

疏水表面上固着双液滴相互作用的实验研究

严 晗, 单彦广*, 翁志浩

上海理工大学能源与动力工程学院, 上海

收稿日期: 2022年3月12日; 录用日期: 2022年5月3日; 发布日期: 2022年5月9日

摘 要

本文通过实验观察成对液滴在疏水表面上蒸发过程, 研究了成对液滴对于液滴蒸发的影响。将一对同样液滴放置在聚二甲基硅氧烷(PDMS)基板上, 分析液滴之间的间距对双液滴蒸发造成的影响。实验结果表明, 两个液滴之间的距离越小, 对蒸发的抑制越强烈, 单侧液滴呈现非对称状态, 其靠近另一个液滴的一侧受到蒸发抑制明显, 并且随着蒸发的进行与分离距离的增加, 液滴之间的抑制作用逐渐降低。进一步探究了不同表面上液滴蒸发时间的规律, 定义了蒸发速率校正因子 K 来确定双液滴蒸发的速率及特性。随后还讨论了不同表面上成对液滴蒸发速率校正因子的变化。本文的重点是在临界分离尺度下 K (接近单液滴极限)的渐近行为。

关键词

成对液滴, 不对称性, 蒸发抑制, 分离距离, 蒸发速率

Experimental Study on the Interaction of Sessile Double Droplets on Hydrophobic Surface

Han Yan, Yanguang Shan*, Zhihao Weng

School of Energy and Power Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai

Received: Mar. 12th, 2022; accepted: May 3rd, 2022; published: May 9th, 2022

Abstract

The evaporation process of sessile double droplets on hydrophobic surface was observed experimentally, and the effect of sessile double droplets on droplet evaporation was studied. Sessile

*通讯作者。

double droplets are placed on the PDMS substrate. By changing the distance between the two droplets, the influence of the distance between the droplets on the evaporation of the two droplets is analyzed. The experimental results show that the smaller the distance between two droplets, the stronger the inhibition of evaporation. One side of the droplet presents an asymmetric state, and the side close to the other droplet is significantly inhibited by evaporation, and the inhibition between droplets decreases gradually with the progress of evaporation. Then, the experiment further explored the law of droplet evaporation time on different surfaces, and defined the evaporation rate correction factor K to determine the rate and characteristics of double droplet evaporation. The variation of double droplet evaporation rate correction factor on different surfaces is also discussed subsequently. The highlight of this paper is the asymptotic behavior of K (close to the single droplet limit) at the critical separation scale.

Keywords

Double Droplet, Asymmetric, Evaporation Inhibition, Separation Distance, Evaporation Rate

Copyright © 2022 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

固着液滴的蒸发，是一种随处可见的物理现象，在人类的生产生活中有着广泛的应用。如喷墨打印[1]、喷涂[2]、微流体设备[3]、微尺度 DNA 分析[4]、喷雾冷却[5]、DNA 制图[6]以及芯片上的实验室设备[7]等。大量学者对成对液滴的蒸发进行了实验和理论研究，Sreznnevsky 提出结论：液滴的蒸发速率随着液滴受到的蒸汽压的增加而增加[8] [9]。Whyman 等[10]在他们的论文中提出了一个计算重液滴形状和接触角的模型。1962 年 Mangel 和 Baer 研究了疏水聚四氟乙烯聚合物表面水滴的蒸发[11]。根据分析，液滴的接触角在蒸发的初始阶段不断减小，直至一不变的值，此时液滴的润湿面积保持不变，然后随着蒸发的进行，润湿面积不断收缩，而接触角和液滴形状保持不变[11]。Picknett 和 Bexon [12]结合 Mangel 的研究，将液滴的蒸发模式概括为以下三种：第一种是接触面积递减的恒接触角蒸发模式(CCA)，第二种是接触面积恒定的恒接触模式(CCR) [12] [13] [14] [15]，第三种是混合(MM)蒸发模式，在这种模式下，液滴的接触角和接触半径同时发生变化，这是一篇具有划时代意义的论文，人们对液滴的蒸发有了更加深入的了解。Shanahan 等对 CCR 阶段的球冠型几何的扩散蒸发模型进行了推导和计算[16] [17]。Erbil 等研究证实了液滴蒸发过程中，蒸发模式的存在及变化，并发现液滴接触半径的平方和液滴高度的平方随蒸发时间基本呈线性下降[18]。Grandas 在其后的研究中对液滴三相接触线运动进行了观察，研究发现液滴与基板形成的三相接触线上的蒸发过程由于重力和表面张力的影响，具有很大的局域性，受到许多因素影响其运动，尤其是曲率半径[19]。Bigioni 等人将液滴蒸发这一课题应用于工业工程中，控制液滴的蒸发过程使其产生有规律的纳米颗粒沉积[20]。Carles 等[21]研究了放置在载玻片上的相邻两滴聚二甲基硅氧烷(PDMS)和反癸酸的行为，Cira 等[22]研究了相邻的丙二醇和水的两个液滴之间的排斥力和吸引力。Karpitschka 等人[23]他们通过实验和数值研究发现，在相邻的液滴存在下，NaCl 水溶液的单个液滴内部的对称流动模式变得不对称。Shaikkea 等[24]他们观察到一对液滴与单个液滴相比显示出不对称的接触角。他们还发现相邻液滴的存在会抑制液滴的蒸发。翁志浩等采用格子 Boltzmann 方法模拟了固着基板上双液滴的蒸发过程，研究了基板润湿性及液滴间距对双液滴蒸发过程的影响[25]。胡晓玮等发现基板

温度对蒸发液滴内部 Marangoni 对流有显著的影响[26]。

对于单个液滴的蒸发特性的研究已经取得了一定的成果，但是对于在不同疏水表面上固着双液滴的蒸发特性却未有太多深入的研究。因此，本文提出了一个蒸发速率校正因子来预测双液滴的蒸发速率，并探究了表面粗糙度与该校正因子的关系。另外，本文预测了液滴相互作用的极限情况。进一步的实验数据验证了当前理论对液滴阵列扩展尺寸的适用性，为阵列液滴蒸发的深入研究提供了一定的思路和数据分析支持。

