

令和 5 年 5 月 29 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04267

研究課題名（和文）微細流路内テイラー流を利用した界面活性剤分離器の基盤技術の確立

研究課題名（英文）Development of a Surfactant Separator by Using Taylor Flows in Microchannels

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） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：テイラー気泡の気泡長さおよびスラグユニットに及ぼす界面活性剤の濃度や吸脱着特性の影響は大きくないことを明らかにした。微細流路を通過することによって、界面活性剤濃度を大きく低減できた。臨界ミセル濃度以下では初期濃度に対して概ね線形な処理性能が見込めることが分かった。静的な界面に対して、テイラー気泡では大幅に低い被覆率であったことから、気泡後端側では高濃度の吸着状態である一方、先端側では清浄に近い濃度分布であることを明らかにした。本吸着量評価技術は、界面被覆率評価にも応用できることが実証できた。分離槽における気泡の揚力をモデル化した。また、数値計算技術を開発し、抗力および揚力について検討した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

世界の水需要は2000年から2050年の間に55%の増加が見込まれている。このため2050年には世界人口の40%が深刻な水不足に陥るとのシナリオが考えられており、水資源問題は流体力学に課された最重要課題の一つといえる。水処理の観点から、バイオ・化学系界面活性剤に代表される生化学製品を効率的に回収し、工業排水による環境負荷を低減することが重要であるが、回収効率は未だに不十分である。高効率界面活性剤分離技術を確認するには、界面活性剤を含む複雑混相流動に関する深い理解が必要である。本研究成果は上記の観点から学術的また社会的な意義を有している。

研究成果の概要（英文）：The experiments revealed that the effects of surfactant on the bubble length and the slug bubble characteristics are not significant in the proposed surfactant separation system. Passing through the microchannel is proved to be effective for reduction of surfactant concentration in the bulk liquid. Under the critical micellar concentration the separation performance is almost linear with respect to the bulk concentration. The surface coverage ratio of Taylor bubbles is much smaller than that for static interface, implying that the advection effect is large and the surfactant molecules accumulate in the rear half of the bubbles. The proposed concentration evaluation technique is thus useful to investigate the surface coverage ratio inside the microchannel. Modeling of the lift force acting on bubbles in the separation vessel was also carried out, and a numerical method was developed to deal with the complex mechanics of fluid particles under contamination.

研究分野：流体力学

キーワード：微細流路 混相流 気泡 界面活性剤

## 1. 研究開始当初の背景

水資源問題は世界規模の喫緊な課題である。世界の水需要は 2000 年から 2050 年の間に 55% の増加(工業用水では 400% 増)が見込まれている(OECD Environmental Outlook to 2050, 2012)。このため 2050 年には世界人口の 40% が深刻な水不足に陥るとのシナリオが考えられており、水資源問題は流体工学等の関連学問・工学分野に課された最重要課題の一つといえる。水処理の観点から、バイオ・化学系界面活性剤に代表される生化学製品を効率的に回収し、工業排水による環境負荷を低減することが重要であるが、回収効率は未だに不十分である。高効率界面活性剤分離技術を確立するには、界面活性剤を含む複雑混相流動に関する深い理解が必要である。そこで本研究課題の核心をなす学術的「問い」は、「界面活性剤を含む流動系のダイナミクスを考究・解明し、高効率界面活性剤分離技術の基盤作りに挑戦する」ことにある。

微細流路内気泡運動、及び界面活性剤が気泡運動に及ぼす影響は、いずれも大きな関心を持って研究されているにも関わらず、微細流路内テイラー流に界面活性剤が及ぼす影響に関する研究例はほとんどなく、その理解は十分ではない。本研究課題で開発しようとする界面活性剤分離器は、界面活性剤存在下のテイラー流に関する深い理解を得て初めて実現できるが、気液流動と界面活性剤輸送及び界面活性剤による表面張力変化が絡み合った複雑流動の理解は挑戦的な課題である。この複雑流動を理解すること、さらに高効率な界面活性剤分離技術を微細流路内テイラー流を利用して実現しようとする点に学術的独自性・創性がある。

