

審査の結果の要旨

論文提出者 山田 辰也

本論文は「微小液滴の高速観察によるマイクロスケールの物性測定」と題し、高ずり速度かつメゾスコピックな環境にある液体の粘性、表面張力、濡れ性などの物性を、微小なノズルから射出された高速に運動する微小な液滴の観察により測定することを目的として行われたものである。

近年、インクジェット印刷や内燃機関のインジェクション、スピコートによる液体膜形成など、微小な液体の高速な流動を伴う工業プロセスの利用が盛んになっている。これらの工業プロセスでは、液体の典型的な大きさは μm 以下、ずり速度は 10^6 s^{-1} 程度に達する。一方で、表面張力計やレオメーターなど従来の液体物性計測装置は、 mm オーダーでのマクロな液体の性質を計測するものであり、これらの装置によって測定された物性値は、高速に流動する微小な液体の物性とは異なっていることが予想されている。また先行研究では、複雑流体の分子の相関距離が系の大きさに近づくことによるメゾスコピックな効果が知られている。このようなメゾスコピックな効果は、従来の測定装置では反映されないが、微小な流体を扱う工学では重要な現象となる。

本研究では、独自に開発したインクジェット装置によって射出された半径数 μm ～数 $10\mu\text{m}$ 程度の微小液滴の振動、不溶性液滴の平衡形状、固体基板に対する濡れ広がりなどの挙動を観察し、高速に運動する微小な液体の物性を詳細に調べた。典型的な大きさが $10\mu\text{m}$ 程度の微小な液体では、 10^6 s^{-1} を超える大ずり速度においても、**Reynolds**数は100以下となるため、運動は層流領域にあり安定している。この性質により、ストロボ法による反復顕微撮影により液体の運動を $1\mu\text{s}$ 以上の極めて高い時間分解能で観察することが可能となった。これによって液体の運動や平衡形状を解析し、従来は測定が困難であった微小な液体の大ずり変形下での物性を直接的に計測する方法を開発した。

本論文は全6章から構成されている。

第1章の「序論」では、本研究の背景と目的、および本論文の構成について述べている。

第2章の「実験方法」では、本研究で共通して用いた実験手法、特に独自開発したインクジェット装置および射出された液滴のストロボ法による高速観察法、液滴の落下観察による精密な半径測定法について述べている。

第3章は「微小液滴の振動観察による表面張力・粘度測定」と題し、液滴の正面衝突によって引き起こされる高周波数振動を観察し、液滴の表面張力・粘度等の物性を測定した実験について述べられている。減衰時間が振動周期に対して無視できる程度の、比較的low粘度の液滴振動を観察することにより、表面張力と粘度を測定した。また高粘度の液滴では粘性係数を測定し、大ずり変形下における物性と、静的な測定による物性の違いを比較した。その結果、水やシリコンオイル標準粘度液など、多くの液体で静的な物性値と動

的な物性値は一致することが判明した。しかしエチレングリコールなどの水素結合によって分子間にネットワークを形成する会合性液体では、動的な粘度が静的な粘度より小さくなっていることが明らかになった。これは液滴の振動により引き起こされるずり流れにより、粘性緩和が起きていることを示唆する。従来、低分子液体の粘性緩和は GHz 以上の領域で起きると考えられていたが、本研究により、会合性液体の MHz 以下の領域において、水素結合による分子間のネットワークが関係する遅い粘性緩和が存在することが示唆された。

第 4 章は「不完全濡れ液滴の平衡形状観察による表面張力・界面張力測定」と題し、水と油のような互いに溶け合わない 2 種類の液滴が接触した時に生じる平衡形状の観察により、液体の表面張力および界面張力を測定した実験について述べられている。部分濡れの条件を満たす互いに溶け合わない二種類の液体の液滴が接触した時に生じる結合液滴の平衡形状の理論的考察により、二種の液体の表面張力、界面張力および液滴の体積比が与えられた時の表面・界面の曲率が理論的に求められた。インクジェットから射出された二種類の液滴を衝突させることにより生じる結合液滴の平衡形状を観察し、理論的考察の結果と実験結果を比較し、ほぼ一致することが示された。また、平衡形状の測定から逆に表面張力・界面張力を高速測定することに成功した。この方法は、微小液滴の表面張力および界面張力を 100 μ s 程度の非常に高速な領域において非接触に測定した初めての例となっている。

第 5 章は「固体基板上的微小液滴の濡れ挙動観察」と題し、ガラス製基板に微小液滴を衝突させ、濡れ広がる液滴の挙動を観察した実験について述べられている。完全濡れの条件を満たす液滴を固体基板の接触させた時、先行薄膜を伴った液滴が表面張力と粘性散逸を釣り合わせながら広がるモデルから、Tanner 則として知られる液滴の見かけの幅・接触角に対するべき乗則が得られる。体積数 μ L 程度の液滴を用いて行われた先行研究では、アルコール類に対して Tanner 則は成り立たないことが知られていた。本研究では、体積数 pL 程度の水、アルコール、シリコンオイルなどの液滴の濡れ広がりを測定し、いずれも Tanner 則に従うことが明らかにされた。

第 6 章は「結論」と題し、本論文の内容を簡潔にまとめている。

以上のように、本研究ではインクジェットから射出された微小液滴の観察により、様々な液体の物性を測定する方法を確立した。また、従来のマクロな測定法では測定できなかった領域の物性測定を行うための指針を示している。本研究の成果は、今後ますます進歩する高速な流動を伴う微小な流体の工学における物性測定法のスタンダードとして不可欠であると同時に、複雑流体の理論的研究にも大きな影響を及ぼすものであることから複雑流体科学全般へのインパクトが大きく、物理工学への貢献も大きい。よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。