科学研究費助成事業(科学研究費補助金)研究成果報告書

平成 24 年 6月 12 日現在

機関番号:12601
研究種目:基盤研究(A)
研究期間:2009~2011
課題番号:21246033
研究課題名(和文) 界面物理現象の詳細解析による流れのマルチスケール性の解明
研究課題名(英文) Investigation of multiscale characteristics of fluid flows through the detail analysis of interfacial physical phenomena 研究代表者 松本 洋一郎(MATSUMOTO YOICHIRO) 東京大学・大学院工学系研究科・教授 研究者番号:60111473

研究成果の概要(和文):

以下の4つの項目について成果が得られた.

(1) 分子動力学シミュレーションの結果を直接利用して、粗視化粒子による散逸粒子動力学シ ミュレーションのための数理モデルを新たに構築した.(2) 表面活性剤が気泡の3次元運動に 与える影響に関して、詳細な実験を通して気泡運動のモデリングを行った.(3) 気泡の合体・反 発に対する表面活性剤の影響を評価するため、境界適合格子を利用した詳細な数値計算を実 施し、気泡が反発するには活性剤吸着によるマランゴニ効果と界面変形の影響が重要であ ることを示した.(4) マイクロバブル生成用に特化した形状のマイクロチャネルを設計し、直 径6µmのマイクロバブルの生成に成功した.さらに、高速マイクロPIV新たな計測システムを 構築し、気泡生成に重要となる知見を得た。また、将来のDDS利用に向けて、有機相をコ ーティングするための新しいチャネルを開発し、気泡表面に有機相をコーティングするこ とに成功した.

研究成果の概要(英文):

The following 4 points are achieved in this study.

(1) Using the results of Molecular Dynamics simulation, a novel mathematical model for Dissipative Particle Dynamics simulation with coarse-grained particles was developed. (2) Drag and lift force acting on a bubble moving in 3-dimensioanl paths in surfactant aqueous solutions was modeled through the detail experiment. (3) Numerical simulation was conducted to investigate the surfactant effect on the bouncing back of two bubbles. It was shown that both Marangoni effect and surface deformation are important for a bubble to bounce back. (4) A novel shape micro channel was designed as a microbubble generation devic and bubbles of $6 \cdot m$ diameter were successfully generated. Through the development of a high-speed micro PIV system, we obtained the knowledge of generating smaller microbubbles. Furthermore, a channel for the surface coating bubbles with organic phase are newly designed and microbubbles with the surface coating are successfully generated.

交付決定額

			(金額単位:円)
	直接経費	間接経費	合 計
2009 年度	19, 700, 000	5, 910, 000	25, 610, 000
2010 年度	9, 500, 000	2, 850, 000	12, 350, 000
2011 年度	6, 600, 000	1, 980, 000	8, 580, 000
総計	35, 800, 000	10, 740, 000	46, 540, 000

研究分野:工学

科研費の分科・細目:機械工学,流体工学

キーワード: 流体工学,混相流,表面・界面活性,気泡,マイクロ流体

1. 研究開始当初の背景

流体工学において界面物理現象が重要と なるのは、主に流体運動の境界条件において である。例えば、液体中の気泡運動において 超純水あるいは無極性液体中における気液 界面は接線方向せん断応力が0となるが、界 面活性剤が添加された水中では気泡界面の 接線方向に形成される界面活性剤の濃度分 布によって表面応力に分布が生じ(マランゴ ニ効果)、結果的に固体表面と同様(界面で の流体分子のすべりが抑制された状態)とな ることが古くから知られている(V.G.Levich, Physicochemical Hydrodynamics, Prentice-Hall, 1962)。他にも界面状態を撥水面にする と液体と固体の接触角が大きく変化し、層流 域でも壁面抵抗を低減できる(J. Ou et al., Phys. Fluids 16, 4635, 2004)。また、分子ス ケールで接近した 2 つの界面(e.g. 気 液 気) にはさまれた狭い領域では、バルク内とは異 なる液体分子の構造化に支配された流れ現 象が存在する。このように界面物理現象は流 体運動に決定的な役割を果たすことがある。 しかし、そのメカニズムが明らかにされてき たのは最近のことであり、それには計算機の 発達、精度の高い計測法が開発されたことが 大きい。したがって、今後も新たな界面物理 現象が解明され、それを応用することにより 流体制御の高度化が図られ、結果として表面 化学反応の効率化や熱伝達の促進、摩擦の制 御など工学的に大きく貢献する技術となる 可能性がある。

