

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 9 日現在

機関番号：24402

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560203

研究課題名(和文)動的ぬれのメカニズムに関する研究

研究課題名(英文)A Study on Dynamic Wetting Behavior

研究代表者

加藤 健司 (Kato, Kenji)

大阪市立大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：10177438

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円、(間接経費) 1,170,000円

研究成果の概要(和文)：毛細管内流れ、2次元メニスカスならびに軸対称液滴の運動を対象に、接触線の速度に依存する接触角の測定を行った。その結果、1mm程度の接触線の曲率は、動的ぬれ挙動に影響を及ぼさないことを示した。接触角の実験結果は、キャピラリ数のみでは整理できない。壁面のあらさなどの欠陥が、動的ぬれ挙動に重要な影響を与えると考えられる。

壁面に周囲よりぬれやすい欠陥がある場合について、欠陥を通過する接触線の挙動を数値計算より求めた。接触線の変形に伴う仕事量は速度とともに増加する。系のエネルギー平衡条件から決定される巨視的接触角に対し、変形仕事が無視できない影響を及ぼすことを示した。

研究成果の概要(英文)：The dynamic contact angle dependent on the velocity of three-phase contact line were experimentally measured in capillary flow, 2D meniscus and axi-symmetric droplet. The results showed that the contact angle is not dependent on the contact line curvature, and cannot be simply arranged by Capillary number. It is suggested that wall defects such as roughness or impurities have a strong influence on the dynamic wetting behavior.

A numerical simulation was performed to investigate the behavior of contact line passing over a defect with better wettability. The work of contact line deformation increases with the velocity. From the consideration of system energy equilibrium, the work of deformation should have an important role on the dynamic contact angle.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学，流体工学

キーワード：表面・界面物性 接触角 動的ぬれ 毛細管 マイクロマシン

1. 研究開始当初の背景

マイクロ流体素子やラプオンチップなど、微小スケールの液体運動を制御する必要性が高まっている。これらの問題では、運動状態におけるぬれ性の変化、すなわち動的接触角の挙動を把握することが重要となる<sup>(1)</sup>。しかしながら、接触角が0°より大きい通常の不完全ぬれの場合、実験結果を説明できる完全な物理モデルは構築されていない。また、測定精度や再現性のよい系統的な実験もほとんど行われていない。本研究では、動的ぬれの問題について、実験と数値計算の両面から検討を行うこととした。

2. 研究の目的

- (1) 毛細管内流れ、2次元メニスカスおよび軸対称液滴の運動を例にとり、様々な実験条件下、動的接触角の測定を行う。接触線の曲率の動的ぬれ挙動への影響を検討するとともに、接触角を決定する物理的要因を明らかにする。
- (2) 周囲よりぬれ性のよい欠陥をもつ壁面上を移動する接触線について、数値計算によりその変形挙動を解析する。欠陥を通過する際の局所の接触角変化や変形の大きさを調べ、巨視的な系のエネルギー平衡条件から、動的接触角が決定される機構を考察する。

3. 研究の方法

- (1) 毛細管流れの開放端に負圧を与え、液柱先端の速度を広範に変化させたときの動的接触角を測定する。また、平板に付着した2次元メニスカス、ならびに軸対称液滴について、接触線の速度に対する動的接触角の変化を測定する。その際、線張力など接触線の曲率の影響を見るため、液滴半径を0.5~4mmの範囲で変化させ、ぬれ挙動の観察を行う。
- (2) 周囲よりぬれ性のよい100 $\mu$ mの円形欠陥をもつ壁面を対象に、固気液3相の接触線の挙動を3次元Navier-Stokes方程式の数値計算結果から検討する。界面を精度よく捕獲するため、界面上に多数のマーカを施すFront-Traking法を利用する。また、接触線上でのslip条件を考慮して、Qian<sup>(2)</sup>の提案する一般化ナビエ条件を数値解析に反映させた手法を用いる<sup>(3)</sup>。

