

平滑面に衝突する液滴接触線速度のステップ降下*

Step-Wise Decrease in Contact Line Velocity of Drops Impacting a Flat Smooth Surface

児玉 彩花** 白井 啓大朗** 宮川 泰明** 岡部 孝裕**
KODAMA Ayaka SHIRAI Keitaro MIYAGAWA Taimei OKABE Takahiro

松下 洋介** 松川 嘉也*** 青木 秀之*** 大黒 正敏****
MATSUSHITA Yohsuke MATSUKAWA Yoshiya AOKI Hideyuki DAIKOKU Masatoshi

齋藤 泰洋***** 福野 純一***** 城田 農**,†
SAITO Yasuhiro FUKUNO Junichi SHIROTA Minori

Abstract Predicting the dynamics of impacting drops is crucial in various industrial applications such as spray and inkjet technologies. Especially in painting technology, the entrapment of air bubbles greatly reduces the product quality. The formation of a thin air film in front of the moving contact line causes the entrapment of air bubbles in the spreading phase. To clarify the main forces acting at the gas-liquid interface that induce air bubbles entrapment, we investigate the contact line velocity of impacting drops by taking bottom view images using the total internal reflection (TIR) method. We used droplets of glycerol or glycerol-ethanol solutions and solid surfaces covered with either glycerol or silicone oil. Our results show the contact line velocity decreased rapidly at T_c when a thin air film was formed and settled down at a constant value V_{const} after the formation of the air film. Furthermore, we revealed that drop viscosity affects T_c and V_{const} . Moreover, we found that after T_c , the lubrication pressure of the air had the same order of magnitude as the viscous shear stress of the drop, which implied the importance of the air lubrication pressure.

Keywords: Drop impact, Contact line, Air film layer, Total internal reflection

1. 緒言

液滴衝突は、滴下量・滴下位置の精密さが要求されるインクジェット技術から、広範囲な均一性が求められる噴霧技術まで幅広い産業応用で見られる現象である。中でも塗装技術においては、塗料吹付による液滴衝突時の気泡混入は製品の品質や塗装効率の低下に繋がるため、抑制が求め

られている。

液滴が平面に衝突した後濡れ広がる過程において、接触線前方で液滴と衝突基板の間に空気層が形成される場合がある。この空気層の厚さは $10^{-8} \sim 10^{-6}$ m 程度であり、側面からでは観測できないほど薄い。この空気層の形成は、射出液膜と基板の局所的な接触 [1] および、接触線自体の

* 2022.12.15 受付

** 弘前大学大学院理工学研究科

*** 東北大学大学院工学研究科

**** 八戸工業大学工学部

***** 九州工業大学大学院工学研究院

***** 本田技研工業株式会社

† Corresponding author: mshirota@hirosaki-u.ac.jp

凹み [2-4] を引き起こし、空気が巻き込まれて捕捉されることが明らかになっている [1-6]。このうち基板との局所的な接触は、固体表面粗さに起因しており、固体表面に液膜を塗布し表面粗さが 10^{-10} m程度に平滑化されることで抑制できる [2] (Fig. 1)。

空気薄膜が形成される領域では、見方を変えると動的濡れが不完全である。このように接触線とバルク液体に速度差が生まれ動的濡れが不完全になる現象は、静止流体中に一定速度で板を引き入れる系でも見られ、Wetting Failure (以下 WF) と呼ばれている [7-14]。WFは臨界速度以上で平板を動かしたときに発生し、そのとき動的接触角はほぼ 180° であることが実験的に明らかになっている。最近の研究ではWFの発生の有無は接触線近傍の気液界面での圧力バランスで決まると考えられており、ラプラス圧と潤滑圧力のつり合いから臨界キャピラリ数 $Ca = \mu_L V_{cl} / \sigma_L$ で表せることが明らかになった [7-12]。 μ_L は液滴粘度、 V_{cl} は接触線速度、 σ_L は液滴の表面張力を表す。

液滴衝突においても、決まった時間での接触線速度を代表速度に取ることで、同様に Ca で整理できることが示された [2]。また、リムの太さが周方向に変化し数珠状になるリム不安定性やスプラッシュの要因が衝突初期のWFにあるとし、動的接触角のモデルを用いてリム不安定性などが発生する臨界 Ca を求めることができることが明らかになった [17]。

これら WF 発生境界では速度が重要な要素となる。しかし、液滴衝突は接触線速度が大きく時間変化する現象であり、さらには空気薄膜の形成は広がり途中で急に発生する。そのため、一つの速度で評価することはできず、時間変化する接触線速度や空気薄膜が観測される時間の計測が必要であるが、それらは不足している。

そこで、本研究では液滴が平滑面に衝突した後の広がり様子を側面と底面の両方から測定し、非定常な接触線の運動を定量的に評価する。液滴の物性や衝突面の濡れ性、衝突速度を変化させて実験を行い、これらがWF発生へ及ぼす影響を調べることを目的とする。

2. 実験方法

実験装置の概略図を Fig. 2 に示す。シリンジポンプを用いて、シリンジに接続したニードルから

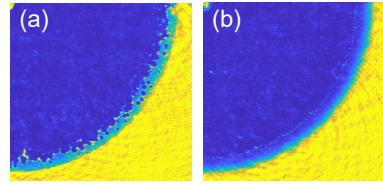


Fig. 1 Bottom images of a drop impacting on (a) solid surface (b) liquid film.

