

令和 3 年 4 月 21 日現在

機関番号：17102

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23491

研究課題名（和文）デジタル流体制御技術に向けた液滴内部のマイクロ熱流体物理

研究課題名（英文）Thermofluid Physics of Drops for Digital Microfluidics

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） 2,200,000 円

研究成果の概要（和文）：本研究では、局所加熱された微小液滴の内部熱流動現象に着目し、特に液滴の形状（体積・接触角）が内部流動の安定性におよぼす影響を調査した。液体は水を使用し、基板をレーザーによって加熱することで液滴内に任意の温度分布を形成することで、表面張力を駆動力とするマランゴニ対流を発生させた。基板に表面改質コーティングを施すことで接触角を70～150度まで変更させて実験を行った。赤外線サーモグラフィによる熱流動可視化により、接触角が不安定対流に及ぼす影響を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

医療分析や創薬研究への応用が期待される次世代マイクロ流体デバイスにおいて、液滴をマイクロリアクタとして利用しようという流れがある。その中で液滴は試料混合・反応・検出という機能を果たすが、そのために液滴内部の熱流動現象を理解し、制御するための技術を確立させる必要がある。本研究は、局所加熱による液滴内部対流の発生および制御を行うという、アクティブ液滴制御の先駆的な取り組みである。本研究ではレーザーを用いて液滴を加熱したが、実用面ではマイクロ流体チップに搭載が容易なマイクロヒータでも同様の効果が得られる。まだ液滴のアクティブ制御はまだ黎明期であるため、本研究がこの分野にもたらす貢献度は非常に大きい。

研究成果の概要（英文）：The present project investigates the effect of drop geometry i.e. volume and contact angle on the stability of internal flows of pure water drop which is heated locally. A laser is used to heat the substrate, providing an artificial thermal gradient over the drop which drives surface-tension driven Marangoni convection. Using several coating materials, the contact angle is tuned in a range between 70 and 150 degrees. The thermal activities and corresponding flows are monitored with infrared thermography.

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

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高齢社会の進行や新型コロナウイルスへの対応といった新時代の社会問題を背景に、化学・医療・創薬分野においてバイオセンシング技術の高度化（小型・高速化）は焦眉の急である。実験室スケールで行われていた化学分析を、手のひらサイズで実現する次世代 Lab-on-a-chip 技術として、微小液滴を用いた「デジタルマイクロ流体デバイス (DMF)」が注目されている。DMF は「デジタル化」された試料液体、つまり液滴を独立操作でき、試料の少量化・分析の高速化に加えて、柔軟なシステム構成を可能にする。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・温度制御の機能が求められ、加熱により発生する熱対流（自然対流あるいはマランゴニ対流*）の利用が有効である。しかしながら、これを実現する技術は確立されていない。所望の混合速度・反応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・物質拡散といった様々な熱流体现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

研究代表者は局所加熱による液滴制御を提案する。すなわち、液滴内に人工的な温度勾配をもたらし、熱対流を発生させる。特に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し、液滴制御技術の基盤を築く。本研究では、液滴形状（体積・接触角）が対流の発生条件および安定性におよぼす影響を調査する。

3. 研究の方法

実験系を図1に図示する。10 μ L の純水を銅基板上に滴下する。波長 808 nm、出力 1.9 W のダイオードレーザーを用いて基板を下方より局所加熱する。なお、本研究ではレーザーを用いているが、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 CCD カメラを用いて液滴の蒸発挙動を観察する。本研究期間では液滴体積を固定し、接触角の影響のみに着目する。鏡面研磨を行った銅基板の接触角は 75°程度であり、これに加えて撥水材料である Cytop（接触角約 110°）あるいは Glaco（接触角 150°）をコーティングした基板を使用する。環境温度は 20 ± 0.5 °C、相対湿度は 40 ± 5.0 % の条件で実験を行った。



図1 実験装置。

4. 研究成果

(1) 無次元数（レイリー数 Ra およびマランゴニ数 Ma ）の検討

局所加熱により発生する液滴内部対流の発生機構として、自然対流およびマランゴニ対流が考えられる。研究代表者による先行研究（Kita *et al.*, *Applied Physics Letters*, 109 (17), 2016 および Askounis *et al.*, *Langmuir*, 33 (23), 2017) では、体積 $10 \mu\text{L}$ 程度の微小液滴の場合は重力の影響は無視でき、表面張力が流動を支配することが分かっている。これは、次式で表される、それぞれの対流を記述する無次元数、レイリー数 Ra およびマランゴニ数 Ma を比較することでも明らかである。

$$Ra = -\frac{\beta g H^4 \Delta T}{\nu \alpha R} \quad (1)$$

$$Ma = -\frac{\partial \sigma}{\partial T} \frac{H^2 \Delta T}{\rho \nu \alpha R} \quad (2)$$