## 2. 研究の目的

本研究は、界面活性剤を含む微細流路内テイラー流のダイナミクスを理解し、それを応用した新たな界面活性剤分離技術の基盤を確立することを目的とする。本研究課題で提案するテイラー流を用いた界面活性剤分離器は、微細流路デバイスに界面活性剤含有液と気相をテイラー流として通過させ、気泡表面に吸着した界面活性剤、すなわち液相から気泡表面へ移動した界面活性剤を、気液分離槽における気泡の浮力分離によって泡沫層として回収ラインで分離するものである。本技術には以下の特徴が期待できる。気泡が小さく界面積濃度が大きいため処理効率が高い・均一気泡径のため気泡合一がなく高濃度の泡沫層を形成、回収できる・流路並列化により線形な性能向上が期待できる・薬剤を用いないため環境負荷が低い。

## 3. 研究の方法

目的達成のため、以下の要素研究に分割する。

- ・単一微細流路内テイラー流動把握：界面活性剤を含む微細流路内テイラー流の特性を理解するため、微細流路を用いた流動観察実験を行う。
- ・微細流路分離器開発：微細流路内テイラー流実験により分離性能を実証する。分離効率は、分離液にノズルから気泡を生成し、ペンダント気泡法により表面張力を計測することで評価する。
- ・放出単一気泡運動の把握：気液分離部における気泡運動を正確に評価できる流体力モデルを整備する。

## 4. 研究成果

分離器開発の重要基礎知見となる、界面活性剤の吸脱着特性が及ぼす単一流路テイラー流への影響を 500  $\mu\text{m}$  幅の流路を用いて検討した。Fig. 1 に T 字気液合流部における気泡の生成過程を示す。(a) は気液界面が気相入口の対面側壁面に到達してから気相分裂が生じて気泡になるスクイーミング分裂、(b) は界面が壁面に到達する前に分裂に至るドリッピング分裂である。分裂形態を把握しておくことは分離器の設計上重要であるので、気相体積流束  $J_g$  と液相体積流束  $J_l$  をさまざまに変更して、Fig. 2 に示す分裂形態の様式線図を作成した。実験条件の範囲では、概ね液相体積流束が小さいときにスクイーミング分裂になることがわかる。

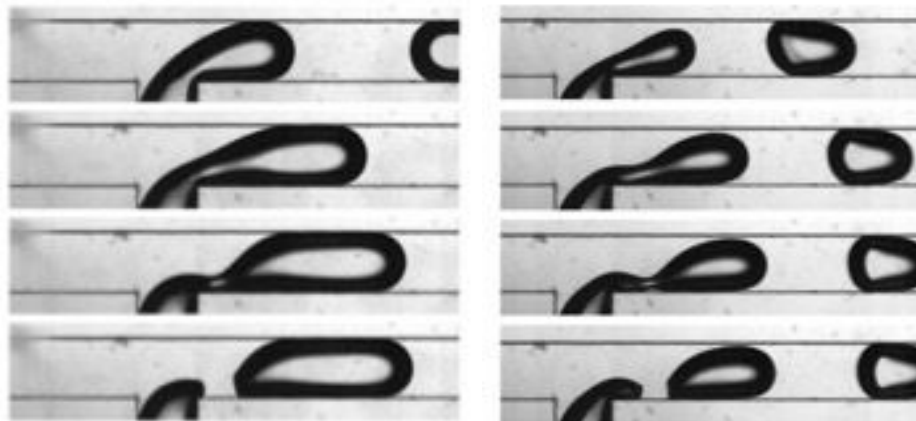
Fig. 3 にスクイーミング分裂における気泡長さに及ぼす界面活性剤の影響を示す。界面活性剤は、少量でも界面活性効果を発揮する Triton X-100 である。流量の低い条件では、清浄系に比べると界面活性剤が入っているときやや気泡長さが長くなる。ただし、界面活性剤濃度の増加に伴う気泡長の増加は 50  $\text{mmol}/\text{m}^3$  以降はほとんど見られない。流量が高い方の条件でも、濃度が低い範囲では清浄系に比べると長さがやや増加しているが、高濃度では清浄系であまり変わらない程度になっている。Fig. 4 はドリッピング分裂における気泡長さを示している。スクイーミング分裂の場合と気泡長さの傾向に大きな差異はない。

また、界面活性剤の吸着の時定数に比べて大幅に短い時間スケールで気泡生成が行われるにもかかわらず、界面活性剤が気泡分裂周期に影響を及ぼす理由がはっきりしていなかったが、T 字気泡生成部上流側の界面状態を詳細に調べたところ、気液界面が上流まで長距離に渡って形成されており、そのため吸着が十分に進行している可能性を見出した。

