

令和 6 年 6 月 7 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03898

研究課題名（和文）周囲液滴の存在により誘起される液滴内対流非対称化の物理解明

研究課題名（英文）Investigation of the droplet inner flow induced by adjacent droplet evaporation

研究代表者

山田 寛 (Yamada, Yutaka)

岡山大学・環境生命自然科学学域・講師

研究者番号：60758481

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、近接する液滴が蒸発するときに液滴内部で見られる対流の観察や数値解析による蒸発流束の把握を行った。水滴同士を隣接させた場合では、近接側の三相界線から気液界面に沿って遠方側の三相界線に至る流れが観察された。このとき、近接部では蒸発が抑制され、それに伴って温度低下も抑制されることが数値解析より明らかになった。また、赤外線カメラによる液滴の可視化においても、近接側三相界線で温度が高くなることを確認した。加えて、水滴に有機溶媒液滴を隣接させた場合では、溶質マランゴニ効果によって対流が駆動され、溶解度によって挙動が異なることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液滴の蒸発は雨粒やインクジェット印刷など日常生活でも広くみられるが、1液滴での挙動把握が先行し、複数の液滴が近接して存在する場合の研究が進んでいなかった。本研究では液滴同士が近接する場合の液滴内対流が1液滴の場合と異なることを示し、数値解析の結果から近接部分での蒸発抑制とそれに伴う温度低下の抑制がこの挙動を引き起こしていることを示唆する結果を得た。このことは複数の液滴が近接する環境での蒸発を理解するために役立つと考えられる。

研究成果の概要（英文）：In the present study, inner flow in a droplet induced by evaporation of multi-droplets was experimentally observed and multi-droplets evaporation was numerically analyzed to show an evaporation flux from the droplet surface. At the case of two water droplet evaporation, liquid flow which directed from near side to far side of three-phase contact line along to liquid-gas interface was observed. From numerical approach, evaporation suppression was predicted at vicinity region between two droplets and accordingly, latent heat transfer was also suppressed. This result was confirmed by the observation using an infrared camera. At the case of solvent droplet placed next to water droplet, liquid flow driven by solutal Marangoni effect was observed and a difference of solubility of organic solvent affected to the flow behavior in the water droplet.

研究分野：熱工学

キーワード：液滴蒸発 対流 温度分布

### 1. 研究開始当初の背景

固体面上の液滴の蒸発は熱工学や化学工学に根差した熱物質移動過程であり、実験・理論の両面からの現象把握のみならず、塗装や印刷などの工業的応用を指向した物質堆積に関する研究が進められてきた。しかし、これらは液滴が単独で存在する環境を想定したものが多く、現実に見られる液滴同士が直径の数倍以下の距離に接近することで影響を及ぼしあう環境での蒸発を理解する必要があった。そこで、本研究では近接しておかれた2つの水滴の蒸発挙動の観察を行い、蒸発時間の長期化や内部対流について知見を得てきたが、そのメカニズムについては理解が進んでいなかった。ここでは、赤外線カメラによる液滴表面温度の把握や数値解析を用いた蒸発流束分布の把握を通して、物質堆積に影響を与える液滴内部流動生成メカニズムの把握を目指して研究を行う。

### 2. 研究の目的

液滴全体の温度分布と誘起される流れの関係を明らかにすることが本研究の目的である。そもそも液滴内の流れは、(1)キャピラリー流れ、(2)マランゴニ対流、(3)自然対流のいずれかが支配的であり、はた水面上ではマランゴニ対流および自然対流が重要である。さらに、単一成分の液滴であれば濃度差に駆動される溶質マランゴニ効果が無視できるため、液滴内での温度差が唯一の駆動力となる。これは蒸発流束や固体面の熱伝導率などによって変化するものであり、流動にも影響を及ぼすため、その把握が求められている。

また、液滴に有機溶媒を用いた場合はマランゴニ対流が支配的になると予想されるが、水と比較しても知見が得られていない。ここでは水滴に有機溶媒液滴を接近させた場合における水滴内の流動様相を把握し、溶媒の性質との関りを明らかにする。

### 3. 研究の方法

液滴内部流動の観察は粒子画像流速測定法(PIV)によって行った。あらかじめ温度25°C 相対湿度50%に制御した空間には水性に調整した基板を配置し、体積3.5 μlの水滴を滴下した。次に図1左側に示すように液滴の中心を通るようにレーザーシートを上方から照射し、液滴に含まれるトレーサー粒子の移動をカメラにより観察した。なお、トレーサー粒子には直径1 μmのポリスチレン粒子を用いており、濃度は0.125 g/Lとした。