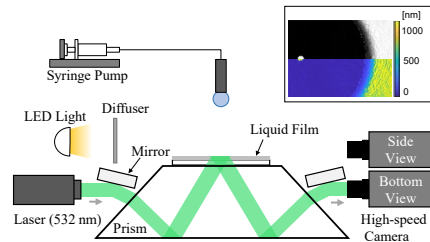


Fig. 2 Schematic of experimental setup.

Table 1 Fluid properties.

Symbol	Drop	μ_L [mPa·s]	σ_L [N/m]	ρ_L [kg/m ³]	Oh [-]
◆◇	GW50	6	0.070	1128	0.017
●○	GW60	10	0.070	1140	0.027
■□	GW77	40	0.066	1185	0.111
▲△	GW85	73~100	0.064	1212	0.303~0.277
★☆	GW90	163	0.064	1235	0.448
▼▽	GE60	22	0.026	1028	0.104
●○	GE70	64	50	1082	0.209

Solid : Liquid Film is Glycerol
Hollow : Liquid Film is Silicone Oil

一定量の試料を滴下しプリズム上の基板に塗布された液膜に衝突させた。落下液滴には濃度の異なるグリセロール水溶液 (GW: グリセロール濃度 50~90 wt%) またはグリセロールエタノール溶液 (GE: グリセロール濃度 60, 70 wt%) 数種を使用し、衝突基板にはスライドガラスにグリセロール ($\mu_L = 943$ mPa·s) またはシリコンオイル ($\mu_L = 970$ mPa·s) を塗布したものを使用した。これは、固体表面を平滑化することで局所的な接触を抑制し、空気薄膜形成時の接触線速度を正確に計測するためである。物性表を Table 1 に示す。液膜は厚さが $2\sim3$ μm になるようにスピコートを用いて作成しており、本実験で液膜に用いた液体粘度と液膜厚さでは、液膜の変形が無視できることが先行研究で示されている [2]。液滴径 R_0 は $1.4\sim1.7$ mm、衝突速度 V_0 は $1.1\sim2.0$ m/s の範囲で実験を行った。濡れ広がり様子は、2 台の同期

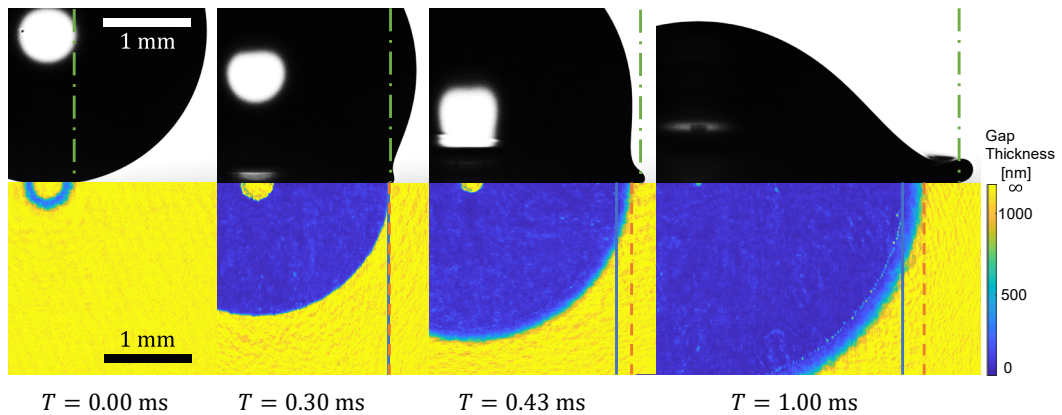


Fig. 3 An impacting drop observed from (upper) the side and (lower) the bottom with TIR imaging. The dash-dotted lines (green online) and the dashed lines (orange online) represent the positions where the air film thicknesses are about $10\ \mu\text{m}$ and $1\ \mu\text{m}$, and the radii from the center of the wetting region to the positions are termed R_{micro} and R_{nano} , respectively. The solid lines (blue online) represent the position of the contact line, whose radius is termed R_{cl} (see Fig. 4). Drop liquid was GW85 ($\mu_L = 100\ \text{mPa}\cdot\text{s}$) and film liquid was silicone oil. $V_0 = 1.7\ \text{m/s}$, $R_0 = 1.67\ \text{mm}$.

