ЖЭТФ, 2021, том 159, вып. 2, стр. 359–370 © 2021

# МОДЕЛИРОВАНИЕ НЕСТАЦИОНАРНЫХ НЕУСТОЙЧИВОСТЕЙ БЕНАРА – МАРАНГОНИ В ИСПАРЯЮЩИХСЯ ЛЕТУЧИХ КАПЛЯХ НА НАГРЕТОЙ ПОДЛОЖКЕ

***А. А. Гаврилина*** [a,b], ***Л. Ю. Бараш*** [b*]

[a] *Национальный исследовательский университет «Высшая школа экономики» 101000, Москва, Россия*

[b] *Институт теоретической физики им. Л. Д. Ландау Российской академии наук 142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 24 августа 2020 г.,
после переработки 14 сентября 2020 г.
Принята к публикации 28 сентября 2020 г.

Изучаются нестационарные внутренние течения в лежащей на нагретой подложке капле капиллярного размера, испаряющейся в режиме пиннинга контактной линии. Проведено трехмерное моделирование внутренних течений в испаряющихся каплях этанола и силиконового масла. Показано, что для описания потоков Марангони необходимо учитывать диффузию паров в воздухе, теплопередачу во всех трех фазах и тепловое излучение. Уравнения были решены численно методом конечных элементов с использованием программного обеспечения ANSYS Fluent. В результате проведенных вычислений получено нестационарное поведение неустойчивостей Бенара – Марангони (БМ). На первом этапе появляется цветочная структура ячеек БМ вблизи контактной линии. Для меньших контактных углов ячейки увеличиваются и занимают центральную область поверхности капли. Полученные результаты тесно связаны с недавними экспериментальными и теоретическими исследованиями и помогают проанализировать и разрешить связанные с этим вопросы.

**DOI:** 10.31857/S0044451021020152

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Вопросы испарения капель привлекли значительное внимание не только с теоретической точки зрения, но и в связи с развитием новых приложений, таких как образование структур на поверхностях, подготовка сверхчистых поверхностей, нанесение микроматриц молекул ДНК и РНК, кристаллография белков, сгорание капель топлива в двигателе, диагностика заболеваний, разработка современных методов печати для струйных принтеров, производство новых электронных и оптических устройств и др. [1–6].

Неоднородный тепломассоперенос при испарении капли имеет решающее влияние на кинетику испарения. В частности, он приводит к изменению распределения температуры вдоль поверхности капли и может вызывать термокапиллярную конвекцию в капле из-за зависящего от температуры поверхностного натяжения. Осесимметричные потоки Марангони можно наблюдать при комнатной температуре и атмосферном давлении [7–10].

Термокапиллярный поток жидкости с нарушенной осевой симметрией может самопроизвольно возникать внутри сильно нагретой капли с интенсивным испарением и достаточно высокой скоростью жидкости. В нагретой капле неустойчивость Марангони, возникающая из-за неоднородного распределения температуры, может приводить к движениям жидкости, таким как продольные рулоны и гидротермальные волны (ГТВ), что было впервые продемонстрировано в [11] и подтверждено в многочисленных последующих исследованиях [12–19]. ГТВ — это распространяющиеся в жидкости периодические во времени волны, вызванные неустойчивостями в стационарной конвекции Марангони. ГТВ были первоначально предсказаны для жидкого слоя на твердой пластине Смитом и Дэвисом [20,21], а затем наблюдались в [22,23]. Согласно Смиту и Дэви-

* E-mail: barash@itp.ac.ru

су [20,21], возбуждение распространяется перпендикулярно градиенту повехностной температуры при малых числах Прандтля и в направлении против течения при больших числах Прандтля [20, 21]. Для плоского слоя жидкости ГТВ и конвекция Бенара – Марангони (БМ) обычно происходят при качественно разных условиях. В то время как эффект БМ становится более выраженным с увеличением вертикального градиента температуры в плоских пленках, появление ГТВ связано с горизонтальным градиентом температуры (например, они могут возникать при боковом нагреве). В случае испарения лежащих капель конкуренция между ГТВ и конвекцией БМ более сложная.

Первоначально ГТВ в каплях были идентифицированы Сефианом и др. в 2008 г. [11] при исследовании испарения лежащих капель этанола, метанола, воды и флюоринерта FC-72. Позднее были опубликованы более подробные наблюдения ГТВ для капель этанола на четырех разных подложках с различной теплопроводностью [12]. ГТВ, движущиеся в азимутальном направлении, наблюдались для летучих капель этанола и метанола. Для FC-72 конвективные ячейки возникали около вершины капли и двигались к контактной линии. Было обнаружено, что количество волн возрастает с увеличением теплопроводности подложки и ее температуры и убывает с уменьшением высоты капли. В то же время гидротермальная неустойчивость в испаряющихся каплях воды не была обнаружена.

В работе [13] в каплях метанола, этанола и FC-72 на подложке из политетрафторэтилена выделены три стадии процесса испарения с термоконвективными неустойчивостями: нагрев капли (которая почти достигает температуры подложки), испарение с термоконвективными неустойчивостями (тепловой поток на этом этапе максимален) и испарение без термоконвективных структур (капля на этом этапе больше похожа на пленку). Основная фаза характеризуется наличием конвективных ячеек, а движение ячеек связано с разностью температур между нагретой подложкой и температурой окружающей среды. Временная эволюция ГТВ была также описана посредством одновременных наблюдений потоков тепла и жидкости в испаряющейся капле этанола на нагретой подложке [14]. Было продемонстрировано, что ГТВ, распространяющиеся в азимутальном направлении в капле этанола, имеют место как в условиях нормальной силы тяжести, так и в условиях микрогравитации, так что влияние гравитации на поведение ГТВ невелико [15].

Сефиан и др. [16] продемонстрировали, что ГТВ в каплях FC-72 представляют собой волны, которые распространяются по всему объему капли. Кроме того, в работе [16] было изучено влияние ГТВ на теплопередачу в твердой подложке и на пространственное распределение скорости испарения. Особый вид ГТВ был определен Карапецасом и др. в [17], где наблюдались трехмерные спиралевидные периодические во времени бегущие волны, организованные радиально и однородные по азимутальному углу. Ши и др. [24] определили критические числа Марангони для возникновения неустойчивости Марангони в лежащей на нагретой подложке капле с низкой летучестью с помощью серии расчетов трехмерного компьютерного моделирования.

