

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K14667

研究課題名（和文）3D熱流動計測を通じた液滴内部対流のアクティブ制御技術の基盤構築

研究課題名（英文）3D thermal/flow measurement for active control of internal flows in drops

研究代表者

喜多 由拓 (Kita, Yutaku)

九州大学・工学研究院・助教

研究者番号：40840616

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：Lab-on-a-chipにおける液滴のマイクロリアクタ機能創出のため、局所加熱による液滴の熱流動現象の制御に関する研究を行った。レーザーやマイクロヒーターによって液滴を局所的に加熱することで、液滴表面に人工的な温度勾配を形成させ、その勾配に沿って表面張力によって対流を発生させる。本研究では、対流の発生条件や強度に及ぼす影響パラメータを調査した。特に、液滴の接触角は液滴の流動安定性に大きく影響を及ぼすことを明らかにした。また、実際のシステムでよく見られる液滴「群」の蒸発に関する研究も実施した。背面指向シュリーレン法を用いて液滴周囲の濃度拡散場を可視化し、液滴間相互作用の影響を定量的に調べた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は液滴の新規機能創出を目指した基礎現象の解明を目指すものである。液滴は一見単純な系に思われるが、実際は蒸発現象、濡れ現象、伝熱および流動現象など数々の現象が複合的に起こる複雑な系である。これまでもスプレー冷却やインクジェット印刷、コーティング技術において液滴は基礎的な要素として用いられてきたが、これらは基本的に前述の諸現象の自発的な結果を応用したものである。一方で、本研究ではこれらの現象を能動的に制御しようとするものであり、得られた知見は学術的に価値が高く、液滴を利用した新技術の創出に大きく貢献するものである。

研究成果の概要（英文）：Heat transfer and fluid dynamics of locally-heated drops have been investigated with an aim to develop drop-base microreactors for lab-on-a-chip devices. Drops can be heated either with a laser or microheaters. Surface tension gradients would be formed due to the artificial thermal gradients produced by localized heating, and then, the surface tension gradients would drive the flows within the drop. Criteria for the onset of the flows and parameters that determines the flow have been identified. Moreover, the evaporation of "neighbouring" drops has been studied, which is usually the case in most applications. Background-oriented Schlieren technique has been used to quantify the vapour concentration field between drops and the interaction between them.

研究分野：熱流体工学

キーワード：液滴 マランゴニ対流 流れ可視化 蒸発 赤外線サーモグラフィ 接触角

1. 研究開始当初の背景

液滴は噴霧冷却やインクジェット・コーティングなど多くの工業的プロセスで見られる基本系として非常に多くの研究が行われている。2010 年以降、液滴をアクティブ制御して新機能を創出しようという研究が少しずつ見られるようになってきた。この背景として、近年の化学/医療/創薬分野におけるバイオセンシング技術の高度化の要請が挙げられる。「デジタルマイクロ流体 (DMF)」は微量な試料を液滴としてデジタル的に操作することで、高速かつ柔軟な分析を実現する新技術として注目されている。ここで液滴は、試料混合・反応・検出を担うマイクロリアクタとして 混合・攪拌および 温度制御の機能が求められる。しかし、微小スケールでは粘性力が顕著となり有効な流速が得られにくい。従来研究が進められている電気毛管力や音波を利用した攪拌方法に加えて、加熱により発生する熱対流 (マランゴニあるいは自然対流) の利用が省エネ・攪拌効率・温度制御の観点で有効である。これに先駆けて、研究代表者は純水液滴を基板より局所加熱を行うことで、二つの対流渦を伴う不安定現象の発生を確認している。関連する無次元パラメータの比較ならびに重力方向の影響の検討から、この対流の発生機構はマランゴニ効果であることを特定している (Kita et al., Applied Physics Letters, 109 (17), 2016)。

所望の混合速度・温度を得るためには液滴の熱流動特性に基づいて加熱条件を緻密に設定する必要がある。ところが液滴は、伝熱・流れ・濡れ・物質拡散 (相変化) といった様々な熱流体現象がマルチスケールの連成する複雑な系であり、体系的な現象理解に至っていない。よって液滴の内部対流を積極的に制御することは疎か、その発生条件・強度および熱伝達を予測することは極めて困難である。

