

文章编号 1004-924X(2008)11-2222-06

数字化微喷射用直列微喷嘴制作工艺

张晓乐, 侯丽雅, 章维一

(南京理工大学 机械工程学院, 江苏 南京 210094)

摘要:为解决玻璃微管道拉制工艺制作的单孔微喷嘴存在容易脆断,微管道长度不易控制,微喷射效率低等问题,提出了一种新的微喷嘴制作工艺。该工艺延续了微喷嘴拉制工艺中非 IC 工艺和低成本的制作特点,仍以低流阻的圆截面为喷口形状,通过材料流变运动和冷却时收缩率不同,将多根微管道紧密嵌入到塑料管中;通过毛细腐蚀作用,制作出变内径的锥形管,并实现微喷管长度的控制。制作了内径 $50\ \mu\text{m}$ 的 4 孔微喷嘴和 10 孔微喷嘴,锥管长为 $750\ \mu\text{m}$,微喷管长 $2.5\ \text{mm}$ 。使用制作的微喷嘴在微流体数字化驱动平台上进行了水性液体在油相和气相中的微喷射实验,制备了 $80\ \mu\text{m}$ 的微滴和微滴阵列。实验表明,该工艺制作的直列微喷嘴可以在微流体数字化驱动下实现较好的数字化微喷射效果。

关键词:微流体;微喷嘴;微流体数字化;微阵列;微喷射

中图分类号:TQ022.12;TQ171.68 **文献标识码:**A

Fabrication of in-line micropipette for digital micro-jetting experiment

ZHANG Xiao-le, HOU Li-ya, ZHANG Wei-yi

(School of Mechanical Engineering, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094, China)

Abstract: A new non-IC method for fabricating micropipettes was presented to improve traditional micropipette fabrication from pulling of glass capillary to solve problems such as easily brittle fracture, hard to control length of microchannel and low efficiency of micro-jetting. By choosing the round cross section with lower flow resistance as the nozzle shape and embedding the multi-microchannels tightly into the plastic pipe by employing the rheologic flowing of plastic and the different shrinkage ratios of two materials in cooling, a conical pipe connecting microchannels and plastic pipe were formed by capillary and corrosion action. Meanwhile, the length of micronozzle was reduced. fabricated conical pipe characteristics by low cost, simple manipulation and safe process. The micropipettes with 4 and 10 micronozzles in inner diameter of $50\ \mu\text{m}$, and the length of $2.5\ \text{mm}$ for micronozzle were fabricated, and the length of the conical pipes was $750\ \mu\text{m}$. The experiments of micro-jetting of aqueous liquid into oil phase and gaseous phase were carried out by employing digitalization of microfluid technology with the micropipettes and the microarray and micro-droplets with diameter of $80\ \mu\text{m}$ were prepared. The experiments show that the micropipettes can well work at digitalization of microfluids technology.

Key words: microfluid; micropipettes; digitalization of microfluid technology; microarray; micro-jetting

收稿日期:2008-04-07;修订日期:2008-05-30.

基金项目:教育部博士学科点专项科研基金资助项目(No. 20060288005);江苏省自然科学基金资助项目(No. BK2007209)

1 引言

微喷射技术广泛应用在喷墨打印、生物芯片制作^[1]、单分散微粒制备^[2-3]、激光光能量吸收^[4]、液体雾化^[5]等领域。微喷射过程的正常实现一般需要两项关键技术支撑:微喷射流体的驱动技术和与驱动技术相应的微喷嘴制造技术。目前,用于喷墨打印、生物芯片制作和单分散微粒制备的微喷嘴多采用 MEMS 技术制作,一般都包括涂胶、曝光、腐蚀、去胶、离子刻蚀等多项工艺过程^[6]。使用此方法制作微喷射器件制造成本较高,对操作人员和工艺环境要求也较高。

微流体数字化技术通过对裸结构的微流体器件实施脉冲的惯性力,使微量流体在惯性力与黏性力交替作用下实现微流体的脉冲流动,从而实现数字化可控的微量流体的喷射^[7-8]。目前与此技术相应的微喷嘴多为采用玻璃微管道拉制工艺制作的单孔微喷嘴^[9]。采用该工艺制作的微喷嘴存在以下问题:由于外径过于纤细,通常 $<1\text{ mm}$,在实验中容易脆断;拉制形成的出口微喷管长度不易控制;当需要制备大量均一微滴时,比如说制备较大量均匀乳液时,由于喷嘴只含有一个喷口,微喷射效率较低。针对上述问题,本文设计了一种新的微喷嘴制作工艺,在微流体数字化驱动平台上进行了基础的微喷射实验,实现了较好的效果。

2 直列微喷嘴制作工艺

2.1 工艺准备

选取规格化的石英玻璃微管道作为喷嘴出口的微喷管。微管道可以根据所需喷管的数量选择一根或多根,微管道外径 $300\ \mu\text{m}$,多根微管道内径可按规格从 $2\sim 150\ \mu\text{m}$ 选取相等或不等,这里取 $50\ \mu\text{m}$ (内径偏差 $\pm 3\ \mu\text{m}$)。选用热塑性塑料管道作为微喷嘴的宏观流体接口,管道内径尺寸应大于多根微管道外径总和。塑料管外径一般要求 $>1\text{ mm}$,这样便于固定或装夹于微喷射装置或进液平台上。为了便于观测制备结果,这里选用透明的聚丙烯基圆锥形塑料管。

首先,根据所需喷孔数量截取同规格等长的微管道 n 根,每根长约 25 mm , n 根微管道两端对

齐后在同一平面平行紧密排列。然后,将排列好的喷管一端用 EVA 热熔胶密封,管中的空气可以提供毛细腐蚀作用时的抗毛细进液压力,同时固化后的胶体将多根微管道排列方式固定。

2.2 直列微喷管压铸封接

采用流变压铸的方法保证两种器件的可靠连接与密封,过程如图 1 所示。压铸模具选用玻璃模具,玻璃模具有较高的表面质量,能形成高质量的聚丙烯形体表面,便于观测微喷嘴腐蚀过程。首先,利用微调装置将一排微管道一端插入聚丙烯管细端适当长度,该长度决定了压铸后二者互嵌的长度,为保证封接的可靠,这里取 3 mm 。然后,将二者重合的部分放入下模的型腔内,加热模具。当模具内表面温度达 $156\text{ }^\circ\text{C}$ 左右时,聚丙烯管部分呈现流变状态,模具停止加热并合模。流变态的聚丙烯材料在上下模压力作用下产生流动,将微管道间缝隙填充。在模具冷却过程中,石英和塑料两种材料同时收缩,由于石英玻璃收缩率小于丙烯酸塑料,冷却收缩的塑料将微管道间的缝隙压紧密封,并将微管道压紧固定于聚丙烯管的一端,这样就将一排的微管紧密嵌入到锥形聚丙烯管的细端。冷却 10 min 后,将封接好的微喷嘴取出后密闭环境保存,防止尘粒堵塞喷嘴。

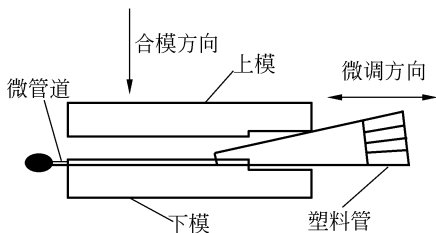


图 1 直列微管道压铸封接示意图

Fig. 1 Die casting sealing of in-line microchannel

压铸工艺是微喷嘴制作中的关键步骤,直接影响石英毛细管和聚丙烯管间嵌合和密封性的优劣,该工序对合模的温度较为敏感。当热塑性聚合物温度达到粘流态温度以上,聚合物大分子链相互滑移而转变成粘流态,此时在外力作用下,聚合物材料可以发生持续的不可逆的变形(流动)。聚丙烯基塑料的粘流态温度一般在 $164\sim 176\text{ }^\circ\text{C}$ 之间,由于压铸系统存在热惯性,停止加热模具后模腔内温度会继续上升。因此,一般应在低于粘流态温度 $10\sim 20\text{ }^\circ\text{C}$ 时停止加热并合模。若合模

过早,毛细管和塑料管件不能可靠密封,会在微喷射过程中发生漏液影响喷射;若合模过晚,塑料管热影响区较大,流动的塑料会将微管道未密封端封死,表 1 给出了合模温度对微喷嘴封接性的影响。经过实验,取 156 °C 为合模温度。

表 1 合模温度对微喷嘴封接性的影响

Tab. 1 Effect of die closing temperature on sealing performance

合模温度 / °C	封接效果
126	漏液
135	漏液
147	较好
156	较好
165	端部封死
180	端部封死

2.3 内构变截面腔体腐蚀成型

封接后的微管道嵌入到聚丙烯材料中 5 mm,对于瞬态微喷射过程来说,此长度和突变的管道截面都会产生较大的流阻。为了减小微喷射的流动阻力,采用毛细作用和腐蚀作用制作出渐变截面的连接腔体,它可以实现内径微米级的微管道与毫米级聚丙烯管道间的光滑过渡连接;同时腐蚀作用将微管道腐蚀变短至所需长度。向聚丙烯管中注入 47% 的氢氟酸水溶液,腐蚀液接触微管道后由于毛细作用部分吸入微管道中。由于微管道另一端密封,密封气体的压力只能允许少量腐蚀液进入微管道。在腐蚀过程中,由于扩散效应,靠近管口的氢氟酸浓度较高,微管道腐蚀较快;而靠近空气柱的氢氟酸浓度较低,微管道腐蚀较慢。因此,圆柱形的微管道内腔被逐渐腐蚀成圆锥形管道。当微管道剩余长度达到所需时,通过加入去离子水将腐蚀液稀释来阻断腐蚀过程。用直线陶瓷刀片将一排微管道的密封端沿材料互嵌的边缘截断,微喷嘴制成。

图 2 为所制作微喷嘴的内腔截面结构示意图,从图中可以看出,微喷嘴腔体形状主要由截面渐缩的聚丙烯塑料管、腐蚀成形的变截面锥形管和出口的微喷管组成,后两段由微管道腐蚀形成。塑料管实现了腔体内径从 4 mm 到 300 μm 的收缩,锥形管实现了腔体内径从约 200 μm 到 50 μm 的收缩,在两级收缩下,微喷嘴进液流体的宏观接口形成。

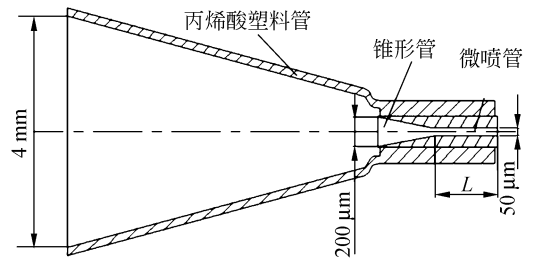


图 2 微喷管的内腔截面结构示意图

Fig. 2 Structure of the cross section of micropipette

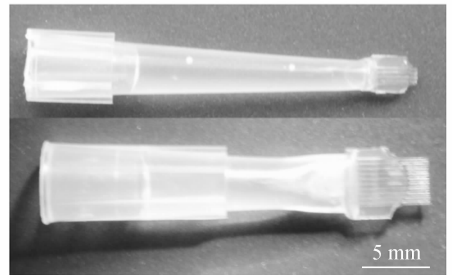


图 3 微喷嘴外观照片

Fig. 3 External appearances of micropipettes

微喷嘴的微喷管长度 L 是影响微喷射的重要参数,对于微喷管内径 50 μm 且有 200 Pa 相对液体压力的微喷嘴来说,若 L 过短,喷射时易发生渗流而不喷射的现象;若 L 过长,则可能由于流阻过大而无法喷出。表 2 给出了 L 与喷射效果的关系,经实验取 L 为 2.5 mm 时喷射效果较好。图 3 所示为含有 4 个和 10 个微喷管的微喷嘴照片,每个微喷管内径 50 μm ,微喷管长 L 为 2.5 mm。

表 2 微喷管长度 L 与喷射效果的关系

Tab. 2 Effect of micro nozzle length on micro-jetting performance

$L(\text{mm})$	喷射效果
1	渗流
1.5	渗流
2	喷射
2.5	喷射
4	喷射
5.5	喷射不稳定
7	不喷

在微管道截断位置一定的情况下,主要通过控制腐蚀进程的时间来控制此值。在腐蚀过程中,锥形管逐渐成形,并随着腐蚀进程锥形管的锥头和锥尾前移。图 4 为腐蚀长度与时间的关系,其中腐蚀长度由锥头和锥尾的位移曲线表示,经过 150 min 锥形管成形,如图 5 所示。腐蚀成形的锥形管长为 750 μm ,锥形管的锥尾直径为 200 μm ,由于腐蚀过程为各向同性腐蚀,微管道外径也受腐蚀,但外径腐蚀不会增加额外流阻。

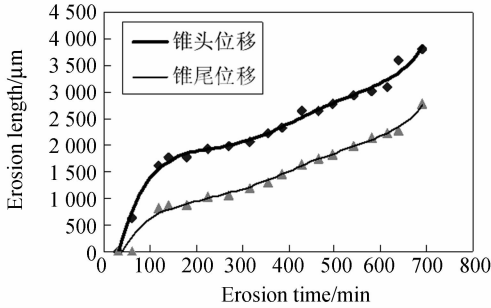


图 4 腐蚀长度与时间的关系

Fig. 4 Relationship between erosion time and erosion length

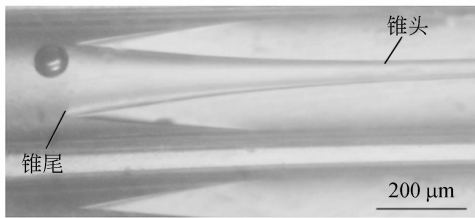


图 5 毛细腐蚀形成的变内径锥形管

Fig. 5 Conical pipes formed by capillary and corrosion action

2.4 腐蚀成形锥形管前移过程分析

初始时微管道内充满空气,当其开口端接触腐蚀液时,腐蚀液在弯曲液面附加压力作用下进入微管道,空气柱被压缩。如图 6(a)所示,设微管道原长为 L_0 ,初始半径为 r_0 。进液稳定后空气柱长为 L ,腐蚀液的表面张力为 σ ,凹液面曲率半径为 R , R 与 r_0 夹角为 θ_0 。空气柱初始压力为 p_0 ,进液后稳定压力为 p 。腐蚀液进入微管道的过程为等温过程,则由气体状态方程可得

$$p_0 L_0 = p L \quad (1)$$

弯曲液面附加压力为

$$p' = \frac{2\sigma}{R} = \frac{2\sigma \cos \theta_0}{r_0} \quad (2)$$

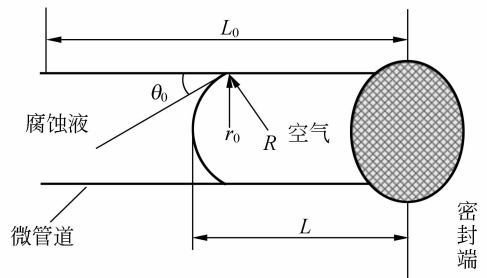
当弯曲液面附加压力与空气柱压力平衡,即 $p = p'$ 时,腐蚀液不再移动。由式(1)、(2)可得

$$L = \frac{R p_0 L_0}{2\sigma} = \frac{r_0 p_0 L_0}{2\sigma \cos \theta_0} \quad (3)$$

随着腐蚀过程的进行,气液界面处的微管道半径 r 增大,弯曲液面附加压力 p' 减小, L 变长。当 r 增大到一定值时, θ 变得很小,空气柱中一部分气体以气泡(如图 5)形式进入到腐蚀液,如图 6(b)所示。弯曲液面前移, p 和 p' 达到新的平衡。设溢出气泡常压下半径为 R' ,则腐蚀液前移距离为

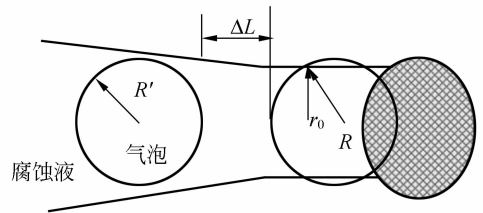
$$\Delta L = \frac{2 p_0 R'^3}{3 r_0 \sigma \cos \theta_0} \quad (4)$$

随着气泡的不断产生,腐蚀液不断前移,腐蚀成形的锥形管也随之前移。



(a) 腐蚀液进入

(a) Entering of etching solution



(b) 气泡溢出

(b) Overflow of bubble

图 6 锥形管前移过程示意图

Fig. 6 Process of moving forward of conical pipe

3 微喷嘴的数字化微喷射验证实验

通过实验验证了所制备的微喷嘴进行数字化微喷射的可行性。将制备的微喷嘴装夹于微流体

数字化驱动平台上进行微喷射实验。在脉冲惯性和黏性力交替作用下,微喷管中的液柱离散后以微液滴的形式喷出,由此可以在与喷射介质不同性质的液相或气相中形成乳液颗粒。

3.1 液-液相间微喷射

本实验中微喷射液体为去离子水,喷嘴外相环境为含 0.2% 司盘-80 的液体石蜡。微喷管内径 $50\ \mu\text{m}$,长 $2.5\ \text{mm}$ 。微喷射驱动电压 $80\ \text{V}$,驱动频率 $2\ \text{Hz}$ 。为了便于在显微镜下观测喷射过程,使用长柄的 3 孔微喷嘴进行实验。图 7 为 3 根微喷管同时喷射液滴的录像截图,微喷管和制备液滴不在同一焦平面内。在液相中产生液滴较为均匀,粒径差异 $< 7\%$,平均微液滴直径约为 $80\ \mu\text{m}$ 。

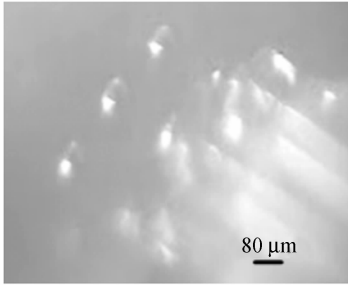


图 7 液-液相间微喷射

Fig. 7 Micro-jetting between liquid-liquid phases

3.2 气相中喷射的微滴阵列

在气相环境中,脉冲方式驱动下的多根喷嘴同时喷射,可在非接触的匀速移动玻璃基片上形成微液滴阵列。图 8 为含 4 个喷嘴的微喷嘴制备的微滴阵列,实验中微喷嘴出口悬于玻璃基片上方约 $500\ \mu\text{m}$ 。喷射液体为 25% 的甘油水溶液,驱动电压 $80\ \text{V}$,频率 $2\ \text{Hz}$ 。由于工艺和喷射环境

等原因,喷射形成液滴的表观粒径有一定差异。

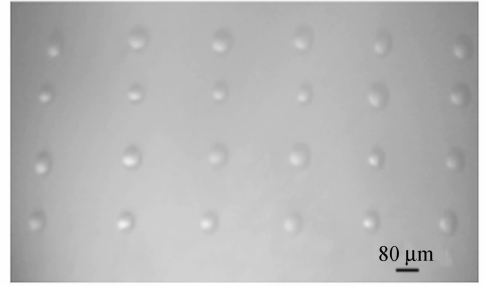


图 8 气相中微喷射形成的微液滴阵列

Fig. 8 Microarray formed by micro-jetting in gaseous phase

4 结 论

采用压铸与腐蚀的工艺方法制作了内径 $50\ \mu\text{m}$ 的 4 孔微喷嘴和 10 孔微喷嘴,锥管长为 $750\ \mu\text{m}$,微喷管长为 $2.5\ \text{mm}$ 。所制作的微喷嘴具有以下特点:

- (1) 采用规格化的石英毛细管作为喷嘴出口,多个喷嘴的内径尺寸均一(偏差 $\pm 3\ \mu\text{m}$);
- (2) 通过毛细腐蚀控制微管道长度,较好地控制微喷射阻力;
- (3) 通过塑料管和锥形管实现微米级与毫米级管道间光滑过渡,为微喷嘴提供了方便的宏观流体接口;
- (4) 由于微喷嘴常易堵塞,属于易耗品,采用低成本的非 IC 工艺制作;
- (5) 应用微流体数字化技术进行了液-液相和气-液相间微喷射实验,实验表明直列微喷嘴能够较好地应用于数字化微喷射。
- (6) 可以进一步改善实验装备和工艺,以提高气相中喷射颗粒的均匀性。

参考文献:

- [1] LIN S C, TSENG F G, HUANG H M, et al.. Simultaneous immobilization of protein microarrays by a micro stamper with back-filling reservoir[J]. *Sensors and Actuators B*, 2004, 99: 174-185.
- [2] BOHMER M R, SCHROEDERS R, STEENBAKKERS J A M, et al.. Preparation of monodisperse polymer particles and capsules by ink-jet printing[J]. *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, 2006, 289: 96-104.
- [3] 张晓乐,侯丽雅,章维一.规整双重乳液的微流体数字化制备原理实验[J]. *华中科技大学学报(自然科学版)*, 2007, 35(3), sup1: 57-60.

- ZHANG X L, HOU L Y, ZHANG W Y. Principle experiments on digital preparation of standardized double emulsions using digitalization of microfluids technology[J]. *Journal of Huazhong University of Science and Technology(Nature Science)*, 2007, 35(3), sup1:57-60. (in Chinese)
- [4] 尼启良. Xe 液体微滴靶激光等离子体光源实验[J]. *光学精密工程*, 2006, 14(6):939-943.
NI Q L. Experimental investigation on a laser-produced plasma source with liquid aerosol spray target[J]. *Opt. Precision Eng.*, 2006, 14(6):939-943. (in Chinese)
- [5] 李敬, 李金洪, 李祥友, 等. 微型喷嘴雾化直写技术制备厚膜导体研究[J]. *电子元件与材料*, 2006, 25(6):67-70.
LI J, LI J H, LI X Y, et al.. Study of thick film conductor fabrication directly by micro-atomization spraying deposition[J]. *Electronic Component & Materials*, 2006, 25(6):67-70. (in Chinese)
- [6] KOBAYASHI I, NAKAJIMA M, CHUN K, et al.. Silicon array of elongated through-holes for monodisperse emulsion droplets[J]. *AICHE Journal*, 2002, 48(8):1639-1644.
- [7] 章维一, 侯丽雅. 微流体数字化的科学与技术问题(I):概念、方法和效果[J]. *科技导报*, 2005, 23(8):4-9.
ZHANG W Y, HOU L Y. Scientific and technological problems of digitalization of microfluids (part I): concepts, methods and results[J]. *Science and Technology Review*, 2005, 23(8):4-9. (in Chinese)
- [8] 章维一, 侯丽雅. 微流体数字化的科学与技术问题(II):物质数字化及物质能量信息统一数字化概念研究[J]. *科技导报*, 2006, 24(3):41-47.
ZHANG W Y, HOU L Y. Scientific and technological problems of digitalization of microfluids(part II): conceptual study of digitalization of matter and integrated digitalization of matter-energy-information[J]. *Science and Technology Review*, 2006, 24(3):41-47. (in Chinese)
- [9] 刘天军, 章维一, 侯丽雅. 细胞注射玻璃微针拉针器的研制[J]. *光学精密工程*, 2003, 11(5):432-437.
LIU T J, ZHANG W Y, HOU L Y. Development of cell injection pipette puller[J]. *Opt. Precision Eng.*, 2003, 11(5):432-437. (in Chinese)

作者简介:张晓乐(1981—),男,河南郑州人,博士研究生,主要研究方向为微流体系统和微胶囊制备技术。E-mail: zxl0665@163.com

侯丽雅(1954—),女,教授,博士生导师,主要从事微系统与纳米系统、生物制造工程、医学工程、机器人与自动控制技术等方面的研究。E-mail: w_20010238@yahoo.com.cn

● 下期预告

基于积层式压电驱动器的管道泵研究

Young-Bog Ham¹, Woo-Suk Seo¹, Won-Yong Cho¹,
Jung-Ho Park¹, So-Nam Yun¹ and Byung-Oh Choi¹

(1. Intelligent and Precision Machinery Research Division,
Korea Institute of Machinery & Materials, Daejeon, KOREA)

用于高功率电子器件和燃料电池中的强制液冷系统,要求小型化的精密液体泵能够稳定而准确的传输冷却液。积层式压电驱动器由于具有精度高、变形可控性好和较强力量输出的性能特点,从而在精密液体泵领域中得到了较为广泛地应用。本文介绍了一种用于强制冷却的基于积层式压电驱动器的管道泵。分析总结了该压电泵的设计、制作以及性能。设计提出的压电泵结构尺寸为 18 mm×18 mm×20 mm,空载流速为 7.5 ml/min,当正弦波电压为 150 VDC、驱动信号频率为 1.8 kHz 时,压电泵达到最大输出压力,压力值为 111 kPa。