

平成 21年 6月 11日現在

研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2005～2008
 課題番号：17360101
 研究課題名（和文） マイクロスケールとマイクログラビティへの適用を目指したマランゴニ対流の研究
 研究課題名（英文） Research on Marangoni convection in relevance to microscale and microgravity applications
 研究代表者
 河村 洋（KAWAMURA HIROSHI）
 諏訪東京理科大学・システム工学部・教授
 研究者番号：80204783

研究成果の概要：

マランゴニ対流は、液体表面において温度差や濃度差によって表面張力の分布が発生した場合に生起する対流であり、マイクロスケールやマイクログラビティにおいて、顕在化する。本研究では、液柱内のマランゴニ対流が振動的になる条件やマイクロ液滴の形成等について、実験と解析の双方から新たな成果を得た。また、宇宙ステーションの日本実験棟「きぼう」における最初の科学実験としてマイクログラビティ実験を実施し、地上では形成できない大きな液柱の形成に成功し、振動流遷移条件等を求めることができた。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2005年度	7,900,000	0	7,900,000
2006年度	4,000,000	0	4,000,000
2007年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2008年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
総計	15,400,000	1,050,000	16,450,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：表面張力，マランゴニ対流，マイクログラビティ，マイクロ液滴，国際宇宙ステーション，日本実験棟きぼう

1. 研究開始当初の背景

半導体を融液から結晶成長させるチョクラスキー法，フルゾーン法などの製造方法においては，自由表面におけるマランゴニ対流が，結晶の成長や品質に影響を及ぼしていることが認識され始めていた。マランゴニ対流は，このように重力下においても発生しているが，微小重力下においては，さらに支配的になる。他方，分野は異なるが，環境測定やDNA鑑定分野で，微量の液体状サンプルを用いた微量迅速分析が重要となってい

る。このとき，液体の寸法が小さいほど表面張力の効果が支配的になる。そのため，マイクロスケールにおける流体のハンドリングが重要となって来ている。

マランゴニ効果は，地上では重力効果と混在して取り出して研究することがむずかしいので，微小重力下での実験を行うのが最適である。しかし，無重力実験は容易には行えないが，これに関し，本研究代表者は，宇宙ステーションの日本実験棟「きぼう」において科学実験を提案し，一次選定テーマとして

採択されていた。本研究期間中に、これを実施できる見込みであったので、マランゴニ対流について、宇宙ステーションでのマイクログラビティ実験と地上での実験やシミュレーションとを組み合わせた研究を申請し、予定通り実施することが出来た。

2. 研究の目的

(1)液柱内マランゴニ対流においては、結晶成長過程への応用からも、流体力学的観点からも、①時間的な定常流から振動的な流れに遷移する条件を、様々なアスペクト比 (Γ = 液柱の高さ (H) と半径 (R) の比、または A = 液柱の高さ (H) と直径 (D) の比) や、液体のプラントル数に対して求めることが重要であり、これを第一の目的とする。②つぎに、振動的な流れに遷移したときのモード数 (m) に着目する。モード数とは、周方向の周期性の数であって、アスペクト比が小さくなるほどモード数は大きくなり、 $m\Gamma$ の積がおおよそ 2.0~2.2 になることが知られているが、アスペクト比 Γ が 1.5 よりも大きい場合についてはよく知られていないので、これを明らかにすることが第2の目的である。③さらに、液柱内マランゴニ対流では、流れ場の可視化用に混入させた微細粒子が閉じた曲線に沿って集合する現象 (PAS: Particle Accumulation Structure) が知られているが、これについても、アスペクト比が大きい場合にどのような形状が生起するかは知られていないので、これを探索することを第3の目的とする。

(2)マイクロスケール流体のハンドリングにおいては、スケールが小さくなると回転系の機器はその効果が低下するため、マランゴニ効果を用いたポンプ (以下マランゴニポンプ) が有効であると思われる。これについては、若干数の提案があるもののほとんど研究がなされていないので、これを第一の目的とする。次に、海外研究者との交流の中で、微小液滴のハンドリング (微細ピン分注法) も、マランゴニ効果が有効に作用する実用的にも重要な分野であることがわかった。そこで、これも研究目的の一つとした。

3. 研究の方法

(1)液柱内マランゴニ対流

地上では、アスペクト比が大きいかつ直円柱に近い液柱を形成することは、極めて困難であるが、出来る限り細い液柱 (直径 2 mm 程度) を用いて地上での実験を行う。さらに、「きぼう」での宇宙実験において、 Γ が最大 4.0 までの液柱を形成して、実験を行う。宇宙実験の実施に際しては、貴重な機会を有効に活用するため、地上において出来る限りの準備を行った。たとえば、「きぼう」の実験では、安全上実験セル内はアルゴンガスで置

換されており、また自然対流の条件が異なるため、地上においてもアルゴンガス雰囲気内での実験を行うとともに、空気の対流抑制板を設置して、自然対流を抑制する等の準備研究を行った。さらに、平行して数値シミュレーションを行い、出来る限り宇宙での実験の予測に努めた。

(2)マイクロスケール流体のハンドリング

マイクロポンプの実験では、流路幅が 1mm の微細流路を製作し、流れ方向に温度こう配を付加して、微少流量の輸送実験を行った。さらに数値シミュレーションを行い、実験と比較することとした。

微小液滴のハンドリングでは、微細ピン分注法の実験を行い、マランゴニ効果を用いて、ピコリットルクラスの微小液滴の体積コントロール方法を開発する。

4. 研究成果

(1)液柱内マランゴニ対流

①地上において直径が 1.5~2.0mm の細い液柱を形成し、出来る限りアスペクト比の大きな液柱を実現して、振動流への遷移条件や生起する流れ場のモード数を実験的に求めた。

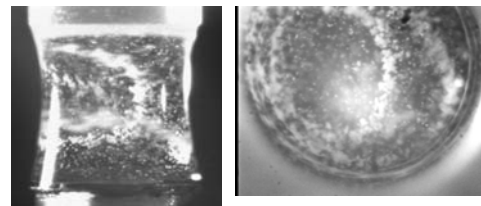


図1 アスペクト比の大きな液柱と観察された PAS (モード数 = 1 : SL=II), (左:側面, 右:端面からの観察)

図1は、その観察画像で、粒子集合現象 (PAS) も観察される。アスペクト比が大きいときの PAS には、2種類が観測された。一つは、図1に示すとおり、上から見ると円弧を2度巻いているもので、これを SL-II と呼ぶ。もう一つは、図2に示すように一重の円弧から構成される SL-I である。温度差を次第にあげていくと、まず SL-II が観測され、次に SL-I が観測された。粒子を追跡する詳細な解析の結果、SL=II では、まだ温度差が小さくて流れが遅いため、流体内部に進入した粒子が再度表面に現れる前に、表面の温度波が一度以上周方向に伝播するために、このような波形になることがわかった。

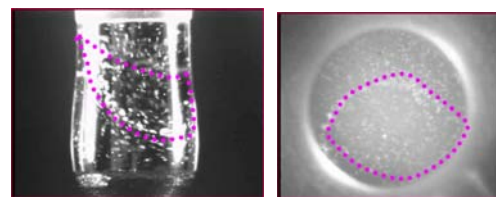


図2. 観察された PAS (モード数 = 1 : SL-I).

② アスペクト比とモード数の関係については、従来は、モード数とアスペクト比の間には、 $m\Gamma$ の積がおよそ2.0~2.2になると言われていた。今回実験したアスペクト比の大きな範囲までの関係を、図3に示す。これによって、2以上になると、この積の値が大きくなり、3.0近くまでに達することがわかった。

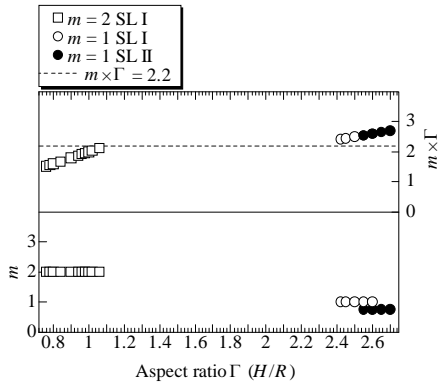


図3 アスペクト比とモード数の関係 (アスペクト比の大きな範囲を含む)

③ 周囲気体の影響

「きぼう」の実験では、安全性のために実験雰囲気はアルゴンガスに置換される。そのため、周囲気体がアルゴンガスの場合の実験を、あらかじめ地上で出来る範囲のアスペクト比で実験した。

	Ma_c	SL-I	SL-II
Air	○	△	□
Argon	●	▲	■

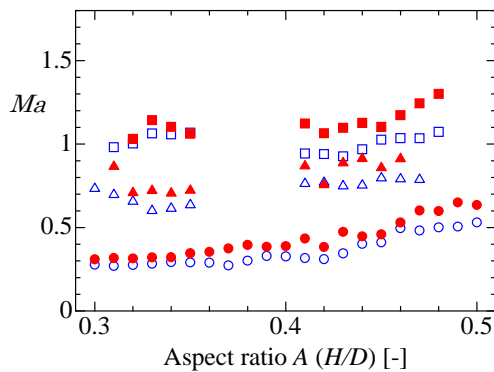


図4 周囲気体の影響 (空気とアルゴンの比較: A=液柱の高さ(H) / 直径(D))

図4に実験結果を示す。臨界マランゴニ数 Ma_c は、周囲気体がアルゴンガスのときの方が、高かった。これは、アルゴンガスの熱伝導率が空気よりも小さいため、液柱からの放熱が減少するためである。一般に、周囲気体中对流の抑制板を置く実験においても、臨

界マランゴニ数の上昇が見られており、これと同傾向が現れたものと考えられる。なお、マランゴニ数 Ma の定義は、以下の通りである。

$$Ma = \frac{\sigma_T \Delta T H}{\rho \nu \kappa} = Re_\sigma \cdot Pr$$

- ΔT : 液柱の両端面の温度差
- H : 液柱高さ
- σ_T : 表面張力の温度係数
- ρ : 液体の密度
- ν : 液体の動粘性係数
- κ : 液体の温度拡散係数

④ 日本実験棟「きぼう」における実験

以上の他にも、粒子の放出実験、周囲気体の自然対流効果抑制に関する実験等の準備を重ねて、2008年8月22日、「きぼう」における最初の科学実験として、流体物理実験を開始した。液柱の直径は、30mm、液体は5cStのシリコンオイルである。液柱の概念図を、図5に示す。

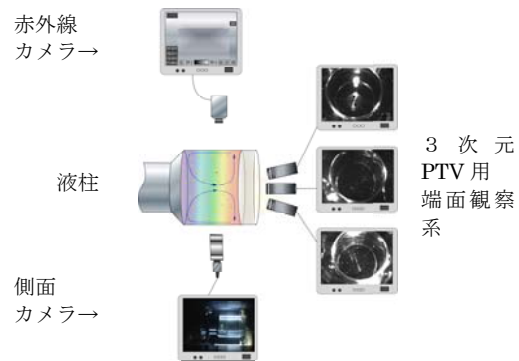


図5 きぼう実験用液柱概念図

これらに基づき、22日に実験を開始し、最初の液柱を成功裡に形成すると共に、温度差を付加することにより、マランゴニ対流を発生することが出来た。(図6)

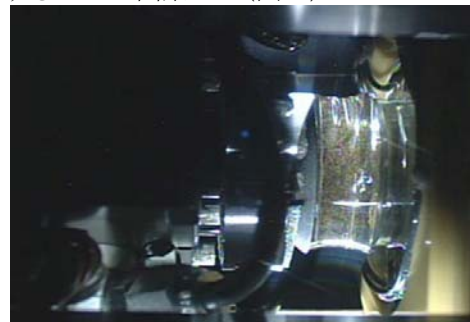


図6 実験初日に形成した液柱

実験は、本科研費の研究代表者がPI(代表研究者)となり、CI(共同研究者)3名が学生各3名と共に四つのチームを構成し、交代で当番に当たることにより実施した。実験時

には、筑波の JAXA 内に設けられた UOA (User Operation Area) に二つのチームが入り、地上からの遠隔コマンドによって装置を操作する。実験中は側面や端面からの画像、いくつかの測定点の温度、ディスクの位置等が、リアルタイムでダウンリンクされるので、実験者は、それらを見ながら、実験を進める。実施してみると、ディスクの位置は 0.1mm まで、液量は 0.01cc まで正確に制御可能で、液体温度の変動も 0.01K のオーダーまで測定可能で、装置は非常に良好に作動することが確認された。

実験は、装置の振動 (g-jitter) による液柱の崩壊を避けるために、クルーの睡眠時間中 (日本時間では午前 6 時から午後 3 時) に実施した。液柱は、毎日の実験終了時には収納した。

実験開始後の初期の液柱には複数の気泡が混入しており、単に圧迫する等の方法では破裂しなかったが、マランゴニ対流効果を利用することにより破裂させようことを見出し、気泡の除去に成功した (図 7)。このような、気泡除去によるリカバリーは、実験時間の限られたロケットやスペースシャトルの実験では不可能で、宇宙ステーション実験のメリットを、最大限に利用できたと考えている。

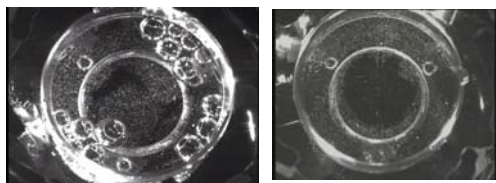


図 7 気泡の混入 (左) とその除去後 (右)

マランゴニ対流が振動的になる臨界温度差 (臨界マランゴニ数) については、これまでのロケット実験の結果による大きな直径の液柱では、地上実験から得られた臨界マランゴニ数に比して、非常に大きな値が得られており、これがパラドックスとなっていた。しかし、今回得られた実験結果では、これまでの地上実験の結果の臨界マランゴニ数と比較して、同じオーダーの妥当な結果が得られている。これは、ロケット実験では、実験時間が 10 分程度であるため、太い液柱を用いると液柱の太さに比して、実験時間が充分でなかったのに対し、今回は宇宙ステーション実験の特徴を生かして、充分な時間をかけた実験を実施することが出来たためである。

振動流における周方向の周期性 (モード数) と液柱アスペクト比の関係については、地上での予備実験からは予測しなかった結果が得られた。すなわち、宇宙実験では、おなじアスペクト比に対し、地上実験で得られたモード数よりも小さなモード数が発現し

た。この傾向は、平行して実施した数値シミュレーションによっても確認された。これは、地上実験では、実験の遂行上、上部ディスクを加熱して行うため、粒子が液柱内国入り込みにくく、重力の有無によって、浮力の効果が異なるためである。

今回の一連の実験の最大の成果の一つは、アスペクト比 Γ が 4.0 の液柱を形成し (図 8)、長い液柱での臨界温度差を測定すると共に、Hydrothermal wave の伝播を視覚的に捉えることが出来たことにある。

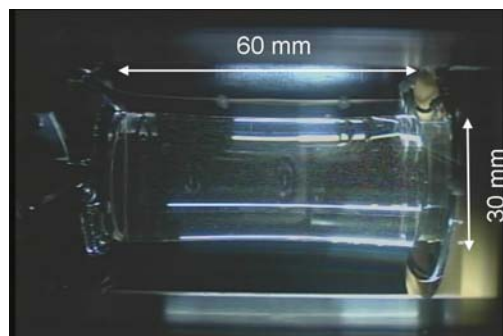


図 8 形成したアスペクト比 $\Gamma=4.0$ の液柱

このような長い液柱については、これまで一例だけロケットを使って行われた実験があったが、熱電対で測定したもので、波の伝播の方向が、提案されていた理論と逆であるところから、長年パラドックスとなっていた。今回、大きな液柱と赤外線温度計を備えた実験装置を用いることにより、世界的にも初めてこの波を視覚的に捉えることが出来た (図 9)。結果は、理論の示す伝播方向と一致し、この種の不安定現象の原因を確定することが出来た。

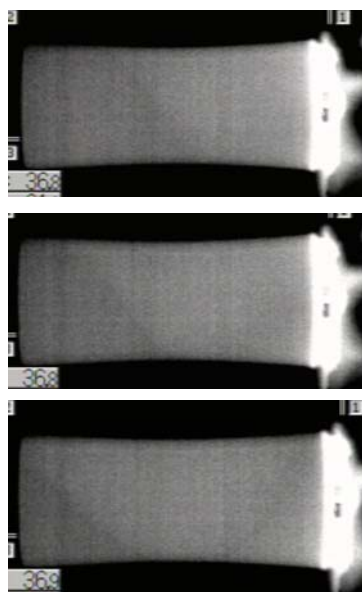


図 9 長い液柱の表面を、高温側から低温側へ伝播する Hydrothermal wave.

さらに、アスペクト比の広い範囲について、臨界マランゴニ数を求め、可能な範囲で、従来の地上実験と比較した。地上実験が可能な範囲では、無重力下の臨界マランゴニ数は、重力下のそれよりも低い値を与え、地上実験では、重力の影響が大きいことを示した。アスペクト比の大きな場合の臨界マランゴニ数についても、スケーリング法則を検討した。

今回の一連の宇宙実験では、粒子集合現象 (PAS) は、観測されなかった。宇宙実験では液柱の直径は 30mm と大きくしたが、可視化のための粒子径は、30 μ m 程度で、比例的には大きくなっていない。これが、宇宙実験で PAS の発生しなかった理由ではないかと考えているが、詳細は、明かではない。次回の宇宙実験では、より大きな粒子径を採用して、PAS が発生するか否かを観察し、PAS 発生の原因の解明に資することとしている。

