

レーザー干渉縞による液膜の接触角と厚さの測定（追補）*

山 崎 吉 一**
 香 川 昌 純**
 仮 屋 崎 侃***
 逢 坂 昭 治****

Measuring Contact Angle and Liquid Film Thickness by Laser Interference Fringe Method; Supplementary Data

Yoshikazu YAMASAKI**, Masazumi KAGAWA**, Akira KARIYASAKI*** and Akiharu OUSAKA****

Summary

The contact angle of liquid on a solid surface is an important parameter for phenomena such as evaporation, condensation, and multi-phase flows. If the contact angle is large, lateral observation of a liquid drop is workable. When the liquid has an affinity with a solid surface, however, the drop is extended to a thin film and can scarcely be observed from a side vantage point. We developed a laser interference fringe technique for determining the contact angle, as well as the thickness, of a wedge-shaped thin liquid film. In the present study, the effects of fundamental factors (the aperture of the objective lens, the deviation angle of the incident light, and the refraction index of the liquid) on the fringe pattern were evaluated. The experimental results showed these factors were negligible. Time-dependent changes in the fringe pattern and the distribution of liquid thickness were also determined for a system where water and hexane coexisted and interacted.

Key Words : Contact angle, Wedge-shaped liquid film, Refraction, Reflection, Fringe pattern, Coherent light

緒 言

固体表面上で液体が示す接触角は、液と固体間の濡れ性によって決まる。濡れ難い場合、液は割球状となるから、接触角は横方向からの写真撮影で測定できる。しかし、液が固体に濡れる場合、液は薄膜となり、横方向からの写真撮影で接触角を評価することは難しい。また、蒸発によって液が運動している場合、2液が同時に接触する場合も、横方向からの写真撮影は有効でない。著者らは、固体表面にほぼ垂直にレーザー光を照射し、生成す

る干渉縞の幅を測定することによって、静止あるいは運動する液膜の厚さの分布を測定する手法を開発し、測定結果を発表した (Kariyasaki *et al.*, 2009; Yamasaki *et al.*, 2009)。本論文では、入射レーザー光の開口数 (numerical aperture, NA)、固体表面に対する入射方向、液の屈折率、液膜の運動、2液の共存が、干渉縞の生成状態に及ぼす影響に関して実験結果を得たので報告する。

1. 接触角および測定方法

Fig.1 は、接触角 α の液膜上の点 A に入射する光線の屈折と反射を示す。光線 E_1 は、液膜の底面に下ろした垂線 V に対して角度 i (液膜面の垂線に対して角度 $\alpha + i$) で入射し、屈折して液膜に入り、液膜底面の点 B で反射し、点 C で再び屈折して液膜から出る。また、光線

* 平成 21 年 5 月 29 日受付

** 化学システム工学科

*** 福岡大学名誉教授

**** 徳島大学工学部 機械工学科

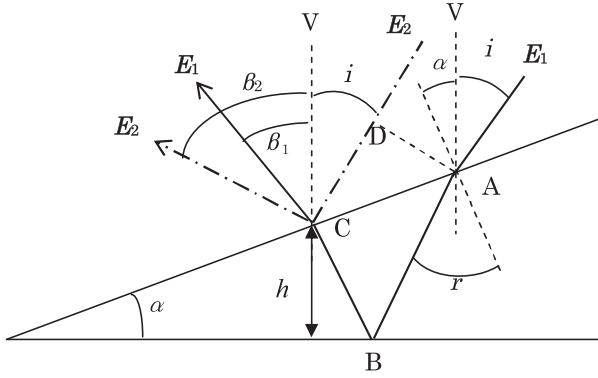


Fig.1 Refraction and reflection of coherent lights irradiated to a wedge-shaped liquid film.

