

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 29 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360085

研究課題名(和文)『動的な濡れ』の多重スケール界面熱流体力学の解明と革新的熱物質輸送技術への展開

研究課題名(英文) On multi-scale interfacial thermo-fluid dynamics of dynamic wetting phenomena toward innovative heat/mass transfer processes

研究代表者

上野 一郎 (Ueno, Ichiro)

東京理科大学・理工学部・准教授

研究者番号：40318209

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、固液気3相境界線の移動を伴う『動的な濡れ』を対象に研究を行い、以下の成果を得た。すなわち、(1) 先行薄膜形成初期過程でのダイナミクスの理解、(2) 固液2相混合状態での先行薄膜形成メカニズムとマクロ的動的濡れ現象の理解、(3) 固体面上に固体粒子などの障害物が存在する系での先行薄膜形成メカニズムと動的濡れへの影響の理解、さらに、(4) 光・熱エネルギー注入によるマクロ的三相界線近傍での熱物質輸送制御を実現した。

研究成果の概要(英文)：We have conducted a series of researches on dynamic wetting phenomenon accompanying the movement of the solid-liquid-gas three-phase boundary line (contact line). What we have achieved through this project are as follows; (1) dynamics of the precursor film formation at an early stage of the droplet spreading on the substrate, (2) precursor film formation process in the case of particle-laden droplet on the substrate, (3) effects of the obstacles on the substrate on the precursor film formation and on the macroscopic dynamic wetting, and (4) active control of the dynamic wetting and heat transfer near the macroscopic contact line.

研究分野：熱工学

キーワード：濡れ 界面熱流体 多重スケール

1. 研究開始当初の背景

2011年3月以降の日本国内のエネルギー問題を考えるにあたり、高安全性発電技術の確立が必須であると同時に、電力供給における従来の原子力発電への依存計画に関し大きな議論が展開されることは疑う余地が無い。我々は科学技術の力を結集し、高安定エネルギー供給・低エネルギー消費・低排出の社会を具現し、我々の次の世代、さらに次の世代に安定した環境を引き継いでいく責務を負う。また、新興国の爆発的な発展に伴い、地球規模で同様のエネルギー問題は不可避なものとして捉えなければならない。このようなパラダイム・シフトをスムーズに実現するために、大きな過渡期として定義されるこの10年~20年の中で、上述の供給・消費・排出の全ての領域で地球環境に優しいシステムを作り上げる必要がある。我々の研究グループは、このような社会的課題を解決するために必要な学術的最重要課題の一つとして、低エネルギー消費・低排出に向けた技術開発を大目標に掲げ本研究に取り組む。熱流体力学分野における貢献として、上記課題を解決するために不可欠な課題となる微小領域における高効率な熱物質輸送技術の確立を目的とする。このような体系の中でも特に、固体面上での液体の移動、すなわち『動的な濡れ』を対象として、固液気三相境界線近傍領域のダイナミクスの理解および制御技術の確立を目指すものである。『動的な濡れ』は、混合・蒸留・コーティング・冷却・凝固・結晶成長・凝縮・沸騰などの熱流体工学的領域から、ドラッグデリバリーシステム、マイクロリアクター、人工器官と体液あるいは血液との接触問題などの生化学・生体工学的領域まで、幅広い領域において不可避な現象であり、それらの物理化学的機構を理解するための重要な学術的課題である。エネルギーの低消費・低排出を実現する技術の例としては、燃料電池・電気自動車の普及において重要な課題である触媒内での流体駆動や、CPUやラジエータの冷却といった超小領域での流体ハンドリング技術あるいは超高熱流束除熱技術、また、試験流体および廃液量を可能な限り減らす中での化学反応制御、水質などの環境制御といった低エネルギー投入下での液体・固体駆動技術などが挙げられる。ここで重要な因子となるのが『先行薄膜』(図1)である。『先行薄膜』は、濡れのよい系においてマクロ的に観察出来る三相界線の前方に、文字通り先行して発達する薄膜を指す。スケールの縮小により、相対的にその存在が大きくなる先行薄膜領域は、濡れや反応を決定する極めて重要な因子となる。先行薄膜の存在は、約1世紀前に干渉計システムを用いたHardy (Philos. Mag. 38, 1919)によって、代表的厚さ約50 nm程度の薄い液膜がマクロ的コンタクトライン前方に存在することが示された。その後数多くの実験的・理論的研究