4. 研究成果

(1) 動的接触角の測定

実験装置および実験方法 毛細管内液柱のぬれ挙動について、実験装置の概略を図1に示す。シャーレに、ボックスに覆われた毛細管が垂直に立てられている。矩形ボックスは試料液体で満たされており、管外壁での屈折を抑制している。毛細管上端の開放には、電磁バルブを用いた。大きな液柱上昇速度を実現できるように、シリンジにより開放側の圧力を調整し、負圧の場合も実験対象とした。測定に際し、まずマイクロシリンジにより、毛細管内液面をシャ

ーレの静止液面と同じ高さに設定する。制御スイッチによって電磁バルブの開閉を行い、同期した高速度ビデオカメラにより、毛細管内液柱表面形状の撮影が開始される。毛細管として、内径1.41, 0.9mmの亚克力管および内径1.024, 0.642, 0.471mmのガラス管を用いた。

液柱先端の軸対称メニスカス形状を用い、動的接触角を測定した。接触線の速度  $U$  が0.1m/sと比較的小さく、動的接触角  $\theta_d$  が90°以下の場合、慣性力や粘性力の影響は十分小さい。この場合、メニスカス形状は静止液面形状を決定する軸対称ラプラスの方程式の解で近似できる。画像から測定したメニスカスの付着高さを境界条件に用い、ラプラスの方程式の解を数値計算により求めた。その解曲線から壁面での接触角を算出した。接触角測定値の不確かさは $\pm 1^\circ$ 程度であった。 $\theta_d > 90^\circ$ の測定では、メニスカス形状を多項式近似し、その壁面での勾配から接触角を求めた。この場合、接触角の不確かさは $\pm 2^\circ$ 程度であった。

図2に、2次元メニスカスの実験装置の概略を示す。試料液体を満したガラス容器内に試料平板を浸す。マイクロポンプを用いて液体を注入することにより、容器内の液面を静かに上昇させ、試料平板上の接触線を移動させる。試料平板上方から、レーザーシート光を照射して、蛍光染料を溶解した試料溶液を発光させることにより、気液界面の可視化を行った。CCDカメラにより、接触線近傍の気液界面形状画像を撮影し、PC画面上で接触角を求めた。本実験では、気液界面形状を正確に特定するため、画像中の輝度値分布を用いた。さらに、画像の界面曲線とラプラス方程式の解との比較補正を行うことにより、より正確な表面形状を得ることができる。今回の測定では、動的接触角の不確かさは $\pm 1^\circ$ 程度であった。

図3に、軸対称液滴に対する実験装置の概略を示す。試料平板に設けられた直径0.2~1mmの細孔にマイクロシリンジに取り付けたチューブを差し込んでいる。まず、試料平板上に初期体積の軸対称液滴を設置する。液滴設置後、手動もしくはマイクロシリンジポンプによ

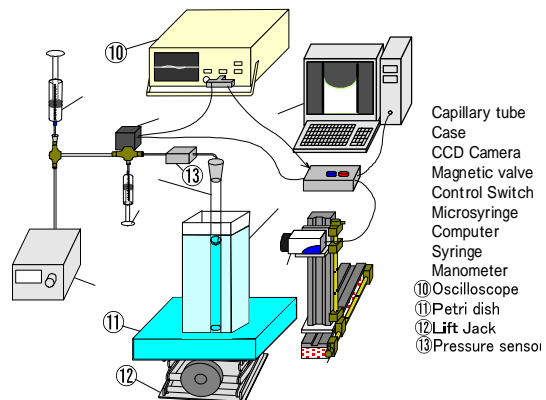


図1 実験装置概略(毛細管)

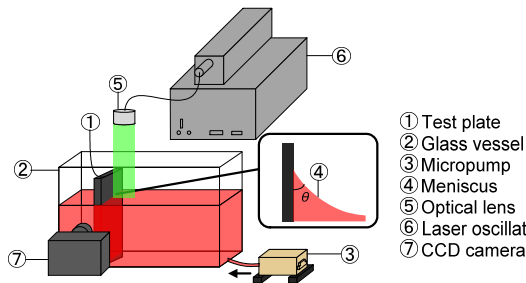


図2 実験装置概略(2次元メニスカス)

