

综述与专论

微尺度下液-液流动与传质特性的研究进展

陈光文, 赵玉潮, 袁 权

(大连洁净能源国家实验室, 中国科学院大连化学物理研究所, 辽宁 大连 116023)

摘要: 微化学工程是现代化学工程学科的前沿, 主要研究微时空尺度下流体流动、传热、传质现象与反应规律。着重介绍近十年来微通道内单相流体流动、互溶液-液两相流体流动与混合、互不相溶液-液两相流体流动与传质的理论和实验的最新研究进展。

关键词: 微化工技术; 微通道; 微反应器; 液-液两相

中图分类号: TK 124

文献标识码: A

文章编号: 0438-1157 (2010) 07-1627-09

Advances in flow hydrodynamic and mass transfer characteristics of liquid phase in microscale

CHEN Guangwen, ZHAO Yuchao, YUAN Quan

(Dalian National Laboratory for Clean Energy, Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, Dalian 116023, Liaoning, China)

Abstract: Microchemical engineering is a promising leading discipline of modern chemical engineering, which focuses on the study of fluid flow, heat and mass transport phenomena and reaction principles under micro spatio-temporal scales. This systematical review concentrates on recent advances in the flow hydrodynamic of single liquid phase and liquid-liquid miscible or immiscible two phases, as well as the mass transfer characteristics of liquid-liquid two phases in microchannels.

Key words: microchemical technology; microchannel; microreactor; liquid-liquid two phases

引 言

微化工技术是 20 世纪 90 年代发展起来的化工前沿, 着重研究微时空尺度下的化工过程特征与规律, 以实现反应过程安全、高效、可控的高新技术^[1-2]。与传统化工系统相比, 微化工系统具有体积小、传递效率高、安全性好、易于集成等优点。近十年来, 已迅速发展成为过程强化领域的典型范

例——微化工技术^[3]。

化工过程实质为流体流动、传热、传质和反应 4 种物理/化学现象在不同时空尺度上的相互耦合过程, 而过程整体效率取决于这些耦合过程。在微化工系统中, 由于时空特征尺度微细化带来的过程特性变化, 对传统“三传一反”理论提出了新挑战, 通过对微尺度结构与表/界面效应影响的研究, 可深入认识并揭示其过程规律^[4-5]。化工过程中常

2010-04-06 收到初稿, 2010-04-13 收到修改稿。

联系人及第一作者: 陈光文 (1967—), 男, 博士, 研究员。

基金项目: 国家自然科学基金项目 (20911130358, 20906087); 国家重点基础研究发展计划项目 (2009CB219903); 中国科学院大连化学物理研究所创新基金项目 (K2009D01)。

Received date: 2010-04-06.

Corresponding author: CHEN Guangwen, gwchen @ dicp. ac. cn

Foundation item: supported by the National Natural Science Foundation of China (20911130358, 20906087), the National Basic Research Program of China (2009CB219903) and the Innovative Fund of DICP, CAS (K2009D01).

涉及液-液两相体系的流动、传质与反应问题,如何高效地强化液-液两相流体的混合、传质过程,提高目的产物的选择性和收率以及资源、能源的综合利用率,对实现化工过程节能减排和可持续性发展具有重要意义。

与大尺度通道内的液-液两相流体流动过程相比,微尺度下的两相流体界面张力、液-固表面张力、黏性力等表面力成为控制因素,致使其流动复杂性增加^[6],对流动、传质过程现象和机理的研究仍有待深入和发展。本文将介绍近十年来有关微尺度下液相流体流动与传质的基础研究和工业化应用的最新进展。

1 单相流体流动

与气相体系相比,液相体系应用于微反应系统更具优势,其流动现象与机制更为复杂,迄今有关微尺度下流体流动特征与常规尺度下是否一致仍存争议^[7-8]。Hetsroni 等^[9]对微通道内单相流体流动状况进行了总结,发现绝大多数实验的转捩 Reynolds 数在 2000 左右,与常规尺度通道吻合较好。但也有研究者观察到了转捩提前或滞后现象^[10],Hetsroni 等认为出现这些状况的原因可能是由微通道的尺寸测量误差、壁面粗糙度、流动过程的黏性热等因素所致。对比光滑和粗糙壁面微通道内的实验结果^[11],发现相同 Re 时,粗糙壁面微通道的阻力摩擦因子较大,且转捩 Re 较小;矩形微通道内易出现转捩 Re 提前现象。

赵玉潮^[12]分别以水和煤油为介质,对尺寸在 400~800 μm 范围的微通道内单相流体流动状况进行了研究。发现当 $Re_{\text{exp}} < 1800$ 时,摩擦因子常数 C^* 值在 1 附近,流动为层流;当 $Re_{\text{exp}} > 1800$ 时, $C^* > 1$,且随 Re_{exp} 增加而增加,说明此时流动发展成为过渡流甚至湍流。在这一尺度范围内,微通道内的流体流动与传统尺度下的流动基本一致,可用传统流动理论对流动阻力等参数进行预测。

