



CSTAM 2012-B03-0153

表面粗糙度对混有荧光粒子的液滴蒸发过程及接触角的影响

金华翔，金哲岩，杨志刚

同济大学航空航天与力学学院

同济大学汽车学院

上海地面交通工具风洞中心

第七届全国流体力学学术会议

2012年11月12—14日 广西·桂林

表面粗糙度对混有荧光粒子的液滴蒸发过程及接触角的影响

金华翔*, 金哲岩^{*,2}, 杨志刚⁺

* (同济大学航空航天与力学学院, 上海市四平路 1239 号, 邮编 200092)

+ (同济大学汽车学院, 上海市嘉定区曹安公路 4800 号, 邮编 201804)

+ (上海地面交通工具风洞中心, 上海市嘉定区曹安公路 4800 号, 邮编 201804)

摘要 如今,液滴已被广泛地应用于打印机、微型泵等微流体领域,但是与液滴相关的众多现象,如马兰格尼效应、接触角和蒸发过程等,过去的研究并不充分。本文详细研究了接触面的不同表面粗糙度对液滴蒸发过程及接触角的影响,具体为通过采用粒子图像测速技术,获得了液滴中间平面的粒子图像,计算了不同接触面粗糙度条件下混有荧光粒子的液滴无量纲体积与接触角随时间的变化曲线。

关键词 液滴; 无量纲体积; 接触角; 表面粗糙度

引 言

液滴目前被广泛地应用在 DNA 分子显像,自净吸附材料及喷墨打印等微流体领域。然而,在与液滴微纳米尺度相关的诸多现象上,如马兰格尼效应、蒸发过程、液滴与固体表面的接触角等方面的研究进行的并不充分。液滴内部的液体流动对整体输运现象起着重要的作用,研究者们对此已经达成了共识并进行着大量的研究。

在马兰戈尼效应方面, Savino 和 Fico 等人^[1,2]采用实验和数值模拟的方法研究了马兰戈尼效果和浮力对悬挂液滴的影响。悬挂着液滴的接触面的温度被突然增加或降低以研究瞬时的加热和冷却过程。他们对具有不同粘性的硅油的研究表明,马兰戈尼效果对液滴内的速度和温度分布影响较大。Ristenpart 等人^[3]通过理论和实验的方式研究了马兰戈尼热流动并建立了一套标准来界定它的影响,并发现回流的方向取决于接触角与平板和液体热传导系数的比率两个因素。

在液滴蒸发方面, Zhang 和 Yang^[4]观察了不同液滴蒸发时的界面特征,并分为三大种类:

蒸发时液滴界面保持平稳成圆形的为稳定型

(如环己烷、四氯化碳),蒸发时产生巨大波动并且界面呈现锯齿状的为不稳定型(如甲醇、酒精),而介于两者中间的是次稳定型(如乙酸乙酯、二氯甲烷),他们进一步指出拥有较大马兰戈尼数和介电常数的液滴更容易导致不稳定型蒸发。Hegseth 等人^[5]对室温下悬挂的甲醇液滴的自然对流进行了观察,并指出在足够快的蒸发条件下,液滴内部存在着由表面张力引起的随机剧烈流动,同时蒸发时的马兰戈尼不稳定所引起的强烈对流又使液滴趋于一种临界稳定的状态。Uno 等人^[6]研究了液滴中胶质悬浮颗粒在不同表面(亲水与憎水表面)下沉积的情况。研究表明在亲水性表面,蒸发过程一般保持接触面积不变,在接触边界的轮廓上容易产生一层薄的颗粒聚集,聚集层快速蒸发后就形成“边缘”状的沉积类型。而在憎水性表面,接触表面一般是不断缩小的,虽然这种缩小的趋势会受到边缘沉积颗粒的阻挡,但随蒸发的进行缩小的趋势会更占优势,随着液滴体积的减小使大量颗粒集中在中心的一个区域,最后液滴蒸发后形成一个点状的沉积。他们指

1) 资金资助项目(第 42 批教育部回国人员科研启动基金)

2) 联系作者 Email: zheyangjin@tongji.edu.cn

出薄聚集层的形成是产生何种沉淀的关键，这与液滴内部的液体流动是分不开的。王晓东等人^[7]观察了5微升小水滴在铜、铝和不锈钢表明上的蒸发与核化过程，并测量了液滴高度、湿润半径和接触角随时间的动态演化。倪培永等人^[8]采用单液滴非平衡蒸发的数学物理模型，研究了静止环境中甲醇液滴的瞬态蒸发特性。

