

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月31日現在

機関番号： 32660
 研究種目： 若手研究（A）
 研究期間： JFY2008 ～ JFY2011
 課題番号： 20686017
 研究課題名（和文） 移動・変形を伴う固液気3相境界線近傍流体の
 メゾスコピック熱流体力学の展開
 研究課題名（英文） Mesoscopic thermo-fluid dynamics in the vicinity of the macroscopic
 contact line of the spreading droplet with deformation
 研究代表者
 上野 一郎 (UENO, Ichiro)
 東京理科大学・理工学部機械工学科・准教授
 研究者番号： 40318209

研究成果の概要（和文）：

本研究においては、メゾスコピック界面熱流体力学の展開として活動を行い、下記4点を主要研究成果として達成した。すなわち、

- (1) 移動・変形を伴う固液気3相巨視的境界線(マクロ的コンタクトライン:以下 M-CL)前方に存在する先行薄膜領域の高精度検出
 - (2) M-CL 近傍における含有微粒子挙動の3次元挙動の理解
 - (3) 固体面性状・面上物質が与える M-CL 移動・先行薄膜発達への影響の把握
 - (4) M-CL および先行薄膜領域、それら内部における粒子運動制御の実現
- これらのトピックに関し、実験および数値計算により研究を実施した。

研究成果の概要（英文）：

I have carried out a research on mesoscopic thermo-fluid dynamics in the vicinity of the macroscopic contact line of the spreading droplet with deformation. Major achievements during the present study are listed as follows;

- (1) precise detection of the precursor film ahead the macroscopic contact line,
- (2) three-dimensional reconstruction of particles suspended in the droplet spreading on the substrate,
- (3) effect of surface roughness/texture upon the movement of macroscopic contact line and upon the particle behaviors, and,
- (4) control of particle behaviors in the vicinity of the macroscopic contact line.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	4,800,000	1,440,000	6,240,000
2009年度	3,200,000	960,000	4,160,000
2010年度	3,200,000	960,000	4,160,000
2011年度	1,900,000	570,000	2,470,000
年度			
総計	13,100,000	3,930,000	17,030,000

研究分野： 熱流体力学

科研費の分科・細目： 熱工学・5005

キーワード： 濡れ性, 先行薄膜, コンタクトライン

1. 研究開始当初の背景

これまでのマクロ熱流体力学では、拡散方程式や Navier-Stokes 方程式を支配方程式と

し、そのマクロな視点から現象を取り扱ってきた。しかしながら、多相あるいは多成分系での出現が不可避な界面では、厚さが無限小

の境界面を導入し、表面張力・接触角といったなんらかのモデル化によって現象を記述している場合がほとんどである。現実の相界面においては界面付近でのマイクロな現象が、濡れ性や接触角などマクロな挙動に寄与し、非常に大きな影響を与えるメゾスコピックな現象例は少なくない。

ここで注目する現象が、固液気3相境界線（コンタクトライン）（図1）の移動である。CLの移動は、混合・蒸留・コーティング・冷却・凝固・結晶成長・凝縮・沸騰などの熱流体工学的領域から、ドラッグデリバリーシステム、マイクロリアクター、眼球とコンタクトレンズの接触、歯のコーティング、人工器官と体液あるいは血液との接触問題などの生化学・生体工学的領域まで、幅広い領域において不可避な現象であり、それらの物理化学的機構を理解するための重要な学術的課題である。

特に、近年のマイクロ加工技術の発達によって、より小さなスケールでの液体領域のハンドリング技術が不可欠となっている。スケールの縮小により、相対的にその存在が大きくなる先行薄膜領域は、濡れや反応を決定する極めて重要な因子となる。先行薄膜の存在は、約1世紀前に干渉計システムを用いたHardy (Philos. Mag. 38, 1919)によって、代表的厚さ約50 nm程度の薄い液膜がマクロ的コンタクトライン前方に存在することが示された。その後数多くの実験的・理論的研究が行われ、ノーベル受賞者であるde Gennes (Rev. Mod. Phys. 57, 1985)によってその存在領域および厚さに関する理論が提唱された。最近になってMITのグループによる位相シフト技術を導入した高精度干渉計を用いて先行薄膜存在長さの計測が実現され (Phys. Rev. Lett. 91, 2003), de Gennesの理論とよく一致する計測結果が紹介されている。これらは、重力の影響を除外し、平滑・温度一定の基板など理想的な環境における結果である。