界面現象は分子の吸着・脱着、表面での移 流・拡散など分子レベルのミクロな考察が重 要であり、一方バルクの流れはマクロ(メゾ) スケールであることから、境界として界面を 適切に取り込むためにはミクロからマクロ (メゾ)へのスケールアップを適切に行う必要 がある。そのためにはミクロ現象を詳細に解 析し、統計的な手法を用いてマクロな境界条 件を導き出すことが不可欠となっている。松 本らのグループはこれまで水中の気泡運動 に対する界面活性剤の影響を明らかにする ための実験的および理論的解析(M. Fukuta et al., Phys. Fluids 20, 040704, 2008)、 気液 界面における界面活性剤の吸着挙動の解析 (G. Kikugawa et al., Comp. Fluids 36, 69, 2007)など、ミクロからマクロへつなげるい わゆるマルチスケール解析において成果を 挙げてきた。

2. 研究の目的

本研究では、ミクロな界面物理現象を分 子スケールから詳細に解析し、マクロな流 体運動における境界条件を、メゾスケール における非平衡性を考慮に入れて導出する ためのマルチスケール解析手法を確立し、 解析により得られた知見を基にして、ナ ノ・マイクロ流体に関連した新たな技術を 創出することである。本研究の具体的な研 究対象として以下の4つを挙げる。

(1)分子スケールにおける固相・気相・液相 間の様々な界面近傍の物理現象の解明およ びメゾスケールにおける非平衡性を記述で きる構成方程式に繋がる詳細なモデリング 手法の確立。

(2)気液界面における微量な界面活性剤の 吸着・脱離・拡散により大きな影響を受け る水溶液中における気泡の3次元挙動

(3)近接界面間の相互作用の詳細解析およびモデリング。

(4)固気液三相界面の物理現象の詳細な解明とそれを応用した微小流路内における安定な気液界面修飾法の確立。

3. 研究の方法

上記の4つの項目に対して、以下の方法で 研究を進めた。

(1)分子スケールにおける界面近傍の流れ現 象の解明およびモデリング

気液界面の挙動解析のために,分子動力学 シミュレーションの結果を直接利用して,粗 視化粒子による散逸粒子動力学シミュレー ションに必要なパラメータをボトムアップ 的に決定した。DPD 法における運動方程式 には,粒子間ポテンシャルで記述される保 存力,散逸粒子間に作用する力の平均からの ゆらぎを表すランダム力,散逸粒子間の摩擦 を表す散逸力が存在し,これら3つの力は散 逸粒子間を結ぶ軸方向に作用する.本研究で は,拘束力つきの MD 法を用いてミクロスコ ピックな解析を行い,力をサンプリングし, それらを DPD 法に組み込むことで,これら 3つの力を決定した。

(2)気液界面に吸着した活性剤の可視化方法の開発と,界面活性剤水溶液中における気泡の3次元挙動の解析

界面活性剤の気液界面への吸着挙動を明 らかにするため、時系列界面極近傍マイクロ スケール蛍光観察手法を開発した。先ず、超 純水中に蛍光性界面活性剤を異なる濃度で 溶解させ、界面に吸着した濃度と蛍光発光量 の校正曲線を予め取得した。この校正曲線を 利用して、気泡の界面極近傍の蛍光発光分布 から界面活性剤の濃度分布を実測した。また 界面活性剤溶液中の上昇気泡に関する実験 を行い、活性剤溶液の濃度を変化させた際の、 気泡周囲の軌跡・形状に関する詳細なデータ を取得した。

(3)近接界面間の相互作用の詳細解析および モデリング

表面活性剤の吸着・脱離モデル、および、 マランゴニ応力モデルとの連成を連続体レ ベルで実現するための解析手法を開発した。 気泡・気泡間、弾性壁・気泡間における潤滑 問題を対象として、非定常な界面活性剤の分 布、それによって誘起される流動構造、界面 近傍における主要な流体力を理論的、数値的 に評価した。