したハイスピードカメラ（底面：Photron 社，FASTCAM SA-Z；側面：ナックイメージテクノロジー社，MEMRECAM ACS-1）を用いて側面と底面を同時に撮影した。側面は LED ライトを用いたバックライト法、底面は DPSS レーザ（波長 $532\ \text{nm}$ ）を用いた Total internal reflection (TIR)法 [15] で撮影を行った。撮影速度は $60000\ \text{fps}$ とし、撮影画像の画素分解能は、底面が $8.0\ \mu\text{m}/\text{pixel}$ 、側面が $2.9\ \mu\text{m}/\text{pixel}$ であった。

TIR 法は全反射を利用したプリズム上部の極近傍を観察する方法である。エバネッセント光が形成される範囲で、物体がプリズムから離れるにつれ黒から白に近づくグラデーションとして像が映る。この方法を利用することで、液滴と基板が接触している領域の広がり速度 V_{cl} と、空気薄膜厚さがエバネッセント光形成範囲（本実験では衝突面との距離約 $1\ \mu\text{m}$ 以下）の領域の広がり速度 V_{nano} を求めた。

底面撮影カメラのセンサは 256 階調の輝度値深度を持つため、理論的[15]に求められる空気薄膜計測の平均分解能は、今回用いた条件下では $4\ \text{nm}$ 程度となる。しかし、低輝度領域におけるカメラセンサー感度の非線形性により、衝突面から $20\ \text{nm}$ 程度の領域では空気薄膜高さを正確に計測することができず、計測可能な最小高さは $20\ \text{nm}$ 程

度である。またこれ以降は、周方向平均値を代表値として用いるが、主にレーザースペックルの影響により、輝度値は周方向にばらつく。ばらつきを表す相対標準偏差の大きさは約 15% である。

3. 結果

3.1 濡れ広がり時の接触線速度のステップ降下

試験液体に GW85 を用い、グリセロール液膜に衝突させた実験より得られた、側面撮影と底面撮影の画像を Fig. 3 に示す。底面画像と側面画像を比較すると、接触線前方に側面撮影での分解能以下の薄い空気層が形成されていることがわかる。さらに、 $0.4\ \text{ms}$ 以降の底面画像では基板からの距離が $0\sim 1000\ \text{nm}$ の領域が現れていることがわかる。

より具体的に空気薄膜形状を考える。図中の線は、一点鎖線が側面撮影から得られる接触線位置 R_{micro} 、実線が底面撮影で得られる接触線位置 R_{cl} 、点線が灰色の像の先端位置 R_{nano} を示している。側面撮影の分解能と TIR 法の測定範囲の上限からこれらの位置での空気層の厚さを概算できる [15]。特に $1\ \mu\text{m}$ 以下の範囲については画像の輝度値から詳細な空気薄膜形状を算出できる。Fig. 4 (a) に算出した $0.3\ \text{ms}$ での $1\ \mu\text{m}$ 以下の範囲での空気薄膜形状を、Fig. 4 (b) に $0.2\ \text{ms}$ と $0.3\ \text{ms}$ での空気薄膜全体の形状の模式図を示す。以下、厚さが $1\sim 10$

μm の空気薄膜をマイクロ空気薄膜、 $1\ \mu\text{m}$ 以下の空気薄膜をナノ空気薄膜と呼ぶ。

撮影画像から得られた R_{micro} 、 R_{nano} 、 R_{cl} それぞれの半径の時間変化を Fig. 5 に示す。衝突直後は R_{cl} と R_{nano} は等しく、ナノ空気薄膜は形成されていないが、約 $0.3\ \text{ms}$ から R_{cl} が R_{nano} から大きく引き離され、その差の領域でナノ空気薄膜が形成されている。このナノ空気薄膜が形成される時間を遷移時間 T_c とする。また、 T_c 以前から、 R_{micro} と R_{nano} には差があることから、衝突初期からマイクロ空気薄膜は形成されていることがわかる。また、衝突初期の R_{micro} は $R \propto \sqrt{R_0 V_0 T}$ (実線) でよく表されていることがわかる [16]。

それぞれの変化、特に R_{cl} の急激な変化については速度で比較するとより明確である。Fig. 6 に速度の時間変化を示す。ここで興味深い点が三つ存在する。一つ目は、接触線速度のステップ降下が、すなわち WF が衝突初期ではなく広がり途中で起こる点である。液中で平板を一定速度で移動させる系では、WF は Ca が臨界値を超えた時に発生する [7–12]。しかし、液滴衝突では WF は速度が一番大きい衝突初期ではなく、十分に速度が小さくなった T_c のときに発生する。ここで、衝突最初期 ($T < 0.2\ \text{ms}$ 程度) の液膜射出時刻以前は接触線近傍の液滴内部流れ場は衝突面に垂直な成分が主流となっており、WF が発生しないことは当然であるが、液膜が射出することと WF は条件が必ずしも一致しないことを強調する。液膜射出時刻と WF の関係性を付録 A に示す。

