

# 稳定密度梯度中球形界面流动失稳的研究进展<sup>1)</sup>

李延深<sup>2)</sup>

(中国科学院大学工程科学学院, 北京 100049)

(中国科学院力学研究所非线性力学国家重点实验室, 北京 100190)

**摘要** 当流体界面上存在温度梯度或者浓度梯度时, 会产生稳定或不稳定的界面流动. 由于界面流动在多种工业过程中有广泛应用, 其已经得到了广泛的研究. 通常认为, 在考虑界面流动时, 体积力比如重力可以忽略, 在小尺度下尤其如此. 因此, 稳定密度梯度的重力效应对界面流动的影响一直是被忽略的. 然而, 近期的一些研究表明, 即使是在小尺度下, 稳定密度梯度重力效应的影响也不可忽略. 文章综述了稳定密度梯度中球形界面的流动及其不稳定性研究进展, 介绍了球形界面的两种失稳模式——扩散受限导致的失稳与黏性受限导致的失稳, 并且分析了对流、密度梯度、扩散、黏性, 以及容器大小对流动失稳的影响. 现有研究表明, 在小尺度下, 当流体界面有竖直方向的分量时, 稳定温度/浓度梯度对界面流动及其稳定性的影响可能需要重新评估. 最后根据现有研究的不足与发展动态, 对未来的研究方向进行了展望.

**关键词** 稳定密度梯度, 液滴, 马兰戈尼流动, 不稳定性

中图分类号: O359+.1 文献标识码: A doi: 10.6052/0459-1879-24-034

## RESEARCH PROGRESS ON THE MARANGONI INSTABILITY OF A DROP/BUBBLE IMMERSED IN LINEARLY STRATIFIED LIQUIDS<sup>1)</sup>

Li Yanshen<sup>2)</sup>

(School of Engineering Science, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

(State Key Laboratory of Nonlinear Mechanics, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

**Abstract** Marangoni instabilities can emerge when a liquid interface is subjected to a temperature or concentration gradient. It has been extensively studied due to its wide relevance in industrial applications. It is generally believed that when it comes to Marangoni flows, bulk effects like buoyancy are negligible as compared to interfacial forces, especially on small scales. Consequently, the effect of a stable stratification on the Marangoni instability has been ignored. However, some recent researches have shown that even at small scales, the effect of stable stratifications cannot be ignored. This paper reviews the research progress on the Marangoni instability of a drop/bubble in a linearly stratified liquid. Two oscillatory instabilities, i.e., diffusion-limited instability and viscosity-limited instability are introduced, and the effect of advection, density stratification, diffusion, viscosity and container size on the instability are reviewed. Current results suggest that when the interface is not horizontal at small scales, the effect of a stable temperature/concentration gradient on the Marangoni flow and its instability may need reconsideration. Further research directions are suggested based on the current studies.

2024-01-12 收稿, 2024-04-12 录用, 2024-04-13 网络版发表.

1) 国家自然科学基金 (12272376), 中央高校基本科研业务费专项资金和小米青年学者资助项目.

2) 通讯作者: 李延深, 副教授, 主要研究方向为界面流动、多相多组分流体、液滴和固-液浸润. E-mail: liyanshen@ucas.ac.cn

引用格式: 李延深. 稳定密度梯度中球形界面流动失稳的研究进展. 力学学报, 2024, 56(6): 1540-1551

Li Yanshen. Research progress on the Marangoni instability of a drop/bubble immersed in linearly stratified liquids. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 2024, 56(6): 1540-1551

**Key words** stable stratification, drops, Marangoni flow, instability

## 引言

当流体界面上存在平行于该界面的温度梯度或者浓度梯度时,界面上会产生界面张力梯度,由此导致的流动称为马兰戈尼流动<sup>[1]</sup>。由于该流动产生在界面上,因此属于界面流动。在某些情况下,该流动可能失稳,这被称为马兰戈尼流动不稳定性。最初由 Pearson<sup>[2]</sup> 研究之后,因为其在对流换热<sup>[2-3]</sup>、液液萃取<sup>[4-8]</sup>、涂层技术<sup>[2,9-10]</sup>、合金制造<sup>[11-13]</sup>和晶体生长<sup>[14-22]</sup>等领域有着广泛的应用,马兰戈尼流动及其不稳定性得到了广泛的研究。马兰戈尼流动及其不稳定性也是液滴自驱运动<sup>[23-30]</sup>的主要原因,由于其在食品处理<sup>[31-32]</sup>等领域有广泛应用,近些年来也得到了广泛的研究。

温度/浓度梯度除了会在流体界面上产生马兰戈尼流动或其不稳定性,还会在流体内产生密度梯度。然而,该密度梯度的重力效应对界面流动的影响通常是被忽略的<sup>[33]</sup>。这是因为马兰戈尼流动发生在流体界面上,其流动的尺度通常比较小。而我们知道,重力与长度的三次方成正比,但界面张力梯度与长度的一次方成正比。在小尺度下,重力相比于界面张力非常小,因此重力的作用通常被忽略。更进一步,当密度梯度在重力下稳定时(即稳定密度梯度),其重力效应就更容易被忽略,因为在此种情况下,重力或者稳定的密度梯度并不会直接导致任何流动。

但是近期的一些研究表明,即使是在小尺度下,重力的影响可能也无法忽略,比如固着液滴蒸发时的内部流动<sup>[34-36]</sup>。而稳定密度梯度中重力的影响也被发现是不可忽略的,比如液滴在稳定密度梯度内的连续弹跳<sup>[37-38]</sup>。注意在重力可忽略时,温度/浓度梯度只会使得液滴发生定向的自驱动<sup>[23-30]</sup>。更进一步,稳定密度梯度的重力影响不仅不可忽略,其在小尺度下的影响反而可能会被放大<sup>[39]</sup>。这表明,稳定密度梯度对界面流动的影响可能需要重新考虑,这对合金制造<sup>[11-13]</sup>、晶体生长<sup>[14-20]</sup>和食品冷冻<sup>[31-32]</sup>等工业过程有较大的潜在影响,因为在这些工业过程中,经常会出现比较大的温度/浓度梯度以及相应的稳定密度梯度。因此,有必要对稳定密度梯度对界面流动及其不稳定性的影响进行部分总结,以更好地理清研究思路。

根据应用的不同,界面流动的界面构型大致可以分为以下几类<sup>[39]</sup>: (1) 两层流体之间的水平界面; (2) 倾斜平板上薄液膜的自由表面; (3) 竖直液柱的自由表面; (4) 溶液中的球形界面(浸没在溶液中的液滴或气泡)。对于水平界面,产生稳定密度梯度的竖直的温度/浓度梯度对其影响较小。对于后面 3 种构型,溶液中的球形界面或许是最简单、最有代表性的构型。因此,本文对稳定密度梯度中球形界面流动及其不稳定性的影响进行综述,总结液滴/气泡大小、容器大小、密度梯度大小、对流、扩散以及黏性的影响,并对未来的研究方向进行展望。

值得注意的是,本文所综述的稳定密度梯度的长度尺度远大于球形界面的半径。稳定密度梯度的总长度大致等于或者小于球形界面半径的情形不在本文的讨论范围。这样的密度分层液体的相关研究请见文献<sup>[40]</sup>。同时,正是因为密度梯度的长度尺度远大于球形界面半径,球形界面附近的温度/浓度梯度可以近似认为是线性的。从下文也可以看到,为了研究分析的方便,现有的这方面的研究大部分都采用了线性的温度/浓度梯度。

## 1 稳态流动

虽然本文重点考察稳定密度梯度的影响,但是首先考察密度梯度可忽略时的情形却是有益的,因为当密度梯度从无到有,问题的复杂度也在逐渐增加。循序渐进地增加复杂度,有助于更好地理解问题。同时,通过有无密度梯度的对比,也可以更好地理解稳定密度梯度在其中的作用。

### 1.1 理想情况

为了叙述简洁,以下称产生稳定密度梯度的温度/浓度梯度,为稳定的温度/浓度梯度。当液滴或气泡处于稳定的温度梯度中时,温度梯度所导致的密度梯度通常被忽略。当温度梯度较小时,这似乎是合理的,因为液体的体积膨胀系数通常较小。与此同时,当液滴或气泡的尺寸很小时,对流很弱,其对温度场或浓度场的影响可以忽略。在这两个假设之外,要得到流场的解析解<sup>[41]</sup>,还需要再假设界面张力随温度/浓度的变化是线性的。由于温度/浓度梯度通常可以被认为线性的,这就相当于假设界面张力随高度

的变化是线性的. 仍为了叙述简洁, 以下称这 3 种假设下的情形为“理想情况”.

