

令和 2 年 5 月 18 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06158

研究課題名（和文）界面活性剤の界面安定化効果を用いた高流量用マイクロ流路内テイラー流生成器の開発

研究課題名（英文）Development of Taylor flow generator by making use of interface stabilization effect of surfactant

研究代表者

林 公祐（Hayashi, Kosuke）

神戸大学・工学研究科・准教授

研究者番号：60455152

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：界面活性剤を用いることにより、気泡分裂のタイミングを変えてテイラーユニット長を数%変化させられること、界面の振動を低減し、清浄系では非一様となる高流量でも一様性の高いテイラー流が形成できることを実証した。また、テイラー流特性を詳細に調べたところ、テイラーユニット長変化の傾向は分裂モードによって全く異なることを発見した。さらに、幅広い界面活性剤濃度において実験を行うことで、本特性を表面張力変化とマランゴニ応力から説明した。これらの特性は流路幅200 μm, 500 μm（いわゆるマイクロチャネルとミニチャネル）ともに同じであることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により実証した、界面活性剤を応用した高流量テイラー流生成器の基盤技術は、マイクロ反応器などの微細流路機器の高効率化に向けた応用が期待できることから、その波及効果は大きく、微細流路を利用する諸工業の発展に寄与できるという点で工業上の意義があると考えられる。また、界面活性剤を含むテイラー流に関する研究例及び系統的なデータベースはこれまでにほとんどなく、多くの関連学問（流体力学・化学工学・エネルギー環境工学など）における高い学術的意義も有している。

研究成果の概要（英文）：This study presents findings on the dynamics of Taylor flows in mini- and micro-channels as follows. The length of a Taylor unit can be controlled by adding surfactant, which affects the bubble breakup position. The presence of surfactant also mitigates shape oscillations of Taylor bubbles in the downstream due to the Marangoni stress. According to the above results it is concluded that the addition of surfactant enables us to control the uniformity of a Taylor flow and to suppress bubble shape oscillation even at a high flow rate. It is of great interest that the dependence of the Taylor bubble length on the surfactant concentration strongly depends on the bubble breakup mode, which is attributed to the surface tension reduction and the Marangoni stress. The present findings are valid at least for air-water Taylor flows in a channel size from 200 to 500 μm.

研究分野：流体力学

キーワード：微細流路 マイクロチャネル 気泡 界面活性剤 マランゴニ効果

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

プロセス強化の観点から、微細流路を用いたマイクロ反応器や微細構造生成装置の重要性が増している。流路断面積のほとんどを占める砲弾型気泡（テイラー気泡）が連続して流れるテイラー流は、熱・物質移動の観点から最も効率が高い流動様式である。テイラー流中のひとつの気泡とそれに続く流体領域（液スラグ）をあわせてテイラーユニットと呼ぶ。均質な反応生成物や一様な微細構造を得るための要は、テイラーユニットが一様かつ気泡形状が安定な流れを形成することにある。気泡生成形態の分類やテイラーユニット長に関する研究は国内外ともに多くの報告例があり、最近では T 型合流部により生成したテイラーユニット長の一様性に関する研究例が報告されているが、低流量の条件を対象にしていることが多い。その主な理由は、高流量になると慣性力の影響が大きくなるため気泡分裂が早期に生じてテイラー気泡にならない、テイラー気泡を形成できても気泡後端に形状振動を生じる、の 2 点にあると考えられる。より高効率（高プロセス速度）なマイクロ反応器・微細構造生成器を実現するには、高流量でも一様かつ気泡形状が安定なテイラー流を形成できる気泡生成器を開発することが重要である。既存の研究はテイラー流形成モードの分類やテイラーユニット長を調べるにとどまっており、気泡力学的に流れを制御して高流量でも最適なテイラー流を得ようとした研究例は見受けられない。