在有关接触角方面，研究人员发现两类普遍的蒸发行为：恒接触角与恒接触面积。根据Erbil等人^[9,10]的结论，这种行为与初始接触角的关系最为密切，如果初始接触角小于 90° ，在整个的蒸发过程中接触区间的面积会基本保持不变，并且蒸发过程基本保持线性，它遵循一种叫Spherical Cap的理论，大多数的蒸发都属于这种类型。如果初接触角大于 90° ，随着蒸发的进行，接触区域会持续收缩，而接触角保持不变，少数的一些蒸发属于这种情况，如水滴在有机表面蒸发时的情况。DeSimone等人^[11]为解释粗糙表面上液滴接触角的滞后现象，建立了以表面粗糙度为函数的接触角方程。

此外，人们对于液滴内部流体的运动现象也进行了一定的研究。Hu和Larson^[12]对出现马兰戈尼应力的蒸发液滴内的速度场提出了一个润滑理论。他们指出，在热传导路径长度上的不均匀会在大接触角时产生一个正的马兰戈尼数并形成向内的径向流动，而在蒸发率上的不均匀导致一个负的马兰戈尼数并形成向外的径向流动。Savino和Monti^[13]是用数值模拟的方法研究了稳态悬浮液滴的液体流动。最近，Kang等人^[14,15]基于光路追踪法提出了一个速度校正方法以克服因为液滴的曲面而产生的图像扭曲并研究了不同酒精浓度下液滴内部的流动特征。金哲岩和胡晖^[16]研究了接触面温度对表面蒸发液滴的接触角和无量纲体积变化的影响。

尽管研究人员针对液滴进行了大量的研究^[1-15]，但他们并未探讨接触面粗糙度对混有荧光粒子的液滴蒸发过程和接触角的影响，因而本文主要针对这方面开展实验研究。在本项研究中，通过采用不同目数的砂纸（200#、600#和1000#）对实验铜板进行打磨，以获得四种不同粗糙度的实验板（其中一块为光滑平板），并通过采用粒子图像测速技术获得了液滴中间平

面的粒子图像，并分析了不同接触面粗糙度对液滴无量纲体积、接触角的影响。

实验装置

在本项研究中，液滴的制备过程如下：首先将0.01g荧光粒子（ $D \approx 6\mu\text{m}$ ）、13mL去离子水和 $150\mu\text{l}$ 乙醇混合在试管内，然后使用XW-80A漩涡混合器将溶液混合搅拌3min，再使用KQ-50E超声机振荡溶液5min，最后将溶液密封并静止15min，选取试管中部的清液加入至注射器，以备使用。

本项研究选用 $50\text{mm} \times 50\text{mm} \times 1.5\text{mm}$ 红铜铜板4块，其中三块分别以200#、600#和1000#砂纸单向打磨500次以上，另外一块未经打磨（Ra值分别为 $0.2\mu\text{m}$ 、 $0.4\mu\text{m}$ 、 $0.5\mu\text{m}$ 和 $1.16\mu\text{m}$ ）。在清洗制备好的铜板时，需要将铜板依次在丙酮、乙醇及去离子水中进行超声清洗，时间分别为6分钟、30分钟和40分钟。

本项研究所用的实验装置如图1所示：首先，注射器产生体积约为 $8\mu\text{L}$ 的液滴，并从实验铜板上方2.5cm处滴落。实验板为红铜板，且以导热胶与恒温水域装置（AC 150-A25, Thermo Scientific）相连，水浴装置用来调节铜板即液滴接触面的温度。Nd:Yag激光器（New Wave）所发射的波长为532nm的激光，在经过光学狭缝后形成了一个宽度为 $600\mu\text{m}$ 的激光片光，激发液滴中的荧光粒子，并通过CCD照相机（Sensicam QE, Cooke）拍摄呈像。数字延迟发生器（BNC 575-8C）用以控制激光照明和照相机图像采集的频率和同步性。

