

Effect of Surfaces of Micro-Nano Structures Prepared by Femtosecond Lasers on Motion of Impacting Droplets at Different Temperatures

Jia Guo¹, Lei Xue², Haiyan Tao^{1*}

¹Ultrafast Optics Laboratory, Changchun University of Science and Technology, Changchun Jilin

²Chengdu Kaitian Electronics Co., Ltd., Avionics Research Institute, Chengdu Sichuan

Email: hytao@cust.edu.cn

Received: Feb. 5th, 2020; accepted: Feb. 20th, 2020; published: Feb. 27th, 2020

Abstract

The phenomenon of droplets hitting a solid surface is of great significance for technical fields such as ice protection, heat transfer and water management. Unlike normal and low temperature conditions, when the solid surface temperature rises to a certain range, the droplets hitting the surface will be in a thermal state called Leidenfrost, at which time the droplets will become quite active. In this state, analyzing the motion behavior of the impacting droplets is very challenging. In this paper, we prepared micro-nano structured surfaces with different morphologies by using femtosecond laser processing technology. By comparing the impact behavior of droplets of two types of ultra-wettable and ultra-hydrophobic surfaces with different wettability at different temperatures, we analyzed the influence of temperature on the motion of droplets hitting the surface. This research is of great significance for understanding and controlling droplet dynamics, and opens up new ideas for the application of high temperature multifunctional surfaces in the future.

Keywords

Femtosecond Laser, Micro-Nano Morphology, High Temperature Environment, Leidenfrost State, Impact Droplet

不同温度下飞秒激光制备的微纳结构表面对撞击液滴运动行为的影响

郭嘉¹, 薛磊², 陶海岩^{1*}

*通讯作者。

¹长春理工大学超快光学实验室, 吉林 长春

²成都凯天电子股份有限公司航空电子产品研究所, 四川 成都

Email: hystao@cust.edu.cn

收稿日期: 2020年2月5日; 录用日期: 2020年2月20日; 发布日期: 2020年2月27日

摘要

液滴撞击固体表面的现象对于防冰、传热和水管理等技术领域具有重要的意义。不同于常温和低温条件, 当固体表面温度升高到一定范围时, 撞击表面的液滴会处于一种名为Leidenfrost的热状态, 此时液滴会变得相当活跃。在这种状态下, 分析撞击液滴的运动行为是很有挑战性的。在本文中, 我们通过飞秒激光加工技术制备出了不同形貌的微纳结构表面, 通过对比超亲水和超疏水两种极端润湿性表面在不同温度下的液滴撞击行为, 分析了温度对撞击表面的液滴运动行为的影响规律。该研究对液滴动力学的理解与控制具有重要意义, 并且为未来高温多功能表面的应用开辟了新的思路。

关键词

飞秒激光, 微纳形貌, 高温环境, Leidenfrost状态, 撞击液滴

Copyright © 2020 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

随着科研探索的深入, 人们发现液滴撞击固体表面这一液滴动力学行为具有十分巨大的研究价值与潜力, 其在各种微流体技术和传热技术上存在着广阔的应用前景[1] [2] [3]。而根据固体表面温度的不同, 主要分为液滴撞击常温及低温固体表面和热固体表面[4]。液滴撞击常温及低温固体表面的相关研究由来已久, 尤其是随着近些年来超疏水表面的高速发展, 关于撞击常温及低温表面的液滴动力学特性的研究受到了研究人员的广泛关注: Hu 等人[5]利用高速摄像机研究了液滴在自制超疏水黄铜表面上的回弹行为。发现随着液滴撞击速度的变化, 液滴的回弹行为也会发生相应的改变; Jolet 等人[6]报告了具有高表面张力和低表面张力的液体在润湿和非润湿平面上均会出现不同的通用反弹机制; Carlo 等人[7]在疏水性不同的表面上进行了液滴撞击实验, 发现后退接触角是影响液滴回弹的关键润湿参数: 在研究所采用的撞击条件下($25 < We < 585$), 仅在后退接触角大于 100° 的表面上观察到了回弹。然而随着科学技术的进步与发展, 大量的高技术型工程是在高温环境下进行运作的, 例如动力机械、材料科学、农业化工[8] [9]等, 一方面, 液滴撞击热表面可提升对于表面的冷却效果, 如金属铸造中的喷淋、喷雾冷却技术[10]; 而另一方面, 在一些工业装置中, 液滴的撞击行为则会产生负面的影响, 如在柴油机或汽油机中, 大量的油滴喷雾会在机器内壁形成油膜, 引起冷起动情况, 造成有害排放[11] [12] [13]。由此可见, 不同领域对液滴撞击表面后的运动行为的要求也不同, 因此对于撞击热固体表面的液滴动力学行为的研究在实际应用方面具有更加重要的意义。此外, 在表面微纳结构的制备方式方面, 相比于其他加工手段, 飞秒激光加工具有加工热影响区极小、适用于几乎任何材料、可以获得突破衍射极限的烧蚀区域、可以轻易获得微纳米级周期结构等优势[14], 并且其在制备微纳结构表面方面已经有了较为深入的研究[15] [16] [17] [18]。