2 液-液互溶两相流体流动与传质

化学工业中一个至关重要的过程就是液-液互溶两相流体的混合-反应耦合问题,尤其涉及瞬时或快速复杂反应过程,其目的产物选择性、产品质量和反应体系的稳定性与反应流体间的混合均匀程度密切相关,即混合效果决定了产物的最终分布。混合的本质是通过某些方式使两种或多种流体微团

间距离缩短和增加其接触概率的过程,即两流体接触面积增加的过程,且混合过程中流体微团尺度与反应器/混合器的特征尺度紧密相关。与传统反应器相比,在特征尺度为数十至数百微米量级的微通道反应器内,流体微团特征尺度可减小 2~3 个量级,可认为与湍流混合过程中的 Kolmogoroff 尺度处于同一量级或更小,此时流体微团的介观变形和分子扩散成为影响混合效果的主要因素。同时,空间尺度的限域效应使流体混合过程极为复杂,对该过程的全面解析和定量描述将为微混合器/微反应器的结构优化设计与操作提供理论与工程指导。

微化工系统的内部通道尺寸通常在几十微米到数百微米,一般情况下 Re 较小,处于层流状态,黏性力的影响占主导地位,难以利用湍流方式强化流体间的混合,因此分子扩散成为影响混合效果的重要因素^[13]。若通过减小通道尺寸减小扩散路径,则会为操作过程和加工带来极大困难。实际上,混合的终极目标是在最短时间内、以能耗最少的流动方式使两股流体产生最大的比相界面面积^[14],为此需要采取一定的措施,如使流体界面发生拉伸、折叠,以减小扩散距离和混合时间,进而达到强化混合、传质的目的。

Jensen 等^[15]把两种流体分裂成多种层状流体,并进入宽 50 μm 的通道,在 10 ms 内就能完成流体的完全混合。IMM 公司研究设计出多种结构的微混合器,如交趾式微混合器^[16]、动力学聚焦微混合器^[17],以实现流体间的均匀、快速混合。

Kockmann 等^[18-20]对 T 型、Y 型微通道内两水相流体的微观混合效果进行了系统的实验和数值模拟研究,并根据 Reynolds 数不同,将层流区域内的流体流动划分为严格层流、涡流和席卷流 3 个区域。实验和模拟结果均表明席卷流能够大大强化流体的混合效果,并依据实验和模拟结果相继开展了微混合器结构优化、纳米粒子合成等方面的应用研究工作。同时考虑流速、通道构型和尺寸的情况下,Soleymani 等^[21]提出了一个用于判定流体流动状况是否为席卷流的量纲 1 参数,数值模拟结果表明其转变临界值为 100,为该类微混合器的优化设计提供了理论支持。最近,Adeosun 等^[22]采用停留时间分布方式研究了 T 型微混合器内的混合特性。

赵玉潮等^[23]利用 Villermaux-Dushman 快速平行竞争反应对 T 型微通道内分子尺度上的混合特性进行了研究,考察不同 Re 下进出口结构尺寸对

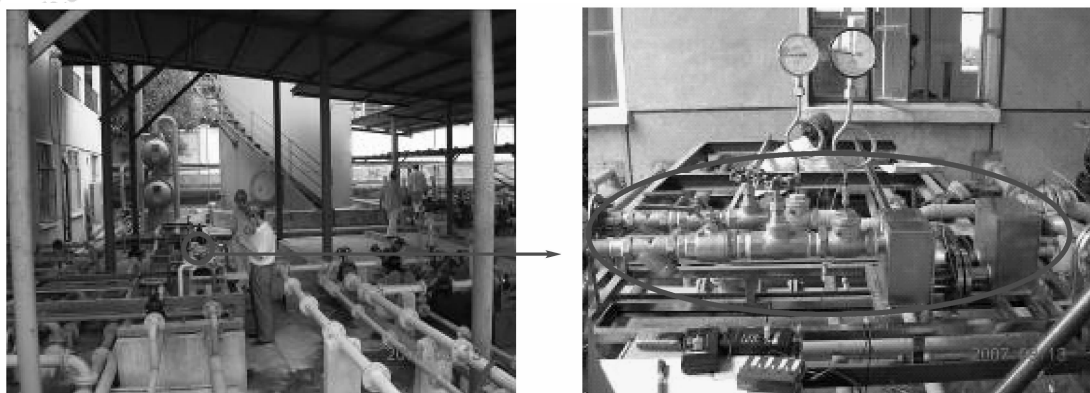


图1 10万吨/年规模液氨配制氨水微混合技术工业应用示范现场

Fig. 1 100 kt · a⁻¹ liquid ammonia to ammonia solution by microchemical technology for industrial application

微观混合产生的影响。发现存在一个使离集指数 X_s 发生骤变的临界 Re_c 。 $Re < Re_c$ 时, X_s 随 Re 的增加而减小; $Re > Re_c$ 时, X_s 趋于一定值与 Re 基本无关,接近理想微观混合效果;随体积流量比增加,微观混合效果变差。该研究结果已扩展到高通量纳米粒子制备^[24]、高压液氨与水混合配制氨水的工业示范应用等方面,现已完成10万吨/年级液氨配制氨水的微混合-微换热集成系统的工业化示范应用(如图1所示)。与传统装置相比具有体积小、响应快、移热速度快,过程易控、运行平稳、无振动、无噪声、产品质量稳定等优点,彻底解决了安全、环保与产品质量稳定性问题,具有显著的社会效益及经济效益。