このように、界面活性剤分離器開発における重要な情報が得られた。すなわち、界面活性剤を吸着分離するための気液界面積(気泡長さ)は分裂形態によらず界面活性剤濃度および界面活性剤の吸脱着特性の影響をあまり受けず、また微細流路内流れは小さな空間スケールかつ短い時

間スケールの現象であるが、吸着した界面活性剤の濃度は十分に高く見込める。

Fig. 5はT字合流部から流路幅の120倍下流において測定した気泡速度である。横軸は総体積流束としており、ドリフトフラックスプロットになっている。まず(a)の清浄系において、分布パラメーター $C_0$ は1.3で、既存の微細流路内テイラー流に関する実験結果に近い値をとっている。またドリフト速度はほぼ0で、小スケールの水平流においてスリップがないことをよく表している。(b)は界面活性剤濃度 $100 \text{ mmol/m}^3$ における気泡速度である。界面活性剤が入っても、断面内各相分布や気相速度は清浄系とほとんど変わらないことがわかる。



(a) (0.14 m/s, 0.14 m/s, 0.0017) (b) (0.33 m/s, 0.48 m/s, 0.0059)

Fig. 1 気液合流部における気泡生成形態。カッコ内の数値は左から順に気相体積流束，液相体積流束，キャピラリー数。(a)スクイーピング分裂；(b)ドリッピング分裂

