

機関番号：13904

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2010

課題番号：21760127

研究課題名（和文）

液体界面における球形微粒子の運動—ミクロスコピックな動的濡れの観点からの挙動解明

研究課題名（英文） Motion of Spherical Micro-particles on Liquid Interface -  
Elucidation in Terms of Microscopic Dynamic Wetting

研究代表者

伊藤 高啓 (ITO TAKAHIRO)

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：00345951

研究成果の概要（和文）：液体界面における球形微粒子の運動の決定に対する重要因子である凹凸面における接触線運動および過渡的な接触線・接触角挙動について分子動力学解析および可視化実験を行った。その結果、以下の知見を得た。ナノスケールの凹凸上における接触線の固着効果は凹凸の高さが流体間界面厚さに比べて小さいときには減じられることが明らかになった。また、ステップ状の接触線運動の速度変化時には微視的(nm スケール)接触角でも過渡性が顕著に現れることがわかった。さらに、このような過渡性による影響は巨視的な体系(mm スケール)での実験においても観察された。

研究成果の概要（英文）：The contact line behavior on rough surface and the transient effect of the contact line velocity on the dynamic contact angle are dominant phenomena for the motion of micro particle on the liquid surface. Molecular dynamics simulations and visualization experiments were performed to investigate the contact line behavior in these situations. The following results were obtained. First, the pinned effect of contact line at a step is reduced when the height of the step is less than the thickness of fluid-fluid interface. Second, the transient effect of the contact line velocity on the contact angle is not negligibly small even for the microscopic (~nm) dynamic contact angle when the step-like motion of the solid surface. Such transient effect also was also observed in the macroscopic (mm) experiment.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	3,000,000	900,000	3,900,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：流体力学

科研費の分科・細目：機械工学・流体力学

キーワード：混相流, 濡れ, 接触角, 接触線, 表面張力, 分子動力学

## 1. 研究開始当初の背景

近年、黄砂やディーゼル排気ガスに含まれる微粒子(SPM)などのようなナノ～マイクロスケールの粒子が健康に対する影響を及ぼす事例が多く報告されている。

これらの微粒子が人間や生物に影響を及ぼす経路としては、肺などの粘膜を通して体内に取り込まれる場合のほか、河川や湖沼などの水面から水を通して摂取される場合などが考えられる。いずれの経路をとる場合においても、

微粒子が空気中から粘膜炎や水といった液体の界面を通過して最終的に生体内に進入するという経緯をたどる。

微粒子が界面を通過して液体のバルクに浸入する際には、粒子の表面積がその重量に対してきわめて大きいため、粒子自身の慣性力よりも微粒子の表面近傍における液体の粘性力や粒子表面上の接触線（固体-液体-気体三重線）の運動によって発生するキャピラリー力（毛管力、表面張力による応力）の変化が直接に粒子の運動に影響を及ぼすと考えられる。

これまでに、平滑面上において定常運動する接触線における接触角（動的接触角）については知見が得られている。しかし、微粒子が液面に衝突する際には、微粒子表面での凹凸や、現象の過渡性（接触線速度の非定常性）が大きな影響を持つと考えられる。これらについての知見はほとんど得られていないため、微粒子の運動を論じるうえでの障害となっており、これらを明らかにする必要がある。

## 2. 研究の目的

このような背景のもと、本研究では微粒子が液体界面と衝突した際に微粒子の運動に大きな影響を与える接触線の挙動に関して(1)微粒子の表面凹凸の影響(2)過渡的な動的接触角挙動特性を明らかにすることを目的として行った。

## 3. 研究の方法

研究は、分子動力学を用いたナノスケールにおける微視的接触角に着目した解析と、より巨視的なスケールにおける過渡挙動に着目した可視化実験により行った。分子動力学解析における流体および流体-壁面間の相互作用はレナードジョーンズポテンシャルで表されるものとした。実験は、鉛直円柱をきわめて小さな速度で界面上から液体に浸入させることにより、そのときに形成されるメニスカス端部の接触線の過渡挙動をバックライト法により可視化して行った。

## 4. 研究成果

(1) ナノスケールステップの接触線に与える影響

まず分子動力学法を用いたナノスケールステップの接触線に与える影響についての解析結果について述べる。

解析は、図1に示すような、2枚の平行な固体壁間に互いに混ざり合わない2種類の流体を封入した体系で行った。2枚の固体壁はどちらも0.3nmの格子定数( $a_0$ とする)の規則格子にばねで固定された原子からなる。

