

2014 年度 芝浦工業大学大学院 博士論文

研究題目

気液自由界面上に生じるマランゴニ対流を用いた  
マイクロ混合流の生成

芝浦工業大学大学院理工学研究科

博士（後期）課程 地域環境システム専攻

学籍番号 NA12104 山田 崇



## 本研究の概要

本研究は、微細流路内への気泡形成技術を確立し、それにより形成された気泡表面を用いて、液相の表面張力差によって発生するマランゴニ対流による、マイクロ混合流の生成を実現させ、その二液混合に対する可能性を探索するため、そのためのデバイスを考案、設計の上、それを用いた流動実験を各種行った。マイクロリアクター開発のうち、複数の流体の混合促進に焦点を当てた機能設計。としてのマイクロミキサー研究の一環として行うものであり、実験結果から、混合効果とそのメカニズムについて解析することで、対流、特にせん断流を用いたマイクロ混合促進についての知見を得ることを目的とする。

具体的な手法として、代表長さ 0.1mm オーダーの微細流路内の空間に、気液自由界面を形成させ、表面張力の異なる二液を接触させることで、その二液間の界面張力差により発生するマランゴニ対流により、混合デバイス内に渦流を発生させる。以上により微細管内の二液の急速混合に発展させるせん断流生成デバイスの開発を行った。試験流路は L 字型流路を元に、その合流部に気液自由界面（気泡表面）を設置する機構を設けた試験流路を制作し、表面張力差の異なる二液体を用いて実施した流動実験と PIV（Particle Image Velocimetry : 粒子画像化速度計測法）を用いた流れ可視化実験を行い、マランゴニ対流によるマイクロ混合流の可視化と、その流動速度解析を試みた。

実験の結果、実験時の試験流体に対する輝度値測定結果から、混合デバイス周辺（デバイスから 0.5mm 未満の領域内）において、最大 50%程度混合が促進されていることが確認された。また、PIV 解析による流れの可視化実験において、外縁流速が 20.0mm/s 以上の、周期的に発生する旋回流が観測された。

上記の現象について单相流有限体積法による簡易的な計算モデルを用いた 0.05 秒間の三次元非定常解析を行い、実験結果と比較した結果、1 周期間の流速について、実験値とほぼ一致する傾向が得られることが確認された。

これらの結果から、このマランゴニ対流が微細流路内の流れに周期的な変化を与えることにより、その二液混合に大きな影響を与えていることが確認され、その流れの影響により、微細流路内の二液の混合促進に大きく貢献することが見出された。

以上の成果は一定の価値を見いだせるものであり、マイクロ空間内での流体挙動や、二液混合技術に対して新たな知見を与えることができたと考えている。

## 目次

第1章 緒論.....	1
1-1 研究背景.....	2
1-2 マイクロ領域におけるミキシング手法開発の現況.....	5
1-3 研究目的.....	8
1-4 研究内容構成.....	11
第1章の参考文献.....	14
第2章 マランゴニ対流を利用したマイクロ混合流の生成.....	17
2-1 混合理論.....	18
2-2 表面張力とマランゴニ効果.....	19
2-3 マランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイスの構築.....	23
2-3-1 実験流路形状の検討とその変遷.....	23
2-3-2 コンセプトの実現性に対する検討.....	31
2-4 本章のまとめ.....	34
第2章の参考文献.....	35
第3章 実験用マイクロ流路の作成.....	37
3-1 実験流路の概要.....	38
3-2 気相内圧力制御機構の構築.....	42
3-3 試験流路の詳細.....	45
3-4 マイクロ流路内での気泡形成実験.....	51
3-5 本章のまとめ.....	57
第3章の参考文献.....	58
第4章 実験手法.....	59
4-1 実験装置全体の構成と各装置の役割.....	60
4-2 試験流体の選定とその理由.....	65

4-3 混合評価法 .....	68
4-3-1 酢酸水溶液の拡散に対する混合評価法の検討 .....	68
4-3-2 評価手法概要 .....	69
4-4 PIV（粒子画像化速度計測法）の概要と本研究における適用 .....	71
4-4-1 粒子追跡法 .....	73
4-4-2 画像相関法 .....	76
4-4-3 本研究で用いた流体・粒子画像システム構成 .....	84
4-5 本章のまとめ .....	91
第4章の参考文献 .....	92
第5章 混合流生成実験 .....	93
5-1 実験概要 .....	94
5-1-1 実験条件の設定 .....	94
5-1-2 流入条件とその範囲の設定 .....	97
5-2 実験を支配するパラメーター .....	98
5-2-1 $\pi$ 定理による次元解析結果 .....	98
5-2-2 実験系を支配する無次元数と主要パラメーター .....	100
5-3 流れと同方向に生じるマランゴニカによる混合流生成実験 .....	101
5-3-1 流入条件と主要パラメーター .....	101
5-3-2 固体壁面をもつ実験流路との比較実験 .....	103
5-3-3 混合評価実験 .....	105
5-3-4 流れ可視化実験 .....	110
5-4 流れと逆方向に生じるマランゴニカによる混合流生成実験 .....	114
5-4-1 流入条件 .....	114
5-4-2 混合評価実験 .....	116
5-4-3 流れ可視化実験 .....	120

5-5 周期的な流れ場発生を考慮に入れた次元解析.....	127
5-6 本章のまとめ.....	129
第5章の参考文献.....	130
第6章 CFD解析.....	131
6-1 マランゴニ対流による混合流生成プロセスの考察.....	132
6-2 CFD解析モデル.....	134
6-2-1 CFD解析モデルの概念.....	134
6-2-2 CFD解析計算手法.....	136
6-2-3 解析モデルの構築.....	141
6-3 CFD解析結果.....	143
6-4 気泡表面で生成されるマイクロ混合流の発生メカニズムに対する考察.....	152
6-5 本章のまとめ.....	156
第6章の参考文献.....	157
第7章 マランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイスの「スケール・アップ」チャン ネルへの応用.....	159
7-1 今後の展開についての考察とその試行.....	160
7-1-1 スケール・アップ コンセプトと本実験の目的.....	161
7-1-2 実験流路の概要.....	162
7-1-3 実験条件と実験時の測定範囲.....	164
7-1-4 実験結果.....	168
7-2 本章のまとめ.....	175
第7章の参考文献.....	176
第8章 結言.....	177
謝辞.....	181
研究業績.....	184
論文.....	184

受賞.....	185
学会発表.....	186
国際学会 .....	186
国内学会 .....	187

## 第 1 章 緒論

この項は

- ・ 1-1 研究背景
- ・ 1-2 マイクロ領域におけるミキシング手法開発の現況
- ・ 1-3 研究目的
- ・ 1-4 研究内容構成

の四項で構成されている。



## 1-1 研究背景

近年、工学の各分野において、ダウンサイジングによる装置の小型化の研究が進められている。物理現象の生じる領域内の体積が小さくなると、その体積／表面積比が大きくなることにより、体積力に対する面積力の影響が顕在化する。これにより、それによる熱移動、質量移動、化学反応などの効率が飛躍的に向上するとされており、装置の集積化、高効率化が可能となる。ダウンサイジングの最も大きな成功例は電子工学分野における CPU (Central Processing Unit ; 中央演算回路) の集積化、高効率化、及び、それに伴う演算能力の飛躍的向上であるが、化学工学分野における代表的応用例がマイクロリアクターであるとされている。

マイクロリアクターは、マイクロ空間内のダウンサイジングに伴う現象を利用した化学反応・物質生産の為の装置と定義され、このうち、Lab on Chip と区分される装置は、数センチ角の基板上に、必要な諸設備である、前処理、混合、反応、分離、検出など実験室で行われている全ての操作を集積化したものである。これらはすべてマイクロ空間として定義されている代表長さ 1～1000 $\mu\text{m}$  程度の流路 (マイクロチャネル) で構成されている。マイクロ混合器 (micro mixer) は、マイクロリアクターの構成要素の 1 つであり、マイクロ空間内での物質の混合、反応工程に使用される装置であり、この十数年間に数多くの種類のマイクロミキサーが研究されまた開発されてきた[1-4]。

