

令和 4 年 5 月 17 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02058

研究課題名(和文) 不混和界面と混和界面の動力学に関する統一的解釈 - メソスケールでの物質混合機構 -

研究課題名(英文) Unified interpretation of dynamics of immiscible and miscible interfaces -Mixing mechanism of materials at meso-scales

研究代表者

原田 周作 (Harada, Shusaku)

北海道大学・工学研究院・准教授

研究者番号：80315168

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 9,500,000円

研究成果の概要(和文)：液体中に分散した固体微粒子が形成する見かけ上の界面(濃度界面)の動力学的性質、および界面近傍における微粒子の混合現象の解明を目的とした研究を行った。濃度界面の3次元形状測定システムを開発し、重力沈降する微粒子分散系の濃度界面挙動を調べた。その結果、濃度界面の混和性・不混和性が変化することにより種々のモードの沈降形態が出現することが確認された。さらに濃度界面近傍の微粒子の混合現象に関する実験および数値解析を行った。その結果、上下粒子の集団性および沈降速度比の違いにより、粒子スケールの混合(ミクロ混合)と密度不安定に起因した巨視的な混合(マクロ混合)が条件に応じて出現することがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

物質の混合現象は、これまで混合エントロピーの増大といった熱力学的な見地から説明されてきた。本研究によって、このような従来の枠組みとは異なる流体力学的なアプローチによって混合現象を説明することが可能となった。すなわち、液中粒子の集団性や濃度界面の遮蔽性、界面不安定の特性を含む、粒子混合現象に関する理論体系を構築できる可能性を示した。本研究で得られた知見は、比重選別、土砂輸送、固液分離のような各種工学プロセスの理解の一助となるだけでなく、生物対流、綫状堆積層の形成機構、溶岩の大規模な対流形成機構など地球規模の現象を含む広範な学術分野への展開が期待でき、学術的、社会的意義は極めて大きい。

研究成果の概要(英文)：The objective of this study is to elucidate kinetics of micron-sized particulate dispersion and the mixing phenomena of particles at concentration interface. We measured a three-dimensional shape of the concentration interface of particles settling in liquid. The measured results showed that various settling modes appear due to the change in miscibility and immiscibility of the concentration interface.

Experiments and numerical analyses on the mixing of particles near the concentration interface were also performed. The results showed that a particle-scale mixing (microscopic mixing) and a large-scale mixing due to gravity-induced instability (macroscopic mixing) appeared dependent on the collectivity and settling velocity of upper and lower particles.

研究分野：流体力学

キーワード：微粒子分散系 濃度界面 混合

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

液体中に分散した微粒子の集団的な運動は、固液分離や比重選別などの工学プロセスや、河川・海浜の土砂移動、生物対流のような自然現象を理解する上で重要な現象である。このような液中微粒子の集団性は、分散粒子を縁取る見かけ上の界面（濃度界面）が重要な役割を果たすことが古くから知られてきた。例えば **Boycott** 効果として知られる傾斜管中における固体粒子の沈降促進現象は、管内に濃度界面が形成されることにより密度流が誘起されることが一因であると説明されている。研究代表者はこれまで、液体中に分散する粒子の集団性および濃度界面の挙動に関する研究に取り組んできた。その結果、直径  $1\mu\text{m}$ ～数  $100\mu\text{m}$  の微粒子と純粋な液体の間の濃度界面の動力的性質は、粒子の集団性が大きい条件では「界面張力のない不混和界面」と「拡散のない混和界面」の両方の性質と一致することを示した。

微粒子の濃度界面は一般的な流体界面とは異なり、粒子間力や熱運動の影響は顕著ではなく「個々の粒子が引き起こす流れ」が混和・不混和性を決定する。粒子の集団性が十分でない場合には濃度界面の不混和性は保たれなくなり、外部からの他の粒子の侵入を許容するようになる。もし集団性の異なる2つの微粒子分散系が互いに接している場合、濃度界面においてそれぞれの粒子がどのように混合するのであろうか。このような、熱運動や粒子間力による拘束のない濃度界面における粒子の混合機構を明らかにすることにより、メソスケール（熱運動の影響が無視できる空間スケール）における液体中の物質混合現象を本質的に理解するとともに、一般的な不混和界面および混和界面の動力的性質に関する統一的な解釈を試みた。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、以下の2つである。

- ・微粒子分散系の濃度界面の動力的性質が、一般的な不混和界面および混和界面の性質とどのように結びつくのかについて明らかにする。
- ・熱運動（拡散）や粒子間力（界面張力）の影響がない  $\mu\text{m}$  サイズの微粒子の液体中における混合機構を解明する。