これ以降の説明では、接触線の呼称および接触角は後退流体側にに基づくものとする。たとえば、流体1が壁面に対して後退する接触

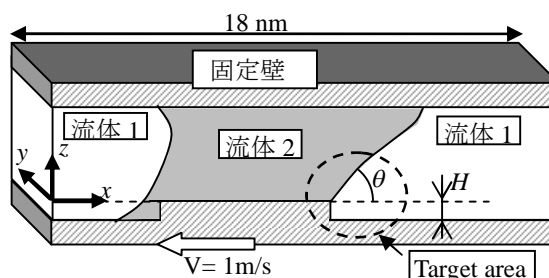


図1 ナノスケールステップの影響に関する分子動力学計算の計算体系

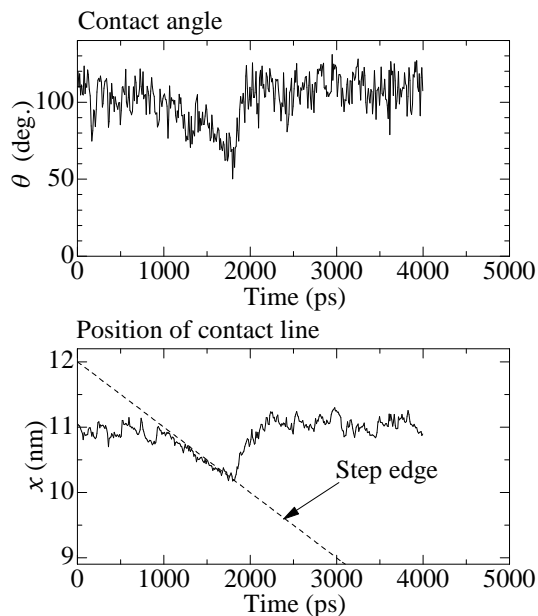


図2  $H=0.15\text{nm}$  のときの接触角および接触線位置の時間変化

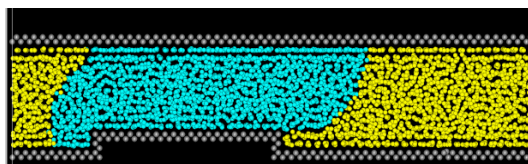


図3 分子動力学計算における瞬時の分子位置 (ステップ部における液膜状分布の形成)

線は流体1接触線と呼び、接触角も流体1側で定義する。

図2は  $H = 0.15\text{nm}$  のときに接触線がエッジを通過する計算における接触線位置およびそこでの接触角の時間変化を示す。図中にはステップエッジの位置も併せて示す。図を見ると  $t < 1000\text{ps}$  では接触線位置、接触角とも時間的にほぼ一定の値をとっている。接触線はステップエッジよりも  $x$  の小さな領域に位置し、ステップ上面を滑っていると判断できる。一方、 $1000\text{ps} < t < 1800\text{ps}$  では接触線位置とステップエッジ位置が一致しており、このように低いステップ ( $H=0.15\text{nm}$ ) においても接触線がステップエッジに固着 (ピン

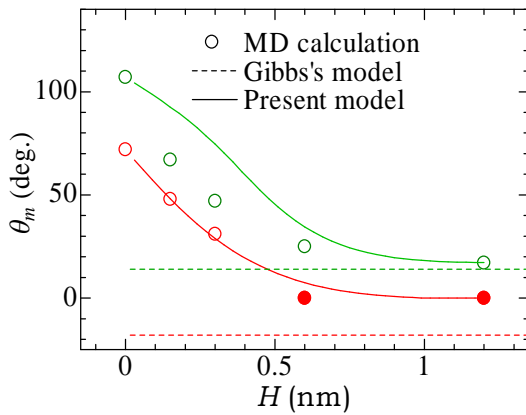


図4 ステップ高さ  $H$  と最小接触角の関係。緑と赤の色分けは後退する流体の種類に拠る。

止め)することがわかった。この間に、接触角は接触線の移動とともに減少するが、接触線がステップエッジから離脱する直前に最小値をとった後は、固着前とほぼ等しい値(約  $110^\circ$ )まで回復している。以降これを単に「最小接触角」と呼ぶ。

一方、 $H \geq 0.6\text{nm}$  のときに後退流体が前進流体に比べて濡れ性がよい場合には図3に示すように接触線がステップから離脱せず、後退流体の液膜の形成が見られた。このときには最小接触角はほぼ  $0^\circ$  であった。

このような最小接触角は接触線の固着の程度を表す重要なパラメータである。最小接触角の各ステップ高さ  $H$  に対する変化を図4に示す。この図に示すように、ステップ高さが小さいときには接触線離脱時の最小接触角は平滑面上(すなわち  $H=0$ )での接触角に近づくことがわかった。