3 液-液互不相溶两相流体流动与传质

3.1 液-液互不相溶两相流体流动

微通道内液-液互不相溶两相体系在液-液两相萃取^[25]、相转移催化^[26]、有机合成^[27]、乳液制备^[28]、药物输送^[29]等领域具有较为广泛的潜在应用前景。与互溶两相体系相比,相间界面受流动状况和界面张力影响,产生了多种界面现象,增加其流动复杂性^[30-31],正确辨识互不相溶液-液两相流型是研究与这一体系相关过程的基础。

Zhao等^[32]以煤油-水为工作体系,利用CCD高速摄像系统对微通道内的油水两相流流型进行了研究,并以表面张力和惯性力为基准把油水两相流型图划分为界面张力控制、惯性力控制、界面张力和惯性力共同决定的3个区域。在T型交叉点处观察到了6种流型:T型交叉点处形成的弹状流(ST)[图2(a)];T型交叉点处形成的单分散滴状流(MDT)[图2(b)];T型交叉点下游区域微通

道内形成的液滴群流(DPM)[图2(c)];T型交叉点处形成的具有光滑界面的并行流(PFST)[图2(d)];T型交叉点处形成的界面处有旋涡存在的并行流(PFWT)[图2(e)];T型交叉点处形成的不规则薄条纹流(CTST)[图2(f)]。而在流动充分发展区域仅发现了5种流型:弹状流[图3(a)];单滴状流[图3(b)];液滴群流[图3(c)];并行流[图3(d)];环状流[图3(e)]。对各种流动状态(流型)的形成过程进行的理论分析表明流型的形成主要由界面张力和惯性力共同控制。以

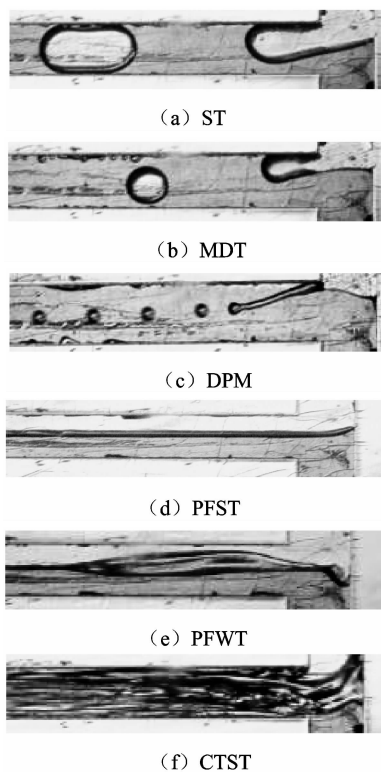


图2 “T”型交叉点处的流型
Fig. 2 Flow patterns at T-junction

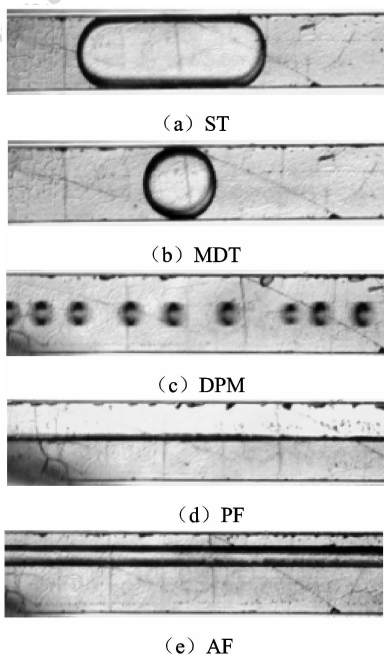


图 3 微通道内稳定流动状态下的流型

Fig. 3 Representative photographs of stable flow patterns in 300 μm × 600 μm rectangular microchannel

Weber 数和分散相体积分数预测了分散相液滴当量半径, 表明实验值与理论预测值吻合较好, 绝大多数实验点的偏差在 ±25% 以内。

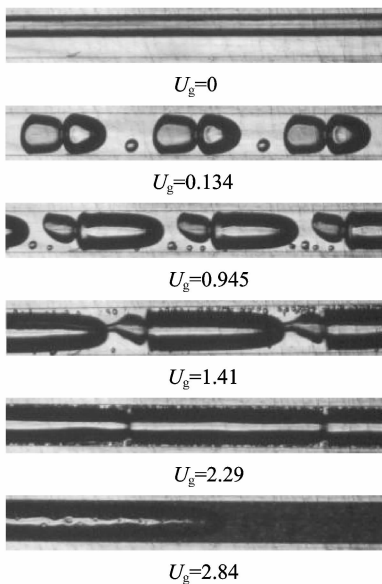
通过考察壁面性质对流体流动状况的影响^[33], 发现在表面对油相优先润湿的微通道内, 当 $Re_M <$