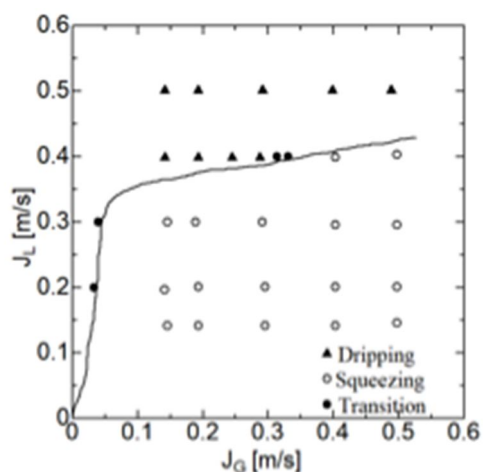


Fig. 2 分裂モードの様式線図

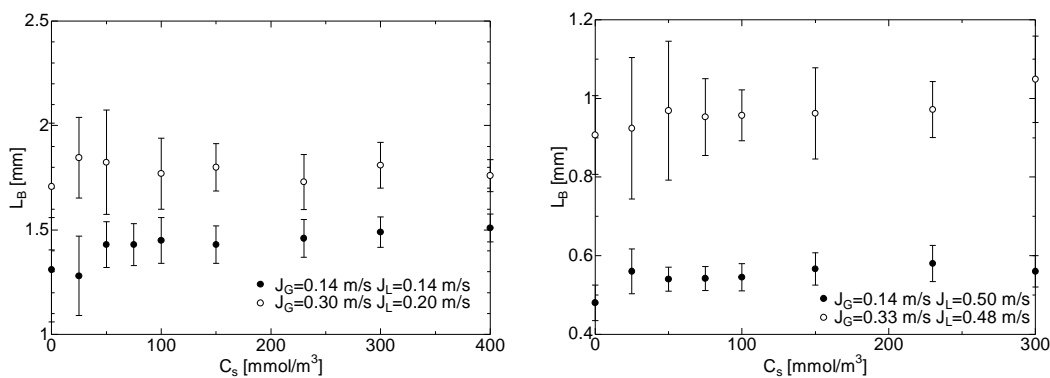


Fig. 3 スクイーピング分裂形態における気泡長さに及ぼす界面活性剤の影響（左）

Fig. 4 ドリッピング分裂形態における気泡長さに及ぼす界面活性剤の影響（右）

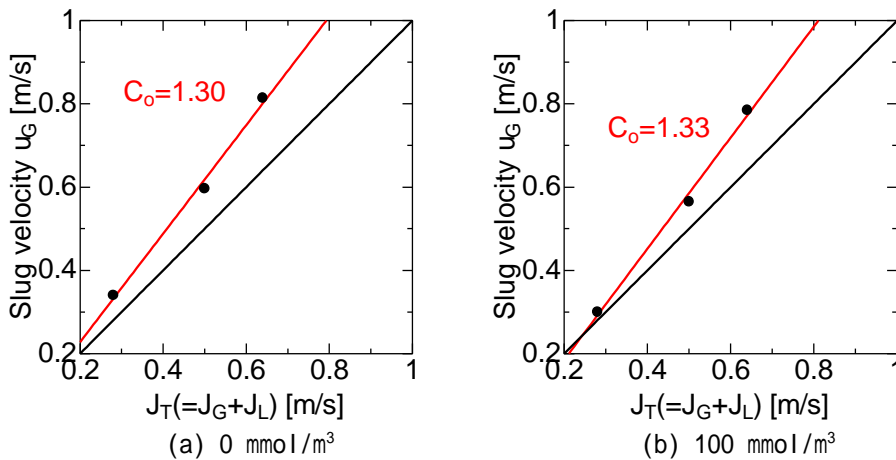


Fig. 5 気泡速度のドリフトフラックスプロット

さらに、界面活性剤の特性による流動の違いについて検討するため、互いに大きく異なる吸脱着定数を有する Triton X-100 と 1-オクタノールを用いた実験を実施した。流路には 200  $\mu\text{m}$  および 500  $\mu\text{m}$  幅を用いた。その結果、静的界面において同じ表面張力になるように調整した濃度で比較すると、気泡分裂(生成)周期と気泡長さには界面活性剤の種類(すなわち吸脱着特性)は大きな影響を及ぼさないことを明らかにした。このことから、いずれの界面活性剤に対しても、共通のテイラー流特性の知見に基づいて分離器設計をできる。

界面活性剤分離器開発について、種々の界面活性剤濃度で分離実験を行った。Fig. 6 に、分離槽に直接界面活性剤水溶液を満たした場合のペンダント気泡画像を示す。(a)は清浄系、(b)汚染系である。界面活性剤が入ると表面張力が低下するためノズルに形成・維持できる気泡径が小さくなるが、高濃度の条件でも計測可能なサイズの気泡を形成できている。Fig. 7 は種々の界面活性剤濃度における表面張力である。600 s 程度以降は表面張力の値に時間変化はほとんどない。これらの時間平均値は、等温吸着線によって予測される値と概ねあっていることを確認した。

テイラー流として微細流路を通過させることによって、液相の界面活性剤濃度が数 10% 低減できた。分離量をモル表示したものを Fig. 8 に示す。横軸は初期界面活性剤濃度である。初期濃度の増加とともに分離量が増加しており、臨界ミセル濃度(CMC = 230  $\text{mmol}/\text{m}^3$ ) 以下では初期濃度に対して概ね線形な処理性能が見込めることが分かった。