因此在本文中,我们利用了飞秒激光加工技术,以不同的加工参数在金属镍(Ni)表面制备出结构差异不断变化的几种表面,并在不同的加热温度(20℃~260℃)下,进行液滴撞击实验。接着在此基础上,我们将前几块样品进行表面硅烷化处理,降低其表面能,使其变成超疏水表面,并再次进行相同条件的液滴撞击实验。最后对比分析记录两次实验中,撞击液滴与表面接触时间的变化。实验结果表明,在常温情况下,对于相同的结构,表面润湿性的会对液滴的回弹行为产生重要的影响,液滴润湿性越小,液滴回弹行为越明显;而随着表面温度的升高,撞击液滴更易发生回弹行为。该研究对于如何有效地控制高温环境下液滴的运动行为开辟了新的思路,对于传热、微流体领域的发展具有重要意义。

2. 实验与材料

实验选用了尺寸规格分别 $20 \times 20 \times 1 \text{ mm}^3$ 的金属 Ni 表面,首先利用自动精密研磨抛光机(沈阳科晶, UNIPOL-802)对金属表面进行研磨抛光处理,然后利用超声波清洗仪(上海科导, SK06G)分别在酒精和去离子水中对样品进行清洗。该过程的目的是为了保证样品表面的平整性,以减小表面粗糙度在随后的激光加工中产生的影响,处理后的样品厚度约为 0.8 mm,表面粗糙度近似为 1,平均粗糙度为 $0.1 \mu\text{m}$ 。然后利用飞秒激光器(中心波长 800 nm,美国相干公司飞秒激光器系统),在金属镍(Ni)表面制备出 9 种微纳结构,这 9 种结构的加工参数除聚焦位置外,其它均相同,通过扫描电子显微镜 SEM(JEOL, JSM-IT300LV)观察到其表面微纳结构形貌图如图 1 所示(制备 9 种表面的激光能量为: $E = 1.6 \text{ mJ}$ 、扫描速度为: $V = 1 \text{ mm/s}$ 、扫描间距为: $\Delta d = 0.04 \text{ mm}$ 、聚焦位置分别为: $a = 198 \text{ mm}$ 、 $b = 198.5 \text{ mm}$ 、 $c = 199 \text{ mm}$ 、 $d = 199.5 \text{ mm}$ 、 $e = 200 \text{ mm}$ 、 $f = 200.5 \text{ mm}$ 、 $g = 201 \text{ mm}$ 、 $h = 201.5 \text{ mm}$ 、 $i = 202 \text{ mm}$)。由图可以看出,随着聚焦位置的改变,表面微纳结构也在不断发生变化,从一开始的柱状结构(a~c),过渡到一维沟槽型结构(d~h),最后变成更为细小的亚微米结构(i)。而选用这几种结构的原因,一是因为这种结构在形貌上差异较大,便于观察比较;二是因为这几种结构是比较典型的微纳复合结构,几乎可以在所有材料表面上实现制备,具有更广泛的适用性。最后在所制备的 9 种表面以及未加工的原表面上进行液滴撞击实验,利用光学接触角测量仪(dataphysics, OCA25)使相同体积的液滴($5 \mu\text{L}$)从同一高度(50 mm)落下。并且该过程由接触角测量仪上的高速 CCD (1200FPS)记录。