マイクロリアクター内部の流れは、その代表長さ  $l$ 、流体の密度  $\rho$ 、粘性係数  $\mu$ 、流速  $u$  から、以下の式(1)で定義される Reynolds 数 ( $Re$ ) を考えると

$$Re = \frac{\rho ul}{\mu} \quad \dots(1-1)$$

マイクロ空間内では、基本的に  $Re < 1$  となる層流であるため、流体の質量 (モル) 濃度  $\omega$ 、拡散係数  $D$ 、デカルト座標系  $x, y, z$  各方向の流速  $u_x, u_y, u_z$  からなる、デカルト座標系における一般的な物質輸送方程式(1-2)

$$\frac{\partial \omega}{\partial t} + u_x \frac{\partial \omega}{\partial x} + u_y \frac{\partial \omega}{\partial y} + u_z \frac{\partial \omega}{\partial z} = D \left( \frac{\partial^2 \omega}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \omega}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \omega}{\partial z^2} \right) \quad \dots(1-2)$$

は、左辺第 2,3,4 項が実質的に無効となるため、輸送方程式は式(1-3)のように表される。

$$\frac{\partial \omega}{\partial t} = D \left( \frac{\partial^2 \omega}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \omega}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \omega}{\partial z^2} \right) \quad \cdots(1-3)$$

これは、複数の物質に対する混合が、基本的には拡散係数  $D$  に依存することを示しており、本質的に不利な条件にあるといえる。したがって一般的に、マイクロ混合は最終的には分子拡散に依存することになると考えられている。結果として混合速度向上については拡散距離短縮、即ちマイクロ流路断面の有効径縮小が最も効果的な方法になる[4]。

以上の理由により、マイクロミキサーは、その主要な混合促進源を、その大きな表面積/体積比および拡散距離短縮による分子拡散の促進に依存しているのが一般的である。また同様の理由から、マイクロミキサーは2液の混合と化学反応を併存して行う「逐次反応」によるものがほとんどであり、通常は直線流マイクロミキサーが採用されることが多い[1-4]。

Fig. 1-2 に示す通り、直線流マイクロミキサーには、混合デバイスに対する外部動力の有無により、「受動型」(passive mixer) と「能動型」(active mixer) の2つに大別される。しかし、その混合促進の手法、およびメカニズムは、上述のマイクロ空間における流体の流れの特性から、基本的には同一であるとされている。

直線流マイクロミキサーの混合促進手法としては、

- (1) 混合する二液が層となって流れる流路（混合流路）の一部または全域の流路幅を細くすることで拡散距離を減少させる
- (2) 混合流路断面に混合する二液の層を複数～無数のセグメントに分割し、二液界面の表面積を飛躍的に増大させ、同時に拡散距離の減少を図ること

以上の2つに代表される[1-3]。

具体的な方策としては、Fig. 1-1 にて示される通り、

- ① ミキシングティーパーによる混合
- ② メインストリーム(主流) に別成分を多数のサブストリームから導入
- ③ 2成分それぞれを多くのストリームに分割して、それを混合
- ④ 流れ方向で径を絞り、拡散距離を短縮する
- ⑤ 分割・混合を繰り返す
- ⑥ 超音波、電気エネルギー、熱エネルギーを利用して混合
- ⑦ 小さな流体セグメントを周期的に導入

等の方法が挙げられている[2,3]。

しかしこれらの手法，特に上記①～⑤の手法に依存する場合，ミキサー1台あたりの絶対的な生成量が小さくなるのは否めない．また，これらの手法はミキサー（微細管）内の管摩擦による圧力損失が非常に大きくなるため，シーリング等の問題が生じる事が予想される．したがって，マイクロミキサーにはこれらの圧力による破損に耐える絶対強度が求められることになる．

マイクロリアクターは，従来，多数のリアクターを並列に繋ぐことで生成量を確保する，いわゆる「ナンバリング・アップ」(Numbering-up)と呼ばれる手法を用いることを前提に拡散距離減少と内部容積の小型化が図られ，開発が進められてきた．しかし，マイクロオーダーの代表長さを持つ流れ場は，上記した管摩擦による圧力損失の高さから，例えば入り口形状（境界）の小幅な変化でも，分圧が均一にならず，流れ分布全体が変化し，流れが偏る状態に陥るとした計算例が報告されている[4]．したがって，この分圧の偏在によるため，マイクロオーダーの流れ場を多数繋ぎながら，その均質な流量を保証することは非常に困難であるとの指摘がなされている[4]．

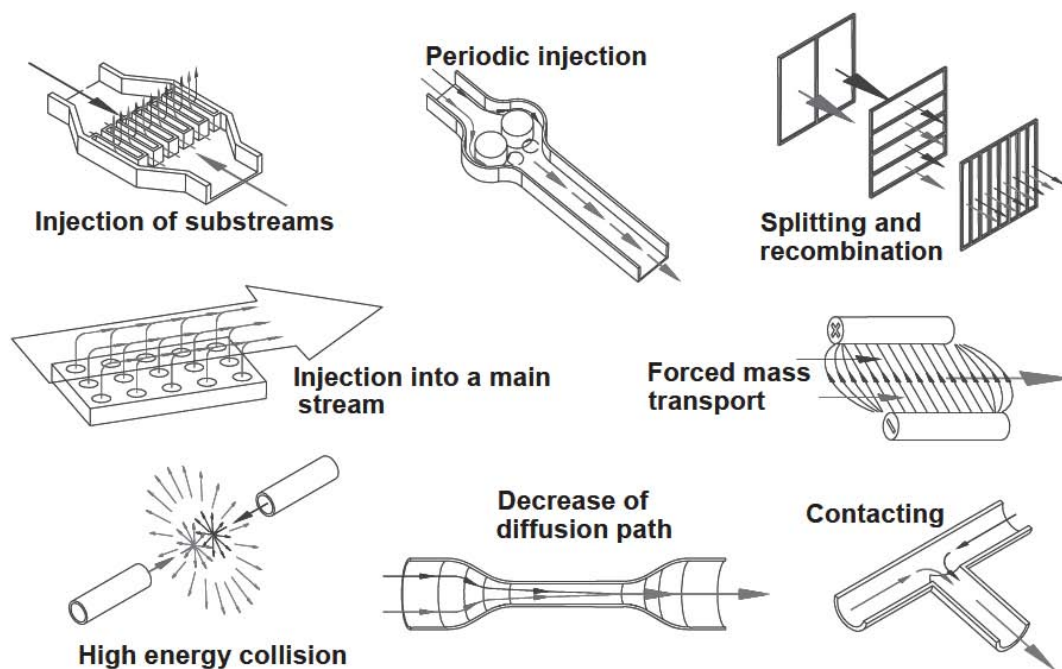


Fig. 1-1 schematic drawing of selected passive and active micromixing principles.[3]

## 1-2 マイクロ領域におけるミキシング手法開発の現況

極端な多段化とナンバリング・アップのため、多数のマイクロリアクターを接続し、全ての装置に対して均等な流量を保証する技術は、現在までに技術的に確立されていない。また破壊強度やシーリング性能の保証のため、その絶対的な生成量に対する装置本体や圧力ポンプなど各種補機類が大型化することは必然であると思われる。Hönickeによれば、マイクロリアクターの一つの定義として、必ずしも装置全体が小型である必要が無く、流れ場、あるいは反応場自体がマイクロ空間内にある場合、それはマイクロリアクターであるとされている[21]。

しかしその場合、従来のマクロスケールにおける攪拌槽を用いたパッチ混合器に替わり、マイクロリアクターがこのままの形で、工業分野において一般的に広く普及することは、かなり難しいと思われる。現状として、マイクロリアクターは、マイクロ空間内の熱移動、質量移動、化学反応などに対する高い生成・制御効率を生かすことのできる極めて限定された特殊用途向けの技術に特化した進化を遂げている[5]。

