様　式　C－19、F－19－1、Z－19　(共通)

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

平成 30 年　 6 月　 1 日現在

機関番号：32660
研究種目：挑戦的萌芽研究
研究期間：2016～2017
課題番号：16K14176

研究課題名（和文）自由界面－粒子間相互作用に起因する液相内粒子特異的パターン形成の解明とその制御

研究課題名（英文）On pattern formation by particles suspended in liquid due to interaction with free surface

研究代表者
上野　一郎（Ueno, Ichiro）

東京理科大学・理工学部機械工学科・教授

研究者番号：40318209

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　2,800,000円

研究成果の概要（和文）：温度差マランゴニ効果によって発現する閉鎖系内粒子挙動に関して，ハーフゾーン液柱および自由液膜を対象とした系を用いて，特にこれまで観察が困難とされていた自由表面近傍での粒子追跡を行った．また，粒子挙動と自由表面の動的・静的変形の高精度同期計測系の構築を行い，研究協力者が実施した宇宙実験を比較対象としてその粒子挙動と熱対流場との関係を明らかにした．さらに，液体自由表面と粒子との相互作用について特に動的な濡れ挙動に対する影響を実験的・理論的に明らかにした．

研究成果の概要（英文）：The motion of a small spherical particle of finite size in closed systems with free surface is investigated. Liquid bridge, liquid film and hanging droplet are empolyed as the target geometries. It is shown that limit cycles obtained numerically by one-way-coupled simulations based on the Maxey-Riley equation and a particle-surface interaction model compare favorably with the experimental results. We find that the particle accumulation structures are realized in this geometry and that their structures vary as a function of the intensity of the thermocapillary effect.
We also focus on the interaction between the particle and the free surface of the droplet spreading on the smooth substrate. It is found that a sharp acceleration occurs when the liquid starts wetting the extra surface area offered by the particle and forming a meniscus. A theoretical model based on the classical wetting dynamics dictated by Cox's law is developed.

研究分野：熱工学

キーワード：表面張力　自由表面　表面張力差駆動対流　濡れ性　動的濡れ

１．研究開始当初の背景

自由界面を有する流体中に非混和性固体・液体粒子を含有する系は，幅広い空間スケールにおいて自然界，産業界ともに多く見られる．例えば，大規模空間スケール（O(km ~ m)）で見られるものとして，岩石や土砂を含む河川や地下水脈，土石流，火山におけるマグマ流れなど，中規模空間スケール（O(m ~ mm)）ではコーヒーなど微粒子を含有する飲み物や，溶液中での結晶成長過程，特殊固体薬剤等を含有した消化用薬剤など，さらに，小〜微小空間スケール（O(mm ~ µm/nm)）では，眼球周りの生体液，µTASなどの微小領域での化学反応用チップ，化粧品等での微細粒子を含有するコロイドやゲル溶液など，対象となる系は非常に幅広く存在する．

バルク液体中の固体粒子の挙動については，ブラウン運動のようなメゾスケールでの挙動や流体追従性など，これまで数多くの研究が行われており，流体中の固体粒子の運動やパターン形成などの学術的知見が蓄積されている．しかしながら，液液界面あるいは気液界面といった自由界面近傍での粒子挙動に関しては，当該系が広く産業界においても対象となっているにも関わらず，系の複雑さ，パラメータの煩雑さからこれまでほとんど知見が蓄積されていないのが現状である．1996年に，結晶成長過程での融液内固体粒子挙動に関する研究がドイツのSchwabeらによって行われ，所定の温度差を有する同心円端面対向ロッド間に形成した液体内の粒子がある特定の条件下においてある特殊な構造，いわゆる動的粒子集合（Particle Accumulation Structure (PAS)）を呈することが明らかにされた（Schwabe et al., Microgravity Sci. Technol. 9, 1996）．その後，実験的研究が進められ，地上および微小重力環境下においてその発生条件（Ueno et al., Phys. Fluids 15, 2003; Schwabe et al., Phys. Fluids 19, 2007）や，３次元構造の再構築（Nishimura et al., Exp. Fluids 38, 2005），PASを構成する粒子の速度場計測（Abe et al., Ann. NY Acad. Sci. 1161, 2009; Niigaki & Ueno, JSASS 10, 2012）が行われてきた．近年，特に欧州で理論解析が盛んである．この特殊な構造形成は，粒子運動と対流構造間のフェーズ・ロッキングによるというモデル（Pushkin et al., PRL 106, 2011）や，気液界面と有限空間を占める粒子との相互作用によるというモデル (Kuhlmann & Muldoon, PRE 85, 2012) が提案されている．しかしながら依然として自由表面と液体内固体粒子の相互作用，および相互作用に起因する粒子挙動やパターン形成についてはその機構が全く明らかになっていないのが現状である．