ここで、 α は熱拡散率、 β は熱膨張係数、 ν は動粘度、 ρ は密度、 σ は表面張力、 g は重力加速度、 H は液滴高さ、 R は液滴接触半径、 ΔT は最大温度差である。ここで、液滴の接触角により Ra と Ma がどのように振る舞うのか試算してみる。式(1)および(2)において、液滴形状に関するパラメータは H と R である。接触角は液滴のアスペクト比、すなわち H/R に比例する。したがって、接触角が大きくなるほど Ra および Ma も増大することがわかる。図 2 は、代表温度 $T = 50 \text{ }^\circ\text{C}$ 、体積 $V = 10 \mu\text{L}$ の水に温度差 ΔT を与えた際の、 Ra および Ma と接触角の関係を示す。いずれの無次元数も接触角と正の相関があるが、 $Ma \gg Ra$ よりマランゴニ対流が支配的となることが予想される。また、マランゴニ対流の強度は接触角が大きいくほど増大することが考えられる。

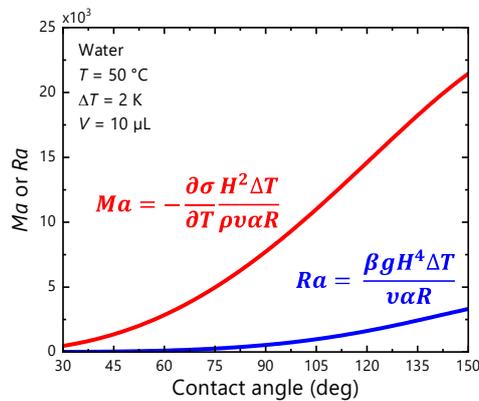
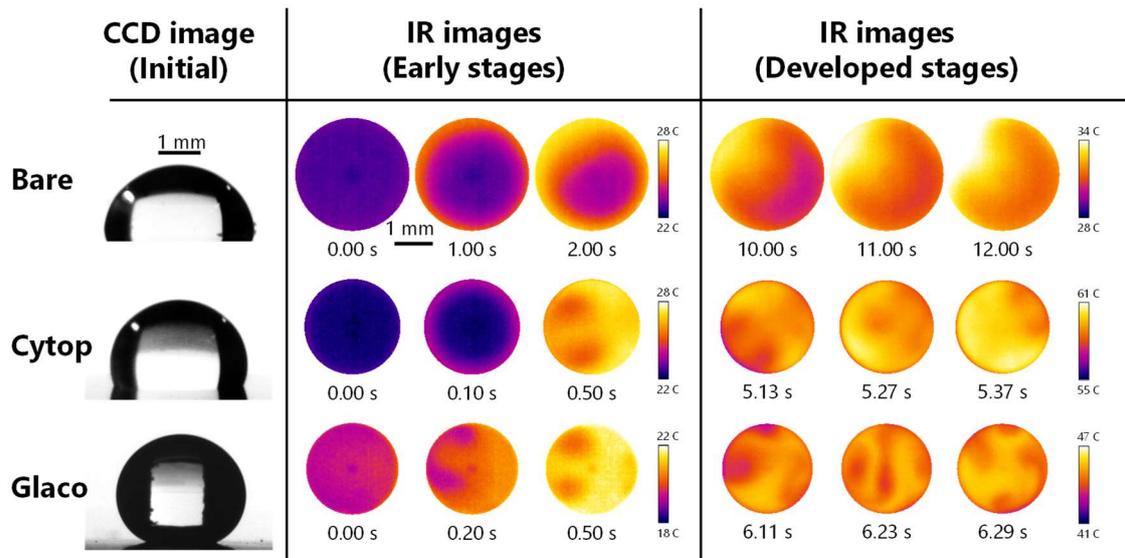


図 2 レイリー数 Ra およびマランゴニ数 Ma と接触角の関係。

(2) 赤外線サーモグラフィによる熱流動観察

図 3 に、各基板上的の液滴に局所加熱を行った時の液滴表面の赤外線サーモグラフを示す。全ての条件に対し、加熱開始直後の温度場発達にあたる *Early stages* と、十分に熱流動現象が発達した *Developed stages* に分けて考える。接触角の小さい (75°) 銅基板においては、加熱開始直後、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上昇が見られる。しかしながら、 3 K 以上の温度分布がついているにもかかわらず、対流渦と思われる熱流動様相は見られなかった。接触角 110° の Cytop 基板の場合、銅基板と同様、接触線近傍より温度が上昇し、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

