

平成 22 年 3 月 19 日現在

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2007～2008

課題番号：19760133

研究課題名（和文）微細構造表面における気液界面の挙動

研究課題名（英文）Liquid-gas interface on microstructured surfaces

研究代表者

長谷川 雅人（HASEGAWA MASATO）

金沢大学・機械工学系・助教

研究者番号：40324107

研究成果の概要：

流動抵抗低減効果を示すような円柱状微細突起を有するはっ水性表面の、気体保持能力と濡れ領域の拡大に伴う気液界面の移動速度との関連付けを目的として、5種類の突起パターンを有する試験面上の濡れ現象を観察・評価した。基板に水平および垂直な方向の気液界面移動を想定した実験を実施した結果、各パターン間の濡れにくさの序列が明らかになった。それらの結果は、Washburnの式による濡れ進行速度の解析や、表面エネルギーの変化量と内圧による仕事とを関連付けた解析によっても裏付けられた。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,300,000	0	1,300,000
2008年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,000,000	210,000	2,210,000

研究分野：機械工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：濡れ性，気液界面

## 1. 研究開始当初の背景

化学的な疎水性と微細な凹凸という特徴を持つはっ水性表面においては通常の滑らかな表面と異なる水の挙動が知られている。例えば、このようなはっ水性表面上で流動抵抗が低減されるという現象が確認されており、その原因としては微細凹凸の特に凹部（溝，穴など）に保持されている空気が壁面摩擦を低減させているとの説が支持されている。

研究代表者は、はっ水性微細構造表面を利

用した流動抵抗低減のメカニズム解明と低減率の向上を目標に流動抵抗測定，表面観察および数値流体解析を行ってきた。数十 $\mu\text{m}$ オーダの角柱状突起を配列した表面上での濡れ性の観察では、溝幅（突起間隔）が大きいほど溝部に水が浸入しやすくなること示されている。また、例えば、このような表面を水中に静置した場合、当初気体を保持しながら、表面のある箇所に水が浸入しやがてその浸水領域が広がっていく様子も観察している。突起密度が高ければ、微細構造表面の向きに平行な（突起の側面方向）気液

界面の移動を抑制するには有利であると考えられるが、固液接触の割合は増加し抵抗低減には逆に不利となる。

微細構造スケールをあまり小さくせずに気体層を保持し、より大きな抵抗低減を実現することが理想的であり、これらの両立を考える中で複数の突起高さを持つ表面を考案した。その狙いは、高い突起のみで水と接することにより固液接触面積を減らし抵抗低減率の向上を目指し、かつ、気体層の消失は主に微細構造の溝部への水の浸入により起こると考えられるが短い突起を配置し浸水領域の拡大を防ぐことである。実験の結果、複合突起面では、突起数密度の等しい単一長さ突起表面に比して、流動抵抗低減率は向上した。また、短突起がないものとみなしたときの突起数密度に等しい単一長さ突起表面では不可能であった気体層保持が可能であった。さらに、ある種の複合突起面では突起数密度の等しい単一長さ突起面に比して流動抵抗低減率も気体層保持状態も良好な結果が得られ上記の両立の図られる場合があることを示した。

しかし、これまでの研究で観測された濡れ現象はやや複雑であり、各試験面間の気体保持能力の差を定量的に評価するには限界があったため、新たな実験手法を提案する必要がある。

## 2. 研究の目的

本研究では、長い突起でのみ液体と接触するよう長短2種類の突起を配列させ、単一長さの突起を同じ密度で配列させた場合よりも固液接触割合を低下させることを狙った表面を作成し、表面および気液界面を観察する。さらに、従来提案されている毛管力や濡れの理論を援用して、気液界面形状解析を行うことでその有効性を検討する。

具体的には、濡れ(=気体層消失)に方向性を持たせるような装置を考案し、そのような濡れ進行をビデオ観察する。これにより単一長さ突起面と複合突起面の濡れ挙動の差や、異なるパターンの複合突起面の中の差を評価する。

## 3. 研究の方法

### (1) 供試面

微細凹凸試験面は、72mm×50mm×2mmのPDMSチップ上に互いに1.5mmずつ離れて計5パターン作成されている。各領域は円柱状を残す形で約100μmの深さで掘り込まれている。図1に5種類の凹凸パターンの概略を示す。type1,2は長短複合突起を有しており、type1は高さが50μmと100μmの突起が3対1、一方type2では1対3の割合で存在している。