(4) 三相界面近傍の流動の詳細解析とそれ を用いた安定な界面修飾法の確立

T字型マイクロチャネルにおいて10µm以下 の微小気泡が生成される際のメカニズムを 明らかにするために、超高速度カメラによる 界面運動及び液相流体の速度場を計測する システムを構築した.さらに、計測されたデ ータを基により小さなマイクロバブル生成 のためのマイクルチャネルの形状に関して 検討を行い、実際に試作して実験を行った.

4. 研究成果

上記4項目に関して,以下の具体的成果を 得た.

(1)分子スケールにおける界面近傍の流れ現象の解明およびモデリング

複雑流路内における気液界面の挙動解析 のための散逸粒子動力学(DPD)シミュレーシ ョンに向けて,液体状態の Lennard-Jones (LJ) 流体を MD シミュレーションの段階 で粗視化して力をサンプリングし,その結 果を DPD 法のモデリングに取り組む方法 を構築した.

図1にモデリングに用いた手法の概念図 を説明する.図の点線で囲まれた円が LJ-粒子のクラスタとして粗視化された DPD 粒子に相当する.クラスタ内の粒子が拡散 してクラスタが定義できなくならないよう に拘束力をかけながら MD 計算を行い,LJ 粒子の挙動を調べ,その結果を基に,それ ぞれのクラスタ粒子としての振る舞いを記 述する.

モデリングに用いられた散逸粒子動力学 法の式を以下に示す.

$$\frac{d\mathbf{P}_{\mu}}{dt} = \sum_{\nu\neq\mu} \left\langle f\left(r_{\mu\nu}\right) \right\rangle \mathbf{e}_{\mu\nu} - \sum_{\nu\neq\mu} \gamma_{\Box} \left(r_{\mu\nu}\right) \left(\mathbf{e}_{\mu\nu} \cdot \mathbf{V}_{\mu\nu}\right) \mathbf{e}_{\mu\nu} \\ - \sum_{\nu\neq\mu} \gamma_{\bot} \left(r_{\mu\nu}\right) \left[\mathbf{V}_{\mu\nu} - \left(\mathbf{e}_{\mu\nu} \cdot \mathbf{V}_{\mu\nu}\right) \mathbf{e}_{\mu\nu}\right] + \sum_{\nu\neq\mu} \delta \mathbf{f}_{\mu\nu}^{Q} .$$

ここで、ランダム力と散逸力はクラスタの 重心間を結ぶ方向及びそれに垂直な方向に 働くとしている.式中、クラスタの重心間 を結ぶ方向の摩擦係数 $\gamma_{u}(r_{\mu\nu})$ 及びそれに 垂直な方向の摩擦係数 $\gamma_{1}(r_{\mu\nu})$ は、MD計算 において以下の式に従い各方向のランダム 力の相関を積分することで求められる.

$$\begin{split} \gamma_{\Box}(r_{\mu\nu}) &= \beta \int_{0} dt \left\langle \delta \mathbf{f}_{\mu\nu,\Box}^{\mathcal{Q}}(t) \cdot \delta \mathbf{f}_{\mu\nu,\Box}^{\mathcal{Q}}(0) \right\rangle, \\ \gamma_{\perp}(r_{\mu\nu}) &= \frac{\beta}{2} \int_{0}^{\infty} dt \left\langle \delta \mathbf{f}_{\mu\nu,\bot}^{\mathcal{Q}}(t) \cdot \delta \mathbf{f}_{\mu\nu,\bot}^{\mathcal{Q}}(0) \right\rangle. \end{split}$$



図1 拘束力つき MD と DPD 粒子の関係



図 2 MD 計算を基に見積もられた DPD 法の摩擦係数 (Parallel: $\gamma_{\square}(r_{\mu\nu})$, Perpendicular: $\gamma_{\bot}(r_{\mu\nu})$)

この式に従い, MD の結果から $\gamma_{n}(r_{\mu\nu})$, $\gamma_{\perp}(r_{\mu\nu})$ を計算した結果を図2に示す.これら のパラエータを用いて, DPD シミュレーショ ンを実施した結果, 動径分布関数に関して は MD と DPD でよい一致を示したのに対 して, 平均二乗変位に関しては差異が見ら れた.この点については今後の検討が必要で ある.