上記の2つの目的を遂行するために、微粒子分散系の濃度界面の挙動、および界面近傍の粒子混合現象を実験および数値解析によって調べた。第1の目的に対しては、種々の形状を有する流路内で微粒子の沈降実験を行い、懸濁条件や流路形状が粒子の集団運動や濃度界面の混和性・不混和性にどのような影響を及ぼすのかについて検討を行った。第2の目的に対しては、懸濁条件の異なる2つの微粒子分散系の混合現象に関する実験および数値解析を行い、個々の粒子スケールでの混合現象（マイクロ混合）と、粒子群の集団運動ともなう混合現象（マクロ混合）の関係性を、広範な条件範囲で調べた。

### 3. 研究の方法

#### (1) 粒子分散系の集団的沈降実験と濃度界面の3次元形状測定方法

粒子沈降実験装置を作製し、 $\mu\text{m}$  サイズのガラス粒子および樹脂系の単分散粒子と、複数の粘度を有するシリコンオイルを用いて調整した粒子分散系の沈降実験を行った。実験装置は種々の形状を用意し、装置材料を液体の屈折率と合わせることで内部の微粒子挙動の観察を可能とした。さまざまな集団性を有するように調整した微粒子分散系を、実験装置上部に仕切りを介して静置させた後、濃度の不連続面（濃度界面）が形成されるように重力沈降させた。実験では、仕切りを引き抜いた後の濃度界面の形状を光切断法により計測した。装置下部からレーザーシート光を断面照射し、電動ステージでスキャンして断面画像を積層することで濃度界面の3次元形状を再構成した。本実験により、微粒子分散系の連続体としての運動（沈降速度、界面形状の変化）を調べ、濃度界面の挙動が、一般的な混和界面および不混和界面の動力的性質とどのように関係し、微粒子の集団運動にどのように影響を及ぼすのかについて調べた。

#### (2) 濃度界面近傍の微粒子混合現象に関する実験方法

粒子混合実験装置を作製し、濃度界面近傍における粒子の混合現象に関する実験を行った。懸濁条件の異なる2種類の微粒子分散系を、シリコンオイルおよびガラス製単分散粒子によりそれぞれ調整し、中央部に仕切りを有する実験装置の上下に静置させた。その後、仕切りを引き抜くことによって生じる上下粒子の混合挙動を撮影した。一部の条件では、紫外線を照射することにより異なる波長に発光する合成吸着剤をコーティングした蛍光粒子を実験に用いた。実験装置外部から照射したUVレーザーで蛍光粒子を励起、発光させ、テレセントリックレンズを取り付けたカラーカメラで接写撮影を行った。得られた実験画像を分光することにより粒子の判別を行い、画像解析によって濃度界面近傍における各粒子の輝度を算出し、混合度を定量化した。

#### (3) 微粒子混合現象に関する数値解析方法

粒子混合実験に対応した条件で、point force型two-way-coupling法を用いた微粒子運動の数値解析を行い、濃度界面近傍における混合現象の詳細を調べた。数値解析では、集団性の異なる2種類の粒子分散系を積層させ、その濃度界面近傍における粒子の相対運動を詳細に調べた。また周囲

の流体運動を可視化し、濃度界面を横切る流れがどの程度存在するのかを調べることで、濃度界面の遮蔽性に関する検討を行った。さまざまな粒子・流体物性および懸濁濃度を变化させた条件で数値解析を行い、液中微粒子のメソスケールの混合現象に関する定量的な考察を行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) 微粒子の集団運動と濃度界面の性質

種々の形状を有する流路中において、拘束力のない微粒子分散系の濃度界面がどのような性質を有し、粒子の集団運動にどのような役割を果たすのかについて、実験によって解明を試みた。研究成果の一例として、図1に飽和多孔質体中における微粒子の沈降速度の実験結果を示す。実験結果から、微粒子の集団性の違いにより種々のモードの沈降様式が出現することが確認された。集団性が小さい条件では濃度界面は混和的であり、粒子は鉛直方向に個別的に沈降する(1次元沈降)。このような条件では沈降速度は理論的に得られる単一粒子の沈降速度(Stokes沈降速度  $U_{St}$ ) とほぼ一致する。それに対して集団性が大きい条件では濃度界面の不混和性が増加することにより、下部液体との体積置換効果に起因した3次元分散挙動(3次元沈降)が生じ、沈降速度は数10倍にも促進されることがわかった。このような沈降形態の推移は、微粒子の濃度界面が不混和界面から混和界面へと推移することによって生じる。粒子と流体の物性、懸濁濃度、多孔質体の空隙スケールを種々に变化させて実験を行った結果、沈降形態の推移および沈降速度の変化が1つの無次元数により整理されることを確認した。