对于温度梯度内的液滴或气泡, 存在跨过球形界面的热量传输. 而对于浓度梯度内的液滴或气泡, 则有可能使得跨过球形界面的质量传输为零, 这使得流场及浓度场的解析解更简洁. 对于一个浸没在稳定浓度梯度中的不互溶液滴 (即跨过液滴界面的质量传输为 0), 其流动是轴对称的. 当液滴的质心静止时, 在轴对称球坐标系下 (如图 1), 其速度场及浓度场的解析解为

$$u_r = \frac{1}{2} \frac{1}{\mu + \mu'} \frac{d\sigma}{dC} \frac{dC}{dy} R \left( \frac{R}{r} - \frac{R^3}{r^3} \right) \cos \theta \quad (1)$$

$$u_\theta = -\frac{1}{4} \frac{1}{\mu + \mu'} \frac{d\sigma}{dC} \frac{dC}{dy} R \left( \frac{R}{r} + \frac{R^3}{r^3} \right) \sin \theta \quad (2)$$

$$u'_r = \frac{1}{2} \frac{1}{\mu + \mu'} \frac{d\sigma}{dC} \frac{dC}{dy} \frac{1}{R} (r^2 - R^2) \cos \theta \quad (3)$$

$$u'_\theta = -\frac{1}{2} \frac{1}{\mu + \mu'} \frac{d\sigma}{dC} \frac{dC}{dy} \frac{1}{R} (2r^2 - R^2) \sin \theta \quad (4)$$

$$C = C_0 + \frac{dC}{dy} \left( r + \frac{R^3}{2r^2} \right) \cos \theta \quad (5)$$

其中,  $C$  为稳定密度梯度中溶质的浓度,  $R$  为液滴半径,  $\mu$  与  $\mu'$  分别为液滴外部与内部流体的黏性,  $\sigma$  为界面张力,  $C_0$  为参考浓度,  $dC/dy$  为远场的浓度梯度. 在式 (1)~式 (5) 中, 式 (1) 和式 (2) 是液滴外部的流场, 式 (3) 和式 (4) 是液滴内部的流场, 式 (5) 是液滴外部的浓度场 (液滴内部的溶质浓度为 0). 整个流场的流线及浓度场见图 2.

值得注意的是, 由于跨过液滴表面的溶质扩散为零, 这使得等浓度线向液滴表面偏折, 最终垂直于液滴的球形表面. 由式 (5) 可以得知, 在液滴的赤道

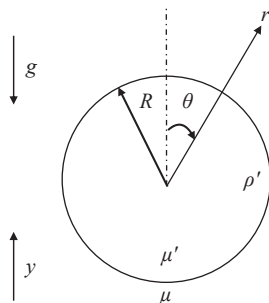


图 1 轴对称球坐标系及液滴参数

Fig. 1 Axisymmetric spherical coordinate and the drop's parameters

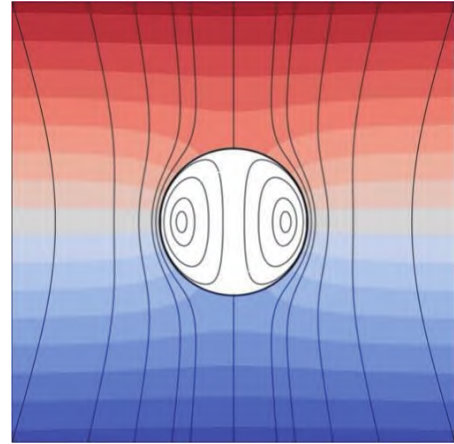


图 2 理想情况下的浓度场及流线. 流线由黑色实线表示, 等浓度线由不同颜色的条带表示

Fig. 2 Streamlines (solid lines) and the concentration field (color strips) of a drop immersed in a stable stratification in the ideal condition

位置处, 即  $r = R, \theta = 90^\circ$  处, 浓度梯度为  $3/2 \cdot dC/dy$ , 即为远场浓度梯度的  $3/2$  倍. 同时, 由式 (2) 可知, 液滴赤道位置处的马兰戈尼流速为

$$V_M = -\frac{1}{2} \frac{1}{\mu + \mu'} \frac{d\sigma}{dC} \frac{dC}{dy} R \quad (6)$$

可见, 马兰戈尼流速与液滴半径  $R$  成正比, 也与浓度梯度  $dC/dy$  成正比.

当溶质的存在使界面张力减小, 即  $d\sigma/dy < 0$  时, 马兰戈尼流动向下. 周围流体的黏性会对液滴产生一个向上的驱动力. 当该驱动力与液滴本身的重力平衡时, 液滴才会稳定地悬停在一固定的高度. 此时液滴与周围流体的密度差为

$$\rho' - \rho = \frac{3}{2} \frac{1}{\mu + \mu'} \frac{d\sigma}{dy} \frac{1}{gR} \quad (7)$$

其中,  $\rho'$  是液滴的密度,  $\rho$  是液滴外部流体的密度. 由于外部流体的密度梯度是线性的, 即  $d\rho/dy$  是常数, 式 (7) 两边同时除以  $d\rho/dy$ , 可得液滴的悬停高度  $h$  为

$$h = \frac{3}{2} \frac{\mu}{\mu + \mu'} \frac{d\sigma}{d\rho} \frac{1}{gR} \quad (8)$$

其中,  $h = 0$  为  $\rho = \rho'$  的位置, 即液滴与外部流体密度匹配的位置.

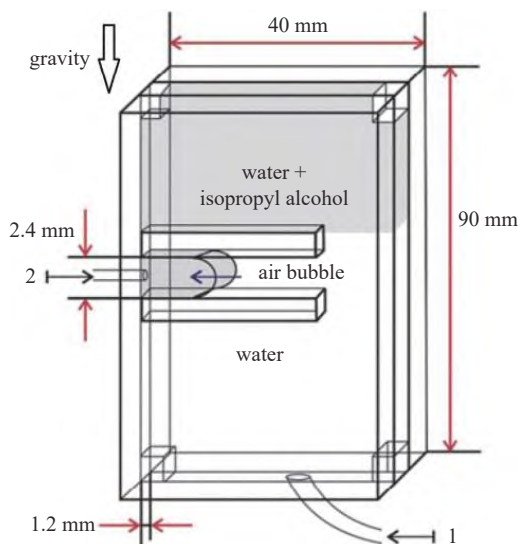
## 1.2 非理想情况

非理想情况, 指的是密度梯度不可忽略, 并且对流对浓度场的影响不可忽略的情形. 暂时不考虑界面张力随浓度变化为非线性的影响, 即仍然假设  $d\sigma/dC$

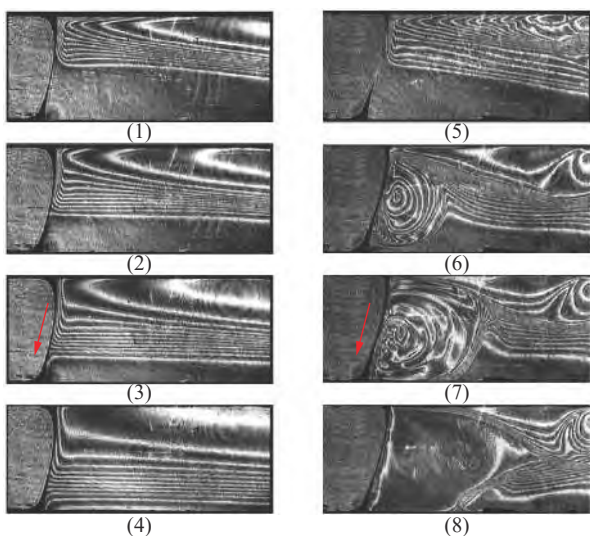


是常数.