2. 实验研究

2.1. 材料与仪器

本次实验采用 rame-hart 有限公司的 500 型动/静态接触角测量仪来对液滴的蒸发过程进行观察记录，所使用的实验装置如图 1 所示，主要包括光源、温控箱、固体基板、标准 CCD 摄像机及计算机。实验采用 5 μL 的上海高鸽牌平头微量进样器，针头直径 0.7 mm，实验前将针头用表面改性剂进行疏水化处理，干燥后用来进行实验滴定。实验表面采用聚二甲基硅氧烷(PDMS)薄膜，静态接触角为 $115^\circ \pm 5^\circ$ ，具有低后退接触角($<10^\circ$)，无毒和无化学反应等特性；气体扩散层(Gas Diffusion Layer, GDL)表面，静态接触角为 $140^\circ \pm 5^\circ$ ；微孔层(Micro pore layer, MPL)表面，静态接触角为 $150^\circ \pm 5^\circ$ ；超疏水表面：静态接触角为 $150^\circ \pm 5^\circ$ ，与 MPL 表面不同的是，这种超疏水表面是通过旋涂纳米颗粒制成的，具有较大的后退接触角；单晶硅片：静态接触角为 $50^\circ \pm 5^\circ$ ，为亲水表面。实验试剂为去离子水，环境温度为 25°C ，相对湿度为 49%。

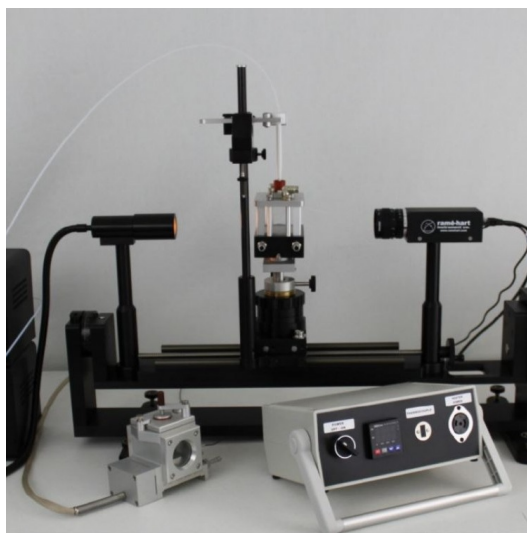


Figure 1. Schematic diagram of the experimental setup

图 1. 实验装置示意图

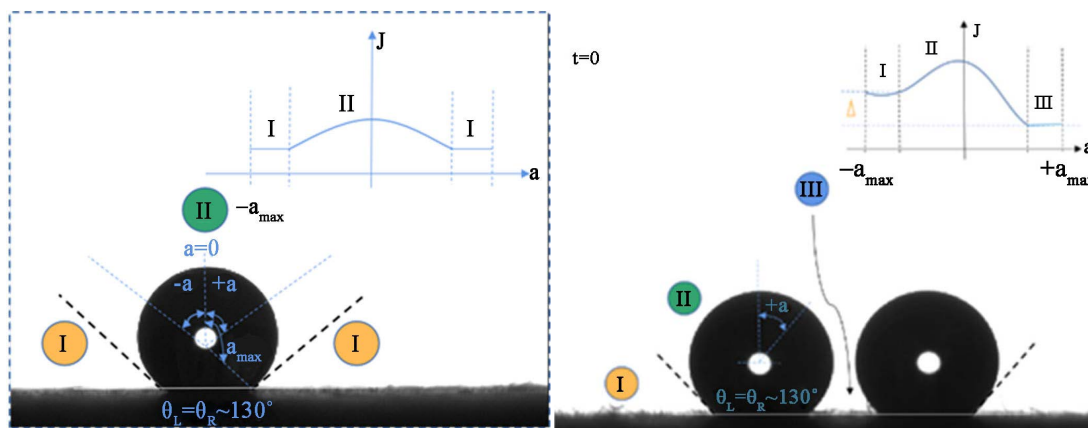
2.2. 实验过程

将一对去离子水液滴($3.2 \mu\text{L} \pm 0.1 \mu\text{L}$)以最小但不融合的间距放置在基板上。记录液滴的蒸发情况。并将所记录的数据导入 Origin 中进行处理。利用网格纸调整两个液滴之间的距离，继续进行实验，并记录对应数据，直到两个液滴的蒸发模式类似与单个液滴，即两个液滴之间的相互影响可以忽略不计。同时也进行单液滴实验对照，以确定成对液滴基本的蒸发规律。