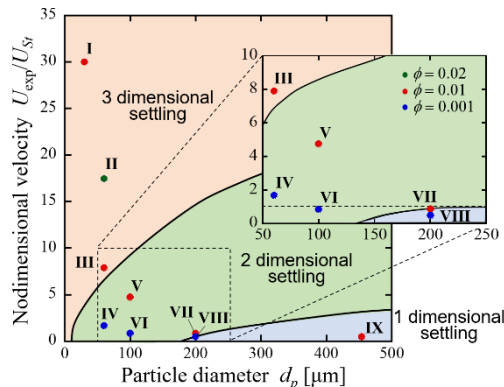


図1 飽和多孔質体中における微粒子分散系の沈降速度と沈降様式。φは粒子濃度を表す。ギリシャ数字は懸濁条件の違いを表し、値が小さいほど粒子の集団性が大きい。集団性の違いによって多様な沈降様式が出現し、沈降速度が大きく変化する(行徳ほか, 混相流シンポジウム, 2021)。

##### (2) 微粒子のメソスケール混合

2種類の異なる懸濁条件を有する微粒子分散系の濃度界面において、どのように粒子が混合するのかについて、実験および数値解析により調べた。一連の研究によって、粒子スケールでの混合(ミクロ混合)と、粒子群の集団運動のスケールでの混合(マクロ混合)に関連性があることが明らかとなった。研究成果の一例として、図2に集団性が大きい条件での微粒子の流体力学的混合の実験結果、および同条件での数値解析結果を示す。図に示されるように、粒子の集団性が大きい条件では濃度界面が遮蔽されることによってミクロ混合が抑制された結果、界面不安定(Reyleigh-Taylor不安定)による大きなスケールの混合(マクロ混合)が促進される。

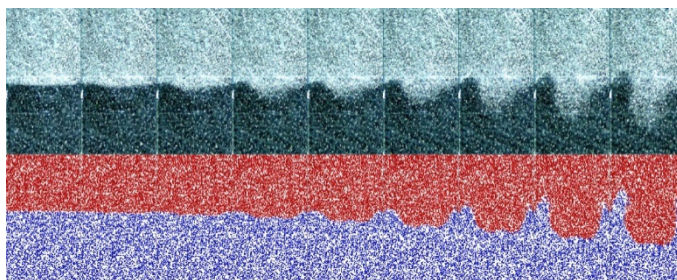
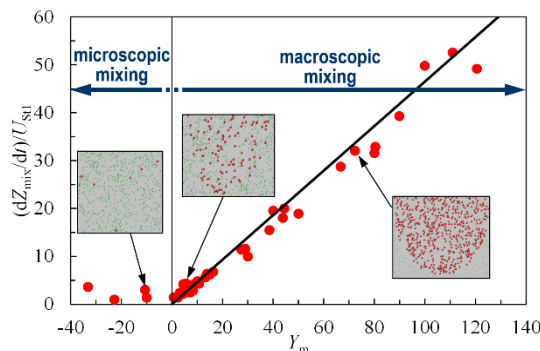


図2 粒子の集団性が大きい条件での微粒子の流体力学的混合。上図が実験結果、下図が同条件での数値解析結果(断面図)を表す。低 Reynolds 数条件では界面不安定による巨視的混合がほぼ上下対称に生じる(Mori et al., J. Colloid Int. Sci., 2020)。

さらに広範な条件で数値解析を行った結果、粒子の混合度を定量的に表す無次元数を見出すことに成功した。図3に、粒子・流体物性および懸濁条件をさまざまに変化させた場合の粒子の混合速度の数値解析結果を示す。横軸は、上下粒子の集団性および沈降速度比を関数とする無次元数を表す。図に示されるように、無次元数が負となる条件では、上下粒子の沈降速度差によって微視的な混合(ミクロ混合)が生じ、無次元数が大きな正の値を示す条件では、不混和流体で見られる密度不安定に起因した巨視的な混合(マクロ混合)が生じることがわかった。さらに両混合形態における粒子の混合速度を導出することにより、任意の懸濁条件における粒子の混合挙動を定量的に予測することが可能となった。