Новые особенности рассматриваемой проблемы были выявлены Семеновым и др. [25], они обнаружили, что ячеистые структуры, найденные в капле с большим числом Прандтля, представляют собой ячеистую структуру БМ, а не ГТВ. Авторы наблюдали неустойчивость Марангони в капле этанола капиллярного размера на нагретой подложке с высокой теплопроводностью. Они также выполнили численное моделирование при помощи односторонней модели, описанной в [26], где учтены, в частности, нестационарное испарение в диффузионной модели для неизотермической лежащей капли в режиме пиннинга контактной линии и стефановское течение в газе. Структуры, полученные при помощи решения уравнения теплопроводности в капле и проведения численного моделирования, были в хорошем согласии с данными эксперимента для контактного угла $\theta \approx 29.3^\circ$. На первом этапе появлялся тороидальный рулон, примыкающий к контактной линии; позже он дестабилизировался и распадался на несколько трехмерных нестационарных ячеек БМ, занимающих всю каплю. На третьей стадии ячейки БМ сносились к контактной линии, где силы Марангони сильнее, и наблюдалась цветочная структура примерно с 15 ячейками БМ вдоль окружности, что соответствует пространственному периоду, примерно в два раза превышающему локальную толщину жидкости. Авторы обнаружили, что количество ячеек БМ увеличивается с уменьшением высоты капли.

Взаимодействие конвективных ячеек БМ и ГТВ наблюдалось в недавней работе [27] в лежащей летучей капле силиконового масла на медной подложке в режиме пиннинга контактной линии в широком диапазоне температур подложки. Когда температура подложки была выше комнатной, наблюдалась квазистационарная конвективная ячеистая структу-

ра БМ, переходящая в осциллирующее состояние по мере испарения. Когда подложка была холоднее окружающего воздуха, осциллирующие ячейки БМ наблюдались, только когда температура подложки превышала 10.6 °C. Размер ячеек становился больше, а их количество уменьшалось, когда температура подложки была выше температуры окружающего газа. Для температуры подложки, превышающей 14.3 °C, наблюдается сосуществование распространяющихся гидротермальных волн и колебательной конвекции БМ. В статье приведены критические значения краевого угла, при которых происходит переход между различными типами конвекции.

В частности, авторы [27] рассмотрели случай, когда температура подложки на 7.81 °C выше температуры окружающей среды. В этом случае на первом этапе появляется цветочная структура ячеек БМ вблизи контактной линии. С уменьшением контактного угла ячейки увеличивались в размерах и занимали центральную область поверхности капли (рис. 4 в [27]).

Качественно похожие цветочные структуры ячеек БМ вблизи контактной линии на промежуточной стадии испарения капли наблюдались в обеих публикациях [25, 27]. В то же время пространственные структуры ячеек БМ при достаточно малых углах смачивания, которые наблюдались в [27] и численно получены в [25], существенно различаются. Ожидается сходство результатов, полученных в [25, 27], поскольку параметры капель, рассматриваемые в двух статьях, близки друг к другу. Также схожи релевантные физические свойства 0.65 сСт силиконового масла и этанола, и в обеих работах используются нагретые подложки с высокой теплопроводностью и близкими значениями температуры. Поэтому удивительно, что результаты на поздней стадии испарения капли сильно различаются. Целью настоящей работы является анализ поведения нестационарных ячеек БМ в лежащих летучих каплях на нагретых подложках, включая стадию сравнительно малых углов смачивания. Также представляет интерес определение основных физических механизмов, которые ответственны за исследуемое поведение и должны учитываться при моделировании.

Мы теоретически исследовали структуры неустойчивости Марангони в испаряющихся лежащих каплях этанола и силиконового масла для параметров, соответствующих каждому из экспериментов [25, 27]. На основе трехмерного численного моделирования описаны потоки жидкости и геометрические характеристики структур БМ в капле. Разработана математическая модель, которая учитывает теплопередачу во всех трех фазах, гидродинамику, диффузию паров в воздухе, стефановское течение в газе и тепловое излучение. С помощью программного комплекса конечно-элементного анализа ANSYS Fluent выполнено трехмерное компьютерное моделирование и получены нестационарные распределения температуры и поля скоростей в капле. В результате расчетов мы получили как цветочную структуру ячеек БМ около контактной линии для достаточно больших контактных углов, так и структуру, в которой более крупные ячейки БМ занимают границу раздела жидкость–газ для меньших контактных углов.

Статья организована следующим образом. В разд. 2 описываются математическая модель и метод численного решения. Значимость различных физических эффектов для рассматриваемых задач также анализируется в разд. 2. В разд. 3 представлены результаты и обсуждение. Раздел 4 содержит заключение.

## 2. МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Рассмотрим трехмерную нестационарную задачу для осесимметричной капли, лежащей на нагретой твердой подложке. Будем использовать приближение поверхности капли сферической чашей. Это приближение допустимо при условии $\mathrm{Bo} \ll 1$, т. е. когда влияние гравитации на форму поверхности мало. Здесь $\mathrm{Bo} = \rho g h_0 R/(2\sigma \sin\theta)$ — число Бонда, $h_0$ — высота капли. Мы используем обозначения из таблицы.

### 2.1. Диффузия паров в воздухе

Динамика концентрации пара $u$ в окружающей атмосфере описывается уравнением диффузии

$$\frac{\partial u}{\partial t} = D\Delta u. \tag{1}$$

Используются следующие граничные условия: $u = u_s$ на поверхности капли, $u = 0$ вдали от капли, $\partial u/\partial r = 0$ и $\partial u/\partial z = 0$ на осях соответственно $r = 0$ и $z = 0$.

Семенов и др. выводят в [26] и используют в [25] аналитические уравнения для диффузионной модели нестационарного испарения лежащих капель, которые согласуются с численными результатами из [28]. Однако эти нестационарные эффекты малы на временных масштабах, превышающих время, необходимое броуновской частице для прохождения

**Таблица.** Обозначения и значения параметров, используемые в вычислениях

| Обозначение | Величина | Единица измерения | Этанол | 0.65 сСт силиконовое масло |
|---|---|---|---|---|
| $R$ | Радиус контактной линии | мм | 2.95 | 2.09 |
| $\theta$ | Контактный угол | градусы | $29.2°, 20°, 10°$ | $28.39°, 20.49°, 17.18°$ |
| $T_s$ | Температура подложки | K | 307.05 | 302.69 |
| $T_a$ | Температура окружающего воздуха | K | 297.55 | 294.88 |
| $\rho$ | Плотность | кг/м$^3$ | 772.24 | 760 |
| $c_p$ | Удельная теплоемкость | Дж/(кг·K) | 2602.3 | 2000 |
| $k$ | Теплопроводность | Вт/(м·K) | 0.14 | 0.1 |
| $\kappa = k/(\rho c_p)$ | Температуропроводность | м$^2$/с | $6.97 \cdot 10^{-8}$ | $6.58 \cdot 10^{-8}$ |
| $k_{air}$ | Теплопроводность воздуха | Вт/(м·K) | 0.026 | 0.026 |
| $\eta$ | Динамическая вязкость | кг/(м·с) | $1.095 \cdot 10^{-3}$ | $4.94 \cdot 10^{-4}$ |
| $\sigma$ | Поверхностное натяжение | мН/м | $2.062 \cdot 10^{-2}$ | $1.54 \cdot 10^{-2}$ |
| $\sigma_T$ | Производная поверхностного натяжения по температуре | Н/(м·K) | $-8.979 \cdot 10^{-5}$ | $-8 \cdot 10^{-5}$ |
| $L$ | Удельная теплота парообразования | Дж/кг | 918600 | 223000 |
| $D$ | Коэффициент диффузии паров в воздухе | м$^2$/с | $11.81 \cdot 10^{-6}$ | $5.6 \cdot 10^{-6}$ |
| $u_s$ | Плотность насыщенных паров | кг/м$^3$ | 0.219664 | 0.469145 |
| $\varepsilon$ | Коэффициент излучения | | 0.92 | 0.91 |

характерной длины $R$, т. е. при $t \gtrsim R^2/D \approx 0.7$ с, для рассматриваемых задач. Поэтому кинетику испарения можно рассматривать как стационарный процесс и использовать квазистационарное приближение

$$\Delta u = 0 \tag{2}$$

с теми же граничными условиями вместе с приближением сферической чаши.