が行われ、ノーベル受賞者である de Gennes のグループにより (Hervet & de Gennes, C.R. Acad. Sc. Paris II 299, 1984, de Gennes, Rev. Mod. Phys. 57, 1985)によってその存在領域および厚さに関する理論が提唱された。最近になって MIT のグループによる位相シフト技術を導入した高精度干渉計を用いて先行薄膜存在長さの計測が実現され (Kavehpour et al., PRL 91, 2003), de Gennes の理論とよく一致する計測結果が紹介されている。これらは、液滴を固体壁上に静置した後、数十時間~数週間経過した後の十分に発達した、いわば『静的な』状態を対象としている。しかしながら、先述の産業への応用において重要な知見となる、液滴が固体壁に静置された直後の『動的な濡れ』、および、その状態での熱物質輸送技術に関する知見はほとんど蓄積されていないのが現状である。また、古典分子動力学を用いた数値計算としては、ナノワイヤ周りの dewetting を扱ったもの (Shibata & Ueno, ASME 2009 2nd Micro/Nanoscale Heat & Mass Transfer Int. Conf.) など研究例は少なかったが、最近になって動的濡れおよび Electrowetting での先行薄膜領域の計算を実現した例 (Yuan & Zhao, PRL 104, 2010) がある。空間スケール・時間スケールともに実際の現象と比較を行うには大きな乖離の存在が否めない。また、従来の先行薄膜形成過程に関する研究では、粗さや不純物 (図2)、温度不均一分布を有する基板、また液滴が微粒子を含有する系に関する多重スケールを縦断する知見は全く存在しないと言っても過言ではないのが現状である。産業への応用を考えた場合、これらの知見は必要不可欠なものである。さらに、接触角やマクロ的三相界線の移動、液滴-液滴間や液滴-粒子間相互作用に対する先行薄膜の寄与に関しては全く知見が得られていない。特に、微粒子を含有する液滴の濡れに関する問題は、例えばタンパク質や新薬、水質検査等の試薬反応過程の制御、また、試験流体および試薬粒子量の最小限化による反応過程の高速化・省エネルギー化への貢献が甚大である。これらの技術は、地上における化学反応過程の最適化のみならず、宇宙や海底といった今後進出が活発となる特殊空間における検査過程 (水質検査等の環境制御過程) の簡略化など、次世代環境制御過程への応用が見込まれる。

2. 研究の目的

本研究では先行薄膜形成を含む動的な濡れにおいて、マクロ的三相界線近傍の多重スケール領域ダイナミクスの理解および制御技術の確立という学術的貢献のもとで以下の内容を明らかにすることを目的とする。

- i. 先行薄膜形成初期過程でのダイナミクス、
- ii. 固液2相混合状態での先行薄膜形成メカニズムとマクロ的動的濡れ現象、
- iii. 固体面上に固体粒子などの障害物が

- 存在する系での先行薄膜形成メカニズム，
 iv. マイクロチャネルなどの狭小領域内での動的濡れ，
 v. 先行薄膜領域能動的制御によるマクロ的三相界線近傍での熱物質輸送制御の確立。

3. 研究の方法

本研究では，実験（上野・元祐・洪）および数値解析（上野・塚原・洪）系アプローチにより，上記課題に対して下記の研究を実施してきた。

課題 i. : 先行薄膜 (PF) 形成初期過程

(a) 移動・変形を伴う固液気三相界線前方の先行薄膜領域検出系の時空間解像度高精度化，(b) Brewster 角顕微鏡および共焦点レーザ変位計による先行薄膜存在領域および厚さ同時計測系の構築（ともに上野・洪），(c) 2液滴の濡れ拡がり時における先行薄膜合体現象の高解像度時空間計測系の構築および解析（上野・洪），(d) 固体基板上に固体粒子が存在する系での先行薄膜合体現象の高解像度時空間解析（課題 iii.とも関連）（上野・元祐）（以上実験），(e) 分子動力学法 (MD) による極性分子の濡れに関する数値解析コード開発・検証（上野）（以上数値解析）

課題 ii. : 固液混合状態

(a) 粒子を含有する液滴-固体基板での先行薄膜形成初期過程の検出（上野・洪），(b) 項目(a)における粒子挙動の3次元再構築同時実施（上野・元祐），(c) 粒子を含有する液滴-固体基板での先行薄膜形成初期過程における光・熱照射能動的制御アルゴリズムの開発と実験・解析（課題 v.とも関連）（元祐・上野）（以上実験），(d) 固体粒子を考慮した固液二相流を対象とした数値解析コード開発，(e) 固体粒子を考慮した固液二相流を対象とした能動的制御アルゴリズムを導入した数値解析コード開発および解析（ともに塚原・上野）（以上数値解析）