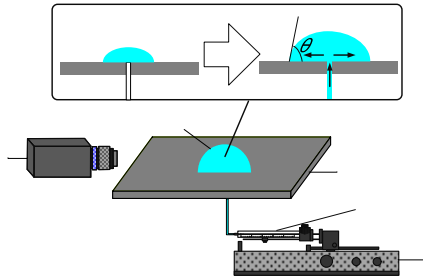


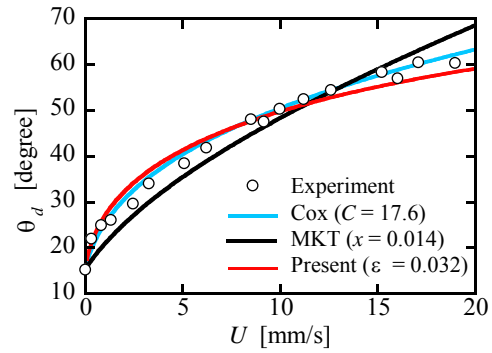
図3 実験装置概略(軸対称液滴)

り試料液体を液滴内に注入する．液滴膨張の様子を CCD カメラにより観察し，所定の速度および液滴径における画像から，気液界面曲線を多項式近似して壁面上の動的接触角を求めた．設置する液滴は，接触線の曲率の影響を検討するため，半径 0.5, 1, 2, 4mm の 4 種類で実験を行った．この測定法による誤差は $\pm 2^\circ$ 程度である．

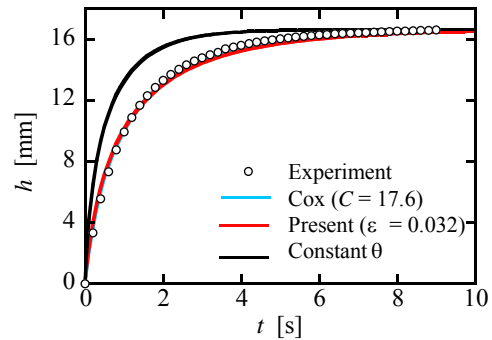
2次元メニスカスおよび軸対称液滴では，試料平板として市販の塩化ビニル，アクリルおよびテフロンを用いた．

すべての実験系において，供試液体として，エチレングリコールおよびエチレングリコール 50 wt%水溶液 ( $20^\circ\text{C}$ )，グリセリン ( $20^\circ\text{C}$ )，ならびにシリコンオイル(信越シリコン KF-96,  $25^\circ\text{C}$ )を用いた．

**実験結果および考察** 図4に，毛細管に対する動的接触角  $\theta_d$  および液柱高さ  $h$  の時間変化の測定例を示す．図中には，動的接触角の速度依存性に関する Cox の流体力学モデル<sup>(4)</sup>，分子運動に基づいた MKT モデル<sup>(5)</sup>ならびに著者らが提案した，欠陥を通過する接触線の運動を考慮したモデル<sup>(6)</sup>から求めた結果が，比較のため示されている．図中の  $C$ ， $x$ ， $\varepsilon$  は，それぞれのモデルにおける実験定数で，測定値を最適に近似するよう，最小二乗法により決定した．最初の二つのモデルは微視的なパラメータを含むが，著者らのモデルは，巨視的なあらさなどの欠陥の面積占有率 ( $\varepsilon$ ) を考慮したものとなっている．図4(a)に見られるように，いずれのモデルも，動的接触角の測定値をよく近似できることがわかる．図4(b)中の計算結果は，Cox ならびに著者らのモデルで求めた動的接触角を用い，液柱に作用する表面張力，粘性力，重力の釣り合い



(a) 動的接触角の速度に対する変化



(b) 液柱高さの時間変化

図4 毛細管内流れの動的接触角および液柱高さの時間変化(ガラス 1.0mm 管 - エチレングリコール)

を考察した Lucas-Washburn 方程式の解を求めたものである<sup>(6)</sup>．図中には，比較のため，接触角が静的な値で一定とした場合 ( $\theta = \text{const}$ ) の計算結果も示してある．図より，動的接触角を適切に近似したモデルを用いれば，実際の液柱の運動をよく表すことができる．