他方、実験の途中で直径 30mm の大きな半球状の液滴が形成されたため、半球状の液滴の先端部分を冷却面に接近させて、液滴のマランゴニ対流実験を実施したところ、図 10 に示すような、液滴先端部分から粒子の筋が、回転しながら吹き上げてくる一種の粒子集合現象が観察された。これは、今後の新たな研究課題を与えるものである。

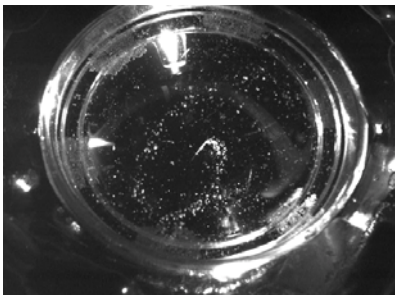


図 10 半球液滴内の粒子集合現象

これらの結果は、2008年10月に、本研究代表者が主催して東京理科大学野田キャンパスにおいて開催した国際会議 (IMA4: The 4th International Marangoni Association Conference) において、発表した。この会議は、マランゴニ対流等の界面流体力学に関する専門家のトピカルミーティングで、世界各国 (米、独、仏、ベルギー、露、ルーマニア、イスラエル、トルコ、インド、中国) からの 25 人の参加者を含め、活発な討論を行った。本学会は、宇宙ステーションや人工衛星を利用したマイクロ重力環境における流体物理実験に関わる専門家の会合でもあり、研究者のみならず、JAXA やヨーロッパ宇宙開発機構 (ESA) からも参加があった。この国際会議において、はじめて今回の結果を公表した。とくに上記の温度波の伝播や、幅広いアスペクト比に対する振動流開始の実験データは、参加者の強い関心を呼んだ。また我が国の宇宙実験技術に

についても、高い評価を得た。

(2) マイクロスケール流体のハンドリング

①マランゴニ効果を用いたマイクロポンプについては、従来は、輸送方法に垂直に周期的な固体フィンを配置し温度こう配を印可する方式が一般的であったが、平行したフィンを輸送方向に平行に配置し、これに温度こう配を印加する方式を考案した。このとき液体は、3次元的な流線に沿ってではあるが、平均的には温度こう配と平行に流れ、より少ない抵抗で流体輸送の目的を達成できることを、実験と解析から示した。これについて、国際会議にも発表し、また、特許出願を行った。

②マイクロ液滴のハンドリング (微細ロッド分注法) については、図 11 に示すような実験装置を作成し、一連の実験を行った。

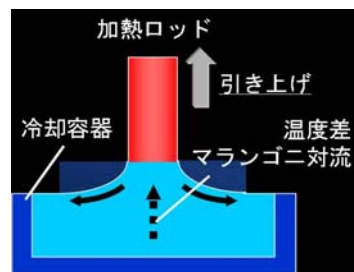


図 11. 微細ピン分注法概念図

すなわち、微細ロッド (直径 2mm 程度) をいったん試料液体中に浸潤させ、それを引き抜く。このとき、ロッドに付着した液体は、液柱状になっていったん引き上げられるが、ある高さで破断し、微小な体積がロッド端面に残存する。(図 12)

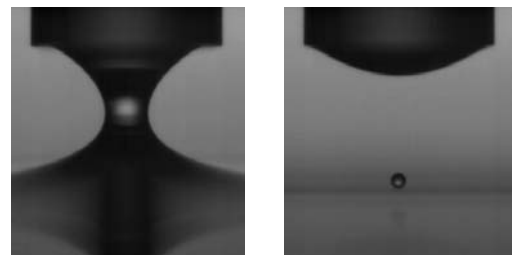


図 12 ロッド引き抜き途中と端面への液滴形成

まず、液柱がくびれた状態 (左) になり、次に液体が破断しロッド端面にマイクロ液滴が取り出される。さらに微細な液滴は、副次的に発生したもので、後に吸収される。このとき取り出される液滴体積は、ロッドの直径の 3 乗とボンド数できまるほぼ一定値となる。他方、ロッドと液体の間に温度差を付加すると、液体表面にマランゴニ対流が発生し (図 11 参照)、ロッド端面に残存する液滴の体積を制御しうることを示した。

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) 植村 豪, 河村 洋, マランゴニ効果を用いたナノリットル液滴の体積制御, *Thermal Science & Engineering*, Vol. 16No. 2, 63-70, 2008, 査読有