二つ目は、速度がステップ状に減少する点である。衝突面は液膜であり $10^{-10}\ \text{m}$ オーダーで滑らかな表面であるにもかかわらず、ピンギング現象でみられるようなステップ状の速度変化が計測された。三つ目は、ステップ降下後ほぼ一定の速度を示すことである。つまり、ステップ降下後は接触線に働く力は釣り合っていることになる。

3.2 衝突液滴の粘度や表面張力が接触線速度に及ぼす影響

前節で示したように、液滴衝突現象においてナノ空気薄膜が形成される場合には、接触線速度 V_{cl} は時刻 T_c でステップ降下し、その後は一定速度 V_{const} を示す。本節では、衝突液滴を変化させて平滑面への衝突実験を行うことで、衝突液滴の粘度や表面張力が T_c および V_{const} に及ぼす影響を調べる。

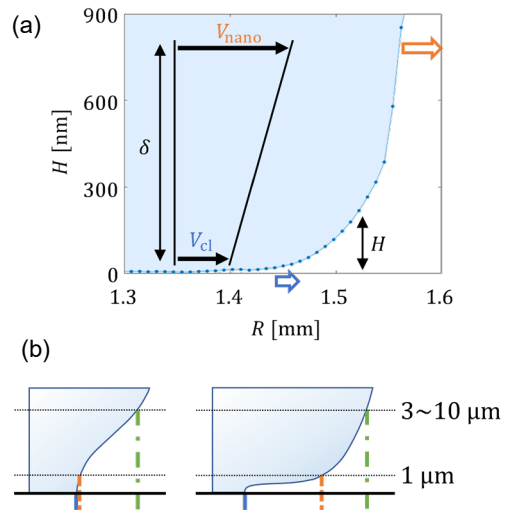


Fig. 4 (a) A typical geometry of nano-air thin film after T_c obtained with TIR method. (b) Schematic diagram of the interface geometry near the contact line (left) before T_c and (right) after T_c . Lines correspond to those in Fig. 3.

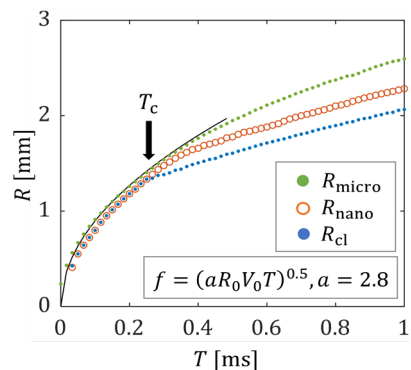


Fig. 5 Time variation of R_{cl} , R_{micro} and R_{nano} . The solid line represents $\sqrt{2.8R_0V_0T}$.

衝突液滴の表面張力 σ_L と遷移時間 T_c の関係を Fig. 7(a) に、衝突液滴の粘度 μ_L と T_c の関係を Fig. 7(b) に示す。ただし、 μ_L と T_c は空気粘度 μ_G と V_0 、 R_0 を用いて無次元化しており、 $\eta = \mu_G/\mu_L$ 、 $T_c^* = T_c \cdot V_0/R_0$ である。プロットの違いは衝突液滴の種類を示しており、中実のシンボルは衝突面がグリセロ

ール液膜であることを、中空のシンボルは衝突面がシリコンオイル液膜であることを示している。Fig. 7(a)から、ほぼ同じ σ_L の範囲で T_c^* は大きく変化しており、 σ_L のみでは整理できないことが分かる。一方 Fig. 7(b)を見ると、 T_c^* は η のべき乗関係にあり、その指数は最小二乗法による近似から約-0.8であることが分かる。また、液膜の濡れ性を変えても、粘度への依存性や T_c^* の大きさはほぼ変わらなかった。

衝突液滴の粘度と、ナノ空気薄膜形成後の接触線速度の関係を Fig. 8 に示す。それぞれ、 μ_G と V_0 を用いて無次元化した。図中のシンボルは Fig. 7 と対応している。最小二乗法による近似から、 V_{const} は μ_L の 0.6 乗則に従うことがわかる。また、 T_c^* と同様に、液滴の表面張力の影響はほぼ見られず、液膜濡れ性の変化による大きな変化は見られない。

