

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 3 月 31 日現在

機関番号：82110

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2011

課題番号：22656048

研究課題名（和文） 熱力学・幾何学に基づく液滴濡れ挙動の整理と接触角予測式の構築

研究課題名（英文） Development of predictive formula for wetting phenomena from thermodynamic and geometrical view point

研究代表者

米本 幸弘 (YONEMOTO YUKIHIRO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・敦賀本部レーザー共同研究所・研究員

研究者番号：70516418

研究成果の概要（和文）：固体面上の液滴の観察実験を基に、修正ヤングの式を用いた固体の表面エネルギーの評価に関する実験及び理論的な検討を行った結果、液滴の接触角を用いた固体の表面エネルギーの評価方法では、液滴のサイズに応じて新たなヤングの式と従来の式を使い分ける必要があることが示唆された。

研究成果の概要（英文）：A droplet on a solid surface is observed experimentally. On the basis of the experimental data, solid surface energy is evaluated using the modified Young equation. From the result, the droplet size is important for the evaluation of the solid surface energy on the basis of the modified Young equation.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	600,000	0	600,000
2011 年度	200,000	60,000	260,000
年度			
年度			
年度			
総計	800,000	60,000	860,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・流体力学

キーワード：表面・界面物性、濡れ性、接触角、表面張力

1. 研究開始当初の背景

固体面上の液滴の濡れ性は、三相界面（気液・固気・固液）が交わる接触点の力学的平衡条件（ヤングの式）により定式化され表面張力と接触角により成り立つが、実際の接触角を正確に予測できない。申請者の理論的研究により導出された新たなヤングの式は、液滴半径をさらに変数として加味した式である。その式は、液滴半径と液滴接触角の関数に関する既往の実験結果を定量的に予測できる。しかし、液滴表面張力と接触角の関数に関しては、液滴半径を考慮した実験報告はなく、その詳細は不明である。この点を実験

的に検討し接触角予測式を構築することが、インクジェットプリンター技術を筆頭に、濡れ性を取り扱う工業や化学工学系への応用技術にも重要である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、固体面上液滴の濡れ性を定量的に予測する接触角予測式を構築するために実験的・理論的観点から検討を行うことである。

3. 研究の方法

本研究の実験は基本的に、液滴半径及び接

接触角に関する情報を得るために、固体試料基板表面に液滴を滴下し、その挙動を接触角測定装置により測定することである。接触角測定装置は主に固体試料固定用の治具、LED ランプ及び CCD カメラ (YCU-130F:YASHIMA OPTICAL Co., LTD) により構成される。固定用の治具やカメラ等はクリーンブースの中に設置される。液滴の体積は[1 μ l]~320[μ l]であり、測定は各 5 回行った、液体には純水、固体試料として、低表面エネルギーにシリコンゴムを用いた。高表面エネルギーとして、金属の SUS 板を用いた。図 1 はその接触角測定装置である

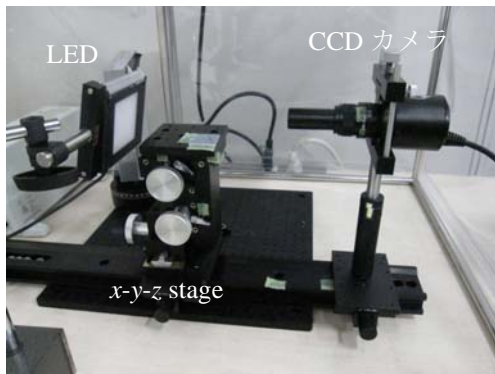


図 1 接触角測定装置

具体的な研究方法としては主に以下となる。

(1)固体基板に付着させた液体のイメージ画像から液滴半径と接触角のデータを取得する。以下の修正ヤングの式を実験データにフィッティングさせる。

$$R = -\frac{m_n}{m_t} \frac{2C_2\sigma_{lg} \sin^2 \theta}{\cos \theta - \cos \theta_\infty} \quad (1)$$

上式において C_2 [m^2/N]は固体基板の物性に関連した変数、 m_t, m_n [-]は表面張力の作用する方向を表す変数である。具体的には、式(1)に現れる、実験と理論とのギャップを補正する任意パラメータ C_2 及び θ_∞ を調整することで、実験値のフィッティングを行う。

(2)固体面上の液滴濡れ性を評価するためには、固体の表面エネルギーを評価する必要があるため、修正ヤングの式を基にした理論式の構築を行い、測定した実験データを基に固体の表面エネルギーの評価を実施する。