2. 研究の目的

本研究では、マクロ的に認識される固液気3相境界線（コンタクトライン）の前方に存在する『先行薄膜』と呼ばれる薄膜領域のダイナミクスに注目し、以下の学術的・産業的な貢献を目指すものである。

○ 学術的貢献：

固体基板上的移動液滴前方に存在する先行薄膜領域ダイナミクスの理解および制御技術の確立。特に、申請者が確立を目指す先行薄膜可視化技術に基づいた (i) 薄膜形成ダイナミクスの理解, (ii) 微粒子を含有した固液2相状態での先行薄膜形成, (iii) マクロ的コンタクトライン近傍における微粒子挙動の制御を目指す。

○ 産業的貢献

固体基板上におけるミクロスケールでの混合・反応・分散の能動的制御、特に、生化学の分野における反応特性の制御、金属・生物粒子の分布制御の実現を目指す。

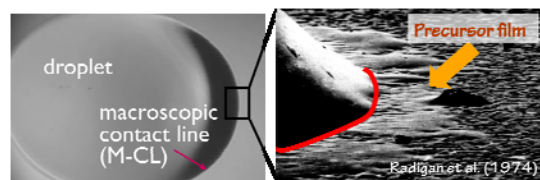


図1 巨視的に見た液滴とその境界線（固液気3相境界線（マクロ的コンタクトライン））（左）と、微視的に観察した際に見られる先行薄膜の例 (Radigan et al. 1974) (右)

3. 研究の方法

本研究は、メゾスコピック界面熱流体力学の展開として、

- (1) 移動・変形を伴う固液気3相境界線前方に存在する先行薄膜領域の高精度検出,
 - (2) 液滴内における固液気3相境界線近傍の含有微粒子3次元挙動の理解,
 - (3) 固体面性状・面上物質が与える固液気3相境界線移動・先行薄膜発達への影響の把握,
 - (4) 固液気3相境界線および先行薄膜領域、それら内部における粒子運動制御の実現,
- に対し、実験および数値計算により研究を実施してきた。以下、それぞれの手法を示す。

○ 実験的アプローチ

固体基板上的液滴の濡れ拡がりを対象として、マクロ的コンタクトラインの挙動および先行薄膜の形成過程を捉えるため、Brewster角顕微鏡を自作した（図2）。さらに、共焦点型レーザ変位計を導入し、先行薄膜形成過程における厚さ方向の変化を検出した。

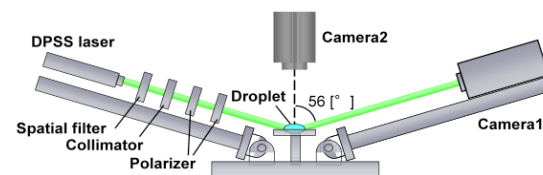


図2 Brewster角顕微鏡の模式図

固体基板にはシリコン基板あるいはガラス基板を用い、試験流体としてはシリコンオイルあるいは純水を用いた。Brewster角顕微鏡は、DPSSレーザ（波長532 nm）を光源とし、固体基板での反射光を高速度カメラにより撮影した。

また、固体粒子を含有する液滴の濡れ拡がり過程に関する実験においては、複数種類の単一直径を有する金コーティングを施したアクリル架橋粒子を試験粒子として用い、高速度カメラ2台により同時に粒子を撮影することで3次元粒子追跡速度計測法(3-D PTV)を導入した(図3)。

□ 数値計算アプローチ

Lennard-Jones 流体多成分系の分子動力学法数値計算コードを構築し、固体基板上的撥水過程について計算を行った(図4)。試験領域内を飽和蒸気で満たし、初期液膜厚さを変化して、液膜に生起する不安定性から撥水核の形成を経て液滴形成に至るまでを追跡した。また、同様の過程を固体基板上にナノスケールの粗さを設けた計算系(図5)についても追跡し、発生過程および液滴形成過程に注目した。