60 时, 能够形成分散相流型, 而当 $Re_M > 60$ 时, 仅能形成连续相流型 (并行流型); 在表面对水相优先润湿的微通道内, 只能形成连续相流型。

为进一步减小油水两相体系内的分散相体积, Su 等^[34-35]分别系统研究了气、固两相的影响。在未导入气体前, 液-液两相形成稳定的并行流。液-液两相总流量保持恒定, 气速增加将导致水相弹状液滴变短以及弹状气泡变长; 当气速足够大时, 气体占据微通道内的绝大部分空间, 液-液两相被挤压到通道内壁, 此时与液-液界面张力相比, 气体的惯性力占主导地位, 水相被分散成粒径大约为 10~20 μm 的液滴 (如图 4 所示)。在油-水两相相比较低、足够的气体搅拌下, 气-液-液三相流流型与气-液两相流的搅拌流类似。互不相溶液-液两相进入微颗粒间狭窄、弯曲的空隙并激烈混合, 在流体和微颗粒的剪切作用下, 流型由连续相转化为分散相流型。通过在微通道内填充颗粒可使分散相 (有机相) 液滴粒径缩小至大约 15 μm 以下 (如图 5 所示)。在填充微通道内, 分散相液滴粒径随着流速的增加而减小, 颗粒填充长度越长越有利于液-液两相的分散。与单纯的液-液两相流动相比, 第三相的引入可极大地强化两相的分散效果, 即比表面积可得到大幅度增加。

Anna 等^[36]对微通道内单分散、可控尺度液滴

$$U_{or} = 0.222 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}, U_{aq} = 0.111 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}, q = 2, Re_M = 72.6$$



$$U_{or} = 0.111 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}, U_{aq} = 0.333 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}, q = 1/3, Re_M = 127$$

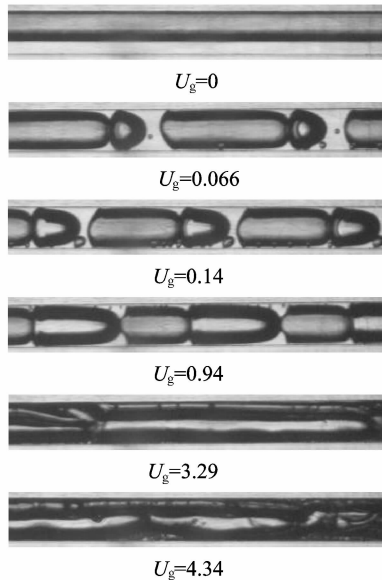


图 4 气体搅拌对液-液两相流动状况的影响

Fig. 4 Effect of gas phase flux on dispersion of aqueous phase and organic phase

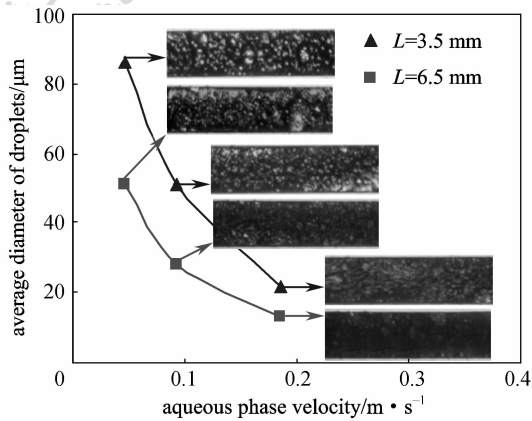


图5 微通道内颗粒填充长度对分散相粒径的影响

Fig. 5 Effects of packing length on diameter of dispersion phase in microchannel

的制备和生成机制开展了研究，并根据液滴形成方式的不同分为并流式分裂、错流式分裂、拉伸式分裂或流体聚焦式分裂3种结构。并已出现利用此3种结构制备尺度、形貌、组成可控的聚合物粒子的报道，Serra等^[37]与Dendukuri等^[38]对此进行了较为详细的综述。

Umbanhowar等^[39]对毛细管头部液滴的断裂过程进行了研究，根据力学平衡原理提出了一个理论预测模型。Cramer等^[40]通过实验对中心通道头部液滴断裂和通道下游液柱的形成及头部断裂过程进行了研究，获得了尺度小于100 μm 的微液滴，发现两相流速和分散相黏度的增加及界面张力的减小有利于通道下游液柱的形成；经由中心通道头部液滴断裂机理形成的液滴的尺度更加均一、规则；高连续相流速和低界面张力时，能够获得尺度较小的液滴；分散相黏度对液滴尺度影响较小；仅在高分散相流速下，分散相流速才能体现出对液滴尺度的影响。Murshed等^[41]则考察了温度对液滴形成的影响，发现温度越高，液滴尺寸越大。

Utada等^[42]研究了从通道头部液滴断裂机理到通道下游液柱头部分裂机理的转变过程规律，以分散相流体的Weber数和连续相流体的毛细管准数(Ca)为参数表征了这一转变区域的特征。结果表明存在两种转变区域：受连续相流速控制区域，随连续相流速增加，通道头部断裂的液滴尺度逐渐变小，直至分散相液柱形成，最终转变为通道下游液柱头部分裂机理；受分散相流速控制区域，随流速增加，液滴断裂形成位置逐渐向下游移动，转变为通道下游液柱头部分裂机理。Garstecki

