



接触角迟滞和气-液界面张力温度敏感性对液滴蒸发动态特性的影响

李春曦 程冉 叶学民

Effect of contact angle hysteresis and sensitivity of gas-liquid interfacial tension to temperature of a sessile-drop on evaporation dynamics

Li Chun-Xi Cheng Ran Ye Xue-Min

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 204701 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20210294

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210294>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

液滴在不同润湿性表面上蒸发时的动力学特性

Dynamics of evaporating drop on heated surfaces with different wettabilities

物理学报. 2018, 67(11): 114702 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180159>

还原温度对氧化石墨烯结构及室温下H₂敏感性能的影响

Effect of reduction temperature on structure and hydrogen sensitivity of graphene oxides at room temperature

物理学报. 2017, 66(8): 080701 <https://doi.org/10.7498/aps.66.080701>

考虑水蒸气蒸发和冷凝的球状泡群中泡的动力学特性

Dynamic characteristics of bubbles in spherical bubble group considering evaporation and condensation of water vapor

物理学报. 2021, 70(19): 194301 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210045>

表面活性剂对气-液界面纳米颗粒吸附规律的影响

Effect of surfactants on adsorption behavior of nanoparticles at gas-liquid surface

物理学报. 2020, 69(2): 026801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190756>

液滴撞击液膜的穿越模式及运动特性

Kinematics and passing modes of a droplet impacting on a soap film

物理学报. 2019, 68(15): 156101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190604>

冷液滴/热液池碰撞混合及温度特性

Temperature characteristics of droplet impacting on static hot pool

物理学报. 2019, 68(23): 234702 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190809>

接触角迟滞和气-液界面张力温度敏感性 对液滴蒸发动态特性的影响*

李春曦 程冉 叶学民†

(华北电力大学动力工程系, 保定 071003)

(2021年2月8日收到; 2021年5月16日收到修改稿)

基于润滑理论和滑移边界条件, 构建了考虑接触角迟滞时液滴在均匀加热固体壁面上蒸发的数学模型, 探讨了接触角迟滞对蒸发液滴动力学的影响, 并分析了不同气-液界面张力温度敏感性的液滴蒸发特征. 研究表明: 接触角迟滞对液滴蒸发过程有较大影响, 随接触角迟滞增大, 液滴的接触线钉扎时间延长, 铺展阶段和去钉扎阶段时长缩短, 液滴蒸发显著加快; 迟滞角的增大使前进接触角增加, 后退接触角减小, 且后退接触角减小的幅度大于前进接触角增加的幅度. 提高气-液界面张力对温度的敏感性系数可通过减小后退接触角, 改善液滴在壁面上的润湿性, 从而加强液滴传热, 致使加快液滴蒸干. 因此, 改变接触角迟滞和气-液界面张力对温度的敏感性均可实现对液滴运动的调控, 从而控制其蒸发进程.

关键词: 液滴蒸发, 动力学特性, 接触角迟滞, 气-液界面张力温度敏感性

PACS: 47.61.-k, 47.10.A-, 47.55.np, 47.55.N-

DOI: 10.7498/aps.70.20210294

1 引言

固体表面上液滴的蒸发过程不仅在日常生活中随处可见, 而且在涂覆工艺、焊接技术、油墨印刷、DNA 分析等工业和医学领域也有广泛应用^[1,2]. 掌控液滴在固体基底上的运动特性对于加快微电子元件冷却速率、提高喷涂质量及提升医疗诊断准确性等诸多实际应用至关重要^[3].

近年来的研究表明, 液滴蒸发过程的动态特性与固体表面温度^[4]、液体性质^[5]、固体材质^[6]和环境条件^[7]密切相关. 除此之外, 存在于实际表面上的接触角迟滞^[8]也是影响液滴运动的重要因素. 理论上讲, 对于任意一个理想表面, 都可以由 Young 方程, $\cos \theta_Y = (\sigma_{sg} - \sigma_{ls})/\sigma_{lg}$, 唯一地确定其表面上所附着液滴的接触角. 但实际上很难通过实验来测出这一角度, 因为附着液滴在固体表面上的接触角

值并不唯一, 而是在相对稳定的两个角度之间变化, 这种现象被称为接触角迟滞. 其中上限和下限分别为前进接触角 θ_a 和后退接触角 θ_r , 二者的差值为迟滞角 $\Delta\theta$. 对于接触角迟滞, Neumann 和 Good^[9]认为接触角迟滞现象归因于表面粗糙^[10]、化学异质性^[11]和亚稳表面能量态, 而 Eral 等^[8]则发现表面变形、液体吸附和滞留、润湿时分子重排和相互扩散也是影响接触角迟滞的重要因素.

目前, 已有实验研究了液滴蒸发过程中接触角迟滞的影响. Yu 等^[12]通过在自组装分子层上微液滴的蒸发实验, 发现蒸发模式的转变源于接触角迟滞的存在. Li 等^[13]发现接触线钉扎与接触角迟滞有关, 而接触线钉扎是咖啡环沉积形成的必要条件, 接触角迟滞直接影响液滴蒸发模式, 从而影响沉积模式, 液滴长时间附着在固体表面是由接触角迟滞引起的. Trybala 等^[14]通过实验探究了含无机纳米颗粒的悬浮液的固着液滴在三种不同润湿

* 国家自然科学基金 (批准号: 51876065) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yexuemin@163.com

性基材 (PE, PTFE 和硅片) 上的蒸发动力学行为, 指出当未达到静态后退接触角时, 三种表面上的液滴蒸发过程包括定接触线 (CCR) 和定接触角 (CCA) 两个阶段, 或仅呈现 CCR 阶段; 与纯水蒸发的普遍特征相比, 在所使用基底上观察到了良好一致性, 仅前进接触角和后退接触角数值有差异. Kulinich 和 Farzaneh^[15] 观察了具有相同接触角 ($\geq 150^\circ$)、不同钝化程度的超疏水聚合物表面上的蒸发模式, 发现在高迟滞表面上液滴蒸发遵循 CCR 模式, 而在低迟滞表面上则遵循 CCA 模式; 固着水滴的蒸发行为不是由高接触角决定, 而是受润湿滞后 (或后退接触角) 控制. Lin 等^[16] 实验研究了 6 种不同表面粗糙度的聚甲基丙烯酸甲酯 (PMMA) 基底上水滴蒸发的动力学行为, 同样发现当壁面粗糙度增加时, 从 CCR 模式向 CCA 模式的转变延迟, 后退接触角也减小. Kuznetsov 等^[17] 研究了不同粗糙度的铜表面上蒸馏水的蒸发特性, 发现液滴接触半径和钉扎持续时间随粗糙度增加而增大, 可通过改变基底粗糙度来控制液滴的铺展过程.