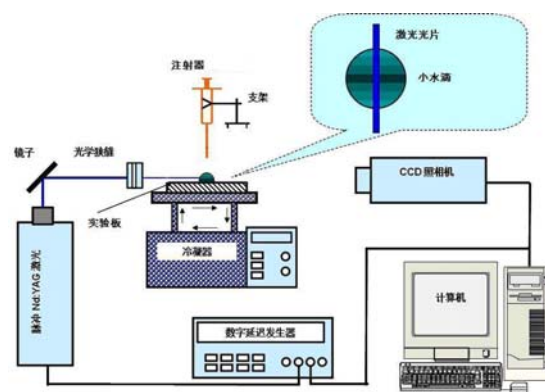


图1 实验装置图

1) 资金资助项目（第42批教育部回国人员科研启动基金）
2) 联系作者 Email: zheyajin@tongji.edu.cn

液滴接触角和体积的计算

图 2 表示的为如何利用液滴的尺寸计算液滴接触角 θ ，接触面积 S_g 和体积 V ，此时假设液滴的外表面是球面的一部分。

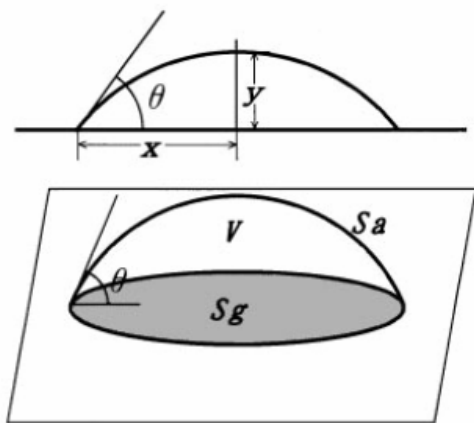


图 2 液滴尺寸图

接触角 θ ，接触面积 S_g 和体积 V 的计算公式如方程 1-3 所示：

$$\theta = 2 * \tan^{-1}\left(\frac{y}{x}\right) \quad (1)$$

$$S_g = \pi x^2 \quad (2)$$

$$V = \frac{\pi x^3 (1 - \cos \theta)^2 (2 + \cos \theta)}{3 \sin^3 \theta} \quad (3)$$

由于液滴是由注射器滴到接触面上，每次滴在接触面上的体积不尽相同。为了消除此体积上的区别对蒸发过程研究的影响，本文引入了一个名为无量纲液滴体积的参数。此参数为液滴在蒸发过程中的体积 (V) 与刚落到接触面上的初始体积 (V_0) 之比，如方程 4 所示。

$$V_N = \frac{V}{V_0} \quad (4)$$

因此，不同接触面温度条件下液滴的蒸发过程即可以通过此无量纲液滴体积进行比较。

4. 实验结果与分析

本项研究采用粒子图像测速技术，获得了在四种接触面粗糙度情况下的液滴粒子图像，并通过分析粒子图像，比较了不同接触面温度对液滴无量纲体积以及接触角的影响。在实验过程中，周围空气的温度为 22.5℃，气压为 757mmHg，相对湿度为 72.0%。

图 3 表示液滴落到接触面 3min 后，10 张瞬时液滴中间平面图像的平均图像（接触面的温度为 20.0℃）。将 10 幅图像平均可以方便我们清晰的看到粒子的轨迹。由图 3 可知，液滴左右两侧出现漩涡，由粒子图像仅为液滴的中间平面可知，在整个液滴内部应该形成了一个涡环。需要说明的是，在液滴底部出现的较明亮的局部区域为荧光粒子的沉积造成的。

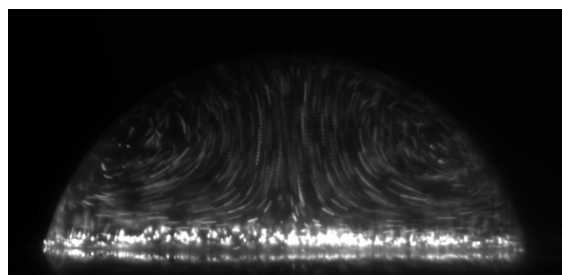


图 3 液滴落在接触面上 3min 后的图像 ($T_w=20.0^\circ\text{C}$)

在液滴滴落到接触面上以后，其无量纲体积随时间的变化关系如图 4 所示。可知，随着蒸发过程的进行，液滴体积逐渐减少。然而，液滴在 $Ra=0.2 \mu\text{m}$ 接触面上的蒸发速率最小，在 12 分钟以后仍剩余初始值的 91%；而在 $Ra=0.4 \mu\text{m}$ 接触面上的蒸发速率最大，在 12 分钟以后仅剩余初始值的 68%；液滴在其他接触面

