

微液滴在超疏水表面的受迫振动及其接触线的固着-移动转变*

周建臣¹⁾ 耿兴国¹⁾ 林可君¹⁾ 张永建²⁾ 臧渡洋^{1)†}

1) (功能软物质与材料课题组, 空间应用物理与化学教育部重点实验室, 西北工业大学理学院, 西安 710129)

2) (凝固技术国家重点实验室, 西北工业大学材料学院, 西安 710072)

(2014年4月22日收到; 2014年6月9日收到修改稿)

利用高速摄影技术对超疏水表面液滴振动的动态行为进行观测, 研究液滴在不同频率下的振动特性. 实验发现, 液滴的共振频率满足 Rayleigh 方程, 微液滴在超疏水表面具有自由液滴的振动性质. 在 80—200 Hz 的驱动频率范围内, 接触线出现了明显的固着-移动现象, 液滴的振动频率是驱动频率的一半, 液滴振动时的形变较大. 当驱动频率大于 200 Hz 时, 接触线基本固着, 液滴的振动频率近似等于驱动频率, 液滴共振时的形态边缘始终有节点存在. 分析表明, 液滴对外界驱动的不同响应与接触线的振荡行为和变形程度密切相关

关键词: 超疏水表面, 受迫振动, 共振, 接触线

PACS: 68.08.Bc, 68.08.De, 68.03.Cd

DOI: 10.7498/aps.63.216801

1 引言

液滴的振动与撞击等动态行为不仅在自然现象中广泛存在, 而且在喷涂、喷墨印刷、燃油喷射等工业过程和微流控芯片等领域都有重要应用^[1-3]. 液滴振动和衰减特征与液体的表面张力和黏度密切相关, 有可能用于液滴性质的测定^[4]. 因此, 研究液滴的动态行为具有重要的科学意义和工程应用价值.

在 Rayleigh^[5] 和 Lamb^[6] 分别发现了非黏性自由液滴和黏性自由液滴的振荡模式之后, 大量关于自由液滴振荡性质的研究^[7,8] 也随之展开, 主要探讨液滴的振荡形式、共振频率、振荡衰减等方面的效应与特性. Beard^[9] 通过总结前人的研究, 将自由液滴振荡类型归结为三种形式: 垂直型、水平型和横切型. 研究者发现, 在零重力条件下, 振动对纯水液滴的高纯度结晶形状有明显影响^[10]. 因此, 关于固着液滴垂直振动的实验和理论研究引起

学术界的广泛关注. Strani 等^[11] 推导出一个描述固着液滴共振频率的理论模型, 并利用矩阵定义了接触角的本征值, Smithwick 等^[12] 又将该理论推广到平面的情况. 但不同振动模式下, 液滴的接触角本征值涉及到无限大矩阵, 这就限制了该理论模型的实际应用.

为深入研究固着液滴的振动特性, 一些相关的实验技术和理论模拟^[13-23] 也逐渐发展但大部分的研究只考虑接触线固着或无接触线(如悬浮)的情形. Hocking^[24] 则从理论角度讨论了接触角滞后对接触线固着-移动现象的影响. Ting 等^[25] 进一步分析了接触线固着-移动现象和振幅之间的关系. Lyubimov 等^[26] 考虑了液体黏度对接触线移动的影响. Noblin 等^[27,28] 研究了疏水表面上大液滴(体积为 0.1—3 mL)的振动特性, 解释了固着液滴振动的起源, 实验观察到了接触线固着-移动现象, 导出了接触线固着和移动两种情况下液滴共振频率的表达式. Ramos 等^[29] 研究了超疏水表面微液滴在不同振幅下的振动特性, 指出超疏水表面微液

* 国家自然科学基金(批准号: 51301139)、教育部博士点新教师基金(批准号: 20126102120058)、陕西省自然科学基金(批准号: 2012JQ1016)和西北工业大学基础研究基金(批准号: JCY20130147)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: dyzang@nwpu.edu.cn

滴可看作自由液滴。

尽管关于超疏水表面上液滴的振动已开展较多的研究^[30,31], 但液滴接触线的固着-移动现象是否对液滴的振动特性产生影响还不明晰. 针对这一问题, 本文以超疏水表面为基底, 采用高速摄影技术, 观测不同频率下的微液滴振动过程, 分析其高度、接触线和接触角等动态行为变化, 研究接触线的固着-移动转变过程及其对振动频率的影响, 探索液滴振动频率和驱动频率间的依赖关系, 并揭示接触线固着-移动现象对微液滴振动性质的影响机理.