Последняя задача математически эквивалентна задаче об электростатическом потенциале заряженного проводника, форма которого определяется двумя пересекающимися сферами. Такая задача была решена аналитически в [29] в тороидальных координатах. На основе этого аналитическое решение уравнения (2) с указанными выше граничными условиями, которое описывает плотность неоднородного потока испарения $J(r)$ с поверхности испаряющейся капли, было представлено в работе [30] в виде

$$J(r) = |D\nabla u| = \frac{Du_s}{R}\left(\frac{\sin\theta}{2} + \sqrt{2}(x(r) + \cos\theta)^{3/2} \times \right.$$

$$\left. \times \int\limits_0^\infty \frac{\operatorname{ch}(\theta\tau)}{\operatorname{ch}(\pi\tau)} \tau \operatorname{th}((\pi-\theta)\tau) P_{-1/2+i\tau}(x(r))\, d\tau \right), \tag{3}$$

где

$$x(r) = \frac{r^2\cos\theta/R^2 + \sqrt{1 - r^2\sin^2\theta/R^2}}{1 - r^2/R^2} \tag{4}$$

и $P_{-1/2+i\tau}(x)$ — полином Лежандра. Выражение (3) удобно аппроксимировать как [30, 31]

$$J(r) = J_0(\theta)\left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right)^{-\lambda(\theta)}, \tag{5}$$

где $\lambda(\theta) = 1/2 - \theta/\pi$. Коэффициент $J_0(\theta)$ в (5) может быть найден следующим образом:

$$\frac{J_0(\theta)}{1 - \Lambda(\theta)} = J_0(\pi/2)(0.27\theta^2 + 1.3), \tag{6}$$

$$\Lambda(\theta) = 0.22(\theta - \pi/4)^2 + 0.36, \tag{7}$$

$$J_0(\pi/2) = \frac{Du_s}{R}, \tag{8}$$

где $u_s$ — плотность насыщенного пара на свободной поверхности капли. В работе [31] численно найдено, что уравнения (5)–(8) представляют собой весьма точную аппроксимацию решения уравнения (2) с указанными выше граничными условиями в приближении сферической чаши. Это было подтверждено для широкого диапазона углов смачивания. При этом точность аппроксимации не зависит от таких параметров, как $D$ и $R$. По этой причине мы используем уравнения (5)–(8) при моделировании.

Давление насыщенного пара определяется уравнением Антуана (с $p_s$ [Па] и $T$ [K]):

$$\log_{10} p_s(T) = A - \frac{B}{C+T}, \tag{9}$$

где $A$, $B$, $C$ — эмпирические константы. Мы используем $A = 10.247$, $B = 1599.039$, $C = -46.391$ для этанола [32] и $A = 9.418$, $B = 1509$, $C = -31.55$ для 0.65 сСт силиконового масла [18].

Концентрация пара $u_s$ на поверхности капли рассчитывается по закону идеального газа и определяется по формуле

$$u_s(T) = \frac{Mp_s(T)}{\bar{R}T}, \tag{10}$$

где $\bar{R}$ — универсальная газовая постоянная, $M$ — молярная масса пара.

Из выражения (5) следует, что потеря массы в результате испарения происходит неравномерно вдоль свободной поверхности жидкого слоя, значительно увеличиваясь вблизи закрепленной контактной линии. Неоднородный поток массы во время испарения и соответствующая теплопередача изменяют распределение температуры вдоль поверхности капли и вызывают силы Марангони из-за зависящего от температуры поверхностного натяжения. Эти силы приводят к термокапиллярной конвекции внутри капли.

### 2.2. Стефановское течение

Поскольку концентрация насыщенного пара не является величиной, намного меньшей плотности воздуха (см. таблицу), естественно учесть в рассматриваемой задаче вклад стефановского течения в газовой фазе [33].

В результате конвективного массопереноса в газе скорость испарения увеличивается следующим образом [26]:

$$\tilde{J}(r) = \frac{u_g}{u_s} \ln\left(\frac{u_g}{u_g - u_s}\right) J(r), \tag{11}$$

где $u_g = M_g p_g/(\bar{R}T)$, $p_g$ — атмосферное давление, $M_g = M_{air}(1 - X_v) + M_v X_v$ — молярная масса газа, находящегося рядом со свободной поверхностью капли, $M_{air}$ и $M_v$ — молярные массы воздуха и пара, $X_v = u_s\bar{R}T/(M_v p_g)$ — мольная доля пара. Здесь температура поверхности $T$ является функцией $r$.

Отсюда следует, что стефановское течение в газе увеличивает скорость испарения примерно на 10 % и 18 % для капель этанола и 0.65 сСт силиконового масла соответственно.

Результаты, приведенные ниже в разд. 3, не учитывают стефановское течение. Однако наши предварительные численные расчеты для капли 0.65 сСт силиконового масла с параметрами, указанными в таблице, и краевым углом 20.49° показывают, что влияние стефановского течения на распределение температуры на поверхности капли весьма мало.

### 2.3. Гидродинамика

Основными уравнениями гидродинамики внутри капли являются уравнения Навье – Стокса и уравнение непрерывности для несжимаемой жидкости:

$$\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v}\cdot\nabla)\mathbf{v} + \frac{1}{\rho}\operatorname{grad} p = \nu\Delta\mathbf{v}, \tag{12}$$

$$\operatorname{div}\mathbf{v} = 0, \tag{13}$$

Здесь $\nu = \eta/\rho$ — кинематическая вязкость, $\mathbf{v}$ — скорость жидкости, $p$ — давление.

Граничные условия для уравнений (12), (13) включают условие прилипания $\mathbf{v} = 0$ на границе раздела подложка–жидкость и условие на границе раздела жидкость–газ, включающее силы Марангони, связанные с температурной зависимостью поверхностного натяжения. Вообще говоря, последнее граничное условие можно выразить как [34]

$$\left(p - p_v - \sigma\left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}\right)\right) n_i = \eta\left(\frac{\partial v_i}{\partial x_k} + \frac{\partial v_k}{\partial x_i}\right) n_k - \frac{\partial\sigma}{\partial x_i}, \tag{14}$$

где единичный вектор $\mathbf{n}$ направлен в сторону пара вдоль нормали к поверхности. Взяв тангенциальную составляющую этого уравнения, находим

$$\frac{d\sigma}{d\tau} = \eta\left(\frac{\partial v_\tau}{\partial n} + \frac{\partial v_n}{\partial \tau} - v_\tau\frac{d\varphi}{d\tau}\right). \tag{15}$$

Здесь $d\sigma/d\tau = \sigma_T dT/d\tau$, $\tau_i$ — компоненты единичного вектора $\boldsymbol{\tau}$, тангенциального к поверхности, $\varphi$ —

угол между нормалью к поверхности капли и вертикальной осью. Отметим, что пакет моделирования ANSYS Fluent позволяет напрямую задавать напряжение Марангони на свободной поверхности капли, поэтому уравнение (15) уже реализовано в программном обеспечении, и пользователю не нужно его задавать.