課題 iii. : PF-粒子相互作用

(a) 先行薄膜領域と粒子の相互作用に関する高速度・高感度観察，(b) 先行薄膜領域と粒子の相互作用に関する高速度・高感度観察継続（ともに上野・元祐）（以上実験），(c) MDを用いた数値解析コードの開発（上野）（数値解析）

課題 iv. : 狭小領域

(a) マイクロチャネルあるいはチューブ内での先行薄膜形成過程に関する基礎実験，(b) マイクロチャネルあるいはチューブ内での固液混合状態における先行薄膜形成過程に関する基礎実験（課題 ii.とも関連）（ともに洪・上野）

課題 v. : 能動的制御

(a) 光・熱エネルギー照射と先行薄膜形成過程の相互作用に関する基礎実験，(b) 粒子を含有する液滴-固体基板での先行薄膜形成初期過程における光・熱照射能動的制御アルゴリズムの開発と実験・解析（課題 ii.とも関連）

（以上元祐・上野），(c) 先行薄膜厚みと異なる直径を有する粒子を用いた先行薄膜領域対流場の可視化および光・熱照射能動的制御実験（上野・元祐）（以上実験）

4. 研究成果

本研究においては，先述の5つの課題を中心に研究活動を実施してきた。ここで，それらのうち，代表的なものを紹介する。

課題 i. : 先行薄膜 (PF) 形成初期過程

固体基板上を濡れ拡がる液滴と粒子との相互作用に関する基礎的研究として，液滴の巨視的3相接触界線（コンタクトライン）前方に存在する先行薄膜の高精度検出機構の開発（図1）と，2液滴合体時の先行薄膜挙動の観察を目的に実験系を構築した（図2）。2液滴合体時の先行薄膜領域の可視化例を図2に示す。ここでは，体積1.2 μlを有する2液滴を中心間距離20 mmの位置に静置し，その干渉・合体の様子を可視化している。巨視的コンタクトライン（図2中：Macroscopic CL）が対向して移動し，それぞれの前方に輝度の低い領域（先行薄膜領域）が観察できる。巨視的コンタクトラインが合体する（時刻 t = 240 s）以前に輝度の高い領域が t = 200 sあたりから現れていることから，先行薄膜領域の強い相互作用が発生していることが示している。

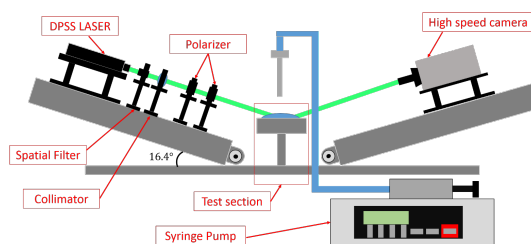


図1 高精度液滴滴下系を有するブリュースター角顕微鏡システム。

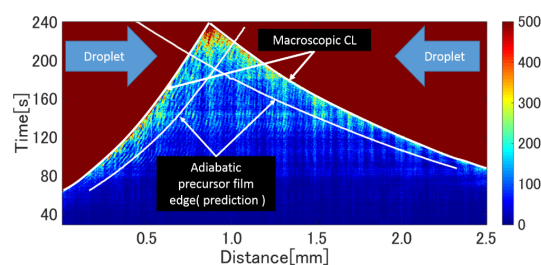


図2 ブリュースター角顕微鏡による対向する2液滴前方に形成された先行薄膜領域の検出例。

課題 ii. : 固液混合状態

流体中の sub-mm 粒子・液滴とその周囲流体および流体界面の挙動を再現してダイナミクスを把握するために，支配方程式を十分に細かい格子解像度を用いて離散化し数値積分を行う“直接数値解析(DNS)”コードを構築した。図3に示しているのは，固体粒子

周りの乱流渦の可視化例であり、固体粒子の運動により、対流場に与える影響を鮮明に捉えることを可能とした。

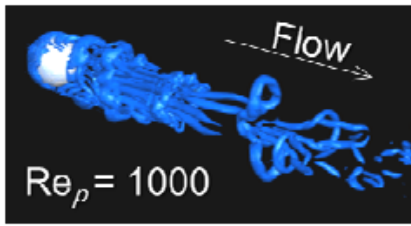


図3 固体粒子周りの対流場に関する直接数値計算例：粒子周りの乱流渦を可視化している。

課題 iii. : PF-粒子相互作用

固液気3相境界線近傍流体と固体粒子の相互作用を高精度に抽出するため、基礎的段階として作動液体と固体粒子間の濡れ性を考慮した3相相互作用を解像しうる直接数値計算コードを開発した(図4)。