2 实验方法

图1(a)为本文的实验装置示意图, 实验前将超疏水基底紧密地固定在机械振动平台上, 利用振动信号发生器(RK1212D, 深圳美瑞克)产生的周期性正弦信号(频率范围为80—480 Hz)驱动该平台振动. 实验时固定驱动振幅, 改变驱动频率, 从而控制液滴的振动. 文中分别用 f_D 和 f_R 表示基底的驱动频率和液滴的振动频率. 实验中所用超纯水, 由EPED-20TH超纯水机制备. 超疏水基底由化学沉积的方法^[32]制得, 测得超纯水液滴在其上的前进角 θ_A 为 161° , 后退角 θ_R 为 155° , 接触角滞后 $\Delta\theta$ 约为 6° . 图1(b)所示为液滴($9\ \mu\text{L}$)在超疏水基底上的静止形态. 在液滴达到振动稳态后, 用高速摄像机(2000 Hz)拍摄液滴振动的侧视图. 利用MaxTRAQ软件提取液滴的接触线、高度、接触角和振动频率等信息. 利用Matlab软件对每次实验获取的连续30张图片进行叠加, 可得到清晰的液滴振动模态图. 为了减小液滴在振动过程中的蒸发以及外界污染对实验结果的影响, 每做一次振动实验都重新放置液滴. 整个实验在封闭环境下

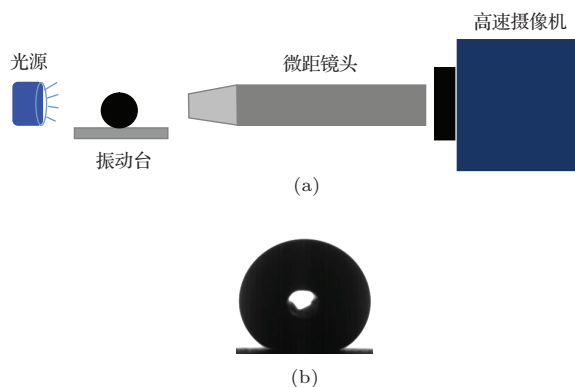


图1 实验装置与水滴静置形态 (a) 液滴振动实验装置示意图; (b) 液滴在超疏水表面的静置形态

进行, 环境温度和相对湿度分别为在 $22 \pm 3^\circ\text{C}$ 和 $52 \pm 4\%$.

3 实验结果及讨论

3.1 液滴的共振模态

实验发现, 液滴振幅(Δh , 如图2(a)所示)在某些特定的驱动频率下出现极值, 此时液滴呈现共振态. 实验结果表明, 液滴分别在80, 160, 250, 350和450 Hz时达到共振. 图2所示为部分共振模态, 图中箭头指向液滴表面波的驻点, 液滴的振动阶数为表面波驻点数的一半^[29]. 因此, 图2中的液滴分别处于二阶、三阶、四阶的共振模态, 由图可知液滴的振动阶数随着驱动频率的增大而提高, 而液滴振幅 Δh 随振动阶数的提高而减小.

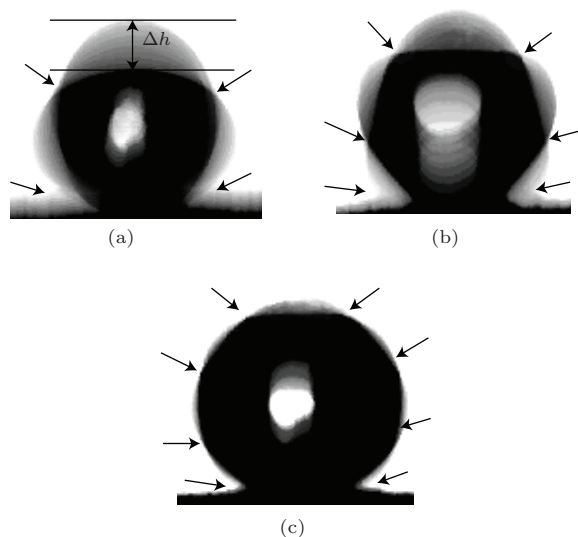


图2 纯水液滴($9\ \mu\text{L}$)在不同频率下的共振形态(箭头指向表面波的驻点) (a) 80 Hz; (b) 160 Hz; (c) 250 Hz