液滴表面温度の把握では、同様な準備を行った後に滴下した液滴を赤外線カメラで観察した。

液滴内部の温度および蒸発流束の把握では、図1右側に示すような蒸気の拡散と蒸発による潜熱輸送を考慮した準定常の解析モデルを用いた。これらの研究では水滴1滴および2滴の系を対象とした。

加えて、図1左側の実験において、右に水滴、左に有機溶媒の液滴を滴下した際に水滴内に誘起される対流の可視化を行った。なお、ここでは基板として湿式でナノスケールの構造を作製した後は水処理を行った銅板を用いており、接触角は150°であった。また、基板のおかれた空間をN<sub>2</sub>ガスでパージすることで相対湿度を5%以下まで下げた後に7 μlの液滴を滴下した。トレーサー粒子としては直径5 μmのポリスチレン粒子を濃度0.16 g/Lで添加した。粒子内には波長532 nmのレーザーで励起する色素が含まれており、565 nmの蛍光のみを観察することで対流を詳細に把握できるようにしている。

### 4. 研究成果

はた水処理を施したシリコン基板上に滴下した水滴の内部対流の様子を図2に示す。1液滴の場合では(図2(a))、液滴中心から上方への流れが観察された。一方、2液滴の場合では(図2(b))、近接側の三相界線から気液界面に沿って遠方側の三相界線に至る流れが観察され

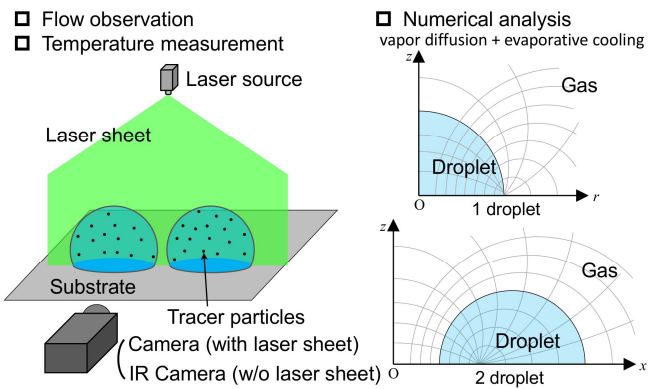


図1 液滴内対流の可視化および液滴温度計測実験の概要と数値解析の概要

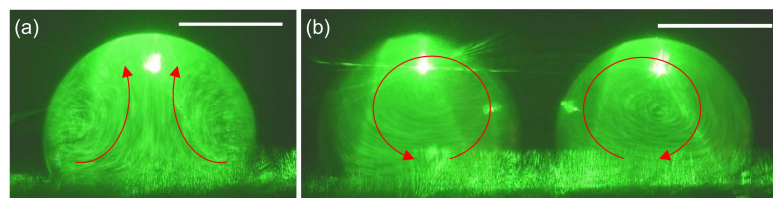


図2 PIVによる水滴内部対流の可視化結果。(a)1滴 (b)2滴。スケールバーは1mm。

た．流速はどちらの場合でも数 $\mu\text{m/s}$ 程度であった．また，シリコン基板と比較して熱伝導率の低い $\text{CaF}_2$ や $\text{MgF}_2$ を基板とした実験も行い，同様な対流が確認されたが，流速は熱伝導率が低いほど遅くなることが確認された．図3には，シリコン基板に滴下した液滴の表面温度を赤外線カメラによって観察した結果を示している．

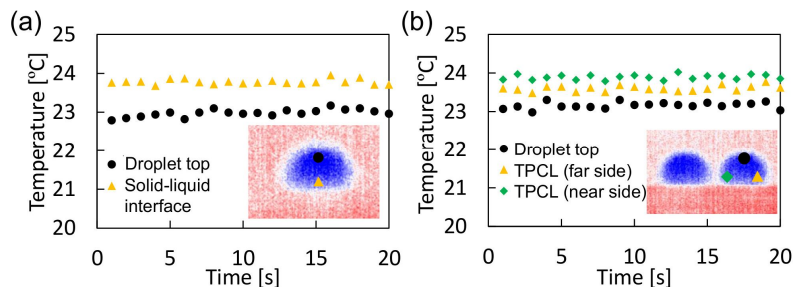


図3 赤外線カメラによる液滴表面温度の可視化結果 .(a)1 滴 (b)2 滴 .