3. 结果与分析

3.1. 蒸发过程

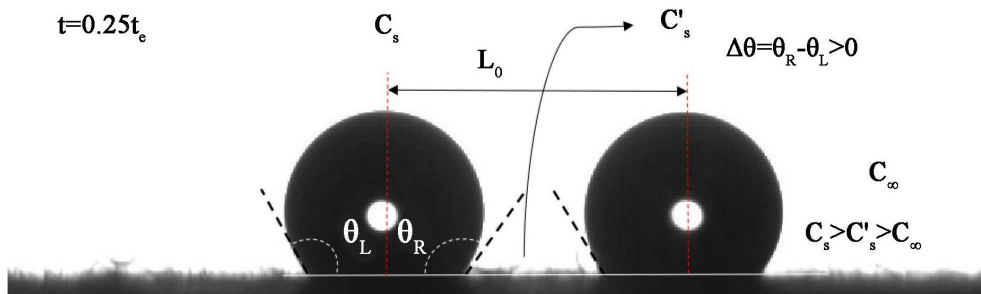
相邻放置的一对固着液滴的蒸汽动力学与单个液滴显著不同，这些差异按时间顺序表现(本文中提提到成对液滴中的单个液滴均为右侧液滴)。如图 2(a)所示，液滴周围的蒸发通量是对称但不均匀的，接近接触线处蒸发通量最小，越靠近顶部蒸发通量越大。图 2(b)为一对液滴的示意图，三个区域分别表示为 I、II、III，代表了根据蒸发通量的空间不均匀性划定的不同区域，其中 L_0 为成对液滴的中心距，区域 III 代表最高的水蒸汽浓度，因此此时的蒸发通量最低，该互锁区域类似于沿着液滴外围延伸的圆锥台。与单个液滴不同，区域 III 的蒸发通量比区域 I、II 低得多。由于空间的限制，在区域 III 中形成了与周围环境 C_∞ 相比具有相对较高湿度的中间蒸汽浓度(图 2(c))。在初始的蒸发阶段，区域 III 变得明显充满水蒸汽，并抑制了以扩散为主的蒸发。来自液滴空间上不均匀的蒸发(I~III 区域)也会导致蒸发过程中接触角的不对称(图 2(c))。随着蒸发的进行，液滴表面之间的有效分离距离 L_0/D 增加。在总蒸发时间达到 60% 时，液滴之间的互锁圆锥区域变宽(图 2(d))，导致空间约束松弛，接触角恢复对称，此时区域 III 的蒸发通量接近区域 II，此后液滴将会继续以这种趋势进行蒸发，与单个液滴的蒸发趋势类似。在总蒸发时间 65% 左右，瞬时接触角减小到 90° 以下(图 2(d))。对于成对液滴出现蒸发抑制现象，接触线的动力学特性与液滴上的其他位置也存在明显不同。在 PDMS 表面上，右边缘的接触线缓慢滑动，而右接触角几乎保持不变。而左边缘的接触线类似于单个液滴的蒸发趋势，处于连续的滑动状态。由于连续的滑动，分离增加并且液滴之间的饱和蒸汽被松弛。当 L_0/D 为 1.87 时，接近单液滴行为。随后，左右接触角以相等的速率减小，左右接触线连续滑动，直到体积减小为 0。



(a) 单个液滴蒸发，蒸发通量的变化

(b) 双液滴蒸发时，蒸发通量的变化

$t=0.25t_e$



(c) 在 $t = 0.25t_e$ 处不对称观察到接触角并在区域 III 中形成了蒸汽穹顶



(d) 在 $t = t_e$ 时, 蒸发类似于单个固着液滴, 液滴彼此后退并相互排斥

Figure 2. Evaporation of deionized water droplets on PDMS substrate
图 2. PDMS 基板上去离子水液滴的蒸发

3.2. 蒸发模式

液滴的蒸发会导致接触半径和接触角的变化, 固着纯组分液滴在亲水表面上经历两种基本的蒸发模式即恒定接触角(CCA)和恒定接触半径(CCR)。除此之外, 三相接触线的粘滑运动可能会导致混合蒸发模式(MM)。在这种模式下, 接触半径以及接触角在液滴的蒸发过程中都会发生变化。在本研究中 PDMS 基板上的液滴大多数蒸发时间表现出 CCA 模式。根据 Basu 的研究结果[24]及本课题组葛瑶和单彦广[27]及金艳艳和单彦广[28]对于疏水表面液滴蒸发的实验探索可以看到, 疏水表面上的纯水液滴蒸发会经历四个蒸发阶段三种模式, 即铺展阶段、第二蒸发阶段、第三蒸发阶段、第三蒸发阶段, 其中第二、第三、第四蒸发阶段分别对应上述的 CCR 与 CCA 和 MM 三种蒸发模式。

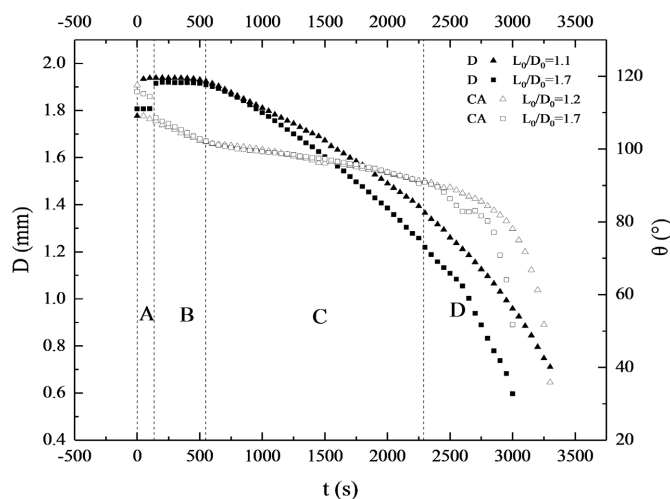


Figure 3. Changes of Contact Angle (CA) and Contact Radius (CR)
图 3. 接触角(CA)和接触半径(CR)的变化

首先, 液体铺展阶段, 这一阶段接触半径增大, 接触角减小, 是液滴刚滴落到表面时的一个短期稳定过程, 液滴相对于环境达到平衡状态, 即图 3 中的 A 阶段; 第二蒸发阶段, 液滴蒸发模式近似为 CCR 模式。这一阶段由于 PDMS 表面的弱钉扎性, 容易发生粘滑, 所以持续时间较短, 约占整个蒸发时间的 12%。即图 3 中的 B 阶段; 第三蒸发阶段, 由于两个液滴之间的相互影响和液滴空间上的蒸发通量不均匀, 液滴接触角随时间的变化较小, 即图中的 C 阶段, 持续时间较长, 占整个蒸发时间的 50%; 第四阶段, 随着蒸发的进行, 两个液滴之间的距离逐渐变大, 对蒸发的抑制减小, 液滴的接触角减小到 90° 以下, 蒸发模式与亲水表面类似, 接触半径和接触角快速减小, 直至体积为 0。如图中的 D 阶段, 持续时间约占蒸发时间的 34%。