自由液滴的共振频率可由Rayleigh方程^[5]给出:

$$f_n = \sqrt{\frac{n(n-1)(n+2)\sigma}{3\pi\rho V}}, \quad (1)$$

其中, n 为共振模态的阶数, σ , ρ , V 分别为液滴的表面张力、密度和体积. 将纯水液滴参数($\sigma = 72.8\ \text{mN/m}$, $\rho = 998\ \text{mg/m}^3$, $V = 9\ \mu\text{L}$)代入(1)式, 计算结果在表1中给出. 可知液滴的实际共振频率与由Rayleigh方程计算所得的共振频率十分接近. 因此, 放置在超疏水表面的微液滴可看作自由液滴, 这与Ramos^[29]的研究结果相一致. 液滴在超疏水表面可看作自由液滴的原因主要有两个: 一是实验所用液滴的半径约为 $1.29\ \text{mm}$, 远小于毛细长

度 ($l_c = \sqrt{\sigma/\rho g}$, 约为 2.73 mm, 其中 g 为重力加速度), 可忽略重力的影响. 二是实验所用超疏水表面的接触角滞后 ($\Delta\theta = 6^\circ$) 较小, 使得液滴静态时呈球形. 人们通常利用超声悬浮和气流悬浮等悬浮手段研究自由液滴的振动特性. 本文研究表明, 利用具有较小接触角滞后的超疏水表面对液滴的振荡行为进行研究, 有可能成为研究自由液滴的另一种有效手段.

表 1 共振频率 f_n 的实验值和理论值

mode(n)	Rayleigh 方程	共振频率
	计算值 f_n/Hz	实验值 f_n/Hz
2	82.9	80
3	160.6	160
4	248.8	250
5	347.0	350
6	454.3	450

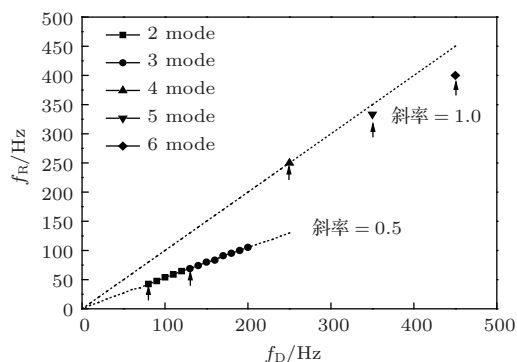


图 3 液滴振动频率 f_R 与驱动频率 f_D 的关系 (箭头所示为液滴共振对应的频率)

图 3 给出了液滴的振动频率与驱动频率之间的关系. 由图可知, 液滴对外界振动具有两种显著不同的响应. 在较低频率 (80—200 Hz) 范围内液滴的振动频率约为驱动频率的 1/2. 而在高频下

(> 200 Hz) 范围内, 液滴的振动频率则几乎与驱动频率相等. 液滴在基底的驱动下做受迫振动, 其振动频率应等于驱动频率, 有趣的是, 液滴振动频率和驱动频率的关系却以 200 Hz 为分界点出现了两种不同的线性关系.

3.2 接触线的固着-移动现象

为研究液滴在不同频率下的响应机理, 利用高速摄影技术对液滴的振动过程进行实时观测. 通过改变驱动频率, 实验观察到液滴振动时的形态有两种不同类型: 无节点大形变类型和有节点小形变类型, 在 McHale 等^[33]的研究中也出现了相同的液滴形变类型. 在低频率 (80—200 Hz) 范围内, 液滴振动时的形变比较大, 且液滴表面未出现明显节点 (图 4(a)). 随着频率的增高 (> 200 Hz), 液滴振动形变较小, 液滴共振时其表面处会出现节点 (图 4(b)). 另外, 当驱动频率为 80 Hz 时, 伴随液滴的形态变化, 接触线发生了明显的扩张/收缩现象. 实验发现, 在 80—200 Hz 的频率范围内, 液滴的接触线均出现类似的振荡现象, 且此现象随驱动频率的增加而减弱. 而当驱动频率大于 200 Hz 时, 接触线基本固着不动.

为进一步研究接触线振荡的原因及其对液滴高度变化的影响, 实时观测了 80 Hz 时液滴振动过程中接触角、接触线直径和液滴高度的动态变化, 结果如图 5 所示. 由图 5(a) 可知, 表观接触角的变化范围是 144° — 167° , 超出了基底材料的 $[\theta_R, \theta_A]$, 因此接触线会出现显著的移动现象. 从接触线直径 (D/D_0) 的变化 (图 5(b)) 可以看出接触线交替出现固着、移动的现象. 可以推断, 在这种情况下, 液滴的表面张力以及由接触线固着-移动而产生的滞后阻力^[34]两种因素共同决定着液滴的振动行为.