E_1 に平行で同じ位相の光線 E_2 は点 C で入射する. 屈折率 n_r は次式で定義される.

$$n_r = \frac{\sin(\alpha + i)}{\sin r} \quad (1)$$

これから, 角度 r は次式となる.

$$r = \sin^{-1} \left(\frac{\sin(\alpha + i)}{n_r} \right) \quad (2)$$

また, 液膜から出る光線 E_1 について, 屈折率 n_r は次式となる.

$$n_r = \frac{\sin(\beta_1 - \alpha)}{\sin(r - 2\alpha)} \quad (3)$$

これから, 角度 β_1 は次式となる.

$$\begin{aligned} \beta_1 &= \sin^{-1} (n_r \sin(r - 2\alpha)) + \alpha \\ &= \sin^{-1} \left(n_r \sin \left(\sin^{-1} \left(\frac{\sin(\alpha + i)}{n_r} \right) - 2\alpha \right) \right) + \alpha \end{aligned} \quad (4)$$

液膜底面に下ろした垂線 V に対し, 光線 E_2 の反射光がなす角度 β_2 は次式となる.

$$\beta_2 = 2\alpha + i \quad (5)$$

点 C において E_1 と E_2 は干渉し, CCD 上に結像する. E_1 と E_2 の光路差は次式となる.

$$\begin{aligned} &n_r (\overline{AB+BC}) - \overline{CD} \\ &= \frac{2n_r h}{1 - \tan \alpha \tan(r - \alpha)} \left[\frac{1}{\cos(r - \alpha)} - \frac{\sin(i + \alpha) \tan(r - \alpha)}{n_r \cos \alpha} \right] \end{aligned} \quad (6)$$

干渉縞が隣り合う液膜厚さの増分を Δh とすれば

$$\begin{aligned} \Delta h &= \frac{\lambda h}{n_r (\overline{AB+BC}) - \overline{CD}} \\ &= \frac{\lambda \{1 - \tan \alpha \tan(r - \alpha)\}}{2n_r \left[\frac{1}{\cos(r - \alpha)} - \frac{\sin(i + \alpha) \tan(r - \alpha)}{n_r \cos \alpha} \right]} \end{aligned} \quad (7)$$

これらの式では, 入射角が傾斜液膜の表面に近い角度, つまり $(\pi/2 - \alpha)$ に近い場合に導出したが, i が液膜底面に下ろした垂線 V の左側にあるときも, 同様に導出できる.

Fig.2 に示すように, 液膜底面に対して垂直に見下ろした干渉縞間の距離を Δx とすると, Δx は Δh と以下の関係がある.

$$\alpha = \tan^{-1}(\Delta h / \Delta x) \quad (8)$$

液膜の傾斜角 α が小さいとき, $n_r (\overline{AB+BC}) - \overline{CD} \approx 2n_r h$ と近似できるので, 接触角は次式となる.

$$\alpha_{ap} \approx \tan^{-1} \left(\frac{\lambda}{2n_r \Delta x} \right) \quad (9)$$

なお, E_1 が液膜底辺に垂直に入射する場合, Eq.(9)で求めた近似式 α_{ap} と正しい値 α には次の関係がある. 分数式の部分が補正係数である.

$$\tan \alpha = \tan \alpha_{ap} \frac{1 + \tan \alpha \tan(r - \alpha)}{\frac{1}{\cos(r - \alpha)} - \frac{\sin(\alpha) \tan(r - \alpha)}{n_r \cos(\alpha)}} \quad (10)$$

接触角 α が 10° 以下では, 補正は 2% 以下である.

なお, 本実験においては $\lambda = 543.5 \text{ nm}$ のレーザー光を用いた. 装置の全体を Fig.3 に示す. レーザ光は, 顕微鏡の横から取り込み, 45° ハーフミラーで下向きとして対物レンズを通して照射した. 干渉縞は, 高速ムービーカメラで記録した. 基板は可動台上に載せ, 水平に保持した. 詳細は Kariyasaki et al. (2009) に報告した.

2. 入射レーザー光の開口数 NA が干渉縞生成に及ぼす影響 (入射光線の直径の影響)

対物レンズの直下に絞りを設けて入射光の直径を変え, 入射光直径が干渉縞に及ぼす影響を調べた. 本実験において設定した絞りの直径 (Iris diameter) と開口数 (NA) との関係を Table 1 に示す. なお, 開口数 NA と開口角 θ (Angular aperture) の関係は次式となる.

$$NA = \sin \theta \quad (11)$$

Table 1 NA of iris used in the present experiment

Iris diameter [mm]	NA	Aperture angle [degree]
10	0.472	28.1
8	0.377	22.2
4	0.189	10.9