3.3 WF 発生の評価：動的接触角

緒言で述べたように、接触線とバルク液体に速度差ができ動的濡れが不完全になる現象は、固体表面上で液膜が高速で平行移動している時に発生する WF と非常によく似ている。平板での WF 発生時、動的接触角がほぼ 180° であることが分かっている。そこで、接触線速度のステップ降下と WF の関連性を調べるため、先行研究[17]と同様に Cox が提唱した動的接触角モデル[18]に 180° を代入して代表速度を求めステップ降下前後の速度と比較する。

Cox が提唱したモデルは以下の式(1)-(3)から構成される。 ε はスリップ長さ S と代表長さの比を表しており Adachi ら [17]を参考に $\varepsilon = S/H = 7.85$ (S/R_0) $Oh_D^{-6/5}Ca_D^{6/5}$ とする。また $We_D = \rho_L R_0 U_0^2 / \sigma_L$ 、 $Oh_D = \mu_L / \sqrt{\rho_L R_0 \sigma_L}$ 、 $Ca_D = \mu_L U / \sigma_L = 1.48 Oh_D We_D^{5/6}$ である。 H と U は、液膜が射出されたときの液膜高さとして速度を表し、スリップ長さ S は先行研究で補正係数として使用した $S = 28 \text{ nm}$ とする。

$$Ca \ln(\varepsilon^{-1}) = g_v(\theta_d) - g_v(\theta_s) \quad (1)$$

$$g_v(\theta) = \int_0^\theta \frac{dx}{f(x, \eta)} \quad (2)$$

$$f(\theta, \eta) = \frac{2 \sin \theta [\eta^2(\theta^2 - \sin^2 \theta) + 2\eta\{\theta(\pi - c) + \sin^2 \theta\} + \{(\pi - \theta)^2 - \sin^2 \theta\}]}{\eta(\theta^2 - \sin^2 \theta)\{(\pi - \theta) + \sin \theta \cos \theta\} + \{(\pi - \theta)^2 \sin^2 \theta\}(\theta - \sin \theta \cos \theta)} \quad (3)$$

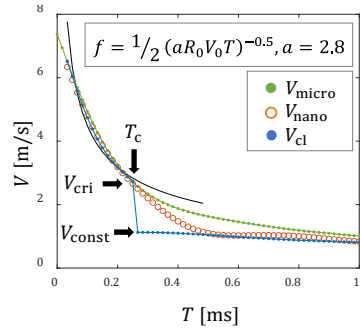


Fig. 6 Velocities of positions R_{cl} , R_{micro} and R_{nano} . The solid line represents the time differentiation of $\sqrt{2.8R_0V_0T}$.

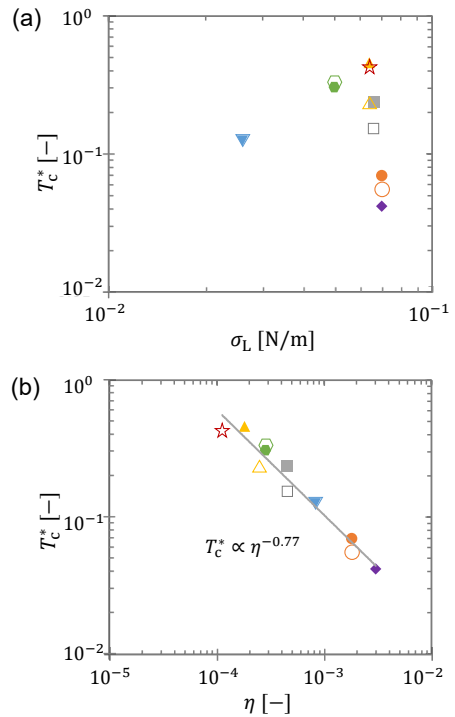


Fig. 7 Effects of (a) surface tension σ_L or (b) viscosity ratio $\eta = \mu_G/\mu_L$ on wetting failure time $T_c^* = T_c \cdot V_0/R_0$ based on physical properties shown on Table 1.

式(2)を変形すると動的接触角が 180° のときの速度式(4)を導出できる。

$$V_{\text{model}} = Ca \frac{\sigma_L}{\mu_L} = \frac{g_v(\theta_d) - g_v(\theta_s)}{\ln(\varepsilon^{-1})} \frac{\sigma_L}{\mu_L} \quad (4)$$

実験値とモデル予測の比較結果を Fig. 9 に示す。実線はモデル値を表しており、グリセロール水溶液は表面張力、密度ともにほぼ変化しないため、GW85 の物性値 ($\sigma_L = 0.064 \text{ N/m}$ 、 $\rho_L = 1212 \text{ kg/m}^3$) を使用した。また、式 (1)~(3) に用いる静止接触角 θ_s の影響を調べるために、グリセロール液膜への衝突を想定した 3° の場合と、シリコーンオイル液膜への衝突で得られる 90° の結果を両方示す。グリセロール液膜とグリセロール水溶液は混和するため正確な静止接触角は定義できないが、便宜的に $\theta_s = 3^\circ$ とした。ステップ降下直前の速度 V_{cri} の実験値を四角のプロットで示している。また、ナノ空気薄膜形成時、動的接触角はほぼ 180° であると考えられることから、ステップ降下直後の速度 V_{const} も同様にモデル式で表すことができると考え、図中に丸のプロットで実験値を示している。