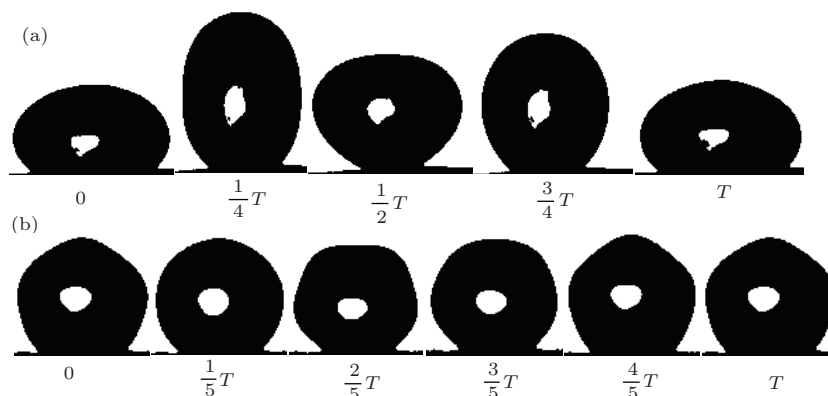


图 4 不同频率下液滴在一个周期 (T) 内的形态演变过程 (a) 80 Hz; (b) 450 Hz

接触线的固着-移动对液滴的高度变化具有显著影响. 液滴的接触线在铺展和收缩两个过程中都出现固着现象, 液滴的高度也在接触线的两个固着阶段出现峰值, 如图 5(c) 所示. 值得指出的是, 液滴在接触线的两个固着阶段达到的峰值并不相同. 液滴铺展阶段的峰值 ($1.15h_0$) 略小于收缩阶段的峰值 ($1.26h_0$), 这说明液滴接触线两个固着阶段的滞后阻力对液滴变形具有相反的影响: 铺展阶段, 滞后阻力阻碍液滴变形, 因而液滴高度拉长程度较小; 而在收缩阶段, 情况相反.

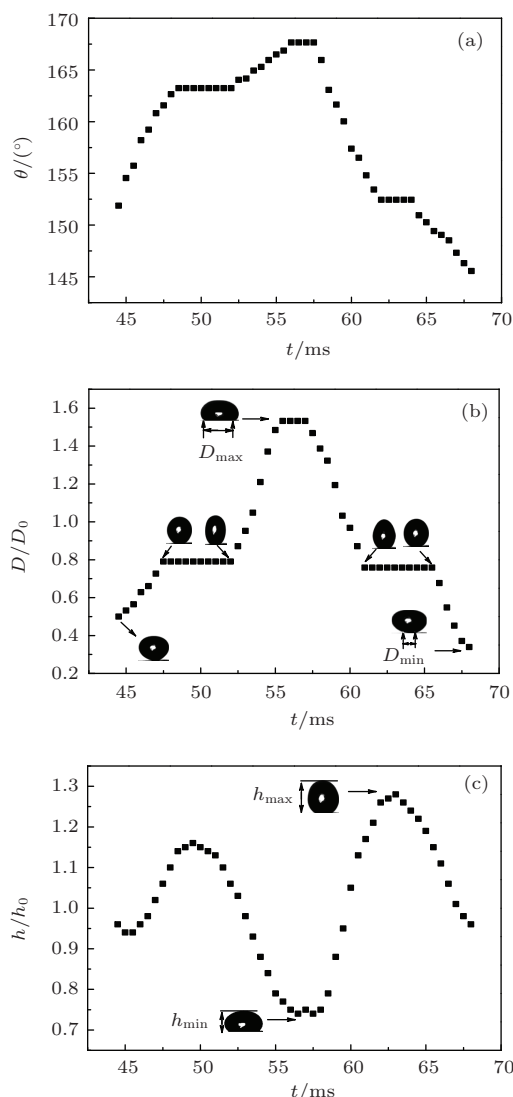


图 5 液滴表观接触角 (a)、接触线直径 (b) 与液滴高度 (c) 随时间的变化 (80 Hz) (D_0 , h_0 分别为液滴静态时的接触线直径和液滴高度)

3.3 液滴受迫振动的响应机理

液滴的振动频率与外界驱动频率的两种不同依赖关系说明, 接触线的固着-移动行为和液滴的变形程度对液滴的响应具有重要影响.