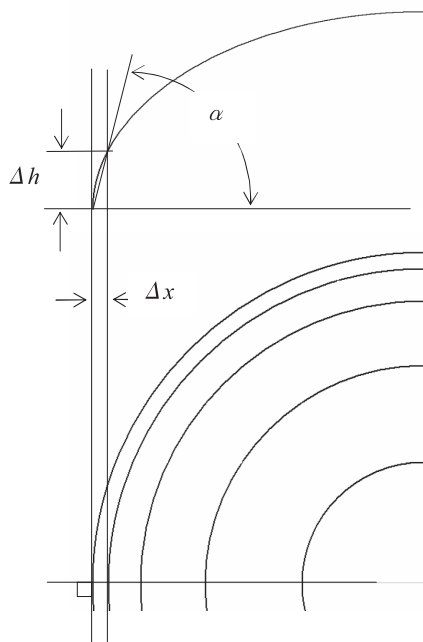


Fig.2 Fringe pattern of liquid drop.

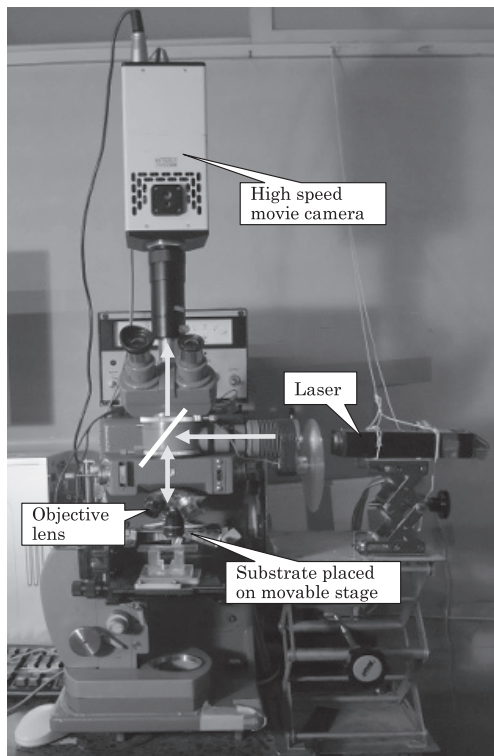


Fig.3 Optical apparatus for measurement of fringe pattern.

液膜の傾斜角 α に対する平行な 2 光線 E_1 と E_2 の C 点における反射角 β_1, β_2 は、それぞれ Eq.(4) および Eq.(5) で表される。Fig.4 に示すように、水平基板上に置いた屈折率 $n_f = 1.334$ の液膜では、液膜の傾斜角 α および入射角 i が增大するとともに、光線 E_1 の角度 β_1 が減少し、 E_2 の角度 β_2 が増大する。角度が負は、Fig.1 において液膜底面に下ろした垂線 V の右側にあることを意味する。対物レンズの NA が 0.472 の場合、 i を 30° とすると、反射した光線は対物レンズによって捕捉されず、干渉縞も観察されないことになる。したがって、対物レンズの開口数を大きくするとともに、小さい i で照射することが求められる。実際の実験においては、レーザー光を対物レンズ口径の全面からほぼ垂直 ($i \approx 0$) に入射させ、反射光の角度が開口角よりも大きくなっても、反射光の一部を捕捉できるようにしている。

対物レンズの口径と干渉縞の画質の関係を調査するため、直径が異なる絞り (Iris) を対物レンズに取り付けた。Fig.5(a), (b) および (c) は、対物レンズに取り付けた絞り直径が、撮影した干渉縞の画質に及ぼす影響を示す。この実験では、蒸発による液膜の状態変化をなくすため、液としてシリコンオイル (KF-99, 粘度 20 mPa·s, 屈折率 $n_f = 1.396$) を使用した。対物レンズの直径は 12 mm であり、入射光はレンズ全面から平行光線として入射するように設定した (絞りを取り付けないとき $NA = 0.5$ となる)。絞りの直径を減ざると入射光量が減少し、画質が低下した。絞り 4 mm の場合、画質の低下が顕著であった。

干渉縞の間隔を計測すれば、Eq.(8) を用いて液膜の接触角を算出できる。本実験では、計測の容易さから、接触角を算出する場合は最外縁から 7 番～17 番目の干渉縞間の平均距離を測定した。絞りが 8 および 10 mm の場合、干渉縞間の距離は 18.6 ピクセルであり、絞りが 4 mm の場合は 18.4 ピクセルであった。この結果、開口数が小さくなると、画質が低下することがあっても、干渉縞の間隔に及ぼす影響は無視できることが分かった。