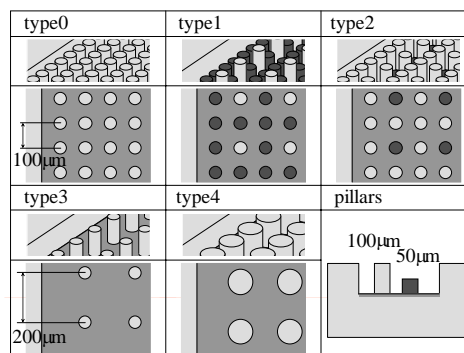


図1 供試面形状

### (2) 水平方向の濡れ性試験

作動流体の流出入口を開けたスライドガラスを供試面に密着させることにより形成される突起間隙間は、突起が障害物として存在する狭い隙間流れ(間隔  $L=100\mu\text{m}$ )、あるいは多孔質体内流れの流路とみなすことが出来る。図2に実験装置の概略を示す。表面が親水性であれば毛細管現象により自発的に吸水(界面移動)を生じるが、ここでは疎水性表面(ガラス面は親水性)を対象とするためヘッドタンクにより一定の圧力を加える。ヘッドを100mm, 200mm, 300mmにそれぞれ設定した。流路内に水を流入させると濡れた部分と乾いた部分とが明暗の差として観察される。これをビデオカメラで撮影し、流入口から気液界面(濡れ領域の先端)までの距離の時間変化を求める。実際には流路幅の中央部分幅5mmについて濡れ面積を求めてから、気液界面の平均値を計算している。

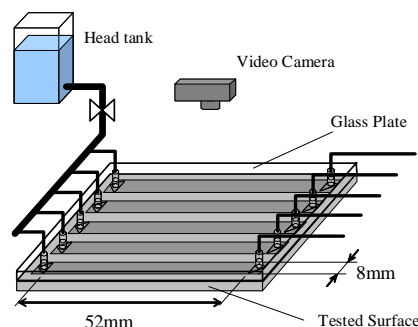


図2 水平方向濡れ性試験装置

### (3) 垂直方向の濡れ性試験

実験装置の概略図を図3に示す。圧力測定口を開けたPDMS製平滑面上に、測定口から押し出す事で液滴を形成させる。ステージを5μm/sで上昇させ、液滴を各Typeの微細凹凸面上で圧縮し、液滴の内圧の時間的变化を差圧トランスデューサーを用いて測定する。その内圧とは、微細構造表面が液滴から受ける圧力と等しい。また、同時に液滴が圧

縮されていく様子を撮影し、各瞬間における微細構造表面と液滴が作る接触角を測定して、Wenzel 型と Cassie 型の理論値と比較する。それより、微細凹凸溝部の空気保持の有無を判定し、その時の圧力を濡れ性の指標とした。

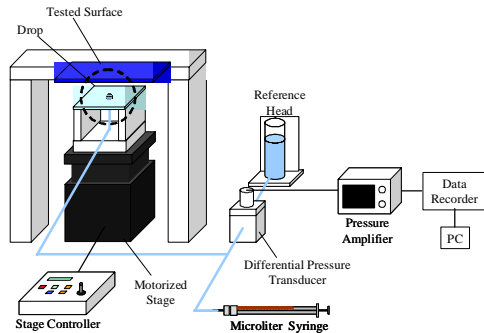


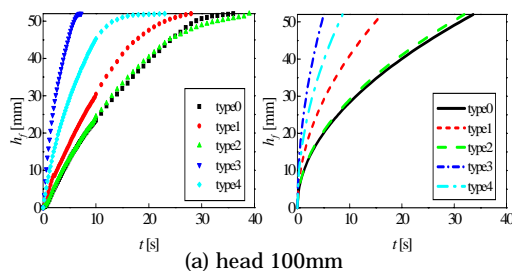
図3 垂直方向濡れ性試験装置

#### 4. 研究成果

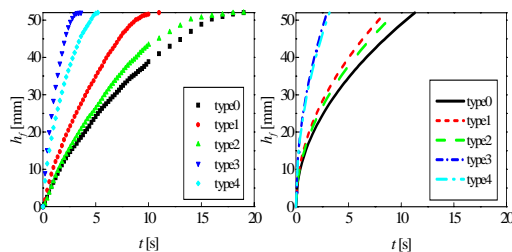
##### (1) 水平方向の濡れ性試験

各ヘッドをかけた時の実験結果と、表1の各値を用いて計算した気液界面位置  $h_f$  の理論値を図4に示す。理論値は Washburn 型の式

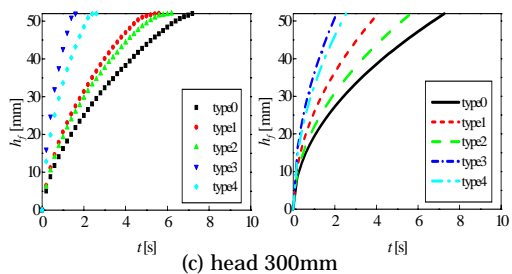
$$h_f = \sqrt{\frac{2K(p_{in} + p_f)}{\varepsilon\mu}} t \quad (1)$$