マイクロリアクターの一つの関門は、上記したように、本質的に流体の混合に適した条件ではない層流場において、複数の流体をいかに効率よく混合させるかであると指摘されている。したがって、この領域において、物質移動流束を有効に活用することが可能な、高効率の急速混合デバイスを開発することは、技術上意義のあることと考えられる。そのためには、Hessel等が指摘しているように、式(2)に示す移流拡散方程式の左辺第2-4項に見られる移流項(advection terms)を有効活用するマイクロ混合デバイスの開発を試みることで重要であると考えられる[3]。

上記の課題に対しては、これまでも様々な試みが為されている。例えば、上記⑥に該当する例として、電磁流体を用いたカオス混合[3,6]、導電性流体の界面動電性(electrokinetic)による電気浸透流を用いた混合デバイス[7]、音波を用いて細管内あるいは、代表長さに対して比較的大きなチャンバー内に対流を発生させ、混合を促進する試みなどがある[8,9]。

これらは混合効率とその均質性といった点において、効果的な混合デバイスであると評価される。しかし、それはある特別な条件下においてのみ成立するものであり、その一般的な適用性については議論の余地がある。しかし、少なくともそのような環境を形成することに成功した場合、管内の流れに直接影響を与えずに、物質移動における対流流束を有効に活用することが可能になり、その混合促進効果は非常に高いことが確認できる。但し、その絶対的な処理量は、報告されている限り、比較的微小であると評価せざるを得ない。

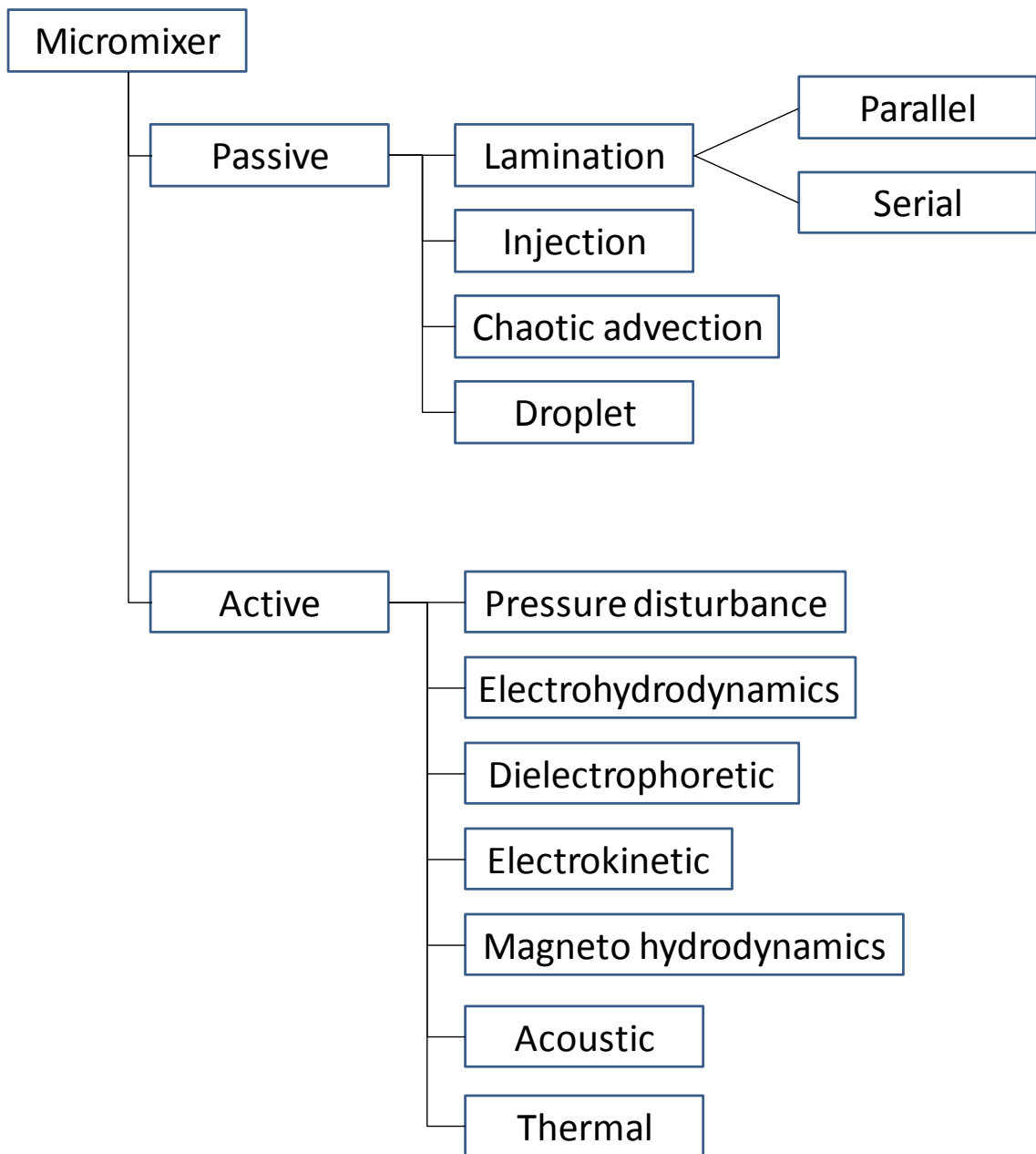


Fig. 1-2 Classification scheme for micromixers.[2]

いま一つの方向性として、上記①～⑦に分類されない混合手法である、マイクロ流路内に発生する「二次流れ」を混合プロセスに積極的に用いるという手法が台頭して来つつある[10,11].

ミリからサブミリ以下の流路内の流れは、上記の通り基本的に層流であるとされている。しかし、気・液もしくは液・液の2相からなる流体がマイクロ流路を流れるときは、管内を流れる主流とは別に、二次的な流れが発生し、反応・混合・分離などを促進させることが知られている。

マイクロ流路において気・液あるいは液・液の2相が流れるときの代表的な流動状態として、並行流、スラグ流、円環流がある。このうち、スラグ流について注目すると、層流の流れの特性として流路の流れ方向の流速は、中心軸付近が最も大きいのに対して、壁面からの摩擦力（せん断応力）は、流れ方向と反対方向に作用するため、以上の2力の相互作用により、スラグ流の内部に循環流が発生し、これがスラグ流内の複数の流体の混合に大きな効果があるとされている。

マイクロ流路内のスラグ流内に発生する循環流の発達は、マイクロ流路内のスラグ流の流速とスラグの大きさ（体積）に関連があるとされており、壁面との間のせん断応力をスラグ内の循環流発生に対して積極的に利用するには、基本的に管内の流れ速度は高速であることが求められる。

これは、ミキサー一台当たりの処理量（スループット量）の増大に繋がると考えられ、これはマイクロ流路を利用するリアクターの開発において、従来から行われていた反応系の特性のほかに流路形状、素材（表面特性）も大きく関係すると述べられている。

以上の例は、マイクロリアクター開発のうち、複数の流体の混合促進にのみ焦点を当てたものであり、未だにその流れ特性を探索しているレベルにとどまってはいるが、今後の研究進展に期待されるものである。

### 1-3 研究目的

以上、マイクロミキサー開発の歴史、その進展と、対流を用いた混合性能（混合速度、均質度）向上手段の一例として、超音波や電気エネルギーを利用して混合促進する手法と、マイクロ流路内に発生する「二次流れ」を混合プロセスに積極的に用いる手法について概観した。