首先考虑对流的影响. 我们知道, 在有温度/浓度差的情况下, 对流的作用通常是加速混合, 进而减小温度/浓度差. 图 3 展示了在 Hele-Shaw 流道中, 稳定的异丙醇浓度梯度对气泡表面流动的影响<sup>[42]</sup>. 其



(a) Bratsun 等<sup>[42]</sup>的实验装置  
(a) Experimental setup by Bratsun et al.<sup>[42]</sup>



(b) 两组不同初始浓度下干涉条纹随时间的变化, 其中干涉条纹代表等浓度线, 红色箭头代表气泡界面的流动方向. (1)~(4) 初始异丙醇浓度  $w_0 = 5$  wt%, 时间分别为 0 s, 13 s, 30 s 和 105 s; (2)~(8) 初始异丙醇浓度  $w_0 = 6$  wt%, 时间分别为 0 s, 15.3 s, 17 s 和 22 s  
(b) Interference patterns at different times for two different initial concentrations. Fringes represent liquid with equal concentration, red arrows denote the flow direction of the bubble surface. (1)~(4) Initial IPA concentration  $w_0 = 5$  wt%, snapshots at times 0 s, 13 s, 30 s and 105 s; (2)~(8) Initial IPA concentration  $w_0 = 6$  wt%, snapshots at times 0 s, 15.3 s, 17 s and 22 s

图 3 Hele-Shaw 流道中稳定的异丙醇浓度梯度对气泡表面的流动的影响<sup>[42]</sup>

Fig. 3 Effect of a stable IPA concentration on the Marangoni flow of a bubble in a Hele-Shaw cell<sup>[42]</sup>

实验装置如图 3(a) 所示. 一个厚度为 1.2 mm 的竖直 Hele-Shaw 流道中, 底部充满纯水. 水面下放有两个小的挡板, 两挡板间的空隙高度为 2 mm. 在此空隙的左侧注入一空气泡. 之后在流道的顶部充满异丙醇与水的混合溶液. 之后异丙醇开始向下扩散, 气泡的右侧表面开始逐渐感受到异丙醇的浓度梯度. 用激光干涉法观察异丙醇的浓度梯度, 结果如图 3(b) 所示. 其中干涉条纹代表等浓度线. 当顶部溶液中异丙醇的初始浓度为 5 wt% 时, 结果如图 3(b) 的左列所示. 可以清楚地看到, 当浓度梯度接触到气液界面时, 会产生向下的马兰戈尼流动. 此时的浓度梯度较小, 马兰戈尼流动微弱 ((1)~(4) 的时间间隔是 105 s). 但即使如此, 马兰戈尼流动仍然使得等密度线向下偏折, 因此气液界面最终所能接触到的等浓度线数比远场的要少, 这与对流可以忽略的情形 (图 2) 形成了鲜明的对比. 图 3(b) 左列表明, 即使在对流较微弱的情况下, 马兰戈尼对流的存在都会使得界面所能感受到的浓度梯度变小. 而当初始浓度增加到 6 wt% 时, 浓度梯度更大, 如图 3(b) 右列所示, 这会引起更强的对流以及强烈的混合, 使得气液界面附近的流体浓度变均匀, 最终导致马兰戈尼流动变弱甚至消失. 在一段时后, 扩散又会使得界面附近的浓度梯度恢复 (或者部分恢复), 使得马兰戈尼对流重启, 由此开启下一个循环.

回到浸没在稳定密度梯度内的球形液滴. 当液滴比较小时, 由式 (6) 可知, 马兰戈尼流速比较小. 但是, 与上述 Hele-Shaw 流道中的对流的作用类似, 这样小的马兰戈尼对流仍然使液滴能够感受到的浓度梯度减小, 导致液滴赤道处的马兰戈尼流速小于式 (6), 并且其悬停的高度小于式 (8) 的预测值. 或者其悬停高度可以记为

$$h = \alpha \cdot \frac{3}{2} \frac{\mu}{\mu + \mu'} \frac{d\sigma}{d\rho} \frac{1}{gR} \quad (9)$$

其中,  $0 < \alpha < 1$  代表对流的影响. 不同黏性的硅油液滴在具有稳定浓度梯度的酒精-水混合液中的悬停高度如图 4 所示<sup>[38]</sup>. 对于  $\mu' = 20, 50$  和  $100$  cSt 的液滴, 其系数  $\alpha$  分别为 0.37, 0.61 和 0.93. 由式 (6) 可知, 液滴黏性越小, 马兰戈尼流速越大, 对流越强. 而由图 3 和图 4 可知, 对流越强, 液滴所能感受到的浓度梯度越小. 这再次说明了对流所起的作用是促进混合, 使得液滴附近的浓度梯度变小. 而扩散的作用则是试图将液滴周围的浓度梯度恢复为图 2 所示的浓度

场. 当对流与扩散相平衡时, 流动稳定, 因此液滴可以悬停在固定高度.

由上可知, 在液滴周围的流场内存在对流与扩散的竞争. 然而, 扩散的速度是有限的, 对流的速度在理论上却有可能无限增加, 见式 (6). 因此, 当液滴半径  $R$  足够大, 或者远场的浓度梯度足够大时, 对流有可能超过扩散, 使得液滴周围的浓度场被混合均匀. 这就进一步导致液滴表面的浓度梯度消失, 从而使马兰戈尼对流消失. 继而, 扩散会发挥作用, 使得液滴表面再次感受到浓度梯度, 使得马兰戈尼对流重启. 如此循环往复, 最终形成振荡型的马兰戈尼流动.

在开始分析流动失稳前, 有必要再了解密度梯度受重力的影响. 图 5 展示了一个 100 cSt 黏性的硅油液滴在酒精-水稳定密度梯度中的流线. 其中红色

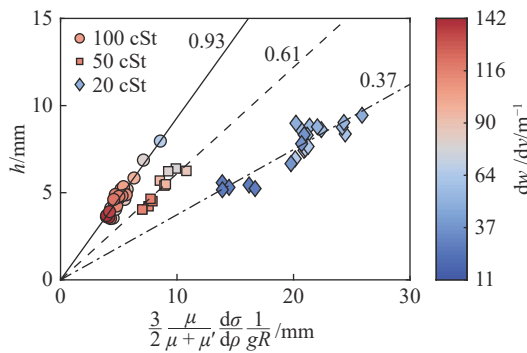


图 4 不同黏性液滴在具有稳定浓度梯度的酒精-水混合液中的悬停高度<sup>[38]</sup>.  $w_e$  为酒精的质量分数

Fig. 4 The levitation height of silicone oil drops of different viscosities immersed in stably stratified ethanol-water mixtures<sup>[38]</sup>.  $w_e$  is the ethanol weight fraction

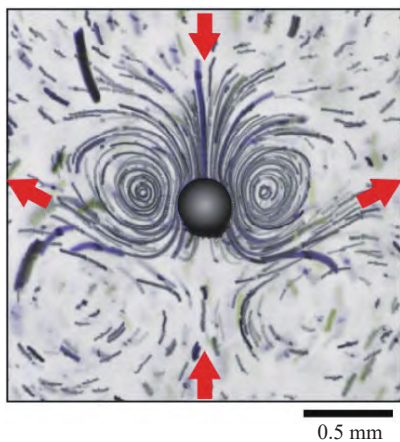


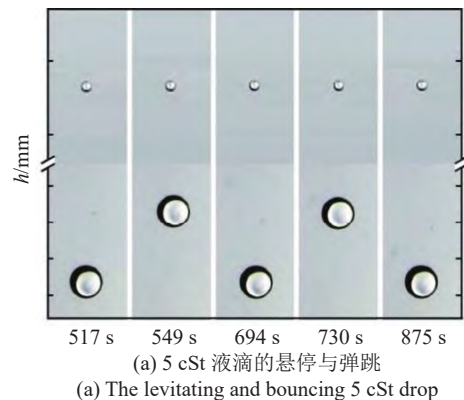
图 5 液滴悬停时的流线图. 液滴黏性为 100 cSt, 半径为  $155 \pm 2 \mu\text{m}$ , 酒精浓度梯度为  $10 \text{ m}^{-1}$

Fig. 5 The streamlines around a levitating drop. The drop viscosity is 100 cSt, radius is  $155 \pm 2 \mu\text{m}$ , and the ethanol concentration gradient is  $10 \text{ m}^{-1}$

箭头表示流场的方向. 可以见到, 密度梯度使得原本向下的流线向两侧偏折. 这是因为, 向下的马兰戈尼流动将密度较小的液体带到下部密度更大的液体中, 这部分流体受到的浮力随着向下的距离增加而增加, 直到浮力占据主导作用, 这会导致此部分流体停止下降. 最终由于质量守恒, 流体向外侧流动.

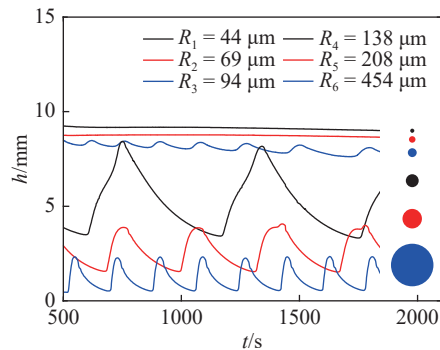
## 2 流动失稳的理论分析与实验验证

如上一节末尾所述, 当悬浮在稳定密度梯度中的不互溶液滴足够大时, 扩散有可能无法及时恢复被对流所影响的浓度场, 导致流动失稳. 由于失稳后的马兰戈尼流动是振荡型的, 此时液滴会发生弹跳. 图 6(a) 展示了两个不同大小的黏性为 5 cSt 的硅油液滴在酒精浓度梯度为  $dw_e/dy \approx 5 \text{ m}^{-1}$  的稳定密度梯度中的行为. 可以看到,  $R = 69 \pm 2 \mu\text{m}$  的小液滴在  $h \approx 8.7 \text{ mm}$  处悬停, 而  $R = 454 \pm 2 \mu\text{m}$  的大液滴则在  $h < 3 \text{ mm}$  的高度内弹跳. 图 6(b) 则展示了更多不同大小的 5 cSt 液滴在同样的密度梯度内的轨迹. 可见, 的确存在一个临界液滴半径  $R_{cr}$ , 当液滴半径



(a) 5 cSt 液滴的悬停与弹跳

(a) The levitating and bouncing 5 cSt drop



(b) 不同大小硅油液滴的轨迹

(b) Trajectories of silicone oil drops of different sizes

图 6 黏性为 5 cSt 的硅油液滴在  $dw_e/dy \approx 5 \text{ m}^{-1}$  的稳定密度分层中的悬停与弹跳

Fig. 6 Levitating and bouncing behaviors of 5 cSt silicone oil drops in a stable stratification with  $dw_e/dy \approx 5 \text{ m}^{-1}$

大于此临界半径  $R_{cr}$  时, 流动会失稳.