等^[43]发现在低 Ca 下，液滴的形成主要由交叉点上游的附加压力控制，并以两相流速、连续相黏度、界面张力和通道尺度等为参数，建立了一个预测液滴大小的模型。Menech等^[44]对T型交叉点处液滴形成机理的转变准则及影响因素进行了详细的理论分析和探讨。

Thorsen等^[45]在T型错流结构微通道内观察到12种液滴形态，同时考察了通道几何构型和相对应的入口压力间的关系以及对液滴形成的影响。Xu等^[28]对错流流动状况下液滴的形成过程进行了研究，发现界面张力较大时，分散相流速对液滴尺度的影响较小；界面张力较小时，分散相流速的增加会导致液滴尺度的增加；同时基于力学平衡条件提出一个液滴尺度理论预测模型。

Guillot等^[46]认为液滴的形成是在油水两相流体流动过程中由于轴向压力梯度所产生的收缩-阻断现象所致，并提出了一个能够维持两相流体并行稳定流动的简单模型；而Ismagilov等^[47]却认为这一过程是由于黏性力与表面张力共同作用的结果。Dreyfus等^[48]在“十”字形交叉微通道内对油水两相流型进行了研究，观察到了“珍珠项链”形、“鸭梨”形、间隔液滴形和并行流等几种流型。Anna等^[49]把流体聚焦式结构概念引入到互不相溶油水两相体系，使流体经一个狭缝后产生Rayleigh-Plateau非稳态现象，以产生尺度可控的均匀分散液滴。

3.2 液-液互不相溶两相流体传质

当分散相液滴尺寸大于通道特征尺寸时，在分散相液滴与连续相液膜或通道壁面的剪切作用下，液滴内部产生内循环流动，使液滴边界层厚度和扩散距离减小，同时增加了表面更新速度和比相表面积，最终导致传质过程的强化。Ramshaw等^[50-51]首次将这一理念引入液-液体系，并利用这一理论对煤油-乙酸-水实验体系的传质过程进行了实验和理论模拟研究，发现传质效果随液弹长度增加而减小，随流速增加而增加。Cherlo等^[52]详细考察了通道尺寸、构型，流体黏度、表/界面张力对液弹长度的影响。

Kashid等^[53-54]利用PIV技术和CFD方法证实了极低流速下液弹内的内循环流动现象和两个对称静止区域的存在。实验表明^[55]：随通道尺寸缩小，液弹长度减小，比相表面积增大；考虑液膜时，压降理论预测值与实验值吻合较好；与传统设备相

比,相同的能量输入,微通道内产生的比相界面积是传统设备的几倍以上。

Xu等^[28,56-57]围绕新型微分散技术——膜分散技术,对微尺度下的液-液两相流动、分散和相间传质规律进行了系统研究,并建立了相应的微尺度分散和传质模型,为设计新型微结构混合器奠定了良好基础。

Ismagilov小组^[58]则侧重于研究液弹内部流体的混合过程,通过引入载流体相,使待混合流体自发形成分散相液滴,利用内循环流动强化混合过程。通过实验和理论分析^[59-60],发现直通通道中液弹内流体的混合效果与待混合的两流体位置分布有关;当两流体以上下位置分布时,混合效果较差;左右位置分布时,混合效果较好。Wiggins等^[61]提出基于流体拉伸、叠加、重排3个步骤循环往复操作的Baker转换混合原理,并从数学上证明了该原理的可行性;Ismagilov等^[29,62]将之引入液滴内混合过程,通过采用弯曲通道实现了内循环流动过程中待混合流体位置的重置,达到混合均匀。Duraiswamy等^[63]利用这一原理进行了纳米金的合成,发现可通过操作条件的改变实现对纳米金形貌的有效调控,共得到球状、椭球状、棒状、带规则尖角的纳米金颗粒。Jahn等^[64]对采用微流控法制备纳米半导体量子点、金属胶体、乳液、脂质体的研究进行了总结,并以脂质体为例详细说明了微流控法的优越性。

当分散相液滴尺寸小于通道特征尺寸时,液滴在微通道内的流动基本不受通道尺寸的影响,属于非受限空间内的流动问题,与上面论述的受限空间内流动过程中的液滴相比,此时分散相液滴体积较小,而比相界面积则较大,故这种内循环流动对传质的影响更为显著,但迄今有关液滴尺寸小于微通道特征尺寸时的传质文献报道较少。针对这一问题,Xu等^[57]通过对微通道内液滴尺度的有效调控,利用中和反应显色法,研究了单分散液滴形成与向通道下游流动过程中的传质特性,发现在两相流体无相对流动状况下,流体液滴形成过程中传质效果至少占总体传质效果的30%,且其传质系数比液滴向通道下游流动过程高1~2个量级;与传统萃取塔相比,系统总体积传质系数可提高1~3个量级。

由上述可知,有关微尺度下液-液体系传质过程的研究大多局限在定性描述上,缺乏定量研究的

实验数据,主要是由于实验过程中分析难度较大。原因在于:微通道内液-液两相的持液量较少,难于在短时间内获得分析所需样品量;两相流体开始接触时流动状况较为复杂,造成对此处传质过程的分析难度加大;取样时间远大于料液在微通道内的停留时间,造成端效应较大。