マイクロ流路内における一般的な流動条件とされる「層流」流れは、基本的に複数の流体の混合には不利な条件とされているため、現在のマイクロリアクターの発達は、マイクロ流路内において、流体間の接触界面においての分子拡散に依存した拡散混合の進展と共に進行する「逐次反応」に、そのメカニズムを依存していることについては既述した。従って、その最適化設計は混合する流体間の反応系、即ち拡散速度と反応速度に依存するため、それに対する専用設計を行う必要がある。そのため、マイクロミキサーを、一つのユニット、あるいは工業製品として、その設計の「標準化」を確立することは困難であると指摘されている。それが工業分野に対する浸透を阻む一つの理由であると考えられる。従って、今後のマイクロミキサー開発に関しては、設計の標準化を推し進めることが重要であり、その為の一つの方法として、マイクロリアクター開発のひとつの関門とされている、「層流場」での効果的な混合と処理量の増大の両立を実現するマイクロミキシングプロセスの開発が重要であると考えられる。もしこれが実現されれば、少なくともマイクロリアクターの混合工程における装置設計の標準化と、その多くの技術の共通化が可能となると思われる[4]。

本研究室では、直線流マイクロミキサー内に気液自由界面（気泡）を複数形成させ、界面上を流体が通過する際の流れの変化により混合促進を図る「気液自由界面を用いたマイクロ混合」の研究が継続して行われてきた。

Fig. 1-3 に示すように、小野らは代表長さ  $0.1\text{mm}$  の直線流マイクロ流路の流路壁に多数の矩形溝を配置し、その流路内を液体が流れるとき、一方で矩形溝には気体が残留することになり、その結果、矩形溝上に形成される気液界面が液側に凸状に張り出すため、流れが蛇行することで混合が促進され、さらに流路内部の圧力損失を低減させるデバイスを開発した。その結果、同形状の直線流マイクロミキサーと比較して、最大 82% 混合効果が向上し、圧力損失が 30% 程度低減したことが報告されている[12]。更に小野らは、Fig.1-4 に示すように、流路壁に対向に配置した 2 つの矩形溝内に直接、圧縮空気を送り込み、凸状に張り出した気液界面を周期  $1.0[\text{s}]$  で上下動させることにより、混合が促進されるデバイスを開発した。その結果、同形状の直線流マイクロミキサーと比

較して、デバイス付近のみ（距離 0.5mm 間）で最大 50%混合効果が向上したことを報告している [13].

これらの研究から、マイクロ流路内で気泡形状を制御することにより、流れの変化により生じる、質量移動流束による混合が促進され、混合時間の短縮を図ることが可能となることを見出されている。これは、外力を加えることで、その混合メカニズムに移流(advection)を積極的に活用する、電気浸透流、超音波、あるいは磁場などを用いたマイクロ混合の研究事例とは全く異なる混合システムであり、気泡表面をマイクロ構造物と見做して、その外形をマイクロ混合に適した形状に制御するために外力を用いるものである。

本研究では、上記研究で得られた成果、特にマイクロ流路内での気泡形成・制御技術を基盤として、マイクロ流路内に発生する「二次流れ」を混合プロセスに積極的に用い、さらに大きな対流拡散効果を加えることで、「層流場」での効果的な混合と処理量の増大の両立を実現するマイクロミキシングプロセスを開発することを企図した。その手段として我々は、気液自由界面上に現れる代表的な物理現象のひとつである「マランゴニ効果」に注目した。

「マランゴニ効果」とは、気泡表面に代表される、気体と液体の接触界面である、気液自由界面上において、界面の表面形状を決定する物性値である「表面（界面）張力」値について、何らかの理由で表面張力分布が生じるとき、その表面張力差により、界面上にせん断力が発生する現象を指す[14].

「気液自由界面」を用いて生成される「マランゴニ対流」をマイクロ混合流として用いるという試みに対しては、それに関する先行研究がほとんどなく、その実現可能性を論じる材料にも不足している。また、「気液自由界面上」に生じるマランゴニ対流の、その周辺部に対する流れの影響等についても、一部の数値解析や、理論解析など、研究例があまり多くはない[15-20]. とくに **PIV** 解析等でその流れ分布や振る舞いを観察した研究例は、調査した限り見出すことが出来なかった。したがって、その流れ特性や、混合に対する寄与については未知のものであり、それらについての探索を行うこと自体が、本研究の目的となると思われる。したがって、これは **feasibility study** の側面が強い研究であると言える。

以上から、本研究ではまず、この「マランゴニ効果」による、マイクロ流路内に設置した「気液自由界面」上に生じるせん断流と流路主流との相互作用により複数の流体の混合に有効な「マイクロ混合流」生成を実現させることを目指し、そのマイクロ混合流が安定して生成されるデバイスの開発を行い、この結果、生成されたマイクロ混合流が、どのような条件下において発生し、それがどのような混合効果を持つかについて確認し、そのときの流れ特性、速度分布について調査すること、以上の三点が研究目的となる。



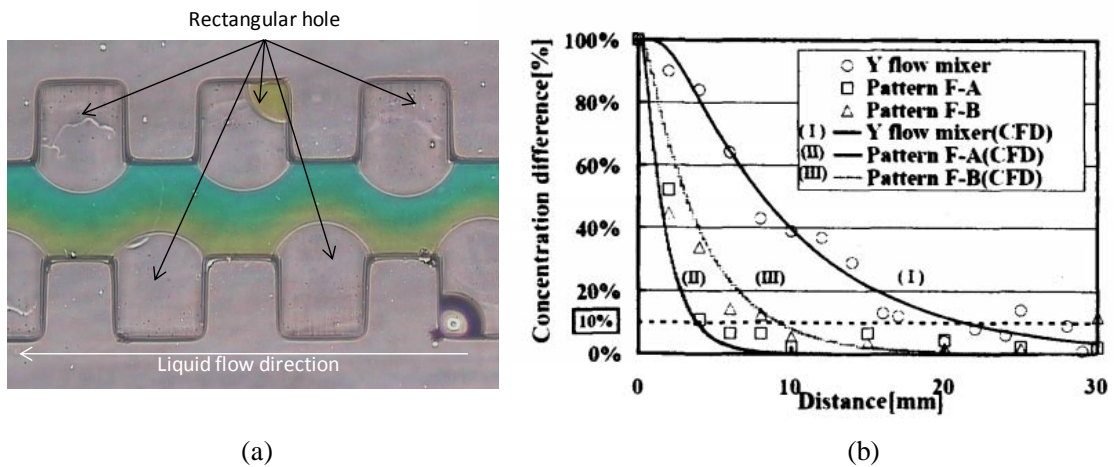


Fig. 1-3 a micromixing process utilizing gas-liquid free interface by many bubbles, (a) a image of a flow experiment, (b) experimental and numerical result compared with conventional micromixer [12]