(2)気液界面に吸着した活性剤の可視化方 法の開発と、表面活性剤水溶液中における 気泡の3次元挙動の解析

ここでは、表面活性剤の気液界面への吸 着挙動を可視化するために、図3(a)に示す ような界面極近傍マイクロスケール蛍光観 察手法を開発した.全反射を利用して得ら れた画像を図3(b)に示す.表面活性剤の吸 着により界面が蛍光発光しているのが確認 できる.



(a)
 (b)
 図3気液界面で蛍光発光する活性剤分子の
 可視化(a)実験装置概念図(b)可視化結果

次に,静止流体中をらせん・ジグザグ運動 する気泡の軌跡を3次元的に計測するシス テムを構築した.その実験装置を用いて,界 面活性剤として1-ペンタノールを含んだ水溶 液中において,表面活性剤が気泡の3次元運 動に与える影響に関して,モデリングを行っ た.取得された実験データを整理した結果を 図4に示す.



図4 表面活性剤濃度と気泡の速度の関係

(3)近接界面間の相互作用の詳細解析および モデリング

表面活性剤の存在下で2つの気泡が合体 せず反発する過程を調べるため、界面での 活性剤の吸着・脱離現象とそれに伴うマラ ンゴニ効果が、界面同士の反発力にどのよ うに寄与するか数値計算により調べた.計 算は、図5(b)に示すような気泡-気泡間の薄 膜液層に対して行った.



 $\sigma = 1 + (Ma \cdot We/Re) \cdot \ln(1 - \Gamma)$ と与えられる. 界面におけるバルク濃度Cと表面濃度 ΓO 関係式: $-\nabla C_s \cdot \mathbf{n} = Ha \cdot K \cdot Pe\{C_s(1 - \Gamma) - \Gamma/La\}$ また, 無次元は以下のように与えられる. $Re = (2\mu VH_0)/\rho, Pe = (2VH_0)/D, Ha = (H_0k_aC_0)/(2V),$ $La = C_0/\beta, Ma = (R_G T\Gamma_{max})/(2V\mu), K = \Gamma_{max}/(H_0C_0)$

これらの式すべてを、直交曲線座標系の もとで有限差分近似で離散化し, SIMPLER 法に準じた方法で連成計算する.その結果, 界面の変形が小さく、接近する界面がほぼ 並行なときは、マランゴニ効果を考慮に入 れた計算においてもマランゴニ応力が十分 維持できず. 潤滑理論に基づく反発力が十 分働かないことがわかった. すなわち, 気 泡同士の反発をもたらすには界面の変形が 重要であることが示唆された. この知見に 基づき、界面形状を変化させて計算を行っ た.計算結果を図6.図7に示す.図6は、 界面濃度の時間発展を示し、界面が変形す ることにより、界面濃度の分布が維持され ているのがわかる.また.図7は無次元界 面変形量δと気泡間に働く反発力の関係を 示した結果である. グラフより, 界面変形 量の増加とともに反発力が増加しているの がわかる.



図7 界面濃度の空間分布 (無次元変形量 δ=0.1の場合)



図8 無次元変形量と反発力の関係

(4) 三相界面近傍の流動の詳細解析とそれを 用いた安定な界面修飾法の確立

本研究では、将来的にマイクロバブルDDS への応用などを目指し、機能性マイクロバブ ルの開発を進めた.ここでは、特に静脈への 注入が可能となる直径 5 μm程度の気泡を, 制御良く生成し, さらに表面修飾するシステ ムを構築するためにマイクロチャネルを用 いた.

実験に用いたマイクロ流路形状の模式図 を図9に示す.液相と気相が中央のT字部で 合流し,気泡が生成される仕組みである.液 相の圧力損失を抑えるために,合流部前後で は液相流路幅が広く設計されている.本研究 ではT字合流部での流路幅Wが20 - 100 µm, 深さHが2 - 20 µmである流路を用意し,また, 合流部形状が図9 (b)に示すように変形した 流路も設計した.従来のT字型の流路に対し て,それぞれ便宜的に段差型,オリフィス型 と名付ける.