動的挙動を見せるようになった。接触角が最も大きい（150°）Glaco 基板でも同様に、加熱開始直後に双子渦が形成されるが、加熱を継続するとより複雑な対流様相に遷移した。この傾向はマランゴニ数 Ma と接触角の関係（図 1）と一致すると思われる。すなわち接触角が小さい場合は、マランゴニ対流は発生しにくく、接触角 90°を超えると不安定性（instability）が現れる。ただし、本研究では赤外線サーモグラフィによる温度場の評価に留まっており、流れ可視化等による速度場の評価も望まれる。また、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。この振動周波数は約 20Hz であり、液滴の共振周波数（Sharp *et al.*, *Langmuir*, 27 (15), 2011) とほぼ一致した。これもマランゴニ効果による不安定現象の一つであると考えられるが、より詳細な検討が必要である。



(3) 蒸発速度への影響

一般に、蒸気拡散による蒸発を考えると、接触角が小さい液滴ほど早く蒸発することが知られている（例えば、Stauber *et al.*, *Langmuir*, 31 (12), 2015）。しかし、局所加熱された液滴に関しては逆の傾向が見られた。表 1 に、各接触角における液滴蒸発時間および平均蒸発速度を示す。接触角が最も大きい 150°の液滴は約 50 秒で蒸発するのにに対し、接触角の小さい 75°の液滴は蒸発が完了するのに 500 秒程度要する結果となった。蒸発に用いる潜熱は基板から供給されるので、伝熱の観点からも接触面積が大きく、液滴表面までの熱伝導距離も短い接触角の小さな液滴の方が蒸発に有利と考えられるが、全く逆の結果である。これは、接触角が大きくなることで対流が容易に発生するようになり、対流による熱輸送促進効果が大きいためであると考えられる。

表 1 蒸発時間と蒸発速度の比較

基板（接触角）	およその蒸発時間	およその蒸発速度
銅板（75°）	500 秒	0.02 $\mu\text{L/s}$
銅板 + Cytop（110°）	70 秒	0.14 $\mu\text{L/s}$
銅板 + Glaco（150°）	50 秒	0.20 $\mu\text{L/s}$

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 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 -

1. 著者名 Zhang Huacheng, Kita Yutaku, Zhang Dejian, Nagayama Gyoko, Takata Yasuyuki, Sefiane Khellil, Askounis Alexandros	4. 巻 41
2. 論文標題 Drop Evaporation on Rough Hot-Spots: Effect of Wetting Modes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Heat Transfer Engineering	6. 最初と最後の頁 1654 ~ 1662
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/01457632.2019.1640458	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

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 7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 Applications 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

1. 発表者名 Yutaku Kita, Huacheng Zhang, Alexandros Askounis, Yasuyuki Takata, Khellil Sefiane
2. 発表標題 Water drops evaporating on hot-spots: Influence of contact angle on Marangoni instabilities
3. 学会等名 The Second Pacific Rim Thermal Engineering Conference (PRTEC2019)(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yutaku Kita, Huacheng Zhang, Alexandros Askounis, Yasuyuki Takata, Khellil Sefiane
2. 発表標題 Thermocapillary-driven flows in pure water drops on a local hot-spot
3. 学会等名 Droplets 2019(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yutaku Kita
2. 発表標題 Water drops walking on superhydrophobic texture patterns
3. 学会等名 The Droplets 2019 Satellite Meeting: Droplet and Flow Interactions with Bio-inspired and Smart Surfaces (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yutaku Kita, Huacheng Zhang, Alexandros Askounis, Yasuyuki Takata, Khellil Sefian
2. 発表標題 Internal flows in pure water drops on a local hot-spot: Onset and growth of thermocapillary instabilities
3. 学会等名 IUTAM Symposium on Computational Modelling of Instabilities and Turbulence in Separated Two-Phase Flows (IUTAM2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yutaku Kita, Coinneach Mackenzie Dover, Alexandros Askounis, Yasuyuki Takata, Khellil Sefiane
2. 発表標題 How water drops walk on superhydrophobic surfaces with wettability contrasts
3. 学会等名 Surface Wettability on Phase Change Phenomena (SWEP) Workshop (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 喜多 由拓, 張 華誠, Askounis Alexandros, 迫田 直也, 高田 保之, Sefiane Khellil
2. 発表標題 局所加熱面上の液滴蒸発および熱流動に関する研究
3. 学会等名 第56回日本伝熱シンポジウム
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
--	---------------------------	-----------------------	----

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			
英国	エディンバラ大学	イーストアングリア大学		
英国	University of Edinburgh	University of East Anglia		