(a) head 100mm



(b) head 200mm



(c) head 300mm

図4 濡れ進行距離(左: 実験, 右: 解析)

を表す。ここで  $K, p_{in}, p_f, \varepsilon, \mu$  はそれぞれ固有透過係数, 流路入り口圧力, 毛管力, 空隙率, 粘性係数を表す。 $p_f$  はヘッドから, また  $p_f$  は次式で求められる。

$$p_f = \gamma(\alpha_{PDMS} \cos\theta_{PDMS} + \alpha_{glass} \cos\theta_{glass})/L \quad (2)$$

$\gamma$  は水の表面張力(=72mN/m)を,  $\alpha$  は実際の表面積と見かけの面積との比を示す。また,  $\theta$  はそれぞれの材質の平滑面における接触角で, 測定値  $\theta_{PDMS}=110^\circ$  および  $\theta_{glass}=75^\circ$  を用いた。

時間の経過に従い移動速度が減少していることが分かる。実験値と理論値を比較すると  $h_f$  の大小関係や経時変化は類似しており, ほぼ一致していると言える。各 type 間を比較するとヘッドに関係なく  $h_f$  の進行の遅い順に type0, type2, type1, type4, type3 となった。これは図5に示すように各 type 間における  $\alpha_{PDMS}$  の大小関係と一致している。また図6に示すように式(2)の関係から,  $\alpha_{PDMS}$  が増加すると  $|p_f|$  が増加する事が分かる。ゆえに, 実際の表面積と見かけの表面積の比が大きい type ほど濡れの進行方向とは逆向きに気液界面に働く力が大きくなり, 濡れにくくなるということが言える。

表1 各パラメータ

	$\alpha_{PDMS}$	$\alpha_{glass}$	$\varepsilon$	$p_f$ [Pa]
type0	2.37	0.80	0.804	-686
type1	1.79	0.95	0.877	-443
type2	2.18	0.85	0.828	-605
type3	1.34	0.95	0.951	-284
type4	1.59	0.80	0.804	-403

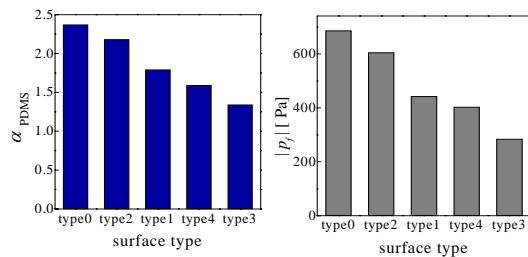


図5(左) 実際の表面積/見かけの表面積

図6(右) 毛管力

##### (2) 垂直方向の濡れ性試験

図7(a)~(e)に各 type において各5回ずつ実験を行った結果を示す。図中の破線は各 type における液滴形状が Cassie 型となる時の見かけの接触角の理論値を, 直線は Wenzel 型になる時の見かけの接触角の理論値を示している。初期の接触角は,  $160^\circ$  前後となっており, 内圧が上昇していくにつれ Cassie 型の接触角の理論値に近づいている。またこの時の画像から, 突起間からのバック

ライト光の漏れが確認できるので、空気層が保持されている事がわかる。type1 では 173 ~ 286Pa, type2 では 254 ~ 296Pa, type3 では 90 ~ 117Pa, type4 では 216 ~ 247Pa で接触角と内圧の急な低下が見られた。それより高い内圧における接触角は Wenzel の理論値に近く、この変化が高いエネルギー状態にある Cassie 型から低いエネルギー状態にある Wenzel 型への移行であると考えられる(図中で移行が起こる前を塗りつぶしのプロット, 移行が起こった後を白抜きのプロットで示す)。図 8 に移行時の様子を示す。移行発生前(図 8(a))では突起間から光が漏れているのが確認できるが、移行発生後(図 8(b))では光の漏れを確認できない。このことから、この変化により突起間に保持されていた空気層が消失してしまった事がわかる。移行時に見られる圧力の急激な減少を移行発生の判定基準とした。