($Ra=0.5 \mu\text{m}$ 和 $1.12 \mu\text{m}$) 上的蒸发速率处于前二者之间。众所周知，液滴会以两种状态存在于粗糙的接触面上：a). 全部润湿 (Wenzel 模型)；b). 部分润湿 (Cassie and Baxter 模型)^[17]，如图 5 所示。在 $Ra=0.2 \mu\text{m}$ (未经过打磨) 和 $Ra=1.12 \mu\text{m}$ (#200 砂纸打磨) 的接触面上，液滴估计处于全部润湿的状态；而在 $Ra=0.4 \mu\text{m}$ (#1000 砂纸打磨) 和 $Ra=0.5 \mu\text{m}$ (#600 砂纸打磨) 的接触面上，液滴估计处于部分润湿的状态（由于相机的放大倍数不够，无法定量地进行确认），润湿状态的不同可能是影响蒸发速率的一个原因。

1) 资金资助项目 (第 42 批教育部回国人员科研启动基金)

2) 联系作者 Email: zheyajin@tongji.edu.cn

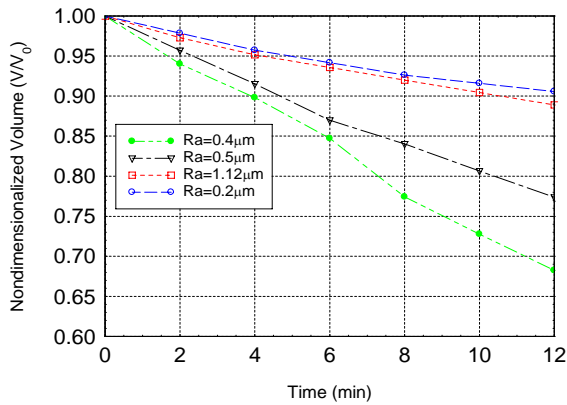


图4 液滴无量纲体积变化曲线

图5 粗糙接触面上液滴的润湿状态

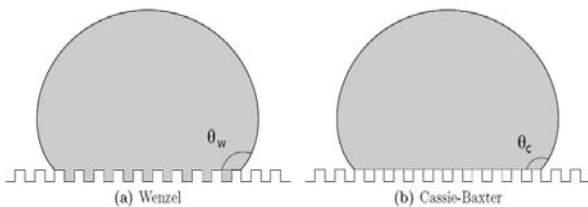


图6所示为在不同接触面粗糙度下，表面液滴接触角变化的情况。可知，在 $Ra=0.2\mu m$ 和 $Ra=1.12\mu m$ 的接触面上，随着蒸发过程的进行，液滴接触角降低但是速度很缓慢；在 $Ra=0.4\mu m$ 和 $Ra=0.5\mu m$ 的接触面上，随着蒸发的进行，液滴接触角降低速度很快；而在 $Ra=0.4\mu m$ 的接触面上，液滴接触角降低的最快。这种差异可能是由于液滴润湿状态的不同所产生的。

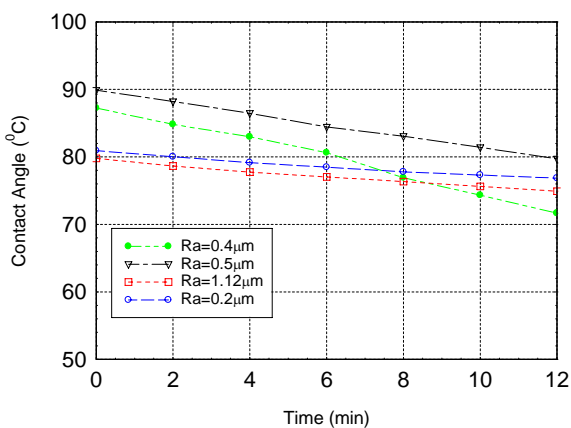


图6 液滴接触角变化曲线

结论

本文通过采用粒子图像测速技术，获得了液滴中间平面的粒子图像，计算了不同接触面粗糙度条件下混有荧光粒子的液滴无量纲体积与接触角随时间的变化曲线。实验结果表明，随着液滴蒸发过程的进行，液滴无量纲体积和接触角都会减少；然而粗糙度的不同会对液滴无量纲体积和接触角的减少速率产生很大的影响，这可能是由于液滴所处的不同润湿状态所引起的。