また、実験的アプローチにおいては、固体表面修飾を模擬した球状粒子と巨視的3相境界線近傍流体との高精度可視化を実現する実験系を構築し、固体粒子との相互作用に起因する3相境界線近傍流体の変形を捉えることに成功した(図5)。

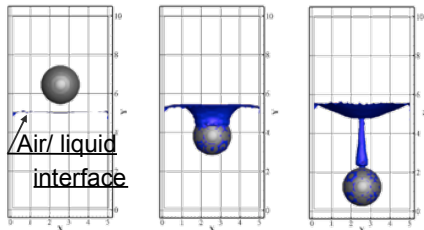


図4 作動液体と固体粒子間の濡れ性の影響を考慮した固体球状粒子の液面衝突計算例。

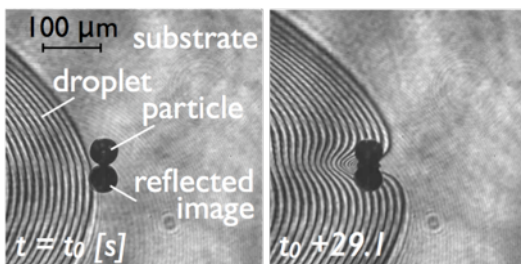


図5 固体基板上に静置した直径約50 μmの微粒子と基板上を濡れ拡がる液滴の巨視的境界線との相互作用の干渉計連続観察の予備的実験結果例。

課題 iv. : 狭小領域

分子動力学法を用いた数値計算コードを開発し、特に極薄液膜の破裂過程におけるエネルギー散逸機構の解明に注力した。オーネゾルゲ数 $Oh \sim 1$ 程度の自由液膜を模擬(図6上)し、破裂時の速度(図6下)およびその温度上昇過程を明らかにした。また、固体表面上に存在する液膜の破裂過程についても

取り組み、固体とのエネルギー授受を考慮に入れた解析を行った。

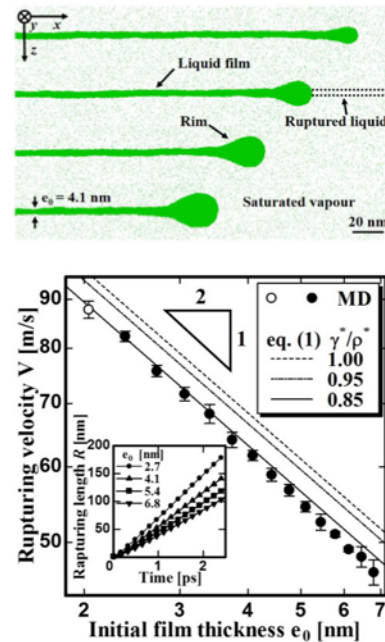


図6 (上) MDによる極薄L-J流体液膜の破裂過程に関する検証例、(下)破裂時の界面移動速度における初期液膜厚さの影響。

課題 v. : 能動的制御

気液-液液界面の光制御による気泡/液滴輸送技術の開発を目指して、実験的および数値的アプローチにより取り組んだ。図7は、正の表面張力温度勾配を有する液滴近傍にレーザーを照射して熱エネルギーを注入することによって液滴を輸送する実験成果を模倣するために行われた直接数値シミュレーションの例である。

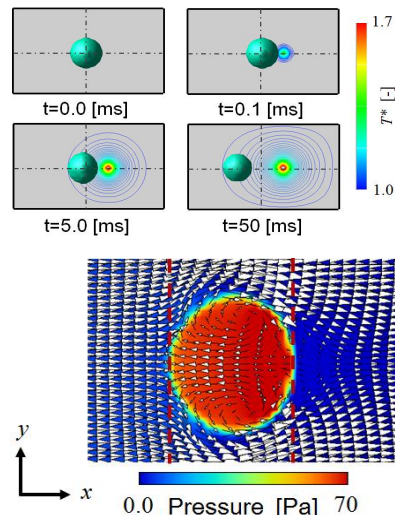


図7 (上) 正の表面張力温度勾配を有する液滴近傍にレーザーを照射して熱エネルギーを注入することによって液滴を輸送する直接数値シミュレーションの例、(下)輸送実現時の液滴内および液滴周囲液体内の速度場および圧力分布。

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 18 件) (全て査読有)

