

令和 3 年 5 月 28 日現在

機関番号：33910

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2020

課題番号：17K06151

研究課題名(和文)異なるスケール間での界面運動の結合に基づく非理想面濡れのダイナミクスの記述

研究課題名(英文) Dynamics of wetting on unideal solid surface - Modelling based on the matching of the surface motion described for different scales

研究代表者

伊藤 高啓 (Ito, Takahiro)

中部大学・工学部・教授

研究者番号：00345951

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は凹凸面上を固着-解放を伴いながら断続的に移動する運動接触線近傍の界面形状の予測手法を確立することを目的として行った。実験ではナノオーダーの深さの溝状凹凸を持った固体面上での濡れにおける界面形状の時間的変化を測定した。界面での垂直応力のつり合いに基づいた考察により、界面変形挙動は接触線近傍の粘性応力が壁面垂直方向に伝播する効果と界面変形の伝播速度が界面張力波の伝播速度により制限される効果とを考慮することでモデリングできることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

実用的な固体面はナノ～マイクロスケールの粗さを持つことが多く、それらは動的濡れ現象に大きな影響をもたらす。固体面が粗さを持つ場合には接触線は粗さに一時的にピン止めされ、固着-解放を繰り返しながら運動する。これまでの接触角モデルや界面形状を記述するモデルは定常を仮定しており、このような効果は取り入れられてこなかった。本研究で非定常の運動下にある界面形状の予測モデルが開発されたことにより、動的接触角モデルの実用面への適用が、より物理的根拠を以て行うことが可能となった。

研究成果の概要(英文)：This study was aimed at construction of the estimation of the interface deformation in the vicinity of the contact line moving on rough surface. The geometry of the interface near the moving contact line on a rectangular-shaped roughness is experimentally measured. The interface deformation can be described with the model, based on the balance of the normal stress on the interface, in which the propagation of viscous stress, particular in the vicinity of the moving contact line, and the limitation of the interface deformation by capillary wave speed, are taken into account.

研究分野：流体工学

キーワード：接触角 接触線 界面

### 1. 研究開始当初の背景

固体表面と流体界面との交線である接触線の運動(図1)の解明は濡れ現象を予測するうえで重要である。このような現象は配管内二相流やマイクロチャンネルにおける液滴分離など、工業的にさまざまな場所で見られる。接触線における流体界面と固体面のなす角である接触角は界面形状を求める際の境界条件となるため、正確な予測が不可欠である。

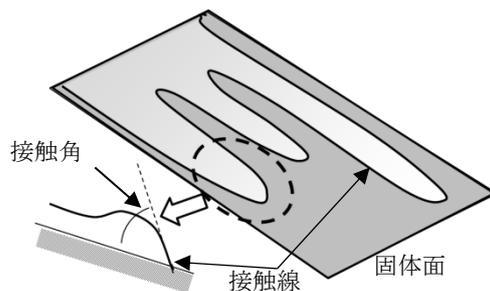


図1 接触線と接触角

理想的な(分子レベルで平滑かつ均一な)固体表面を仮定した場合は、粘性応力とラプラス圧のつり合いから、微視的(ナノメータスケール)接触角に基づいて「巨視的」(一般的にはマイクロメータスケール以上)な「動的」接触角が評価される。一方、実用的な面では固体表面の化学的不均一や凹凸により、平衡接触角が局所で変化したり、動的接触角の接触線速度に対する変化の態様が大きく変動する。こうした凹凸が存在する面での動的接触線の挙動は不明な点が多く、サブマイクロ~ナノスケールにおける表面構造や化学的不均一が巨視的な接触線速度-接触角の関係に与える影響を考慮したモデルを構築することが喫緊の課題である。

### 2. 研究の目的

本研究では微視的な固体面の構造(凹凸)の影響に着目し、それらが微視的ないし巨視的な動的接触角(運動接触線における界面形状)に及ぼす影響因子を明確にすることによって、特に工学的にも有用となる巨視的界面形状や接触角を記述するモデルを構築することを目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究ではマイクロオーダーの溝を持った固体を用いた実験とその挙動のモデル化、および微視的挙動を明らかにするための分子動力学解析を行った。