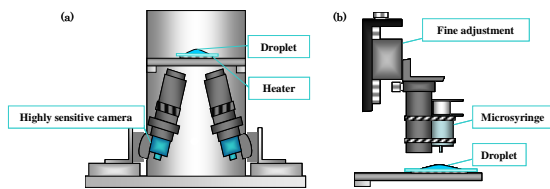


図3 粒子を含有する液滴の固体基板上塗れ拡がり過程における粒子挙動3次元再構築を実現する実験装置系。

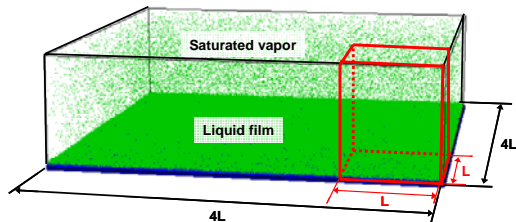


図4 固体基板上に形成された薄液膜の自発的撥水過程を実現する計算系。赤枠は従来よく行われている研究で用いられている計算領域。

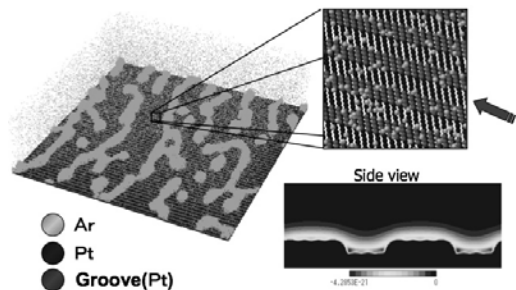


図5 ナノメートルスケールの構造を有する固体基板上における薄液膜の自発的撥水過程を実現する計算系。

4. 研究成果

先行薄膜に関する研究においては、その存在領域および液膜厚さの時空間的変化を高精度に捉えることに成功した。先行薄膜の存在領域については、液滴が拡がる固体基板上に静置した粒子の挙動を観察することで簡単に可視化することが可能である(図6)。マクロ的コンタクトラインが粒子に到達する前に粒子がごくわずかながら移動することにより、肉眼では捉えることの出来ない薄い液膜がマクロ的コンタクトライン前方に存在していることを確認出来る。本研究では、代表者らが構築したブリュースター角顕微鏡、および、共焦点型レーザ変位計によりその発達過程を明らかにした(図7)。

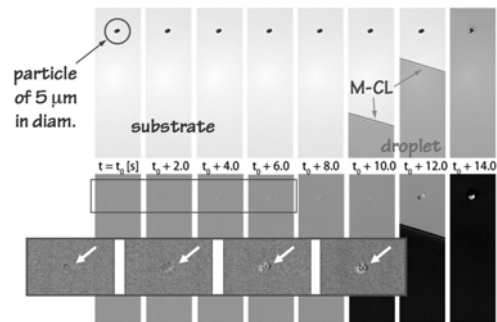


図6 先行薄膜の存在を示す実験例(Ueno et al., 2011). 固体基板上に静置した固体粒子と遠方に滴下した液滴との相互作用。マクロ的三相界線(M-CL)到着前に粒子の移動が開始している(囲み内)。(上下はネガ/ポジ反転した同一の画像)

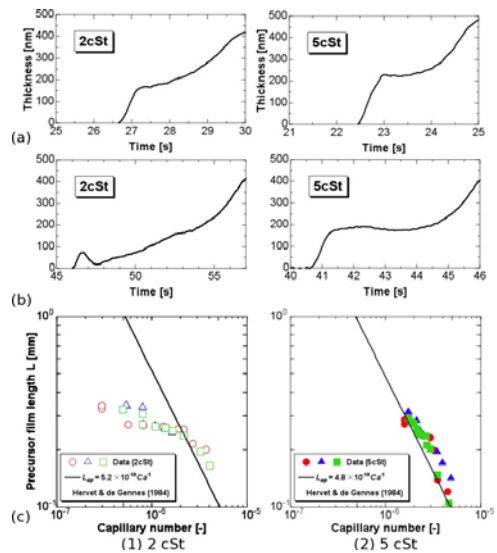


図7 ガラス基板-シリコンオイル系での先行薄膜領域厚さ変化定点観測の例 ((a)液滴静置点から1 mm, (b)1.5 mm 離れた点での計測), および先行薄膜存在領域-Ca 数(マクロ的コンタクトラインの移動速度に比例)の関係 (Hashimoto, Ueno & Hong, accepted).