この最小接触角を Gibbs の不等式から得られる値(図4中破線)と比較した。その結果 Gibbs の不等式は  $H \geq 0.6\text{nm}$  の場合にしか有効でないことが明らかとなった。そこで、接触線がステップ部分に位置する際の接触線近傍の応力バランスを静止状態を仮定して導いた。このモデルは、界面内に発生する界面に垂直な圧力と平行な圧力の差によって発生する応力をステップのおおの面の(鉛直面、水平面)について積分することにより、接触線がステップ近傍に位置する際の平衡接触角を求めるものである。このモデルにより得られた最小接触角とステップ高さの関係を図4内に実線で示す。モデルは分子動力学による計算値をよく再現している。

これらのことから、最小接触角の  $H$  に対する依存性は、以下のメカニズムによることがわかった。すなわち、二流体間界面内における界面に垂直な方向と接線方向の圧力成分の差  $\Delta p$  は、ステップ段差(垂直)面と界面とが接している部分(垂直部分)では平衡接触角を小さくする働きを持つ。このため、ステッ

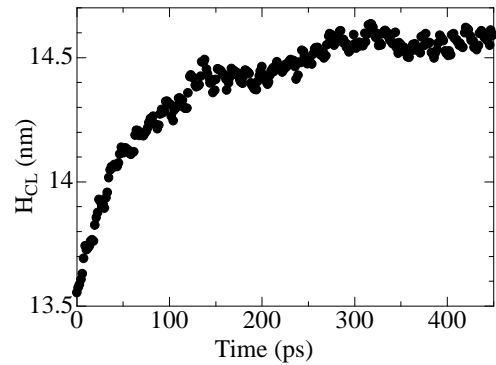


図5 分子動力学を用いた過渡時接触線挙動に関する計算における接触線位置の時間変化

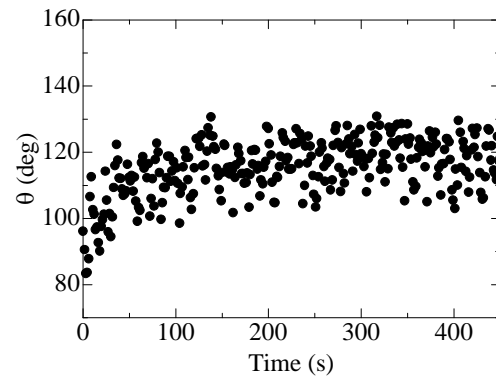


図6 分子動力学を用いた過渡時接触線挙動に関する計算における接触角の時間変化

プ近傍に接触線が位置する場合の平衡接触角は平滑面上における値よりも小さくなる。この効果はステップ高さ  $H$  が高くなるほど大きくなる。これにより、接触線がステップを通過する際の最小接触角はステップ高さの増加とともに減少する。

## (2) 接触角に与える接触線運動の過渡性的影響

### ① 分子動力学を用いた微視的接触角の解析

本研究では(1)と同様に非混合二流体が互いに逆方向に動く平行平板間に挟まれた体系で行った(ただし、壁面は上面・下面とも平滑面とした)。計算は予め平板が運動しない状態で平衡状態を維持し、その後に平板にステップ状の速度変化( $0\text{m/s} \rightarrow 20\text{m/s}$ )を与えることで行った。このときの接触線位置および接触角の時間変化を図5および図6に示す。

運動の開始時には接触線は平板とほぼ同じ速度で移動を開始した。時刻  $300\text{ps}$  を過ぎると位置変化は小さくなり、定常に達している。このことは運動開始時には接触線の平板に対する相対速度  $\Delta V$  はほぼ  $0$  であり、時間とともに  $\Delta V$  は平板速度にまで漸近的に増加することを示している。また、接触角も定常に達

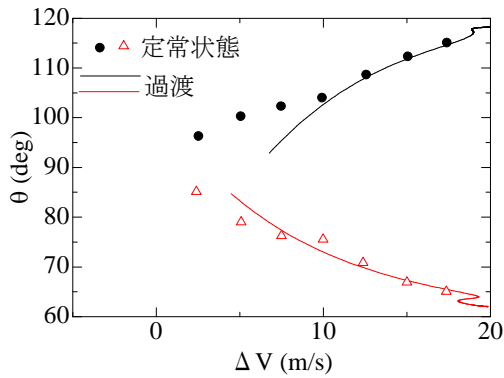


図7 分子動力学を用いた過渡時接触線挙動に関する計算における接触線速度と接触角の関係

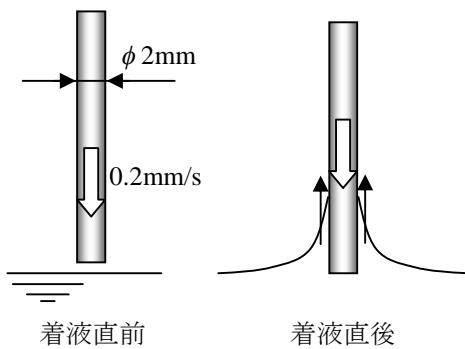


図8 接触角の過渡変化の影響に関する実験

するのに約 100~200ps 程度を要している。

図7には図6の結果から求めた接触線速度  $\Delta V$  と接触角  $\theta$  の関係を定常状態にて求められた結果と合わせて示す。図中の上側と下側のプロット(定常状態)および曲線(本計算における過渡状態)は2つの流体のうちのひとつが前進する場合と後退する場合とを示している。