考虑流动稳定时的流场, 其示意图如图 7. 马兰戈尼流动主要影响到的浓度场即是流动的速度边界层, 由图中虚线框内的环形代表, 其厚度为  $\delta$ . 边界层内的液体密度为  $\rho$ . 在虚线框外是未受扰动的远场浓度梯度, 由红色梯度表示. 马兰戈尼流动由黑色实箭头表示. 在赤道位置处的马兰戈尼流速仍然记为  $V_M$ . 受到对流的影响,  $V_M$  小于式 (6) 所代表的最大值, 可以记为

$$V_M \sim \frac{1}{\mu + \mu'} \frac{d\sigma}{dC} \frac{dC}{dy} R \quad (10)$$

边界层内的流体受到向上的浮力与马兰戈尼流动所导致的向下的黏性剪切力. 在球对称坐标系下, 黏性剪切力为

$$-\mu \nabla^2 \mathbf{u}|_{r=R, \theta=90^\circ} \sim \mu \left( \frac{V_M}{\delta^2} - \frac{2V_M}{\delta R} + \frac{V_M}{R^2} \right) \quad (11)$$

式中有两个长度尺度, 即  $\delta$  与  $R$ . 当液滴黏性  $\mu'$  较小时, 马兰戈尼流速  $V_M$  较大, 见式 (10), 因此流动的雷诺数较大. 由 Prandtl-Blasius-Pohlhausen 边界层理论<sup>[43]</sup> 可知, 在一般情况下, 边界层厚度正比于雷诺数平方根的倒数, 因此此时的边界层厚度较小. 也就是说, 更小的液滴黏性会导致更小的边界层厚度. 那么当液滴黏性足够小时, 有可能使得  $\delta < R$ , 此时  $\delta$  的影响在式 (11) 中占主导. 反之, 当黏性足够大时, 有可能使得  $\delta > R$ , 这时  $R$  的影响占主导. 下文将在 2.1 节与 2.2 节分别考虑液滴黏性极限小 (对应扩散受限失稳) 与极限大 (对应黏性受限失稳) 的理论情形, 并且将之与实验结果进行对比. 液滴黏性处于中间值的情形将在 2.3 节讨论.

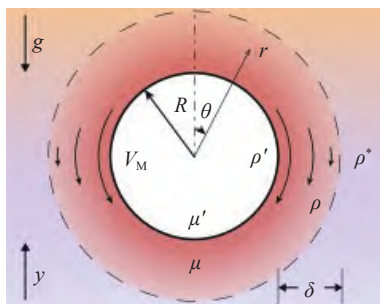


图 7 液滴及其周围流场的示意图  
Fig. 7 Schematics of the flow field around the drop

### 2.1 液滴黏性非常小的情形

当液滴黏性非常小时,  $\delta < R$ , 此时式 (11) 退化成

$$-\mu \nabla^2 \mathbf{u}|_{r=R, \theta=90^\circ} \sim \mu \frac{V_M}{\delta^2} \quad (12)$$

这是边界层内液体受到的向下的黏性剪切力. 在流动稳定时, 它与液体受到的浮力平衡. 边界层内的液体是由液滴顶部流下来的, 其与周围流体的密度差为  $\Delta\rho \sim -R d\rho/dy$ . 因此, 边界层内的力平衡给出

$$\mu \frac{V_M}{\delta^2} \sim -gR \frac{d\rho}{dy} \quad (13)$$

接下来考虑边界层内的对流与扩散. 对于边界层内的液体, 马兰戈尼对流会增强液体的混合, 使边界层内浓度变均匀, 而扩散的作用则是试图使边界层内浓度场与远场浓度场保持一致, 因此边界层内存在对流与扩散的竞争. 马兰戈尼对流改变浓度场的时间尺度为  $\tau_M \sim R/V_M$ , 而扩散修复浓度场的时间尺度为  $\tau_D \sim \delta^2/D$ , 其中  $D$  是溶质的扩散系数. 当对流比扩散快的时候, 也即  $\tau_M < \tau_D$  时, 扩散无法在液滴周围维持一个稳定的浓度场, 马兰戈尼流动因此也无法稳定, 于是流动会失稳. 代入两时间尺度的定义, 得到

$$\frac{V_M R}{D} > \frac{R^2}{\delta^2} \quad (14)$$

上式左侧是贝克莱数的形式, 由于其速度是马兰戈尼速度, 因此这里将其记为马兰戈尼数

$$Ma = \frac{V_M R}{D} = -\frac{d\sigma}{dw_e} \frac{dw_e}{dy} R^2 \frac{1}{(\mu + \mu') D} \quad (15)$$

这里, 我们代入式 (10) 时将其改成了等号. 由式 (13) 和式 (14) 消去  $\delta$ , 得到失稳判据

$$Ma/Ra^{1/2} > s \quad (16)$$

$$Ra = -\frac{d\rho}{dy} \frac{gR^4}{\mu D} \quad (17)$$

式中,  $Ra$  是瑞利数,  $s$  是待定常数. 该流动失稳是由于扩散无法在液滴周围维持一个稳定的浓度场导致的, 因此称之为扩散受限失稳.

图 8(a) 展示了黏性为 5 cSt 的硅油液滴在稳定密度分层的酒精-水混合液中弹跳与否的结果. 其中液滴悬停代表流动稳定, 液滴弹跳代表流动失稳. 由液滴的物性参数, 以及液滴所在高度处酒精-水混合液的物性计算得到相应的马兰戈尼数与瑞利数, 并在图 8(b) 中与式 (16) 对比. 可以看出, 5 cSt 硅油液



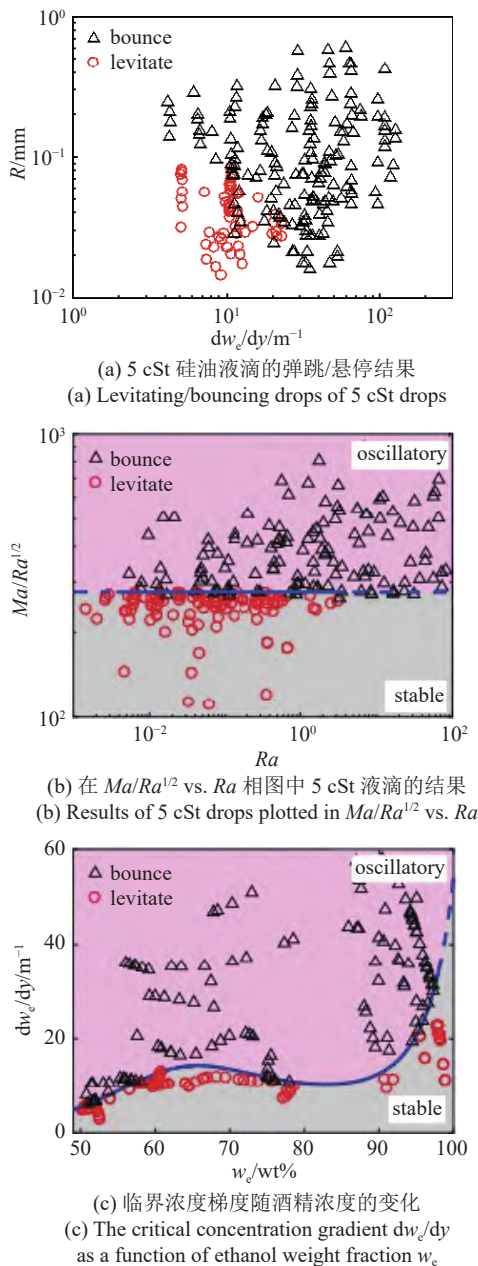


图 8 黏性为 5 cSt 的硅油液滴在稳定密度梯度内的弹跳/悬停结果  
Fig. 8 Levitating/bouncing drops of viscosity 5 cSt immersed in stably stratified ethanol-water mixture