### 2.4. Теплопередача в капле

Распределение температуры вычисляется с помощью уравнения теплопроводности

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla T = \kappa \Delta T. \tag{16}$$

Теплопроводность внутри подложки определяется уравнением

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \kappa \Delta T. \tag{17}$$

Граничные условия для уравнения теплопроводности включают изотермическое граничное условие на нижней границе подложки $T = T_s$, адиабатическое граничное условие на границе раздела подложка–газ $\partial T_s/\partial n = 0$ и непрерывность теплового потока на границе раздела подложка–жидкость $k_s \partial T_s/\partial z = k \partial T_L/\partial z$. Здесь $T_L$ и $T_s$ соответствуют температуре жидкости и температуре подложки, $k$ и $k_s$ — теплопроводности жидкости и подложки соответственно.

Согласно экспериментальным условиям [25, 27], в расчетах в настоящей работе используется подложка с высокой теплопроводностью. В этом случае граничные условия могут быть записаны просто как $T = T_s$ на границе раздела подложка–жидкость.

Граничное условие для потока тепла на поверхности капли имеет вид

$$\frac{\partial T}{\partial n} = -\frac{Q_0(r)}{k}, \tag{18}$$

где

$$Q_0(r) = -k_{air}\left(\frac{\partial T}{\partial n}\right)_{air} + L\tilde{J}(r) + \dot{q}_r \tag{19}$$

представляет собой полный тепловой поток на поверхности капли, который включает скрытую теплоту парообразования, эффекты теплопроводности в газе и тепловое излучение. Приведенные ниже оценки показывают, что все эти эффекты важны для капель, испаряющихся с нагретых подложек. Здесь $\mathbf{n}$ — вектор нормали к свободной поверхности капли, $k_{air}\left(\partial T/\partial n\right)_{air}$ — тепловой поток, связанный с неоднородным распределением температуры в окружающем газе, $k_{air}$ — теплопроводность воздуха, $J\,(r)$ — локальная скорость испарения, определяемая выражением (5),

$$\dot{q}_r = \sigma_B \varepsilon (T^4 - T_a^4) \tag{20}$$

— поток излучения между каплей и окружающей средой, $\sigma_B$ — постоянная Стефана–Больцмана, $\varepsilon$ — коэффициент излучения, $T$ и $T_a$ — температура поверхности капли и температура окружающего газа соответственно.

Соотношение (20) можно использовать при следующих условиях. Во-первых, важно, чтобы размер капли был намного больше характерных длин волн теплового излучения, которые определяются распределением Планка. При этом условии излучательная способность практически не зависит от частоты [35]. И наоборот, для объектов, размеры которых намного меньше тепловой длины волны, возможна суперпланковская теплопередача излучением в дальней зоне [36, 37]. Во-вторых, важно, чтобы изменение температуры внутри капли было намного меньше, чем разница температур капли и окружающего газа.

Получим теперь соотношение для $(\partial T/\partial n)_{air}$.

Квазистационарное распределение температуры в газовой фазе определяется уравнением

$$\Delta T = 0 \tag{21}$$

с граничными условиями: $T = T_s$ на поверхности капли (в предположении, что разница температур внутри капли намного меньше, чем разница температур капли и окружающего газа), $T = T_a$ вдали от капли. Эта задача математически эквивалентна уравнению (2) с соответствующими граничными условиями, поэтому можно использовать те же формулы для аналитического решения. Из (5)–(8) следует, что величина $J(r)/(Du_s)$ зависит только от геометрии задачи. Из математической эквивалентности следует, что

$$\frac{J(r)}{Du_s} = \frac{1}{T_s - T_a}\left(\frac{\partial T}{\partial n}\right)_{air}. \tag{22}$$

Следовательно, основное граничное условие на поверхности капли принимает вид (19), где $(\partial T/\partial n)_{air}$ вычисляется при помощи формул, аналогичных (5)–(8):

$$\left(\frac{\partial T}{\partial n}\right)_{air} = J_1(\theta)\left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right)^{-\lambda(\theta)}, \tag{23}$$

$$\frac{J_1(\theta)}{1 - \Lambda(\theta)} = J_1(\pi/2)(0.27\theta^2 + 1.3), \tag{24}$$

$$J_1(\pi/2) = \frac{T - T_a}{R}. \tag{25}$$

### 2.5. Теплопередача в газовой фазе

Оценим относительную силу тепловых потоков $LJ(r)$ и $k_{air}\,(\partial T/\partial n)_{air}$, которые являются слагаемыми в (19). Из (22) следует, что тепловые потоки равны, когда

$$T_s - T_a = \frac{LDu_s}{k_{air}}. \tag{26}$$

Следовательно, вклад эффекта теплопроводности в воздухе соответствует тепловому потоку, связанному с испарением, для

$$T_s - T_a \approx \approx \begin{cases} 60.91\,\text{K} & \text{для этанола,} \\ 0.94\,\text{K} & \text{для гексанола,} \\ 22.53\,\text{K} & \text{для силиконового масла.} \end{cases} \tag{27}$$

В данной работе рассматривается случай $T_s - T_a \approx \approx 10$ K для капель этанола и силиконового масла, поэтому рассмотрение эффекта теплообмена в газовой фазе целесообразно для получения количественных результатов.

### 2.6. Тепловое излучение

Оценим относительную силу теплового потока $LJ(r)$ испарительного охлаждения и теплового потока теплового излучения (20) между каплей и окружающей средой.

Из уравнений (5)–(8) следует, что тепловые потоки примерно равны при

$$T \sim \left(\frac{LDu_s}{\sigma_B \varepsilon R} + T_a^4\right)^{1/4}. \tag{28}$$

Следовательно, вклад эффекта теплового излучения соответствует тепловому потоку испарительного охлаждения для

$$T_s - T_a \approx \approx \begin{cases} 70.6\,\text{K} & \text{для этанола,} \\ 1.61\,\text{K} & \text{для гексанола,} \\ 30.69\,\text{K} & \text{для силиконового масла.} \end{cases} \tag{29}$$

В данной работе рассматривается случай $T_s - T_a \approx \approx 10$ K для капель этанола и силиконового масла, поэтому учет влияния теплового излучения целесообразен для получения количественных результатов.

### 2.7. Численное моделирование

Мы решаем уравнение теплопроводности и уравнения Навье – Стокса методом конечных элементов с использованием программного пакета моделирования гидродинамики ANSYS Fluent. Моделирование включает несколько шагов.