図 9 作成されたマイクロチャネルの形状(a) 全体図, (b) 気泡生成部拡大図

実験は液相をシリンジポンプによる流 量制御で,気相を圧力コントローラによ る圧力制御で駆動して行った.マイクロ 流路内で気泡が生成する様子を顕微鏡に 取り付けた高速度カメラ(株式会社島津 製作所, HPV-1,312×260 pix²)を用い て撮影した.

粒子画像計測にあたり、トレーサ粒子 として径1 µmの蛍光粒子 (Invitrogen Corp., FluoSpheres F8823.) を体積比 率0.04%にて純水に混入して使用した. 明視野観察によって粒子を観察し、倍率 40倍のもと最高1 Mfpsで観察すること に成功した. なお、µ-PIVを実現する粒 子濃度(体積比率0.1%程度)では流路が 詰まるといった問題が生じたため、本研 究では µ-PTV (Particle Tracking Velocimetry)によって流れ場を計測し た. 流速ベクトルの少なさと偏在を防ぐ ために,気泡生成が周期的であることを 利用して、u-PTVにより得られたベクト ル場を同位相で重ね合わせる繰り返し計 測も併用した.



図 10 気泡が生成される様子 (W=100 µm, H=20 µm)



図11 液相流入速度と生成され気泡径の関係

図10に階段型流路の系でマイクロバブル が生成される様子を示す.図中には、本研究 で開発された高速マイクロPIVにより取得さ れた速度ベクトルも示してある.マイクロ PIVによる計測結果の詳細な解析より、気泡 サイズを小さくするためには気泡ののど部 に向かう流れが重要であることが示唆され た.また、図11には液相流速と生成できる最 小サイズの気泡径の関係について得られた 結果を示す.液相流速の増加ともに生成でき る気泡径は小さくなり、オリフィス型の流路 を用いた場合には、最小で6µmの気泡の生成 に成功した.

さらに本研究では, Arakawaら(Sens. Actuators, A, 143, 58-63, 2008)の研究に倣い, 有機相をコーティングするためのマイクロ チャネルを作成した.このチャネルを用いて, 気泡表面に酢酸ブチルの有機相をコーティ ングすることに成功した.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計7件)

- 田川義之,舟久保亜美,<u>高木周</u>,<u>松本洋</u> <u>一郎</u>,界面活性剤溶液中を3次元運動す る単一気泡の挙動(第2報:準定常運動 する気泡に働く力とスリップ条件),日本 機械学会論文集 B 編,査読有,78 巻 788 号,2012,723-733
- 大山峻幸,伊井仁志,<u>杉山和靖</u>,<u>竹内伸</u> <u>太郎</u>,<u>高木周</u>,<u>松本洋一郎</u>,フロント・ トラッキング法を用いた自由界面と剛体 壁における単一気泡の反発現象の解析, 混相流,査読有,26巻1号,2012,60-67
- ③ Yunqiao Liu, Kazuyasu Sugiyama, Shu

<u>Takagi</u>, <u>Yoichiro Matsumoto</u>, Surface instability of an encapsulated bubbleinduced by an ultrasonic pressure wave, Journal of Fluid Mechanics, 査読有, Vol.691, 2011, 315-340

- ④ Yunqiao Liu, <u>Kazuyasu Sugiyama, Shu</u> <u>Takagi</u>, <u>Yoichiro Matsumoto</u>, Numerical Study on the Shape Oscillation of an Encapsulated Microbubble in Ultrasound, Physics of Fluids, 査 読 有, Vol.23, No.4, 2011, 041904
- ⑤ 川口暢, 菊川豪太, <u>杵淵郁也</u>, 八束真一, 小原拓, <u>松本洋一郎</u>, 非平衡分子動力学 法を用いた親水性末端基を有する自己組 織化膜と水の界面熱抵抗の解析, 日本機 械学会論文集C編, 査読有, 76 巻 768 号, 2010, 1936-1938
- ⑥ 田川義之,舟久保亜美,<u>高木周</u>,<u>松本洋</u> 一郎,界面活性剤溶液中を3次元運動する単一気泡の挙動,日本機械学会論文集 B編,査読有,76巻771号,2010年, 1785-1792
- ⑦ Huaxiong Huang, <u>Kazuyasu Sugiyama</u>, <u>Shu Takagi</u>, An immersed boundary method for restricted diffusion with permeable interfaces, Journal of Computational Physics, 査読有, Vol.228, 2009, 5317-5322