2. 研究の目的

研究代表者はこれまでに液相中に溶解した界面活性剤が吸着した気泡（汚染系気泡）の実験及び数値計算を実施し、鉛直円管内ミリ～センチサイズ汚染系テイラー気泡の上昇運動に及ぼす界面活性剤の影響に関するモデルを得た。その過程で、界面活性剤の吸脱着特性により気泡界面上の界面活性剤濃度分布が大きく異なること、例えば非イオン系高分子 Triton X-100 はテイラー気泡後端に集中することを見出した。また、界面活性剤の吸着により表面張力が低下し、表面張力勾配に起因するマランゴニ応力が気泡後端の表面張力波を減衰・形状振動を抑制することも確認した。気泡後端に界面活性剤が集中するのは移流の効果によるため、マイクロ流路における気泡離脱時には、界面活性剤は気相先端側に吸着し、気泡離脱を遅らせる（離脱気泡径を大きくする）ものと考えられる。さらに、テイラー気泡からの物質移動の多くは気泡先端と気泡-壁面間液膜部で起こり後端部の寄与は低いこと、そのため Triton X-100 が吸着しても物質移動係数はほとんど影響を受けないことも明らかにした。しかも、Triton X-100 は少量でも上述の効果を発揮する。これらの界面活性剤の効果を利用すれば、現行テイラー流生成器を高流量プロセスに適用できない原因、すなわち高流量における気泡サイズの不十分さ、及び生成気泡の形状振動によるテイラー流の非一様性を解決できるという着想に至った。そこで本研究では、界面活性剤を利用して気液界面の力学的バランスを操作することで、高流量でも一様かつ安定なテイラー流を形成できる気泡生成器を開発することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究の要である界面活性剤による微細流路内気泡サイズ・形状振動制御の実証実験では、微細流路を親水性アクリル樹脂のマイクロ CNC 加工により製作した。流路幅は関連研究で典型的な $200\ \mu\text{m}$ と $500\ \mu\text{m}$ とした。まず清浄な純粋中の窒素気泡に対して種々の気液流量比の気泡形状実験データベースを取得し、大きさの不十分なテイラー気泡が形成されかつ気泡後端に形状振動を伴う高流量条件を特定した。本条件において、Triton X-100 を混入した汚染系気泡実験を行い、気泡サイズ及び気泡後端形状に及ぼす界面活性剤の効果を検証した。微細流路内の気泡形状及び形状振動特性を正確に捉えるため、空間分解能の高いマイクロスコープと時間分解能の高い高速度カメラを組み合わせて気泡観察を行なった。また、汚染系気泡の数値予測技術の開発、汚染系気泡に働く流体力のモデリングを通じて実用上必要となる知見を整備した。

4. 研究成果

(1) ドリッピング形態の気泡分裂

図 1 (a) に流路幅 $D = 500\ \mu\text{m}$ の T 字部における清浄系気泡分裂過程を例示する。液相は直線的主流路の上流から、気相は直線流路に接続された副流路からそれぞれ T 字部に流れ、T 字部下流にて気相分裂が生じている。気相が主流路断面を占める割合が大きくなると液相流路面積が小さくなるため流速が増し、界面せん断が強くなる。気相は主流路全体に広がる前に分裂し、気泡となって下流に流れている。このような分裂形態は De Menech ら (引用文献①) の数値的研究においてドリッピングモードと呼称されている形態に相当する。なお、気泡生成は周期的であった。図 (b) に示す濃度 $C = 0.1\ \text{mol/m}^3$ の汚染系での分裂の様子をみると、界面活性剤の影響により分裂時の気泡が長くなっている、すなわち界面活性剤の存在により気泡分裂が阻害されていることがわかる。この結果は研究開始前に予想したマランゴニ応力の作用による分裂遅延効果を実証するものである。さらに界面活性剤濃度を臨界ミセル濃度 (CMC: Critical Micellar Concentration) まで増加させたときの分裂の様子を図 (c) に示す。(b) と同様に分裂遅延が生じている。しかし、図 (d) に示すように CMC を超えて濃度を増加させると、(c) よりも気泡は短くなっており、分裂遅延効果が低下していることがわかる。Stebe ら (文献②) は通常口径管内気泡流のシナリオにおいて、界面活性剤濃度が CMC よりも高くなると、界面上界面活性剤濃度が飽和するため、界面活性剤濃度勾配が低減し、マランゴニ応力はむしろ小さくなると指摘している。本実験の (c) から (d) への状態の遷移は Stebe らのシナリオを用いて概ね説明できる。