关于液滴蒸发过程的理论研究, 通常针对接触线动力学的不同阶段建立不同的数学模型^[18–20] 进行描述. 其中, Semenov 等^[20] 通过建立 CCR 和 CCA 模型描述接触角迟滞条件下固着液滴蒸发过程的两个阶段: 在 CCR 模型中, 假设液滴为球形, 接触半径始终等于其初始值 L_0 , 仅研究接触角的演化; 在 CCA 模型中, 接触角被设定为常数并等于 θ_r , 仅研究接触半径的演化, 即从 L_0 减小到几乎为零. 虽然分开描述这两个阶段可以清晰得到各阶段的运动特征, 但却不能捕捉从 CCR 过渡到 CCA 时的重要动态特征, 因此不能全面刻画液滴蒸发过程的运动学特征. 此外, 还有学者利用润滑近似理论研究液滴在加热表面的动力学过程. Karapetsas 等^[21] 通过将接触线速度和动态接触角与平衡接触角之间的差耦合成一个关系式来模拟接触线运动, 并引入不同界面张力对温度的敏感性, 研究了非等温倾斜固体基底上液滴的二维动力学, 证明了温度引起的平衡接触角变化会引起复杂的动力学过程. Ye 等^[22] 进一步研究了均匀加热基底上固着液滴蒸发时的动力学特性, 分析了气-液、固-气和固-液界面张力温度敏感性对壁面润湿性对液滴动态特性的影响, 表明通过改变固-气界面张力温度敏感系数调控处于蒸发状态下的液滴运动更加有效. 此外, 叶学民等^[23] 研究了不同加热条件下温度影响

壁面润湿性及铺展过程的内部机理, 发现随温度梯度增大, 液滴所受 Marangoni 效应增强, 从而加快液滴向低温区的铺展速率.

上述实验研究表明, 接触角迟滞是影响液滴蒸发动力学特征的重要因素. 针对不同阶段建立的不同蒸发模型易忽略过渡阶段间的重要动态过程, 且模型不具有整体性, 而基于润滑理论建立的已有模型虽能描述整个液滴蒸发过程, 但考虑的均为理想表面, 未涉及接触角迟滞对实际表面上液滴润湿性的影响, 因此也不能完整刻画液滴的实际蒸发动力学特征. 此外, 在加热表面上的液滴界面张力受温度影响, 但至今尚未有能够准确测量固-液、固-气界面张力的可靠方法, 同时固-液、固-气界面张力温度敏感性系数也不易调控, 一般采用气-液界面张力的温度敏感性描述壁面润湿性对液滴运动特性的影响. 为此, 本文依据相关实验结果, 通过引入接触角迟滞模型, 基于润滑理论和滑移边界条件建立二维液滴厚度的演化方程, 采用数值计算方法模拟液滴蒸发全过程的动力学特征, 分析接触角迟滞对接触角、接触线位置和移动速度、蒸干时间等典型特征量的影响, 阐明接触角迟滞影响液滴蒸发动态过程的内在机理, 并分析考虑接触角迟滞时气-液界面张力的温度敏感性对液滴蒸发过程的影响.

2 理论模型及计算方法

2.1 理论模型

假设一不可压缩液滴在均匀加热的固体表面上不断蒸发, 如图 1 所示, 液滴初始最大厚度为 \tilde{H} , 流动方向尺度为 \tilde{L} , 壁面温度为 \tilde{T}_w . 由于 $\varepsilon = \tilde{H}/\tilde{L} \ll 1$ (图 1 中的 \tilde{H} , \tilde{L} 仅为表示清楚, 不代表真实比例), 因此可应用润滑理论 (上标~表示有量纲量, 下同).

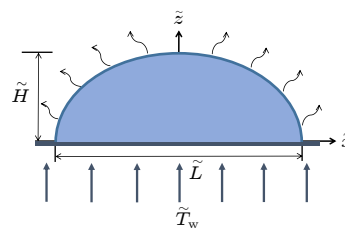


图 1 液滴在加热表面铺展示意图

Fig. 1. Schematic of a drop disposed on a horizontally heated substrate.

液滴运动过程的控制方程包括连续性方程、动量方程和能量方程:

$$\tilde{\nabla} \cdot \tilde{\mathbf{u}} = 0, \quad (1)$$

$$\tilde{\mathbf{u}}_{\tilde{t}} + \tilde{\mathbf{u}} \cdot \tilde{\nabla} \tilde{\mathbf{u}} = \tilde{\mathbf{g}} - \frac{1}{\tilde{\rho}} \tilde{\nabla} \tilde{p} + \frac{\tilde{\mu}}{\tilde{\rho}} \tilde{\nabla}^2 \tilde{\mathbf{u}}, \quad (2)$$

$$\tilde{\rho} \tilde{C}_p (\tilde{T}_{\tilde{t}} + \tilde{\mathbf{u}} \cdot \tilde{\nabla} \tilde{T}) = \tilde{\lambda} \tilde{\nabla}^2 \tilde{T}, \quad (3)$$

式中, \tilde{p} , \tilde{T} 和 \tilde{t} 分别表示压强、温度和时间, $\tilde{\mu}$ 和 $\tilde{\rho}$ 分别为液体的动力黏度与密度, $\tilde{\lambda}$ 和 \tilde{C}_p 为液体的导热系数和定压比热; $\tilde{\mathbf{u}} = (\tilde{u}, \tilde{w})$, \tilde{u} 和 \tilde{w} 分别为水平和垂直方向上的速度分量.

在气-液界面 $\tilde{z} = \tilde{h}$ 处, 满足切向和法向应力平衡:

$$\tilde{\mathbf{n}} \cdot \tilde{\boldsymbol{\tau}} \cdot \tilde{\mathbf{t}} = \tilde{\mathbf{t}} \cdot \tilde{\nabla}_s \tilde{\sigma}_{lg}, \quad (4)$$

$$\tilde{\mathbf{n}} \cdot \tilde{\boldsymbol{\tau}} \cdot \tilde{\mathbf{n}} = \tilde{\kappa} \tilde{\sigma}_{lg}, \quad (5)$$

式中, $\tilde{\mathbf{n}}$, $\tilde{\mathbf{t}}$, $\tilde{\boldsymbol{\tau}}$ 分别为界面处的单位法向和切向向量及总应力张量, $\tilde{\kappa}$ 为气-液界面处的平均曲率, $\tilde{\sigma}_{lg}$ 为液-气界面张力.

在气-液界面 $\tilde{z} = \tilde{h}$ 处, 运动边界及热边界条件为

$$\tilde{h}_{\tilde{t}} + \tilde{u} \tilde{h}_{\tilde{x}} = \tilde{w} - \frac{\tilde{J}}{\tilde{\rho}}, \quad (6)$$

$$\tilde{\lambda} \tilde{\mathbf{n}} \cdot \tilde{\nabla} \tilde{T} + \tilde{J} \tilde{L}_a = 0, \quad (7)$$

式中, \tilde{L}_a 为汽化潜热, \tilde{J} 为界面质量迁移的质量跃变流率.

界面处的蒸发流量与界面温度有关, 可表示为

$$\tilde{K} \tilde{J} = \tilde{T}_i - \tilde{T}_s, \quad (8)$$

式中, \tilde{K} 为界面热阻; \tilde{T}_i 为界面温度, \tilde{T}_s 为液体的饱和温度.

在壁面 $\tilde{z} = 0$ 处, 垂直方向上满足无渗透条件:

$$\tilde{w} = 0. \quad (9)$$

为避免接触线处出现应力奇点, 在水平方向施加 Navier 滑移边界条件^[24,25]:

$$\tilde{u} = \tilde{\beta} \tilde{u}_z, \quad (10)$$

式中 $\tilde{\beta}$ 为滑移长度.

壁面温度满足

$$\tilde{T}_w = \tilde{T}_{w0}. \quad (11)$$

由于固-液、固-气界面张力目前仍难以通过实验直接测量, 假设固-液、固-气界面张力不随温度改变, 而气-液界面张力与温度满足线性关系^[21]:

$$\tilde{\sigma}_{sg} = \tilde{\sigma}_{sg, \tilde{T}_s}, \quad \tilde{\sigma}_{ls} = \tilde{\sigma}_{ls, \tilde{T}_s},$$

$$\tilde{\sigma}_{lg} = \tilde{\sigma}_{lg, \tilde{T}_s} - \tilde{\xi}_{1\tilde{T}_g} (\tilde{T}_{lg} - \tilde{T}_s), \quad (12)$$

式中, $\tilde{\sigma}_{lg, \tilde{T}_s}$ 为气-液界面在 \tilde{T}_s 下的界面张力, $\tilde{\xi}_{1\tilde{T}_g}$ 为温度引起的表面张力梯度.