モデル値と実験値ともに、粘度比 η の増加に伴って接触線速度も増加する傾向や、静止接触角の影響が η の影響よりも小さいという傾向は同じであることがわかる。しかし、モデル予測値は η の約 0.8 乗で増加するのに対し、実験値の指数はステップ降下前後ともにべき数が 0.3~0.6 程度であり、モデル値の方が η への依存性が大きいことが分かる。

これは、Cox のモデル式では真空を仮定しており空気の潤滑圧力 P_G の影響が考慮されていないためであると考え。次節で示すとおり、ナノ空気薄膜形成時の P_G は 10^5 Pa であり大気圧と同程度の大きさを持つ。なおこれ以降、 10 の x 乗の大きさを $O(10^x)$ と表す。また、先行研究で周囲の圧力を下げることで液滴衝突時の接触線の不安定性を抑制することができることが示されており [2]、このことから P_G の重要性は明らかである。

3.4 WF 発生後の潤滑圧力の評価

空気の潤滑圧力の重要性を確かめるため、GW85 の液滴衝突を例にオーダー評価を行う。潤滑方程式 $dP/dx = \mu d^2u/dz^2$ より P_G は以下のようにスケーリングできる。

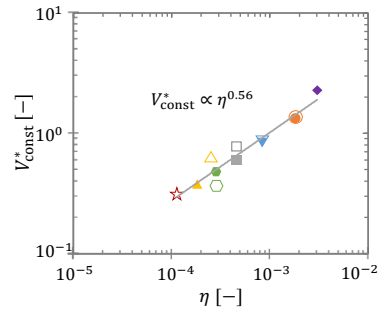


Fig. 8 Dimensionless contact line velocity after the step-wise decrease $V_{\text{const}}^* = V_{\text{const}}/V_0$ with the ratio of gas to liquid viscosities $\eta = \mu_G/\mu_L$ based on physical properties shown on Table 1.

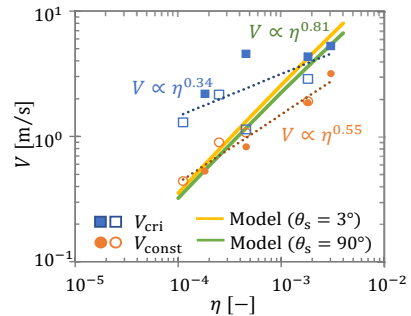


Fig. 9 The contact line velocity with the ratio of gas to liquid viscosities η . The square and circle represent the contact line velocity before T_c (V_{cri}) and after T_c (V_{const}), respectively. Solid lines indicate model.

$$P_G \sim \frac{\mu_G V_{\text{micro}} L}{H^2} \quad (5)$$

ここで、 H と L はそれぞれ空気薄膜の高さと長さを表す。3.1 節で述べたように、ステップ降下直前に形成されているマイクロ空気薄膜は $H \sim O(10^{-6}) \text{ m}$ 、 $L \sim O(10^{-4}) \text{ m}$ である。一方、ステップ降下直後 ($T \sim 0.3 \text{ ms}$) のナノ空気薄膜の形状は、Fig. 4 (a) に示すように L のオーダーは変わらないが、平均高さは $H \sim O(10^{-7}) \text{ m}$ と一桁小さい。

潤滑圧力は H^{-2} に比例するため、ステップ降下前は $P_G \sim O(10^3) \text{ Pa}$ 、ステップ降下後は $P_G \sim O(10^5) \text{ Pa}$ と、 T_c で急激に P_G が大きくなることになる。そのため接触線速度がステップ降下したと考える。

最後に、空気の潤滑圧力と拮抗する圧力について考察する。液滴粘度によって T_c などが大きく変化したことから、液体の粘性せん断応力 P_μ を重要な応力の一つと考え、 P_μ のオーダーを評価する。ステップ降下直後 ($T = 0.3$ ms) の接触線近傍の界面形状 (Fig. 4(a)) から、粘性境界層厚さ $\delta \sim 1 \mu\text{m}$ の幅で $V_{\text{nano}} - V_{\text{cl}}$ の速度差を持つことが分かる。このことから、粘性せん断応力は $P_\mu \sim \mu_L(V_{\text{nano}} - V_{\text{cl}})/H \sim O(10^5)$ Pa と求められる。 P_G は P_μ と同程度であり、両者が拮抗することで接触線速度はステップ降下後に一定となったと考える。