3.3. 蒸发特性

疏水表面上双液滴的蒸发过程与单液滴的蒸发过程有着显著的差异，由于另一滴滴的存在，两个液滴之间的相互作用会使得液滴蒸发特性变得有所不同。

为了减小实验环境等带来的误差，本次实验采用无量纲化的方法来处理数据，其中 t_e 表示对应单个液滴的蒸发时间。初始成对液滴中心的分离值(L_0/D_0)不同，蒸发寿命也有所不同。随着 L_0/D_0 从 1.1 增加到 1.7，蒸发速率逐渐提高，单个液滴在疏水表面蒸发的蒸发速率是液滴接触角和接触半径的函数[27]：

$$\frac{dV}{dt} = -\beta F(\theta) R(t) \quad (1)$$

式中， V 为液滴体积； β 为常数系数； $R(t)$ 为液滴在表面上接触半径随时间的变化关系； $F(\theta)$ 为接触角的函数；液滴蒸发速率的快慢和蒸发过程中接触半径、接触角的变化成直线关系。

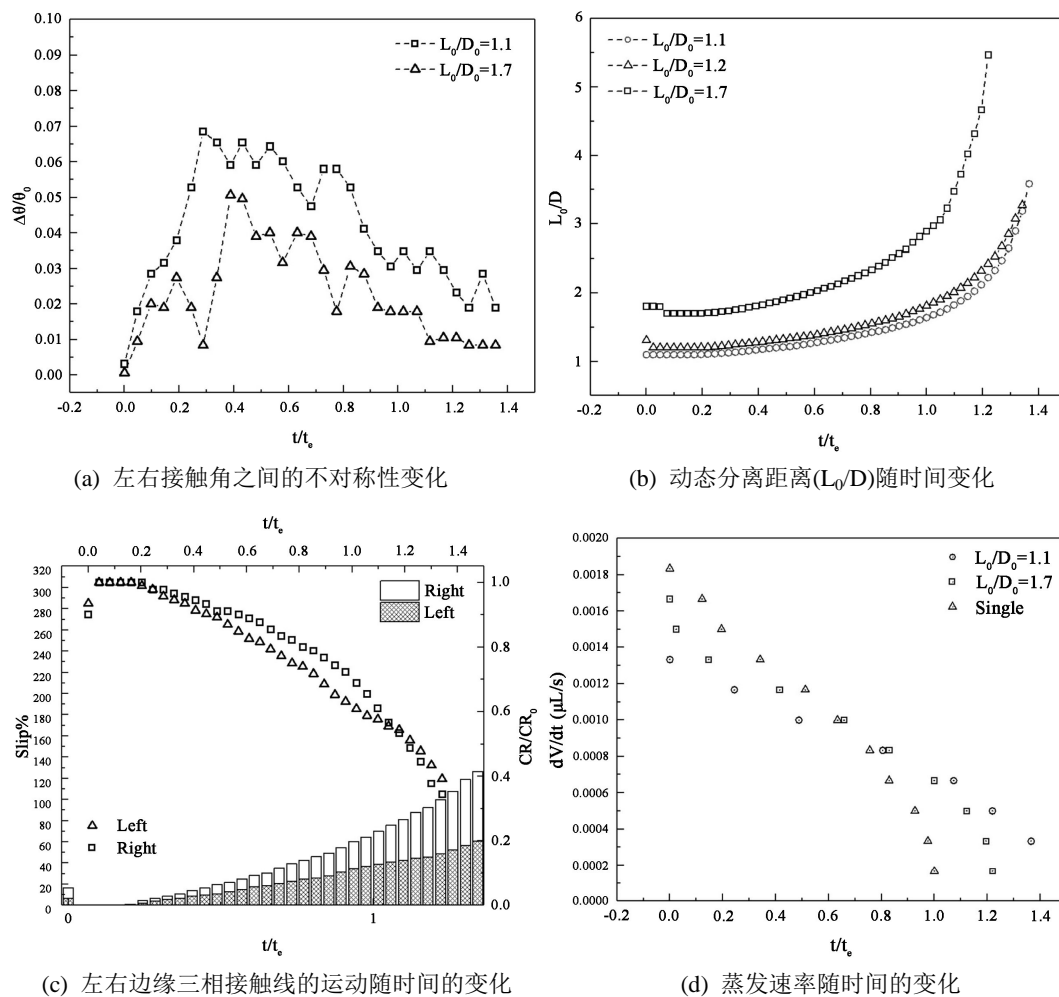


Figure 4. Variation of droplet physical parameters with dimensionless time t/t_e for different L_0/D_0

图 4. 对于不同的 L_0/D_0 ，液滴物理参数随无量纲时间 t/t_e 的变化

由图 4(a)可以看出成对液滴的不对称蒸发。在整个蒸发过程中可以观察到液滴的左右接触角表现出明显的差异(如图 4(b))。采用左右接触角的差值 $\Delta\theta$ 与其初始接触角 θ_0 的比值来表征这种变化，如图 4(c)，

值得注意的是，在初始阶段，接触角的偏差随时间增加，随后逐渐变小直至消失。这种现象是可以被预见的，因为在初始阶段右接触角附近的蒸汽浓度(区域 III)增加会抑制蒸发。在此期间，与右接触角相比，左接触角下降得更快，从而导致 $\Delta\theta$ 增大。最后，当接触角减小到小于 90° 时，蒸发会变得更快。除此之外，随着液滴接触直径 D 减小，两个液滴之间的有效间隔(以 L_0/D 表示)随时间增加(图 4(b))。这使得右接触角附近的蒸汽浓度变小，蒸发通量变得类似于单个液滴。蒸发通量的空间不均匀性也降低，导致右接触角在蒸发即将结束时接近左接触角。此时，分离尺度 L_0/D 迅速增加(图 4(d))。

如图 4(c)所示，与单个液滴的蒸发不同，两侧接触线的后退并不均匀。如图 5 所示， CR 代表液滴初始状态与基板接触面即润湿表面的圆心，到三相接触线的距离， CR_0 代表在初始阶段液滴态与基板接触面的圆心，到初始状态三相接触线的距离。