• Построение геометрии и сетки.

Создаем трехмерную геометрию осесимметричной капли. Радиус кривизны поверхности и высота капли равны соответственно $R/\sin\theta$ и $R(1/\sin\theta - \operatorname{ctg}\theta)$. Следующим шагом является разделение области моделирования на малые вычислительные ячейки. Используем количество ячеек от 200 до 500 тысяч в зависимости от угла смачивания.

• Определение модели и настройка параметров.

Выбираем тип решателя со связью по давлению, нестационарный режим, вязкое (ламинарное) течение и включаем расчет энергии в модели. Указываем физические свойства жидкости: плотность, вязкость и температурную производную поверхностного натяжения $\sigma_T$, позволяющую задавать напряжения Марангони и т. д.

• Установка граничных условий и метода решения.

Граничные условия устанавливаются в соответствии с разд. 2. Скорость потери тепла (19) указывается с помощью пользовательской функции (UDF), написанной на языке программирования Си. Используется алгоритм решения SIMPLE (Semi-Implicit Method for Pressure Linked Equations — полунеявный метод для уравнений со связью по давлению) метода Патанкара [38], доступный в пакете Fluent. Основной особенностью этого метода является использование зависимости между поправками к скорости и давлению для обеспечения сохранения массы и вычисления поля давления. Алгоритм написан таким образом, что уравнение неразрывности выполняется автоматически.

• Последующая обработка.

Мы отображаем результаты моделирования: поле скорости, абсолютные значения скорости и распределение температуры, и затем анализируем вихревую структуру и волновые картины.

## 3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 показаны экспериментальные результаты из рис. 4 работы [27] и наши численные результаты для высыхающей капли 0.65 сСт силиконового масла. Здесь $T_s = 302.69$ K, $T_a = 294.88$ K, $R = 2.09$ мм, а угол смачивания капли составляет

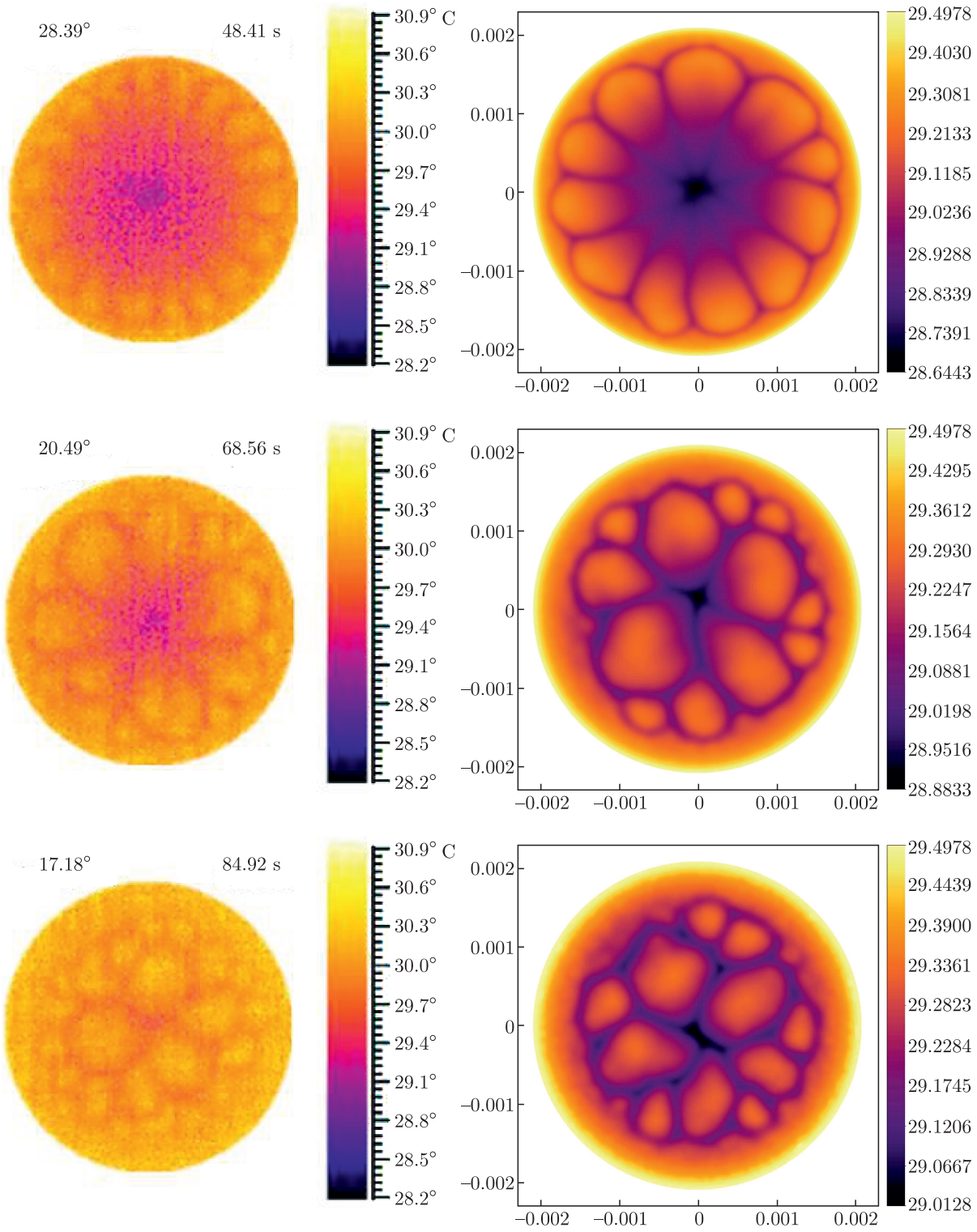


**Рис. 1.** Эволюция структур в распределении температуры на поверхности капли силиконового масла. В левой части рисунка показаны экспериментальные данные, перепечатанные из работы [27] с разрешения правообладателя (Copyright 2019 Elsevier). Правая панель показывает соответствующие температурные структуры на поверхности капли, полученные с помощью компьютерного моделирования с использованием параметров из таблицы

