

平成 30 年 6 月 25 日現在

機関番号：24402

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05802

研究課題名(和文) 速度に依存する動的ぬれ挙動の物理的機構に関する研究

研究課題名(英文) Dynamic wetting behavior dependent on contact line velocity

研究代表者

加藤 健司 (Kato, Kenji)

大阪市立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：10177438

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：固気液3相の接触線が固体壁面上を有限速度で移動する際、接触角が速度に依存する動的ぬれの現象が観察される。あざや汚れ等の欠陥を通過する接触線のぬれ挙動について、実験ならびに数値シミュレーションによる検討を行った。周囲よりぬれやすい直径300 μm の円形欠陥を人工的に作成し、欠陥上での接触線のスティックスリッパ的な挙動ならびにその間の接触角の変化を測定した。また、欠陥を通過する接触線の挙動について数値シミュレーションを行い、複数の欠陥が上に凸の楕円状に分布するとき、接触線の大変形が生じること、ならびに欠陥の面積占有率が数%であっても、動的接触角に有為な変化を与えることを示した。

研究成果の概要(英文)：When the solid-gas-liquid triple-phase contact line moves on a wall, the contact angle is dependent on the contact line velocity. This phenomenon is called 'dynamic wetting.' An experimental study and numerical simulation were conducted to discuss the dynamic wetting behavior of the contact line passing over defects such as roughness or impurities on the wall. An artificial defect of 200 μm diameter with poor wettability was manufactured on the wall and the dynamic contact angle was measured during stick-slip motion of the contact line. The behavior of the contact line was simulated numerically. When the defects are set in elliptic distribution, huge deformation of contact line is observed and the dynamic contact angle is noticeably changed from the static one although the occupied ratio of defect surface area is quite small like few percent.

研究分野：流体工学

キーワード：ぬれ 動的接触角 接触線 表面張力

1. 研究開始当初の背景

固液間のぬれは、工学・化学・医学など多くの分野に現れる現象であり、近年では接触線が有限速度で移動する場合の動的ぬれ挙動を扱った多くの研究報告がなされている。ラプオンチップやマイクロ流体素子など微小スケールの液体運動を扱う場合、液滴などの移動時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。

動的ぬれ挙動において、壁面上に存在する微細なあざや汚れなどの欠陥が接触角に大きな影響を及ぼすと考えられるが、そのメカニズムを具体的に考察した例はほとんど見当たらない。本研究では、周囲よりぬれやすい単独ならびに複数の欠陥が壁面上に存在する場合について、実験ならびに数値計算を利用した動的ぬれ挙動の検討を行う。

2. 研究の目的

壁面欠陥の動的ぬれ挙動への影響を考察するため、ここでは図1のように周囲よりぬれやすい単独欠陥を通過する接触線の挙動に着目し、接触角の速度依存性を考察する。ついで、複数個の欠陥からなる欠陥群を通過する接触線の挙動について、数値シミュレーションから検討を行う。本研究の目的は以下の2つである。

(i) 壁面に人工的に欠陥を施した試料板を作製し、欠陥を通過する接触線の変形挙動と局所的な接触角の変化を測定する。

(ii) 単独ならびに複数個の欠陥が存在する場合を対象に、接触線の挙動を数値シミュレーションから検討する。実際の動的ぬれ挙動で重要となる、接触線の変形仕事量と動的接触角の関係について、数値計算結果から考察を行う。

3. 研究の方法

(1) 実験装置および方法

試料板には自己組織化単分子膜 (Self-Assembled Monolayers, 以下 SAMs 膜) をコートしたシリコンウェハを用いた。集束イオンビーム装置を用いて Ga イオンを試料板に照射し、SAMs 膜の一部を除去して、直径 300 μ m の円形欠陥を設けた。

実験装置の概略を図2に示す。傾斜台に取り付けた試料板を容器内のエチレングリコール50%水溶液 (表面張力57.0 mN/m, 密度1068 kg/m³, 動粘度3.4 mm²/s) に沈め、ポンプを用いて液面を下げて、試料板上の欠陥部を通過する接触線の挙動をハイスピードビデオカメラで観察した。ポンプの排出流量