〔学会発表〕(計7件)

- Ryoji Miyazaki, <u>Toshiyuki Ogasawara</u>, Mitsuhisa Ichiyanagi, <u>Shu Takagi</u>, <u>Yoichiro Matsumoto</u>, High-speed µ-PTV study of microbubble generation in microfluidic T-junction, The 63rd Annual Meeting of the Division of Fluid Mechanics, 2010 年 11 月 22 日, Long Beach, California, USA
- ② Taiga Komatsu, Shinchi Tsuda, <u>Shu</u> <u>Takagi</u>, <u>Yoichiro Matsumoto</u>, An investigation of nucleation-glowth of bubbles using molecular dynamics simulation, The 63rd Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics, 2010年 11 月 21 日, Long Beach, California, USA
- ③ Yoshiyuki Tagawa, Ami Funakubo, <u>Shu</u> <u>Takagi</u>, <u>Yoichiro Matsumoto</u>, Change of Redependency of single bubble 3D motion by slip condition in surfactant solution, APS/Division of Fluid Dynamics 62nd Annual Meeting, 2009 年11月23日, Minneapolis, USA
- ④ <u>Yoichiro Matsumoto</u>, Yoshiyuki Tagawa, <u>Toshiyuki Ogasawara</u>, <u>Shu Takagi</u>,

Influence of surfactant on single bubble motion and bubbly flow structure, 5^{th} European-Japanese Two-Phase Flow Group Meeting, 2009 $\mp 9 \exists 21 \exists$, Spoleto, Italy

- ⑤ 田川義之,舟久保亜美,高木周,松本洋 一郎,静止水中を上昇する気泡の3次元 挙動に対する界面活性剤の影響,日本混 相流学会年会講演会2009,2009年8月 9日,熊本大学,熊本
- ⑥ 小松大河,橋口和弘,<u>高木周</u>,<u>松本洋一</u>
 <u>郎</u>,ベンチュリ管におけるマイクロバブ ル生成機構の解明,混相流学会年会講演 会 2009, 2009 年 8 月 9 日,熊本大学, 熊本
- ⑦ 田川義之,舟久保亜美,高木周,松本洋 一郎,界面活性剤水溶液中における単一 気泡の3次元挙動解析,第58回理論応 用力学講演会,2009年6月11日,日本 学術会議,東京
- 6. 研究組織
- (1)研究代表者
 松本 洋一郎 (MATSUMOTO YOICHIRO)
 東京大学・大学院工学系研究科・教授
 研究者番号:60111473

(2)研究分担者

高木 周 (TAKAGI SHU) 東京大学・大学院工学系研究科・教授 研究者番号: 30272371 杉山 和靖 (SUGIYAMA KAZUYASU) 東京大学・大学院工学系研究科・特任准教授 研究者番号:50466786 杵淵 郁也(KINEFUCHI IKUYA) 東京大学・大学院工学系研究科・助教 研究者番号: 30456165 小笠原 紀行 (OGASAWARA TOSHIYUKI) 大阪府立大学・工学研究科・助教 研究者番号:00552184 一柳 満久 (ICHIYANAGI MITSUHISA) 上智大学・理工学部・助教 研究者番号:00584252 竹内 伸太郎(TAKEUCHI SHINTARO) 大阪大学・大学院工学研究科・准教授 研究者番号: 50372628 葭仲 潔 (YOSHINAKA KIYOSHI) 独立行政法人産業技術研究所・ヒューマン ライフテクノロジー研究部門・研究員 研究者番号:90358341 (3)連携研究者

)

(

研究者番号: