

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年6月10日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23651135

研究課題名（和文） マイクロ液滴衝突法の創成と新規流体・化学操作への展開

研究課題名（英文） Creation of micro droplet collider and application to fluid and chemical operations

研究代表者

馬渡 和真 (MAWATARI KAZUMA)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：60415974

研究成果の概要（和文）：

本研究では、気相中の液滴を 10 m/s 以上に加速して、マイクロ空間の制御された流れの中で液滴と液滴を衝突させることで、液滴の先端に運動エネルギーを局所化して、これまでにない新たな化学プロセスを創成することを目的とした。具体的には、部分的表面修飾によりラプラス圧を制御して、駆動圧力を調整することでマイクロメートルスケールの液滴を生成して、発射・加速することに成功した。特に液滴を液体から氷へと相転移させることで氷と壁面との吸着力を利用して、印加できる最大圧力を 400kPa レベルまで高めることに成功した。その結果、加速した液滴は最大で 20 m/s まで可能となり、高速な液滴加速・発射をはじめて可能にした。

研究成果の概要（英文）：

In this research, a droplet in air is accelerated to more than 10m/s and collided with another droplet by developing new fluidic control methods for focusing the kinetic energy to the collision at the droplet surface and inducing new chemical reactions. The microscale droplet was prepared using Laplace pressure induced by partial hydrophobic surface modification. The droplet was converted to ice phase by partial temperature control. The ice was fixed at the low temperature area and adhered to the wall. The air pressure applied was increased to 400kPa, and the droplet was shot by overcoming the adhering force. As a result, the droplet was accelerated to 20 m/s.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野： マイクロ・ナノ流体システム

科研費の分科・細目： ナノ・マイクロ科学 マイクロ・ナノデバイス

キーワード： マイクロ流体、ラプラス圧、液滴発射、液滴衝突、流体操作

1. 研究開始当初の背景

従来バルク空間では、流体に大きなエネルギーを付与することで、さまざまな化学的・物理的なプロセスが実現されてきた。例えば、1mm以下の微小な穴から水を高速(100m/s以上)に噴射して物体を切断する、ウォータージェット加工が挙げられる。この原理は、いまだ十分に解明されていないが、噴射された水は最終的に液滴となることで物体を切断することが可能になる。以上は、液体(液滴)と固体の間、すなわち固液プロセスの一種である。一方、気体では、低下圧下でガス分子を衝突させて化学反応を誘起させるプロセスも従来から知られている。しかし、これまで液体(液滴)と液体(液滴)を高速に衝突させるプロセスはほとんど報告されていない。その理由は、バルク空間では正確に軌道制御して衝突させるのが困難であることに加えて、衝突エネルギーが変形として散逸して、エネルギーを有効に利用することが困難であるためである。

一方、マイクロ化学の分野では、数cm角の基板に数10-100 μm の流路を刻んで様々な化学プロセスを集積化するマイクロ化学チップの研究が世界中で繰り返されている。従来の分析や合成に対して革新的な化学のデバイスを実現している。このマイクロ空間の流体はマイクロ流体と呼ばれ、(1)層流であること、(2)表面エネルギーに支配されること、など制御が容易であることが特徴である。これまでマイクロ流体の制御には、水相と油相の多層流プロセスが用いられ、主に液滴の流れを利用する液滴流と、水/油の平行流を利用する平行流が知られている。

しかし、これらのマイクロ流体プロセスは、高い圧力損失のために流速はせいぜい数cm/s程度であり、液滴体積当たりのエネルギーは非常に小さい。このために、液滴/液滴間のプロセスは衝突ではなく単なる合一であり、液滴間の高速衝突は困難であった。そこで、液滴を高速に加速して衝突させる流体操作を実現できれば、液体のエネルギーを局所的に集中させ、流体のエネルギーを利用した化学反応や流体操作が可能になり、マイクロ流体の分野に新しい方法論を提供できると着想した(図1)。