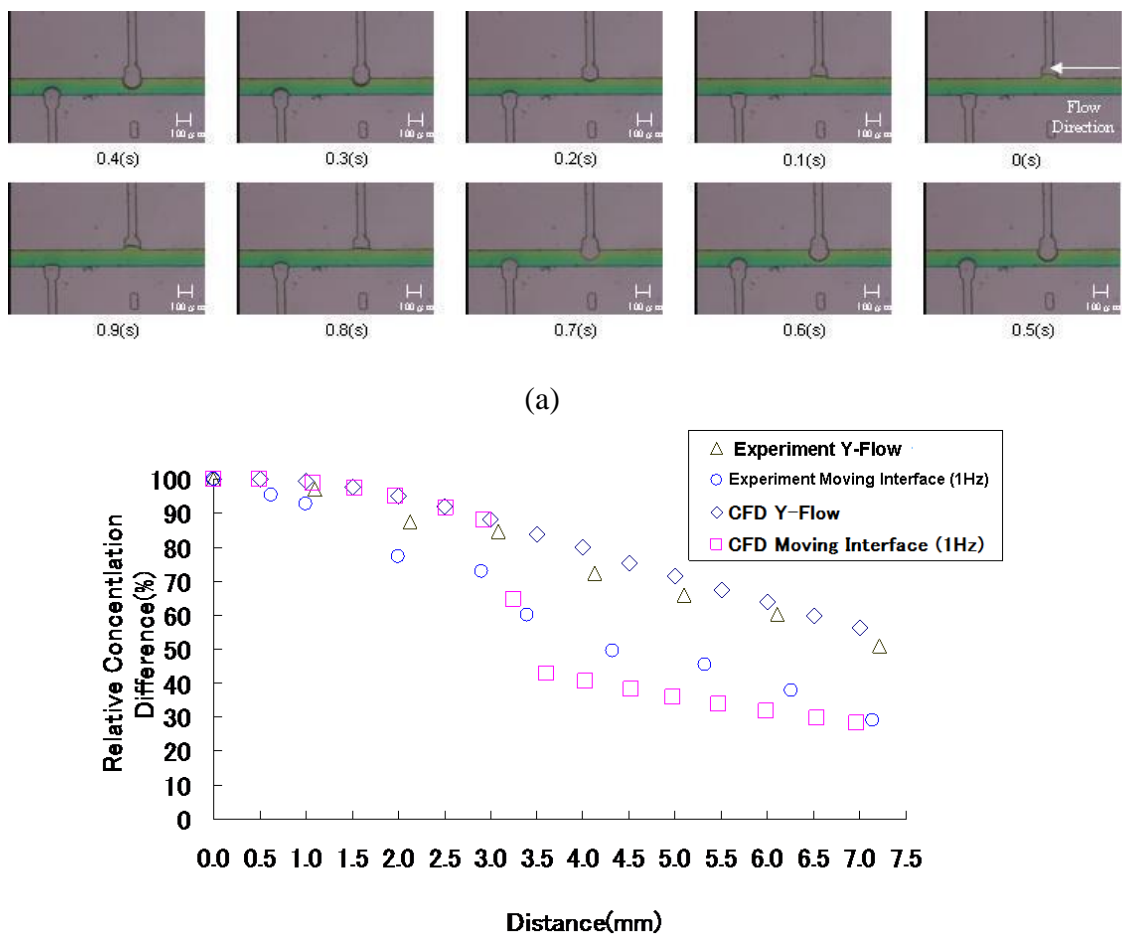


Fig. 1-4 a micromixing process utilizing gas-liquid free interface by moving interface, (a) a image of a flow experiment every 0.1 second, (b) experimental and numerical result compared with conventional micromixer [13]

## 1-4 研究内容構成

本論文は8章から構成されている。

第1章は、緒論として、マイクロリアクター開発の概観とその問題点について言及し、その上で最近の開発動向について確認したのち、本研究の目的とその具体的手法について述べた。

第2章では、マイクロミキサーの基本的な混合理論と、本研究で扱う混合デバイスの中核となるマランゴニ効果について述べ、一様流中の気泡表面に「マランゴニ対流」が発生した場合、気泡表面に生じる流れ分布について、ストークス近似による理論解析により明らかにし、その混合に対する影響と、混合デバイスとしてマイクロ流路内へ組み込む手法について検討を加えた。

第3章では、第2章で検討を加えた混合デバイスを組み込んだ実験流路の概形と、その気泡形状の制御手法について検討し、実際に流動実験で用いたマイクロ流路の作成方法について述べた。

第4章では、第3章で述べた実験用マイクロ流路を用いた実験手法について、その実験装置全景、各装置の役割、試験流体の選定とその理由、混合評価法、PIV（粒子画像化速度計測法）の概要と本研究での適用法について、それぞれ述べた。

第5章では、混合流生成実験の実施条件について検討を加えた。つぎに、次元解析により、実験を支配する無次元数と、その主要なパラメーターを推定した。流動実験の結果を示し、その混合効果について、上記パラメーターを踏まえて考察した。併せて PIV を用いて、混合デバイス周辺に発生したマイクロ混合流の解析結果を示し、マランゴニ対流が混合に与える影響についても考察した。

第6章は、混合流生成実験によって観察された特徴的な流れに焦点を当て、簡易的な三次元 CFD 計算によってその発生原因とそれが混合に与える影響について解析し、実験結果と比較、考察した。

第7章は、気泡表面に発生するせん断流の2液体の混合促進に対する有効活用法、処理量増大に対応する方法についても、いくつかの実験結果について取り上げた。

第8章は、本研究により得られた知見と課題について考察を行い、それによる議論から得られた結論を「結言」としてまとめた。最後に、今後の展望について言及し、研究の総括を行った。

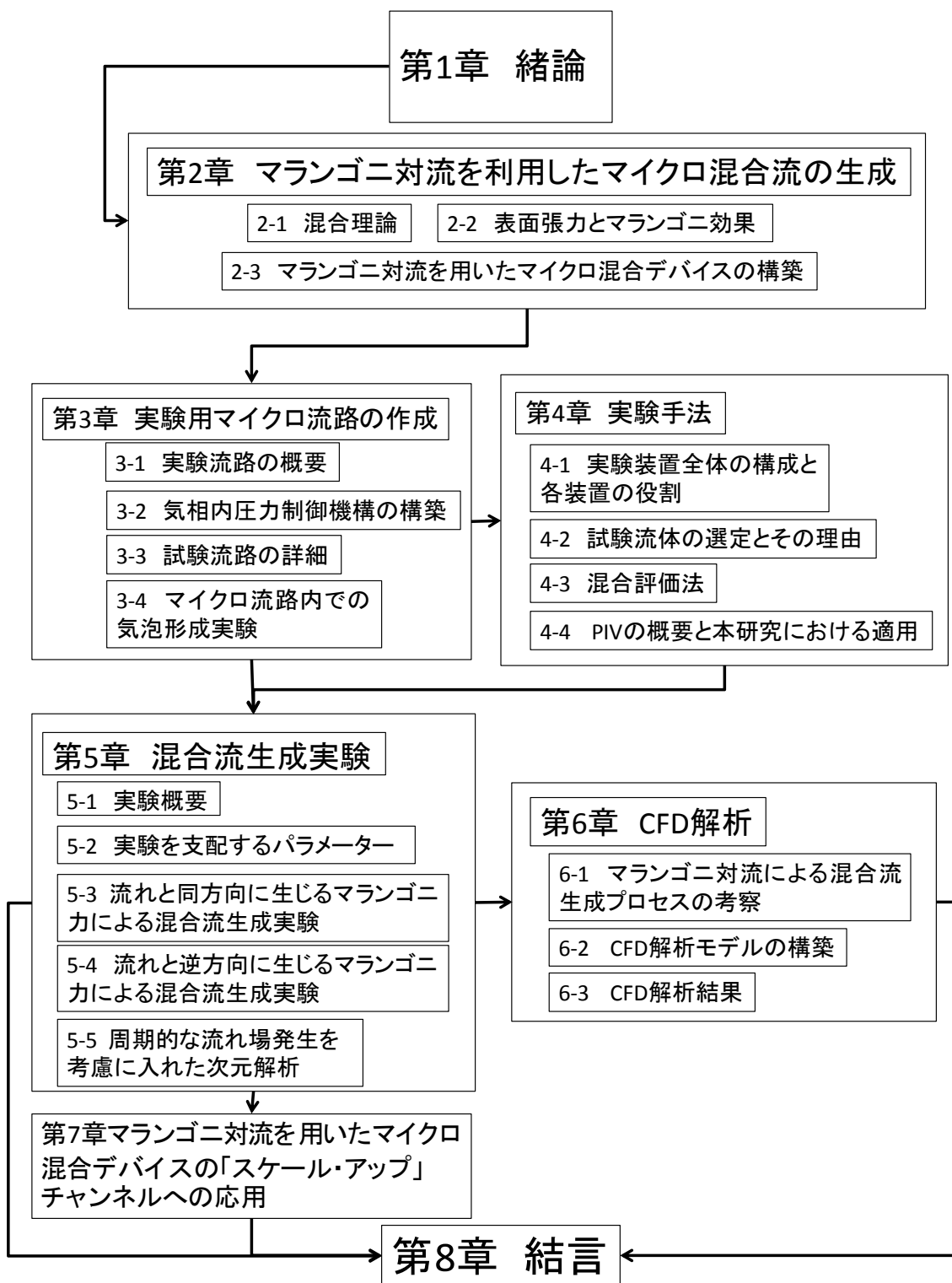


Fig. 1-5 the flow chart indicating the classification and the connection of each chapter in the article