为此,Zhao等^[65]把微通道内的传质过程分成5个传质区域,利用“时间外推法”消除了样品分离过程对传质性能的影响,可精确测量微通道内传质效果。实验证实了整个微通道系统内两相流体初始接触区域附近的总体积传质系数最大,为微反应器系统的结构优化设计提供了理论支持。提出了预测微通道内液-液互不相溶两相流体的传质性能经验关联式,与实验值相比偏差在±20%以内。定量证明了微通道的传质效果比传统反应器高2~3个数量级,意味着完成同一个传质过程,采用微通道系统体积缩小至少1~2个量级,为化工设备微型化和过程强化提供了理论依据。

同时系统研究了微通道壁面性质与入口构型、操作条件等之间的耦合对液-液互不相溶两相流体流动状况的调控机制。利用基于虹吸原理设计的新颖油水分离器,首次较为精确地实验测量了水油体积流量比小于1的情况下对撞型和错流型入口结构微通道反应器内分散相与连续相流型对传质过程的影响。与连续相流型相比,居于分散相流型区域的传质性能稍好一些;相同流型下,通道壁面性质对微通道反应器的整体传质性能影响较大^[33]。另外,研究发现利用微通道内气体的搅拌或填充微颗粒的剪切作用,可使液-液两相并行流转变为分散流流型,极大地增加两相流体的分散效果、比表面积和表面更新速度,与微通道内液-液两相流体传质相比,可进一步使传质效果提高1~2倍^[34-35]。

4 结束语

微化工技术作为一个多学科交叉的新兴研究领域,其内涵、原理、目标和研究内容需要不断充实和完善,尚有许多基本的科学问题需要深入研究:①液-液互溶两相流体混合机制与检测技术,如接触原理、界面吸/放热的影响规律、先进的检测技术等;②互不相溶两相流体流动状态形成机制和传质过程,如传质过程中复杂界面的形成与转变过程等;③液-液互不相溶两相流体的原位分离问题,如通道壁面性质的调控、通道构型的优化等;④基

于系统体积与压降最小化的约束条件, 对适于液相体系的多通道多片组合式微反应器的结构进行优化, 为以生产为目的的微反应器的结构设计、放大与集成、制造等奠定理论基础; ⑤拓展液-液两相体系在萃取、乳化、快速强放热反应、纳米材料和催化剂制备等方面的应用, 以推进其工业化进程。

微化学工程与技术是 21 世纪化学工程领域的共性基础与关键攻关技术, 其发展将为传统化学工业带来重大影响——增强化工过程安全性, 促进过程强化和化工系统小型化, 提高能源、资源利用效率, 达到节能降耗之目的。