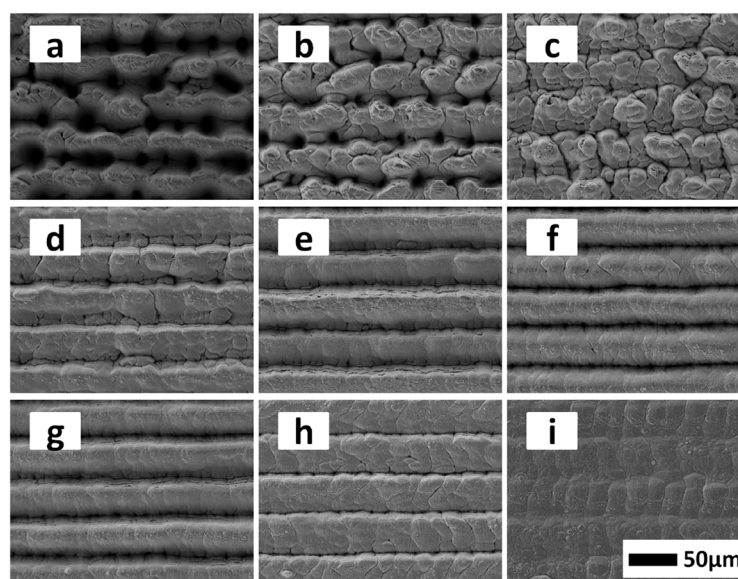


Figure 1. Micro-nano structure topography of the sample surface
图 1. 样品表面的微纳结构形貌图

3. 结果与讨论

我们分别记录了 10 种表面在不同温度加热条件下(20℃~260℃, 加热区间 20℃, 温度以加热台示数为准), 撞击液滴与表面的接触时间。其中, 液滴下落过程如图 2(a)所示, 接触时间结果如图 2(b)所示。由图 2(b)可以看出, 由于表面均为亲水表面, 所以当温度较低时, 撞击液滴均无法发生回弹, 当随着温度升高到一定范围, 撞击液滴开始出现回弹现象。之所以会出现这样的现象, 是因为当表面温度升高到一定范围的时候, 接触液滴会出现两种状态, 即 contact-boiling 状态和 Leidenfrost 状态[19]。两种状态的示意图如图 3 所示。其中图 3(a)为 contact-boiling 状态, 是指当表面温度高于液滴沸点的时候, 液滴接触到表面之后直接发生沸腾现象, 此时的液滴极不稳定并发生剧烈运动, 因此会出现离开表面的情况, 但此时液滴与表面的接触时间或长或短毫无规律, 这与图 2(b)的结果相符。而随着温度进一步升高, 表面液滴由 contact-boiling 状态逐渐转变为 Leidenfrost 状态, 即撞击液滴与接触表面之间会有蒸汽层形成, 撞击液滴并未直接接触热表面, 而是与蒸汽层相接触, 其情况如图 3(b)所示。而蒸汽层不具有亲水性, 相当于超疏水表面, 因此撞击液滴会发生明显的回弹行为, 撞击液滴与表面的接触时间也会变小。并且随着温度的升高, Leidenfrost 状态逐渐稳定, 蒸汽层也逐渐稳定, 所以液滴与表面的接触时间最终也会稳定在一定数值, 这也与图 2(b)的结果完全吻合。此外, 我们还可以观察到, 不同微纳结构的表面, 其使撞击液滴发生回弹所需的温度是不同的, 并且不同结构表面在一定温度范围内与撞击液滴的接触时间是不同的, 但随着温度的升高, 接触时间会不断减小最后都趋于稳定。产生这种机理的原因, 是因为表面结构的不同, 导致其结构内部空间的大小也是不同的, 所以液滴与表面的接触面积也是不同的, 这就使液滴与表面之间的传热性能发生了改变, 因此导致了产生蒸汽层所需温度出现差异。这也使得在一定温度范围内, 不同表面生成的蒸汽层稳定程度是不同的, 导致部分样品会出现液滴与表面部分接触的现象, 因此使接触时间发生了差异。而当温度进一步升高, 所有表面均能产生稳定的蒸汽层, 此时液滴只与蒸汽层接触, 所以接触时间都趋于稳, 保持不变。