実験は、図2に示すように、固体試料を水槽内の試液の界面に垂直に固定し、水槽にポンプで供試液を一定流量で注入することにより、固体試料表面を試液の接触線が前進する体系とした。

試料はフォトリソグラフィおよび反応性エッチング(RIE)を用いてSiウェハータ上に深さ300nmの溝を付けたものとした。溝はに示すように水平方向長さ10mm、鉛直方向幅100 $\mu$ mの長方形溝が鉛直方向に25mmの間に100 $\mu$ mの間隔で並べた。供試液にはエチレングリコールおよび純水を用いた。測定は供試液にごく微量のRhodamineBを溶かし、YAGレーザーの第2高調波( $\lambda=532$ nm)により蛍光発光(発光波長=580nm)させ、発光像をカメラで撮影して輝度値より界面形状を得る方法を用いた。カメラは界面のやや上方に10°の伏角で設置し、気相側から発光を観察することとした。接触線位置、接触角は得られた界面位置を多項式近似することで、界面と壁面との交点位置での値として求めた。

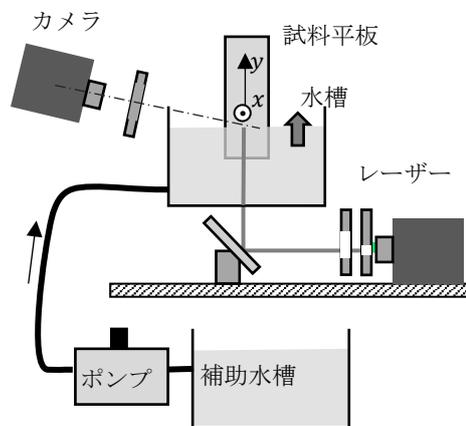


図2 実験装置

また、界面形状の時間変化の記述のモデル化は界面での垂直応力バランスに基づいたものとした。

分子動力学解析は凹凸面上での気泡の拡大を対象とし、計算は90nm $\times$ 4.5nm $\times$ 60nmの大きさの擬2次元体系で、レナードジョーンズ流体を用いて行った。

### 4. 研究成果

図3に試液にエチレングリコールを用い、水槽内の界面の平均上昇速度を0.85mm/sとしたときの接触角と接触線位置の時間変化の例を示す。図から接触線は断続的な挙動をしていることがわかる。これは溝の角部に接触線が一時的に固着されていることを示す。接触線が固着されている間、

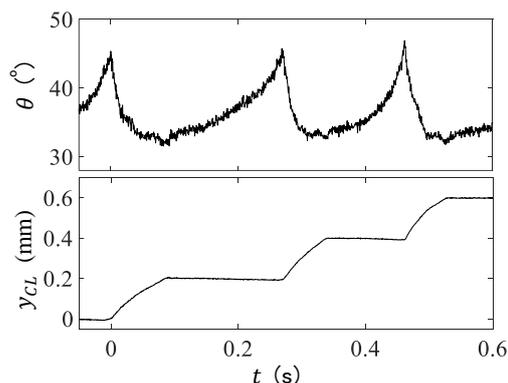


図3 接触角および接触線位置の時間変化

接触角は時間とともに増加する。接触角がある大きさまで到達するころに、接触線の固着は解放され、接触線は前進する。接触線は比較的早い速度で前進し、次の溝の角部に到達する。

このような接触線の断続運動が界面形状に与える影響を明らかにするため、界面の時間変形を調べた。図4に  $t=0$  での界面形状の差をいくつかの時間についてプロットしたものを示す。図をみると初期には変形が壁面近傍 ( $x \sim 0$ ) でのみ見られるのに対し、時間経過後は界面変形がより  $x$  の大きい壁面から離れた領域に広がっているのがわかる。このような変形が時間的にどのように広がっていくのか検討を行った。壁面から十分離れた位置に対して静止界面形状の理論線をフィッティングし、その理論線と実際の界面位置のずれが起こる  $x$  方向位置の時間変化を示したのが図5である。時間とともに  $x$  の大きな領域に変形の先端が移動するのがわかる。

一方、このような過渡的変形は表面張力と流体の慣性とのつり合い、すなわち表面張力波の形で伝播してゆくと考えることができる。表面張力波の進行速度の理論式から得られる表面波の進行を図5に実線で示す。実験で得られたプロットと実線はよく一致しており、界面変形の伝播の先端位置が表面張力波の進行としてモデル化できることが示された。