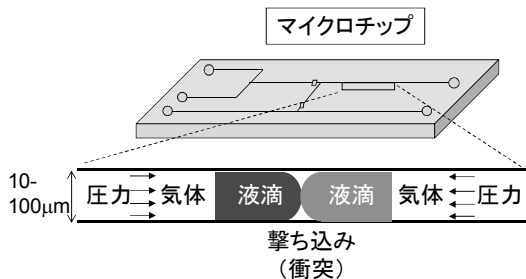


図1 液滴コライダーの概念図

2. 研究の目的

本研究では、マイクロ空間において、気相中で液滴と液滴を高速に衝突させることを着想した。マイクロ流路により正確に液滴の軌道を制御して、表面エネルギー(ラプラス圧)を利用して液滴の球形を保ったまま高速に液滴と液滴を非弾性衝突させることで、液滴表面に時間・空間的にエネルギーを局所化して、新しい流体操作・化学操作を実現する。特に液滴を高速に加速するための方法論を創成することに主眼を置く。

(1) マイクロチップ上での液滴間高速衝突法の創成(図1)

3. 研究の方法

これまで当グループではラプラス圧により液滴を生成してラプラス圧以上の圧力を空気圧で印加することで、液滴の生成・発射に成功してきた。しかし、ラプラス圧はせいぜい10kPa程度であり、加速のために高い圧力を印加するには限界があった。そのため達成する速度は2m/s程度に限られていた。そこで本研究では、氷への相転移に着目した。液滴生成後、低温領域で液滴を氷へと相転移させる。氷はガラス壁面に対して数100kPa-MPa程度の付着力を有することが過去の研究から期待される。したがって、発射のための圧力を一桁以上高めることで、数10m/sの速度を達成できると考えられる。そこで、そのためのマイクロチップを設計した(図2)

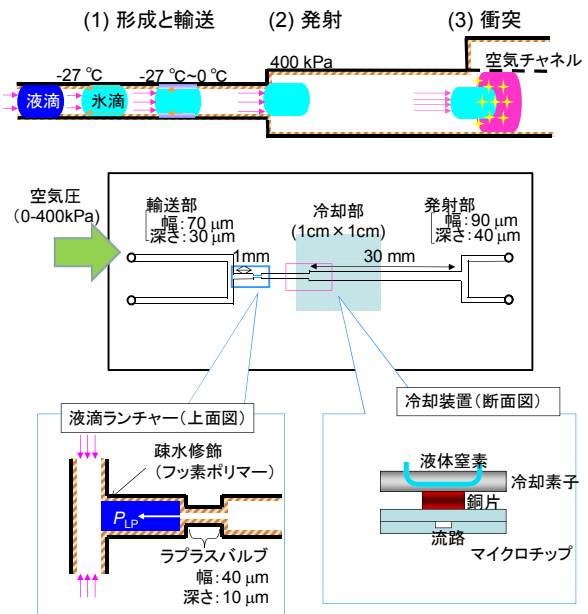


図2 水滴形成と発射のためのマイクロチップ設計

マイクロ流路全体をフッ素ポリマーで修飾して、液滴ランチャー部の一部の幅・深さを小さくすることで、ラプラス圧を高くして

ラプラスバルブを形成した。このときのラプラス圧は15kPa程度である。ラプラス圧以下の圧力で液体を導入すると、ラプラス圧部分で液体は停止する。その後、空気圧により交差点までの液体を切り取ることで、図2のランチャー部のように一定体積の液体を切り取ることができる。次にラプラス圧以上の空気圧を印加して、液滴を冷却部へ輸送する。冷却部では-27℃まで冷却されているため、マイクロ流体の特徴である高い比表面積により迅速に冷却され氷へと相転移する。その後、圧力を400kPa程度にまで高めて標的を発射する。最後に発射した標的を液滴へと衝突させる。

4. 研究成果

最初にラプラスバルブにより液滴を安定に形成できることを確認した。この後、ラプラス圧15kPa以上の圧力を印加すると液滴はラプラスバルブを越えて下流へと輸送された。液滴が冷却部へ到達するところを高速カメラで撮影して確認したところ、約2msで氷へと相転移して氷滴として停止した。このときの画像を図3に示す。