将控制方程和边界条件采用下式进行无量纲化:

$$(\tilde{x}, \tilde{z}, \tilde{h}) = \tilde{L}(x, \varepsilon z, \varepsilon h),$$

$$\tilde{t} = \frac{\tilde{L}}{\tilde{U}} t, \quad (\tilde{u}, \tilde{w}) = \tilde{U}(u, \varepsilon w),$$

$$\tilde{p} = \frac{\tilde{S}}{\tilde{H}} p, \quad \tilde{T} = T(\tilde{T}_m - \tilde{T}_s) + \tilde{T}_s,$$

$$\Omega_{lg} = \frac{\tilde{\xi}_{1\tilde{T}_g} (\tilde{T}_m - \tilde{T}_s)}{\tilde{\sigma}_{lg, \tilde{T}_s} - \tilde{\sigma}_{lg, \tilde{T}_m}},$$

$$\tilde{\sigma}_i = \tilde{S} \sigma_i + \tilde{\sigma}_{lg, \tilde{T}_m},$$

$$\tilde{J} = J_0 J, \quad \tilde{K} = \frac{K \varepsilon \tilde{L} \tilde{L}_a}{\tilde{\lambda}},$$

式中, $J_0 = \frac{\tilde{\lambda} (\tilde{T}_m - \tilde{T}_s)}{\tilde{H} \tilde{L}_a}$, $\tilde{U} = \frac{\tilde{S} \tilde{H}}{\tilde{\mu} \tilde{L}}$ 为特征速度, $\tilde{S} = \tilde{\sigma}_{lg, \tilde{T}_s} - \tilde{\sigma}_{lg, \tilde{T}_m}$ 为铺展系数, Ω_{lg} 为气-液界面张力对温度的敏感系数.

通过无量纲变换和保留数量级 $\geq O(\varepsilon)$, 可得无量纲控制方程组为

$$u_x + w_z = 0, \quad (13)$$

$$p_x = u_{zz}, \quad (14)$$

$$p_z = -\varepsilon B o, \quad (15)$$

$$T_{zz} = 0, \quad (16)$$

式中, $B o = \frac{\tilde{\rho} \tilde{g} \tilde{H}^2}{\tilde{\mu} \tilde{U}}$ 为邦德数.

无量纲边界条件为

$$z = 0, \quad w = 0, \quad (17)$$

$$u = \beta u_z, \quad (18)$$

$$T = \gamma_0; \quad (19)$$

$$z = h, \quad u_z = \sigma_{lgx}, \quad (20)$$

$$p = -C a h_{xx}, \quad (21)$$

$$h_t + u h_x = w - E J, \quad (22)$$

$$T_z = -J, \quad (23)$$

$$K J = T, \quad (24)$$

式中, $\beta = \frac{\tilde{\beta}}{\tilde{H}}$, $\gamma_0 = \frac{\tilde{T}_w - \tilde{T}_s}{\tilde{T}_m - \tilde{T}_s}$, $C a = \frac{\varepsilon^2 \tilde{\sigma}_{lg, \tilde{T}_m}}{\tilde{S}}$ 和

$E = \frac{\tilde{\lambda}(\tilde{T}_m - \tilde{T}_s)}{\varepsilon \tilde{H} \tilde{U} \tilde{\rho} \tilde{L}_a}$ 分别表示滑移系数、加热系数、毛细数和蒸发数。

由 (19) 式和 (24) 式可得 $J = \frac{\gamma_0}{K+h}$ 。

无量纲形式的界面张力与温度关系为

$$\begin{aligned}\sigma_{\text{sg}} &= \sigma_{\text{sg}, T_s}, \\ \sigma_{\text{ls}} &= \sigma_{\text{ls}, T_s}, \\ \sigma_{\text{lg}} &= \sigma_{\text{lg}, T_s} (1 - \Omega_{\text{lg}} T).\end{aligned}\quad (25)$$

液滴表面温度为

$$T = -\frac{\gamma_0}{K+h} h + \gamma_0. \quad (26)$$

采用积分法可得液滴厚度的演化方程为

$$\begin{aligned}h_t &= \left[-Cah_{xxx} \left(\frac{h^3}{3} + \beta h^2 \right) + \varepsilon Bo \left(\frac{h^3}{3} + \beta h^2 \right) h_x \right. \\ &\quad \left. - \frac{\Omega_{\text{lg}} h \gamma_0}{(K+h)^2} h_x \left(\frac{h^2}{2} + \beta h \right) \right]_x - \frac{E \gamma_0}{K+h}. \quad (27)\end{aligned}$$

(27) 式右侧依次代表毛细力、重力、热毛细力和蒸发在液滴运动过程中的作用。

液滴在理想光滑表面上，在三相接触线处，Young 方程^[26]为

$$\tilde{\sigma}_{\text{sg}}(x_c) = \tilde{\sigma}_{\text{lg}}(x_c) \cos \tilde{\theta}_e + \tilde{\sigma}_{\text{ls}}(x_c), \quad (28)$$

式中， $\tilde{\theta}_e$ 为液滴在理想光滑表面上的有量纲的平衡接触角。

由于在液膜厚度演化模型推导过程中，采用润滑理论对液滴纵横比进行了放大，因此，液滴平衡接触角也需进行相应放大，即 $\cos \tilde{\theta}_e \rightarrow \cos(\varepsilon \theta_e)$ ，又有 $1 - (\varepsilon^2 \theta_e^2)/2 \approx \cos(\varepsilon \theta_e)$ 。结合 (25) 式和 (28) 式可得：

$$\theta_e^2 = -\frac{2}{\varepsilon^2} \left(\frac{C + \Omega_{\text{lg}} \gamma_0}{1 - \Omega_{\text{lg}} \gamma_0} \right), \quad (29)$$

式中， $C = \sigma_{\text{sg}, T_s} - \sigma_{\text{ls}, T_s} - 1$ 。

为描述接触角迟滞影响，采用以下线性经验关联式描述前进接触角和后退接触角与迟滞角之间的关系^[27]：

$$\theta_a = \theta_e + A \Delta \theta, \quad (30)$$

$$\theta_r = \theta_e + (A - 1) \Delta \theta, \quad (31)$$

式中， $A \geq 0$ 是与粗糙度无关，与液体性质有关的常数；迟滞角 $\Delta \theta$ 与表面粗糙度和化学异质性有关。

接触线处的液滴高度为零，即 $h(x = x_{\text{cl}} = x_{\text{cr}}, t) = 0$ ，其中 x_{cl} 和 x_{cr} 分别代表左侧和右侧接触线位置。采用下式描述接触线移动速率与接触角间的

关系^[28](下标 c 代表接触线)：

$$v_c = \frac{dx_c}{dt} = \begin{cases} B(\theta - \theta_a)^m, & \theta > \theta_a, \\ -B(\theta_r - \theta)^m, & \theta < \theta_r, \end{cases} \quad (32)$$

式中， B 和 m 为常数； θ 为动态接触角； $v_c > 0$ 代表接触线向外铺展， $v_c < 0$ 代表向内收缩。

计算初始条件为

$$h(x, t = 0) = (1 - x^2)[F(1 - x) - F(-1 - x)], \quad (33)$$

$$x_{\text{cl}}(t = 0) = -1, \quad x_{\text{cr}}(t = 0) = 1, \quad (34)$$

式中， $F(x) = 0.5[1 + \tanh(20x)]$ ^[29]。

基于 Karapetsas 等^[21] 提出的坐标变换法，将瞬态物理域 (x, t) 映射到固定计算域 (x', t') ，

$$x' = (x - x_{\text{cl}}) \frac{x_{\text{cr}}(t = 0) - x_{\text{cl}}(t = 0)}{x_{\text{cr}} - x_{\text{cl}}}. \quad (35)$$

液滴运动区域设定为 $-1 \leq x' \leq 1$ ，时间导数表示如下：

$$\frac{\partial}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t'} - \frac{dx'}{dt} \frac{\partial}{\partial x'}, \quad (36)$$

(36) 式用于替换控制方程 (27) 的相应项。

数值求解采用 Freefem++14.3，该软件是求解偏微分方程的强大工具，是一款免费的、开放源代码的有限元计算软件，目前已经比较成熟地运用在各类数值模拟中，对于液滴、液膜的流体数值计算^[30-32] 也很常见。该软件采用 Delaunay 算法生成离散偏微分方程所需网格，具有网格自适应和移动网格生成的功能；采用稀疏矩阵存储格式，内存需求少，计算速度快，是求解复杂区域问题的高效计算软件。

2.2 计算模型验证

参照朱仙仙等^[33] 用 4 μL 去离子水在加热温度为 60° 的玻璃表面上的蒸发实验数据，换算得到无量纲参数，各参数取值为： $\varepsilon = 0.1$ ， $A = 0.39$ ， $B = 0.007$ ， $m = 3$ ， $C = -0.004$ ， $Bo = 0.007$ ， $C_a = 0.5$ ， $K = 10$ ， $E = 1 \times 10^{-3}$ ， $\Omega_{\text{lg}} = 0.003$ 。首先，为了验证数值模拟结果的准确性，将接触角和接触线随时间变化的实验结果无量纲化后与模拟值进行对比，结果如图 2(a) 和图 2(b) 所示。可以看出， $\Delta \theta = 0.27$ 时的模拟值与实验结果总体符合良好，即采用考虑接触角迟滞的理论模型可更准确地反映液滴的运动过程。值得注意的是，朱仙仙等^[33] 所给实验结果并未呈现液滴铺展阶段，可能是由此阶段变化

较快、不易观测记录所致; 模拟结果和实验结果有偏差的原因可能是实验时基底加热时受热不均匀或者基底传热能力不一致, 也有可能是基于润滑理论建立模型时, 未考虑液滴蒸气扩散^[34]所致。

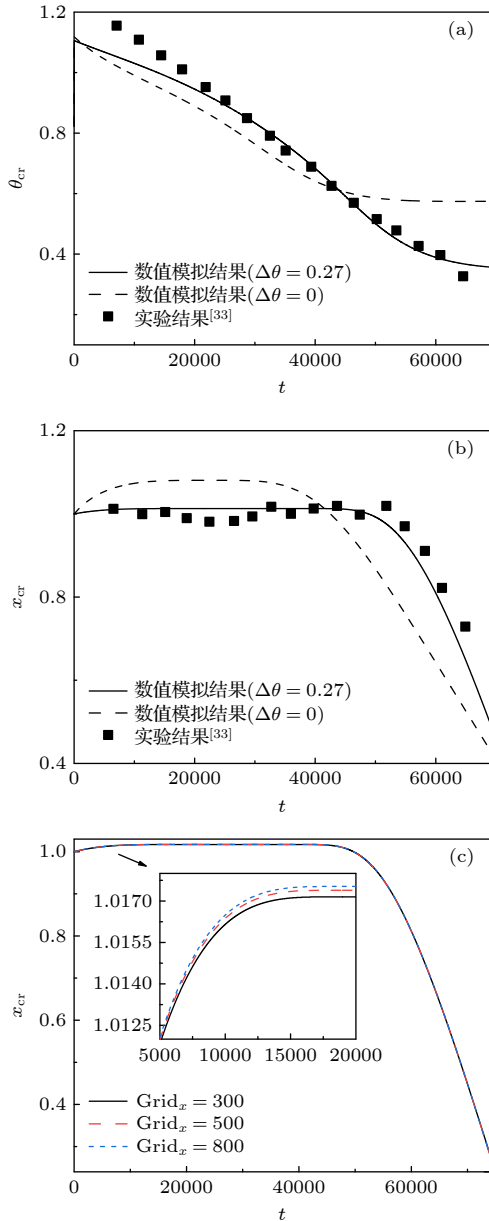


图 2 计算模型的验证 (a) 接触角的演化过程; (b) 接触线的演化过程; (c) 网格无关性验证
 Fig. 2. Verification of the computational model: (a) Evolution of contact angle; (b) evolution of contact line; (c) validation of grid independence.

此外, 模拟时进行了网格无关性验证, 在 x 方向上对比了网格数为 300, 500 和 800 的结果, 发现增加网格数使计算时长增大, 而各特征参数计算结果数值差距不大, 以图 2(c) 的接触线演化过程为例, 网格数为 500 时可同时满足精确性与高效性

的要求. 因此, 计算中时间步长设为 10^{-6} , 将 $[0, 2] \times [0, 1]$ 的计算域划分为 500×2 个均匀网格. 因方程 (27) 是一维的, 液滴厚度 h 与 y 方向无关, 所以为节约计算时间, 在 y 方向仅划分 2 层网格。

3 结果分析

综合朱仙仙等^[33]和 Gatapova 等^[35]的实验数据, 换算得到无量纲参数, 如无特殊说明, 各参数取值如下: $\varepsilon = 0.1$, $A = 0.39$, $B = 0.001$, $m = 3$, $\sigma_{ls,0} = 1$, $C = -0.004$, $Bo = 0.5$, $\beta = 1 \times 10^{-5}$, $\gamma_0 = 0.1$, $C_a = 0.1$, $K = 10$, $E = 1 \times 10^{-3}$, $\Omega_{lg} = 0.003$.

3.1 不同迟滞角的影响

Gatapova 等^[35]和 Chu 等^[36]通过测量不同表面上多种液滴的接触角迟滞特征发现, 迟滞角 $\Delta\theta$ 范围为 $0-90^\circ$. 为保证 $\theta_a > 0$ 和 $\theta_r > 0$, 代入 (30) 式和 (31) 式, 可得 $0 < \Delta\theta < 1.4$; 由于本文初始液滴的表观接触角为 1.1, 为保证蒸发动态过程的完整呈现, 则有 $0 < \Delta\theta < 0.6$. 为探究不同迟滞角对液滴运动过程的影响, 下面选取 $\Delta\theta = 0.27$, 0.35 和 0.40 开展分析, 其他参数保持不变, 因液滴运动过程中始终保持在 $x = 0$ 两侧对称, 下面以右侧特征参数来阐明其动态过程。

图 3—图 5 为液滴演化过程的动态特征. 图 3 表明, 三种情形下的接触角、接触线及其移动速度变化趋势大致相同, 液滴演化过程均可分为液滴铺展、接触线钉扎和去钉扎三个阶段 (图 3(b) 和图 3(c)), 但各阶段的参数变化和持续时间却有明显不同, 各阶段开始时刻及持续时间如表 1 所列, 图 3 中以 $\Delta\theta = 0.27$ 为例用虚线划分各个阶段。

由表 1 可知, $\Delta\theta = 0.27$ 下液滴开始钉扎和去钉扎的时刻分别为 $t = 18910$ 和 $t = 39750$, $\Delta\theta = 0.35$ 下开始钉扎和去钉扎的时刻为 $t = 16530$ 和 $t = 43250$, 而 $\Delta\theta = 0.40$ 下则为 $t = 14620$ 和 $t = 45100$, 即接触线钉扎开始时刻提前, 去钉扎时刻延后. 由此可知, 增大迟滞角, 延长了接触线钉扎时间, 缩短了铺展阶段和去钉扎阶段时长, 同时加快了液滴蒸干历程。

在铺展阶段, 三种迟滞角下的液滴均表现出接触角不断减小至前进接触角 (图 3(a)), 接触线向外铺展 (图 3(b)), 且铺展速度逐渐减慢 (图 3(c)).

不同的是,随着迟滞角的增大,液滴铺展半径和铺展速度减小, $\Delta\theta = 0.40$ 时的最大铺展半径仅为 1.00417, 远小于 $\Delta\theta = 0.27$ 和 $\Delta\theta = 0.35$ 情形. 该阶段液滴铺展直径的增长率通常可表示为 $(x_{cr} - x_{cl})$ 与 t 之间的幂律关系, 三种情形下分别为 $\sim t^{0.004}$, $\sim t^{0.002}$ 和 $\sim t^{0.001}$, 即接触角迟滞降低了铺展速率, 抑制了铺展过程. 另外, $\Delta\theta = 0.4$ 情形下的接触角始终大于其他两种情形, 液滴整体的铺展情况受到了显著抑制.

在钉扎阶段, 三种迟滞角下液滴的接触线均钉扎在最大接触半径处不动, 接触角从前进接触角减小至后退接触角, $\Delta\theta = 0.4$ 情形下的液滴接触角仍高于其他两种情形下的动态接触角, 这是受到铺展阶段的接触角迟滞影响. Bormashenko 等^[37] 通过实验发现, 水滴在迟滞角度约为 50° 的铝表面

的蒸发, 主要以钉扎方式进行. 在本文中, 钉扎阶段的液滴质量快速减少 (图 3(d)), 且 $\Delta\theta = 0.4$ 情形下液滴质量减少了 0.59, 占初始液滴总质量的 44.36%, 高于 $\Delta\theta = 0.27$ 和 $\Delta\theta = 0.35$ 情形的 30.83% 和 39.10%, 即增大接触角迟滞后, 钉扎阶段的液滴蒸发在整个液滴演化过程中起重要作用, 这一结果与 Bormashenko 等^[37] 的实验结论在定性上一致, 且迟滞角越大其影响越明显.

在去钉扎阶段, 三种情形下的接触角呈现不断减小的趋势, 液滴不断收缩, 接触线收缩速率均不断增加. 通过计算拟合得到 $\Delta\theta = 0.27, 0.35$ 和 0.40 情形下的液滴收缩直径 $(x_{cr} - x_{cl})$ 与 t 的幂律关系分别为 $\sim t^{-9.06}$, $t^{-8.61}$ 和 $t^{-7.14}$, 即较大的接触角迟滞加快了液滴收缩速率, 进一步缩短此阶段时长.

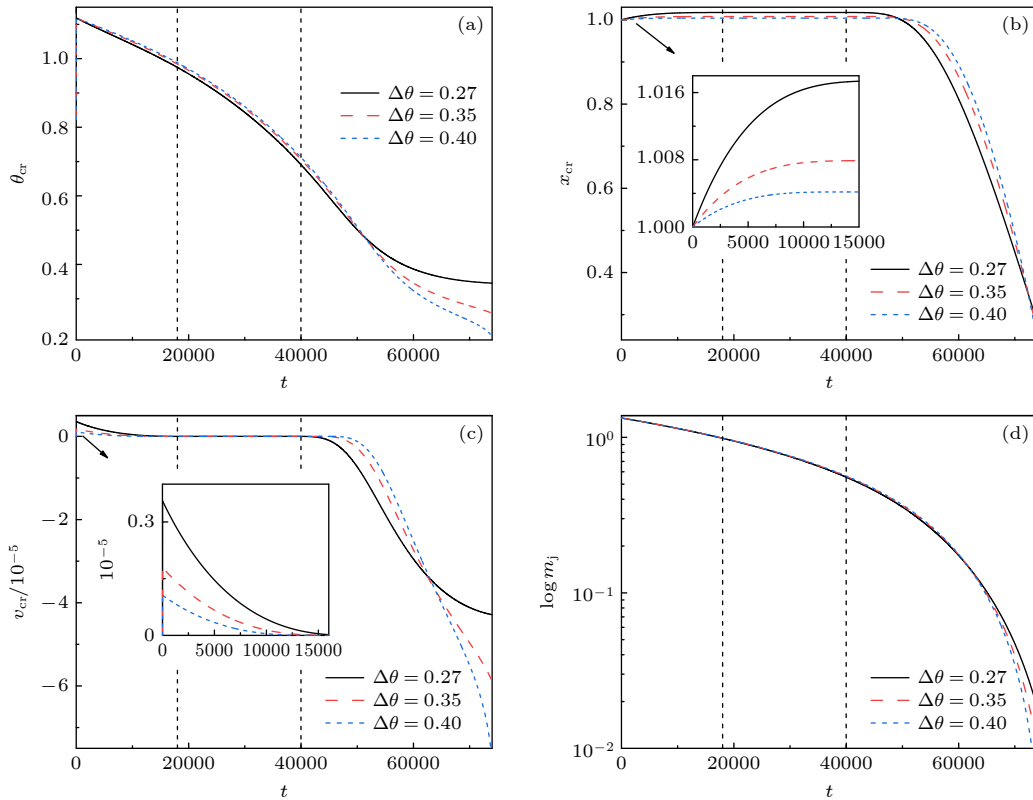


图 3 不同 $\Delta\theta$ 时液滴演化过程中的特征参数变化 (a) 接触角; (b) 接触半径; (c) 接触线移动速度; (d) 蒸发剩余质量
Fig. 3. Characteristic parameters of drop evolution with time at different $\Delta\theta$: (a) Dynamic contact angle; (b) contact line; (c) contact line velocity; (d) remaining mass.

表 1 不同 $\Delta\theta$ 对液滴演化时间的影响

Table 1. Effect of varied $\Delta\theta$ on the drop evolution time.

$\Delta\theta$	钉扎时刻	去钉扎时刻	蒸干时刻	铺展阶段	钉扎阶段	去钉扎阶段
0.27	18910	39750	78000	0—18910	18910—39750	39750—78000
0.35	16530	43250	76200	0—16530	16530—43250	43250—76200
0.40	14620	45100	74600	0—14620	14620—45100	45100—74600

图 3(d) 表明, 接触角迟滞加快了液滴的蒸干过程. 当 $t = 74000$ 时, $\Delta\theta = 0.40$ 情形下的液滴接近蒸干, 此时液滴质量为 0.00479; 而 $\Delta\theta = 0.27$ 和 0.35 时的液滴质量为 0.01805 和 0.01009, 分别约是 $\Delta\theta = 0.27$ 情形下的 3.77 倍和 2.11 倍, 即随着迟滞角的增大, 液滴剩余质量减小 (图 3(d)), 液滴蒸干过程加快.

Brutin 等 [38] 认为液滴蒸发速率与润湿半径和接触角密切相关, 即润湿半径越大、接触角越小, 其蒸发速率越快. 接触角迟滞加快蒸干的原因可归结为: 增大迟滞角使去钉扎阶段的接触角减小, 接触线附近的空气流通阻碍减弱, 同时接触半径增大, 固-液之间接触面积增大, 加强传热, 进而使得液滴蒸干更快.

液滴演化过程如图 4 所示, 由图 4(a) 可知, 在铺展阶段, 随着迟滞角的增大, 液滴铺展半径缩小, 液滴厚度增大, 但因该阶段液滴表面温度较低, 蒸发速率较慢, 不同迟滞角下的液滴轮廓差异并不显著. 图 4(b)—图 4(d) 表明, 在去钉扎阶段, 当迟滞角增大时, 液滴收缩速度加快, 液滴厚度减小. 随着时间的推移, 液滴表面温度提高, 蒸发速率也不同程度地增大, 液滴轮廓逐渐显出差异常; 由图 4(d)

可知, $t = 74000$ 时, $\Delta\theta = 0.27, 0.35$ 和 0.40 下的液滴收缩半径分别为 0.2798, 0.2579 和 0.2352, 液滴高度分别为 0.04825, 0.0291 和 0.01496, 即迟滞角越大, 液滴收缩半径和高度都越小.

图 5 比较了三种迟滞角下动态接触角与接触线移动速度间的对应关系. 可以看出, 迟滞角对铺展、钉扎和去钉扎阶段等全过程均有不同程度的影响, 在钉扎阶段, $\Delta\theta = 0.27$ 下的液滴前进接触角和后退接触角分别为 $\theta_a = 0.966$ 和 $\theta_r = 0.696$, $\Delta\theta = 0.35$ 和 0.40 下液滴对应于 $\theta_a = 0.997$, $\theta_r = 0.647$ 和 $\theta_a = 1.016$, $\theta_r = 0.616$. 如表 2 所列, 随着迟滞角的增大, 前进接触角增大, 后退接触角减小, 后退接触角减小的幅度大于前进接触角增大的幅度, 这与 Karapetsas 等 [21] 的研究结果一致. 因此, 可通过改变迟滞角来改变前进、后退接触角, 控制接触线钉扎时间, 从而调控液滴蒸发.

表 2 不同迟滞角下 θ_a 和 θ_r 变化
Table 2. Variation in θ_a and θ_r of drop with different $\Delta\theta_s$.

$\Delta\theta$	θ_a	θ_r	$\Delta\theta_a$	$\Delta\theta_r$
0.27	0.966	0.696	0.106	-0.164
0.35	0.997	0.647	0.031	-0.049
0.40	1.016	0.616	0.019	-0.031

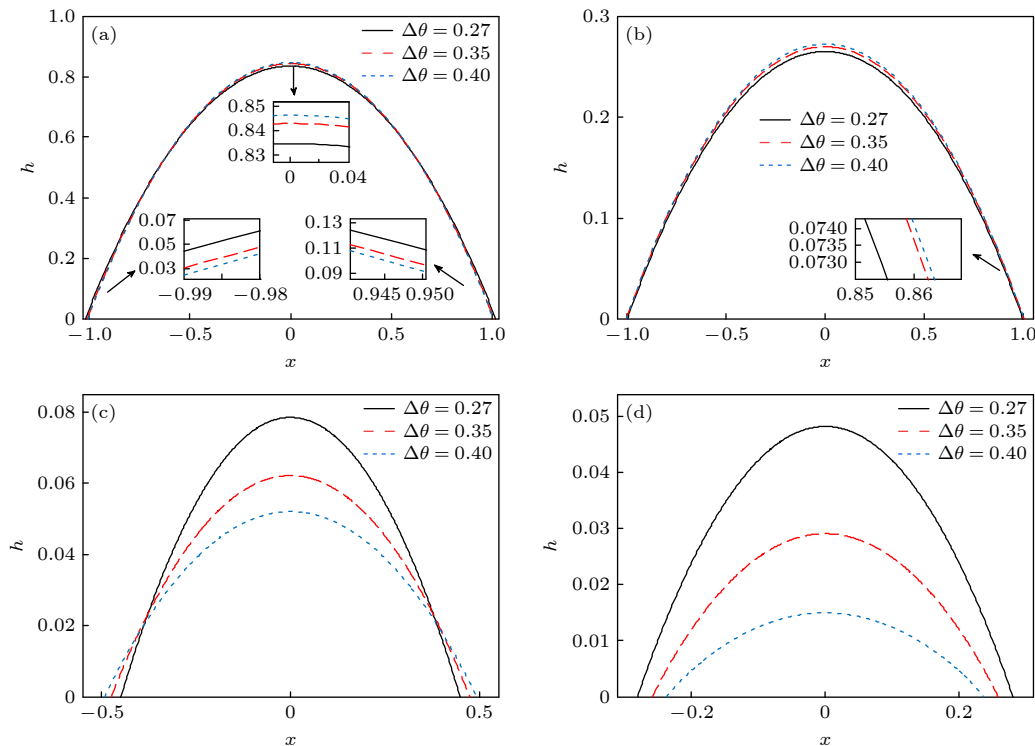


图 4 液滴演化过程轮廓图 (a) $t = 10000$; (b) $t = 50000$; (c) $t = 70000$; (d) $t = 74000$

Fig. 4. Drop profile during the drop evolution process: (a) $t = 10000$; (b) $t = 50000$; (c) $t = 70000$; (d) $t = 74000$.

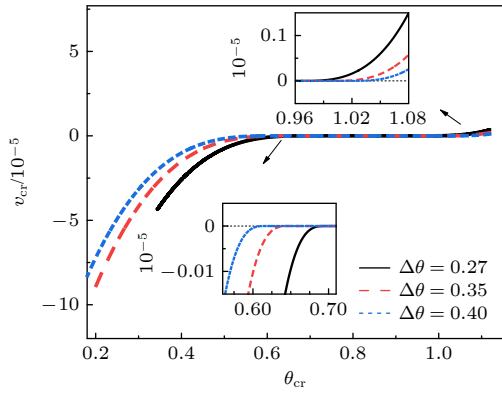


图 5 动态接触角与接触线移动速度关系图

Fig. 5. Relation between the dynamic contact angle and velocity of contact line.

3.2 不同气-液界面张力温度敏感性的影响

为探讨气-液界面张力对温度的敏感性(以下简称温度敏感性)对液滴蒸发的影响,将 Ω_{lg} 由 0.003 增至 0.005 和 0.01, 其他参数不变, $\Delta\theta$ 分别设置为 0 和 0.27. $\Delta\theta = 0$ 表示不考虑接触角迟滞的情形. 图 6 给出了有无迟滞两种情况下, 不同温度敏感性系数对液滴蒸发时的特征参数变化的影响. 图 6 中以 $\Omega_{lg} = 0.003$, $\Delta\theta = 0.27$ 为代表用虚

线划分各个阶段, 可以清晰地看出, 考虑接触角迟滞与否对液滴蒸发是有影响的, 以 $\Omega_{lg} = 0.003$ 的情况为例, 在液滴铺展阶段, $\Delta\theta = 0$ 时的液滴铺展半径变化速率明显高于 $\Delta\theta = 0.27$ 的情况, 接触角迟滞显著降低了铺展速度, 抑制了铺展过程, 此时 $\Delta\theta = 0.27$ 时的液滴铺展半径相对 $\Delta\theta = 0.27$ 情形较小, 而 $\Delta\theta = 0.27$ 情形下的接触角始终大于 $\Delta\theta = 0$ 的接触角, 液滴整体的铺展情况受到了显著抑制. 受接触角迟滞的影响, 液滴钉扎时间显著增大, 接触角仍然较大. 在去钉扎阶段, 接触角迟滞加快了液滴收缩速率和接触角减小速率, 从而加快蒸发.

三种温度敏感性下的液滴演化历程如图 6 所示, 接触角、接触线及其移动速度变化趋势大致相同. 图 6(a) 表明, 提高 Ω_{lg} 后液滴在三个阶段的动态接触角均减小, 而液滴铺展半径(图 6(b)) 和铺展速度(图 6(c)) 增大, 致使钉扎时 $\Omega_{lg} = 0.01$ 的液滴接触线更大, 液滴蒸发更快. 在去钉扎阶段, 液滴的收缩速度随 Ω_{lg} 的增加而加快, 接触线半径快速减小, 但此阶段 $\Omega_{lg} = 0.01$ 的液滴接触角远小于其他两种情形, 液滴质量(图 6(d)) 仍快速减小,

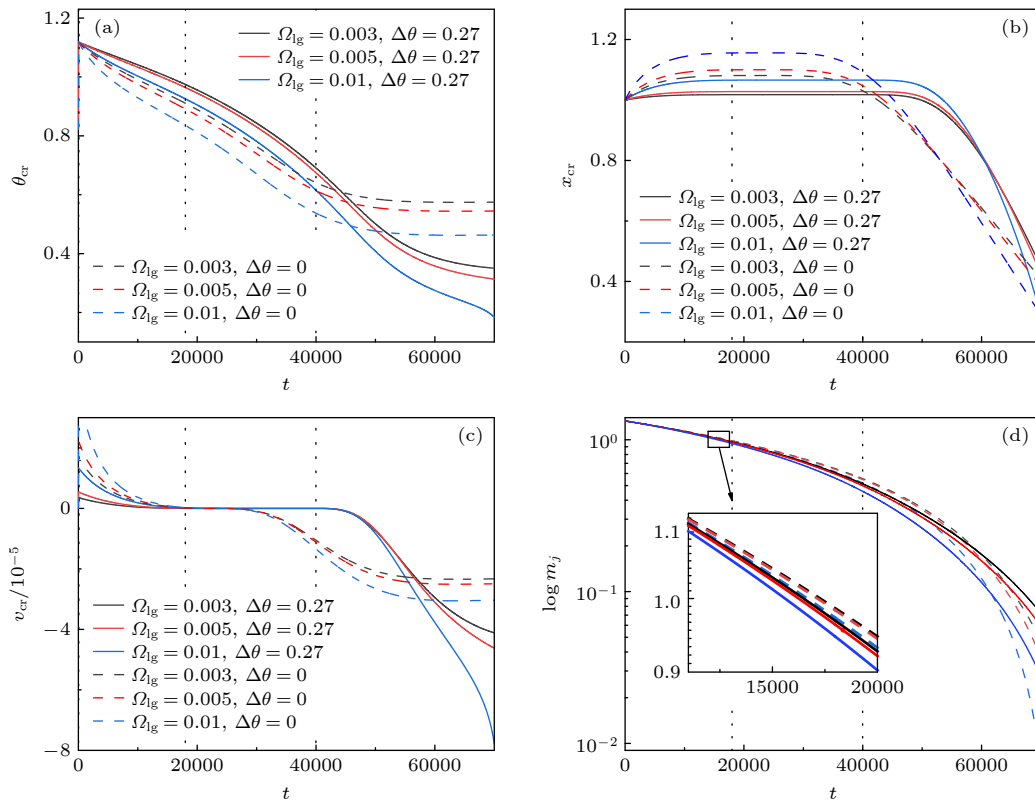


图 6 液滴演化过程中的特征参数变化 (a) 接触角; (b) 接触半径; (c) 接触线移动速度; (d) 蒸发剩余质量

Fig. 6. Characteristic parameters of drop evolution with time: (a) Dynamic contact angle; (b) contact line; (c) contact line velocity; (d) remaining mass.

直至 $t = 71000$ 完全蒸干, 比 $\Omega_{lg} = 0.003$ 和 $\Omega_{lg} = 0.005$ 的蒸干时间分别快约 10% 和 7%.

液滴铺展、钉扎和去钉扎三个阶段的重要时间参数及角度参数如表 3 所列. 与增加接触角迟滞影响不同的是, Ω_{lg} 增加后, 液滴的 θ_e , θ_a 和 θ_r 均减小, 强化液滴在壁面上的润湿效果, 液滴传热也得以加强, 液滴蒸发加快. 接触线开始钉扎和去钉扎时刻延后, 这是由于达到较小的 θ_a 和 θ_r 需要一定时间. 在 3.1 节中, 增加 $\Delta\theta$ 时, θ_a 增大, θ_r 减小, 液滴蒸发同样加快, 因此通过增加接触角迟滞, 亦或提高气-液界面张力对温度的敏感性, 均可以减小后退接触角, 从而实现液滴的快速蒸干. 这一结论与 Kulinich 和 Farzaneh^[15] 所提出的固着水滴的蒸发行为受润湿滞后 (或后退接触角) 控制是相符的.

表 3 不同 Ω_{lg} 时液滴演化过程中参数变化
Table 3. Varieties of parameters during drop evolution with different Ω_{lg} .

Ω_{lg}	钉扎时刻	去钉扎时刻	蒸干时刻	θ_e	θ_a	θ_r
0.003	18910	39750	78000	0.860	0.966	0.686
0.005	20280	40140	76700	0.837	0.942	0.672
0.01	22200	40260	71000	0.775	0.880	0.610

4 结 论

接触角迟滞对液滴蒸发有重要影响, 可加快液滴蒸发进程. 接触角迟滞对液滴蒸发的三个阶段 (液滴铺展、接触线钉扎和去钉扎阶段) 均有不同程度的影响, 考虑接触角迟滞后, 接触线钉扎时间延长, 铺展阶段和去钉扎阶段时长缩短. 在液滴铺展阶段, 迟滞角的增大使液滴铺展速度降低, 铺展半径减小, 铺展受到抑制; 接触角迟滞可延长接触线钉扎时间, 维持一定的固-液接触面积, 增强传热, 从而加快蒸发. 此外, 接触角迟滞使去钉扎阶段的动态接触角减小, 液滴整体呈扁平状, 气-液界面接触面积大, 加快蒸发进行, 由此液滴收缩速率增加, 进一步缩短去钉扎阶段的时长.

接触线开始钉扎和去钉扎时液滴分别达到前进接触角和后退接触角, 随着迟滞角的增加, 前进接触角增大, 后退接触角减小, 且后退接触角减小的幅度大于前进接触角增大的幅度. 通过改变接触角迟滞有利于调控液滴运动, 从而控制蒸发.

与增加接触角迟滞不同的是, 气-液界面张力敏感性系数增加后, 液滴的平衡接触角、前进接触

角和后退接触角均减小, 强化了液滴在壁面上的润湿效果, 液滴传热也得以加强, 液滴蒸发加快. 结合液滴蒸发过程的动态特性, 通过增加接触角迟滞或气-液界面张力对温度的敏感性将减小后退接触角, 进而加快液滴蒸干进程.

参考文献

- [1] Kavehpour P, Ovryn B, McKinley G H 2002 *Colloids Surf., A* **206** 409
- [2] Lee K S, Ivanova N, Starov V M, Hilal N, Dutschk V 2008 *Adv. Colloid Interface Sci.* **144** 54
- [3] Wijshoff H 2010 *Phys. Rep.* **491** 77
- [4] Putnam S A, Briones A M, Byrd L W, Ervin J S, Hanchak M S, White A, Jones J G 2012 *Int. J. Heat Mass Transfer* **55** 5793
- [5] Ye X M, Zhang X S, Li M L, Li C X 2018 *Phys. Fluids* **30** 112103
- [6] Lopes M C, Bonaccorso E 2012 *Soft Matter* **8** 7875
- [7] Kiper I, Fulcrand R, Pirat C, Simon G, Stutz B, Ramos S M M 2015 *Colloids Surf., A* **482** 617
- [8] Eral H B, Manette D, Oh J M 2013 *Colloid. Polym. Sci.* **291** 247
- [9] Neumann A W, Good R J 1972 *J. Colloid Interface Sci.* **38** 341
- [10] Johnson R E, Dettre R H 1964 *Contact Angle, Wettability, and Adhesion* (Washington: American Chemical Society) pp112–135
- [11] Dettre R H, Johnson R E 1964 *Contact Angle, Wettability, and Adhesion* (Washington: American Chemical Society) pp136–144
- [12] Yu H Z, Soolaman D M, Rowe A W, Banks J T 2004 *ChemPhysChem* **5** 1035
- [13] Li Y F, Sheng Y J, Tsao H K 2013 *Langmuir* **29** 7802
- [14] Trybala A, Okoye A, Semenov S, Agogo H, Rubio R G, Ortega F, Starov V M 2013 *J. Colloid Interface Sci.* **403** 49
- [15] Kulinich S A, Farzaneh M 2009 *Appl. Surf. Sci.* **255** 4056
- [16] Lin T S, Zeng Y H, Tsay R Y, Lin S Y 2016 *J. Taiwan Inst. Chem. Eng.* **62** 54
- [17] Kuznetsov G V, Feoktistov D V, Orlova E G, Batishcheva K A 2016 *Colloid J.* **78** 335
- [18] Ajaev V S 2005 *J. Fluid Mech.* **528** 279
- [19] Masoud H, Felske J D 2009 *Phys. Rev. E* **79** 016301
- [20] Semenov S, Starov V M, Rubio R G, Agogo H, Velarde M G 2012 *Math. Modell. Nat. Phenom.* **7** 82
- [21] Karapetsas G, Sahu K C, Matar O K 2013 *Langmuir* **29** 8892
- [22] Ye X M, Zhang X S, Li M L, Li C X, Dong S 2019 *Int. J. Heat Mass Transfer* **128** 1263
- [23] Ye X M, Li Y K, Li C X 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 104704 (in Chinese) [叶学民, 李永康, 李春曦 2016 物理学报 **65** 104704]
- [24] Karapetsas G, Craster R V, Matar O K 2011 *J. Fluid Mech.* **670** 5
- [25] Jiao Y L, Liu X J, Pang M H, Liu K 2015 *Acta Phys. Sin.* **65** 016801 (in Chinese) [焦云龙, 刘小君, 逢明华, 刘焜 2015 物理学报 **65** 016801]
- [26] Nagy M, Škvarla J 2013 *Acta Montan. Slovaca* **18** 125
- [27] Wang X D, Peng X F, Wang B X 2003 *Chin. J. Chem. Eng.* **11** 174 (in Chinese) [王晓东, 彭晓峰, 陆建峰, 王补宣 2003 应用基础与工程科学学报 **11** 174]
- [28] Smith M K 1995 *J. Fluid Mech.* **294** 209

- [29] Craster R V, Matar O 2000 *J. Fluid Mech.* **425** 235
- [30] Ma C, Liu J, Xie S, Liu Y 2020 *Chem. Eng. Sci.* **214** 115418
- [31] Vasu B, Dubey A, Bég O A, Gorla R S R 2020 *Comput. Biol. Med.* **126** 104025
- [32] Jiménez Bolaños S, Vernescu B 2017 *Phys. Fluids* **29** 057103
- [33] Zhu X X, Min C H, Guo Y H, Wang K, Xie L Y 2021 *J. Therm. Sci. Tech.* **20** 28 (in Chinese) [朱仙仙, 闵春华, 郭宇虹, 王坤, 解立垚 2021 热科学与技术 **20** 28]
- [34] Hu H, Larson R G 2005 *Langmuir* **21** 3963
- [35] Gatapova E Y, Semenov A A, Zaitsev D V, Kabov O A 2014 *Colloids Surf., A* **441** 776
- [36] Chu F, Wu X, Zhu Y, Yuan Z 2017 *Int. J. Heat Mass Transfer* **111** 836
- [37] Bormashenko E, Musin A, Zinigrad M 2011 *Colloids Surf., A* **385** 235
- [38] Brutin D, Sobac B (Brutin D Ed.) 2015 *Droplet Wetting and Evaporation* (Oxford: Academic Press) pp25–30

Effect of contact angle hysteresis and sensitivity of gas-liquid interfacial tension to temperature of a sessile-drop on evaporation dynamics^{*}

Li Chun-Xi Cheng Ran Ye Xue-Min[†]

(Department of Power Engineering, North China Electric Power University, Baoding 071003, China)

(Received 8 February 2021; revised manuscript received 16 May 2021)

Abstract

The evaporation process of drops on a solid surface is widely applied to daily life and industrial fields. Both contact angle hysteresis and the sensitivity of gas-liquid interfacial tension to temperature are important factors affecting the drop evaporation reflected in the contact line and contact angle. To investigate the internal mechanism, according to the lubrication theory and slip boundary conditions, we establish a mathematical model of the drop evaporation on a uniformly heated solid wall with considering the effect of contact angle hysteresis. This model is numerically solved by using a coordinate transformation method and Freefem++14.3, a highly efficient solver. The accuracy of the numerical calculation method is verified by comparing the numerical results with experimental results, and the grid independence is validated. The effect of contact angle hysteresis on the dynamics of evaporating drops is discussed, and the evaporation characteristics of drops with different tension sensitivities of the air-liquid interface to temperature are further investigated. The results show that the contact angle hysteresis has an apparent influence on the drop evaporation process which includes drop spreading stage, contact line pinning stage, and depinning stage. In the drop spreading stage, the increase in the hysteresis angle shortens the spreading time, and reduces the spreading velocity and radius, while in the contact line pinning stage, the pinning time is prolonged and the reduction of drop mass is significantly increased with hysteresis angle increasing. In the contact line depinning stage, the contact angle hysteresis reduces the contact angle, and a flatter shape emerges, thereby enhancing the ability to transfer heat and accelerating evaporation as well as shortening the depinning time. In addition, the large hysteresis angle leads to a large advancing contact angle and a small receding contact angle. The reduction in receding contact angle is more notable than the increment of advancing contact angle. The temperature sensitivity coefficient of the gas-liquid interfacial tension can be increased by reducing the receding contact angle, thereby improving the wettability of the drops on the wall enhancing the heat transfer and accelerating the evaporation. Regulating the contact angle hysteresis and the sensitivity of the interfacial tension to temperature can realize the manipulation of the drop movement, thus controlling the evaporation process.

Keywords: drop evaporation, dynamics, contact angle hysteresis, sensitivity of air-liquid interfacial tension to temperature

PACS: 47.61.-k, 47.10.A-, 47.55.np, 47.55.N-

DOI: 10.7498/aps.70.20210294

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51876065).

[†] Corresponding author. E-mail: yexuemin@163.com