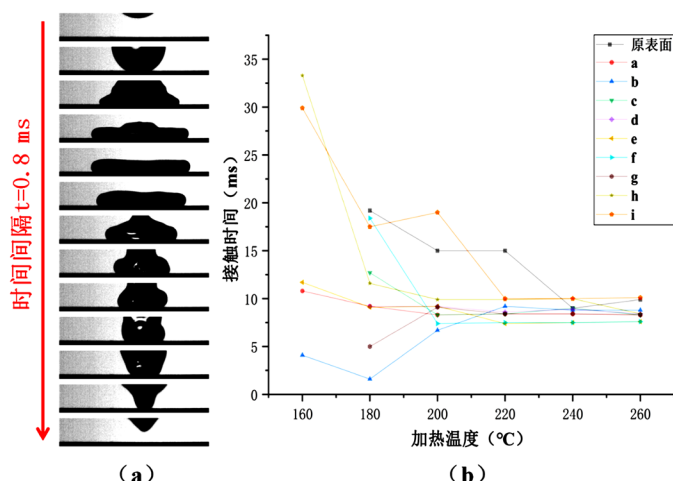


Figure 2. Drop impact test results
图 2. 液滴撞击实验结果图

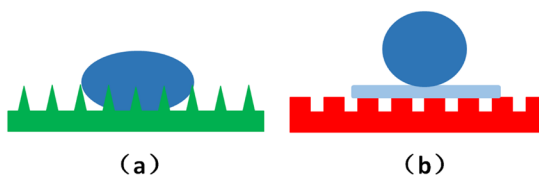


Figure 3. Schematic diagram of two thermal states
图 3. 两种热状态示意图

为了进一步对比分析温度对表面撞击液滴回弹的影响,我们将上述表面进行硅烷化处理,使其均转换为超疏水表面,并再次进行液滴撞击实验,其结果如图4所示。可以看出,由于表面均呈现出超疏水性,所以无论表面温度为多少,撞击液滴均可以发生回弹行为。但我们发现,不同结构的表面在温度较低时与撞击液滴的接触时间却不同,这是由于表面即使已经进行过硅烷化处理,但由于本身结构的原因,使得液滴与表面的接触面积不同,从而导致其对液滴的粘附性也不同[20]。为了验证这一理论,我们利用接触角测量分别测量了9块样品的接触角及滚动角。接触角用于评估表面亲疏水特性,而滚动角用于评估表面粘附特性,其结果如图5所示。可以看出,对于接触角很高的超疏水表面而言,滚动角确实会随着表面结构的变化而发生变化,这也合理的解释了图4中温度较低时各表面的接触时间差异。

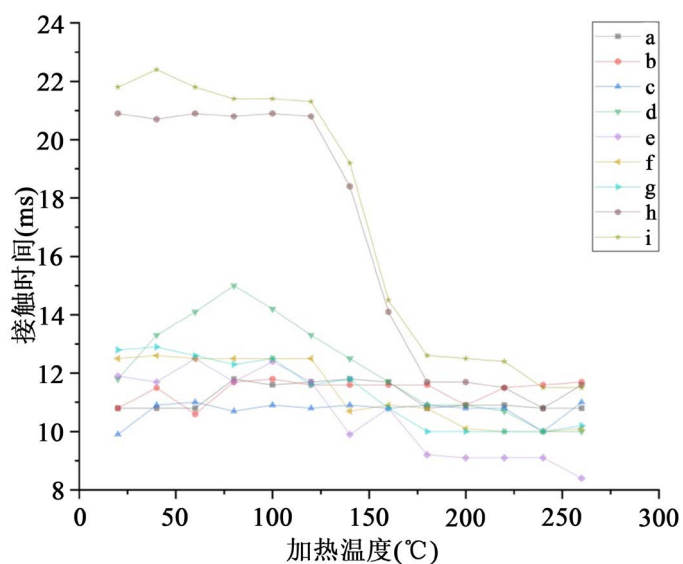


Figure 4. Contact time curve of impinging droplets and superhydrophobic surface under different temperature heating conditions
图 4. 撞击液滴与超疏水表面在不同温度加热条件下的接触时间变化曲线