一般的に、物質の混合現象はこれまで混合エントロピーの増大といった熱力学的な見地から説明されてきた。本研究で得られた知見から、このような従来の枠組みとは全く異なる流体力学的なアプローチによってメソスケールの物質混合現象を説明することが可能となった。すなわち、

図3 さまざまな懸濁条件における流体力学的混合度の変化。縦軸は混合距離、横軸は上下粒子の集団性と Stokes 沈降速度で構成される無次元数  $Y_m$  を表す。  $Y_m < 0$  であれば微視的混合、  $Y_m > 0$  であれば巨視的混合が支配的になる(Yamamoto et al., Phys. Rev. E, 2021)。

Fick の法則のような濃度勾配に比例した質量流束によって混合現象を記述するのではなく，液中粒子の集団性や濃度界面の遮蔽性，界面不安定の特徴を含む，流体力学的な粒子混合現象 (non-Fickian mixing) に関する理論体系を構築できる可能性を示した。

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 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yamamoto, Y., Yamada, K., Tanaka, Y. and Harada, S.	4. 巻 104
2. 論文標題 Macroscopic and Microscopic Hydrodynamic Mixing of Stratified Suspensions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 025111-1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevE.104.025111	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 -

1. 著者名 Mori, M., Tai, T., Nishimura, K., Harada, S. and Yamamoto, Y.	4. 巻 571
2. 論文標題 Possibility of Non-Fickian Mixing at Concentration Interface between Stratied Suspensions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Colloid and Interface Science	6. 最初と最後の頁 13-20
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jcis.2020.03.019	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13件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 原田周作
2. 発表標題 液中微粒子の流体力学的相互作用
3. 学会等名 第33回LBM研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 行徳大輝, 増田元気, 原田周作, 田中洋介, 山本恭史
2. 発表標題 飽和多孔質体における微粒子の選択的沈降
3. 学会等名 資源・素材2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩口達季, 田中洋介, 山本恭史, 山田浩輝, 大友涼子, 原田周作
2. 発表標題 2種類の異なる成層懸濁液混合のPIV計測
3. 学会等名 可視化情報シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山田浩輝, 山本恭史, 田中洋介, 原田周作
2. 発表標題 異種の微粒子懸濁液層の混合形態と混合速度の数値解析
3. 学会等名 混相流シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩口達季, 田中洋介, 山本恭史, 山田浩輝, 大友涼子, 原田周作
2. 発表標題 2種類の異なる成層懸濁液混合挙動の可視化計測
3. 学会等名 混相流シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 行徳大輝, 増田元気, 原田周作, 田中洋介, 山本恭史
2. 発表標題 多孔質体中における懸濁微粒子の多様な沈降様式
3. 学会等名 混相流シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 行徳大輝, 増田元気, 原田周作, 田中洋介, 山本恭史
2. 発表標題 屈折率マッチング法を用いた多孔質体中を移動する濃度界面の観察
3. 学会等名 資源・素材学会北海道支部講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Harada, S.
2. 発表標題 Particle-like and Fluid-like Settling of a Stratified Suspension
3. 学会等名 Kick-off Symposium of Japan Consortium for Theoretical and Applied Mechanics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 原田周作, 山本恭史
2. 発表標題 重力下における液中微粒子の集団運動
3. 学会等名 混相流シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山本恭史, 多井 翼, 山田浩輝, 森 正弘, 西村康佑, 増田元気, 原田周作, 田中洋介
2. 発表標題 成層懸濁液の沈降と界面挙動
3. 学会等名 混相流シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山田浩輝, 西村康佑, 増田元気, 山本恭史, 田中洋介, 原田周作
2. 発表標題 異種の微粒子懸濁液層の沈降と混合のシミュレーション
3. 学会等名 混相流シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 増田元気, 西村康佑, 原田周作, 田中洋介, 山本恭史
2. 発表標題 重力下における多孔質体中の微粒子分散挙動
3. 学会等名 混相流シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 原田周作, 山本恭史
2. 発表標題 重力下における液中微粒子の集団運動
3. 学会等名 第65回理論応用力学講演会
4. 発表年 2019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
研究分担者	田中 洋介  (Tanaka Yohsuke)  (80509521)	京都工芸繊維大学・機械工学系・准教授   (14303)	



6. 研究組織（つづき）

	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	山本 恭史  (Yamamoto Yasufumi)  (90330175)	関西大学・システム理工学部・教授    (34416)	

	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 協 力 者	大友 涼子  (Otomo Ryoko)		

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