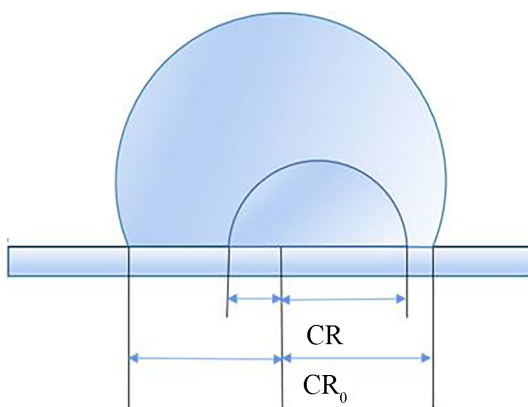


Figure 5. Schematic diagram of contact line movement during droplet evaporation

图 5. 液滴蒸发过程中接触线运动示意图

由柱状图可以看出，液滴的右侧边缘，由于蒸发受到抑制，蒸发缓慢，在初始阶段基本不发生滑移，而液滴的左边缘与单个液滴的蒸发情况类似，三相接触线随时间不断滑移，直至两个液滴中心的间距变大，液滴之间的相互影响减小，滑移才恢复对称。任何时刻的滑移率可以定义为：

$$Slip\% = \frac{[CR(t_0) - CR(t)]}{CR(t_0)} \times 100 \quad (2)$$

由图中可以看出液滴的左边缘移动速度较快，右边缘的移动速度相对较慢，最后恢复对称蒸发。

图 4(d)表示了不同初始分离距离下液滴的蒸发速率随时间的变化，由图可以看出液滴的初始间距越远，蒸发速率越大，说明液滴在初始蒸发阶段蒸发受到了抑制，随着蒸发的进行，两个液滴之间的距离超过了临界分离尺度，蒸发速率与单液滴类似。

3.4. 蒸发速率校正因子

单个液滴的基于扩散的蒸发速率由公式(1)给出。但是，对于双液滴来说这个公式并不适用，需要校正蒸发通量。考虑到区域 III 和 I(图 2(b))，应改变 $f(\theta)$ 的函数形式。随着蒸发的进行，蒸发通量也应该接近与单个液滴的极限。为了解决这些问题，研究了液滴在疏水表面上蒸发速率减慢因子，在此表示为 K 。它定义为在相同条件下，实验蒸发速率(双液滴)与单液滴蒸发的理论蒸发速率之比。 K 是通过实验确定的，并在理论极限下得到验证。

$$\frac{dV}{dt}_{\text{double droplet}} = K \frac{dV}{dt}_{\text{single droplet}} \tag{3}$$

$$\frac{dV}{dt}_{\text{double droplet}} = -K \frac{2\pi LM (C_s - C_\infty) f(\theta) R_C}{\rho} \tag{4}$$

对于双液滴，可以预测扩散系数 L ，饱和蒸汽浓度 C_s 和 $f(\theta)$ 的时空变化。这些变化包括在校正因子 K 中。因此，双液滴的广义蒸发速率可以由下式给出：

$$\frac{dV}{dt}_{\text{double droplet}} = -\frac{2\pi L'M'(C'_s - C_\infty) f'(\theta) R_C}{\rho} \tag{5}$$

在此，不能明确确定 L' 和 C'_s 的值。 $f'(\theta)$ 是关于左右接触角的函数。

双液滴的蒸发速率始终低于单液滴的蒸发速率，即 $\frac{dV}{dt}_{\text{single droplet}} / \frac{dV}{dt}_{\text{double droplet}} < 1$ 。根据公式(3)，这意味着 $K \leq 1$ 表示在测试表面上蒸发的理想扩散受限单个液滴。当完全抑制蒸发时， $K = 0$ 。

随着 L_0/D 的增加，来自各个液滴的蒸汽场彼此消退，并逐渐相互排斥。在这样的条件下，一对液滴的蒸发行为类似于单个液滴(即 K 趋近于 1)。当 L_0/D 较小时，蒸发通量之间存在明显的相互作用，并且在区域 III 中抑制了局部的蒸发(K 值较小)。类似地，被紧密堆积的相同液滴阵列包围的固着液滴将具有非常低的 K 值。由此可知， L_0/D 是了解从双液滴蒸发到单个液滴的过渡的重要参数。因此， K 适用于相似温度和湿度条件下在疏水性基板上的所有成对的自然蒸发液滴。图 6(a)展示了在 K 随无量纲时间 t/t_c 的非线性变化。对于不同的 L_0/D_0 ，当 t 趋近于 t_c 时， K 趋向于 1。当 L_0/D_0 趋向于 ∞ 时，此时两个液滴之间的距离足够远，蒸发特性无限接近与单个液滴。由图 6(b)可以看出曲线在点 $L_0/D = 1.87$ 处收敛。说明 L_0/D 的临界值与液滴初始间距(L_0/D_0)无关。临界动态分离距离为 1.87 时，可以预测蒸发过程中从双液滴到单液滴的转变，这意味着如果初始分离距离(L_0/D_0)大于 2 时，则蒸发和蒸汽场对相邻液滴的影响将最小。本质上，这对液滴将表现为两个独立的个体，它们自身蒸发而不互相影响。 L_0/D 的此临界值仅对当前 PDMS 表面有效。在当前工作中，尚未详细分析不同基材的性能(疏水度)，蒸发方式(混合与 CCA，CCR)和初始接触角对临界 L_0/D 的影响。