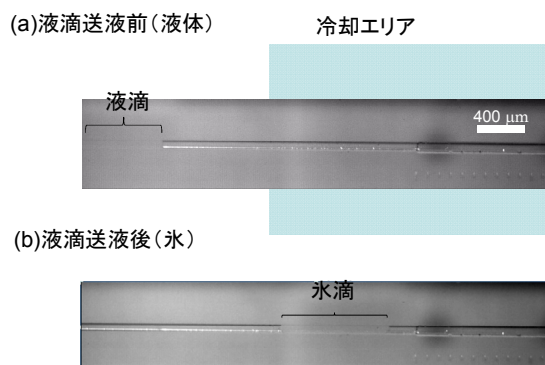


図3 液滴相液前と相転移後の画像

液滴形成後、空気圧を400kPaまで高めたところ、氷滴の吸着力より空気圧が大きくなったため、氷滴が発射された。この時、氷滴は発射後2mm程度の距離で速度が20m/sに達した(図4)。液滴の場合と比較しても桁違いに大きな速度を達成することに成功した。

さらに0-400kPaの範囲で到達速度の圧力依存性を検証したところ、到達速度は印加圧力に対して単調に増加した(図5)。以上のように氷の相転移および氷の付着力を利用した新しい流体操作を実現した従来の方法と比べて桁違いに大きな流速を達成した。この方法論を展開してMPaまで圧力を高めることができれば、100kJ/mol程度までに運動エネルギーを高めることができ、化学反応を誘起するのに十分なエネルギーを得ることができると考えられる。そのためにはガラスの表

面構造の制御など氷の付着力を最大にまで高める工夫が必要である。

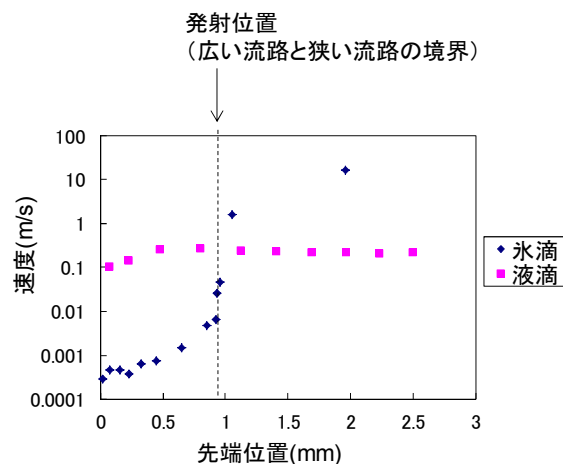


図4 液滴と氷滴の到達速度の比較

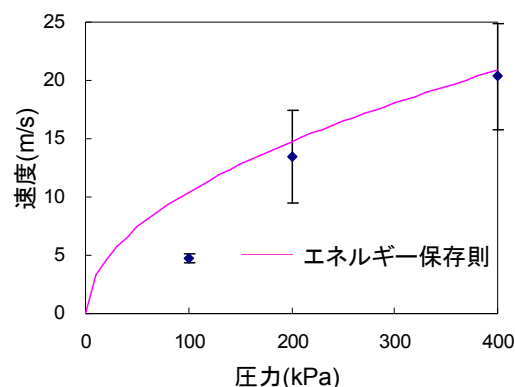


図5 到達速度と印加圧力の関係(実線は圧力の仕事量から計算した速度)

以上、本萌芽研究が目的とした大きな加速を実現する新しいマイクロ流体操作をはじめ創成することができた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

Takumi Matsuno, Yutaka Kazoe, Kazuma Mawatari, Takehiko Kitamori, "Ice Droplet Collider: Ultimate Acceleration Of Droplet Using Microscale Phase Transition For Chemical Reaction By Kinetic Energy," *Proceedings of μ TAS* (peer-reviewed and 50% acceptance), pp872-874, 2012.

〔学会発表〕（計 1 件）

Takumi Matsuno, Yutaka Kazoe, Kazuma Mawatari, Takehiko Kitamori, “Ice Droplet Collider: Ultimate Acceleration Of Droplet Using Microscale Phase Transition For Chemical Reaction By Kinetic Energy,” *μTAS2012 (Okinawa convention center)*.

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

出願年月日：

国内外の別：

○取得状況（計 0 件）

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年月日：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

馬渡 和真 (Mawatari Kazuma)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：60415974

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：