在较高频率下 (> 200 Hz), 液滴变形程度不大, 其接触线始终固着, 并且作为液滴表面波的波源主导着液滴的振荡变形过程^[26], 因而液滴的受迫振动频率与基底驱动频率基本一致.

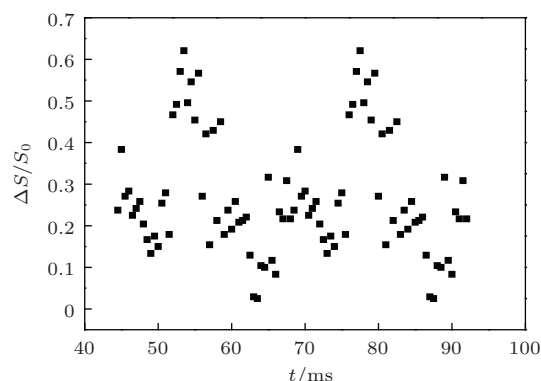


图 6 液滴表面积增量 ΔS 随时间的变化 (80 Hz) (S_0 为液滴静态时的表面积)

而在较低频率下 (< 200 Hz), 液滴的受力情况则较为复杂. 一方面, 由于接触线的移动, 液滴具有较大的变形, 如图 6 所示. 液滴表面积的增大, 存储了表面能 ($\Delta S \cdot \sigma$), 因而表面张力将驱使液滴发生回复并振荡, 其时间尺度^[35] $\tau \propto \sqrt{\rho D_0^3 / \sigma}$. 另一方面, 接触线固着-移动过程中的滞后阻力也将对液滴的变形产生影响. 因此, 液滴在低频的外界驱动下, 其响应是表面张力引起的液滴振荡、接触线滞后阻力和基底驱动力多种因素相互耦合的结果. 可见, 接触线是否移动对液滴的响应起着重要作用. 当然, 接触线发生移动的条件和机理还有待进一步研究.

4 结 论

本文研究了纯水液滴在超疏水表面上的振动特性, 主要得出以下结论:

1) 液滴只在特定的驱动频率下发生共振, 液滴的振动阶数随驱动频率的增大而提高. 在 0—200 Hz 的驱动频率下, 液滴的振动频率约为驱动频率的 1/2. 而当驱动频率大于 200 Hz 时, 液滴的振动频率则几乎与驱动频率相等.

2) 在低频率范围内 (0—200 Hz), 液滴与基底的接触线出现显著的固着-移动现象. 而在高频范围内 (> 200 Hz), 液滴的接触线在振动过程中始终固着, 无明显移动现象.

3) 在低频 (0—200 Hz) 下, 液滴的响应是表面张力、滞后阻力和基底驱动力多种因素相互耦合的

结果, 且受到接触线振荡行为的影响. 但在高频 (> 200 Hz) 下, 接触线始终固着, 且作为液滴表面波的波源主导着液滴的响应. 因此, 液滴受迫振动在两个频率段内出现两种不同响应机理.

感谢同事耿德路老师和香港中文大学徐磊教授对本工作给予的有益建议.