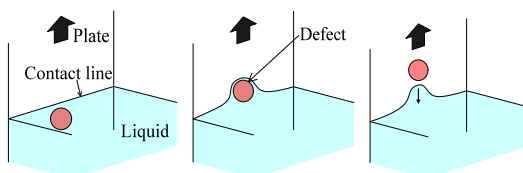


図1 単独欠陥を通過する接触線の挙動

を調整し、欠陥と接触線の相対速度 V_0 が 0.01 ~ 8 mm/s となる範囲で実験を行った。また、接触線の観察と同時にレーザーから接触線にビームを照射し、上部に設けたスクリーン上に映る反射光の動きをハイスピードビデオカメラで記録してビーム照射部の局所接触角を測定した。接触角の測定原理を図3に示す。高さ H における反射光と入射光の距離 δ から液面傾斜角 ϕ は以下のように表される。

$$\phi = \frac{1}{2} \tan^{-1} \frac{\delta}{H} \quad (1)$$

さらに、試料板の傾斜角 ψ および液面傾斜角より接触角 θ が幾何学的に $\theta = \psi - \phi$ で計算できる。

(2) 数値シミュレーション

数値シミュレーションでは、図1のように欠陥にトラップされて変形する接触線の挙動を、Navier-Stokes 方程式および連続の式の有限差分法による数値解析から求めた。移流項には Adams-Bashforth 法、粘性項には Crank-Nicolson 法、圧力補正方程式には Multigrid 法を用い、界面の捕獲には Front-tracking 法を用いた[1]。Front-tracking 法は、マーカーで構成した三角形要素の集合で界面を陽的に表現して、界面の位置を正確に捉える手法である。

接触線の移動の問題に対しては、通常のスベリなし条件を壁面に用いることはできない。ここでは、一般化ナビエ境界条件(GNBC)を用いた[1]。これは、接触線の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

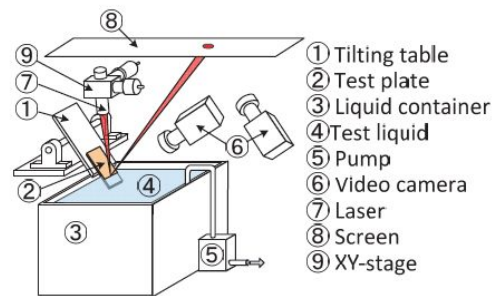


図2 実験装置概略

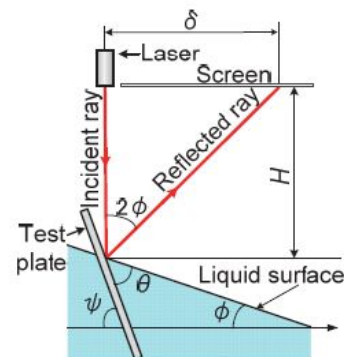


図3 接触角の測定原理

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。境界条件として、移動壁面上を GNBC、壁の幅方向には周期境界条件、それ以外の境界では速度勾配と圧力勾配を 0 とした。計算領域はスパン方向、鉛直方向ならびに壁に垂直方向にそれぞれ、800、2400 ならびに 1600 μm 、計算格子数は 80 \times 240 \times 160、時間刻みは 2.0 $\times 10^{-6}$ s である。

図1の系において、液相を水、気相を空気とし、欠陥の静的接触角を、 $\theta=15^\circ, 30^\circ, 45^\circ$ と3通りに変化させ、欠陥外の壁面の静的接触角を 90° とした。欠陥形状として、ここでは円、円環および半円環（上向き・下向き）を用いた。これらの欠陥が単独で存在する場合、ならびに複数個が存在する場合それぞれについて数値シミュレーションを行った。

4. 研究成果

(1) 実験結果

欠陥遠方における接触線移動速度 V_0 が1 mm/s の場合の接触線の様子の写真例を図4に示す。接触線が欠陥上端に達する時刻を基準として、 $t = 0, 0.17, 0.27, 0.42$ s の時の画像を(a)~(d)に示している。接触線は、欠陥上端に到達するまで直線形状を維持しながら下降する(図4(a))。接触線が欠陥上端に達すると、接触線が欠陥の縁にトラップされ、凸状に変形する(図4(b))。接触線の変形が一定の大きさを超えると、接触線が欠陥上を移動し始め、変形した状態で欠陥内を移動する(図4(c))。接触線が欠陥の下端に至ると(図4(d))接触線は加速しながら欠陥から離脱し、再び元の直線形状に戻る。他の V_0 の条件においても、同様の接触線の変形挙動を示した。

接触線速度が $V_0 = 0.01, 1, 3, 5, 8$ mm/s の場合において、接触線の変形が最大となる時の形状を図5に示す。横軸は欠陥の中心軸を基準とした水平方向座標 x を表し、縦軸は欠陥遠方における液面位置を基準とした壁面上方