図5に，2次元メニスカスならびに軸対称液滴に対する動的接触角の測定例を示す．図より，2次元メニスカスならびに軸対称液滴の実験結果は，互いによく一致している．本実験範囲内において，接触線の曲率は動的ぬれに影響を与えないことが示された<sup>(7)</sup>．図5中に示した理論曲線と実験値を比較すると，本研究で提案するモデルの方が，他の二つの微視的なモデルよりも，実験結果をよく近似できることがわかる．微視的モデルにおいて，例えば Cox のモデルに現れるスリップ長さ  $S$  を考えると， $S \sim 10^{-252}$  (m) に設定しないと実験値を近似できないなど，実験定数が非現実的な値となった．以上のことから，動的ぬれの現象は，巨視的な欠陥に関する効果を含めた考察が必要であると考えられる．

3種類の実験系について，供試液体と試料平板のすべての組み合わせについて， $\theta_d$  の測定結果を図6に示す．図中の曲線は，Hoffman の提案する，動的接触角をキャピラリ数  $Ca$  で整理した実験式である<sup>(7)</sup>．Hoffman の結果と本実験との結果を比較すると，本実験の結果は整理式とは必ずしも一致しない． $\theta_d$  は，

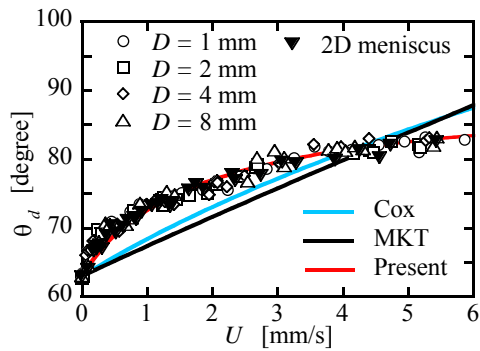


図 5 様々な曲率半径における動的接触角の速度変化(塩化ビニル - エチレングリコール)

単純に  $Ca$  のみでは整理できない。この結果からも、動的接触角の値には、壁面性状の影響が無視できないといえる。

## (2) 欠陥を通過する接触線の挙動の数値シミュレーション

**対象系および数値計算方法** 図7は、汚れやあらさなどの欠陥をもつ壁面を液中から引き上げたときの、接触線の変形挙動を表した模式図である。欠陥部を通過する際、接触線がトラップされて歪み、やがて解放される現象が生じる。接触線が有限速度で運動する場合、変形のエネルギーを具体的に考察した例は見当たらない。ここでは、図7の系を対象に、Front-tracking 法<sup>(3)</sup>を利用して、Navier-Stokes 方程式および連続の式を有限差分法により数値計算を行い、接触線の挙動を求めた。

図7中の鉛直壁面上には、周囲よりぬれやすい直径  $100\mu\text{m}$  の円形の欠陥が存在する。欠陥の静的接触角は  $45^\circ$ 、それ以外の壁面は接触角  $90^\circ$  とした。液相は水、気相は空気を用い、計算領域は壁の幅方向に  $800\mu\text{m}$ 、壁に垂

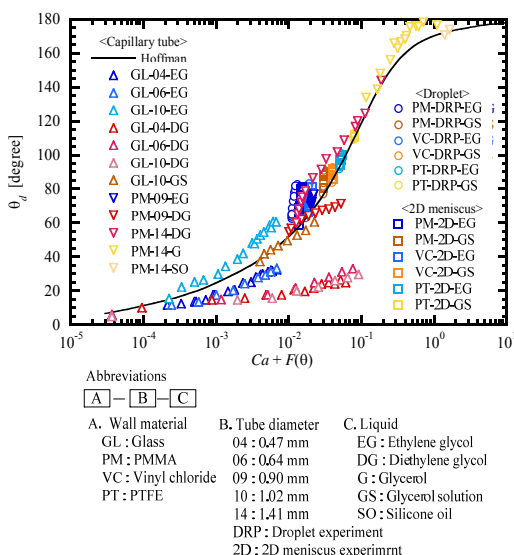


図 6 動的接触角のキャピラリ数による整理

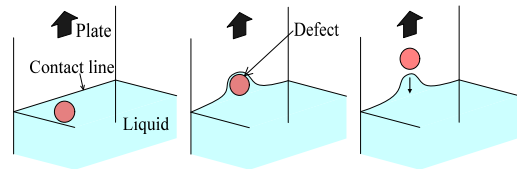


図 7 欠陥を通過する接触線の挙動

直に  $1600\mu\text{m}$ 、高さ方向に  $1200\mu\text{m}$  である。壁の移動速度は、 $U=0.1 \sim 0.4\text{m/s}$  の範囲で計算を行った。