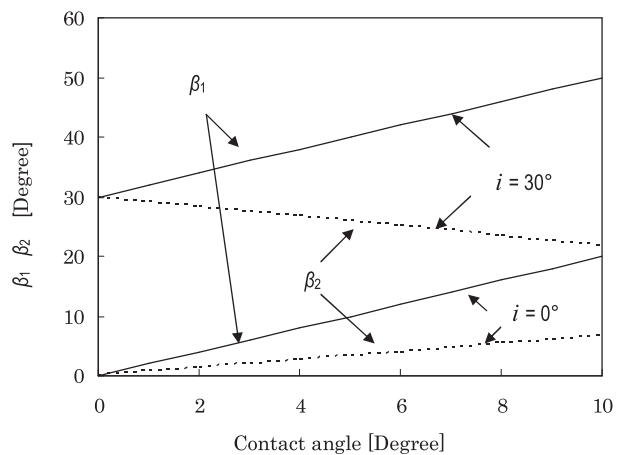
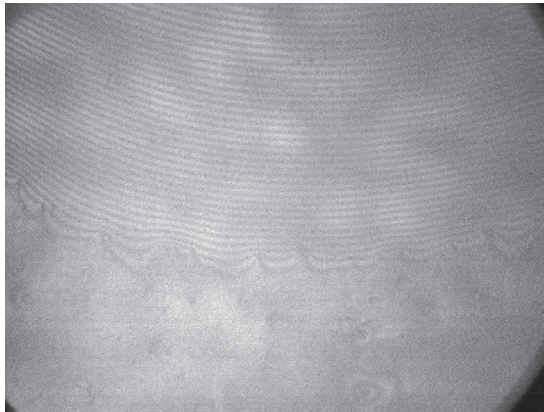
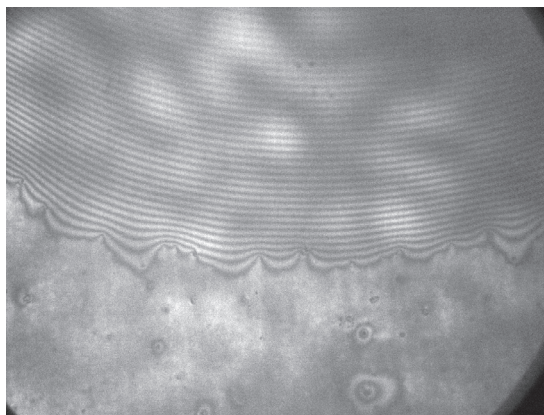


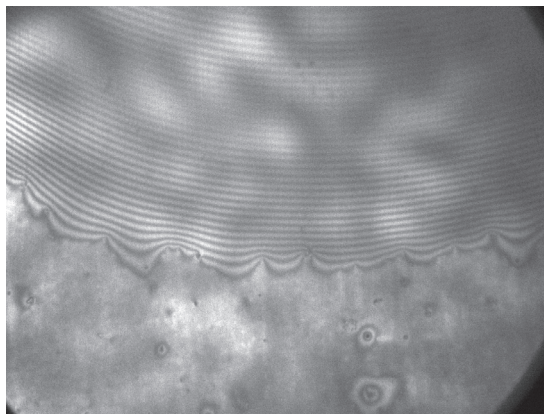
Fig.4 Relationship among angles of coherent lights.



(a) 4 mm



(b) 8 mm



(c) 10 mm

Fig.5 Effect of iris diameter on quality of fringe image. Magnification of objective lens; 50. Iris diameter; (a) 4 mm, (b) 8 mm, (c) 10 mm.