*自然対流：密度勾配 (浮力) によって生じる対流。

マランゴニ対流：表面張力勾配によって生じる対流

2. 研究の目的

局所加熱法による熱対流を用いた液滴制御方法を確立すべく、局所加熱による熱流動特性の支配パラメータを明らかにする。特に本研究期間では、液滴形状 (体積・接触角) が対流の発生条件および流動安定性に及ぼす影響を調査する。当初は感温蛍光粒子を用いた三次元マイクロ熱流体計測技術を開発し、液滴内部の温度場・速度場を同時計測する計画であった。しかしながら、必要な光学系の構築は概ね完了したものの、感温粒子の作成ならびに画像解析のノウハウ構築に予想以上の時間を要したために、本研究期間では赤外線カメラによる温度場計測から現象を議論することとした。また、本研究に関連して、実際のシステムでよく見られる液滴「群」の蒸発に関する研究も実施し、隣接する液滴間の相互作用を解明する。

3. 研究の方法

(1) 液滴の局所加熱実験ならびに熱流動可視化

実験系を図 1 に示す。本研究で用いた液滴は 10 μ L の純水であり、これを銅基板上に滴下する。本研究では液滴の接触角を操作パラメータとしており、これは基板表面に種々のコーティングを施すことで制御している。本研究で使用した基板の接触角は約 75 $^{\circ}$ C (鏡面仕上げ), 110 $^{\circ}$ C (Cytop コーティング) および 150 $^{\circ}$ C (Glaco コーティング) である。局所加熱は、基板を下部よりレーザー (波長 808 nm, 出力 1.9 W) を照射することによって行う。なお、実用的にはマイ

クロデバイスに統合が容易なマイクロヒータでも同様な局所加熱を実現することが可能である。液滴の上方から赤外線カメラを用いて、液滴表面の熱流動挙動を観察する。また、側方より CMOS カメラを用いて液滴形状ならびに蒸発挙動を観察する。

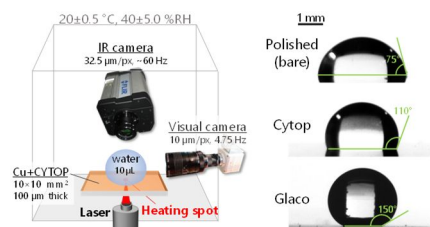


図 1. 局所加熱実験装置。

(2) 蒸発液滴周囲の蒸気濃度分布可視化

隣接する液滴間の相互作用を調べるため、背景指向シュリーレン (Background Oriented Schlieren: BOS) 法による蒸気濃度分布の実測を行う。具体的には、図 2 のような光学系を用いて、液滴の背後に配置した不規則なドットパターンを撮影し、気相の密度勾配による屈折率の変化から生じる背景画像の歪みを検出する。本手法では水蒸気の検出は困難であるため、6 μL のアセトンを用いた。また、基板は Cytop コーティングを施したシリコンウエハである。

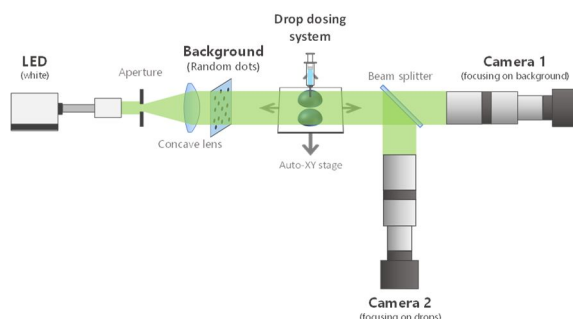


図 2. BOS 法による蒸気濃度分布測定装置。

4. 研究成果

(1-a) 局所加熱された液滴の熱流動観察

図 3 に、各基板上的液滴に局所加熱を行った時の液滴表面の温度分布を示す。全ての条件に対し、加熱開始直後の温度場発達期間にあたる Early stages と、十分に熱流動現象が発達した Developed stages に分けて考察する。接触角の小さい (75°) 条件では、熱は基板を伝わり、伝導によって液滴の接触線近傍から温度が上昇することが確認できる。しかしながら、液滴表面で 3 K 以上の温度分布があるにもかかわらず、研究代表者が過去に報告した対流渦は見られなかった。接触角 110°の条件では、前条件と同様に接触線近傍から温度が上昇し、輪状の温度分布が発達するが、直ちに対称性が崩れて双子渦が形成された。加熱を継続すると、双子渦は振動的挙動を伴う不安定状態に遷移した。なお、この条件は研究代表者による過去の報告と同一である (Kita et al., Applied Physics Letters, 109 (17), 2016)。接触角が最も大きい (150°) 条件では、熱伝導が支配する温度場発達期間が短く、直ちに双子渦が発生した。加熱を継続すると、接触角 110°条件の場合よりもより複雑な対流状態に遷移した。また、図 3 中にはサーモグラフィ画像中の最高温度と最低温度の差、 ΔT_{max} の時間変化を示している。接触角が低い条件では ΔT_{max} はほとんど変動せず、一方で接触角が大きい条件では渦の振動に伴って ΔT_{max} が変動した。これは加熱による温度差の拡大と対流による温度均一化が交互に現れる不安定状態を示すものと思われる。