壁面を運動する接触線に通常のすべりなし条件を用いると、応力発散が生じることが指摘されている。ここでは、壁面での接触線のスリップの表現に対し、一般化ナビエ境界条件(GNBC)<sup>(3)</sup>を用いた。これは、すべり速度を壁面での粘性力とヤングの式における不釣り合いの力から求め、速度の境界条件として与えるものである。

**計算結果および考察** それぞれの壁面速度に対し、接触線の変形が最大になったときの形状を図8に示す。図より、接触線の変形度合は壁の移動速度に依存しており、速度とともに大きくなるのがわかる。

図9は、接触線全体で平均した接触角の時間変化を表したものである。接触線が欠陥を通過する際、変形が最大となる状態で接触角は最小値をとる。接触線が欠陥から解放されると接触角は急激に増大し、その後一定値をとる挙動が認められる。壁の移動速度が大きいほど、接触角の変化も大きくなる。

数値計算結果を基に、接触線が欠陥部を通過する際の気液界面の変形に伴う仕事量  $E_S$  と、壁面での粘性抵抗により消散されたエネルギー  $E_{vis}$  を算出した。前者は、液体の表面張力  $\sigma$  に気液界面の面積増加量を乗じることで求められる。固体壁面の面積  $A$  を接触線が掃引したときの系のエネルギー収支から、巨視的な動的接触角  $\theta_d$  について、次式が成立すると考えられる。

$$E_S + E_{vis} + a\sigma \cos 45^\circ + (A-a)\sigma \cos 90^\circ \quad (1)$$

$$= A\sigma \cos \theta_d$$

上式中  $a$  は接触角  $45^\circ$  の欠陥の面積を表す。左辺は接触線の移動に伴う全仕事量を表し、右辺は壁面に作用する表面張力がなした仕事量である。数値計算結果から、式(1)左辺各項の合計を求めた値と、接触線上で観察される接触角の平均値  $\theta_M$  から左辺を求めた結果を比較したところ、両者は数%以内でよく一致した。式(1)のエネルギー平衡条件から、動的接触角が決定されることが示された。 $E_S$  と  $E_{vis}$  のキャピラリ数  $Ca$  に対する変化を図10に示す。壁の移動速度とともに両者は増加するが、その割合は後者の方が大きい。低速の領域では接触線の変形による仕事量が支配的であるが、速度が大きくなるにつれ、粘性消散の寄与の方が大きくなる。ここで扱った  $Ca \sim 0.001$  のオーダーの領域では、2つの仕事