液滴の数によらず，液滴頂点では固液界面と比較して温度が低いことがわかる．加えて，2 滴滴下した場合には，近接側三相界線付近の温度が遠方側三相界線付近と比較して高いことがわかった．

これらの結果を理解するため，液滴周囲の水蒸気濃度および温度を解析的に検討した．1 液滴の場合における水蒸気濃度および温度分布を図4(a)と(b)に示す．固体面は $298.15\text{ K}$ で一定を仮定しているため，蒸発によって液滴頂点が冷却されていることがわかる．これは気液界面においては蒸発潜熱が放出される一方で固液界面から熱が流入するためである．図4(c)には気液界面における蒸発流束を示しており，三相界線において最大となることがわかる．一方，図4(d)~(i)には蒸発する2つの水滴まわりの水蒸気，温度および気液界面での蒸発流束分布を示している．ここでは，2液滴の中間から右側のみを解析しており，液滴間距離 $L$ と液滴直径 $d$ の比である $L/d$ が1.1の場合(図4(d)~(f))と3.5の場合(図4(g)~(i))を示している．蒸気濃度分布をみると，特に $L/d=1.1$ における近接側で濃度が高くなっていることがわかり，その結果として蒸発流束が大幅に低下していることが蒸発流束分布から確認できる．これによって潜熱の放出が抑制されるため，近接側では温度低下が抑制され，図4(e)に見られるように，液滴頂点付近の低温部が遠方側に移動することがわかった．また，水滴が隣接することによって受ける影響は $L/d=3.5$ 程度まで離れることでおおそ無視できる程度まで低下することが確認された．[1]

これらの検討結果を踏まえて，水滴が隣接することによる液滴内対流について考察する．数値解析の結果は，赤外線カメラによる温度分布の可視化結果を肯定するものであることが確認された．また，得られた温度差から推定される熱マランゴニ数は数千程度となり，マランゴニ対流が生成される場合は三相界線から気液界面に沿って液滴頂点に向かう流れが見られると予想される．しかし，実験結果は自然対流が支配的であると言える．これは過去に指摘されているように，気液界面に空気中の有機物が意図せず付着したものと考えられる．[2]これらのことより，2