(2) ドリッピング形態のテイラーユニットの一様性

図2は120D下流におけるテイラー流の様子である。 $C < \text{CMC}$ (b), (c)の気泡は清浄系気泡(a)よりも長くなっており、分裂遅延がテイラー気泡長増加につながっている。一方、 $C = 0.50 \text{ mol/m}^3$ ($> \text{CMC}$) (d)のテイラー気泡長は、気泡が切れるのが早いため $C = 0.10 \text{ mol/m}^3$ の場合と同程度になっている。

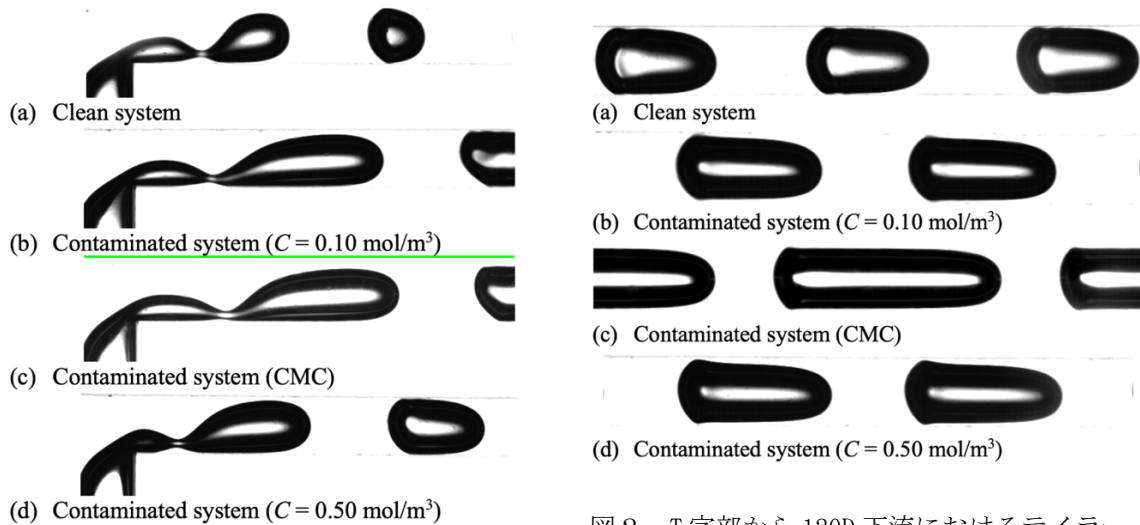


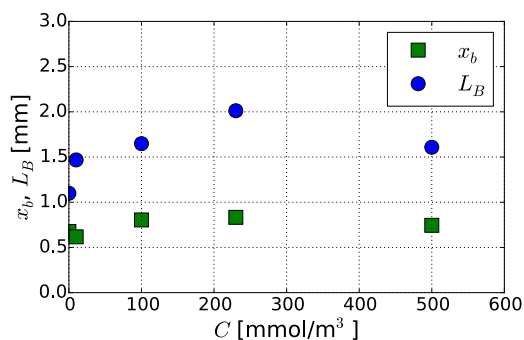
図1 T字部における気泡分裂 ($D = 500 \mu\text{m}$, $(J_L, J_C) = (0.67 \text{ m/s}, 0.75 \text{ m/s})$).

図2 T字部から120D下流におけるテイラー流 ($D = 500 \mu\text{m}$, $(J_L, J_C) = (0.67 \text{ m/s}, 0.75 \text{ m/s})$).

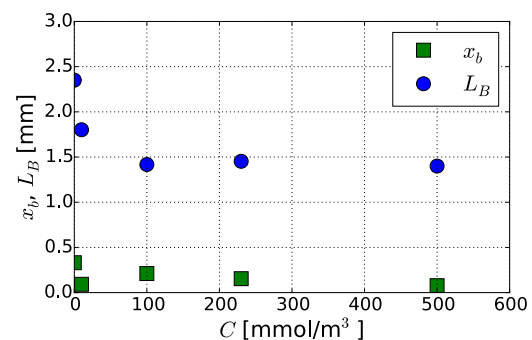
(3) ドリッピング・スクイーピング形態におけるテイラー気泡長

画像処理により気泡が分裂する位置 x_b (T字部エッジからの距離) 及び下流におけるテイラー気泡の長さ L_B を計測した。図3 (a)にドリッピング形態における x_b と L_B に及ぼす界面活性剤の影響を示す。上に議論したように、界面活性剤の濃度が増加するとはじめは分裂遅延効果により L_B は増加するが、非常に濃度が高くなるとむしろマランゴニ効果が弱くなって L_B が低下していることがはっきりとわかる。