参考文献

- 1 R. Savino, S. Fico. Transient Marangoni convection in hanging evaporating drops [J]. *Physics of Fluids*, 2004, 16(10):3738-3754.
- 2 F. Nota, R. Savino and S. Fico. The interaction between drops and solidification front in presence of Marangoni effect [J]. *Acta Astronautica*, 2006, 59: 20-31.
- 3 W. D. Ristenpart. Influence of Substrate Conductivity on Circulation Reversal in Evaporating Drops [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(23): 47-55.
- 4 Zhang N, Yang W J. Natural convection in evaporating minute drops[J]. *Heat Transfer*. 1982, 104: 656-662.
- 5 J J Hegseth, N Rashidnia and A Chai. Natural convection in droplet evaporation [J]. *Physical Review E*, 1996, 54(2):193-207.
- 6 Uno K, Hayashi K and Hayashi T *et al*. Particle adsorption in evaporating droplets of polymer latex dispersions on hydrophilic and hydrophobic surfaces [J]. *Colloid Polym. Sci.*, 1998, 276:810-815.
- 7 王晓东, 陆规, 彭晓峰, 张欣欣, 王补宣, 加热板上蒸发液滴动态特性的实验, *航空动力学报*, 2006, 第21卷第6期, 1001-1007
- 8 倪培永, 王忠, 毛攻平, 袁银男, 静止环境中甲醇液滴蒸发的数值模拟, *江苏大学学报*, 2010, 第31卷, 第3期, 269-272
- 9 Erbil H Y, McHale G and Newton M I. Drop evaporation on solid surfaces: constant contact angle mode [J]. *Langmuir*, 2002, 18: 2636 - 2641.

- 10 Erbil H Y, McHale G and Rowan S M *et al.* Analysis of evaporating droplets using ellipsoidal cap geometry [J]. *Adhes. Sci. Technol*, 1999, 13:1375 - 1391.
- 11 Antonio DeSimone, Natalie Grunewaldy and Felix Otto. A New Model for Contact Angle Hysteresis [J]. *American Institute of Mathematical Sciences*. 2003, 9(04): 17-38.
- 12 Hua Hu, Ronald G Larson. Analysis of the Effects of Marangoni Stresses on the Microflow in an Evaporating Sessile Droplet [J]. *Langmuir*, 2005, 21: 3972-3980.
- 13 Savino R, Monti R. Buoyancy and surface-tension-driven convection in hanging-drop protein crystallizer [J]. *Cryst. Growth*, 1996, 165: 308-318.
- 14 K H Kang, S J Lee and C M Lee. 5th International Symposium on Particle Image Velocimetry, Busan, Korea, 2003: 22-27.
- 15 Kwan Hyoung Kang, Sang Joon Lee and Choung Mook Lee *et al.* Quantitative visualization of flow inside an evaporating droplet using the ray tracing method [J]. *Measurement Science and Technology*, 2004, 15: 1104 - 1112.
- 16 金哲岩, 胡晖, 接触面温度对表面液滴蒸发过程的影响, *同济大学学报*, 2012, 第 40 卷, 495-498.
- 17 Vinaykumar Konduru, Static and Dynamic Contact Angle Measurement on Rough Surfaces Using Sessile Drop Profile Analysis with Application to Water Management in Low Temperature Fuel Cells, Master of Science Thesis, 2010, Michigan Technological University.

THE EFFECT OF SURFACE ROUGHNESS ON DROPLET EVAPORATION AND CONTACT ANGLE

JIN Huaxiang¹ JIN Zheyang¹ YANG Zhigang^{2,3}

(1 School of Aerospace Engineering and Applied Mechanics, Tongji University, Shanghai, China, 200092)

(2 School of Automotive Studies, Tongji University, Shanghai, China, 201804)

(3 Shanghai Automotive Wind Tunnel Center, Shanghai, China, 201804)

Abstract Nowadays, droplets have been widely used in micro-fluid fields such as printers and micro pumps. However, as for many phenomena related to the droplets, such as Marangoni effect, contact angle, and evaporation process, previous studies are not enough. This paper studied the effect of contact surface roughness on evaporation process and internal flow field of droplets. We used Particle Image Velocimetry technique to obtain the particle images of the middle plane inside droplets. Under different surface roughness conditions, the variations of drop nondimensionalized volume and the contact angle with time were calculated.

Key words droplet, nondimensionalized volume, contact angle, surface roughness

1) 资金资助项目 (第 42 批教育部回国人员科研启动基金)

2) 联系作者 Email: zheyangjin@tongji.edu.cn