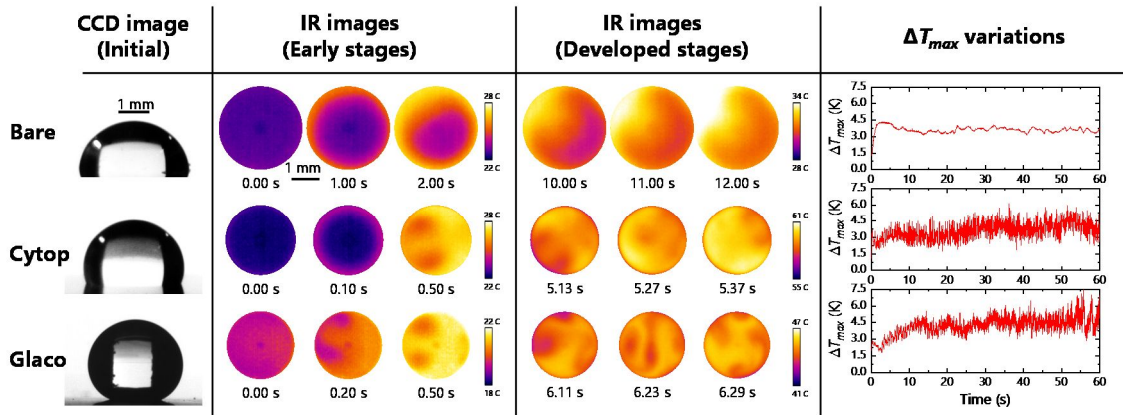


図 3. 各基板上的の液滴の温度分布ならびに最大温度差の時間的変動 .

図 3 にみられる傾向は , 図 4 に示すマランゴニ数 Ma と接触角の関係に一致するように思われる . すなわち , 接触角が小さい場合は粘性効果が支配的になりマランゴニ対流は発生しにくく , 接触角が十分に大きくなると系は不安定となり容易に対流が発生する . 実験的には接触角 90° あたりが境界となるように思われるが , 液滴の体積等の影響も含めた詳細な検討が必要である .

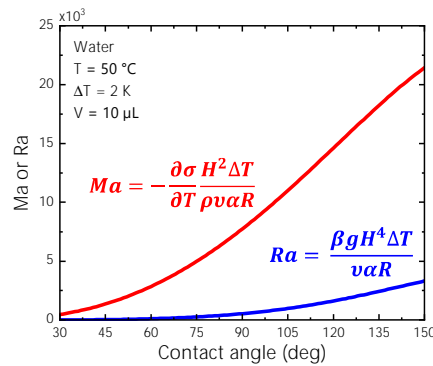


図 4. マランゴニ数 Ma およびレイリー数 Ra と接触角の関係 .

(1-b) 液滴の振動現象

接触角 150° の条件では , 対流のみならず液滴自体の振動も観察された . 図 5 は加熱前の位置を基準とした液滴の中心点の変位の時間変化を示している . これを高速フーリエ変換 (FFT) 処理し , 特性振動数 $17 \text{ Hz} - 23 \text{ Hz}$ を得た . 固体面に付着した液滴の固有振動数は Sharp et al., Langmuir, 2011 のモデルから 23.5 Hz と求められ , 実験値と良好に一致した . これはマランゴニ効果による新たな不安定現象であると考えられる .

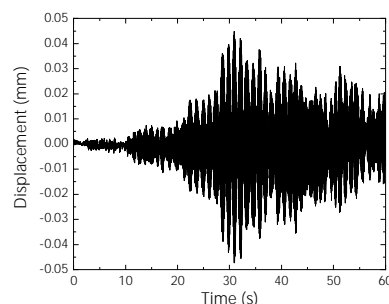


図 5. 液滴の中心点の変位 .