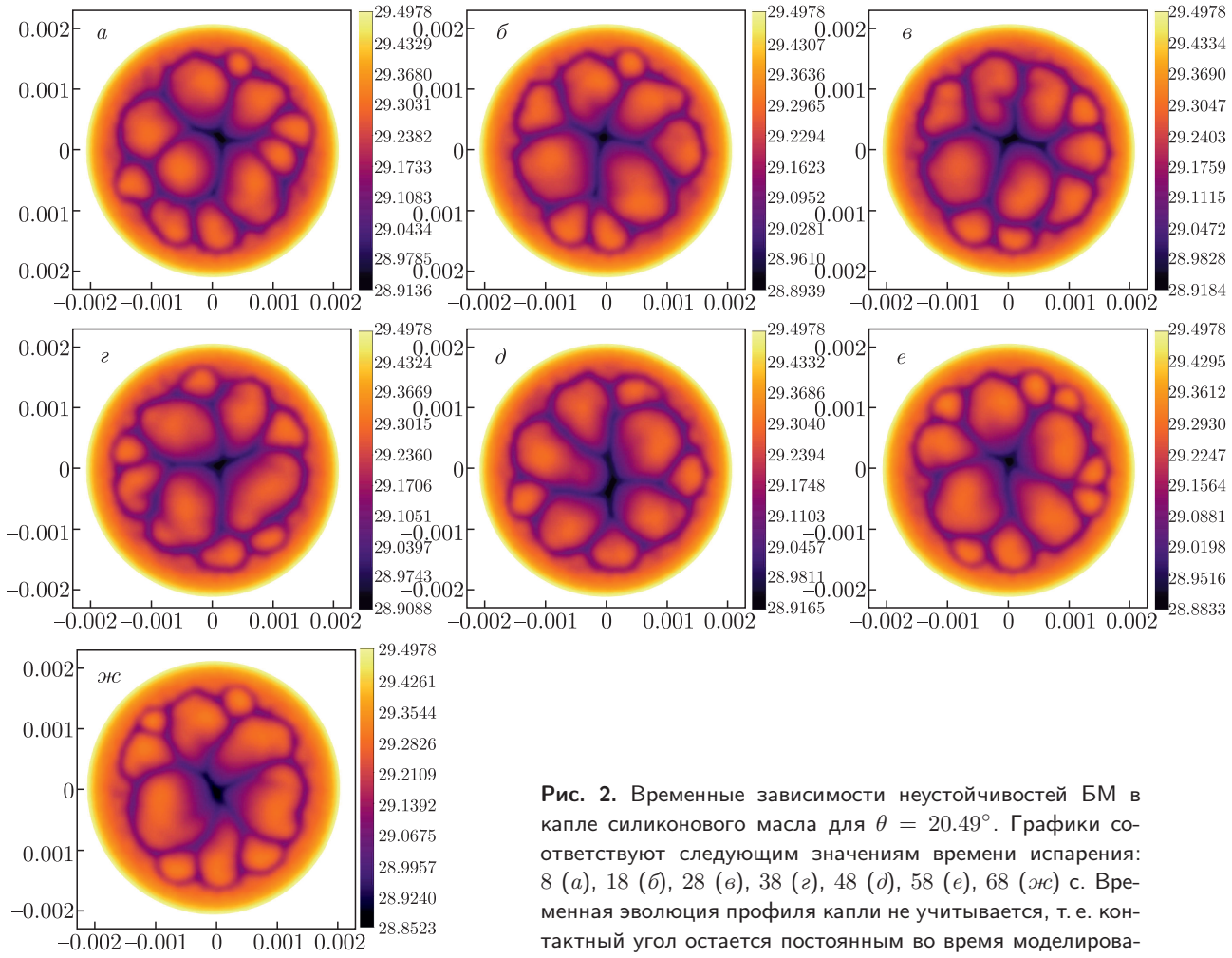


**Рис. 2.** Временные зависимости неустойчивостей БМ в капле силиконового масла для $\theta = 20.49°$. Графики соответствуют следующим значениям времени испарения: 8 (*а*), 18 (*б*), 28 (*в*), 38 (*г*), 48 (*д*), 58 (*е*), 68 (*ж*) с. Временная эволюция профиля капли не учитывается, т. е. контактный угол остается постоянным во время моделирования

28.39°, 20.49° и 17.18°. Диффузия паров в воздухе, гидродинамика в капле, эффекты теплопроводности во всех трех фазах и тепловое излучение учитывались в численных расчетах в соответствии с обсуждением в разд. 2.

Полученное поведение ячеек БМ качественно согласуется с экспериментальными данными: при большом угле смачивания наблюдается цветочная структура, а при малых контактных углах ячейки БМ занимают всю поверхность капли. При моделировании не учитывалась временная динамика формы поверхности капли, поэтому детальные количественные результаты, такие как число ячеек БМ, могут отличаться.

Отметим, что число Прандтля довольно велико для рассматриваемых задач, поэтому механизм неустойчивости ГТВ [20, 21] имеет тенденцию перемещать ячейки БМ в направлении от вершины капли к контактной линии.

Из рис. 2 видно, что осцилляции структуры ячеек являются очень медленными по сравнению с характерными частотами ГТВ в [11, 12]. Таким образом, полученные результаты подтверждают в данном случае наличие нерегулярной осциллирующей конвекции БМ, а не ГТВ. Ячейки конвекции Марангони являются достаточно глубокими и практически достигают дна капли, как показано на рис. 3.

Рисунок 4 был получен для испаряющейся капли этанола. Здесь $T_s = 307.05$ K, $T_a = 297.55$ K, $R = 2.95$ мм, $\theta = 29.2°$. Временная динамика профиля капли не учитывалась. Численные результаты качественно согласуются с экспериментальными данными. Мы получили 20 ячеек БМ, что согласуется с численными результатами работы [25], полученными другим методом. Мы подтверждаем результат [25] о том, что полученная неустойчивость должна быть описана как нестационарная конвекция БМ, а не как ГТВ.