これらの知見に基づいて界面形状の時間変化を表すモデルを次に示す。ここでは無次元数の比較により、界面の全体形状に与える慣性力の影響は小さいものとして、粘性力、重力、表面張力による表面での垂直応力のつり合いを考慮することとした。粘性項は定常動的接触線近傍に特有の流れ場による効果が支配的であると考へ、Voinov(1976)の手法にならって、楔型流れに対する重調和方程式の解(Moffat, 1964)を界面に沿って積分して求めることとした。また、この問題特有の境界条件として、(1) 接触線の加速運動に伴う粘性応力の伝播および(2) 上で述べた表面張力波に基づく界面変形、を取り込んだ。(1) は接触線近傍での流れ場が粘性によって壁面から離れる方向へ伝播してゆくことを、1次元の平板過渡運動(レイリー問題)に基づいて取り込んだ。ただし、レイリー問題はステップ状の動きを仮定しているため、連続的な加速の影響を考慮するようモデル化した。(2) は粘性応力による界面の変形を上述の界面波の伝播までに限定することでその影響を取り込んだ。図6にモデルで得られた接触角及び接触線位置の時間変化を実験結果と併せて示す。図からモデルは実験での界面形状変化をよく再現していることがわかる。これらのことから、固着-解放を伴う断続的な接触線運動は、定常動的接触線についての応力モデルと表面張力波による界面変形伝播、レイリー問題に基づく応力伝播とを組み合わせることで適切に表現できることが示された。

図7には微視的凹凸の影響を明らかにするために、行った分子動力学解析における気泡体積の時間変化を示す。図には凹凸の深さを4通りに変化させたときの結果を示す。この計算では凹凸の深さを大きくすることにより、固体面上での接触線の固着強度が増加した。その結果、気泡の成長が妨げられた。このことより、微視的モデルには凹凸の代表深さを取り込む必要があることが示された。

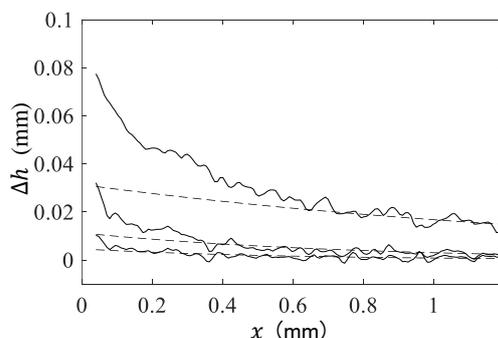


図4  $t=0$  での界面形状との差異の変化。データは  $t=0.6 \times 10^{-2} \text{s}$ ,  $1.5 \times 10^{-2} \text{s}$  および  $5.0 \times 10^{-2} \text{s}$ 。