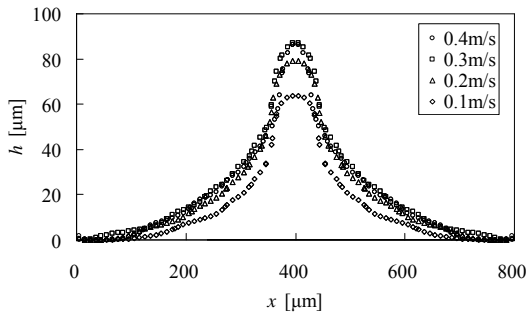


図 8 欠陥を通過する接触線の最大変形形状

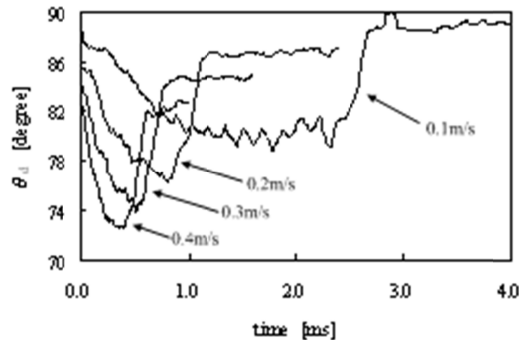


図 9 欠陥を通過する際の接触角の時間変化

量が動的接触角に同程度の寄与を与えているといえる。

### (3) 結言

3つの異なる実験系において、速度に依存する動的接触角の測定を行った。平板に付着した2次元メニスカスならびに軸対称液滴について接触角の速度依存性の測定を行ったところ、両者の傾向はよく一致した。本実験において、接触線の曲率の動的接触角に及ぼす影響は認められなかった。動的接触角の決定メカニズムには、欠陥など壁面性状の影響が無視できないと考えられる。

壁面上の欠陥の、動的ぬれ挙動に及ぼす影響を考察した。欠陥を通過する接触線の運動の数値シミュレーションを行い、接触線の変形と粘性消散の仕事量を算出した。系のエネルギー収支の条件から、巨視的な動的接触角が求められることを示した。変形の仕事量は接触線の速度とともに増加し、動的接触角を決定する一つの要因となることを示した。

### 参考文献

- (1) Bonn, D., Eggers, J., Indekeu, J. & Rolly, E. Review of Modern Physics, 81, 739-805, (2009).
- (2) Qian, T., Wang, X.P., Sheng, P., 2003. Molecular scale contact line hydrodynamics of immiscible flows. Phys. Rev. E 68, 016306-1-016306-15.
- (3) Yamamoto, Y., Ito, T., Wakimoto, T., & Katoh, K. International Journal of Multiphase Flow,

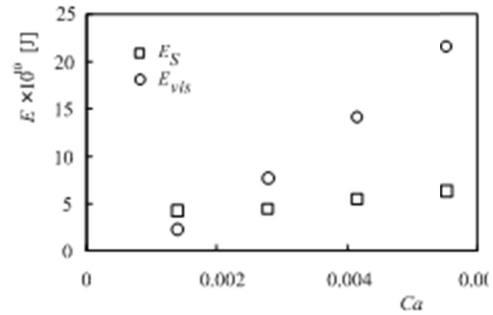


図 10 接触線の変形仕事ならびに粘性消散のキャピラリ数による変化

51, 22-32, (2013).

- (4) Cox, R. Journal of Fluid Mechanics, 168, 169-194, (1986).
- (5) Blake, T. D. Journal of Colloid and Interface Science, 299(1), 1-13, (2006).
- (6) Katoh, K., Wakimoto, T., & Nitta, S. Journal of the Japanese Society for Experimental Mechanics. 10(Special), s62-s66, (2010).
- (7) Katoh, K., Wakimoto, T., Yamamoto, Y. and Ito, I., Experimental Thermal and Fluid Science, (2014), to be published.

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計9件)

Katoh, K., Wakimoto, T., Yamamoto, Y. and Ito, T., Dynamic Wetting Behavior of Three-Phase Contact Line in Several Experimental Systems, Experimental Thermal and Fluid Science, 2014, to be published.

伊藤高啓, 蛭田将司, 志村亮太, 加藤健司, 脇本辰郎, 山本恭史, 野田進, 動的接触角に与える接触線加速度運動の影響の実験的解明, 日本機械学会論文集 B 編, (査読有), Vol. 80, 2014, pp. 1-12.

DOI: 10.1299/transjsme.2014fe0004

Yamamoto, Y., Tokieda, K., Ito, T. Wakimoto, T. and Katoh, K., Modeling of The Dynamic Wetting Behavior in a Capillary Tube Considering The Macroscopic-Microscopic Contact Angle Relation and Generalized Navier Boundary Condition, International Journal of Multiphase Flow, (査読有), Vol.59, 2014, pp. 106-112.

DOI:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2013.10.018

Yamamoto, Y., Ito, T., Wakimoto, T. And Katoh, K., Numerical Simulation of Spontaneous Capillary Rises with Very Low Capillary Numbers Using a Front-Tracking Method Combined with Generalized Navier Boundary Condition, International Journal of Multiphase Flow, (査読有), Vol. 51, 2013, pp. 22-32.