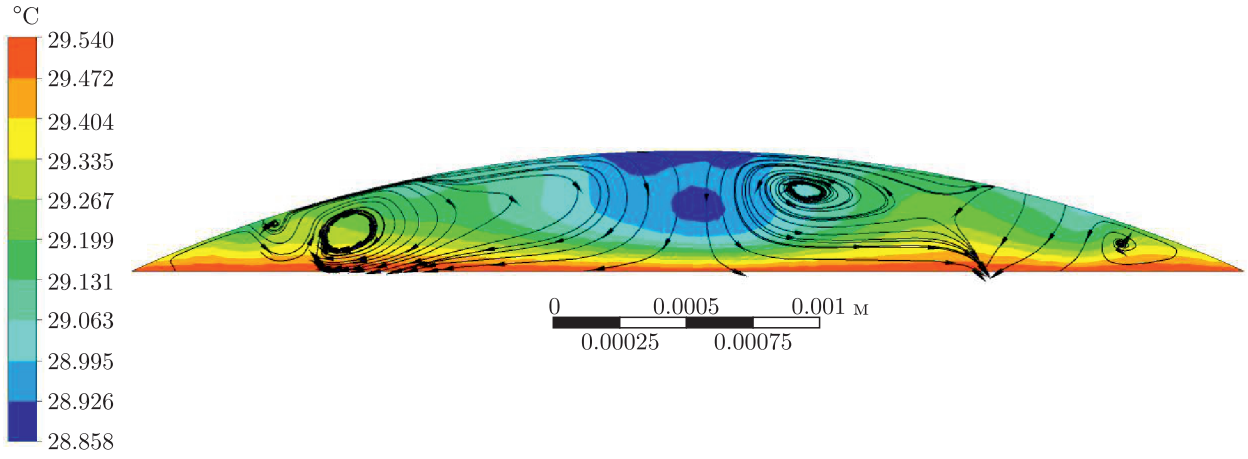


**Рис. 3.** Вид сбоку для моделирования капли силиконового масла с $\theta = 20.49°$

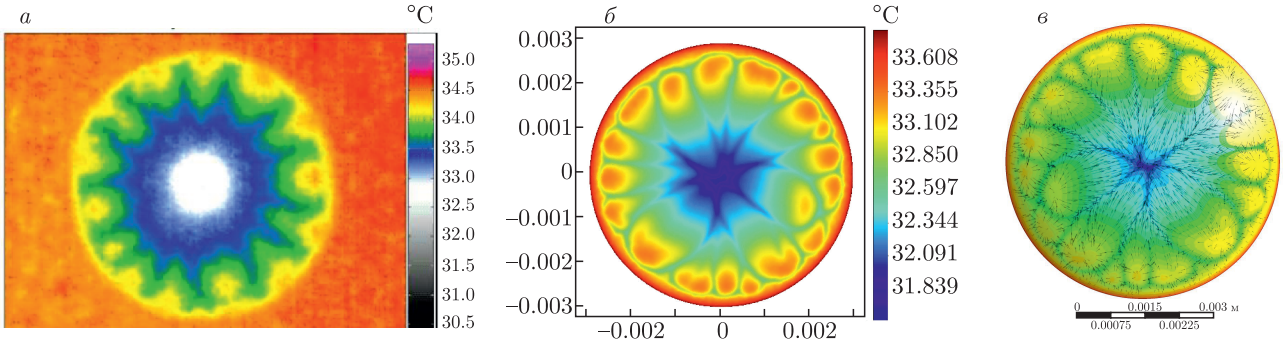


**Рис. 4.** Структуры в распределении температуры на поверхности и график векторного поля скорости для капли этанола с $\theta = 29.2°$. *а*) Экспериментальные данные, перепечатанные из работы [25] с разрешения правообладателя (Copyright 2017 AIP Publishing). *б*) Соответствующая картина температуры поверхности, полученная с помощью компьютерного моделирования с использованием параметров из таблицы. *в*) График векторного поля скорости на поверхности капли, полученный численно

Мы не рассчитывали инфракрасное изображение с помощью уравнения (31) из [25], поскольку считаем, что это уравнение неверно. В частности, уравнение написано в предположении, что тепловое излучение распространяется только в вертикальном направлении. Кроме того, используется выражение Стефана – Больцмана, при этом не учитывается, что максимум распределения Планка находится за пределами диапазона длин волн, видимого инфракрасной камерой, т. е. инфракрасная камера пропускает значительную часть излучения.

На рис. 5 показаны вычисленные распределения температуры на поверхности капли для разных значений $\theta$. Для большого контактного угла наблюдается цветочная структура ячеек БМ. В то же время ячейки занимают всю поверхность капли при достаточно малых углах смачивания. Такая ситуация отличается от полученной численно в [25], где ячейки БМ располагались только вблизи контактной линии, и их количество увеличивалось с уменьшением высоты капли. Зависимости расположения ячеек БМ от угла смачивания на рис. 1 и 5 похожи, что естественно, поскольку соответствующие физические параметры довольно близки.

## 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Мы выполнили трехмерное компьютерное моделирование нестационарных неустойчивостей Марангони в испаряющихся лежащих каплях этанола и силиконового масла капиллярного размера на нагретой подложке с высокой теплопроводностью. Мы проанализировали, насколько существенны различные физические эффекты в этой задаче и обнаружили, что, помимо нестационарной трехмерной теп-

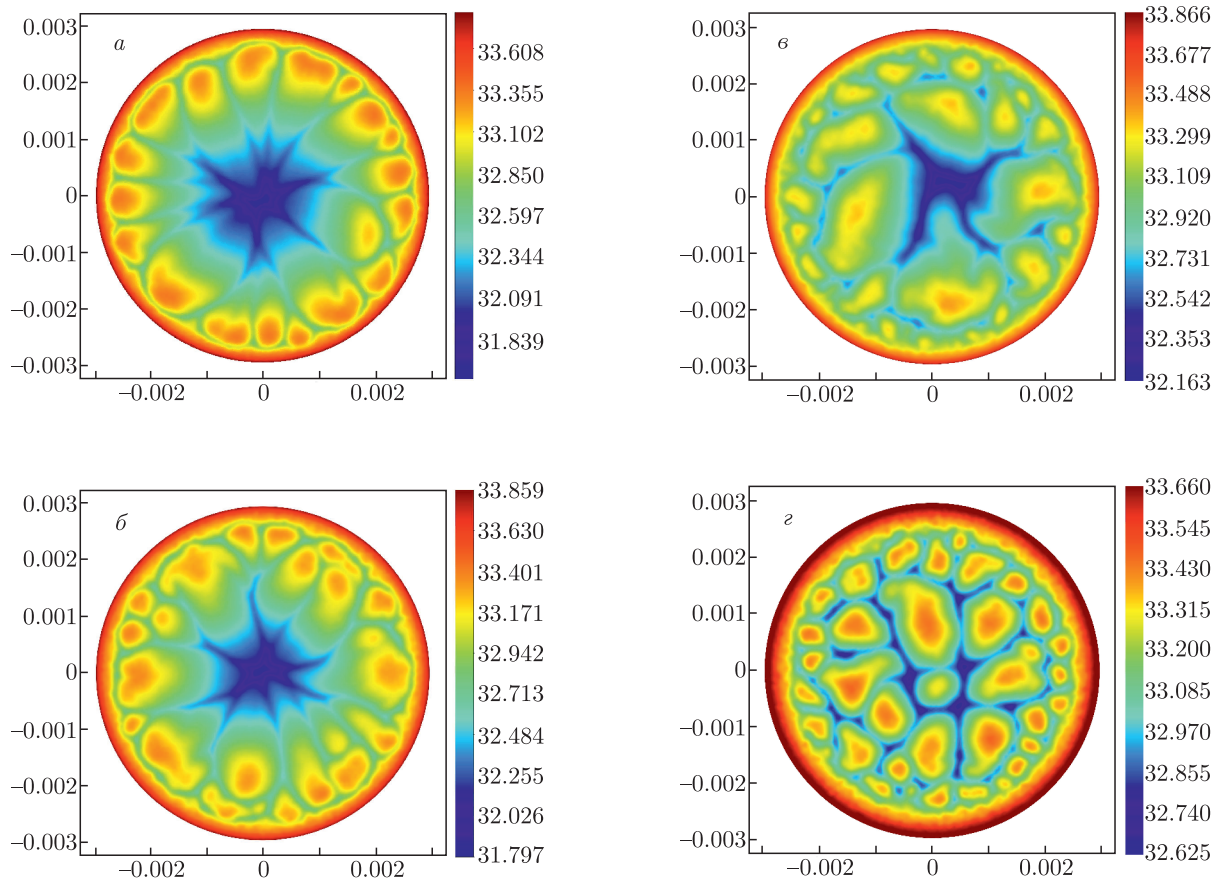


**Рис. 5.** Структуры в распределениях температуры на поверхности капли, полученные при помощи компьютерного моделирования капли этанола для $\theta = 29.2^\circ$ (*а*), $24^\circ$ (*б*), $20^\circ$ (*в*), $15^\circ$ (*г*)

лопроводности в капле, нестационарной трехмерной динамики несжимаемой жидкости и диффузии паров в воздухе, также необходимо учитывать поток излучения между каплей и окружающей средой и теплопередачу в газовой фазе. Однако вклад таких явлений, как нестационарные эффекты диффузии паров в воздухе незначителен.