1. Kono, S., Kaneko, T. & Ueno, I., Elevation of the temperature of liquid films caused by rapid rupturing, *Phys. Rev. E*, 90, 051004(R), 2014. DOI: 10.1103/PhysRevE.90.051004.
2. Hong, C., Asako, Y., Ueno, I. & Motosuke, M., Total temperature measurement of laminar gas flow at microtube outlet: cooled from the wall, *Heat Transfer Engineering* 35, 142-149, 2014 (DOI: 10.1080/01457632.2013.812482)
3. M. Motosuke, K. Yamasaki, A. Ishida, H. Toki & S. Honami, Improved particle concentration by cascade AC electroosmotic Flow, *Microfluidics and Nanofluidics* 14, 1021-1030, 2013.
4. H. Kotari, M. Motosuke & S. Honami, Particle sorting by optical radiation pressure with low energy density, *La Houille Blanche* 4, 72-78, 2013.
5. Hashimoto, S., Hong, C. & Ueno, I., Transient growth process of precursor film at early stage of droplet spreading, *J. Thermal Science & Technology* 7 (3), pp.487-496, 2012.

[学会発表] (計 36 件)

1. N. Kazuno, Y. Miyazaki, T. Tsukahara, and I. Ueno, Numerical study on dynamics behavior of contact line moving on small-particle surface, 5th Asian Symposium on Computational Heat Transfer and Fluid Flow (Busan, Korea, Jun. 21-24, 2015).
2. Y. Miyazaki, T. Tsukahara, and I. Ueno, Numerical study of dynamic behavior of contact line approaching a micro-scale particle, 67th Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics (San Francisco, CA, USA, Nov. 23-25, 2014).
3. M. Motosuke and H. Kotari, Fuss-free microfluidic particle transportation by optical scattering force, 4th European Conference on Microfluidics (μ Flu) (2014.12.10-12, Limerick, Ireland).
4. M. Muto, M. Motosuke, Visualization of manipulation force field for microfluidic droplet by photothermal interfacial flow, 18th Int. Conf. on Miniaturized Systems for Chemistry & Life Science (micro-TAS) (2014. 10.26-30, San Antonio, TX).
5. Hong, C., Yoshida, Y., Matsushita, S., Ueno, I. & Asako, Y., Supersonic micro-jet at straight micro-tube exit, 5th Int. Conf. Heat Transfer & Fluid Flow in Microscale (HTFFM-V) (22nd - 25th Apr. 2014, Marseille, France).
6. Hong, C., Isobe, K., Asako, Y. & Ueno, I., Total temperature measurement of turbulent gas flow at microtube exit, ASME 2013 11th

Int. Conf. on Nanochannels, Microchannels, & Minichannels (ICNMM2013) (June 16th ~ 19th, 2013, Sapporo, Japan).

7. Kono, S., Miyazaki, Y. & Ueno, I., Contact line dynamics on droplet spreading: Molecular dynamics and experiment, 87th ACS 2013 Colloid & Surface Science Symp. (June 23rd ~ 26th, 2013, UC Riverside, CA).
8. Fukushima, J., Hibino, T. & Ueno, I., Interactions between particles on the substrate and contact line of spreading droplet, 87th ACS 2013 Colloid & Surface Science Symp. (June 23rd ~ 26th, 2013, UC Riverside, CA).
9. Ueno, I., Hashimoto, S. & Hong, C., Growth of precursor film at an early stage of spreading of droplet on smooth surface, 3rd Int. Forum on Heat Transfer (IFHT2012) (Nov. 13-15, 2012, Nagasaki).
10. C. Hong, S. Matsushita, Y. Asako, I. Ueno, Characteristics of turbulent gas flow in microtubes, 2012 ASME Int. Mechanical Engineering Congress and Exposition (IMECE2012) (Houston, TX, Nov. 9-15, 2012).

[図書] (計 2 件)

1. 元祐昌廣, ナノ・マイクロスケール熱物性ハンドブック (日本熱物性学会編), pp.184-188, 養賢堂 (2014), ISBN: 978-4-8425-0525-1.
2. 上野一郎, 液体のマイクロ・ナノスケールの熱物性値 (第3章, 第6節) in ナノ・マイクロスケール熱物性ハンドブック (日本熱物性学会編), pp.147-154, 養賢堂 (2014), ISBN: 978-4-8425-0525-1

[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 :
出願年月日 :
取得年月日 :
国内外の別 :

[その他]

特になし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

上野 一郎 (UENO, Ichiro)
東京理科大学・理工学部・教授 研究者番号：40318209

(2) 研究分担者

元祐 昌廣 (MOTOSUKE, Masahiro)
東京理科大学・工学部・准教授 研究者番号：80434033

(3) 研究分担者

塚原 隆裕 (TSUKAHARA, Takahiro)
東京理科大学・理工学部・講師 研究者番号：60516186

(4) 研究分担者

洪 定杓 (HONG, Chungpyo)
鹿児島大学・大学院理工学研究科・准教授
研究者番号：60516201