また、マクロ的コンタクトライン近傍流体と粒子の相互作用について、固体基板と試験流体間で濡れ性が悪い場合においては、固体基板上において液滴は有限な存在領域を維持している。特に本研究においては、高速・高精度な化学反応制御の実現を目的として固体基板上に静置した粒子と液滴との相互作用に注目した。ここで採用した粒子は試験流体に対し濡れ性のよいものと悪いものを用意し、固体基板上における液滴移動への影響などを明らかにした。

試験流体に対し濡れ性のよい粒子が存在する場合には、マクロ的コンタクトラインと衝突した後、直ちに液滴内に取り込まれ、液滴の移動において大きな影響は見られない。一方、濡れ性の悪い粒子については、マクロ的コンタクトラインと接触した後、クラスターを形成しながらコンタクトライン近傍の液滴表面に分布する(図8)こと、さらに、マクロ的コンタクトライン近傍において粒子群と界面の相互作用により、粒子の跳躍現象が生起することを明らかにした。

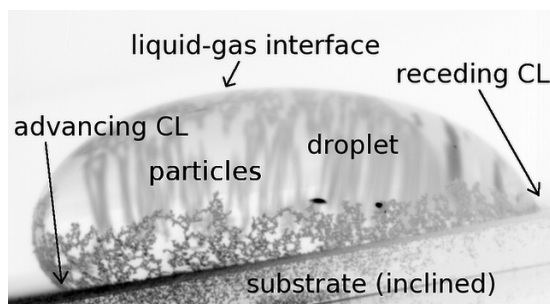


図8 微粒子が散在する基板上での動的濡れ現象の例。斜めに静置した基板上を画面上右から左へ進行する液滴を側方から観察。液滴表面の固体壁近傍においてクラスター化した粒子が存在している。粒子1個の直径は30 μm 。

数値計算においては、従来に無い広い計算領域を確保し、飽和蒸気で満たされた領域内において固体基板上を覆っている薄液膜が撥水していく過程に注目した。ここで、上面から見た数値計算結果の代表例を図9に示す。スナップ写真の右下に添付しているのは同時刻における個数密度分布を示す。薄液膜は、不安定性の表面のゆらぎによって撥水の起点となる撥水核が生成され、撥水が進展していく。また撥水していく過程で接触線近傍に液膜の隆起部分も確認できた。接触線は撥水核を起点として同心円状に撥水していき、異なる撥水領域の接触線と巡り合うと互いの接触線の撥水速度は減衰していく。したがって純粋な撥水現象は、異なる撥水領域を持つ接触線との相互作用を伴わない初期の撥水

であるといえる。

ここで、本研究では分離圧の概念を導入して、撥水の強度を記述する単位面積あたりに働く仕事を導出した。このモデルの妥当性を検証するため、撥水面積の時間変化に関し、分子動力学法による数値計算との比較を行った(図10)。計算結果では薄液膜表面全体でランダムに無数の撥水核が形成される。この核発生の時間と時間発展を合わせて考慮すると図4に示撥水面積の時間変化を表現することができる。撥水後期段階では、前述した通り、異なる撥水領域の接触線の相互作用の影響があるためモデルの解を満足しなかったと考えられるが、初期段階においてはモデルによる解と数値シミュレーションによる数値計算結果が大変よい一致を示した。

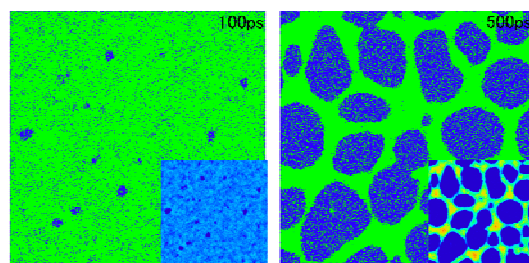


図9 平滑基板上に静置した薄液膜の撥水過程の例：撥水核生成の様子(左)および撥水核間相互作用の様子(右)。各フレームの右下は統一時刻における液体分子数密度分布を示す。