(2) 原島正和, 川目悟史, 河村 洋, 液柱内マランゴニ対流に対する周囲気体の熱伝達の影響, *Thermal Science & Engineering*, Vol. 15 No. 3, 119-127, 2007, 査読有

(3) K. Matsunaga, H. Kawamura, Influence of thermocapillary convection on solid-liquid interface, *Fluid Dynamics & Materials Processing*, Vol. 2No. 1, 59-64, 2006, 査読有

(4) 工藤正樹, 河村 洋, 液柱内温度差マランゴニ対流の振動流に対する全周加熱制御, *Thermal Science & Engineering*, Vol. 14 No. 2, 19-25, 2006, 査読有

(5) S. Tanaka, H. Kawamura, I. Ueno, D. Schwabe, Flow structure and dynamic particle accumulation in thermocapillary convection in a liquid bridge, *Physics of Fluids* 18, 067103, 11 pages, 2006, 査読有

(6) M. Kudo, J. Shiomi, I. Ueno, G. Amberg, H. Kawamura, Experiment on multimode feedback control of nonlinear thermocapillary convection in half-zone liquid bridge, *Advances in space research*, 36 巻, 57 - 63, 2005, 査読有

[学会発表] (計 40 件)

(1) 河村 洋, 西野耕一, 大西 充, 上野一郎「きぼう」での流体物理実験 -マランゴニ対流におけるカオス・乱流とその遷移過程, 第25回宇宙利用シンポジウム, 2009/1/14, 宇宙航空研究開発機構・相模原キャンパス

(2) H. Kawamura, K. Nishino, M. Ohnishi, I. Ueno, S. Matsumoto, Report on a microgravity experiment of Marangoni convection in a liquid bridge using the test facility "Kibo" on the International Space Station, Proc. of IMA4(The 4th International Marangoni Association Conf.) 41-42, 2008, Noda, Japan.

(3) K. Hirokawa, H. Kawamura Effect of Volume Ratio and Diameter on Thermocapillary Convection in a Half-zone Liquid Bridge Proc. of IMA4(The 4th International Marangoni Association Conf.) 41-42, 2008, Noda, Japan.

(4) Kenji SUGIMOTO, Kaoru IWAMOTO, Hiroshi KAWAMURA, A Micropump Driven by Marangoni Effect, Proceedings of 2007 ASME-JSME Thermal Engineering Summer Heat Transfer

Conference. 32639:1-5. 2007 査読有
他 36 件

[図書] (計 1 件)

H. Kawamura, I. Ueno, Review on thermocapillary convection in a half-zone liquid bridge with high Pr fluids, in *Surface Tension-Driven Flows and Applications*, Research Signpost, 2006, pp.1-24.

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 温度差マランゴニ効果を利用したマイクロポンプ

発明者: 河村 洋, 杉本賢司

権利者: 東京理科大学

番号: 特願 2007-065447

出願年月日: 2007/3/14

国内外の別: 国内

[その他]

報道関連情報

(1) NHK ニュース PM12:00~ (2008/8/22)

(2) 朝日新聞夕刊、毎日新聞夕刊、東京新聞夕刊、日本経済新聞夕刊 (2008/8/22), 読売新聞朝刊 (2008/8/23) 「きぼう」で初の科学実験始まる, 他

(3) 産経新聞朝刊 (2008/8/25) 「きぼう」で科学実験開始 計画大きな節目

(4) 読売新聞 (2008/8/31) 「サイエンス学び」日本の宇宙実験 幕開け 「きぼう」マランゴニ対流を検証

(5) 朝日新聞朝刊 (2008/9/8) 「探究人」欄「きぼう」初の科学実験を指揮

(6) 日経産業新聞 (2008/10/6) 液体の柱, 最長 6 センチ

(7) 日経サイエンス 2008 年 12 月号 TREND 宇宙ステーションで始まった日本の実験

ホームページ:

<http://murasun.me.noda.tus.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

河村 洋 (KAWAMURA HIROSHI)

諏訪東京理科大学・システム工学部・教授
研究者番号: 80204783

(2) 研究分担者

① 上野 一郎 (UENO ICHIRO)

東京理科大学・理工学部・講師

研究者番号: 40318209

② 岩本 薫 (IWAMOTO KAORU)

東京農工大学・共生科学技術研究院・准教授

研究者番号: 50408712

(平成 19 年度末、勤務先の異動と役割分担課題の終了のため途中辞退)

(3) 連携研究者 なし