4. 研究成果

(1) 固体面上の液滴挙動

液滴観察実験に際し、固体面上の液滴の再現性確認のため、同じ体積の液滴を複数回固体面上に付着させ、その接触角の測定をした。

図 2 はシリコンゴム上に純水を付着させ実施した際の取得画像と接触角をあらわしている。液滴体積は 320[μ l]で測定は 5 回実施した。図より、本装置を用いた接触角測定では測定回数における接触角のばらつきはほぼ見られないことがわかる。

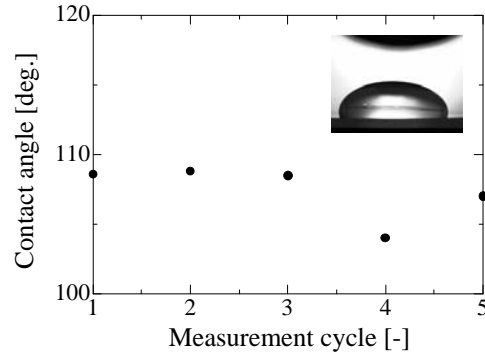


図 2 液滴 (320 μ l) の測定回数と接触角

① シリコンゴム上の液滴

図 3 はシリコンゴム上に 1[μ l]~320[μ l]の純水の液滴を付着させた際の液滴取得画像である。図 4 は、液滴接触角と半径の関係を表しており、図中の(a)-(f)の記号はそれぞれ図 3 の画像に対応する。

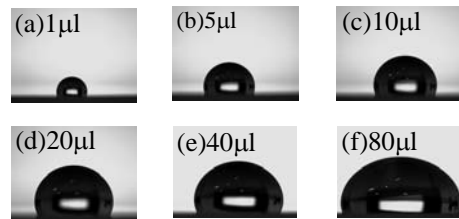


図 3. 液滴画像

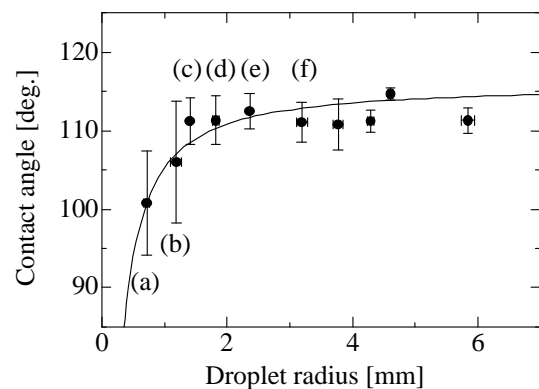


図 4. 液滴半径と接触角の関係

図 3 中の実線は式(1)の解析結果である。式中の任意変数は、 $C_2=1.3 \times 10^{-3}$ [m^2/N]、 $\theta_\infty=116$ [deg.]、 $m_t=-1$ 、 $m_n=+1$ [-]である。図 3 の結果から、固体面上の液滴接触角は液滴半径

が大きくなるにつれ増加していることがわかる。純水のキャピラリー長が約 2.7[mm]であることを考慮すると、この結果は、液滴のサイズ効果がキャピラリー長よりも小さい領域で顕著になることを示唆している。

②SUS 板上の液滴

図 5 は SUS 板上に 1[μ l]~120[μ l]の純水液滴を付着させた際の液滴取得画像である。図 6 は、液滴接触角と半径の関係を表しており、図中の (a)-(d) の記号はそれぞれ図 5 の画像に対応する。

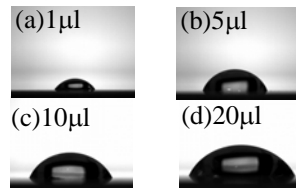


図 5. 液滴画像

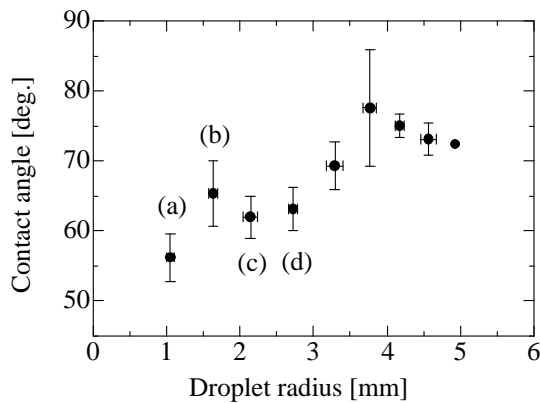


図 6. 液滴半径と接触角の関係

図 6 の結果から、固体面上の液滴接触角は液滴半径が大きくなるにつれ増加する傾向を示している。しかし、シリコンゴムにおける傾向とは異なり、角度のばらつきが大きいことがわかる。これは、表面エネルギーの大きな金属表面によって液滴が濡れやすいこと、さらに金属表面の粗さの影響から、液滴接触面が円形を保てなくなることが関係していると推察される。SUS 板上の液滴濡れ性に関しては、式(1)に基づくフィッティングが困難であった。