ドリッピング形態よりも液相速度を低くすると、気相が主流路断面のほとんどを占めるほどに成長してから分裂するスクイーピング形態になる。スクイーピング形態における x_b 及び L_B を図3 (b)に示す。スクイーピング形態では界面活性剤濃度の増加とともに L_B が低下するが、さらに濃度を増加させても L_B は濃度に依存しなくなる。このようにドリッピング形態とは大きく異なる傾向になるのは、スクイーピング形態ではマランゴニ応力がそれほど強くなく、表面張力低下による分裂促進が支配的であることを示唆している。この分裂形態による違いは、学術的に興味深いだけでなく、界面活性剤を利用したテイラー気泡長制御の観点からも非常に重要である。



(a) ドリッピング形態



(b) スクイーピング形態

図3 分裂位置と気泡長さ ($D = 500 \mu\text{m}$) .

(4) 流路幅 $D = 200 \mu\text{m}$ におけるテイラー気泡長

図4に流路幅 $D = 200 \mu\text{m}$ におけるスクイー징形態のテイラー気泡を例示する. $D = 500 \mu\text{m}$ の場合と同様に, 界面活性剤濃度の増加とともにはじめはテイラー気泡長は減少するが, ある濃度以上では濃度依存性が見られない. ドリッピング形態においても $D = 500 \mu\text{m}$ と同じ傾向を確認した. よって, 本実験範囲 ($D = 500 \mu\text{m}$ はしばしばミニチャネル, $D = 200 \mu\text{m}$ はマイクロチャネルに分類される) においてはテイラー気泡長の濃度依存性は主として分裂形態に依存し, 流路幅による違いは小さいといえる.

(5) 界面活性剤による一様性向上及び界面振動抑制効果

図5(a)に高流量における清浄系気泡を例示する. ふたつの連続したテイラー気泡は合体しないがほとんど距離なく連結しており, テイラーユニットが不均一になっている (Consolidated Taylor Flow). さらに気泡後端には表面張力波が生じている. ここに界面活性剤を濃度 $C = 0.1 \text{ mol/m}^3$ で添加すると, (b)に示すように気泡は離れて(a)よりも一様性の高いテイラー流になっている. しかしながら, 液膜厚さは理想的なテイラー流に比べて変化が大きい. ところが, CMC程度以上まで濃度が増加すると, (c), (d)に示すように, 一様性と形状の両方の観点から理想的と言って良いテイラー流が実現できている.

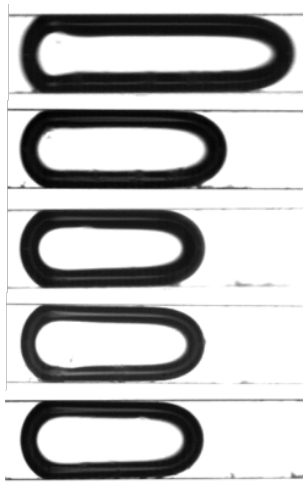


図4 $D = 200 \mu\text{m}$ のテイラー気泡 (上から $C = 0, 10, 100, 230, 500 \text{ mol/m}^3$)

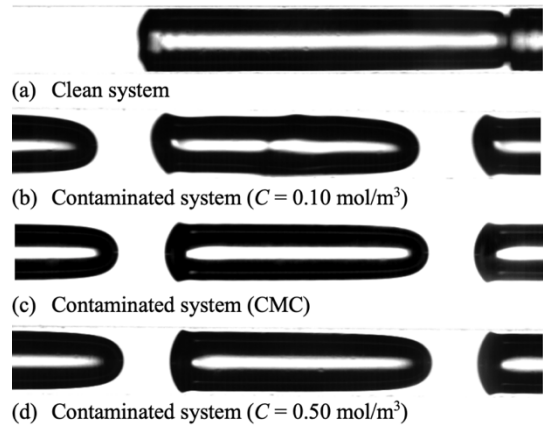


図5 T字部より $120D$ 下流の流れ ($D = 500 \mu\text{m}$, $(J_L, J_c) = (0.67 \text{ m/s}, 1.87 \text{ m/s})$).