## 第 1 章の参考文献

- [1] Ehrfeld, W. Hessel, V. Lowe, H., “Microreactors”, WILEY-VCH, Weinheim, Germany, 2000, Chap.1-3, pp.1-82.
- [2] Nguyen, N. T. and Wu, Z., Micromixers - a review, *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 15, 2005, R1-R16.
- [3] Hessel, V., Löwe, H. and Sohnfeld, F., Micromixers – a review on passive and active mixing principles, *Chemical Engineering Science* 60, 2005, 2464-2501.
- [4] 吉田純一監修, マイクロリアクターの開発と応用, シーエムシー出版, 2008.
- [5] 前一廣監修, マイクロリアクターの技術の最前線, シーエムシー出版, 2012.
- [6] Biddiss, E., Ericson, D. and Li, D., Heterogeneous surface change enhanced micromixing for electrokinetic flows, *Anal. Chem.* 76, pp3208-13, 2004.
- [7] Oddy, M. H., Santiago, J. G. and Mikkelsen, J. C., Electrokinetic Instability Micromixing, *Analytical Chemistry*, Vol. 73, No. 24, December 15, 2001.
- [8] Liu, R. H., Yang, J., Pindera, M. Z., Athavale, M. and Grodzinski, P., Bubble-induced acoustic micromixing, *Lab Chip*, 2, pp151-157, 2002.
- [9] Karolina Petkovic-Duranl, K., Manassehl, R., Zhu1, Y. and Ooi, A., Chaotic micromixing in open wells using audio-frequency acoustic microstreaming, *BioTechniques* 47: 827-834 (October 2009) doi 10.2144/000113242.
- [10] Ghaini, A., Kashid, M.N., and Agar, D.W., Effective interfacial area for mass transfer in the liquid-liquid slug flow capillary microreactors, *Chemical Engineering and Processing* 49, 2010, 358-366.
- [11] Done, V., Tsaoulidis, D. and Angeli, P., Mixing pattern in water plugs during water/ionic liquid segmented flow in microchannels, *Chemical Engineering Science* 80, 2012, 334-341.
- [12] Ono, N. and Suzumura, T., A Study on Micromixing Process Utilizing Gas-Liquid Free Interface, *Transaction of the Japan Society of Mechanical Engineers, series B*, vol 74, 2008, pp. 1700-1706.
- [13] Yamada, T., Watanabe, Y., Osato, N., and Ono, N., Experimental and Numerical Study on Micromixing utilizing Movement of Gas - Liquid Free Interface, *Journal of Fluid Science and Technology*, Vol. 6, 2011, No. 2, pp.128-138.
- [14] Scriven, L.E. and Sternling, C.V., The Marangoni Effect, *Nature*, 187, 1960, 186-188
- [15] Preisser, F., Schwade, D. and Scharmann, A., Steady and oscillatory

- thermocapillary convection in liquid columns with free cylindrical surface, *J. Fluid. Mech.* **126**, pp545-567, 1983.
- [16] Zai-sha Mao, Jiayong Chen, Numerical simulation of the Marangoni effect on mass transfer to single slowly moving drops in the liquid-liquid system, *Chemical Engineering Science* 59, pp.1815-1828, 2004.
- [17] Nikolov, A. D. et al., Superspreading driven by Marangoni flow, *Advance in Colloid and Interface Science*, **96**, pp325-338, 2002.
- [18] Agble, D., Mendes-Tatsis, M. A., The prediction of Marangoni convection in binary liquid-liquid systems with added surfactance, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 44, pp. 1439-1449, 2001.
- [19] Hua Hu, Ronald G. Larson, Analysis of the Effects of Marangoni Stress on the Microflow in Evaporating Sessile Droplet, *Langmuir* **21**, pp. 3972-3980, 2005.
- [20] Velarde, M. G., Drops, liquid layers and the Marangoni effect, *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* 356, pp829-844, 1998.
- [21] Zech. T and Hönicke. D, *Erdoel Erdgas Kohle*, **114**, 578, 1998
- [22] e.g., Bird, R. B., Stewart, W. E., and Lightfoot, E. N., *Transport Phenomena second edition*, 2006, WILEY.



## 第2章 マランゴニ対流を利用したマイクロ混合流の生成

この項は

- ・ 2-1 混合理論
- ・ 2-2 表面張力とマランゴニ効果
- ・ 2-3 マランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイスの構築
- ・ 2-4 本章のまとめ

の四項で構成されている。



## 2-1 混合理論

移動現象論から，デカルト座標系での三次元空間における物質移動の式は，非圧縮性流体の場合，以下の式 (2-1) で表される[1-3].

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial uC}{\partial x} + \frac{\partial vC}{\partial y} + \frac{\partial wC}{\partial z} = D \left( \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right) \quad \dots (2-1)$$

但し， $D$ ：拡散係数[m<sup>2</sup>/s]， $C$ ：濃度， $u, v, w$ ：デカルト座標系  $x, y, z$  各方向の流速[m/s]である.

このうち，左辺第2項～第4項を移流項(Advection part)，右辺各項を拡散項(Diffusive part)と呼ぶ. マイクロ領域での2液体混合の場合，その表面積/体積比 (surface to volume ratio) が大きくなることから，空間内の物理量が偏奇し，界面張力/慣性力，粘性力/慣性力，伝導伝熱/対流伝熱，拡散/対流などの比が桁違いに大きくなる. 例えば空間内の流動に対する Reynolds 数は，以下の式 (2-2) で表される[2,3].

$$Re = \frac{\rho ul}{\mu} \quad \dots (2-2)$$

但し， $\rho$ ；流体の密度 (kg/m<sup>3</sup>)， $u$ ；流体の移動速度 (m/s)， $l$ ；空間の代表長さ (m)， $\mu$ ；粘性係数 (Pa・s).

は，その代表長さが微小となるために，通常 1.0 以下の微小な数をとる. Reynolds 数は空間内の粘性力に対する慣性力の比で表されるので，マイクロ空間は慣性力に比べ，粘性力の支配的な領域となる[6]. 従って，マイクロ混合は通常，流れの変化による移流項の影響よりも，分子間力により混合が促進される拡散項への依存が非常に高くなる[4]. しかし，このマイクロ領域の一部において，流れの速度と方向を変化させる事が出来れば，その一領域においては，移流拡散を効果的に用いて混合を大きく促進させることが可能になる.

## 2-2 表面張力とマランゴニ効果

例えば、液体中の気泡などは、周囲の液体の状態により形状、体積などが流動し、一番安定な形である完全な球体となる。気泡表面（気液界面）は変形に抗する表面張力によって、曲率等、その形状が特徴づけられる。表面張力は物性値なので通常は界面で一定の値を持つが、対象となる流体の温度、あるいは、それが2成分流体の場合はその濃度により、また電位差などによってもその値が変化する関数値である面も持つ。従って、もし気泡周囲の液相中で温度勾配、濃度勾配、あるいは電位差などが存在し、これにより気泡上の表面張力に勾配が生じる場合、その表面張力差により、気泡表面にはマランゴニ効果により表面張力が小から大の方向にせん断流が発生する。液相内の温度勾配によるものは"The thermocapillary effect", 濃度勾配によるものは"The solutecapillary effect" と呼ばれる[5].