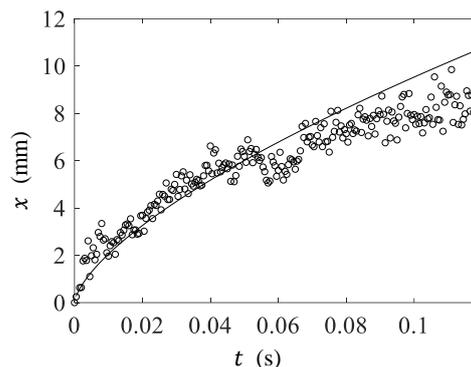


図5 界面変形の先端位置の時間変化。プロット：実験，実線：界面波モデル

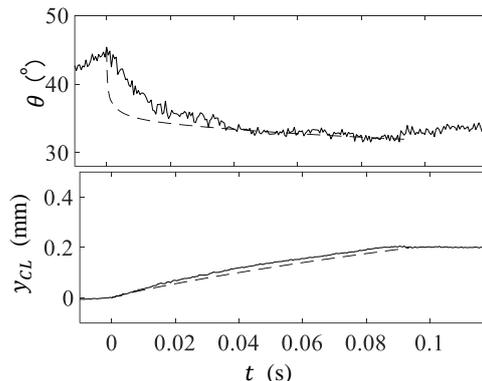


図6 接触角と接触線位置の時間変化。実線：実験，破線：モデル

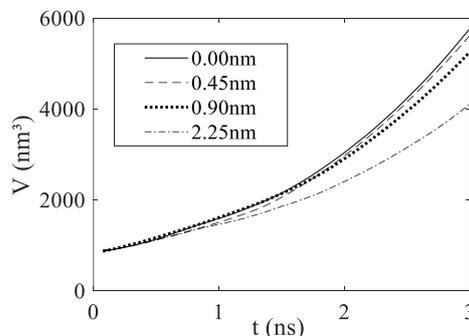


図7 分子動力学解析における気泡体積の時間変化の凹凸溝深さ依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 伊藤 高啓, 藤井 壮一郎, 恒吉 達矢, 辻 義之, 加藤 健司, 脇本 辰郎	4. 巻 34
2. 論文標題 一時固着した接触線の解放時界面変形挙動のモデル化	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 混相流	6. 最初と最後の頁 231-242
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3811/jjmf.2020.024	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 佐藤 隆哉, 甲村 圭司, 大山 武士, 張 佳文, 伊藤 高啓, 辻 義之	4. 巻 50
2. 論文標題 せん断流中の壁面上水滴挙動の動的接触角のモデル化	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 自動車技術会論文集	6. 最初と最後の頁 926-931
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Takahiro Ito, Kenji Katoh, Tatsuro Wakimoto
2. 発表標題 Contact Angle and Interface Geometry Immediately After the Rapid Initiation of the Contact Line Motion
3. 学会等名 72th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Souta Kakamu, Tatsuya Tsuneyoshi, Yoshiyuki Tsuji and Takahiro Ito
2. 発表標題 Molecular Dynamics Study of Velocity Profile Near the Liquid-gas Interface in Bubble Growth on Solid Wall
3. 学会等名 16th International Conference on Flow Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊藤高啓, 藤井 壮一郎, 恒吉 達矢, 辻 義之, 加藤 健司, 脇本 辰郎
2. 発表標題 一時固着した接触線の 解放時界面変形挙動のモデル化
3. 学会等名 混相流シンポジウム2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Ito, T. Tsuneyoshi, Y. Tsuji, K. Katoh, T. Wakimoto
2. 発表標題 Interface Deformation Near the Moving Contact Line on a Periodically Roughened Surface
3. 学会等名 71th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 伊藤 高啓, 恒吉 達矢, 辻 義之, 加藤 健司, 脇本 辰郎
2. 発表標題 液体-固体間相対運動の過渡的变化に伴う接触角の変動
3. 学会等名 第39回日本熱物性シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 伊藤 高啓, 松田 悠平, 恒吉 達矢, 辻 義之, 加藤 健司, 脇本 辰郎
2. 発表標題 周期的な固体表面性状の変化が移動接触線近傍界形に与える影響について
3. 学会等名 混相流シンポジウム2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 伊藤 高啓
2. 発表標題 ミクロナ視点に基づくシミュレーションと動的濡れのモデル化
3. 学会等名 混相流レクチャーシリーズ43 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takahiro Ito, Yasufumi Yamamoto, Kenji Katoh, Tatsuro Wakimoto, Ryoko Otomo, Yoshiyuki Tsuji
2. 発表標題 Model description of the dynamic contact angle on an accelerating advancing contact line
3. 学会等名 70th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松田悠平, 恒吉達矢, 伊藤高啓, 辻義之, 加藤健司, 山本恭史, 脇本辰郎
2. 発表標題 固体表面上の微小な二次元人工凹凸が接触線運動と動的接触角へ与える影響
3. 学会等名 第15回日本流体力学会中部支部講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松田悠平, 伊藤高啓, 辻義之, 加藤健司, 山本恭史, 脇本辰郎, 大友涼子
2. 発表標題 微細な人工凹凸表面上における動的濡れ挙動に関する実験的研究
3. 学会等名 混相流シンポジウム 2017
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 伊藤 高啓, 酒井 弘満, 山本 恭史, 加藤 健司, 脇本 辰郎, 大友 涼子, 辻 義之
2. 発表標題 前進接触線の加速が動的角に与える影響モデル化
3. 学会等名 混相流シンポジウム 2017
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関