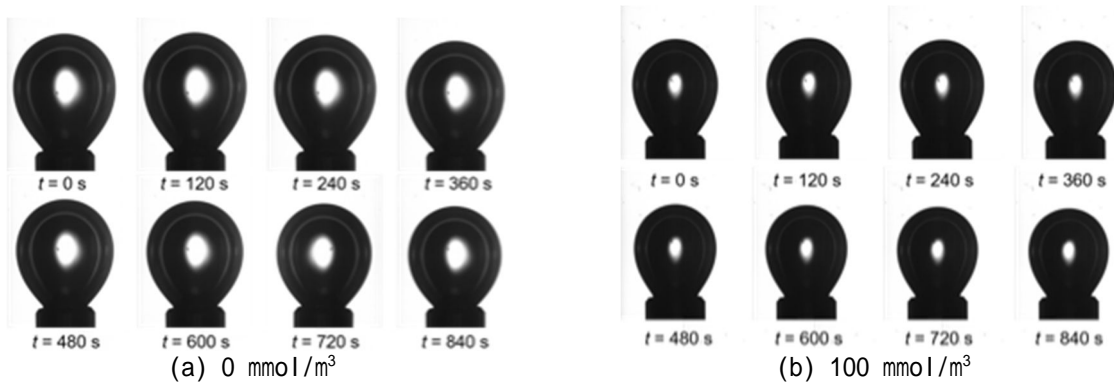


Fig. 6 ペンダント気泡法による表面張力測定における気泡画像

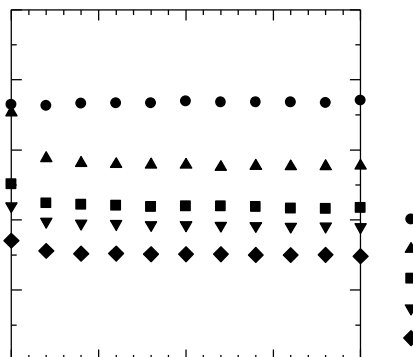


Fig. 7 ペンダント気泡法により測定した表面張力

T 字合流部から流路幅の 120 倍下流の気泡を観察し、気泡周波数、気泡界面積を画像処理によ

り評価し、分離量を用いて界面被覆率を評価した。静的な界面における界面被覆率(ラングミュア数を用いて  $Se = La/(La + 1)$ ) との比較を Fig. 9 に示す。静的な界面においては低濃度で急速に  $Se = 1$  に漸近するのに対して、実測値(青の丸プロット)は濃度  $50 \text{ mmol/m}^3$  でも4割の被覆率である。150  $\text{mmol/m}^3$  になると実験誤差も考慮してほぼ  $Se = 1$  となっている。Fig. 10 に気泡の撮影画像を例示する。清浄系気泡はテイラー気泡中央部の液膜厚さは概ね一定であるが、界面活性剤が吸着した気泡は、後端側の気相部分が先端側に比べてやや細いことが確認できる。この界面の変形は、くびれ形状の付近に大きなマランゴニ応力が集中していることを示唆している。すなわち、Triton X-100 の高い吸着速度のために、気泡後端側では高濃度の吸着状態である一方、先端側ではかなり清浄に近い界面活性剤濃度分布となっている。そこで、くびれ形状前後で界面活性剤濃度がそれぞれ0、最大吸着濃度と仮定して評価した  $Se$  を Fig. 9 にオレンジの四角記号で示す。静的な界面の場合よりも本実験の界面活性剤分離量から評価した  $Se$  と定性的に一致している。本研究で提案した、表面張力測定による吸着量評価技術は、分離器の性能評価のみならず、微細流路内の界面被覆率評価にも応用できることが実証された。

界面活性剤分離器として微細流路通過後の分離槽における汚染系気泡の運動を把握しておくことは重要である。そこで、気泡に働く主要な流体力でありながら実用的モデルの整備が不十分であった揚力について、気泡表面で生成される過度に基づくモデリングを行い、揚力相関式を開発した(Fig. 11)。また、Fig. 12 に示すように、汚染系気泡・液滴の運動を数値予測するシミュレーション技術を開発した。開発技術を用いて、汚染系球形気泡に働く抗力および揚力に関する検討をおこなった。