3. レーザ光の入射方向が干渉縞生成に及ぼす影響

レーザー光の入射角が測定面の傾斜に対して偏角 (Azimuth angle) を有していると、見かけ上、傾斜角が小さくなる。ここでは、偏角が干渉縞間隔に与える

影響を調べた。Fig.6 に示すように、対物レンズの直後に置いた細いスリットの向きを変えることによって、入射光の偏角を調節した。対物レンズは直径 12 mm (LMPLANIX, NA = 0.5), 倍率 50 倍であり、入射光は対物レンズの全面から照射した。スリットは幅 4 mm, 長さ 12 mm であり、対物レンズの先端にキャップ状に取り付けた。ガラス基板の奥行き方向をスリットの長手方向に合わせた場合を偏角 0° とし、28.7°, 66.1°, 90.4° の 3 通りについて、同一液滴 (前述、液滴の直径約 3 mm) の同一箇所を短時間内に連続撮影し、同一フリンジの同一箇所での間隔を測定比較した。得られた画像の代表例を Figs.7(a) ~ (d) に示す。Figs.7(a) の線分は計測した場所を示す。細部で多少の差はあるものの、干渉縞の間隔に差がなかった。したがって、対物レンズの開口数が大きく、対物レンズ全面から照射する場合、入射光の入射偏角による干渉縞への影響は無視できることが分かった。

4. 屈折率が干渉縞に及ぼす影響

沸騰現象の研究を行う場合に、蒸発している液膜厚さの時間変化を知ることは重要であるが、現在のところ測定例はほとんどなく、簡便かつ信頼性の高い測定方法の開発が必要である。この点で、干渉縞の撮影方法は有用である。沸騰液膜においては、温度が場所によって大きく変化し、液の屈折率が変化する。このため、液の屈折率が干渉縞に与える影響を評価する必要がある。一般に、液の屈折率は温度とともに低下し、有機溶媒では温度が 1°C 上昇すると屈折率が約 0.0005 低下することが知られている。水の場合、温度依存性は小さく、屈折率は 15°C で 1.3335, 30°C で 1.332, 65°C で 1.330 となる。

水温が 15°C および 65°C の場合、入射角を 0 (液膜底面に垂直に入射) として、液膜の接触角の推定誤差を Eq.(10) から推定した。温度の差による影響は傾斜角が大きくなると共に増大するが、傾斜角が 35° の場合でも、50°C の温度差による接触角の変化は 1% 以下であった。したがって、液膜内の温度が位置的、時間的に変動する場合でも、その液膜の厚さをほぼ正しく推算できると考えられる。

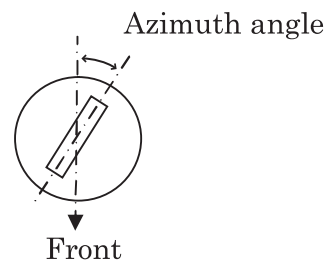


Fig.6 Azimuth angle of slit.