滴的失稳方式的确是扩散受限失稳, 并且可得待定常数  $s = 275 \pm 10$ . 将式 (15) 及式 (17) 代入式 (16), 可得

$$\frac{dw_e}{dy} > \left( \frac{dw_e}{dy} \right)_{cr} = s^2(\mu + \mu')^2 \frac{gD}{\mu} \frac{d\rho}{d\sigma} \frac{dw_e}{d\sigma} \quad (18)$$

注意式 (18) 的等号右侧仅仅只是酒精浓度  $w_e$  的函数, 因为  $\rho, \mu, D$  和  $d\rho/d\sigma$  都是  $w_e$  的函数. 式 (18) 表明, 对于低黏性的扩散受限失稳来说, 存在一个临界浓度梯度, 只要大于此梯度, 流动就会失稳. 并且

该临界浓度梯度仅仅只是酒精浓度  $w_e$  的函数, 与液滴大小无关. 图 8(a) 的结果可以根据式 (18) 重新画出, 如图 8(c). 可见, 该临界梯度的确很好地分割了稳定与不稳定的流动状态. 并且, 图 9(c) 也可以很好地解释为什么图 8(a) 中部分稳定与失稳的数据点是重合的: 在  $dw_e/dy$  约为 10 与 20  $m^{-1}$  时, 处于酒精浓度更高位置处的液滴流动稳定, 而处于酒精浓度更低位置处的液滴流动不稳定.

图 9 展示了一个茴香油液滴在扩散受限失稳模式下的下降过程<sup>[37]</sup>. 图片的右半边为速度场, 左半边为阴影法拍得的图片. 阴影法图片中, 较亮的区域代表酒精浓度较高, 而较暗的区域代表酒精浓度较低. 茴香油液滴的黏性为 2.42 cSt, 小于 5 cSt 硅油, 因此其失稳属于扩散受限失稳. 从图 9 中可以看到, 在液滴下沉的初始阶段 (8.2 s), 液滴周围有一层浓度几乎均匀的流体层, 这是因为过强的马兰戈尼对流将该流体层内的浓度搅拌均匀. 之后的下降过程中, 由于扩散的影响, 该流体层逐渐变薄 (34.6 s), 直到消失, 此时液滴重新感受到外界浓度梯度, 马兰戈尼流动重启 (58.6 s), 液滴开始上升 (59.1 s). 图 9 展示了扩散受限失稳的典型特征——扩散太弱, 不足以在液滴周围维持一个稳定的浓度梯度.

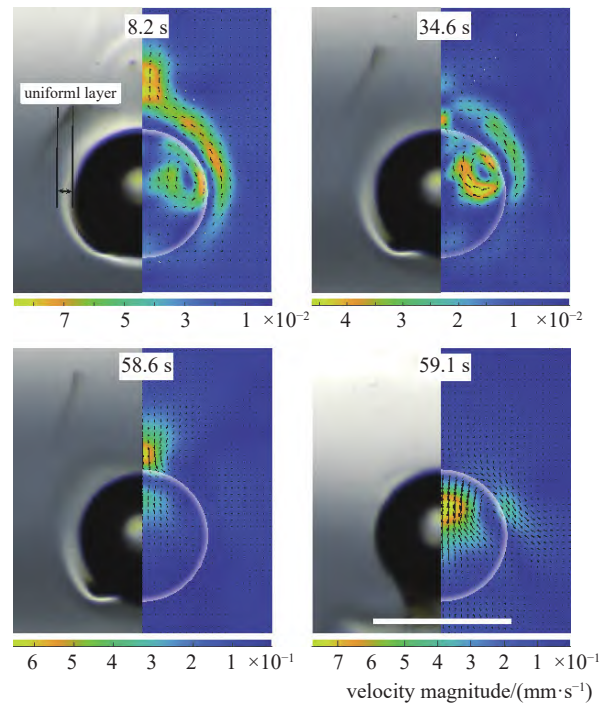


图 9 茴香油液滴在水-酒精形成的稳定密度梯度内下降的过程<sup>[37]</sup>. 比例尺为 1 mm

Fig. 9 Snapshots of a trans-Anethole drop sinking in the stratified ethanol-water mixture<sup>[37]</sup>. The scale bar is 1 mm

2.2 液滴黏性非常大的情形

液滴黏性非常大时,  $\delta > R$ , 此时式 (11) 退化成

$$-\mu \nabla^2 \mathbf{u}|_{r=R, \theta=90^\circ} \sim \mu \frac{V_M}{R^2} \quad (19)$$

这是液滴表面液体受到的向下的黏性剪切力. 由于黏性很大, 马兰戈尼对流很弱, 扩散不再是受限因素, 黏性反而成为了受限因素, 如下文所述. 此时, 由于边界层厚度较大, 边界层内的液体受力并不均匀, 不能作为一个整体进行分析. 但是, 仍然可以对紧挨着液滴的一液体薄层进行受力分析, 如图 10 中红色虚线所示. 黑色实线表示速度边界层的位置. 红色虚线内的液体薄层受到向下的黏性剪切力  $F_1 \sim \mu V_M/R^2$  与向上的浮力  $F_2 \sim -gR \cdot d\rho/dy$ , 以及外层液体对其施加的向上的黏性剪切力  $F_3$ . 当流动稳定时, 有  $F_1 = F_2 + F_3$ . 由于  $F_1 > 0$ , 那么  $F_1 > F_2$ . 但是,  $F_1 \sim O(1/R)$  并且  $F_2 \sim O(R)$ , 也就是说, 只要液滴半径足够大, 就一定有  $F_1 < F_2$ , 也就是说, 对于黏性受限失稳来说, 的确存在一个临界液滴半径, 大于此半径的液滴一定会失使流动失稳. 此时, 液滴表面液体薄层所受到的黏性剪切力不足以克服其自身浮力, 因此称之为黏性受限失稳. 将  $F_1$  和  $F_2$  的定义代入上式, 可得黏性受限失稳的判据

$$Ra/Ma > c \quad (20)$$

其中,  $c$  是待定常数.

图 11(a) 所示为 100 cSt 黏性的硅油液滴在稳定的酒精浓度梯度内的结果<sup>[38]</sup>. 由图 11(b) 可见, 该黏性的硅油液滴的失稳形式的确为黏性受限失稳. 并且由式 (20) 可得失稳常数为  $c \approx 0.0177$ . 将式 (15) 及式 (17) 代入式 (20), 可得

$$R > R_{cr} = \sqrt{c \frac{\mu}{\mu + \mu'} \frac{d\sigma}{d\rho} \frac{1}{g}} \quad (21)$$

也就是说, 对于黏性受限失稳, 的确存在一个临界液

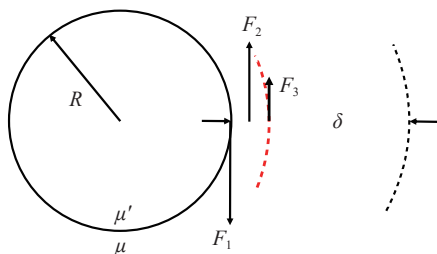
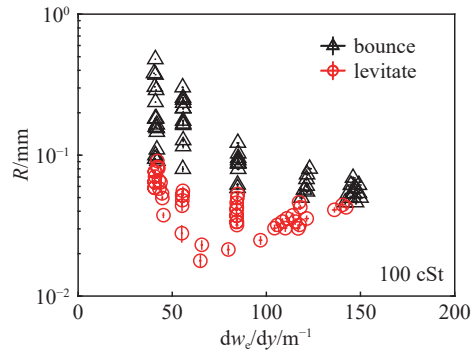
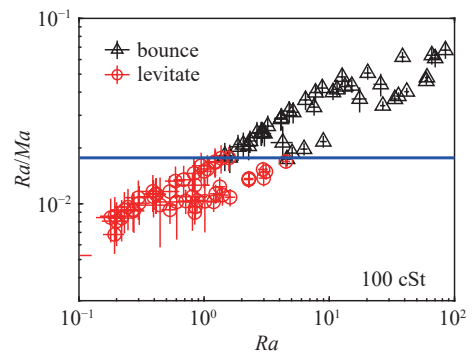


图 10  $\delta > R$  时液滴表面流体受力

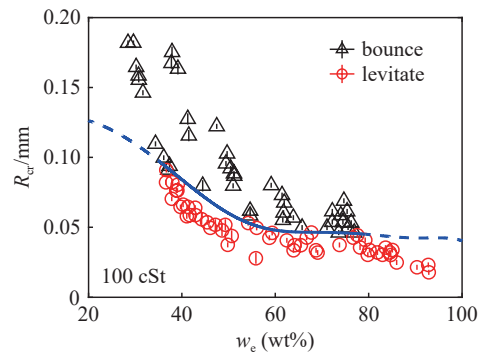
Fig. 10 The force balance on the liquid close to the drop when  $\delta > R$



(a) 100 cSt 硅油液滴的弹跳/悬停结果  
(a) Levitating/bouncing drops of 100 cSt drops



(b) 在  $Ra/Ma$  vs.  $Ra$  相图中 100 cSt 液滴的结果  
(b) Results of 100 cSt drops plotted in  $Ra/Ma$  vs.  $Ra$



(c) 临界液滴半径  $R_{cr}$  随酒精浓度的变化  
(c) The critical radius  $R_{cr}$  as a function of ethanol weight fraction  $w_e$

图 11 黏性为 100 cSt 的硅油液滴在稳定密度梯度内的弹跳/悬停结果<sup>[38]</sup>

Fig. 11 Levitating/bouncing drops of viscosity 100 cSt immersed in stably stratified ethanol-water mixture<sup>[38]</sup>

滴半径, 大于此半径的液滴一定会失稳, 并且此临界半径仅仅是酒精浓度  $w_e$  的函数, 而与浓度梯度无关, 因为  $dw_e/dy$  未出现在式 (11) 中. 图 11(c) 展示了该临界液滴半径  $R_{cr}$  随酒精浓度  $w_e$  变化的函数. 与扩散受限失稳不同的是, 黏性受限失稳时流动的具体形式还未有相关研究.

2.3 液滴黏性为中间值的情形

当液滴黏性取某些中间值时, 有可能产生边界



层厚度  $\delta$  与液滴半径  $R$  接近的情形. 但是,  $R$  是独立参数, 并且增加  $R$  会导致雷诺数增加, 进而减小  $\delta$ . 因此, 当液滴半径很小时, 会有  $\delta > R$ , 流动是黏性受限失稳. 而当液滴半径很大时, 会有  $\delta < R$ , 此时流动是扩散受限失稳. 而当  $\delta \sim R$  时, 失稳的方式是某种中间状态. 实验发现, 当硅油黏性为 20 cSt 时, 符合此中间状态, 见图 12<sup>[38]</sup>.

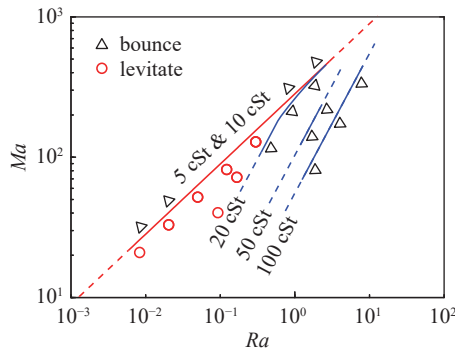


图 12 不同黏性液滴流动失稳的临界条件<sup>[38]</sup>

Fig. 12 Marangoni instability thresholds for drops of different viscosities<sup>[38]</sup>

最后, 不同黏性液滴的失稳判据全部画在了图 12 中<sup>[38]</sup>. 其中, 5 cSt 与 10 cSt 黏性的液滴是扩散受限失稳, 并且其失稳常数  $s$  在实验的精度内不可区分. 扩散受限失稳的临界值由红色实线表示, 在该线上方, 流动会失稳. 50 cSt 与 100 cSt 黏性的液滴是黏性受限失稳, 由蓝色实线表示, 其失稳常数  $c$  分别为 0.0095 与 0.0177. 在蓝色实线下方, 流动会失稳. 20 cSt 黏性的液滴则属于中间状态: 当液滴很小时, 是黏性受限失稳, 其失稳常数  $c$  为 0.003; 当液滴很大时, 为扩散受限失稳, 其失稳常数  $s$  约为 275; 当液滴尺寸适中时, 失稳模式处于中间状态.

值得注意的是, 在图 12 中, 只有实线是经过实验检验的结果. 实验中无法观察到太小的液滴, 这对应于图中瑞利数较小时的虚线. 当液滴太大时, 流动所影响到的流场范围会大于盛放溶液的容器大小, 进而引入壁面效应, 这对应于瑞利数较大时的虚线. 关于容器大小的影响, 将在第 3 节中讨论. 在此之前, 我们先考查一下当浓度梯度换为温度梯度时, 浸没在其中的气泡表面的流动及其失稳形式.

#### 2.4 稳定温度梯度中的气泡

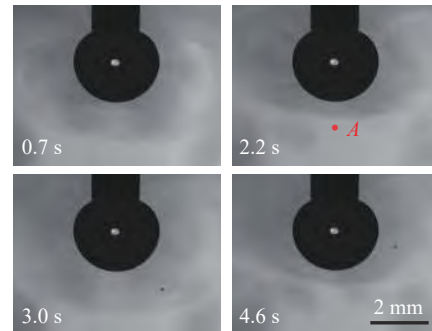
对于处在稳定温度梯度中的气泡, 与浓度梯度不同的是, 气泡并非绝热的, 存在跨过气泡界面的传热. 在理想情况下<sup>[41]</sup>, 气泡周围的温度场为

$$T = T_0 + \frac{dT}{dy} \left( r + \frac{1 - k'/k R^3}{2 + k'/k r^2} \right) \cos \theta \quad (22)$$

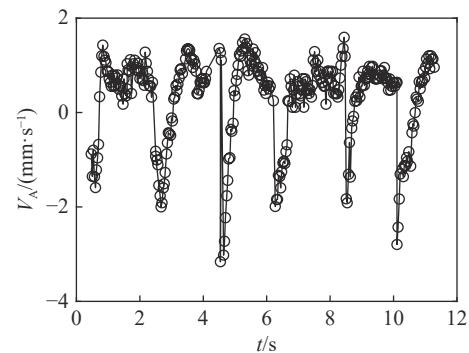
其中,  $T_0$  为参考温度,  $k'$  与  $k$  分别为气泡内气体以及气泡外流体的热导率. 对于浸没在水中的空气泡来说,  $k' \approx 25.87 \text{ mW}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ,  $k \approx 598.03 \text{ mW}/(\text{m}\cdot\text{K})$ , 空气与水的导热率比值为  $k'/k < 0.05$ , 可以忽略不计. 此时, 上式退化成

$$T = T_0 + \frac{dT}{dy} \left( r + \frac{1}{2} \frac{R^3}{r^2} \right) \cos \theta \quad (23)$$

这与浓度场的式 (5) 完全等价. 在这种情况下, 稳定温度梯度内球形气泡周围的流动, 与稳定浓度梯度中不互溶液滴周围的流动完全等价. 只不过此时气泡内空气的黏性比液滴的黏性小很多. 因此, 气泡表面的流动最有可能发生扩散受限失稳. 实验发现, 当一个半径  $R \approx 1.6 \text{ mm}$  的气泡被针尖固定在  $3.2 \text{ K}/\text{mm}$  的稳定温度梯度中时, 其表面的马兰戈尼流动已经发生振荡型失稳<sup>[39]</sup>, 如图 13. 其失稳模式



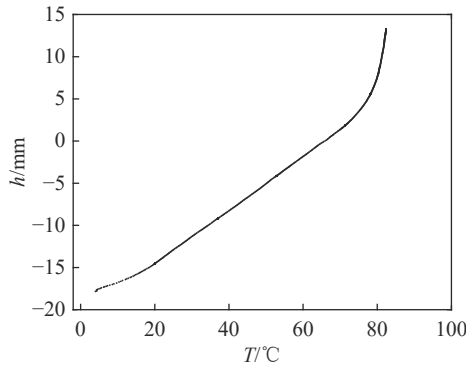
(a) 由针尖固定的气泡在具有稳定温度梯度的水中. 顶部的热水加有少量染色剂以显示流动  
(a) A bubble held by a needle is immersed in water with a stable temperature gradient. Hot water at the top was dyed to show the flow



(b) 气泡下方 A 点处的速度随时间的变化  
(b) Velocity of point A below the bubble as a function of time

图 13 由针尖固定的气泡在具有稳定温度梯度的水中产生振荡性的界面流动<sup>[39]</sup>

Fig. 13 A bubble held by a needle is immersed in water with a stable temperature gradient, the flow around the bubble is oscillatory<sup>[39]</sup>



(c) 水温随高度的分布. 气泡中心在  $h = 0$  mm 处  
(c) Water temperature as a function of height. The center of the bubble is at  $h = 0$  mm

图 13 由针尖固定的气泡在具有稳定温度梯度的水中产生振荡性的界面流动<sup>[39]</sup> (续)

Fig. 13 A bubble held by a needle is immersed in water with a stable temperature gradient, the flow around the bubble is oscillatory<sup>[39]</sup> (continued)

的确是扩散受限失稳. 值得注意的是, 一些工业应用<sup>[14,44-45]</sup> 涉及到的稳定温度梯度要大于 3.2 K/mm. 这些应用中界面的流动稳定性可能需要重新评估.

### 3 流场范围受到限制的影响

回顾理想情况下液滴周围的流场, 见第 1 节. 式 (2) 表明, 在  $\theta = 90^\circ$  的赤道平面上, 只有当  $r \rightarrow \infty$  时,  $u_\theta$  才等于零. 也就是说, 在理想情况下, 液滴表面的马兰戈尼流动所影响到的流场范围  $\mathcal{L}$  是无限大的. 只有稳定密度梯度  $d\rho/dy$  不为 0,  $\mathcal{L}$  才有可能成为有限值<sup>[46]</sup>. 之前的研究结果<sup>[47-48]</sup> 表明

$$\mathcal{L} \sim \left( -\frac{d\rho}{dy} \frac{\mu D}{g} \right)^{-\frac{1}{4}} \quad (24)$$

上式说明密度梯度越小, 流场所影响到的范围越大. 如图 14 所示. 液滴浸没在具有稳定密度的液体中. 稳定密度梯度液体置于一正方体容器中, 其边长为  $L$ . 虚线框内的红色阴影区域代表液滴表面马兰戈尼流动的速度边界层, 而点划线代表流动所影响到的范围  $\mathcal{L}$ . 在  $\mathcal{L}$  范围外, 流场没有受到流动的任何影响, 因此其等密度线仍然是水平的, 如图 14(a) 中黑色实线所示. 在与液滴同高度的壁面附近, 液体的密度为  $\rho^*$ . 边界层液体受到的浮力为  $g\Delta\rho = g(\rho^* - \rho)$ . 在  $\mathcal{L}$  范围内, 流场受到流动的影响, 其等密度线主要会向下偏折 (因为马兰戈尼流动向下), 这里用黑色虚线表示. 而当容器尺寸  $L$  小于流场范围  $\mathcal{L}$  时, 流场受限, 流动会受到容器大小的影响, 如图 14(b)

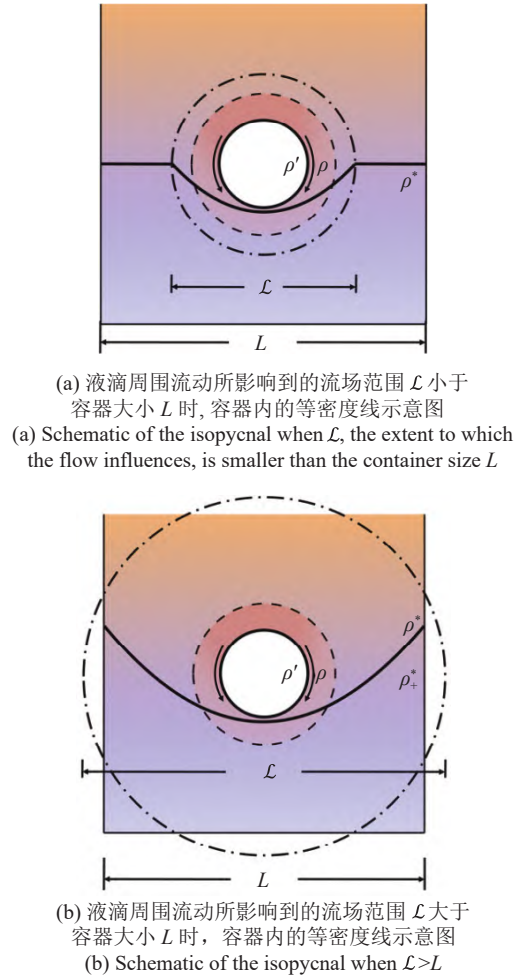


图 14 稳定密度梯度中等密度线的示意图  
Fig. 14 Schematics of the isopycnal in the stratified liquid

所示. 此时即使容器壁面附近的流体也会受到流动的影响. 因为马兰戈尼流动向下, 液滴会将其下方的液体向下推. 由质量守恒, 容器壁面附近的液体则会向上流动, 因此等密度线两端会向上翘起, 如图中黑色实线所示. 在与液滴同高度的壁面附近, 液体的密度增加至  $\rho_+^*$ , 此时边界层内液体受到的浮力变为  $g\Delta\rho_+ = g(\rho_+^* - \rho)$ . 因为  $\rho_+^* > \rho^*$ , 所以  $\Delta\rho_+ > \Delta\rho$ , 也即在空间受限的情况下, 重力项的影响被放大了. 这会导致相应的瑞利数增加. 由式 (24) 可知, 不仅减小容器尺寸  $L$  会使得流场受限, 通过减小稳定密度梯度的强度, 也会使流场受限.

如果将上述分析中的液滴换为一竖直的流体界面, 其流动形式与液滴的情况相似, 流动空间受限时重力的影响仍然会被放大. 更一般地, 只要流体界面有竖直分量, 那么其界面流动在空间受限的影响下就会将重力的影响放大. 具有竖直分量的流体界面的形式可以是本文中分析的球形, 也可以是竖直液

柱, 或者倾斜平板上的薄液膜.

值得注意的是, 以上的分析对涉及稳定密度的流动来说具有一定的普适性. 而具体到本文所述的液滴动力学这个问题, 以扩散受限失稳 ( $Ma/Ra^{1/2} > s$ ) 为例, 流场受限会导致瑞利数增加, 进而导致临界失稳参数  $s$  减小. 通过改变容器尺寸  $L$  与稳定密度梯度的大小, 实验测得的  $s$  值的变化如图 15 所示. 实验证实了前述分析: 不论是减小容器大小  $L$ , 还是减小密度梯度, 都会导致流场受限, 进而使得失稳常数  $s$  减小. 由此可见, 容器越小, 或者密度梯度越小, 流场受限越严重, 重力对流动的影响也就越强. 这与通常的认识<sup>[33]</sup> 相反. 因此, 在稳定密度梯度中, 当流体界面有竖直方向的分量时, 一些空间狭小情形下的流动及其稳定性可能需要重新评估. 典型的例子是微流控系统中气泡或液滴表面的振荡性流动<sup>[42]</sup>.

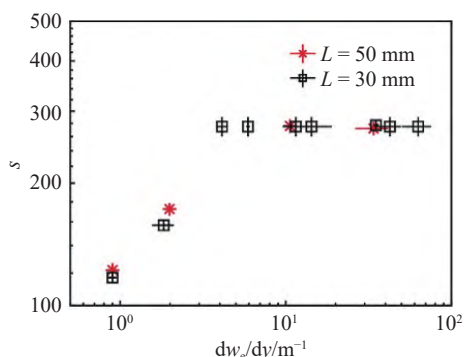


图 15 扩散受限失稳的失稳常数  $s$  随浓度梯度及容器大小的变化  
Fig. 15 How the instability criterion  $s$  in diffusion-limited instability varies with the concentration gradient and the container size

## 4 总结与展望

本文综述了稳定密度梯度内球形界面上流动不稳定性的研究进展. 从理想情况——即不考虑密度梯度与对流, 并且假设界面张力梯度为线性——出发, 回顾了流动稳定时的流场. 在此基础上, 回顾了非理想情况下稳定流场的变化. 之后以稳定的流场为基态, 回顾了稳定密度梯度中浸没球形界面上的流动不稳定性. 该系统有两种流动失稳形式——扩散受限失稳与黏性受限失稳. 前者的失稳是由于马兰戈尼对流太强, 使得扩散无法维持稳定的浓度场所导致; 而后的失稳是由于黏性剪切力太弱, 无法维持稳定的速度边界层所导致. 最后考察了流场受限对该流动不稳定性的影响: 当容器过小或密度梯度很小时, 流场受限, 重力的作用被放大, 该系统中

原本稳定的流动会变得不稳定.

当前的研究也指出了下一步的研究方向. 本文就此对稳定密度梯度中球形界面流动不稳定性的研究作出如下展望.

(1) 黏性受限失稳的具体失稳形式还有待探究.

(2) 稳定密度梯度内, 其他界面构型的流动及其稳定性受流体物理性质以及容器大小的影响还有待进一步研究. 比如, 稳定密度梯度中竖直液柱的自由表面, 或者倾斜平板上薄液膜的自由表面——它们的界面都具有竖直方向上的分量, 并且它们的流场空间本身就是受限的.

(3) 跨界面的传热/传质不可忽略的情况还有待进一步研究, 比如浸没于稳定温度梯度内的液滴或气泡 (有跨界面的传热), 或者浸没于稳定浓度梯度内的可溶液滴 (有跨界面的传质).