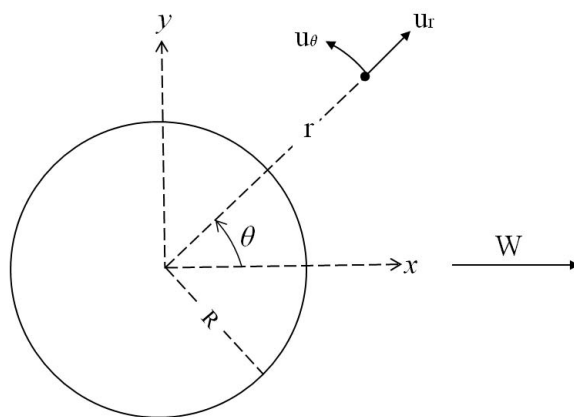


Fig. 2-1 Notation for a spherical bubble [5]

空気泡と粘性流体である液相が、Fig. 2-1で示すような関係にあり、気泡と液相との間の相対速度  $W$  で流動しているとする。この相対速度  $W$  が Reynolds 数  $Re=30$  以下の遅い粘性流であると仮定すると、粘性流体に対するストークス近似を適用することが出来る。このとき、気泡周辺について Fig. 2-1 の表記に従い、三次元軸対象の流れについてストークスの流れ関数  $\psi_e = -r\sin^2\theta$  を導入すると、一様な流れの中の球に対する液相内の流れ関数  $\psi$ ,  $v_\theta$ ,  $v_r$  は、三次元非圧縮流体における一様流、二重湧出、ストークス源による流れ関数の重ね合わせから、以下のように表すことが出来る[6,7].

$$\varphi = \left( \frac{W}{2} r^2 + \frac{A}{r} + Br \right) \sin^2 \theta \quad \dots (2-3)$$

$$v_r = \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial \varphi}{\partial \theta} = \cos \theta \left( W + \frac{2A}{r^3} + \frac{2B}{r} \right) \quad \dots (2-4)$$

$$v_\theta = -\frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial \varphi}{\partial r} = -\sin \theta \left( W - \frac{A}{r^3} + \frac{B}{r} \right) \quad \dots (2-5)$$

但し、 $W$ ; 流体と気泡間の相対速度(m/s),  $r$ ; 気泡半径(m),  $\theta$ ; 中心角(rad).

Fig. 2-1 において、液相内流れ方向に一様に表面張力勾配  $dS/dx$  が存在する場合を考える、主流方向に分布する表面張力勾配が流れ方向に対して増大する時を正とすると、軸対称な球面上各点における表面張力の分布は、式(2-6)で表すことが出来る[7].

$$\left( \frac{1}{R} \frac{dS}{d\theta} \right)_{r=R} = -\frac{3}{2} \sin \theta \left( \frac{dS}{dx} \right) \quad \dots (2-6)$$

式(2-3) ~ (2-5)において、気液自由界面上における境界条件として、「気泡表面上の液相の流れによるせん断力と表面張力差によるせん断流による力の合力が0」であることを示す式 (2-7)を用いる.

$$\mu_L \left( \frac{\partial v_\theta}{\partial r} - \frac{v_\theta}{r} \right)_{r=R} + \frac{1}{R} \left( \frac{dS}{d\theta} \right) = 0 \quad \dots (2-7)$$

但し、 $\mu_L$ ; 液相の粘性係数 [Pa · s],  $S$ ; 表面張力[mN/m].

気泡表面の速度境界は、式(2-8)で与えられる.

$$(v_r)_{r=R} = 0 \quad \dots (2-8)$$

式(2-6) ~ (2-8)を用い、 $A$ ,  $B$  を求めると式 (2-9), (2-10) が得られる.

$$A = -\frac{R^4}{4\mu_L} \left( \frac{dS}{dx} \right) \quad \dots (2-9)$$

$$B = -\frac{WR}{2} + \frac{R^2}{4\mu_L} \left( \frac{dS}{dx} \right) \quad \dots (2-10)$$

式(2-3)~(2-5)に、上で求めた A, B である、式 (2-9), (2-10)を代入すると

$$\varphi = \left( \frac{W}{2} r^2 + \frac{1}{r} \frac{R^4}{4\mu_L} \left( \frac{dS}{dx} \right) - \left( \frac{WR}{2} - \frac{R^2}{4\mu_L} \left( \frac{dS}{dx} \right) \right) r \right) \sin^2 \theta \quad \dots (2-11)$$

$$v_r = \cos \theta \left( W + \frac{1}{2r^3} \frac{R^4}{\mu_L} \left( \frac{dS}{dx} \right) - \frac{1}{r} \left( WR - \frac{R^2}{2\mu_L} \left( \frac{dS}{dx} \right) \right) \right) \quad \dots (2-12)$$

$$v_\theta = -\sin \theta \left( W + \frac{1}{4r^3} \frac{R^4}{\mu_L} \left( \frac{dS}{dx} \right) - \frac{1}{r} \left( \frac{WR}{2} - \frac{R^2}{4\mu_L} \left( \frac{dS}{dx} \right) \right) \right) \quad \dots (2-13)$$

となる[7].

式(2-10)を用いて、Fig. 1 における液相の主流方向の表面張力勾配をそれぞれ  $dS/dx=0, 1.0, 10.0, -2.0$  (N/m<sup>2</sup>)とし、液体の粘性係数  $\mu=1.5 \times 10^{-4}$  (Pa · s)、気泡と液体間の相対速度  $W=0.002$  (m/s)、気泡の曲率半径  $R=0.0002$  (m)とした時の流線を Fig. 2-2(a)~(d)に示す.

Fig. 2-2(b), (c)から、表面張力勾配  $dS/dx$  が液相の流れ方向に対して増加する場合、 $dS/dx=0$  である Fig. 2-2(a)と比較して、流線全体が気泡中心に引きつけられる方向に歪むことが分かる. また、気液界面周囲の流速には大きな違いがあっても、流線の形状自体に大きな変化はなく、気泡周辺部のごく限られた領域でしか大きな変化は生じないことが分かる. それに対して Fig. 2-2(d)では、先にふれた三者とは流線の形状が全く異なり、気泡周辺の流れと液相の一様流が互いに干渉し合う結果、渦流が発生していることが分かる. また、この場合、 $dS/dx$  の値や、液相内の一様流の大きさ、気泡の曲率半径等により流線の様相はそれぞれ異なり、 $dS/dx$  の値の絶対値が大きくなれば、マイクロ空間の範囲を超えた範囲にまで液相に影響を与えることが計算で示される. また、 $dS/dx$  の値を小さくし、液相内の一様流に埋没しない程度にマランゴニ効果によるせん断流速を低くすると、渦流が気泡表面近くに近接してくる.