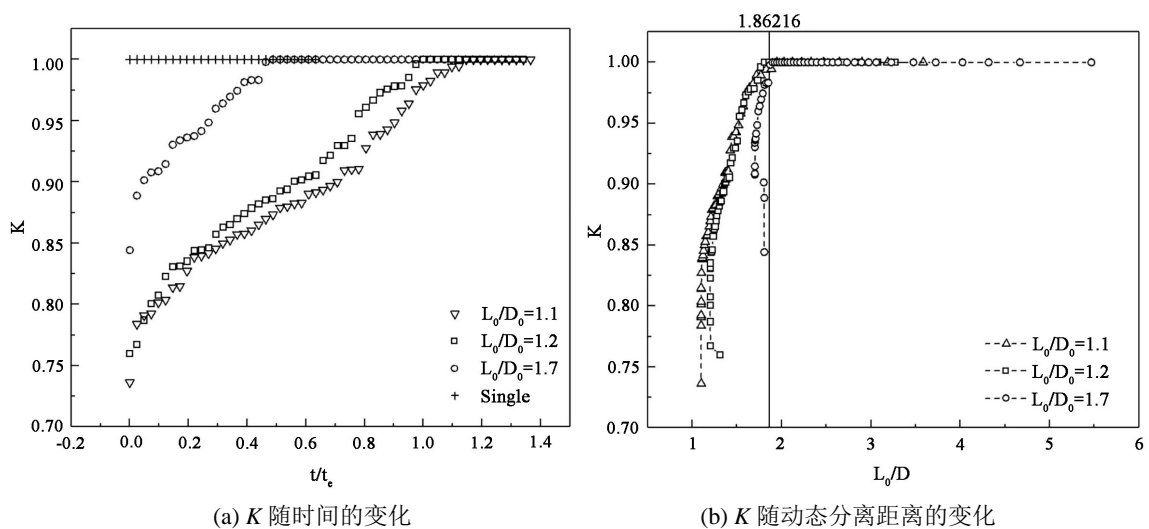


Figure 6. Evaporation rate correction chart
图 6. 蒸发速率校正图

但是, 如果初始分离距离小于 2 时, 则两个液滴之间的蒸汽场会强烈相互作用并导致蒸发减少。在初始阶段, 双液滴的蒸发速率大约比对应单个液滴的蒸发速率减少 50%。然而, 随着直径不断减小, 所有液滴的蒸发通量都将增加。

K 代表一对液滴蒸发过程中与单个孤立液滴蒸发的接近程度。由于双液滴中右侧液滴受左侧液滴影响而产生蒸汽场不均匀性, 这使双液滴的蒸汽场表现出不同的特性。随着液滴的蒸发, 这种影响随着液滴直径的减小而减小。然而, 改变液滴之间的初始间隔 L_0/D 就会改变这种影响的程度。无量纲数 L_0/D 可以反映蒸汽场中这种变化的不均匀性。这可能是为什么 K 在图 6(b) 中在固定的 L_0/D 的位置接近为 1 的原因。

3.5. 疏水表面的蒸发速率

由上一节的分析, 定义了一个参数 K 便于理解蒸发速率的偏差。从不同基板上 K 值随 L_0/D 的变化情况可以证明前文所提出的临界分离尺度的存在, 只是由于基板粗糙度的不同, L_0/D 的值会有所不同。在 PDMS 表面约为 1.87, GDL 表面约为 2.4, 可以看出随着基板表面粗糙度的增加, 临界分离尺度也随之增加。为我们用动态分离尺度 L_0/D 绘制了 K 的变化如图 7 所示。根据节的分析可以了解到, 在相同的疏水性基板上, 临界分离尺度 L_0/D 相同, 与液滴之间的初始间距无关, 对于不同粗糙度的疏水表面, 临界分离尺度也会随之发生变化。由图 7 可以观察到, 随着 L_0/D 的增加, 除了超疏水表面上以 CCR 模式蒸发液滴, 其他来自不同表面的 K 值以相似的速率增长并逐渐趋近于渐近线 1, 渐近线表示双液滴的蒸发速率与单个液滴相同, 两个液滴之间的相互影响几乎零。

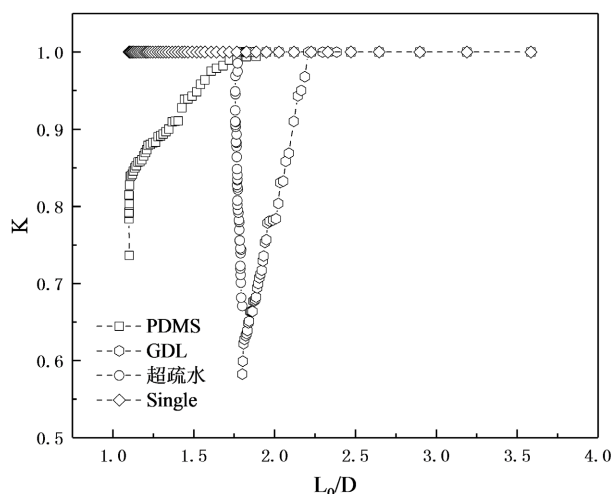


Figure 7. Variation of K with dynamic separation distance for sessile double droplets on different hydrophobic surfaces

图 7. 一对液滴在不同疏水表面 K 随动态分离距离的变化

3.6. 亲水表面上固着双液滴的蒸发

根据前文的分析可知, 在不同疏水表面上双液滴蒸发会受到的抑制, 左右接触角和左右两侧三相接触线在蒸发过程中会产生一定程度的不对称, 这是因为疏水表面上两个液滴中间会形成一个蒸汽浓度很大的楔形区域, 水蒸气在此处凝滞, 使得液滴在此处的蒸发通量很小。而当双液滴在亲水表面上蒸发时, 又会产生不同的结论。基于上述结论, 我们将双液滴置于硅片的表面, 研究了双液滴的亲水表面上的蒸发情况。

在成对液滴的蒸发过程中，由于液滴间的蒸发抑制现象，液滴的蒸发时间依旧会长于单液滴的蒸发时间，且随着初始分离距离的增加，液滴的蒸发寿命越接近于单个液滴的蒸发寿命，如图 8 所示，所以疏水表面上的结论在亲水表面依然适用。由图 9 可以看出，硅片表面成对液滴仅存在 CCR 和 MM 两种蒸发模式。