References

- [1] Service R F. Miniaturization puts chemical plant where you want them. *Science*, 1998, **282**: 400
- [2] Chen Guangwen (陈光文), Yuan Quan (袁权). Microchemical technology. *Journal of Chemical Industry and Engineering (China)* (化工学报), 2003, **54** (4): 427-439
- [3] Jähnisch K, Hessel V, Löwe H, Baerns M. Chemistry in microstructured reactors. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2004, **43**: 106-446
- [4] Commenge J M, Falk L, Corriou J P, Matlosz M. Analysis of microstructured reactor characteristics for process miniaturization and intensification. *Chem. Eng. Technol.*, 2005, **28** (4): 446-458
- [5] Ehrfeld W, Hessel V, Löwe H. Microreactors—New Technology for Modern Chemistry (微反应器——现代化学中的新技术). Luo Guangsheng (骆广生), Wang Yujun (王玉军), Lü Yangcheng (吕阳成), trans. Beijing: Chemical Industry Press, 2004
- [6] Günther A, Jensen K F. Multiphase microfluidics: from flow characteristics to chemical and materials synthesis. *Lab Chip*, 2006, **6**: 1487-1503
- [7] Pfund D, Rector D, Shekarraz A. Pressure drop measurements in a micro-channel. *AIChE J.*, 2000, **46**: 1496-1507
- [8] Mokrani O, Bourouga B, Castelain C, Peerhossaini H. Fluid flow and convective heat transfer in flat microchannels. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 2009, **52**: 1337-1352
- [9] Hetsroni G, Mosyak A, Pogrebnyak E, Yarin L P. Fluid flow in micro-channels. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 2005, **48**: 1982-1998
- [10] Qu W, Mala G M, Li D. Pressure driven water flows in trapezoidal silicon micro-channels. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 2000, **43**: 353-364
- [11] Mosyak A, Pogrebnyak E, Yarin L P. Fluid flow in micro-channels. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 2005, **48**: 1982-1998
- [12] Zhao Yuchao (赵玉潮). Studies on liquid-liquid heterogeneous phase transport and reaction process in microchannel reactor [D]. Dalian: Dalian Institute of Chemical Physics, Chinese Academy of Sciences, 2008: 55-69
- [13] Nguyen N T, Wu Z G. Micromixers—a review. *J. Micromech. Microeng.*, 2005, **15**: 1-16
- [14] Ottino J M, Wiggins S. Introduction: mixing in microfluidics. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, 2004, **A362**: 923-935
- [15] Floyd T M, Losey M W, Firebaugh S L, Jensen K F, Schmidt M A. Microreaction Technology: Industrial Prospects. Berlin: Springer, 2000: 171
- [16] Ehrfeld W, Golbig K, Hessel V, Löwe H, Richter T. Characterization of mixing in micromixers by a test reaction: single mixing units and mixer arrays. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 1999, **38**: 1075-1082
- [17] Löb P, Drese K S, Hessel V, Hardt S, Hofmann C, Löwe H, Schenk R, Schönfeld F, Werner B. Steering of liquid mixing speed in interdigital micromixers—from very fast to deliberately slow mixing. *Chem. Eng. Technol.*, 2004, **27**: 340-345
- [18] Engler M, Kockmann N, Kiefer T, Woias P. Numerical and experimental investigations on liquid mixing in static micromixers. *Chem. Eng. J.*, 2004, **101**: 315-322
- [19] Kockmann N, Kiefer T, Engler M, Woias P. Convective mixing and chemical reactions in microchannels with high flow rates. *Sensor Actuat. B-Chem.*, 2006, **117**: 495-508
- [20] Kockmann N, Kiefer T, Engler M, Woias P. Silicon microstructures for high throughput mixing devices. *Microfluid Nanofluid.*, 2006, **2**: 327-335
- [21] Soleymani A, Yousefi H, Turunen I. Dimensionless number for identification of flow patterns inside a T-micromixer. *Chem. Eng. Sci.*, 2008, **63**: 5291-5297
- [22] Adeosun J T, Lawal A. Numerical and experimental studies of mixing characteristics in a T-junction microchannel using residence-time distribution. *Chem. Eng. Sci.*, 2009, **64** (10): 2422-2432
- [23] Zhao Yuchao (赵玉潮), Ying Ying (应盈), Chen Guangwen (陈光文), Yuan Quan (袁权). Characterization of micro-mixing in T-shaped micro-mixer. *Journal of Chemical Industry and Engineering (China)* (化工学报), 2006, **57** (8): 1884-1890
- [24] Ying Y, Chen G W, Zhao Y C, Li S L, Yuan Q. A high throughput methodology for continuous preparation of monodispersed nanocrystals in microfluidic reactors. *Chem. Eng. J.*, 2008, **135** (3): 209-215
- [25] Benz K, Jäckel K P, Regenauer K J, Schiewe J, Drese K, Ehrfeld W, Hessel V, Löwe H. Utilization of micromixers for extraction processes. *Chem. Eng. Technol.*, 2001, **24**: 11-17
- [26] Hisamoto H, Satio T, Tokeshi M, Hibara A, Kitamori T. Fast and high conversion phase-transfer synthesis