この図から、接触線の加速度が大きい初期の期間(すなわち  $\Delta V$  の小さな期間)において定常時の結果とのずれが顕著になっていることがわかる。このことはきわめて小さな質量の流体しかその決定メカニズムに寄与しない微視的接触角においても運動の過渡性を考慮する必要があることを示している。

## ②可視化実験

このような接触線速度の過渡的变化が接触角に与える影響について、巨視的な体系(ミリメートルスケール)にて実験的に測定を行った。実験は図8に示すように直径 2mm のガラス円柱を 0.2mm/s の下降速度でエチレングリコールに浸入させ、その際のメニスカスの形成時における接触角および接触線速度の過渡変化を観察することで行った。

図9にガラス円柱が液面に接触してからの

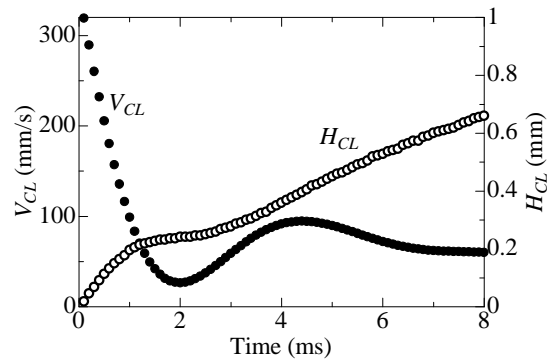


図9 可視化実験における接触線速度および接触線位置の時間変化

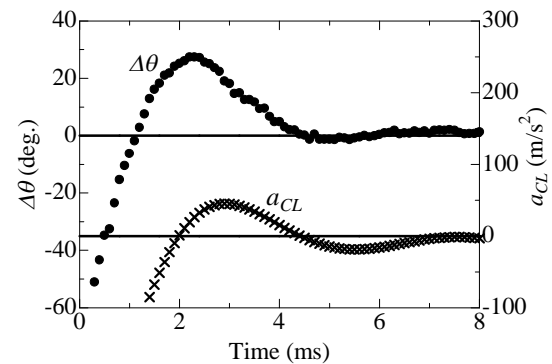


図10 接触角の偏差  $\Delta V$  と接触線加速度  $a_{CL}$  の時間変化

接触線位置  $H_{CL}$  と接触線速度  $V_{CL}$  の時間変化を示す。接触線位置は時間とともに上昇している。一般に動的接触角は接触線の固体面に対する関数で表されるので、図8に示した接触線速度と接触角の対応関係を調べた。その結果、本条件では特に接触線速度の変化の大きい着液直後の期間については接触角は接触線速度のみで表すことはできないことがわかった。

そこで、接触線速度の変化が比較的緩慢である着液後 6ms ~ 8ms での接触線速度と接触角の関係から、着液直後の速度変化が急激である期間の接触角をその時刻の接触線速度から評価し、測定された接触角との偏差  $\Delta\theta$  を求めた。その結果を接触線運動の加速度  $a_{CL}$  と併せて図10に示す。これを見るとやや位相差はあるものの、接触線運動の加速度と接触角の偏差はほぼ同様の動きをしていることがわかる。このことから、過渡時の動的接触角は接触線運動の加速の効果を考慮する必要があることが示された。

## 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1件)

①J. Doi, T. Ito, A. Hibi and Y. Kukita, Effect of Nano-Scale Steps on the Microscopic Dynamic Contact Angle, Proc. 17th International Conference on Nuclear Engineering, Brussels, 2009, Paper No. 75285. (査読有) 2009年7月14日

〔学会発表〕(計3件)

①伊藤 高啓, 名田 譲, 野田 進, 白金上の水の動的接触角に対する温度の影響に関する分子動力学解析, 日本機械学会年次大会 (2010年9月6日, 名古屋工業大学)

②伊藤 高啓, 土井 淳平, 名田 譲, 野田 進, ナノスケールステップにおける運動接触線の挙動, 日本混相流学会年会講演会 2010 (2010年7月17日, 静岡大学)

③伊藤 高啓, 土井 淳平, 野田 進, 久木田 豊, ナノスケールステップにおける微視的接触角の分子動力学解析, 日本機械学会年次大会 (2009年9月14日, 東北大学)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.me.tut.ac.jp/ece>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

伊藤 高啓 (ITO TAKAHIRO)

豊橋技術科学大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号: 00345951