以上の本研究で得られた知見から、衝突液滴の接触線が急減速しその後等速運動に転ずるメカニズムを次のように考察する。衝突後の減速過程において増加していく動的接触角が 180° 程度に達すると、接触線外側の空気の潤滑圧力が急激に増加する。その結果、接触線速度がステップ降下する。ステップ降下後は、空気の潤滑圧力と液体粘性せん断応力が主として釣り合うことで、接触線が一定速度で運動する。

4. 結 言

本研究では液膜への液滴衝突実験を通して、広がり過程で 100 nm オーダーのナノ空気薄膜が形成されたときの接触線速度の時間変化について、液滴物性や濡れ性を変化させて調べた。バックライト法を用いた側面撮影と TIR 法を用いた底面撮影を組み合わせることで、正確な接触線位置と空気層の形状を計測した。

その結果、液滴衝突後、遷移時間 T_c で、ナノ空気薄膜の形成と同時に、接触線速度はステップ状に降下し、その後はほぼ一定速度 V_{const} を示すことを明らかにした。また、 T_c や V_{const} は液滴粘度の影響を大きく受けることを明らかにした。さらに、空気薄膜形状とその速度から、 T_c 後、空気の潤滑圧力は液体粘性せん断応力と同程度の大きさを持ち、潤滑圧力が重要な要素であることを示した。

Nomenclature

H	: thickness of air film	[m]
L	: length of air film	[m]
P_G	: gas lubrication pressure	[Pa]
P_μ	: viscous shear stress of liquid	[Pa]
R	: radius	[m]
T_c	: transition time	[s]

V : velocity [m/s]

Greek letters

δ	: thickness of viscous boundary layer	[m]
μ	: viscosity	[Pa · s]
ρ	: density	[kg/m ³]
σ	: surface tension	[N/m]

Subscripts

cl	: contact line
const	: after rapid decrease of contact-line velocity
G	: gas phase
L	: liquid phase
micro	: position where gas film thickness is about $10 \mu\text{m}$
nano	: position where gas film thickness is about $1 \mu\text{m}$
0	: immediately before touch down

参考文献

- [1] Thoroddsen, S. T., Takehara, K. and Etoh, T. G., Bubble Entrapment through Topological Change, *Phys. Fluids*, Vol. 22(5), 051701(2010).
- [2] Pack, M., Kaneelil, P., Kim, H. and Sun, Y., Contact Line Instability Caused by Air Rim Formation under Nonsplashing Droplets, *Langmuir*, Vol. 34(17), 4962-4969 (2018).
- [3] Driscoll, M. M. and Nagel, S. R., Ultrafast Interference Imaging of Air in Splashing Dynamics, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 107(15), 154502 (2011).
- [4] Palacios, J., Hernández, J., Gómez, P., Zanzi, C. and López, J., On the Impact of Viscous Drops onto Dry Smooth Surfaces, *Exp. Fluids*, Vol. 52(6), 1449-1463 (2012).
- [5] Driscoll, M. M., Stevens, C. S. and Nagel, S. R., Thin Film Formation During Splashing of Viscous Liquids, *Phys. Rev. E*, Vol. 82(3), 036302 (2010).
- [6] Zhang, L., Soori, T., Rokoni, A. and Sun, Y., Postcontact Droplet Spreading and Bubble Entrapment on a Smooth Surface, *Phys. Rev. Fluids*, Vol. 7(10), 104003 (2022).
- [7] Keeler, J. S., Lockerby, D. A., Kumar, S. and Sprittles, J. E., Stability and Bifurcation of Dynamic Contact Lines in Two Dimensions, *J. Fluid Mech.*, Vol. 945, A34 (2022).
- [8] Jacqmin, D., Onset of Wetting Failure in Liquid-liquid Systems, *J. Fluid Mech.*, Vol. 517, 209-228 (2004).
- [9] Blake, T. D., Dobson, R. A. and Ruschak, K. J., Wetting at High Capillary Numbers, *J. Colloid Interface Sci.*, Vol. 279(1), 198-205 (2004).
- [10] Vandre, E., Carvalho, M. S. and Kumar, S., On the Mechanism of Wetting Failure during Fluid Displacement along a Moving Substrate, *Physics*

of Fluids, Vol. 25(10), 102103 (2013).

- [11] Liu, C. Y., Vandre, E., Carvalho, M. S. and Kumar, S., Dynamic Wetting Failure and Hydrodynamic Assist in Curtain Coating, *J. Fluid Mech.*, Vol. 808, 290-315 (2016).
- [12] Liu, C. Y., Vandre, E., Carvalho, M. S. and Kumar, S., Dynamic Wetting Failure in Surfactant Solutions, *J. Fluid Mech.*, Vol. 789, 285-309 (2016).
- [13] Marchand, A., Chan, T. S., Snoeijer, J. H. and Andreotti, B., Air Entrainment by Contact Lines of a Solid Plate Plunged into a Viscous Fluid, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 108(20), 204501 (2012).
- [14] Vandre, E., Carvalho, M. S. and Kumar, S., Delaying the Onset of Dynamic Wetting Failure through Meniscus Confinement, *J. Fluid Mech.*, Vol. 707, 496-520 (2012).