本プロジェクトでは，高精度実験技術（上野），大規模数値計算技術（塚原），界面熱流体物理の理論（Kuhlmann（協力者））および微小重力環境を利用したモデル実験（Pettit（協力者））を融合し，自由界面–粒子間相互作用に起因する液相内粒子特異的パターン形成の解明を通じて，『自由界面–粒子間相互作用を含むマルチフェーズ・マルチスケール界面熱流体』系の深化を目指して有機的に取り組むものである．

２．研究の目的

本プロジェクトでは，『自由界面–粒子間相互作用を含むマルチフェーズ・マルチスケール界面熱流体現象』を対象とし，高精度実験技術（上野），大規模数値計算技術（塚原），界面熱流体理論（Kuhlmann（協力者））および微小重力環境を利用したモデル実験（Pettit（協力者））を融合し有機的に取り組む．熱・物質輸送問題を高精度で予測するための第一原理的運動理論と，簡易化した受動的粒子運動モデルをすり合せ，自由界面–粒子間相互作用に起因する液相内粒子得意的パターン形成の解明と，本体系の深化を目的とする．

３．研究の方法

本研究では，自由界面を有する液体流の粒子の運動および粒子群の挙動の解明を通じ，自由界面 – 粒子間相互作用を含むマルチフェーズ・マルチスケール界面熱流体現象に関する動力学の深化を目指して，下記の内容および担当で研究を実施した．

【実験】自由界面を有する液体の準閉塞空間内での固体粒子運動の解析（３次元粒子速度追跡速度計測法），自由表面上温度変動（放射温度計）および自由表面の動的・静的変形（共焦点レーザ変位計）の高精度同期計測（上野）．自由液膜内粒子群挙動の高精度解析（上野・DRP）

【数値計算】流体–粒子間一方向および双方向相互作用を考慮した数値計算コードの開発（気液２相計算に置いてVoF(volume of fluid)法，固相再現においてIB(immersed boundary)法，界面張力の計算においてはCSF(continuumsurface force)モデルを用いた）（塚原）．

【理論】液体–粒子間双方向相互作用を考慮した理論モデルの構築．特にＫＡＭ環状体内外と粒子との相互作用に注目した（HCK）

４．研究成果

温度差マランゴニ効果によって発現する閉鎖系内粒子挙動に関して，ハーフゾーン液柱および自由液膜を対象とした系を用いて，特にこれまで観察が困難とされていた自由表面近傍での粒子追跡を行った．定常流状態での粒子挙動に注目し，Maxey-Rileyモデルと，研究協力者によって提案されたその修正モデルの妥当性を明らかにした（図１）．また，粒子挙動と表面温度変動の高精度同期計測系の構築を行い，粒子集合現象とHydrothermal wave不安定性による熱対流場との関係を明らかにした（図２）．これまで実験的に提示されていた動的粒子集合現象の発現プロセスに