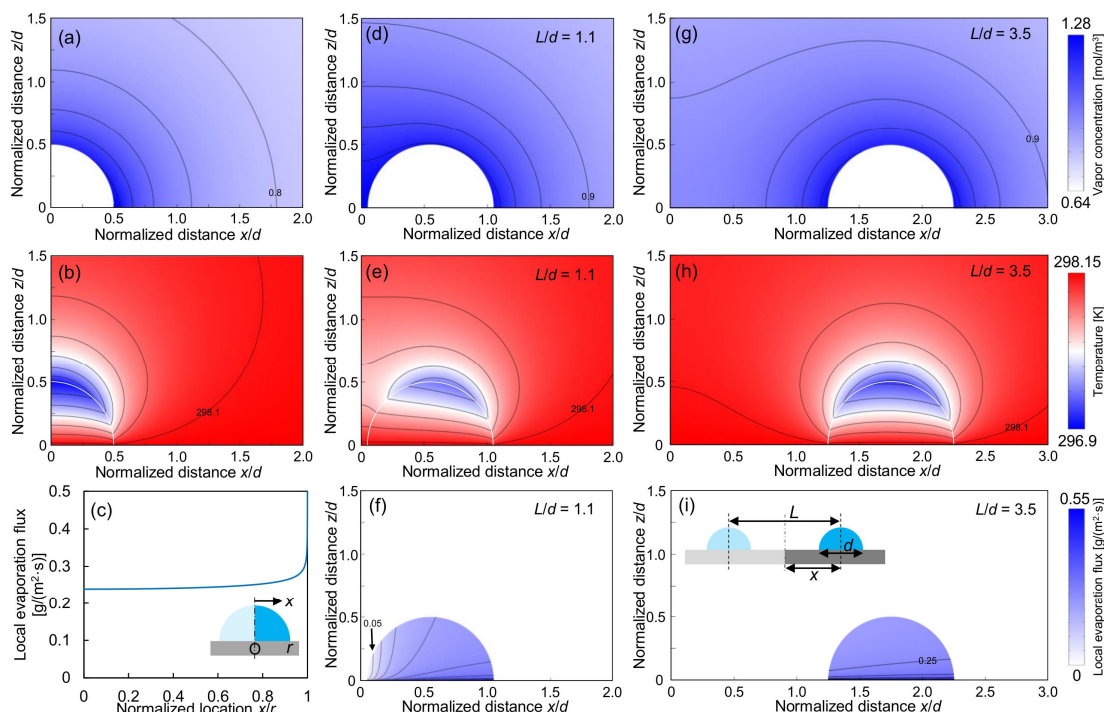


図4 1 滴および2 滴における水蒸気濃度，温度，蒸発流束分布の解析結果．(a)~(c)に1 滴での結果を示し，(d)~(i)には2 滴の結果を示す．(a)，(d)，(g)は水蒸気濃度分布，(b)，(e)，(h)は温度分布，(c)，(f)，(i)は蒸発流束分布を示す．図中に示される等高線の間隔は，それぞれ $0.1\text{ mol/m}^3$ ， $0.1\text{ K}$ ， $0.05\text{ g/(m}^2\cdot\text{s)}$ である．

液滴の結果においても自然対流が支配的なものと考えられる。一方で、液滴内部には水平方向に非対称な温度差が存在しており、より高温である近接側三相界線からの浮力が遠方側のものに比べて大きいため、図 2(b)で見られた流れが生成されたものと考えられる。

次に、水滴の左側に有機溶媒液滴を滴下した際(液滴中心間距離:  $4.0 \pm 0.5$  mm)に見られる水滴内の対流の様子を図 5 に示す。上段に示されたアセトン, エタノール, エチレングリコールは水に混和する溶媒であり, 下段に示されたジクロロメタン, クロロホルム, ヘキサデカンは水に混和しない溶媒である。また, エチレングリコールおよびヘキサデカンの蒸気圧は水と比較して小さく, 他の 4 種類は水と比較して大きな蒸気圧を示す。図 5 より, 蒸気圧の大きい有機溶媒を隣接させた場合では反時計回りの対流が見られた。このときの速度は数 mm/s となり, 水滴の蒸発で見られる対流と比較して 2~3 桁速いことが確認された。液滴中心間距離と最大流速には正の相関見られることもわかった。これらのことより, 蒸発した有機溶媒分子が水滴表面に付着することで表面張力が低下し, 溶質マランゴニ対流を誘起したものと考えられる。しかし, 本研究で見られた液滴内対流は, Hegde らによって報告されている同様な実験の結果と比較して反対向きの流れとなった。[3]この違いは水滴の固液接触具合によるものと考えられる。先行研究では接触角  $110^\circ$ 程度であり, 固液界面に気相が含まれていないと考えられるが, 本研究では固液界面をミクロに見た際に気相が含まれる Cassie-Baxter 状態の濡れになっていると考えられる。一方, 液滴表面の溶媒濃度は溶媒液滴からの距離に依存すると考えられる。このとき, 溶媒濃度が最も高く表面張力の低い位置から溶媒濃度が最も低く表面張力が大きい位置へ至る液滴垂直断面での気液界面の経路は 2 つあるが, 固液接触部を経由する経路がより短いため表面張力勾配が大きくなると考えられ, 図 5(a)などで見られる対流が生成されたものと考えられる。一方, 蒸気圧の低い溶媒では図 2(a)で見られた水滴 1 滴のものと同様な対流が見られ, 速度も同程度であった。これは溶媒蒸気の生成量が少なく, 水滴の表面張力低下が発生しなかったためと考えられる。

また, レーザー照射をせずに明るい環境で観察した際には, 特にアセトンやエタノールを水滴に隣接させた場合において水滴が左右に振動する様子が見られた。この挙動は本研究の開始当初では予想していなかった事象であり, 検討を進めているものの詳細は理解できていない。今後は新たに発見された現象の理解に向けて研究を継続する予定である。

#### 参考文献

- [1] Y. Yamada, K. Isobe, A. Horibe, Langmuir, 2023, 39, 15587-15596
- [2] H. Hu and R. G. Larson, J. Phys. Chem. B, 2006, 110, 7090-7094
- [3] O. Hegde, S. Chakraborty, P. Kabi, S. Basu, Phys. Fluids, 2018, 30, 122103