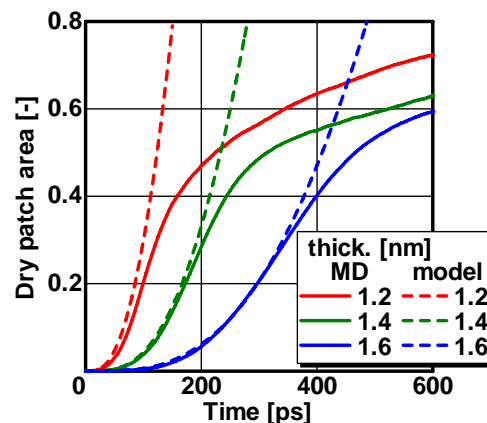


図10 分子動力学法を用いた数値計算による撥水領域面積の時間変化(実線)と、本研究で求めた撥水領域変化モデルによる予測(破線)。撥水核間相互作用が存在しない撥水初期において、本モデルと数値計算による結果が極めてよい一致を示している。なお、図中の色は初期液膜厚さの違いを示している。

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 13 件)

- [1] Hashimoto, S., Hong, C. & Ueno, I., Transient growth process of precursor film at early stage of droplet spreading, *J. Thermal Science & Technology*, accepted.
- [2] Ueno, I., Hirose, K., Kizaki, Y., Kisara, Y. & Fukuhara, Y., Precursor film formation process ahead macroscopic contact line of spreading droplet on smooth substrate, *Trans. ASME, J. Heat Transfer* 134, 051008, 2012.
- [3] Yoshitsugu, K. & Ueno, I., Effect of suspended particles on spreading of volatile droplet on solid substrate, *J. Visualization* 14, 285-294, 2011.
- [4] Ueno, I., Kisara, Y., Hirose, K. & Kizaki, K., Formation of precursor film ahead macroscopic contact line of spreading droplet, *Int. J. Transport Phenomena* 12, pp.145-149, 2011.
- [5] Ueno, I., Hattori, Y. & Hosoya, R., Condensation and Collapse of Vapor Bubbles Injected in Subcooled Pool, *Microgravity Sci. Technol.* 23, pp.73-77, 2011.
- [6] Ueno, I., Hattori, Y. & Hosoya, R., Condensation and Collapse of Vapor Bubbles Injected in Subcooled Pool, *Microgravity Sci. Technol.* 23, pp.73-77, 2010.
- [7] Kochiya, K. & Ueno, I., Effect of Suspended Particles on the Drying Process of a Carrier-Fluid Droplet Sitting on a Solid Surface, in *Interdisciplinary Transport Phenomena 1161* (ed. Sadhal, S.), New York Academy of Science, New York, 234-239, 2009.
- [8] Konisho, T. & Ueno, I., Detection of Advancing Edge and Length of Precursor Film Ahead of Macroscopic Contact Line of Droplet Spreading on Solid Substrate, in *Interdisciplinary Transport Phenomena 1161* (ed. Sadhal, S.), New York Academy of Science, New York, 292-303, 2009.
- [9] Matsumoto, K. & Ueno, I., Oscillating bubbles in ultrasonic acoustic field, *J. Physics: Conf. Series* 147, 012015, 2009.
- [10] Oka, N. & Ueno, I., The behavior of bouncing jet, *J. Physics: Conf. Series* 147, 012040, 2009.
- [11] Ueno, I., & Kochiya, K., Effect of evaporation and solutocapillary-driven flow upon motion and resultant deposition of suspended particles in volatile droplet on solid substrate, *Adv. Space Research* 41, 2089-2093, 2008.
- [12] Ueno, I., Konisho, T., Kawase, T. & Watanabe, T., Precursor film length ahead droplet traveling on solid substrate, *Fluid Dynamics & Materials Processing (FDMP)* 4, 21-26, 2008.
- [13] Ueno, I. & Kishida, T., On 'Tears of wine' -flow due to solutocapillary effect formed on inclined wall-, *Fluid Dynamics & Materials Processing (FDMP)* 4, 55-60, 2008.