(2) 固体の表面エネルギーの評価

固体面上の液滴濡れ性を検討するには、固体の表面エネルギーを評価する必要がある。通常固体の表面エネルギーは液滴の接触角を用いて求められる。その際、従来のヤングの式に基づいた固体の表面エネルギーの評価式を用いる。しかしながら、図 4 の結果が示すように、液滴の接触角は液滴半径に依存して変化していることから、修正ヤングの式に基づいた固体の表面エネルギーの評価方

法を検討する必要があるための理論検討を実施した。

①修正ヤングの式に基づく固体表面エネルギーの評価

固体面上に付着した液滴の接触線における熱力学的な平衡条件は以下のヤングの式により表現される。

$$\sigma_{sg} = \sigma_{sl} + \sigma_{lg} \cos \theta \quad (2)$$

式中の σ_{sg} 、 σ_{sl} 、 σ_{lg} はそれぞれ固気、固液及び気液界面における表面エネルギーである。 θ は接触角である。固体の表面エネルギーに関連した式は、式(2)、固体面上の液滴を引き剥がすのに必要なエネルギー及び固体と液体の凝集エネルギーを考慮することで導かれ、以下のように表現される。

$$\sigma_{sg} = \sigma_{lg} (1 + \cos \theta)^2 / 4 \quad (3)$$

一方、従来のヤングの式(2)を用いる代わりに式(1)の修正ヤングの式を用いると以下の式を得る。

$$\sigma_{sg} = \sigma_{lg} (1 + m_t \cos \theta + 2m_n C_2 \sigma_{lg} \sin^2 \theta / R)^2 / 4 \quad (4)$$

式(4)中、液滴半径に関して $R \rightarrow \infty$ の極限をとると以下の式を得る。

$$\sigma_{sg} = \sigma_{lg} (1 + m_t \cos \theta_\infty)^2 / 4 \quad (5)$$

式(4)及び(5)が、修正ヤングの式を用いて導かれる固体の表面エネルギーを評価する式となる。

式(4)及び(5)に基づく固体の表面エネルギーの検討を、図 4 で示したシリコンゴム上の純水の実験結果に着目し実施した。具体的には、実験結果と式(1)のフィッティングにより得られた任意係数を式(4)及び(5)に用いた。式(4)及び(5)から計算される固体の表面エネルギーはどちらも同じ値を示すが、液滴のサイズ効果が現れるサイズ領域を考慮して、両式を使い分ける必要があることがわかった。つまり、キャピラリー長より液滴サイズが小さい領域における接触角を式(5)に用いると、式(5)に θ_∞ 。(キャピラリー長より大きいサイズ領域の角度)を用いた場合と異なる固体の表面エネルギーが計算されることになる。式(5)から、接触角が数パーセント変化するだけで、固体の表面エネルギーは数十パーセント変化する可能性があることが示され、固体の表面エネルギーを評価する際は、接触角だけでなく液滴のサイズ効果も考慮した検討が必要である。

現在のところ、液滴のサイズ効果を考慮し

た固体の表面エネルギーに関する評価は見られないことから、本理論検討は非常に重要な成果であると考えられる。

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)

① Yukihiro Yonemoto, Akihiko Nishimura, Control of physical properties on solid surface via laser processing, Laser-Driven Relativistic Plasmas Applied to Science, Industry and Medicine, refereed, in press.

[学会発表] (計2件)

① 米本幸弘、功刀資彰、山田知典、山下晋、西村昭彦、大道博行、村松壽晴、レーザー溶接時・熔融池を見据えた固体表面上液滴の濡れ性の考察、日本原子力学会、2011年3月28～30日、福井大学

② 米本幸弘、西村昭彦、レーザー加工による固液界面の物理特性制御に関する研究、レーザー加工学会、2011年5月11日、関西大学

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

特になし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

米本 幸弘 (YONEMOTO YUKIHIRO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構

敦賀本部レーザー共同研究所

研究者番号：70516418

(2) 研究分担者

特になし

(3) 連携研究者

特になし