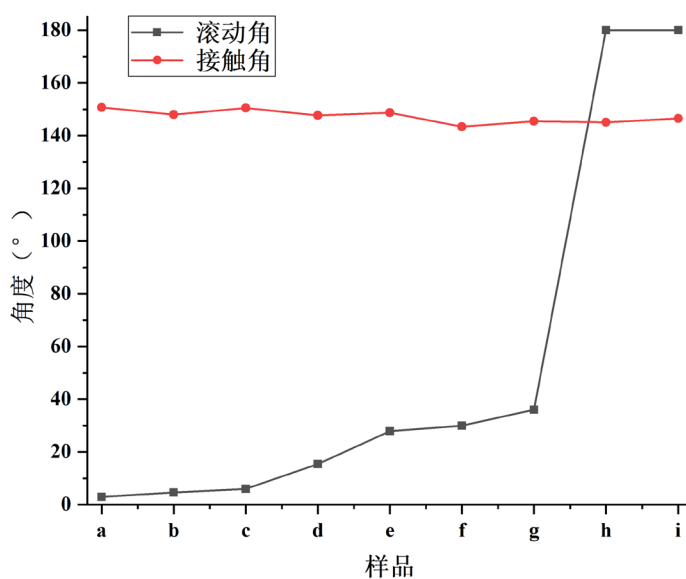


Figure 5. Contact angle and rolling angle of the sample
图 5. 样品的接触角与滚动角

为了更加直观的观察温度对液滴回弹行为的影响,我们以接触时间变化较大的样品 h 为例,其在不同温度下的液滴撞击过程如图 6 所示。该样品表面类似于玫瑰花瓣[21],这类表面虽然有较高的接触角,但滚动角很大。因此当表面温度较低时,撞击液滴虽然会从表面弹起,但由于表面较高的液滴粘附性,会导致液滴在回弹过程中会被扯断,而留下一小部分液滴在表面上,如图中 20°C 和 120°C 的过程所示;而随着温度的升高,表面逐渐开始形成蒸汽层,因此导致表面粘附性降低,从而使表面上留下的液滴逐渐变小,如图中 140°C 的过程所示;而当温度升高到一定范围的时候,表面进一步形成了稳定的蒸汽层,大大降低了表面的粘附性,从而使撞击液滴完全脱离表面,如图中 160°C 和 260°C 的过程所示。此外,由于表面是超疏水表面,相比于亲水表面而言,液滴与表面的接触面积小很多,因此不容易观察到 contact-boiling 状态由此可以看出,表面温度的变化确实会影响撞击液滴的回弹行为,该过程主要取决于是否有蒸汽层的形成。