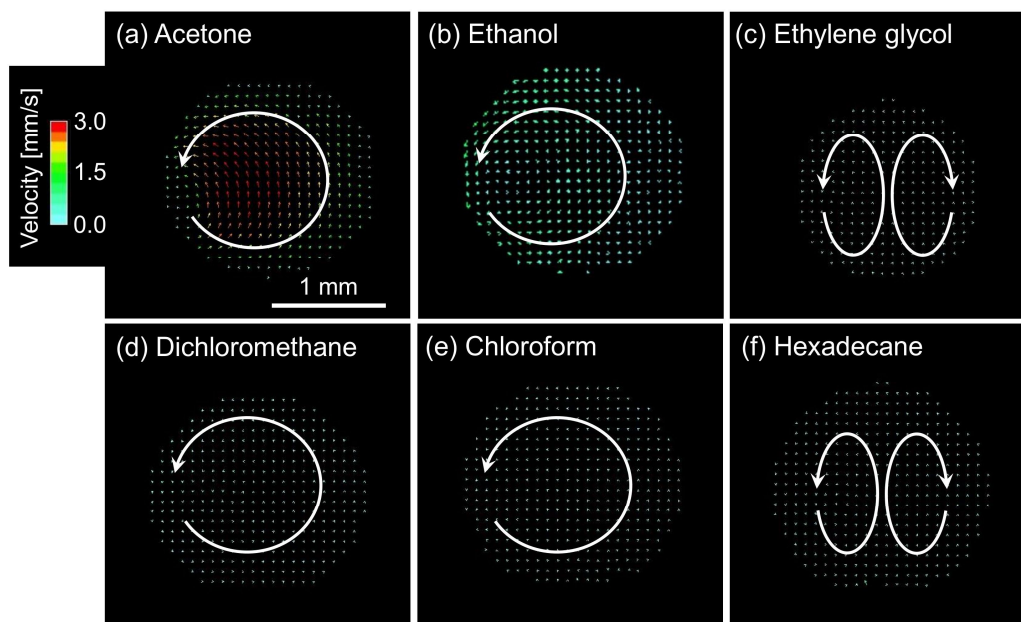


図 5 水滴の隣に有機溶媒液滴を滴下した際の水滴内部流動挙動。(a)アセトン (b)エタノール (c)エチレングリコール (d)ジクロロメタン (e)クロロホルム (f)ヘキサデカン

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1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 Yamada Yutaka, Isobe Kazuma, Horibe Akihiko	4. 巻 39
2. 論文標題 Analysis of Evaporation of Droplet Pairs by a Quasi-Steady-State Diffusion Model Coupled with the Evaporative Cooling Effect	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 15587 ~ 15596
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.langmuir.3c01893	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6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 水戸大夢, 山田寛, 磯部和真, 堀部明彦
2. 発表標題 有機溶媒の蒸気に誘起される超撥水面上水液滴の挙動
3. 学会等名 第59回日本電熱シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山田寛, 磯部和真, 堀部明彦
2. 発表標題 近接する2液滴の蒸発挙動と接触角が与える影響
3. 学会等名 2022年度日本冷凍空調学会年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山田寛, 宮下翼, 磯部和真, 堀部明彦
2. 発表標題 近接する2液滴周囲の水蒸気濃度が蒸発に与える影響
3. 学会等名 第58回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山田寛, 磯部和真, 堀部明彦
2. 発表標題 液滴間隔が蒸発挙動に与える影響の数値解析的検討
3. 学会等名 第60回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yutaka Yamada, Kazuma Isobe, Akihiko Horibe
2. 発表標題 THE EFFECT OF SEPARATION DISTANCE BETWEEN DROPLET PAIR ON THE EVAPORATION
3. 学会等名 7th International Workshop on Heat/Mass Transfer Advances for Energy Conservation and Pollution Control (IWHT2023) (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yutaka Yamada, Kazuma Isobe, Akihiko Horibe
2. 発表標題 THE EFFECT OF SEPARATION DISTANCE BETWEEN TWO DROPLETS ON THE EVAPORATION
3. 学会等名 The 33rd International Symposium on Transport Phenomena (33rd ISTP)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

岡山大学工学部伝熱工学研究室HP  
[https://www.cc.okayama-u.ac.jp/heat\\_transfer/heattransferlab/research.html](https://www.cc.okayama-u.ac.jp/heat_transfer/heattransferlab/research.html)

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
---------	---------