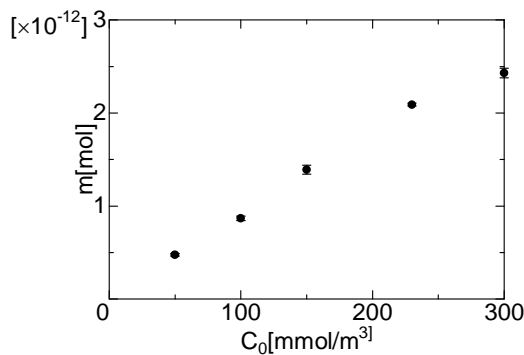


Fig. 8 界面活性剤の分離量

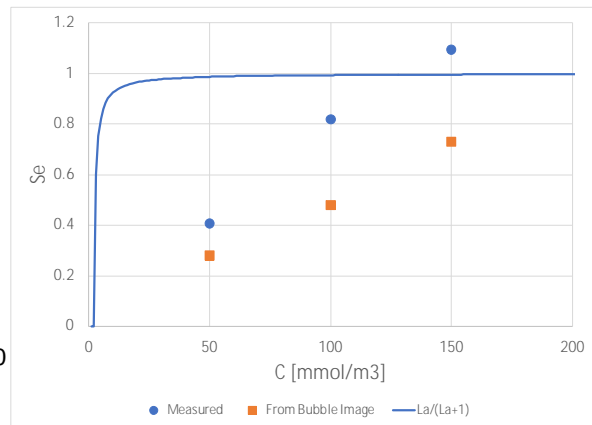


Fig. 9 界面活性剤による界面被覆率

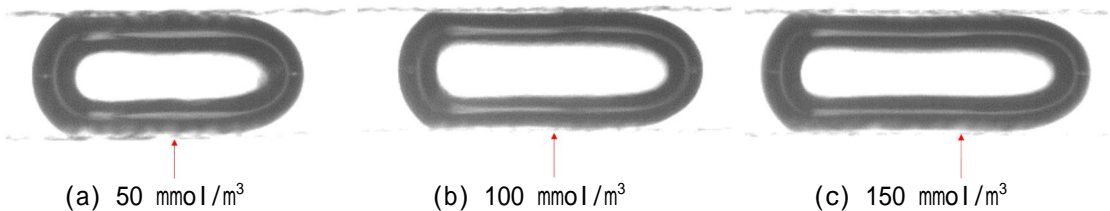


Fig. 10 マランゴニ応力による気泡界面の変形

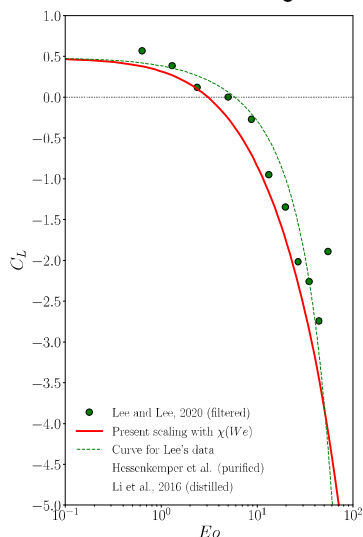


Fig. 11 気泡揚力モデル

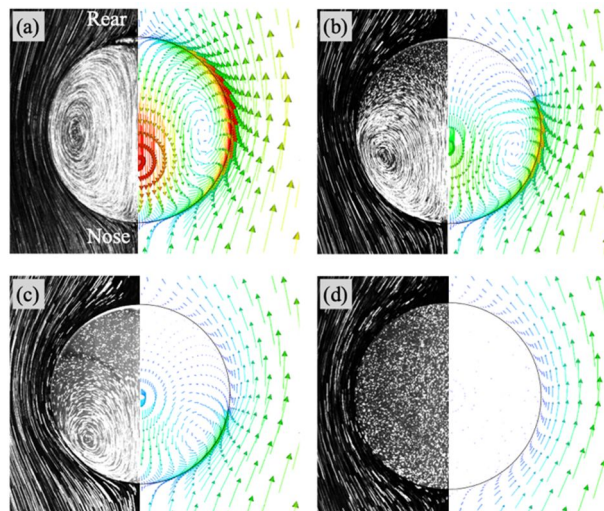


Fig. 12 開発技術による汚染系液滴の数値予測結果

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Hayashi Kosuke, Motoki Yuya, van der Linden Matheus J. A., Deen Niels G., Hosokawa Shigeo, Tomiyama Akio	4. 巻 7
2. 論文標題 Single Contaminated Drops Falling through Stagnant Liquid at Low Reynolds Numbers	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Fluids	6. 最初と最後の頁 55 ~ 55
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/fluids7020055	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 該当する
1. 著者名 Hayashi Kosuke, Chen Junming, Kurimoto Ryo, Tomiyama Akio	4. 巻 in press
2. 論文標題 An ANN Correlation of Lift Coefficients of Bubbles in Linear Shear Flows	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Multiphase Science and Technology	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) 10.1615/MultScienTechn.2022042904	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 Hayashi Kosuke, Lucas Dirk, Legendre D., Tomiyama Akio	4. 巻 33
2. 論文標題 CRITICAL DIAMETER FOR LIFT REVERSAL OF BUBBLES IN LINEAR SHEAR FLOWS	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Multiphase Science and Technology	6. 最初と最後の頁 69 ~ 85
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1615/MultScienTechn.2021039246	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 K. Hayashi, H. Hessenkemper, D. Lucas, D. Legendre, A. Tomiyama	4. 巻 -
2. 論文標題 Scaling of Lift Reversal of Deformed Bubbles in Air-Water Systems	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Multiphase Flow	6. 最初と最後の頁 103653
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2021.103653	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3件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 元木佑哉、林公祐、細川茂雄、富山明男
2. 発表標題 汚染系単一球形液滴の数値計算に関する研究
3. 学会等名 日本流体力学会年会2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 森匠、林公祐、栗本遼、富山明男
2. 発表標題 微細流路内汚染系テイラー流における気泡への界面活性剤吸着量に関する研究
3. 学会等名 混相流シンポジウム2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kosuke Hayashi
2. 発表標題 Lift Correlations of Ellipsoidal Bubbles in Low and High Viscosity Liquids
3. 学会等名 The 11th International Conference on Multiphase Flow (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

Multiphase Fluid Dynamics Lab <a href="http://www.lab.kobe-u.ac.jp/eng-mfd/">http://www.lab.kobe-u.ac.jp/eng-mfd/</a>
--

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	富山 明男  (Tomiya Akio)  (30211402)	神戸大学・工学研究科・教授    (14501)	

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			
フランス	Universite de Toulouse			
ドイツ	Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf			
オランダ	Eindhoven University of Technology			