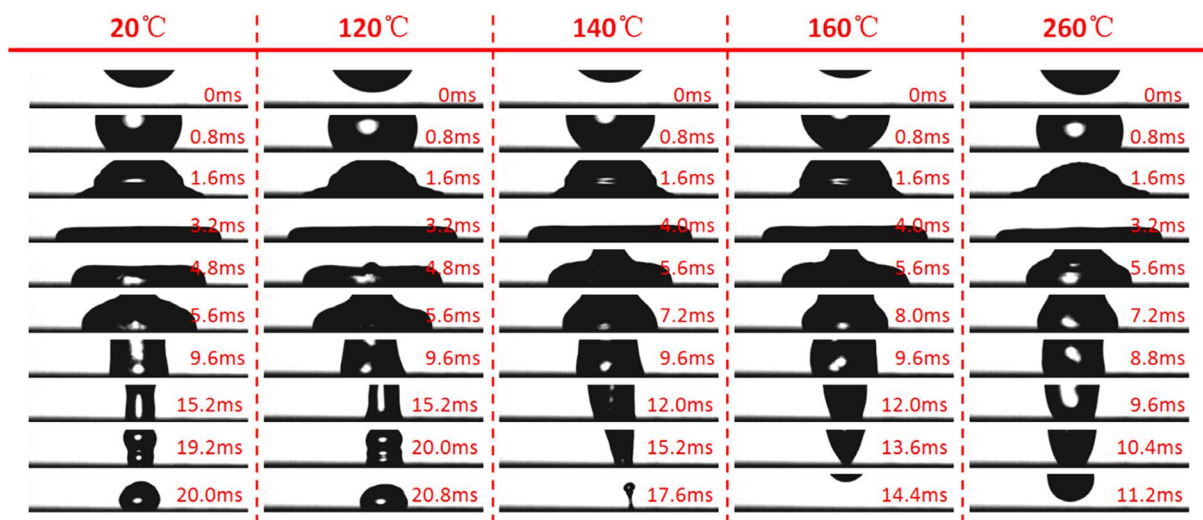


Figure 6. Rebound process of impacted droplets of sample h under different temperature heating conditions

图 6. 样品 h 在不同温度加热条件下的撞击液滴回弹过程图

4. 结论

本文通过飞秒激光加工技术,制备了不同形貌的超疏水和超亲水微纳结构表面,并在不同的加热条件下进行了液滴撞击实验。结果表明,在常温情况下,表面润湿性会对液滴的回弹行为产生重要的影响,液滴润湿性越小,液滴回弹行为越明显;而当表面温度升高到一定范围的时候,撞击表面的液滴会进入 Leidenfrost 状态,在表面形成一层蒸汽层,该状态会提高表面的疏水性并降低其对液滴的粘附性,从而使撞击液滴更容易离开表面,发生回弹行为。本文只是以沟槽结构为例,通过更多其他微纳结构制备以及更加精确的温度调控有望实现对液滴回弹行为的进一步控制。而我们的下一步计划就是设计一种结构拼接表面,并在精度更高的加热条件下进行液滴撞击实验,尝试实现热表面上撞击液滴的定向回弹行为。此外本实验将飞秒加工技术与硅烷化表面处理技术相结合,这种处理方式适用于任何材料的表面,因此具有广泛的应用性。该研究在高温动力机械、微流体科学等领域具有潜在的应用前景。

参考文献

- [1] Richard, D. and Clanet, C.R. (2002) Contact Time of a Bouncing Drop. *Nature*, **417**, 811. <https://doi.org/10.1038/417811a>