対し，プラントル数の異なる試験流体を用いた際にそのモデルが適用できないことを実験的に初めて明らかにした．

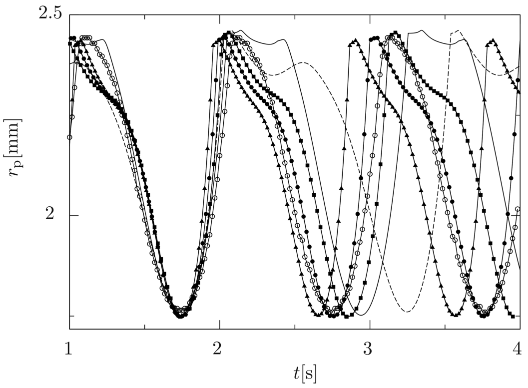

図１　ハーフゾーン液柱内での温度差マランゴニ効果による粒子の２次元運動と修正Maxey-Rileyモデルの比較（Romano et al. 2017（発表論文［雑誌論文］5.））．

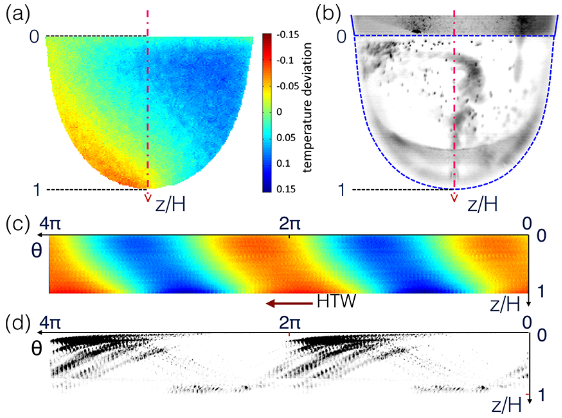

図２　懸垂液滴内での温度差マランゴニ効果による動的粒子集合現象と熱対流場との相関（Takakusagi & Ueno 2017 （発表論文［雑誌論文］3.））．

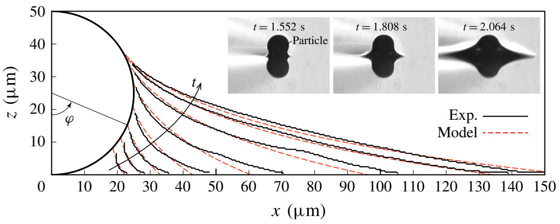

図３　液敵前縁部と固体球状粒子との相互作用による球周りの濡れと液滴前縁部加速に関する実験および理論モデルの比較（Mu et al. 2017（発表論文［雑誌論文］2.））．

さらに，液体自由表面と粒子との相互作用について特に動的な濡れ挙動に対する影響を実験的・理論的に明らかにした（図３）．これにより球状粒子まわりにメニスカスが形成され，その圧力不均一分布によって球近傍に液体が急激に駆動されることが固液気３相境界線の爆発的な加速を実現することを初めて示すことが出来た．

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６件）

1. Takumi Watanabe, Tomohiko Takakusagi, <u>Ichiro Ueno</u>, Hiroshi Kawamura, Koichi Nishino, Mitsuru Ohnishi, Masato Sakurai, Satoshi Matsumoto, Terrestrial and microgravity experiments on onset of oscillatory thermocapillary-driven convection in hanging droplets, International Journal of Heat and Mass Transfer, 123, 945-956, 2018. DOI:10.1016
2. Lizhong Mu, Daichi Kondo, Motochika Inoue, Toshihiro Kaneko, Harunori N.Yoshikawa, Farzam Zoueshtiagh, <u>Ichiro Ueno</u>, Sharp acceleration of a macroscopic contact line induced by a particle, journal of Fluid Mechanics, 830, R1-1~R1-12, 2017. DOI: 10.1017
3. Tomohiko Takakusagi, <u>Ichiro Ueno</u>, Flow Patterns Induced by the Thermocapillary Effect and Resultant Structures of Suspended Particles in a Hanging Droplet, Langmuir, 33, 13197-13206, 2017. DOI: 10.1021
4. Daichi Kondo, Lizhong Mu, Frederick de Miollis, Tetsuya Ogawa, Motochika Inoue, Toshihiro Kaneko, Takahira Tsukahara, Harunori N. Yoshikawa, Farzam Zoueshtiagh, <u>Ichiro Ueno</u>, Acceleration of the Macroscopic Contact Line of a Droplet Spreading on a Substrate after Interaction with a Particle, International Journal of Microgravity Science and Application, 34, No.4, 340405-1~7, 2017. DOI: 10.15011
5. Francesco Romano, Hendrik C. Kuhlmann, Misa Ishimura, <u>Ichiro Ueno</u>, Limit cycles for the motion of finite-size particles in axisymmetric thermocapillary flows in liquid bridges, PHYSICS OF FLUIDS, 29, 093303-1~14, 2017. DOI: 10.1063/1.5002135
6. N. Kazuno, <u>T. Tsukahara</u>, M. Motosuke, Laplace pressure versus Marangoni convection in photothermal manipulation of micro droplet, The European Physical Journal Special Topics, 226, No.6, 1337-1348,2017. DOI: 10.114