- [15] Shirota, M., van Limbeek, M. A. J., Lohse, D. and Sun, C., Measuring Thin Films Using Quantitative Frustrated Total Internal Reflection (FTIR), *Eur. Phys. J. E*, Vol. 40(5), 1-9 (2017).
- [16] Rioboo, R., Marengo, M. and Tropea, C., Time Evolution of Liquid Drop Impact onto Solid, Dry Surfaces, *Exp. Fluids*, Vol. 33(1), 112-124 (2002).
- [17] Adachi, R., Kobayashi, K., Fujii, H., Sanada, T. and Watanabe, M., Wetting Failure in the Early Stage of Water Drop Impact on a Smooth Solid Surface, *Phys. Fluids*, Vol. 34(6), 062116 (2022).
- [18] Cox, R. G., Inertial and Viscous Effects on Dynamic Contact Angles, *J. Fluid Mech.*, Vol. 357, 249-278 (1998).
- [19] Riboux, G. and Gordillo, J. M., Boundary-layer Effects in Droplet Splashing, *Phys. Rev. E*, Vol. 96(1), 013105 (2017).

付録

A. 液膜射出時間 (the ejection time) と WF 開始開始時間

衝突初期は接触線近傍の流体粒子は液滴から供給されており、薄い液膜が射出される時間(the ejection time) T_e から水平方向成分を持つと考えられている。無次元液膜射出時間 $T_e^* = T_e V_0/R_0$ のモデルは Riboux and Gordillo [19]によって提唱されており $T_e^* \propto We^{-2/3} = Oh^{-4/3} Re^{-4/3}$ ($Re^{1/6} Oh^{2/3} < 0.25$)、あるいは $T_e^* \propto Re^{-1/3}$ ($Re^{1/6} Oh^{2/3} < 0.25$)という関係式が示されている。どちらの範囲でも Re の増加に伴って T_e^* は減少する。

T_e^* と T_c^* を比較するため、 Re と T_c^* の関係を Fig. 10 に示す。 Re の増加に伴って T_c^* はむしろ増加していることから、 T_e^* とは定性的な傾向すら一致しないことが分かる。

B. 接触線位置の測定と空気薄膜形状

ここでは接触線位置と空気薄膜形状の計測方法を説明する。底面撮影の画像と空気薄膜形状の時間変化を Fig. 11 に示す。 $r = 0$ は接触線位置を示している。各試行ごとに最適な閾値によって濡れ領域とそれ以外の領域を定めているが、0.3 ms 以降のように空気薄膜の形成により閾値による判断が難しい場合がある。その場合は、周囲より輝度の高い点が周方向に連なり円を描く位置を接触線位置とみなした。

空気薄膜高さは、ノイズの影響を減らすため周方向に平均して求めた。画像の輝度値と空気薄膜高さの関係はレーザー波長、入射角、プリズムなどの屈折率から理論的に求めることができる

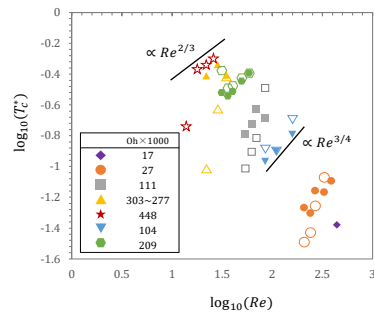


Fig. 10 Effects of Re on wetting failure time $T_c^* = T_c \cdot V_0/R_0$. See Table 1 for physical properties of the liquids used.

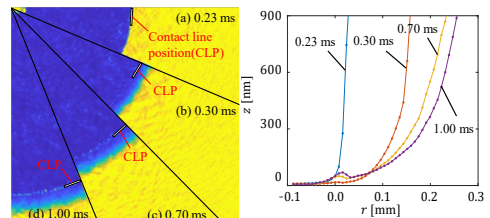


Fig. 11 Time variation of (left) TIR imaging (right) circumferentially averaged geometry of nano-air thin film. $T =$ (a) 0.23 ms (b) 0.30 ms (c) 0.70 ms (d) 1.00 ms.

[15]. 全反射面への入射角は 45° 、レーザー波長は 532 nm であり、屈折率は、プリズム : 1.52、スライドガラス : 1.52、グリセロール : 1.47、シリコンオイル : 1.40、GW85 : 1.44 を用いた。