## 参 考 文 献

- 1 Scriven LE, Sternling CV. The Marangoni effects. *Nature (London)*, 1960, 187(4733): 186
- 2 Pearson J. On convection cells induced by surface tension. *Journal of Fluid Mechanics*, 1958, 4(5): 489-500
- 3 吴笛, 张洋, 段俐等. Bénard-Marangoni 对流温度振荡转捩实验研究. *力学学报*. 2011, 43(6): 1054-1060 (Wu Di, Zhang Yang, Duan Li, et al. Experimental investigation of the transition of temperature oscillation in Bénard-Marangoni convection. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 2011, 43(6): 1054-1060 (in Chinese))
- 4 Sternling C, Scriven L. Interfacial turbulence: Hydrodynamic instability and the Marangoni effect. *AIChE Journal*, 1959, 5(4): 514-523
- 5 Grootuis H, Zuiderweg F. Influence of mass transfer on coalescence of drops. *Chemical Engineering Science*, 1960, 12(4): 288-289
- 6 Rother MA, Davis RH. The effect of slight deformation on thermocapillary-driven droplet coalescence and growth. *Journal of Colloid and Interface Science*, 1999, 214(2): 297-318
- 7 Berejnov V, Leshansky A, Lavrenteva O, et al. Spontaneous thermocapillary interaction of drops: Effect of surface deformation at nonzero capillary number. *Physics of Fluids*, 2002, 14(4): 1326-1339
- 8 Jain A, Verma KK. Recent advances in applications of single-drop microextraction: A review. *Analytica Chimica Acta*, 2011, 706(1): 37-65
- 9 Yarin A. Surface-tension-driven flows at low Reynolds number arising in optoelectronic technology. *Journal of Fluid Mechanics*, 1995, 286: 173-200
- 10 Demekhin EA, Kalliadasis S, Velarde MG. Suppressing falling film instabilities by Marangoni forces. *Physics of Fluids*, 2006, 18(4): 042111
- 11 Gupta AK, Saxena BK, Tiwari SN, et al. Pore formation in cast metals and alloys. *Journal of Materials Science*, 1992, 27(4): 853-862
- 12 Ratke L. Theoretical considerations and experiments on microstruc-



- tural stability regimes in monotectic alloys. *Materials Science and Engineering: A*, 2005, 413: 504-508
- 13 Zhang LF. Indirect methods of detecting and evaluating inclusions in steel — A review. *Journal of Iron and Steel Research International*, 2006, 13(4): 1-8
- 14 Schwabe D, Scharmann A, Preisser F, et al. Experiments on surface tension driven flow in floating zone melting. *Journal of Crystal Growth*, 1978, 43(3): 305-312
- 15 Schwabe D, Scharmann A. Some evidence for the existence and magnitude of a critical Marangoni number for the onset of oscillatory flow in crystal growth melts. *Journal of Crystal Growth*, 1979, 46(1): 125-131
- 16 Chang CE, Wilcox WR, Lefever RA. Thermocapillary convection in floating zone melting: Influence of zone geometry and Prandtl number at zero gravity. *Materials Research Bulletin*, 1979, 14(4): 527-536
- 17 Chun CH, Wuest W. Experiments on the transition from the steady to the oscillatory Marangoni-convection of a floating zone under reduced gravity effect. *Acta Astronautica*, 1979, 6(9): 1073-1082
- 18 Schwabe D, Scharmann A, Preisser F. Studies of Marangoni convection in floating zones. *Acta Astronautica*, 1982, 9(3): 183-186
- 19 Preisser F, Schwabe D, Scharmann A. Steady and oscillatory thermocapillary convection in liquid columns with free cylindrical surface. *Journal of Fluid Mechanics*, 1983, 126: 545-567
- 20 Kamotani Y, Ostrach S, Vargas M. Oscillatory thermocapillary convection in a simulated floating-zone configuration. *Journal of Crystal Growth*, 1984, 66(1): 83-90
- 21 胡文瑞, 游仁然. 浮区 Marangoni 对流的浓度边界条件. *力学学报*, 1993, 25(3): 276-282 (Hu Wenrui, You Renran. Solutal boundary conditions of Marangoni convection in floating zone. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 1993, 25(3): 276-282 (in Chinese))
- 22 刘秋生. 多层流体 Marangoni 对流. *力学学报*, 2002, 34(4): 481-491 (Liu Qiusheng. Marangoni convection in multiple liquid layers. *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, 2002, 34(4): 481-491 (in Chinese))
- 23 Rednikov AY, Ryazantsev YS, Velarde MG. Active drops and drop motions due to nonequilibrium phenomena. *Journal of Non Equilibrium Thermodynamics*, 1994, 19(1): 95-113
- 24 Rednikov AY, Ryazantsev YS, Velarde MG. Drop motion with surfactant transfer in a homogeneous surrounding. *Physics of Fluids*, 1994, 6(2): 451-468
- 25 Herminghaus S, Maass CC, Krüger C, et al. Interfacial mechanisms in active emulsions. *Soft Matter*, 2014, 10(36): 7008-7022
- 26 Yoshinaga N. Spontaneous motion and deformation of a self-propelled droplet. *Physical Review E*, 2014, 89(1): 012913
- 27 Ryazantsev YS, Velarde MG, Rubio RG, et al. Thermo-and soluto-capillarity: Passive and active drops. *Advances in Colloid and Interface Science*, 2017, 247: 52-80
- 28 Maass CC, Krüger C, Herminghaus S, et al. Swimming droplets. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 2016, 7: 171-193
- 29 Morozov M, Michelin S. Self-propulsion near the onset of Marangoni instability of deformable active droplets. *Journal of Fluid Mechanics*, 2019, 860: 711-738
- 30 Lohse D, Zhang X. Physicochemical hydrodynamics of droplets out of equilibrium. *Nature Reviews Physics*, 2020, 2: 426-443
- 31 Degner B, Olson K, Rose D, et al. Influence of freezing rate variation on the microstructure and physicochemical properties of food emulsions. *Journal of Food Engineering*, 2013, 119(2): 244-253
- 32 Degner BM, Chung C, Schlegel V, et al. Factors influencing the freeze-thaw stability of emulsion-based foods. *Comprehensive Reviews in Food Science and Food Safety*, 2014, 13(2): 98-113
- 33 Nepomnyashchy A, Legros JC, Simanovskii I. *Interfacial Convection in Multilayer Systems*. Springer, 2012
- 34 Edwards AMJ, Atkinson PS, Cheung CS, et al. Density-driven flows in evaporating binary liquid droplets. *Physical Review Letters*, 2018, 121(18): 184501
- 35 Li Y, Diddens C, Lyu P, et al. Gravitational effect in evaporating binary microdroplets. *Physical Review Letters*, 2019, 122(11): 114501
- 36 Diddens C, Li Y, Lohse D. Competing Marangoni and Rayleigh convection in evaporating binary droplets. *Journal of Fluid Mechanics*, 2021, 914: A23
- 37 Li Y, Diddens C, Prosperetti A, et al. Bouncing oil droplet in a stratified liquid and its sudden death. *Physical Review Letters*, 2019, 122(15): 154502
- 38 Li Y, Meijer JG, Lohse D. Marangoni instabilities of drops of different viscosities in stratified liquids. *Journal of Fluid Mechanics*, 2022, 932: A11
- 39 Li Y, Diddens C, Prosperetti A, et al. Marangoni instability of a drop in a stably stratified liquid. *Physical Review Letters*, 2021, 126(12): 124502
- 40 Blanchette F, Shapiro AM. Drops settling in sharp stratification with and without Marangoni effects. *Physics of Fluids*, 2012, 24(4): 042104
- 41 Young NO, Goldstein JS, Block MJ. The motion of bubbles in a vertical temperature gradient. *Journal of Fluid Mechanics*, 1959, 6(3): 350-356
- 42 Bratsun D, Kostarev K, Mizev A, et al. Adaptive micromixer based on the solutocapillary Marangoni effect in a continuous-flow microreactor. *Micromachines*, 2018, 9(11): 600
- 43 Schlichting H, Gersten K. *Boundary-Layer Theory*. Springer, 2016
- 44 Dedovets D, Monteux C, Deville S. Five-dimensional imaging of freezing emulsions with solute effects. *Science*, 2018, 360(6386): 303-306
- 45 Ratke L, Müller A. On the destabilisation of fibrous growth in monotectic alloys. *Scripta Materialia*, 2006, 54(6): 1217-1220
- 46 Blanchette F, Peacock T, Cousin R. Stability of a stratified fluid with a vertically moving sidewall. *Journal of Fluid Mechanics*, 2008, 609: 305-317
- 47 Phillips O. On flows induced by diffusion in a stably stratified fluid. *Deep Sea Research and Oceanographic Abstracts*, 1970, 17(3): 435-443
- 48 Wunsch C. On oceanic boundary mixing. *Deep Sea Research and Oceanographic Abstracts*, 1970, 17(2): 293-301