[学会発表] (招待講演) (計 2 件)

- [1] Ueno, I., Hirose, K. & Kizaki, Y., Formation of precursor film ahead macroscopic contact line of

spreading droplet, 6th Interdisciplinary Transport Phenomena VI (Volterra, Italy, Oct. 4-9, 2009), paper #ITP-09-38, 2009. (oral, keynote lecture)

- [2] Ueno, I., Detection of advancing edge and existing length of precursor film ahead macroscopic contact line of droplet spreading on solid substrate, 6th Int. Conf. on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels (June 23-25, 2008, Darmstadt, Germany), 2008.

[学会発表] (審査有) (計 22 件)

- [1] Setoguchi, T., Fukuhara, Y., Ueno, I., Ogihara, S. & Watanabe, K., Wetting behaviors in resin-fiber system, 18th Int. Conf. Composite Materials (ICCM18) (Jeju, Korea, Aug. 21st-26th, 2011), paper#: T8-5-IF1134, 2011.
- [2] Kono, S. & Ueno, I., Molecular dynamics study of spontaneous behavior of ultra thin liquid film on solid substrate, Proc. 2nd European Conf. on Microfluidics - Microfluidics 2010 (Toulouse, France, Dec. 8-10, 2010), CD-ROM (paper #: μ Flu10-230), 2010.
- [3] Shinagawa, F. & Ueno, I., Crystal growth of metal oriented nuclei in oscillatory thermocapillary convection field, 21st Int. Symp. on Transport Phenomena (ISTP-21), (Kaohsiung City, Taiwan, Nov. 2nd-5th, 2010) (poster).
- [4] Hanyu, T. & Ueno, I., Excitation of shape oscillation of bubbles under acoustic field, 21st Int. Symp. on Transport Phenomena (ISTP-21), (Kaohsiung City, Taiwan, Nov. 2nd-5th, 2010) (oral).
- [5] Ueno, I., Hattori, Y. & Hosoya, R., Condensation and collapse of vapor bubbles injected into subcooled pool, 5th Int. Topical Team Workshop on Two-phase systems for ground & space applications (Sept. 26-29, 2010, Kyoto), p.26 (oral), 2010.
- [6] Ueno, I., Hirose, K. & Kizaki, Y., Precursor Film Formation of Spreading Droplet, (IHTC-14) (8/8-13, 2010, Washington D.C., USA), CD-ROM (paper #: IHTC14-22635), accepted after reviews (3 reviews) (poster).
- [7] Kisara, Y., Ueno, I. & Ogihara, S., Wetting process of fibrous porous media by resin in VARTM (vacuum assisted resin transfer molding) system, 10th Int. Conf. on Flow Processes in Composite Materials (FPCM10) (Ascona, Switzerland, 7/11-15, 2010), paper#: fpcm10-21, 2010 (oral)
- [8] Fukuhara, Y., Ueno, I. & Ogihara, S., On wetting of fiber with a resin by capillary force, 10th Int. Conf. on Flow Processes in Composite Materials (FPCM10) (Ascona, Switzerland, 7/11-15, 2010), paper#: fpcm10-20, 2010 (oral)
- [9] Ueno, I., Igari, G. & Kisara, Y., Detection of precursor film formed ahead droplet spreading on solid substrate, Proc. 14th Int. Symp. on Flow Visualization (ISFV14) (Daegu, Korea, June 21-24, 2010), usb memory (paper #: ISFV14-1B-2), 2010. (oral)
- [10] Yoshitsugu, K. & Ueno, I., Effect of suspended particles on spreading of volatile droplet on solid

substrate, Proc. 14th Int. Symp. on Flow Visualization (ISFV14) (Daegu, Korea, June 21-24, 2010), usb memory (paper #: ISFV14-1B-4), 2010. (oral)(selected paper)

[11] Ueno, I., Igari, G. & Kisara, Y., Precursor Film Formation ahead Macroscopic Contact Line of Droplet Spreading on Smooth Substrate, Proc. 5th Conf. of the International Marangoni Association (IMA5) (Jun 7-10, 2010, Florence, Italy), CD-ROM, 2010.

