

不对称 T 型微通道内液滴的无阻塞破裂动力学

马朋成, 朱春英, 付涛涛, 马友光

(化学工程联合国家重点实验室, 天津大学化工学院, 天津 300072)

摘要: 利用高速摄像机研究了不对称 T 型微通道内液滴的无阻塞破裂过程。以甘油-水溶液为分散相, 含 4% (质量分数) 表面活性剂 Span-20 的矿物油为连续相。液滴的无阻塞破裂过程可分为三个阶段: 进入阶段、形变阶段和破裂阶段。其中破裂阶段又可分为快速破裂阶段和细丝破裂阶段两个子阶段。考察了表观流速、无量纲液滴长度和两相黏度比对破裂阶段的影响。结果表明: 快速破裂阶段是一个自相似过程, 无量纲颈部最小宽度与无量纲剩余时间呈幂律关系, 幂律指数约为 1.35。细丝破裂阶段无量纲最小颈部宽度与无量纲剩余时间呈线性关系。斜率随着表观速度和无量纲液滴长度的增大而增大, 随两相黏度比的增大而减小。

关键词: 微通道; 液滴; 破裂; 动力学; 两相流

中图分类号: TQ 021.4

文献标志码: A

文章编号: 0438—1157 (2018) 11—4633—07

Dynamics of droplet breakup with permanent tunnel in asymmetric microfluidic T-junction

MA Pengcheng, ZHU Chunying, FU Taotao, MA Youguang

(State Key Laboratory of Chemical Engineering, School of Chemical Engineering and Technology, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

Abstract: The non-blocking rupture process of droplets in asymmetric T-type microchannels was studied using a high speed camera. The glycerol-water solution and mineral oil with 4%(mass) surfactant Span-20 were introduced as the dispersed phase and continuous phase, respectively. The breakup process of droplet could be divided into three stages: entering stage, deformation stage and breakup stage. The breakup stage could be further divided into two sub-stages: fast breakup stage and thread breakup stage. The effects of liquid superficial velocity, the dimensionless length of the droplet and the viscosity ratio between dispersed phase and continuous phase on the breakup stage were investigated. The results indicated that the fast breakup stage was a self-similar process, the evolution of the dimensionless minimum width of the droplet neck with the dimensionless remaining time could be scaled by a power-law relationship, and the value of power law index was about 1.35. In the thread breakup stage, the dimensionless minimum width of the droplet neck was linear with the dimensionless remaining time. The slope of line increased with the increase of liquid superficial velocity and the dimensionless droplet length, and reduced with the increase of the viscosity ratio between dispersed phase and continuous phase.

Key words: microchannels; droplet; breakup; dynamics; two-phase flow

2018-05-31 收到初稿, 2018-06-22 收到修改稿。

联系人: 马友光。第一作者: 马朋成 (1993—), 男, 硕士研究生。

基金项目: 国家自然科学基金项目(21776200, 21576186, 91634105, 91434204)。

Received date: 2018-05-31.

Corresponding author: Prof. MA Youguang, ygma@tju.edu.cn

Foundation item: supported by the National Natural Science Foundation of China (21776200, 21576186, 91634105, 91434204).

引 言

近年来，微流控技术因其传递速率快，安全性高，易于控制等优点，得到了学术界和工业界的广泛关注^[1-2]。微流控技术应用广泛，可应用于化学反应，每个液滴都可以作为一个“微反应器”，能有效地限制返混^[3]。此外，微流控技术所需样品少，响应时间快，在生物、医学和化学等领域具有广阔的应用前景^[4-5]。两相微流控技术是多相微流控技术的一个重要分支，主要研究微液滴（气泡）的生成^[6-9]、运动^[10]、破裂^[11-12]、分配^[13]、过滤^[14]和聚并^[15]等行为。

不对称 T 型微通道作为微流控设备中最常用的基本构型之一，可以用来生产非单一尺寸的液滴（气泡）。Link 等^[11]最早对横截面相同而长度不同的 T 型分岔口处的液滴破裂进行了研究，他们发现破裂后子液滴的大小与下游支通道的长度呈反比。Bedram 等^[16]模拟研究了下游通道长度相同但宽度不同的 T 型分岔口处的液滴破裂行为。类似地，Samie 等^[17]实验研究了截面为三角形的不等宽微通道内液滴的破裂行为。他们都发现子液滴的体积比与下游支通道宽度比呈幂律关系。液滴（气泡）颈部界面演变的研究对了解液滴（气泡）破裂机理具有重要意义。Leshansky 等^[18]研究了液滴在对称 T 型微通道内的完全阻塞破裂过程，他们发现液滴剩余颈部宽度 $1 - W_m/W_c$ (W_m 为液滴最小颈部宽度， W_c 为通道宽度) 与无量纲时间 ut/W_c 存在幂律关系： $1 - W_m/W_c \propto (ut/W_c)^{3/7}$ 。Hoang 等^[19]通过数值模拟对液滴在对称 T 型分岔口处的破裂进行了研究，他们发现了三维快速夹断阶段的出现，颈部最小宽度与剩余时间呈幂律关系： $W_m \propto (t_p - t)^\alpha$ ， α 为幂律指数。Fu 等^[20]研究了对称 T 型分岔口处气泡的破裂，观察到了 3 种不同的类型的破裂方式，他们发现在气泡无阻塞破裂过程中，气泡最小颈部宽度和剩余时间呈幂律关系，且幂律指数不随操作条件的改变而改变。Wang 等^[21]考察了带有旁路的不对称 T 型微通道内气泡的破裂流型及流型转变机理，得到了四种流型：完全阻塞破裂、部分阻塞破裂气、无阻塞破裂和不破裂。Wang 等^[22]研究了带有旁路的不对称 T 型微通道内气泡完全阻塞破裂过程中的界面动力学，考察了液体表观流速，液相黏度等对气泡破裂过程的影响。

