度变化周期与所施加交流电信号周期具有较好的一致性,两电极附近溶液的亮度以与电信号相同的周期进行交替变化,表明电极附近发生了电化学反应,并且导致了附近溶液的 pH 值变化,从而出现了如图 5 所示的实验现象. 实验结束后,点电极附近荧光亮度整体变暗.

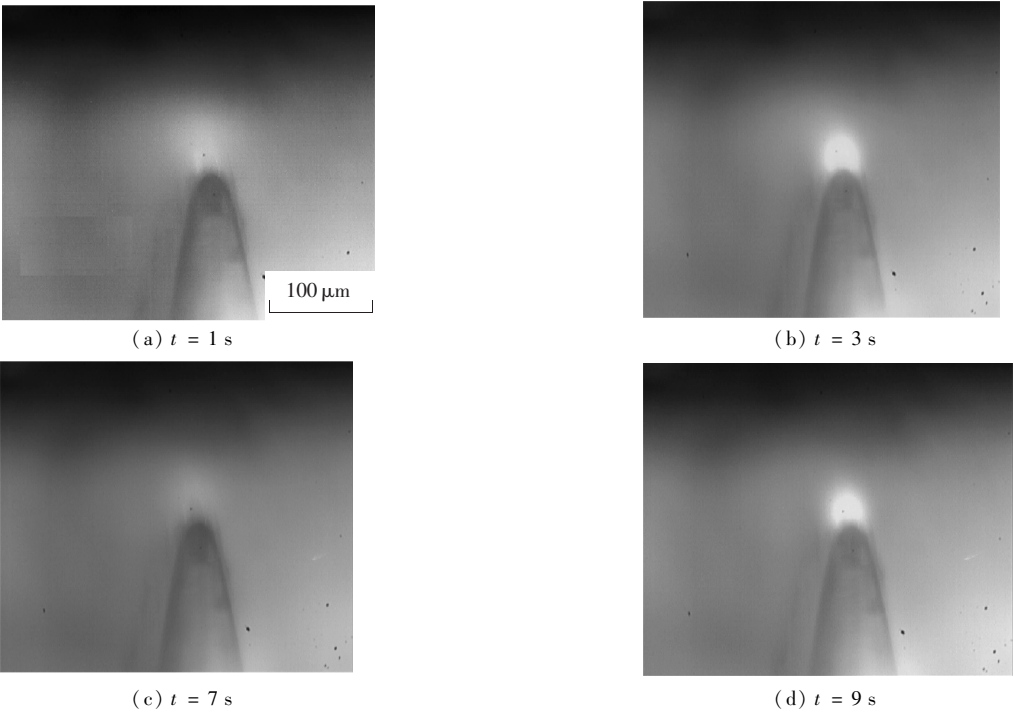


图 5 荧光素浓度随时间变化的实验

由方程(1)可知,随着点电极附近 H^+ 浓度的升高,溶液的 pH 值降低,而荧光素离解出的带负电荷的分子具有荧光性质,与之中和后失效,从而导致荧光亮度变暗. 随着中和反应的进行,又会导致 H^+ 浓度降低,溶液 pH 值升高,新的带负电荷的荧光素被离解,荧光亮度变亮,以此类推,电极附近溶液的亮度以与电信号相同的周期进行交替变化. 随着电化学反应和中和反应的不进行,最终点电极周围一定范围内溶液中的荧光素会被消耗,亮度会整体变暗. 实验过程中点电极附近溶液荧光素亮度的变化,以及实验结束后液体变暗的现象表明,点面电极系统中,导致低频条件下微流体流动的主要因素为电化学反应. 事实上,电化学反应产生的离子,使得低浓度溶液的局部电导率具有一定梯度,而电场与电导率梯度的综合作用则会使溶液内部产生净电荷,净电荷与电场的综合作用产生库伦力使得离子运动,进而带动流

体产生运动^[16]. 对于本实验系统,由图 2 所示的电场分布不难看出,点电极附近的电场强度很大,其产生离子浓度较高,进而具有较高的电导率值,由文献[16]可知,此时点电极附近的净电荷为正电荷,因此产生由点到面的库伦力,进而导致流体由点到面流动.