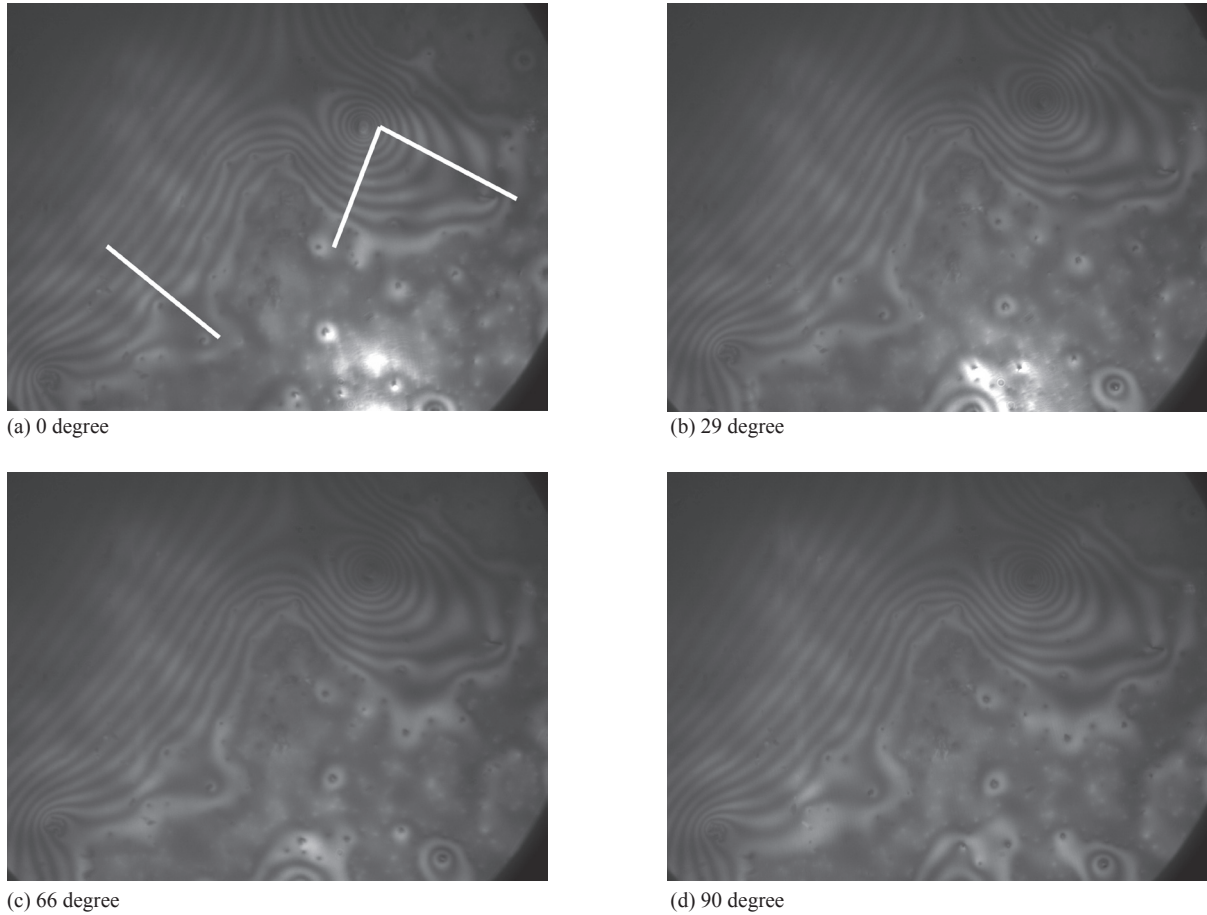
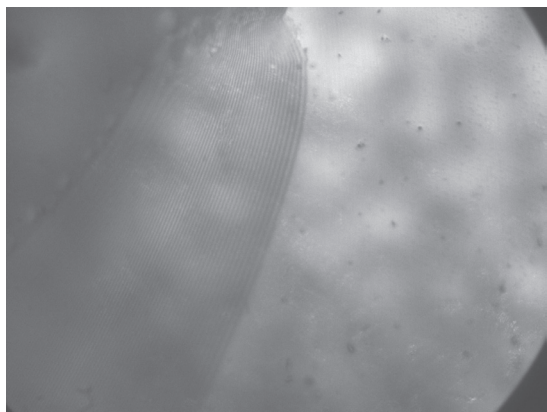


Fig.7 Effect of azimuth angle on quality of fringe image.
Azimuth angle of incident light; (a) 0 degree, (b) 29 degree, (c) 66 degree, (d) 90 degree.

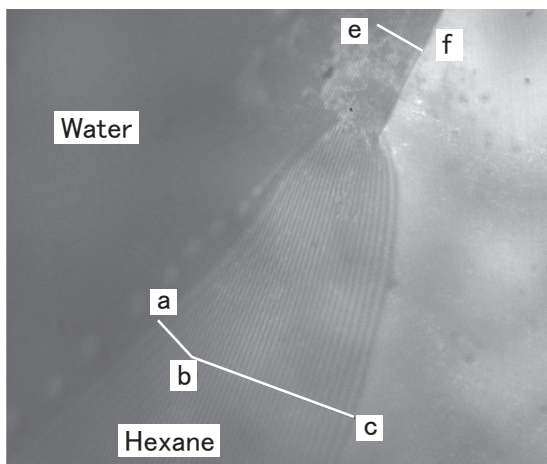
5. 水滴側面上で拡張収縮するヘキサン液膜

互いに混じり合わない2液が共存する系についても、2液の屈折率が異なるならば、単一の液体が基板上に存在する系と同様に接触角の測定が可能である。ただし、2液の界面における反射率は2液の屈折率の差に密接に関係するため、単独に存在する時よりも干渉縞の鮮明度は低下する。ここでは、水-ヘキサン ($n_r = 1.375$) 系の例を示す。Fig.8(a) ~ (c) は、ガラス板上に置いた水滴の近傍から拡張してきたヘキサン液膜が、水滴側面上に乗り上げた後、蒸発に伴って後退して行く過程を示す。Fig. 8(b) において、線分 ab 上に傾斜の異なる2つの干渉縞が観測される。傾斜が小さい干渉縞は、水滴上に広がっているヘキサン膜、傾斜が大きい干渉縞は、単独でガラス表面に存在するヘキサン膜に由来する。Fig.9 に示すように、線分 ef 部はガラスと水の接触部を、bc はガラスとヘキサンの接触部を示している。Fig.10 は、線分に沿った2液断面の形状を示す。ヘキサン膜とガラス板との接触角に比べて、水滴上のヘキサンの接触角は僅かに小さい値を示している。なお、水とヘキサンの屈