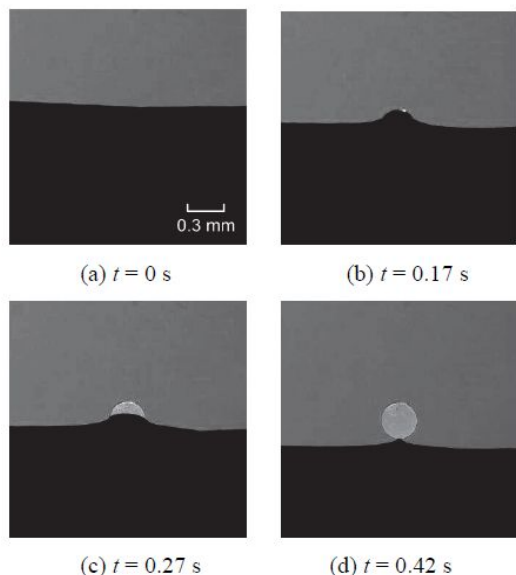


図4 円形欠陥を通過する接触線の挙動

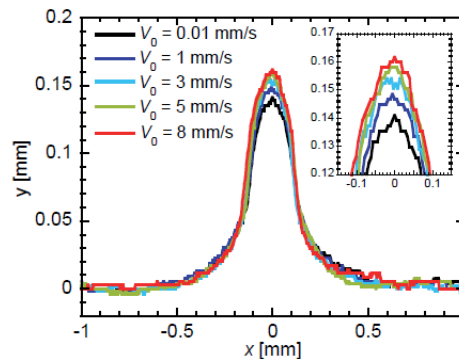


図5 変形した接触線の形状

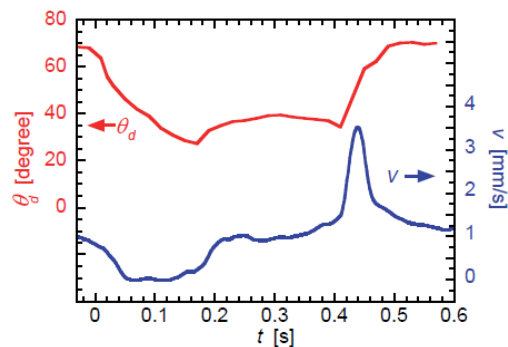


図6 動的接触角および接触線速度

向の座標 y を表す。図の右上には欠陥部付近の拡大図を示している。欠陥付近で接触線が大きく変形しており、 V_0 の増大により、その変形がより大きくなるのがわかる。

接触線速度を $V_0 = 1$ mm/s とした時の欠陥中心軸上における局所動的接触角 θ_d と接触線移動速度 v の時間変化を図6に示す。 $t < 0$ における v は V_0 と同じ1 mm/sの値を示し、動的接触角 θ_d は静的なSAM膜の接触角より12度小さい68度を示す。接触線が欠陥上端に到達すると θ_d と v が減少し始め、 $t = 0.05$ s で v はほぼ0となる。接触角はその後減少し続け、 $t = 0.17$ s で最小値を示す(図4(b)参照)。 $t = 0.17 \sim 0.42$ s で接触線は再び移動を開始し、欠陥内を V_0 とほぼ同じ速度で通過する(図4(c)参照)。この間、接触角は約37度でほぼ一定となる。 $t = 0.42 \sim 0.54$ s で接触線は欠陥から解放され、速度が急上昇して平滑部における速度、接触角に戻る。他の V_0 の条件においても同様の接触線の変形挙動を示したが V_0 を大きくすると接触線の変形が強くなり、 θ_d がより小さい値を示す傾向が認められた。

(2) 数値シミュレーション

計算結果を示すに先立ち、巨視的な動的接触角が満足するエネルギー平衡条件に簡単に触れておく[1]。接触線が壁面上を移動する際の仕事を考えると、巨視的に観察される動的接触角 θ_d は、次式から決定される。

$$E_s + E_{vis} + a_{dry}\sigma\cos\theta = A\sigma\cos\theta_d \quad (2)$$

上式左辺は、面積 A の壁面を接触線が移動したときの仕事量の合計を表し、 E_S, E_{vis} は、それぞれ接触線の変形に伴う仕事量、ならびに粘性消散を表す。 E_S は、気液界面積の増加量に表面張力を乗じて求められる。左辺第3項は欠陥を乾かす仕事で、 a_{dry} は乾かした欠陥の面積を表す。なお、欠陥以外の壁面の接触角は 90° であり、乾かすための仕事量はゼロである。式(2)は、左辺の接触線の移動に伴うエネルギー変化が、壁面に作用する表面張力の接線方向成分がなす仕事によって与えられることを表している。ここでは、特に E_S の動的ぬれ挙動への影響に注目する。