Интересно, что хорошо известное аналитическое решение для скорости испарения в диффузионной модели испарения [30], которое значительно упрощает расчет теплопередачи в капле, также может быть использовано для расчета теплопроводности в газовой фазе.

Наши результаты хорошо согласуются с экспериментальными результатами [25, 27]. Мы подтверждаем вывод этих работ о том, что неустойчивость в данном случае представляет собой нестационарную конвекцию БМ, а не ГТВ.

Также проясняется поведение неустойчивостей БМ при уменьшении краевого угла. Мы обнаружили, что уменьшение краевого угла приводит к увеличению размера ячеек БМ, что в конечном итоге превращает цветочную пространственную структуру в структуру, в которой ячейки БМ занимают всю каплю. Такое поведение наблюдалось экспериментально в [27], но, насколько нам известно, до сих пор не было получено численно. Мы обнаружили, что это поведение применимо и к испаряющейся капле этанола [25]. Это устраняет несоответствие между поведением ячеек БМ в [27] и в [25].

Наши результаты также согласуются с недавними экспериментальными результатами [39], которые показывают, что гидротермальные волны в капле возникают только при относительно больших углах смачивания.

Мы полагаем, что полученные результаты представляют собой полезный шаг на пути к лучшему пониманию термокапиллярной неустойчивости в испаряющихся каплях.

**Финансирование.** Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант № 18-71-10061).

## ЛИТЕРАТУРА


**1**. D. Brutin and V. Starov, Chem. Soc. Rev. **47**, 558 (2018).

**2**. R. G. Larson, AIChE J. **60**, 1538 (2014).

**3**. H. Y. Erbil, Adv. Colloid Interf. Sci. **170**(1–2), 67 (2012).

**4**. D. Zang, S. Tarafdar, Yu. Yu. Tarasevich, M. Du. Choudhury, and Tapati Dutta, Phys. Rep. **804**, 1 (2019).

**5**. F. Giorgiutti-Dauphiné and L. Pauchard, Eur. Phys. J. E **41**(3), 32 (2018).

**6**. X. Shao, F. Duan, Y. Hou, and X. Zhong, Adv. Colloid Interf. Sci. **275**, 102049 (2020).

**7**. R. Savino and S. Fico, Phys. Fluids **16**, 3738 (2004).

**8**. K. H. Kang, S. J. Lee, C. M. Lee, and I. S. Kang, Meas. Sci. Technol. **15**, 1104 (2004).

**9**. H. Hu and R. G. Larson, J. Phys. Chem. B **110**, 7090 (2006).

**10**. W. D. Ristenpart, P. G. Kim, C. Domingues, J. Wan, and H. A. Stone, Phys. Rev. Lett. **99**, 234502 (2007).

**11**. K. Sefiane, J. R. Moffat, O. K. Matar, and R. V. Craster, Appl. Phys. Lett. **93**, 074103 (2008).

**12**. K. Sefiane, A. Steinchen, and R. Moffat, Colloids Surf. A **365**, 95 (2010).

**13**. D. Brutin, B. Sobac, F. Rigollet, and C. Le Niliot, Exp. Therm. Fluid Sci. **35**, 521 (2011).

**14**. B. Sobac and D. Brutin, Phys. Fluids **24**, 032103 (2012).

**15**. F. Carle, B. Sobac, and D. Brutin, J. Fluid Mech. **712**, 614 (2012).

**16**. K. Sefiane, Y. Fukatani, Y. Takata, and J. Kim, Langmuir **29**(31), 9750 (2013).

**17**. G. Karapetsas, O. K. Matar, P. Valluri, and K. Sefiane, Langmuir **28**(31), 11433 (2012).

**18**. P. J. Sáenz, P. Valluri, K. Sefiane, G. Karapetsas, and O. K. Matar, Phys. Fluids **26**, 024114 (2014).

**19**. J.-L. Zhu, W.-Y. Shi, and L. Feng, Int. J. Heat Mass Transfer **134**, 784 (2019).

**20**. M. K. Smith and S. H. Davis, J. Fluid Mech. **132**, 119 (1983).

**21**. M. K. Smith. Phys. Fluids **29**, 3182 (1986).

**22**. D. Schwabe, U. Möller, J. Schneider, and A. Scharmann, Phys. Fluids A **4**, 2368 (1992).

**23**. R. J. Riley and G. P. Neitzel, J. Fluid Mech. **359**, 143 (1998).

**24**. W.-Y. Shi, K.-Y. Tang, J.-N. Ma, Y.-W. Jia, H.-M. Li, and L. Feng, Int. J. Therm. Sci. **117**, 274 (2017).

**25**. S. Semenov, F. Carle, M. Medale, and D. Brutin, Appl. Phys. Lett. **111**, 241602 (2017).

**26**. S. Semenov, F. Carle, M. Medale, and D. Brutin, Phys. Rev. E **96**, 063113 (2017).

**27**. T.-S. Wang and W.-Y. Shi, Int. J. Heat Mass Transfer **131**, 1270 (2019).

**28**. L. Yu. Barash, T. P. Bigioni, V. M. Vinokur, and L. N. Shchur, Phys. Rev. E **79**, 046301 (2009).

**29**. Н. Н. Лебедев, *Специальные функции и их приложения*, Физматлит, Москва–Ленинград (1963).

**30**. R. D. Deegan, O. Bakajin, T. F. Dupont, G. Huber, S. R. Nagel, and T. A. Witten, Phys. Rev. E **62**, 756 (2000).

**31**. H. Hu and R. G. Larson, J. Phys. Chem. B **106**, 1334 (2002).

**32**. D. Ambrose and C. H. S. Sprake, J. Chem. Thermodyn. **2**, 631 (1970).

**33**. Н. А. Фукс, *Испарение и рост капель в газообразной среде*, Изд-во АН СССР, Москва (1958).

**34**. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Теоретическая физика*, т. 6, *Гидродинамика*, Наука, Москва (1988).

**35**. G. W. Kattawar and M. Eisner, Appl. Opt. **9**, 2685 (1970).

**36**. D. Thompson, L. Zhu, R. Mittapally, S. Sadat, Z. Xing, P. McArdle, M. M. Qazilbash, P. Reddy, and E. Meyhofer, Nature **561**, 216 (2018).

**37**. V. Fernández-Hurtado, A. I. Fernández-Domínguez, J. Feist, F. J. García-Vidal, and J. C. Cuevas, Phys. Rev. B **97**, 045408 (2018).

**38**. S. V Patankar, *Numerical Heat Transfer and Fluid Flow*, CRC Press (2018).

**39**. T.-S. Wang and W.-Y. Shi, Int. J. Heat Mass Transfer **148**, 119138 (2020).