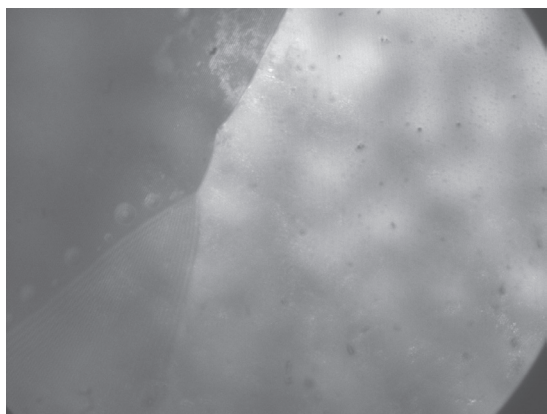
折率は少し異なるため、傾斜の大きな干渉縞から液膜厚さを算出する際に誤差が生じるが、無視できる程度であることが分かった。



(a) Initial stage



(b) after 0.1 s



(c) after 0.2 s

Fig.8 Time-dependent changes in fringe image for coexisting water and hexane. (a) Initial stage, (b) after 0.1 s, (c) after 0.2 s.

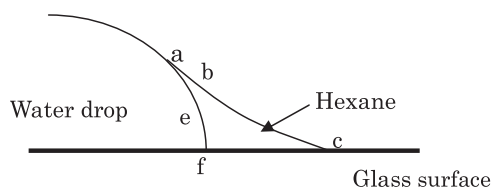


Fig.9 Interaction of water and hexane.

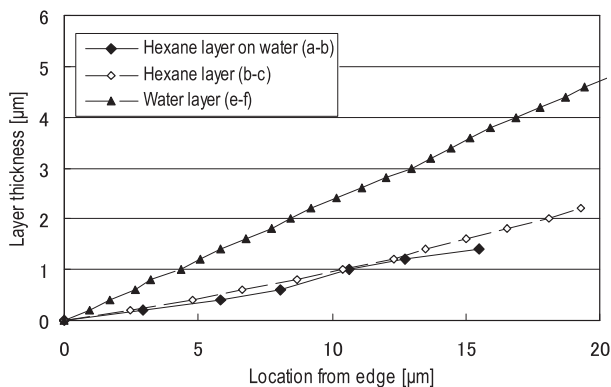


Fig.10 Profiles of water and hexane layers determined from fringe pattern of Fig.8 (b).

結 言

干渉縞による液膜厚さとその分布の測定方法に関して、種々の実験を行って調査し、以下の知見を得た。

(i) 対物レンズの開口数およびレーザ光の入射方向は、接触角の測定結果に影響を及ぼさなかった。

(ii) 液の温度が変化すると屈折率が変化するが、接触角、液膜厚さに与える影響は無視できた。水の場合、50℃の温度変化があり、接触角が35°であっても、接触角の差は1%以下であった。

(iii) 互いに混じり合わない2液が共存する場合、液の屈折率に差があれば、それぞれの液膜厚さの分布が測定できることが分かった。屈折率の差と測定限界については、今後の調査が必要である。

引 用 文 献

Kariyasaki, A., Y. Yamasaki, M. Kagawa, T. Nagashima, A. Ousaka and S. Morooka; "Measurement of Liquid Film Thickness by a Fringe Method," *Heat Transfer Engineering*, 30, 28-36 (2009)

Yamasaki, Y., M. Goto, A. Kariyasaki, S. Morooka, Y. Yamaguchi, M. Miyazaki and H. Maeda; "Layered Liquid-Liquid Flow in Microchannels with Selectively Modified Hydrophilic and Hydrophobic Walls," *Korean J. Chem. Eng.*, in press (2009)