DOI:10.1016/j.jmultiphaseflow.2012.12.002.  
脇本辰郎, 佐藤雄三, 加藤健司, レーザ  
ー照射によるぬれ性の変化を利用した壁  
面上の液滴駆動(液滴駆動の力学メカニ  
ズム), 実験力学, (査読有), Vol. 13, 2013,  
pp. 19-26.

DOI: 10.11395/jjsem.13.19

Katoh, K. and Wakimoto, T., Spontaneous  
Dropping of Liquid Column in a Tilted  
Capillary Pipe with an Upper Lid, Journal of  
JSEM, (査読有), Vol.12, 2012, pp. 111-115.

DOI: 10.11395/jjsem.12.s105

脇本辰郎, 藤井亮介, 加藤健司, 界面活性  
剤水溶液における 2 次元自由液膜噴流の  
不安定特性, 混相流, (査読有), Vol. 25,  
2012, pp. 511-518.

Katoh, K. and Wakimoto, T., Characteristics  
of Liquid Film Flowing around Side Wall of  
a Horizontal Circular Cylinder, Journal of  
JSEM, (査読有), Vol. 11, 2011, pp. 97-102.

DOI: 10.11395/jjsem.10.s67

Wakimoto, T. and Katoh, K., Disintegration  
Process of a Fan Liquid Sheet Formed with  
Surfactant Solution, Journal of JSEM, (査読  
有), Vol. 11, 2011, pp. 107-111.

DOI: 10.11395/jjsem.12.s111

#### [学会発表](計 11 件)

Katoh, K., A New Method to Manipulate a  
Drop on a Plate by using Laser and  
Ultrasonic Oscillator, ASME-JSME-KSME  
Joint Fluids Engineering Conference, 2011年  
7月26日, Act City Congress Center,  
Hamamatsu..

加藤健司, 毛細管内液柱の動的ぬれ挙動  
に関する研究, 日本混相流学会年会講演  
会 2011, 2011年8月6日, 京都工繊大.

加藤健司, 超音波振動およびレーザーを  
利用した壁面上の液滴駆動, 日本実験力  
学会分科会合同ワークショップ, 2011年  
12月1日, 皆生シーサイドホテル.

住谷真宏, 2次元および軸対称接触線の動  
的ぬれ挙動, 日本機械学会関西支部第 87  
期定時総会講演会, 2012年3月17日, 関  
西大学.

蛭田将司, 毛細管液柱の動的ぬれ挙動  
(加速度の動的接触角への影響), 日本  
機械学会関西支部第 88 期定時総会講  
演会, 2013年3月16日, 大阪工大.

加藤健司, 壁面欠陥を通過する接触  
線の動的ぬれ挙動, 日本混相流学会  
年会講演会 2012, 2012年8月10日,  
東京大学柏キャンパス.

加藤健司, 水平キャピラリージェッ  
トの形状を利用した動的表面張力の  
測定, 日本混相流学会年会講演会  
2012, 2012年8月12日, 東京大学  
柏キャンパス.

田口脩平, 軸対称液滴および 2 次元  
メニスカス接触線の動的ぬれ挙動,

日本実験力学学会 2012 年次大会, 2012  
年 7 月 15 日, 豊橋技術科学大学.

加藤健司, レーザー照射によるぬれ  
性向上を利用した壁面上の液滴駆動,  
日本混相流学会 混相流シンポジウ  
ム 2013, 2013年8月11日, 信州大  
学.

田口脩平, 壁面上の欠陥を通過する  
接触線挙動の観察, 日本混相流学会  
混相流シンポジウム 2013, 2013年8  
月11日, 信州大学.

Katoh, K., Dynamic Wetting Behavior  
of Three-Phase Contact Line in  
Several Experimental Systems, 8<sup>th</sup>  
International Conference on  
Multiphase Flow, 2013年5月30日,  
Jeju, Korea.

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

加藤 健司 (KATOH KENJI)

大阪市立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号: 1 0 1 7 7 4 3 8

##### (2) 研究分担者

脇本 辰郎 (WAKIMOTO TATSURO)

大阪市立大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 1 0 2 5 4 3 8 5

##### (3) 連携研究者

なし