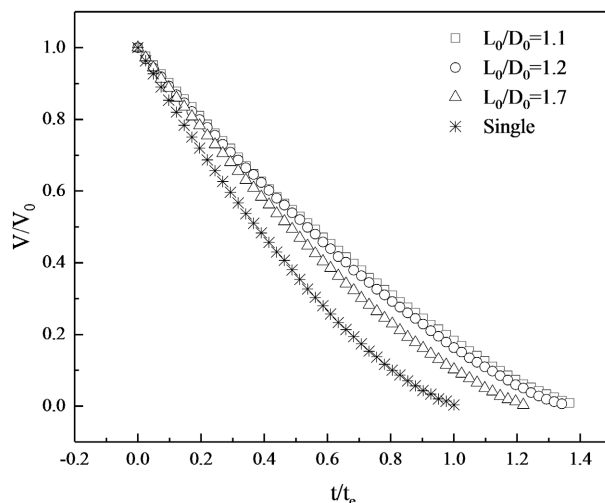


Figure 8. Volume changes of droplets under different initial separation distances on hydrophilic substrates

图 8. 亲水基板上不同初始分离距离下液滴的体积变化

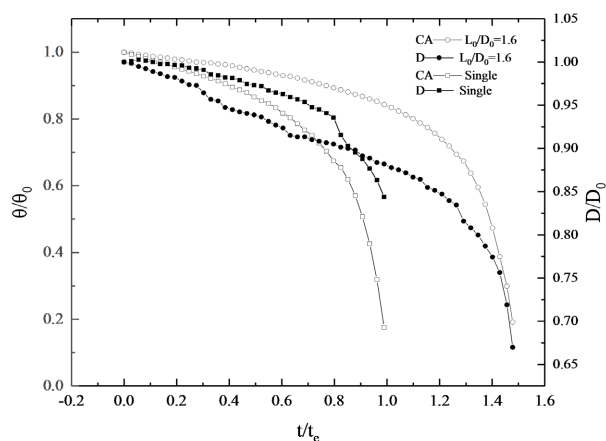


Figure 9. Variations of contact angle and contact diameter on hydrophilic substrates with time

图 9. 亲水基板上接触角和接触直径随时间的变化

在硅片表面双液滴的蒸发过程中，左右接触角一直保持相同，始终处于对称状态，由此可以看出，在亲水表面并不会出现接触角或者三相接触线不同的情况。同样，两个液滴之间的动态分离距离依然是随着蒸发的进行逐渐变大，并且在达到单液滴的蒸发时间后呈现不断快速上升趋势。

随着蒸发的进行，双液滴的蒸发速率仍小于单液滴的蒸发速率，并逐渐接近单液滴的蒸发速率，由于亲水液滴与空气接触的面积较大，所以液滴左右两侧的蒸发通量相差不大，仅在蒸发的初始阶段会受到抑制，两个液滴分离速度较快，所以两个液滴的相互影响会很快消失，随后各自蒸发，互不干涉

4. 结论

疏水表面上的一对液滴的蒸发表现出蒸发动力学与单个液滴的蒸发动力学存在显著差异。本文通过实验探究已经了解了横跨成对液滴整个蒸发过程的某些关键的状态。

1) 当放置在疏水基板上的两个相同的液滴同时进行蒸发时, 两个液滴之间的距离越小, 对蒸发的抑制越强烈, 单侧液滴呈现非对称状态, 其靠近另一个液滴的一侧受到蒸发抑制明显, 如接触角的差异, 三相接触线运动的不同。并且随着蒸发的进行, 液滴之间的抑制作用逐渐降低。其中液滴对的平均蒸发速率明显低于单个液滴, 这是由于两个液滴之间产生了受约束的空间域。可以看出, 在极小的分离距离下蒸发速率降低了 50%。

2) 定义了蒸发速率校正因子 K 来确定双液滴蒸发的速率及特性。本文探究了在临界分离尺度下 K (接近单液滴极限) 的渐近行为及影响因素, 该临界分离距离取决于疏水基底的性质和蒸发模式等。

3) 疏水表面上不同表面的蒸发校正因子 K 并不相同, 但都是随着动态分离尺度以相似的速度渐进于单个液滴的蒸发速率, 且临界动态分离距离, 与液滴之间的初始间距无关, 仅与基板表面的粗糙度有关。在亲水表面上双液滴蒸发时, 液滴的不对称性消失, 但蒸发寿命仍然受到两个液滴之间的初始分离距离影响, 蒸发速率仍小于单个液滴的蒸发速率, 由于亲水表面的特性, 两个液滴相互影响的时间较短。