[12] Ueno, I., Hirose, K., Kizaki, Y., Kisara, Y. & Fukuhara, Y., Precursor film formation process ahead macroscopic contact line of spreading droplet on smooth substrate, ASME 2009 2nd Micro/Nanoscale Heat & Mass Transfer International Conference (12/18-/21 2009, Shanghai, China), CD-ROM, paper #: MNHMT2009□18314, 2009. (oral)(reviewed)

[13] Shibata, A. & Ueno, I., Molecular dynamics of rupture phenomenon in a liquid film on nanowire under isothermal condition, ASME 2009 2nd Micro/Nanoscale Heat & Mass Transfer International Conference (12/18-/21 2009, Shanghai, China), CD-ROM, paper #: MNHMT2009□18310, 2009. (oral)(reviewed)

[14] Hattori, Y. & Ueno, I., Microbubble formation in abrupt condensation of vapor bubble exposed to subcooled pool, ASME 2009 2nd Micro/Nanoscale Heat & Mass Transfer International Conference (12/18-/21 2009, Shanghai, China), CD-ROM, paper #: MNHMT2009□18371, 2009. (oral)(reviewed)

[15] Ueno, I. & Hattori, Y., Microbubble formation in collapsing process of a single vapor bubble injected in subcooled pool, Proc. InterPACK 09 (San Francisco, CA, July 19th - 23rd, 2009), DVD, 2009. (oral)

[16] Ohara, T., Ueno, I., Ogihara, S. & Watanabe, K., Wetting behavior between fibre and resin in vacuum assisted resin transfer molding (VARTM), 17th Int. Conf. on Composite Materials (ICCM17) (Edinburgh, UK, July 27th-31st, 2009), DVD, 2009. (oral)

[17] Shibata, A. & Ueno, I., Simulation of Rayleigh instability of liquid film on nanowire by classical molecular dynamics, 4th Int. Marangoni Association Conf. on Interfacial & Micro Fluid Dynamics & Processes (IMA4) (Chiba, 10/21 - /23, 2008), p.7, 2008. (oral)

[18] Koba, K., Kaneko, H. & Ueno, I., Three-dimensional phase-field simulation on thermocapillary effect on solidification process of pure metal in shallow cavity with free surface, 4th Int. Marangoni Association Conf. on Interfacial & Micro Fluid Dynamics & Processes (IMA4) (Chiba, 10/21 - /23, 2008), p.34, 2008. (poster)

[19] Oka, N., Gomi, T. & Ueno, I., The behavior of bouncing jet, 6th Int. Symp. on Measurement Techniques for Multiphase Flows (Okinawa, Japan, December 15-17, 2008), USB (paper #:Fo23-081110004817.pdf), 2008. (oral)

[20] Shibata, A. & Ueno, I., Molecular dynamics

simulations of Rayleigh instability of liquid film on nanowire, Heat Transfer and Fluid Flow in Microscale III (Sept.21-26, 2008, Whistler, BC, Canada), USB, 2008.

[21] Kaneko, H., Koba, K. & Ueno, I., Effect of thermocapillary effect on solidification process of pure metal in shallow cavity with free surface, 3rd Int. Topical Team Workshop on Two-phase systems for ground and space applications (Brussels, Belgium, September 10-12, 2008), USB, 2008. (oral & poster)

[22] Hirose, K., Konisho, T. & Ueno, I., Existing length of precursor film ahead droplet traveling on the solid substrate, Proc. 13th Int. Symp. on Flow Visualization (ISFV13)/12th French Congress on Visualization in Fluid Mechanics (FLUVISU12) (July 1-4, 2008, Nice, France), CD-ROM(#185-080420.pdf), 2008. (oral)

〔学会発表〕（一般講演）（計 15 件）
（記載省略）

〔図書〕（計 1 件）

[1] Ueno, I., Watanabe, T. & Matsuya, T., Flow transition in free liquid film induced by thermocapillary effect, 7th IUTAM Symp. on Laminar- Turbulent Transition (Stockholm, Sweden, June 23-26 2009), IUTAM Bookseries 18, (Schlatter, P. & Henningson, D. S. eds.), pp.433-438, Springer (ISBN: 978-90-481-3722-0, e-ISBN: 978-90-481- 3723-7), 2010.

〔産業財産権〕
○出願状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

6. 研究組織

(1) 研究代表者

上野 一郎 (Ueno, Ichiro)

東京理科大学・理工学部機械工学科・准教授
研究者番号：40318209