(6) 気泡に作用する流体力

気泡に作用する抗力や揚力などの流体力を把握しておくことは, 微細流路内気泡流の応用, 制御の観点から重要である. 本研究では, 汚染系気泡の数値シミュレーション技術を開発し, 気泡に働く揚力に及ぼす界面活性剤の影響を検討した. その結果, マランゴニ応力が支配的でない場合は, 界面活性剤による表面張力の低下分を考慮すれば清浄系気泡用の揚力モデルが適用できることを明らかにした. ところが, 信頼できる清浄系気泡用揚力モデル自体が不足していることから, 清浄系気泡用揚力相関式を開発した.

<引用文献>

- ①De Menech, M., Garstecki, P., Jousse, F., Stone, H. A., Transition from squeezing to dripping in a microfluidic T-shaped junction, *Journal of Fluid Mechanics* 595, 141 (2008)
- ②Stebe, K. J., Lin, S.-Y., Maldarelli, C., Remobilizing surfactant retarded fluid particle interfaces, *Physics of Fluids A: Fluid Dynamics* 3, 3 (1991)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kosuke Hayashi, Dominique Legendre, Akio Tomiyama	4. 巻 -
2. 論文標題 Lift Coefficients of Clean Ellipsoidal Bubbles in Linear Shear Flows	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kosuke Hayashi, Akio Tomiyama	4. 巻 99
2. 論文標題 Effects of Surfactant on Lift Coefficients of Bubbles in Linear Shear Flows	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 International Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 86-93
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2017.10.003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 奥居 柊哉, 林 公祐, 芳田直征, 細川茂雄, 富山明男
2. 発表標題 微細流路内テイラー流に及ぼす界面活性剤の影響
3. 学会等名 日本流体力学会年会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Hayashi
2. 発表標題 Interface Capturing Methods
3. 学会等名 4th Workshop on Advances in CFD and LB Modeling of Capillary Two-Phase Flows
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 奥居柊哉, 林公祐, 芳田直征, 細川茂雄, 富山明男
2. 発表標題 微細流路内テイラー流に及ぼす界面活性剤の影響
3. 学会等名 日本流体力学会年会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kosuke Hayashi
2. 発表標題 Interface Capturing Methods
3. 学会等名 4th Workshop on Advances in CFD and LB Modeling of Capillary Two-Phase Flows
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 林 公祐
2. 発表標題 管路内気泡・液滴の運動に及ぼす界面活性剤の影響
3. 学会等名 第20回気液固分散工学サロン(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Hayashi, D. Suzuki, R. Kurimoto, S. Hosokawa, A. Tomiyama
2. 発表標題 Effects of Surfactant on Bubble Breakup at T-Junction and Characteristics of Taylor Flows in Mini and Micro Channels
3. 学会等名 10th International Conference on Multiphase Flow(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 林 公祐, 酒井航平, 細川茂雄, 富山明男
2. 発表標題 可溶性界面活性剤により汚染された球形液滴の数値シミュレーション
3. 学会等名 日本流体力学会年会2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Hayashi
2. 発表標題 Interface Capturing Methods
3. 学会等名 3rd Workshop on Advances in CFD and LB Modeling of Capillary Two-Phase Flows
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kosuke Hayashi, Shigeo Hosokawa, Akio Tomiyama
2. 発表標題 Numerical Simulation of a Drop in Contaminated Systems from Low Concentration to CMC
3. 学会等名 8th European-Japanese Two-Phase Flow Group Meeting (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>Multiphase Fluid Dynamics Lab http://www.lab.kobe-u.ac.jp/eng-mfd/research.html</p>

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
研究 分 担 者	細川 茂雄 (Hosokawa Shigeo) (10252793)	関西大学・社会安全学部・教授 (34416)	
研究 分 担 者	富山 明男 (Tomiya Akio) (30211402)	神戸大学・工学研究科・教授 (14501)	