図7は、 $\theta=15^\circ$ の単独欠陥について、数値計算から求めた E_S の結果を表している。図より、円形と円環で E_S は完全に一致している。接触角が $\theta=15^\circ, 30^\circ$ と小さいときには、接触線が変形して欠陥から離れるとき、液滴が欠陥上に付着して残留する。この過程が両者でまったく同じとなり、仕事量も同一の値となる。次に、上向き半円環の結果を見ると、欠陥面積は円形の18%であるが、 E_S は約54~62%となった。一方、下向き半円環は、上向き半円環に比べて E_S はかなり小さい。下向き半円環では、接触線が最初に触れる円環の両端部のみでトラップされるため、変形はかなり小さくなる。すなわち、接触線の変形は、接触線が触れる欠陥のスパン方向長さに対する大きな影響を受ける。

上述の結果から、現実存在する形状に近く、かつ小さな面積でもぬれ挙動への影響が大きい上向き半円環を選び、壁面上に分布する欠陥群を対象に数値シミュレーションを行った。図8に示すように、5つの上向き半円環を、壁面上に水平間隔 $L=10\mu\text{m}$ で長半径 $100\mu\text{m}$ の楕円上に配置し、接触線の変形挙動を調べた。分布の高さ H を変化させたときの

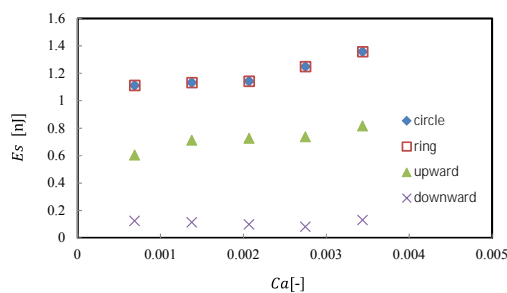


図7 接触線の変形仕事($\theta=15^\circ$)

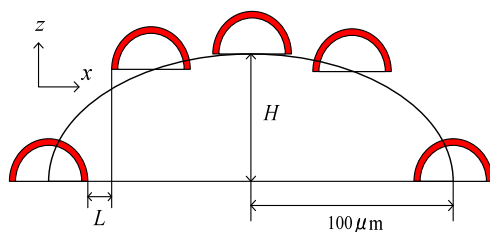


図8 上向き半円環の欠陥群

E_S の計算結果を図9に示す。図中の直線は、5個の欠陥を水平に配置したときの高さ H と幅をもつ、 $20 \times 240 \mu\text{m}$ の一つの矩形欠陥に対する結果を表している。図より、5個の欠陥の総面積は矩形の50%であるが、 $H=25\mu\text{m}$ 付近で E_S が同程度の値となることがわかる。さらに、接触線が移動した壁面面積に対し、欠陥の面積はわずか1.33%にすぎないが、式(2)から計算される接触角を 4.3° 減少させる効果がある。上記の結果は、少ない占有率の欠陥の影響により、実際の系における動的接触角の変化を説明できる可能性を示唆している。

$H=25\mu\text{m}$ において、接触線の変形が最大になったときの状況を図10に示す。図のように、個々の欠陥が連携して一つの大きな欠陥のように振る舞い、全体で接触線をトラップして大変形を生じさせる様子が見られる。欠陥を上凸のアーチ状に配置すると、大きな気液界面の変形が生じることが示された。

参考文献

- [1] Yamamoto, Y, Ito, T, Wakimoto, T and Katoh, K, Int. J. Multiphase Flow, Vol.51, 22-32 (2013).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計8件、すべて査読有)

加藤健司, 徐昌慶, 磯良行, 池田諒介, 脇本辰郎, 側壁を有する流路壁面を流下する液膜流れのぬれ特性, 混相流, 32巻, (2018), 35-42,

Yasufumi Yamamoto, Takahiro Ito, Tatsuhiro Wakimoto, Kenji Katoh, Numerical and theoretical analyses of the dynamics of