4 结 论

- 1)以点面电极系统为基础,进行了广频范围内的微流体驱动实验研究,并对低频条件下的微流体流动机理进行了分析.
- 2)建立了实验观察区域的二维轴对称模型,以交流电渗基本原理为基础,说明了利用交流电渗理论预测的流体流动方向与实验结果相反,否定了点面电极系统中低频条件下,交流电渗的主导作用.
- 3)实验分析电化学反应对流体的影响,并利

用异硫氰酸荧光素实验验证了点面电极系统中低频条件下电化学反应的主导作用,有效弥补了交流电渗理论在低频范围内研究流体驱动的不足。

参考文献:

- [1] STUDER V, PEPIN A, CHEN Yong, *et al.* Fabrication of microfluidic devices for AC electrokinetic fluid pumping[J]. *Microelectronic Engineering*, 2002, 61(2): 915 – 920.
- [2] STONE H, STROOCK A, AJDARI A. Microfluidic technologies for miniaturized analysis systems[M]. New York: Springer-Verlag, 2007: 1 – 3.
- [3] WANG Xiayan, WANG Shili, GENDHAR B, *et al.* Electroosmotic pumps for microflow analysis[J]. *Trends in Analytical Chemistry*, 2009, 28(1): 64 – 74.
- [4] CAHILL B P, HEYDERMAN L J, GOBRECHT J, *et al.* Electro-osmotic streaming on application of traveling-wave electric fields[J]. *Physical Review E*, 2004, 70(3): 036 – 305.
- [5] STUDER V, PEPIN A, CHEN Yong, *et al.* An integrated AC electrokinetic pump in a microfluidic loop for fast and tunable flow control[J]. *The Analyst*, 2004, 129(10): 944 – 949.
- [6] NG W Y, LAM Y C, RODRIGUEZ I. Experimental verification of faradaic charging in ac electrokinetics[J]. *Biomicrofluidics*, 2009, 3(2): 022 – 405.
- [7] GARCIA-SANCHEZ P, RAMOS A. Flow reversal in traveling-wave electrokinetics: an analysis of forces due to ionic concentration gradients[J]. *Langmuir*, 2009, 25(9): 4988 – 4997.
- [8] LIAN Meng, ISLAM N, WU Jie. AC electrothermal manipulation of conductive fluids and particles for lab – chip applications [J]. *IET Nanobiotechnol*, 2007, 1(3): 36 – 43.
- [9] GARCIA-SANCHEZ P, RAMO A, CASTELLANOS A, *et al.* Flow of electrolytes induced by AC voltages in a point-plane electrode microsystem [C]//*IEEE Transactions on Dielectrics and Eleatrical Insulation*. Paris: Springer Paris, 2008: 1 – 4.
- [10] 姜洪源, 闫宝森, 杨胡坤, 等. 交流电渗驱动机理及流速计算[J]. *中国机械工程*, 2007, 18(14): 1672 – 1675.
- [11] GREEN N G, RAMOS A, GONZALEZ A, *et al.* Fluid flow induced by nonuniform AC electric fields in electrolytes on microelectrodes. I. Experimental measurements [J]. *Physical Review E*, 2000, 61(4): 4011 – 4018.
- [12] GONZALEZ A, RAMOS A. Fluid flow induced by non-uniform AC electric fields in electrolytes on microelectrodes. II. a linear double layer analysis[J]. *Physical Review E*, 2000, 61(4): 4019 – 4028.
- [13] BAYGENTS J C, BALDESSARI F. Electrohydrodynamic instability in a thin fluid layer with an electrical conductivity gradient[J]. *Physics of Fluids*, 1998, 10(1): 301.
- [14] CHEN Chuanhua, LIN Hao, LELE S K, *et al.* Convective and absolute electrokinetic instability with conductivity gradients[J]. *Journal of Fluid Mechanics*, 2005, 524(1): 263 – 303.
- [15] BOY D A, STOREY B D. Electrohydrodynamic instabilities in microchannels with time periodic forcing[J]. *Physical Review E*, 2007, 76(2): 026304 – 026315.
- [16] JIANG Hongyuan, REN Yukun, AO Hongrui, *et al.* Electrohydromechanical analysis based on conductivity gradient in microchannel [J]. *Chinese Physics B*, 2008, 17(12): 4541 – 4546.

(编辑 杨 波)