参考文献

- [1] Vukasinovic B, Smith M K, A. Glazer 2004 *Phys. Fluids*. **16** 306
- [2] Singhal V, Garimella S V, Raman A 2004 *Appl Mech Rev.* **57** 191
- [3] Nisisako T, Torri T 2007 *Advanced Materials*. **19** 1489
- [4] Mukherjee S, Johnson W L, Rhim W K 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 014104
- [5] Rayleigh J 1879 *Proc. R. Soc., London*. **29** 71
- [6] Lamb H 1932 *Hydrodynamics* (London: Cambridge University)
- [7] Ko S H, Lee S J, Kang K H 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 194102
- [8] Shao X P, Xie W J 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 134302 (in Chinese) [邵学鹏, 解文军 2012 物理学报 **61** 134302]
- [9] Beard K V 1984 *J. Atmos. Sci.* **41** 1765
- [10] Wilkes E D, Basaran O A 1997 *Phys. Fluids*. **9** 1512
- [11] Strani M, Sabetta F 1984 *J. Fluid Mech.* **141** 174
- [12] Smithwick III R W, Boulet J A M 1989 *J. Colloid Interface Sci.* **130** 588
- [13] Min J C 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2730 (in Chinese) [闵敬春 2002 物理学报 **51** 2730]
- [14] Vukasinovic B, Smith M K, Glezer A 2007 *J. Fluid Mech.* **587** 395
- [15] Guo J H, Dai S Q, Dai Q 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 2601 (in Chinese) [郭加宏, 戴世强, 代钦 2010 物理学报 **59** 2601]
- [16] Li X Y 2010 *Ph. D. Dissertation* (Dalian: Dalian University of Technology) (in Chinese) [李西营 2010 博士学位论文 (大连: 大连理工大学)]
- [17] Mettu S, Chauhury M K 2010 *Langmuir*. **26** 8131
- [18] Liu J, Zheng K H, Liu Z, H L J, Sun L F 2010 *Chin. Phys. B* **19** 066101
- [19] Liu T Q, Sun W, Li X Q, Sun X Y, Ai H R 2012 *Soft Matter*. **20** 366
- [20] Jiang C G, Shi L T, Wu C W 2012 *Chin. Sci. Bull.* **57** 2264
- [21] Xu L, Barcos L, Nagel S R 2007 *Phys. Rev. E* **76** 066311
- [22] Baudoin M, Brunet P, Matar O B, Herth E 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 154102
- [23] Hu H B, Huang S H, Chen L B 2013 *Chin. Phys. B* **22** 084702
- [24] Hocking L M 1987 *J. Fluid Mech.* **179** 267
- [25] Ting C L, Perlin M 1995 *J. Fluid Mech.* **295** 263
- [26] Lyubimov D V, Lyubimova T P, Shklyaev S V 2006 *Phys. Fluids*. **18** 012101
- [27] Noblin X, Buguin A, Brochard-Wyart F 2004 *Eur. Phys. J. E*. **14** 395
- [28] Noblin X, Buguin A, Brochard-Wyart F 2009 *Eur. Phys. J. E* **166** 7
- [29] Ramos S M M 2008 *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **266** 3143
- [30] Celestini F, Kofman R 2006 *Phys. Rev. E* **73** 041602
- [31] Whitehill J, Neild A, Ng T W, Stokes M 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 053501
- [32] Zang D Y, Li F, Geng X G, Lin K J, Clegg P S 2013 *Eur. Phys. J. E* **36** 59
- [33] McHale G, Elliott S J, Newton M I, Herbertson D L, Esmer K 2009 *Langmuir*. **25** 529
- [34] Wang X D, Peng X F, Li D Z 2003 *Sci. China. E* **33** 625 (in Chinese) [王晓东, 彭晓峰, 李笃中 2003 中国科学 **33** 625]
- [35] Clanet C, Béguin C, Richard D, Quéré D 2004 *J. Fluid Mech.* **517** 199

Stick-slip transition of a water droplet vibrated on a superhydrophobic surface^{*}

Zhou Jian-Chen¹⁾ Geng Xing-Guo¹⁾ Lin Ke-Jun¹⁾ Zhang Yong-Jian²⁾ Zang Du-Yang^{1)†}

1) (*Functional Soft Matter and Materials Group, Key Laboratory of Space Applied Physics and Chemistry of Ministry of Education, School of Science, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710129, China*)

2) (*School of Materials Science and Engineering, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China*)

(Received 22 April 2014; revised manuscript received 9 June 2014)

Abstract

We have studied the vibration behavior of a water droplet vibrated on a superhydrophobic surface via a high-speed camera. The resonance frequencies of the droplet satisfy the Rayleigh equation, suggesting that the droplet on a superhydrophobic surface can be regarded as a free droplet. Its real oscillation frequency is half of the driving frequency when it is vibrated at low frequencies (< 200 Hz). It shows large shape deformation from a compressed puddle to a stretched spheroid. The three-phase contact line exhibits a stick-slip behavior. However, when the droplet is vibrated at frequencies greater than 200 Hz, the three-phase contact line is pinned to the substrate and the droplet is vibrated at the same frequencies as the external driving frequencies. It is found that the oscillation of the contact line and the large shape deformation of the droplet are responsible for the distinct behavior at low frequency.

Keywords: superhydrophobic surface, forced vibration, resonance, contact line

PACS: 68.08.Bc, 68.08.De, 68.03.Cd

DOI: 10.7498/aps.63.216801

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51301139), the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education, China (Grant No. 20126102120058), the Shaanxi Provincial Natural Science Foundation, China (Grant No. 2012JQ1016), and the NPU Foundation for Fundamental Research, China (Grant No. JCY20130147).

[†] Corresponding author. E-mail: dyzang@nwpu.edu.cn