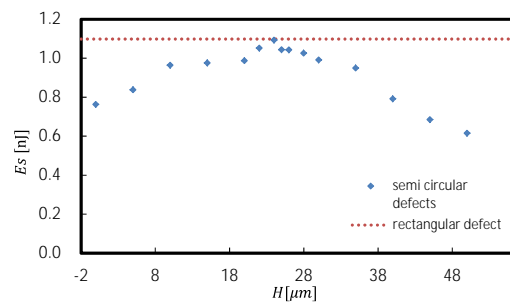


図9 分布高さによる接触線の変形仕事の変化

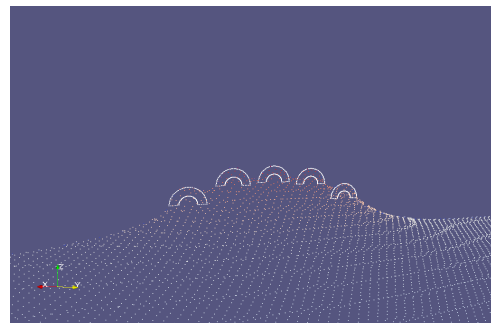


図10 欠陥群にトラップされた接触線の大変形

droplets driven by electrowetting on dielectric in a Hele-Shaw cell, Journal of Fluid Mechanics, Vol. 839, (2018), 468-488.
Yasufumi Yamamoto, Shohei Higashida, Hiroyuki Tanaka, Tatsuro Wakimoto, Takahiro Ito, Kenji Katoh, Numerical analysis of contact line dynamics passing over a single wettable defect on a wall, Physics of Fluids, Vol. 28, (2016), 82109.
Tatsuro Wakimoto, Tomonori Suwa, Yoshiaki Ueda, Kenji Katoh, Manabu Iguchi, Effect of Wetting Phenomenon on Oscillation of Liquid Column in a U-shaped Tube, Advanced Experimental Mechanics, Vol. 1, (2016), 58-62.
Manabu Iguchi, Akira Sonomoto, Yoshiaki Ueda, Ryoji Tsujino, Tatsuro Wakimoto, Kenji Katoh, Simultaneous Water Entry of a Many Poorly-Wetted Solid Spheres, Advanced Experimental Mechanics, Vol. 1, (2016), 219-223.
Shota Otani, Yoshiaki Ueda, Manabu Iguchi, Ryoji Tsujino, Tatsuro Wakimoto, Kenji Katoh, The Influence of Wettability on Simultaneous Water Entry of a Pair of Spheres, Advanced Experimental Mechanics, Vol. 1, (2016), 224-230.
Tatsuro Wakimoto, Kenji Katoh, Yoshiaki Ueda, Manabu Iguchi, Measurement of Dynamic Surface Tension for Liquid Metal by Capillary Jet Method, International Journal of Heat and Fluid Flow, Vol. 30, (2016), 7.
加藤健司, 田村大樹, 佐藤絵理子, 脇本辰郎, ぬれ性の変化による傾斜壁面上の液滴運動の制御, 混相流, 30 巻, (2016), 451-459.

[学会発表](計 20 件)

加藤健司他, 日本機械学会第 22 回動力・エネルギー技術シンポジウム(2017)。
加藤健司他, 日本混相流学会 混相流シンポジウム 2017, (2017)。
Yasufumi Yamamoto et al., 9th International Conference on Multiphase Flow (ICMF 2016), (2016).
Tatsuro Wakimoto et al., 9th International Conference on Multiphase Flow (ICMF 2016), (2016).
Tatsuro Wakimoto et al., The 11th International Symposium on Advanced Science and Technology in Experimental Mechanics [11th ISEM '16-Ho Chi Minh Vietnam], (2016).
橋口佳実他, 日本伝熱学会 第 53 回日本伝熱シンポジウム, (2016)。
阿部考吉他, 日本機械学会 第 21 回動力エネルギー技術シンポジウム, (2016)。
徐昌慶他, 日本混相流学会 混相流シンポジウム 2016, (2016)。

加藤健司他, 日本混相流学会 混相流シンポジウム 2016, (2016)。
磯良行他, 日本混相流学会 混相流シンポジウム 2016, (2016)。
池田諒介他, 日本混相流学会 混相流シンポジウム 2016, (2016)。
酒井弘満他, 日本混相流学会 混相流シンポジウム 2016, (2016)。
脇本辰郎他, 日本混相流学会 混相流シンポジウム 2016, (2016)。
山本恭史他, 日本混相流学会 混相流シンポジウム 2016, (2016)。
楠本肇他, 日本混相流学会 混相流シンポジウム 2016, (2016)。
荒賀浩一他, 日本実験力学学会 2016 年次講演会, (2016)。
脇本辰郎他, 日本実験力学学会 2016 年次講演会, (2016)。
諏訪友則他, 日本実験力学学会 2016 年次講演会, (2016)。
加藤健司他, 日本実験力学学会 2016 年次講演会, (2016)。
荒賀浩一他, 日本機械学会 2016 年度年次大会, (2016)。

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