〔学会発表〕（計７件）

1. Lizhong Mu, Tetsuya Ogawa, Daichi Kondo,

Harunori N. Yoshikawa, Farzam Zoueshtiagh, Toshihiro Kaneko and Ichiro Ueno, Acceleration of macroscopic contact line induced by an interaction with a tiny particle on a smooth substrate, 5th European Conference on Microfluidics (µFlu18), (February 28-March 2, 2018 – Strasbourg,France)

2. Tetsuya Ogawa, Lizhong Mu, Toshihiro Kaneko, Harunori N. Yoshikawa, Farzam Zoueshtiagh, Ichiro Ueno, Spreading of a droplet accompanying with an interaction with a spherical particle settled on a smooth substrate, Bulletin of the American Physical Society (APS) 62, 70th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics, (19th - 21st Nov.2017, Denver, CO)
3. Takeru Oba, Ichiro Ueno, Toshihiro Kaneko, Experimental study on spatio-temporal behavior of a single particle forming a particle accumulation structure (PAS) in half-zone liquid bridge, Bulletin of the American Physical Society (APS) 62, 70th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics, (19th - 21st Nov. 2017, Denver, CO)
4. Mayu Kiriki, Lizhong Mu, Toshihiro Kaneko, Ichiro Ueno, Coalescence process of two droplets spreading on the horizontal smooth substrate, Joint conf. 7th International Symposium on Physical Sciences in Space (ISPS-7) and 25th European Low Gravity Research Association Biennial Symposium and General Assembly (ELGRA-25), (2nd-6th Oct. 2017, Juan-les-Pins, France)
5. T. Tsukahara, Photo-induced flows relevant to laser-based droplet manipulations, 8th International Conference and Exhibition on Lasers, Optics & Photonics (Optics2017), (15-17 Nov.2017, Las Vegas, USA.)
6. K. Yamasaki, T. Tsukahara, and I. Ueno, Direct numerical simulation of thermocapillary-driven flow in a free liquid film with considering surface deformation, The 6th Asian Symposium on Computational Heat Transfer and Fluid Flow, (10-13 Dec. 2017, Chennai, India)
7. K. Nitta, M. Muto, K. Yamamoto, M. Motosuke, and T. Tsukahara, Two-dimensional direct numerical simulation of driving liquid column with photoresponsive surfactant, The 6th Asian Symposium on Computational Heat Transfer and Fluid Flow, (10-13 Dec.2017, Chennai, India)

〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計0件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
特になし

６．研究組織
(1)研究代表者
上野　一郎（UENO, Ichiro）
東京理科大学・理工学部・教授

研究者番号：40318209

(2)研究分担者
塚原　隆裕（TSUKAHARA, Takahiro）
東京理科大学・理工学部・准教授　60516186

研究者番号： 60516186

(3)連携研究者
（　　）

研究者番号：

(4)研究協力者
Hendrik C. Kuhlmann（Kuhlmann, Hendrik C.）
ウイーン工科大学・教授

Donald R. Pettit（Pettit, Donald R.）
アメリカ航空宇宙局（NASA）・宇宙飛行士