- [2] Chaudhury, M.K., Chakrabarti, A. and Daniel, S. (2015) Generation of Motion of Drops with Interfacial Contact. *Langmuir*, **31**, 9266-9281. <https://doi.org/10.1021/la504925u>
- [3] Hou, Y., Chen, Y., Xue, Y., *et al.* (2012) Stronger Water Hanging Ability and Higher Water Collection Efficiency of Bioinspired Fiber with Multi-Gradient and Multi-Scale Spindle Knots. *Soft Matter*, **8**, 11236. <https://doi.org/10.1039/c2sm26421h>
- [4] 孙炎俊. 液滴撞击热固体表面动态特性实验研究[D]: [硕士学位论文]. 大连: 大连理工大学, 2018.
- [5] Hu, H.B., Chen, L.B., *et al.* (2013) Rebound Behaviors of Droplets Impacting on a Superhydrophobic Surface. *Science China Physics Mechanics & Astronomy*, **56**, 960-965. <https://doi.org/10.1007/s11433-012-4968-2>
- [6] De Ruiter, J., Lagraauw, R., Dirk, V.D.E., *et al.* (2014) Wettability-Independent Bouncing on Flat Surfaces Mediated by Thin Air Films. *Nature Physics*, **11**, 48-53. <https://doi.org/10.1038/nphys3145>
- [7] Antonini, C., Villa, F., Bernagozzi, I., *et al.* (2013) Drop Rebound after Impact: The Role of the Receding Contact Angle. *Langmuir*, **29**, 16045-16050. <https://doi.org/10.1021/la4012372>
- [8] Pano, M.R.O. and Moreira, A.L.N. (2005) Flow Characteristics of Spray Impingement in PFI Injection Systems. *Experiments in Fluids*, **39**, 364-374. <https://doi.org/10.1007/s00348-005-0996-2>
- [9] Pasandideh-Fard, M., Aziz, S.D., Chandra, S., *et al.* (2001) Cooling Effectiveness of a Water Drop Impinging on a Hot Surface. *International Journal of Heat and Fluid Flow*, **22**, 201-210. [https://doi.org/10.1016/S0142-727X\(00\)00086-2](https://doi.org/10.1016/S0142-727X(00)00086-2)
- [10] Labergue, A., Gradeck, M. and Lemoine, F. (2016) Experimental Investigation of Spray Impingement Hydrodynamic on a Hot Surface at High Flow Rates Using Phase Doppler Analysis and Infrared Thermography. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **100**, 65-78. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2016.01.041>
- [11] Zama, Y., Odawara, Y. and Furuhashi, T. (2017) Experimental Investigation on Velocity inside a Diesel Spray after Impingement on a Wall. *Fuel*, **203**, 757-763. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2017.04.099>
- [12] Yang, J., Dong, X., Wu, Q., *et al.* (2018) Influence of Flash Boiling Spray on the Combustion Characteristics of a Spark-Ignition Direct-Injection Optical Engine under Cold Start. *Combustion and Flame*, **188**, 66-76. <https://doi.org/10.1016/j.combustflame.2017.09.019>
- [13] Pei, Y., Qin, J., Li, X., *et al.* (2017) Experimental Investigation on Free and Impingement Spray Fueled with Methanol, Ethanol, Isooctane, TRF and Gasoline. *Fuel*, **208**, 174-183. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2017.07.011>
- [14] 刘嵩. 飞秒激光制备微纳米周期结构的热辐射特性研究[D]: [博士学位论文]. 北京: 北京工业大学, 2016.
- [15] 泮怀海, 王卓, 范文中, 等. 飞秒激光诱导超疏水钛表面微纳结构[J]. 中国激光, 2016, 43(8): 95-101.
- [16] 陶海岩. 飞秒激光固体材料表面微纳结构制备及其功能特性的研究[D]: [博士学位论文]. 长春: 长春理工大学, 2014.
- [17] Shinoda, M., Gattass, R.R. and Mazur, E. (2009) Femtosecond Laser-Induced Formation of Nanometer-Width Grooves on Synthetic Single-Crystal Diamond Surfaces. *Journal of Applied Physics*, **105**, Article ID: 053102. <https://doi.org/10.1063/1.3079512>
- [18] Ionin, A.A., Kudryashov, S.I., Makarov, S.V., *et al.* (2013) Sub-100 Nanometer Transverse Gratings Written by Femtosecond Laser Pulses on a Titanium Surface. *Laser Physics Letters*, **10**, Article ID: 056004. <https://doi.org/10.1088/1612-2011/10/5/056004>
- [19] Li, J., Hou, Y., Liu, Y., *et al.* (2016) Directional Transport of High-Temperature Janus Droplets Mediated by Structural Topography. *Nature Physics*, **12**, 606-612. <https://doi.org/10.1038/nphys3643>
- [20] Long, J., Fan, P., Jiang, D., *et al.* (2016) Anisotropic Sliding of Water Droplets on the Superhydrophobic Surfaces with Anisotropic Groove-Like Micro/Nano Structures. *Advanced Materials Interfaces*, **2016**, Article ID: 1600641. <https://doi.org/10.1002/admi.201600641>
- [21] Bhushan, B. and Nosonovsky, M. (2010) The Rose Petal Effect and the Modes of Superhydrophobicity. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, **368**, 4713-4728. <https://doi.org/10.1098/rsta.2010.0203>