研究液滴在不对称 T 型微通道内的破裂过程，对于液滴的生产调控具有重要意义。虽然文献中已

有许多关于气泡和液滴在对称和不对称 T 型微通道内破裂的研究，但对于液滴在带有旁路的不对称 T 型微通道内无阻塞破裂规律的研究还比较少，亟需开展相关研究。本文利用高速摄像机对液滴在 T 型旁路分岔口处的破裂行为进行了研究，考察了液体表观速度、液滴长度和两相黏度比对破裂过程的影响。

1 实 验

实验装置如图 1 所示，微流体设备放在连有高速摄像机 (Fastcam SA1.1, Japan) 的显微镜 (ECLIPSE Ti-CU, Nikon, Japan) 上用于捕捉液滴破裂过程，拍摄速率为 1000 fps。12 VDC 卤素灯作为光源为摄像机提供照明，电源为 Nikon TI-PS 100W (Japan)。分散相和连续相分别由两台微注射泵 (Harvard Apparatus, PHD 22/2000, USA) 从针筒注入微通道内。每改变一次操作条件，都要待系统达到稳定状态后开始记录图像。

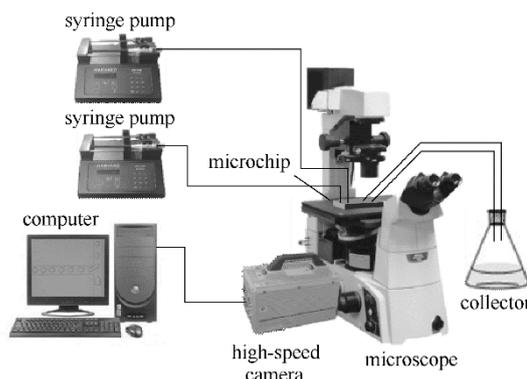


图 1 实验装置示意图

Fig.1 Schematic diagram of experimental setup

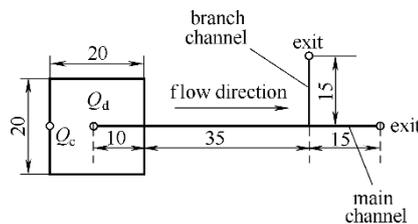


图 2 微通道示意图

Fig.2 Schematic diagram of microfluidic device (unit: mm)

实验中所用的微流体设备如图 2 所示。微流体设备包括一个十字聚焦型液滴生成结构和一个带有旁路的不对称 T 型液滴破裂结构。连续相（矿物油）以流量 Q_c 从两个侧通道流入，分散相（甘油水溶液）以流量 Q_d 从主通道流入。分散相在十字聚焦分

岔口处被连续相夹断，生成液滴。生成的液滴向下游流动并在 T 型分岔口处破裂成两个子液滴。微芯片由两块聚甲基丙烯酸甲酯 (PMMA) 板组成，其中一块由精密仪器刻上微通道，另一块用来密封。微通道的横截面为 400 μm (宽) × 400 μm (高)，加工误差为 5 μm。

分散相是甘油质量分数分别为 30%、40%、50%、60%和 70%的甘油水溶液。加入表面活性剂 span-20 (4%，质量分数)的矿物油溶液作为连续相，加入的 span-20 能够使液滴稳定生成并抑制聚并。利用乌氏黏度计 (iVisc, LAUDA, Germany) 测量两相流体的黏度；密度由振荡管密度计 (Anton Paar DMA-4500-M, Austria) 测量；利用表面张力仪 (OCAH200, Data Physics instruments GmbH, Germany) 测量两相界面张力。在物性数据测量过程中，每个样品测量 3 次取平均值。实验中两相流体的物性如表 1 所示。