- exploiting the liquid-liquid interface formed in a microchannel chip. *Chem. Commun.*, 2001, **24**: 2662-2663
- [27] Kashid M N, Kiwi-Minsker L. Microstructured reactors for multiphase reactions: state of the art. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2009, **48**: 6465-6485
- [28] Xu J H, Li S W, Tan J, Wang Y J, Luo G S. Preparation of highly monodisperse droplet in a T-junction microfluidic device. *AIChE J.*, 2006, **52**: 3005-3010
- [29] Song H, Chen D L, Ismagilov R F. Reactions in droplets in microfluidic channels. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2006, **45**: 7336-7356
- [30] Eggers J. Nonlinear dynamics and breakup of free-surface flows. *Rev. Mod. Phys.*, 1997, **69**: 865-929
- [31] Squires T M, Quake S R. Microfluidic: fluid physics at the nanoliter scale. *Rev. Mod. Phys.*, 2005, **77**: 977-1026
- [32] Zhao Y C, Chen G W, Yuan Q. Liquid-liquid two-phase flow patterns in a rectangular microchannel. *AIChE J.*, 2006, **52** (12): 4052-4060
- [33] Zhao Y C, Su Y H, Chen G W, Yuan Q. Effect of surface properties on the flow characteristics and mass transfer performance in microchannels. *Chem. Eng. Sci.*, 2010, **65** (5): 1563-1570
- [34] Su Y H, Chen G W, Zhao Y C, Yuan Q. Intensification of liquid-liquid two-phase mass transfer by gas agitation in a microchannel. *AIChE J.*, 2009, **55** (8): 1948-1958
- [35] Su Y H, Zhao Y C, Chen G W, Yuan Q. Liquid-liquid two-phase flow and mass transfer characteristics in packed microchannels. *Chem. Eng. Sci.*, 2010, **65** (13): 3947-3956
- [36] Christopher G F, Anna S L. Microfluidic methods for generating continuous droplet streams. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2007, **40**: R319-R336
- [37] Serra C A, Chang Z Q. Microfluidic-assisted synthesis of polymer particles. *Chem. Eng. Technol.*, 2008, **31** (8): 1099-1115
- [38] Dendukuri D, Doyle P S. The synthesis and assembly of polymeric microparticles using microfluidics. *Adv. Mater.*, 2009, **21**: 4071-4086
- [39] Umbanhowar P, Prasad V, Weitz D. Monodisperse emulsion generation via dropbreak off in a coflowing stream. *Langmuir*, 2000, **16**: 347-351
- [40] Cramer C, Fischer P, Windhab E J. Drop formation in a coflowing ambient fluid. *Chem. Eng. Sci.*, 2004, **59**: 3045-3058
- [41] Murshed S M S, Tan S H, Nguyen N T, Wong T N, Yobas L. Microdroplet formation of water and nanofluids in heat-induced microfluidic T-junction. *Microfluid Nanofluid*, 2009, **6**: 253-259
- [42] Utada A S, Fernandez-Nieves A, Stone H A, Weitz D A. Dripping to jetting transitions in coflowing liquid streams. *Phys. Rev. Lett.*, 2007, **99**: 094502
- [43] Garstecki P, Fuerstman M J, Stone H A, Whitesides G M. Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction—scaling and mechanism of break-up. *Lab Chip*, 2006, **6**: 437-446
- [44] de Menech M, Garstecki P, Jousse F, Stone H A. Transition from squeezing to dripping in a microfluidic T-shaped junction. *J. Fluid Mech.*, 2008, **595**: 141-161
- [45] Thorsen T, Roberts R W, Arnold F H, Quake S R. Dynamic pattern formation in a vesicle-generating microfluidic device. *Phys. Rev. Lett.*, 2001, **86**: 4163-4166
- [46] Guillot P, Colin A. Stability of parallel flows in a microchannel after a T junction. *Phys. Rev. E*, 2005, **72**: 066301
- [47] Tice J D, Lyon A D, Ismagilov R F. Effects of viscosity on droplet formation and mixing in microfluidic channels. *Analytica Chimica Acta*, 2004, **507**: 73-77
- [48] Dreyfus R, Tabeling P, Willaime H. Ordered and disordered patterns in two-phase flows in microchannels. *Phys. Rev. Lett.*, 2003, **90**: 144505-144508
- [49] Anna S L, Bontoux N, Stone H A. Formation of dispersions using “flow-focusing” in microchannels. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **82**: 364-366
- [50] Burns J R, Ramshaw C. The intensification of rapid reactions in multiphase systems using slug flow in capillaries. *Lab Chip*, 2001, **1**: 10-15
- [51] Harries N, Burns J R, Barrow D A, Ramshaw C. A numerical model for segmented flow in a microreactor. *Int. J. Heat Mass Transfer*, 2003, **46**: 3313-3322
- [52] Cherlo S K R, Kariveti S, Pushpavanam S. Experimental and numerical investigations of two-phase (liquid-liquid) flow behavior in rectangular microchannels. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2010, **49**: 893-899
- [53] Kashid M N, Gerlach I, Goetz S, Franzke J, Acker J F, Platte F, Agar D W, Turek S. Internal circulation within the liquid slugs of liquid-liquid slug flow capillary microreactor. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 2005, **44**: 5003-5010
- [54] Kashid M N, Platte F, Agar D W, Turek S. Computational modelling of slug flow in a capillary microreactor. *J. Comput. Appl. Math.*, 2007, **203**: 487-497
- [55] Kashid M N, Agar D W. Hydrodynamics of liquid-liquid slug flow capillary microreactor: flow regimes, slug size and pressure drop. *Chem. Eng. J.*, 2007, **131**: 1-13
- [56] Xu J H, Luo G S, Li S W, Chen G G. Shear force induced monodisperse droplet formation in a microfluidic device by controlling wetting properties. *Lab Chip*, 2006, **6** (1): 131-136
- [57] Xu J H, Tan J, Li S W, Luo G S. Enhancement of mass transfer performance of liquid-liquid system by droplet flow in microchannels. *Chem. Eng. J.*, 2008, **141** (1/2/3): 242-249
- [58] Song H, Tice J D, Ismagilov R F. A microfluidic system for controlling reaction networks in time. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2003, **42**: 767-772
- [59] Tice J D, Song H, Lyon A D, Ismagilov R F. Formation of droplets and mixing in multiphase microfluidics at low values of the Reynolds and the capillary numbers.

- Langmuir*, 2003, **19**: 9127-9133
- [60] Song H, Bringer M R, Tice J D, Gerdts C J, Ismagilov R F. Experimental test of scaling of mixing by chaotic advection in droplets moving through microfluidic channels. *Appl. Phys. Lett.*, 2003, **83**: 4664-4666
- [61] Wiggins S, Ottino J M. Foundations of chaotic mixing. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, 2004, **362**: 937-970
- [62] Bringer M R, Gerdts C J, Song H, Tice J D, Ismagilov R F. Microfluidic systems for chemical kinetics that rely on chaotic mixing in droplets. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, 2004, **362**: 1087-1104
- [63] Duraiswamy S, Khan S A. Droplet-based microfluidic synthesis of anisotropic metal nanocrystals. *Small*, 2009, **5** (24): 2828-2834
- [64] Jahn A, Reiner J E, Vreeland W N, DeVoe D L, Locascio L E, Gaitan M. Preparation of nanoparticles by continuous-flow microfluidics. *J. Nanopart Res.*, 2008, **10**: 925-934
- [65] Zhao Y C, Chen G W, Yuan Q. Liquid-liquid two-phase mass transfer in the T-junction microchannels. *AIChE J.*, 2007, **53** (12): 3042-3053