(2-a) 背景指向シュリーレン法による蒸発液滴周囲の蒸気分布計測

図 6 は BOS 法によって得られた、単一のアセトン液滴周囲の背景画像の歪み量の分布を示す。背景画像の歪みは空間の蒸気濃度の変化によって生じるため、歪み量の分布がそのままアセトン周囲の蒸気濃度分布を反映している。この蒸気分布は液滴蒸発の解析解ならびに数値界（例えば Hu and Larson, J. Phys. Chem. B, 2002）と定性的に一致しており、本計測手法の妥当性が示された。

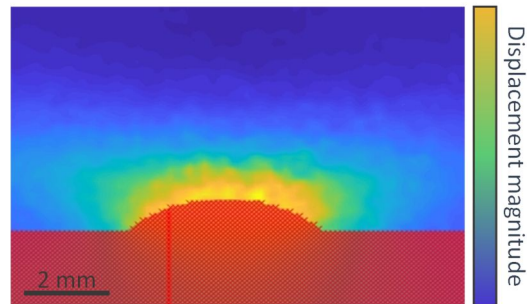


図 6. 単一アセトン液滴周辺の背景画像の歪み量分布。

(2-b) 隣接する液滴間の蒸気濃度分布

図 7 は隣接する二つのアセトン液滴の蒸発に伴う背景画像の歪み量の変化を示す。二液滴間の空間の蒸気濃度は周囲に比べて濃く、蒸発流束が小さくなっていることが推測される。この濃度分布は Schofield et al., J. Eng. Math., 2020 の理論解析モデルと定性的に一致しており、実験により同理論の妥当性が認められた。このように隣接液滴による蒸発の抑制を「シールド効果」と呼び、本実験では単一液滴の蒸発時間は 95 秒程度であったのに対し、シールド効果によって蒸発時間は 110 秒に延ばされた。将来的には、液滴間距離によるシールド効果への影響や非対称の蒸発流束分布により生じる温度分布や内部対流について詳細に調査する必要がある。

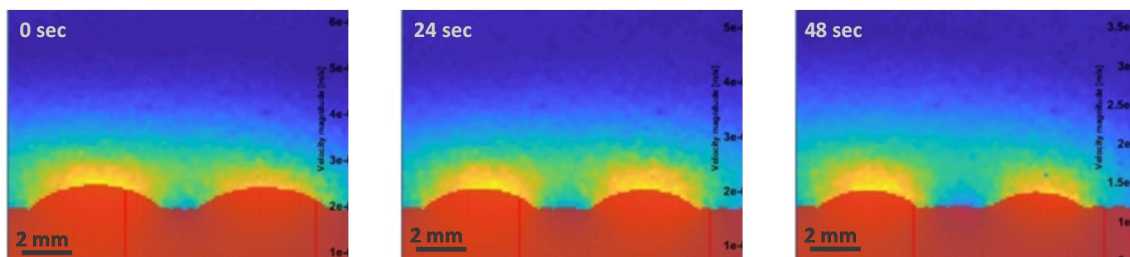


図 7. 隣接するアセトン液滴周囲の背景画像の歪み量分布。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Tsukamoto Kengo, Kita Yutaku, Inoue Shinya, Hamanosono Takafumi, Hidaka Sumitomo, Ueoka Satoshi, Fukuda Hiroyuki, Kohno Masamichi, Takata Yasuyuki	4. 巻 179
2. 論文標題 On the onset of quench during spray cooling: The significance of oxide layers	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Thermal Engineering	6. 最初と最後の頁 115682 ~ 115682
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.applthermaleng.2020.115682	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 4件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 喜多由拓
2. 発表標題 微小液滴の蒸発と不安定熱流動現象について
3. 学会等名 第6回相変化界面研究会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yutaku Kita
2. 発表標題 When does hot steel get quenched by sprayed water? - The influence of oxide layers on the onset of quenching
3. 学会等名 Sino-Japan-UK Frontiers in Phase Change Heat Transfer and Its Application in Energy（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 喜多由拓
2. 発表標題 赤外線サーモグラフィによる微小液滴の気液相変化と熱流動現象へのアプローチ
3. 学会等名 第48回可視化情報シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yutaku Kita
2. 発表標題 Quench mechanisms of spray cooling - from single droplet to spray level
3. 学会等名 Thermal Transport Cafe (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関