表 1 两相流体的物性数据

Table 1 Physical properties of liquids used in experiment

Liquid	Density, ρ (kg·m ⁻³)	Viscosity, μ (mPa·s)	Interfacial tension, σ (mN·m ⁻¹)
mineral oil	852.9	22.23	—
30% glycerol	1070.5	2.10	1.80
40% glycerol	1096.8	3.10	1.67
50% glycerol	1123.7	4.30	1.53
60% glycerol	1149.7	8.62	1.46
70% glycerol	1177.2	18.38	1.43

实验在 25℃ 和一个大气压下进行。实验过程中，两相流速 Q_c 和 Q_d 的范围分别为： $0.1 \text{ ml}\cdot\text{h}^{-1} < Q_c < 2.8 \text{ ml}\cdot\text{h}^{-1}$ ， $0.1 \text{ ml}\cdot\text{h}^{-1} < Q_d < 1.0 \text{ ml}\cdot\text{h}^{-1}$ 。相应毛细管数 $Ca = \mu_c u / \sigma$ (μ_c 和 σ 分别为连续相黏度和两相界面张力； $u = (Q_d + Q_c) / W_c^2$ 为两相表观流速， W_c 为通道宽度) 的范围为： $0.0038 < Ca < 0.082$ 。Reynolds 数 $Re = \rho_c u W_c / \mu_c$ (ρ_c 为连续相的密度) 的范围为 $0.0046 < Re < 0.1013$ 。Weber 数 $We = Ca Re = \rho_c u^2 W_c / \sigma$ 的范围： $1.75 \times 10^{-5} < We < 8.31 \times 10^{-3}$ 。

2 结果与讨论

2.1 液滴无阻塞破裂过程

图 3 显示了不对称 T 型微通道分岔口处液滴的无阻塞破裂过程。将液滴头部刚进入分岔口处的时刻定义为零时刻。可根据高速摄像机记录的照片和拍摄频率获得液滴破裂周期内任一时刻对应的时

间，其误差为 1 ms。液滴的破裂过程可以分为 3 个阶段。(1) 进入阶段 (0~450 ms)：母液滴到达 T 型分岔口后在连续相的作用下开始发生形变，液滴头部在轴向上继续前进，在径向上发生膨胀，直至液滴尾部完全没入分岔口内。(2) 形变阶段 (450~950 ms)：液滴完全没入分岔口后，液滴在连续相的作用下拉伸变形，直至液滴出现明显的颈部。(3) 破裂阶段 (950~1540 ms)：液滴形变阶段完成后，在连续相作用下，液滴颈部逐渐变细直至破裂成两个子液滴。由于分散相黏性力的作用，液滴在破裂的后期会出现细丝，细丝出现前后的颈部界面动力学有明显差异。细丝出现前液滴颈部变细速率明显快于细丝出现后，因此破裂阶段又可以分为两个子阶段：第一个子阶段为快速破裂阶段 (1100~1330 ms)；第二个子阶段为细丝破裂阶段 (1330~1540 ms)，细丝在连续相的作用下向下游通道伸长，同时径向方向变细。破裂过程中液滴与下游支通道和主通道的壁面之间始终存在缝隙。

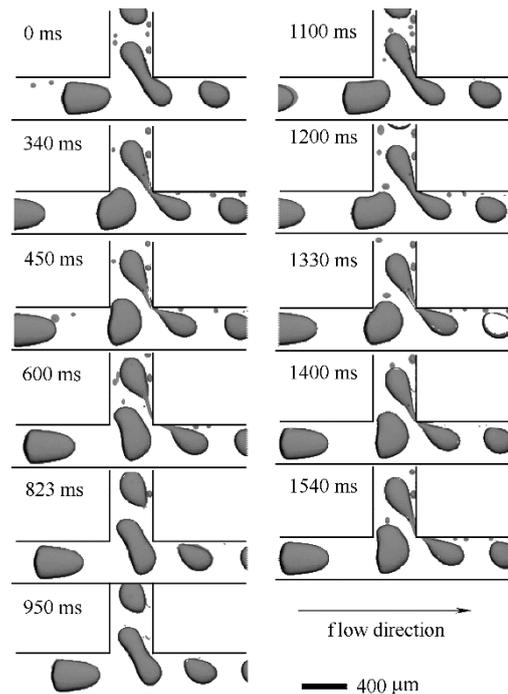


图 3 液滴在不对称 T 型微通道内的无阻塞破裂过程

Fig.3 Droplet breakup with permanent tunnel at asymmetrical T-junction (70% gly; $Q_d = 0.1 \text{ ml}\cdot\text{h}^{-1}$, $Q_c = 0.2 \text{ ml}\cdot\text{h}^{-1}$)

为了便于讨论，对液滴破裂过程中的相关物理量进行了定义，如图 4 所示。 L 指的是液滴进入分岔口前的长度， W_m 指的是液滴颈部最小宽度， L 和 W_m 都除以通道宽度 W_c 作无量纲处理。

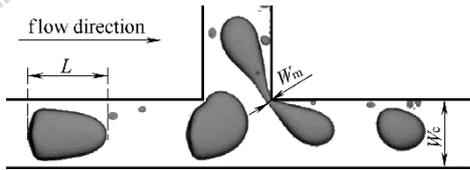


图 4 液滴破裂过程相关参数定义

Fig.4 Definitions of parameters to characterize droplet breakup process

2.2 液滴破裂阶段颈部动力学

液滴的破裂机理可以通过液滴颈部界面的演变规律进行分析。由于液滴在形变阶段界面形状不规则，很难确定液滴的颈部最小宽度。因此本文主要研究了破裂阶段液滴最小颈部宽度随时间的变化规律。液滴颈部最小宽度通过记录的图片得到，图片的分辨率为 $1\ \mu\text{m}/\text{pixel}$ ，测量误差为 $1\sim 2$ 个像素点，最大测量误差为 $2\ \mu\text{m}$ 。图 5 给出了不对称 T 型分岔口处液滴破裂阶段，液滴无量纲最小颈部宽度 W_m/W_c 随剩余时间 $(t_p-t)/t_c$ 的演变过程。其中 t_p 为液滴破裂周期，定义为液滴从刚进入分岔口到完全破裂成两个子液滴的时间间隔。 t 为破裂过程中的某一时刻。剩余时间 t_p-t 除以毛细时间 t_c ($t_c = (\rho W_c^3/\sigma)^{1/2}$)^[23] 作无量纲处理。图 5 中 ϕ 为分散相与连续相的黏度比 ($\phi = \mu_d/\mu_c$ ，其中 μ_d 为分散相的黏度)。从图 5 中可以看出，液滴快速破裂阶段的液滴颈部变细速率明显大于细丝破裂阶段。从图 5 中插图可以看出在快速破裂阶段无量纲颈部最小宽度与剩余时间呈幂律关系

$$W_m / W_c = m \left(\frac{t_p - t}{t_c} \right)^\beta \quad (1)$$

式中， m 为拟合参数， β 为快速破裂阶段幂律指数。另外，从图 5 中可以看出，在细丝破裂过程中

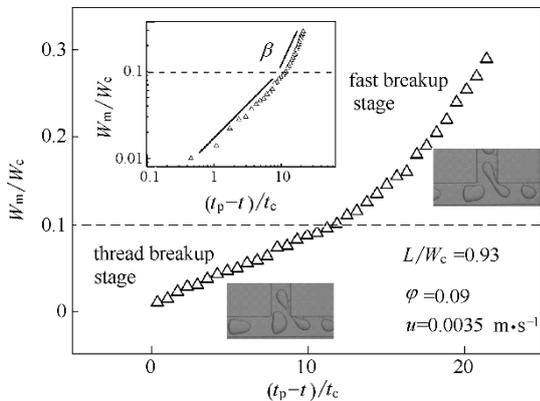


图 5 液滴颈部宽度在破裂阶段的演化

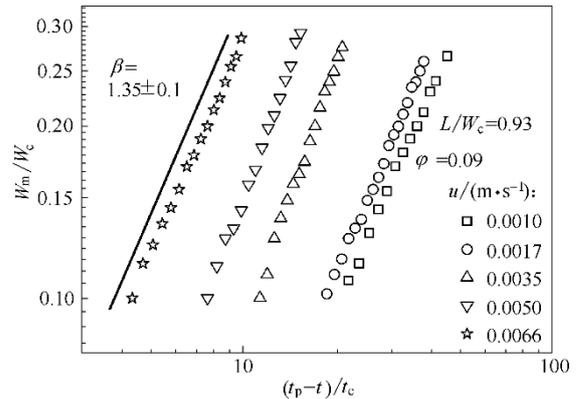
Fig.5 Evolution of neck for breaking droplet in breakup stage (inset shows relationship between W_m/W_c and $(t_p-t)/t_c$)

无量纲最小颈部宽度随无量纲剩余时间线性变化，同样的现象在黏性液滴生成过程的细丝破裂过程中也有发现^[24]。本文通过式(2)来描述细丝破裂阶段无量纲最小颈部宽度与剩余时间的关系

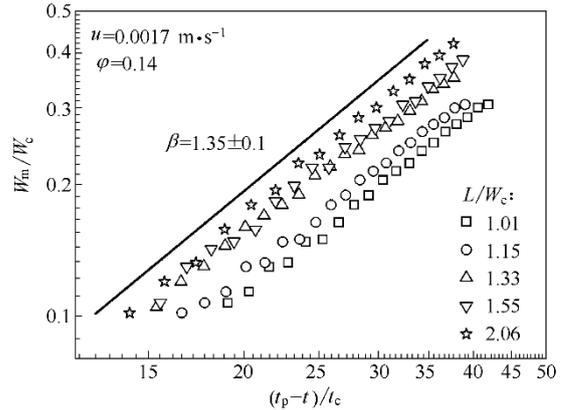
$$W_m / W_c = k \left(\frac{t_p - t}{t_c} \right) \quad (2)$$

式中， k 为斜率。

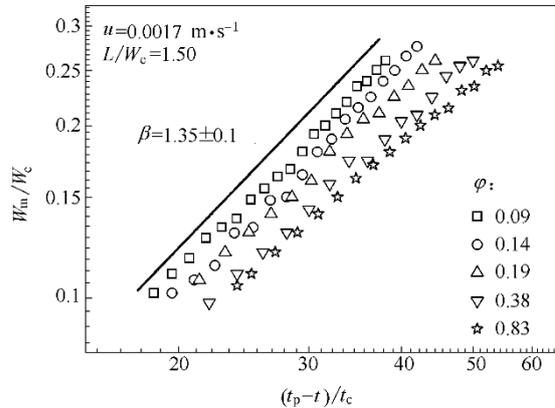
图 6 给出了不同因素对快速破裂阶段幂律指数



(a) effect of superficial velocity



(b) effect of dimensionless droplet length L/W_c



(c) effect of two phase viscosity ratio ϕ

图 6 不同因素对快速破裂阶段幂律指数 β 的影响

Fig.6 Effects of different factors on power law index β in fast breakup stage

β 的影响。从图 6 中可以看出幂律指数 β 约为 1.35, 且不受表观速度 u 、液滴无量纲长度 L/W_c 和两相黏度比 ϕ 的影响。这表明液滴快速破裂阶段是一个自相似过程。类似的现象在液滴 (气泡) 的破裂和生成过程中的颈部快速夹断阶段都有发现^[19, 25-28]。

由以上分析可知, 各操作参数对快速破裂阶段的影响主要体现在对参数 m 的影响上。图 7 给出了表观速度 u 、液滴无量纲长度 L/W_c 和两相黏度比 ϕ 对参数 m 的影响。从图 7(a)中可以看出当液滴无量

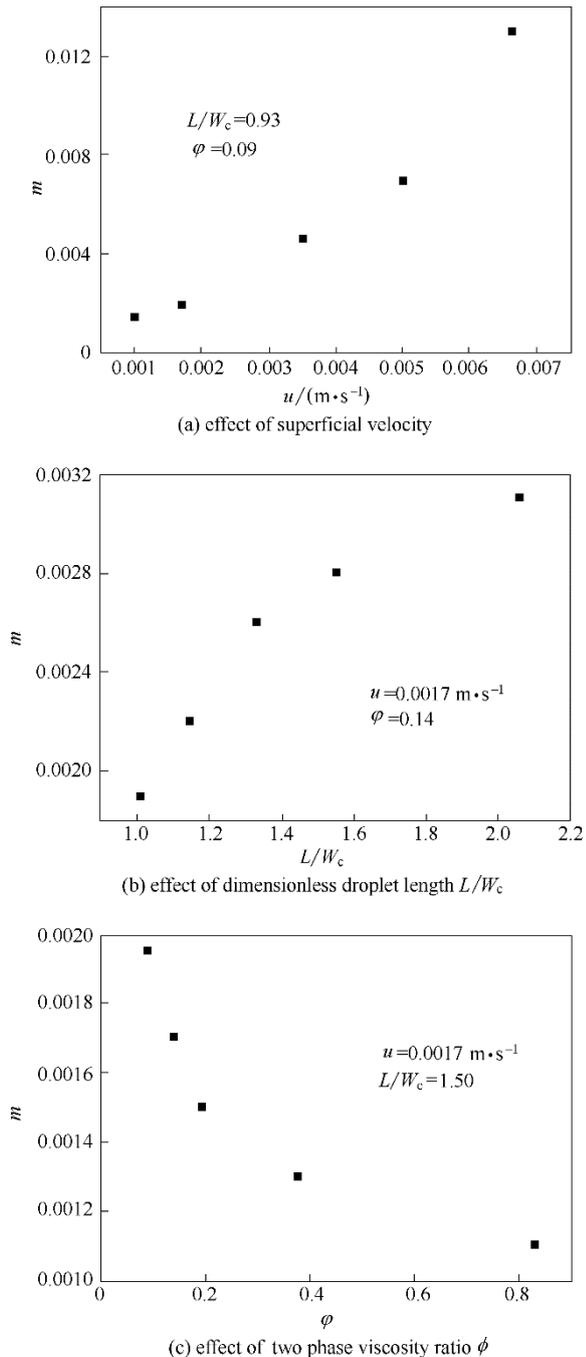


图 7 不同因素对参数 m 的影响

Fig.7 Effects of different factors on parameter m

纲长度 L/W_c 和黏度比 ϕ 不变时, 参数 m 随表观速度 u 的增大而增大。这是因为在液滴快速破裂阶段液滴颈部会受到连续相的挤压力和剪切力, 以及来自微通道尖角处反作用力的影响^[22]。当表观流速 u 增大时, 液滴受到连续相的挤压力和剪切力会增大, 尖角处反作用力也会增大, 因此液滴颈部变细速率会加快。从图 7(b)中可以看出当表观速度 u 和两相黏度比 ϕ 不变时, m 随液滴无量纲长度 L/W_c 的增大而增大。 L/W_c 对破裂过程的影响, 主要是通过影响液滴与下游通道壁面之间的空隙宽度引起的。 L/W_c 越大, 破裂过程中下游液滴头部与通道壁面之间的空隙就会越小。对于挤压力和剪切力而言, 其大小均随液滴与通道壁面空隙宽度的减小而明显增大^[29]。因此, 液滴无量纲长度的增大会加速破裂进程。从图 7(c)中可以看出当表观流速 u 和无量纲长度 L/W_c 不变时, m 随两相黏度比 ϕ 的增大而减小。这主要是因为当连续相黏度固定时, 分散相黏度越大, 液滴颈部变细所需要克服的黏性应力就会越大, 因此液滴的破裂速度会减缓。

当液滴无量纲颈部最小宽度 $W_m/W_c \approx 0.1$ 时, 液滴进入细丝破裂阶段。在细丝破裂过程中, 拉伸流动促使颈部细丝向下游通道拉伸, 液滴自身的黏性力抑制颈部的变化, 而毛细管力和尖角处反作用力会促使颈部细丝变细直至断裂。Du 等^[24]和 Arratia 等^[30]在微通道内黏性液滴生成过程中发现连续相流速对细丝破裂过程没有影响, 而从图 8(a)中可以看出, 斜率 k 随表观速度的增大而增大。造成这一差异的主要原因是本实验所用通道的分岔口尖角处的反作用力是不可忽略的, 表观速度越大, 细丝在尖角处受到的反作用力越大, 从而加速了破裂过程。从图 8(b)中可以看出斜率 k 会随着液滴无量纲长度 L/W_c 的增大而增大。这主要是因为当液滴无量纲长度比较大时, 下游微通道内液滴头部对细丝的拖曳作用会明显加大, 导致颈部变细速率加快。从图 8(c)中可以看出, 斜率 k 随着两相黏度比的增加而减小, 这是由于当连续相黏度固定时, 分散相黏度的增加, 会使黏性应力增大, 从而减缓细丝破裂过程。同样的现象在宏观和微观状态下黏性细丝破裂^[23, 30-31]的研究中均有发现。

3 结 论

利用高速摄像机对液滴在不对称 T 型微通道内的无阻塞破裂过程进行了研究。液滴的破裂过程可以分为三个阶段: 进入阶段、形变阶段和破裂阶段。

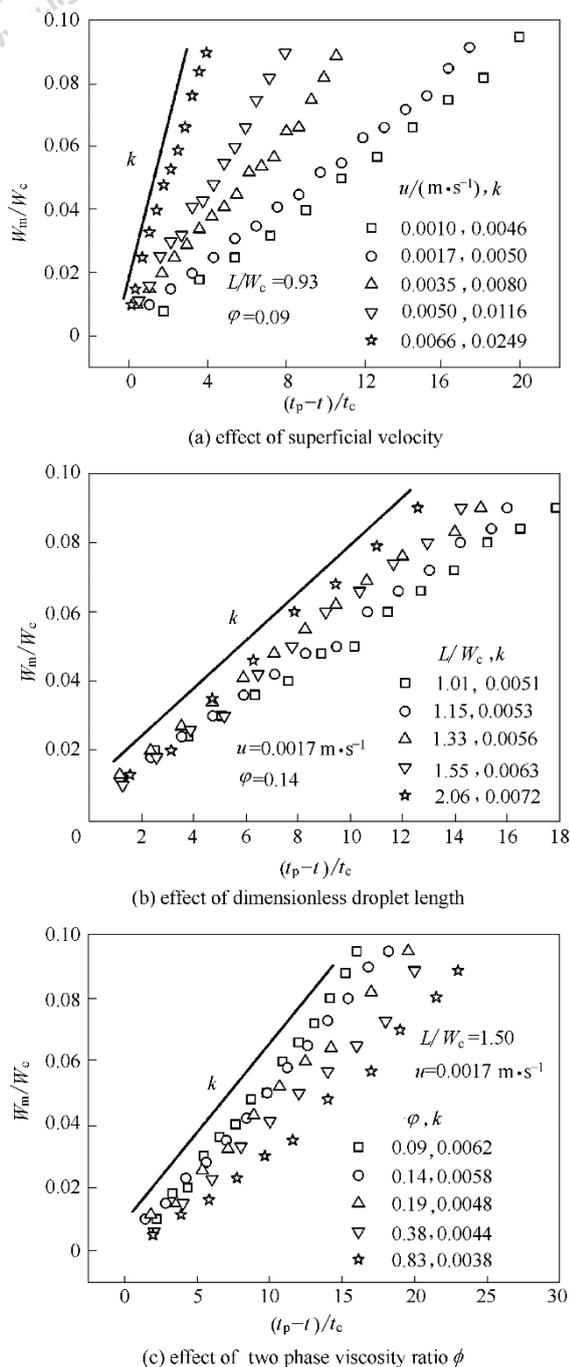


图 8 不同因素对细丝破裂阶段无量纲颈部最小宽度随剩余时间变化的影响

FIG.8 Effects of different factors on dimensionless minimum width W_m/W_c with dimensionless time $(t_p-t)/t_c$ in thread breakup stage

研究了破裂阶段液滴的颈部动力学，在快速破裂阶段颈部最小宽度与剩余时间呈幂律关系： $W_m/W_c = m((t_p-t)/t_c)^\beta$ ，幂律指数 $\beta \approx 1.35$ ，不受液体表观速度、无量纲液滴长度 L/W_c 和两相黏度比 ϕ 的影响。操作参数对快速破裂阶段的影响主要体现在对参数 m 的影响上，参数 m 随着液体表观速度和无量纲液滴长

度 L/W_c 的增大而增大，随着两相黏度比 ϕ 的增大而减小。细丝破裂阶段颈部最小宽度与剩余时间呈线性关系，斜率 k 随着液体表观速度和无量纲液滴长度 L/W_c 的增大而增大，随两相黏度比 ϕ 的增大而减小。本文的研究可为多分支并行微通道和复杂微流体设备内液滴的破裂动力学提供实验和理论基础。

符 号 说 明

- Ca ——毛细管数, $Ca = \mu u / \sigma$
 - k ——线性系数
 - L ——液滴长度, m
 - m ——拟合参数
 - Q ——体积流量, $m^3 \cdot s^{-1}$
 - Re ——Reynolds 数, $Re = \rho W_c u / \mu$
 - t ——破裂过程中的某一时刻, s
 - t_c ——毛细时间, s
 - t_p ——破裂周期, s
 - u ——流体速度, $m \cdot s^{-1}$
 - W_c ——微通道宽度, m
 - We ——Weber 数, $We = \mu W_c u^2 / \sigma$
 - α, β ——幂率指数
 - μ ——黏度, $Pa \cdot s$
 - ρ ——密度, $kg \cdot m^{-3}$
 - σ ——界面张力, $N \cdot m^{-1}$
 - ϕ ——两相黏度比
- 下角标
- c ——连续相
 - d ——分散相

References

- [1] 陈光文, 袁权. 微化工技术[J]. 化工学报, 2003, 54(4): 427-439.
CHEN G W, YUAN Q. Micro chemical technology[J]. Journal of Chemical Industry and Engineering(China), 2003, 54(4): 427-439.
- [2] 骆广生, 王凯, 徐建鸿, 等. 微化工系统内多相流动及其传递反应性能研究进展[J]. 化工学报, 2010, 61(7): 1621-1626.
LUO G S, WANG K, XU J H, et al. Multiphase flow, transport and reaction in micro-structured chemical systems[J]. CIESC Journal, 2010, 61(7): 1621-1626.
- [3] SONG H, TICE J D, ISMAGILOV R F. A microfluidic system for controlling reaction networks in time[J]. Angewandte Chemie, 2003, 115(7): 792-796.
- [4] ZHANG Y, OZDEMIR P. Microfluidic DNA amplification—a review[J]. Analytica Chimica Acta, 2009, 638(2): 115-125.
- [5] SANTOS J, TRUJILLO-CAYADO L A, CALERO N, et al. Development of eco-friendly emulsions produced by microfluidization technique[J]. Journal of Industrial and Engineering Chemistry, 2016, 36: 90-95.
- [6] FU T T, FUNFSCHILLING D, MA Y G, et al. Scaling the formation of slug bubbles in microfluidic flow-focusing devices[J]. Microfluidics

- and Nanofluidics, 2010, **8**(4): 467-475.
- [7] UTADA A S, LORENCEAU E, LINK D R, *et al.* Monodisperse double emulsions generated from a microcapillary device[J]. *Science*, 2005, **308**(5721): 537-541.
- [8] 张沁丹, 付涛涛, 朱春英, 等. 十字聚焦型微通道内弹状液滴在粘弹性流体中的生成与尺寸预测[J]. *化工学报*, 2015, **67**(2): 504-511. ZHANG Q D, FU T T, ZHU C Y, *et al.* Formation and size prediction of slug droplet in viscoelastic fluid in flow-focusing microchannel[J]. *CIESC Journal*, 2015, **67**(2): 504-511.
- [9] FU T T, WU Y N, MA Y G, *et al.* Droplet formation and breakup dynamics in microfluidic flow-focusing devices: from dripping to jetting[J]. *Chemical Engineering Science*, 2012, **84**: 207-217.
- [10] CUBAUD T, HO C M. Transport of bubbles in square microchannels[J]. *Physics of Fluids*, 2004, **16**(12): 4575-4585.
- [11] LINK D R, ANNA S L, WEITZ D A, *et al.* Geometrically mediated breakup of drops in microfluidic devices[J]. *Physical Review Letters*, 2004, **92**(5): 054503.
- [12] LESHANSKY A M, PISMEN L M. Breakup of drops in a microfluidic T junction[J]. *Physics of Fluids*, 2009, **21**(2): 023303.
- [13] BELLOUL M, ENGL W, COLIN A, *et al.* Competition between local collisions and collective hydrodynamic feedback controls traffic flows in microfluidic networks[J]. *Physical Review Letters*, 2009, **102**(19): 194502.
- [14] PARTHIBAN P, KHAN S A. Filtering microfluidic bubble trains at a symmetric junction[J]. *Lab on a Chip*, 2012, **12**(3): 582-588.
- [15] JOSE B M, CUBAUD T. Droplet arrangement and coalescence in diverging/converging microchannels[J]. *Microfluidics and Nanofluidics*, 2012, **12**(5): 687-696.
- [16] BEDRAM A, MOOSAVI A. Droplet breakup in an asymmetric microfluidic T junction[J]. *The European Physical Journal E*, 2011, **34**(8): 78.
- [17] SAMIE M, SALARI A, SHAFII M B. Breakup of microdroplets in asymmetric T junctions[J]. *Physical Review E*, 2013, **87**(5): 053003.
- [18] LESHANSKY A M, AFKHAMIS S, JULLIEN M C, *et al.* Obstructed breakup of slender drops in a microfluidic T junction[J]. *Physical Review Letters*, 2012, **108**(26): 264502.
- [19] HOANG D A, PORTELA L M, KLEIJN C R, *et al.* Dynamics of droplet breakup in a T-junction[J]. *Journal of Fluid Mechanics*, 2013, **717**(1): R4.
- [20] FU T T, MA Y G, FUNFSCHILLING D, *et al.* Dynamics of bubble breakup in a microfluidic T-junction divergence[J]. *Chemical Engineering Science*, 2011, **66**(18): 4184-4195.
- [21] WANG X D, ZHU C Y, FU T T, *et al.* Critical lengths for the transition of bubble breakup in microfluidic T-junctions[J]. *Chemical Engineering Science*, 2014, **111**: 244-254.
- [22] WANG X D, ZHU C Y, FU T T, *et al.* Bubble breakup with permanent obstruction in an asymmetric microfluidic T-junction[J]. *AIChE Journal*, 2015, **61**(3): 1081-1091.
- [23] WANG X D, ZHU C Y, WU Y N, *et al.* Dynamics of bubble breakup with partly obstruction in a microfluidic T-junction[J]. *Chemical Engineering Science*, 2015, **132**: 128-138.
- [24] DU W, FU T T, DUAN Y, *et al.* Breakup dynamics for droplet formation in shear-thinning fluids in a flow-focusing device[J]. *Chemical Engineering Science*, 2018, **176**: 66-76.
- [25] EGGERS J, FONTELOS M A, LEPPINEN D, *et al.* Theory of the collapsing axisymmetric cavity[J]. *Physical Review Letters*, 2007, **98**(9): 094502.
- [26] BURTON J C, WALDREPR, TABOREAK P. Scaling and instabilities in bubble pinch-off[J]. *Physical Review Letters*, 2005, **94**(18): 184502.
- [27] GEKLE S, SNOEIJER J H, LOHSE D, *et al.* Approach to universality in axisymmetric bubble pinch-off[J]. *Physical Review E*, 2009, **80**(3): 036305.
- [28] DU W, FU T T, ZHU C Y, *et al.* Breakup dynamics for high-viscosity droplet formation in a flow-focusing device: symmetrical and asymmetrical ruptures[J]. *AIChE Journal*, 2016, **62**(1): 325-337.
- [29] GARSTECKI P, STONE H A, WHITESIDES G M. Mechanism for flow-rate controlled breakup in confined geometries: a route to monodisperse emulsions[J]. *Physical Review Letters*, 2005, **94**(16): 164501.
- [30] ARRATIA P E, GOLLUB J P, DURIAN D J. Polymeric filament thinning and breakup in microchannels[J]. *Physical Review E*, 2008, **77**(3): 036309.
- [31] LISTER J R, STONE H A. Capillary breakup of a viscous thread surrounded by another viscous fluid[J]. *Physics of Fluids*, 1998, **10**(11): 2758-2764.