基金项目

国家自然科学基金项目(编号 52176159)。

参考文献

- [1] Calvert, P. (2001) Inkjet Printing for Materials and Devices. *Chemistry of Materials*, **13**, 3299-3305. <https://doi.org/10.1021/cm0101632>
- [2] Popov, Y.O. (2004) Evaporative Deposition Patterns Revisited: Spatial Dimensions of the Deposit. *Physical Review E*, **71**, Article ID: 036313. <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.71.036313>
- [3] Burns, M.A. (1998) An Integrated Nanoliter DNA Analysis Device. *Science*, **282**, 484-487. <https://doi.org/10.1126/science.282.5388.484>
- [4] Edwards, C., Arbabi, A., Bhaduri, B., et al. (2015) Measuring the Nonuniform Evaporation Dynamics of Sprayed Sessile Microdroplets with Quantitative Phase Imaging. *Langmuir*, **31**, 11020-11032. <https://doi.org/10.1021/acs.langmuir.5b02148>
- [5] Wu, A.G., Yu, L.H., Li, Z.A., et al. (2004) Atomic force Microscope Investigation of Large-Circle DNA Molecules. *Analytical Biochemistry*, **325**, 293-300. <https://doi.org/10.1016/j.ab.2003.11.005>
- [6] Srinivasan, V., Pamula, V.K. and Fair, R.B. (2004) An Integrated Digital Microfluidic Lab-on-a-Chip for Clinical Diagnostics on Human Physiological Fluids The Science and Application of Droplets in Microfluidic Devices. *Lab on a Chip*, **4**, 310-315. <https://doi.org/10.1039/b403341h>
- [7] Chang, S.T. and Velez, O.D. (2006) Evaporation-Induced Particle Microseparations inside Droplets Floating on a Chip. *Langmuir*, **22**, 1459-1468. <https://doi.org/10.1021/la052695t>
- [8] Aleksandrovich, P.V., Dal, V., Sreznevsky, I., Ozhegov, S. and Shvedova, N. (2010) Dmitry Ushakov. General Books LLC.
- [9] Sreznevski, V.I. (2010) Spisok Russkikh Povremennykh Izdani S 1703 PO 1899 God. BiblioBazaar, Charleston.
- [10] Whyman, G. and Bormashenko, E. (2009) Oblate Spheroid Model for Calculation of the Shape and Contact Angles of Heavy Droplets. *Journal of Colloid and Interface Science*, **331**, 174-177. <https://doi.org/10.1016/j.jcis.2008.11.040>
- [11] Mangel, R.F. and Baer Jr., E. (1962) The Evaporation of Water Drops from a "Teflon" Surface. *Chemical Engineering Science*, **17**, 705-706. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(62\)85029-5](https://doi.org/10.1016/0009-2509(62)85029-5)
- [12] Picknett, R.G. and Bexon, R. (1977) Evaporation of Sessile or Pendant Drops in Still Air. *Journal of Colloid & Interface Science*, **61**, 336-350. [https://doi.org/10.1016/0021-9797\(77\)90396-4](https://doi.org/10.1016/0021-9797(77)90396-4)
- [13] Chau, T.T., Bruckard, W.J., Koh, P.T.L., et al. (2009) A Review of Factors that Affect Contact Angle and Implications for Flotation Practice. *Advances in Colloid and Interface Science*, **150**, 106-115.

- <https://doi.org/10.1016/j.cis.2009.07.003>
- [14] Chandra, S., Marzo, M.D., Qiao, Y.M., *et al.* (1996) Effect of Liquid-Solid Contact Angle on Droplet Evaporation. *Fire Safety Journal*, **27**, 141-158. [https://doi.org/10.1016/S0379-7112\(96\)00040-9](https://doi.org/10.1016/S0379-7112(96)00040-9)
- [15] Dash, S. and Garimella, S.V. (2013) Droplet Evaporation Dynamics on a Superhydrophobic Surface with Negligible Hysteresis. *Langmuir*, **29**, 10785-10795. <https://doi.org/10.1021/la402784c>
- [16] Shanahan, M.E.R. and Bourguès, C. (1994) Effects of Evaporation on Contact Angles on Polymer Surfaces. *International Journal of Adhesion and Adhesives*, **14**, 201-205. [https://doi.org/10.1016/0143-7496\(94\)90031-0](https://doi.org/10.1016/0143-7496(94)90031-0)
- [17] Bourgesmonnier, C. and Shanahan, M.E.R. (1995) Influence of Evaporation on Contact Angle. *Langmuir*, **11**, 2820-2829. <https://doi.org/10.1021/la00007a076>
- [18] Erbil, H.Y., McHale, G. and Newton, M.I. (2002) Drop Evaporation on Solid Surfaces: Constant Contact Angle Mode. *Langmuir*, **18**, 2636-2641. <https://doi.org/10.1021/la011470p>
- [19] Grandas, L., Reynard, C., Santini, R., *et al.* (2005) Experimental Study of the Evaporation of a Sessile Drop on a Heat Wall. Wetting Influence. *International Journal of Thermal Sciences*, **44**, 137-146. <https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2004.07.002>
- [20] Bigioni, T.P., Lin, X.M., Nguyen, T.T., *et al.* (2006) Kinetically Driven Self Assembly of Highly Ordered Nanoparticle Monolayers. *Nature Materials*, **5**, 265-270. <https://doi.org/10.1038/nmat1611>
- [21] Carles, P. and Cazabat, A.M. (1989) Spreading Involving the Marangoni Effect: Some Preliminary Results. *Colloids and Surfaces*, **41**, 97-105. [https://doi.org/10.1016/0166-6622\(89\)80045-9](https://doi.org/10.1016/0166-6622(89)80045-9)
- [22] Cira, N.J., Benusiglio, A. and Prakash, M. (2015) Vapor-Mediated Sensing and Motility in Two-Component Droplets. *Nature*, **519**, 446-450. <https://doi.org/10.1038/nature14272>
- [23] Karpitschka, S., Pandey, A., Lubbers, L.A., *et al.* (2016) Liquid Drops Attract or Repel by the Inverted Cheerios Effect. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, **113**, 7403-7407. <https://doi.org/10.1073/pnas.1601411113>
- [24] Shaikkea, A.J.D. and Basu, S. (2016) Insight into the Evaporation Dynamics of a Pair of Sessile Droplets on a Hydrophobic Substrate. *Langmuir*, **32**, 1309-1318. <https://doi.org/10.1021/acs.langmuir.5b04570>
- [25] 翁志浩, 方可宁, 单彦广. 不同润湿性表面固着双液滴蒸发过程 LBM 数值模拟[J]. 建模与仿真, 2021, 10(3): 705-716. <https://doi.org/10.12677/MOS.2021.103071>
- [26] 胡晓玮, 蒋鹤清, 段淑娜, 王晔春, 赵于, 袁越锦. 蒸发液滴内部 Marangoni 对流的分析与研究[J]. 陕西科技大学学报, 2021, 39(6): 134-140.
- [27] 葛瑶, 单彦广. 超疏水表面 SiO₂ 纳米流体液滴蒸发动力学研究[J]. 塑料工业, 2017, 45(5): 107-111+101.
- [28] 金艳艳, 单彦广. 水-乙醇二元混合固着液滴的蒸发特性[J]. 化工学报, 2018, 69(7): 111-118.