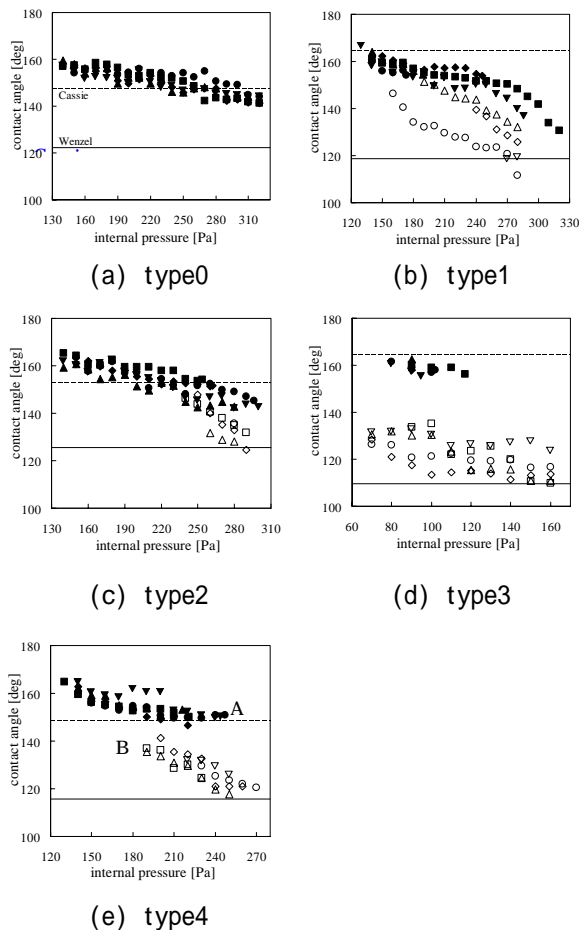


図 7 液滴内圧と接触角

図 9 に各 type における移行が発生した時の内圧測定値と、濡れ進行開始時の圧力理論値

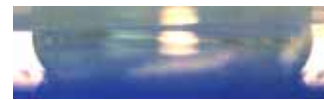
$$P^* = \frac{2\phi}{1-\phi} \left| \cos(\theta_a) \right| \frac{\gamma}{r} \quad (3)$$

を示す。ここで  $\phi$  は見かけの表面積に対する濡れた突起端面面積の割合,  $r$  は突起半径,  $\theta_a$  は突起表面の前進接触角を示す。単一長さ突起を持つ type3, 4 は理論値と移行発生時の内圧はほぼ一致したが、移行発生時の内圧が  $P^*$  の理論値に比べてやや高い値をとった。これは、界面の移動圧に達し、界面が自発的に移動を始めてから突起を伝い、凹面に達し移行が起きるまで時間差がありその間に内圧が上昇したためと考えられる。複合突起を持つ type1, type2 では短突起位置の  $P^*$  の理論値より低い値で移行が起きた。式(3)から突起半径が小さく固体面積割合が大きいほど、界面自発的に移動を始めるために必要な圧力が大きくなり凹面に垂直な方向に濡れ難いということが分かる。

遷移時の各値で評価される各パターン間の濡れにくさの序列は水平方向濡れ実験結果による濡れにくさのそれと一致した。また、表面エネルギーの変化量と内圧による仕事を関連付けた解析によっても同じ傾向・序列が示されたことから、表面の設計指標として水平・垂直いずれかの濡れを評価すればよいものと考えられる。



(a) at A in Fig.7(e) : 216Pa; 153.1°



(b) at B in Fig.7(e) : 190Pa; 135.4°

図 8 気体層の消失(type4)

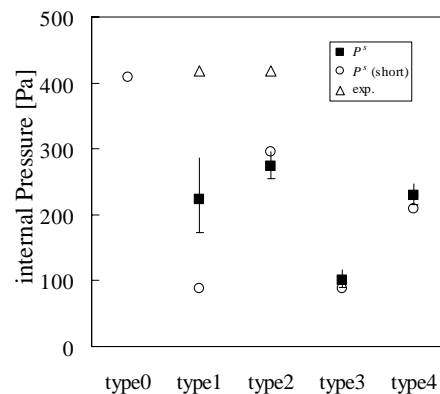


図 9 界面の移動開始圧

## 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)

〔学会発表〕(計 2件)

長谷川雅人,京谷佳明,齋田裕規(標題)  
微細構造はっ水面内における濡れに関する  
研究,第46回日本伝熱シンポジウム,  
2009.6.4,国立京都国際会館(京都府)

長谷川雅人,京谷佳明,新井雅晴,上野  
久儀(標題)微細構造はっ水面における気体  
層消失の評価,第45回日本伝熱シンポジウム,  
2008.5.22,つくば国際会議場(茨城県)

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

長谷川 雅人 (HASEGAWA MASATO)  
金沢大学・機械工学系・助教  
研究者番号:40324107

### (2)研究分担者

### (3)連携研究者