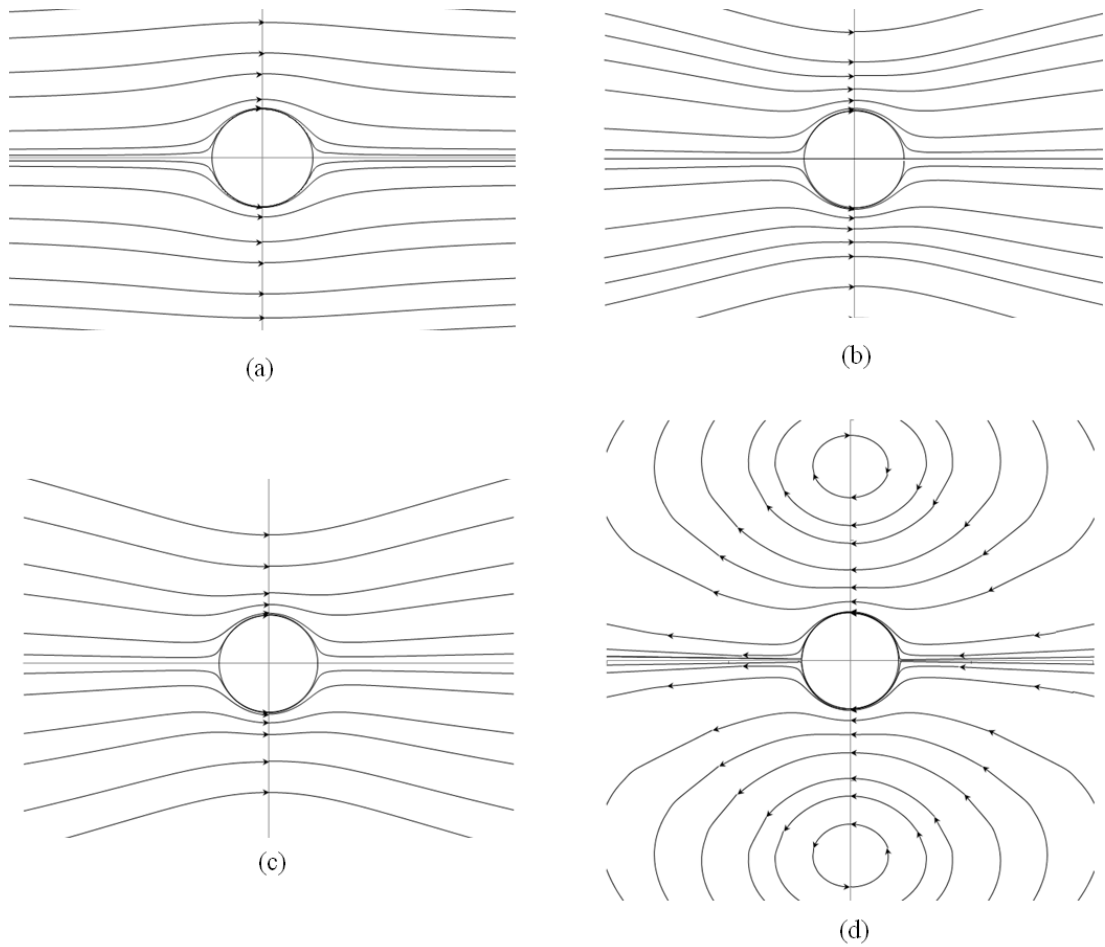


Fig. 2-2 Stream line near a spherical bubble of 0.0002 mm of radius in three dimensional spherical coordinate system at 0.002 m/s of constant flow of  $x$  direction in Fig.1 with surface tension distribution;  $dS/dx$  at the  $x$  direction, (a)  $dS/dx = 0[\text{mN}/\text{m}^2]$ , (b)  $dS/dx = 1.0[\text{mN}/\text{m}^2]$ , (c)  $dS/dx = 10.0[\text{mN}/\text{m}^2]$ , (d)  $dS/dx = -2.0[\text{mN}/\text{m}^2]$

## 2-3 マランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイスの構築

### 2-3-1 実験流路形状の検討とその変遷

まず、我々は微小空間内の気液自由界面上に表面張力値の異なる二つの液相を置いたときに生じる対流の最大値を計算した[8].

マランゴニ力により気液自由界面上に生じる対流の最大値を予測するため、Fig. 1 に示す気液界面上に直立する二液体からなる液柱を考える。これは流路内に設置された気液自由界面上で、異なる表面張力値  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  を持つ二液が接触した瞬間を想定している。境界条件として、 $z$ - $x$  平面の手前と奥の両端面と、 $x$ - $y$  平面の上端面は拘束されているとする。二液の粘性係数  $\mu$  と密度  $\rho$  の値がほぼ同一であると仮定すると、液柱の  $x$ - $y$  平面の下端面に働くマランゴニ力  $F_{mar}$  と、拘束条件から、 $x$ - $y$  平面、 $z$ - $x$  平面に抵抗力として作用するせん断力のバランスから、気液界面上に生じる流速の最大値  $u_{max}$  は、以下のように単純化すると推算することができる。

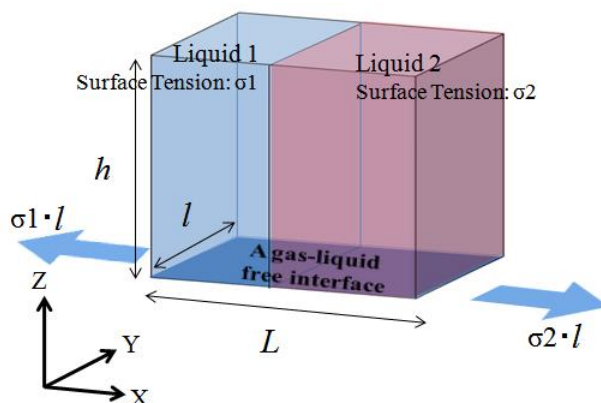


Fig. 2-3 A simple model to estimate the velocity on a gas-liquid free interface caused by Marangoni force in the experiment system [8]

マランゴニ力は式(1)と置くことができる。

$$\text{Marangoni force: } F_{mar} = (\sigma_1 - \sigma_2) \cdot l \quad \dots(2-14)$$

モデルの  $x$ - $y$  平面の上端面での  $x$  方向速度をゼロと置き、また  $z$ - $x$  平面の手前と奥の両端面でノンスリップ条件を課し、同時に液体内部での各方向の速度分布を単純な直線的な分布と近似してニュートンの粘性則を適用することで、式

(2-14)の駆動力に対して抵抗する摩擦力を見積もることができる。つまり式(2-14)の力で、Fig. 2-3の下部の気液界面（面積 $l \times L$ の部分）が $x$ 方向に、その中央部分が最高速度 $u_{\max}$ で動いているとした時、流れが定常状態に至って各力が釣り合っていると見ると、まず $x$ - $y$ 平面に関するせん断力は次式(2-15)で推算できる。

$x$ - $y$ 平面に生じるせん断力:

$$F_{x-y} = -\mu \frac{u_{\max}}{h} \cdot lL = -\mu \frac{lLu_{\max}}{h} \quad \dots(2-15)$$

同様に $z$ - $x$ 平面（手前と奥）に関するせん断力は次式(2-16)で推算できる。  
 $z$ - $x$ 平面に生じるせん断力:

$$F_{sum(z-x)} = 2 \cdot \left( -\mu \frac{u_{\max}}{l/2} \right) \cdot hL = -\mu \frac{4hLu_{\max}}{l} \quad \dots(2-16)$$

式(2-14)に示すマランゴニ力と式(2-15), (2-16)に示す $x$ - $y$ ,  $z$ - $x$ 平面上に生じるせん断力とが釣り合うと置いて以下の式(2-17)を得ることができ、それを整理して式(2-18)を得ることができる。

$$(\sigma_1 - \sigma_2) \cdot l - \mu \frac{lLu_{\max}}{h} - \mu \frac{4hLu_{\max}}{l} = 0 \quad (2-18)$$

$$u_{\max} = \frac{(\sigma_1 - \sigma_2) \cdot hl^2}{\mu L(l^2 + 4h^2)} \quad (2-19)$$

(2-19)式に、以下に示す各オーダー値を代入すると、流速のオーダー値が予測される。

$$l, L, h \approx 0.1[\text{mm}] = 1.0 \times 10^{-4}[\text{m}], \sigma_1 - \sigma_2 \approx 1.0[\text{mN/m}] = 1.0 \times 10^{-3}[\text{N/m}],$$

$$\mu \approx 1.0[\text{mPa} \cdot \text{s}] = 1.0 \times 10^{-3}[\text{Pa} \cdot \text{s}],$$

$$u_{\max} \approx 0.01[\text{m/s}]$$

以上の計算から、第2章2-2で示した通り、界面表面上のごく限られた領域にはそのスケールに比して非常に大きな流速が生じる可能性があることが分かる。しかし上記の計算で想定したような単純な条件ではなく、接触した流体内には濃度勾配が生じる場合や、また二流体の密度や粘性係数が異なる場合には、このような大きな流速値にならないことも考えられる。しかし想定する領

域のスケールを考えれば, この大きな流速に起因して期待される流動様式の変化は混合過程に効果的な寄与をもたらすことが期待される.

これらの検討から, 最初の試みとして, 実験流路は, Fig. 1で示した二液体による液柱を構成することが容易なT字型流路をその基本形に用いた. Fig. 2にその基本概念を示す. 合流部に対しては, 前節の見積り計算に用いた各寸法を採用した[8,9].

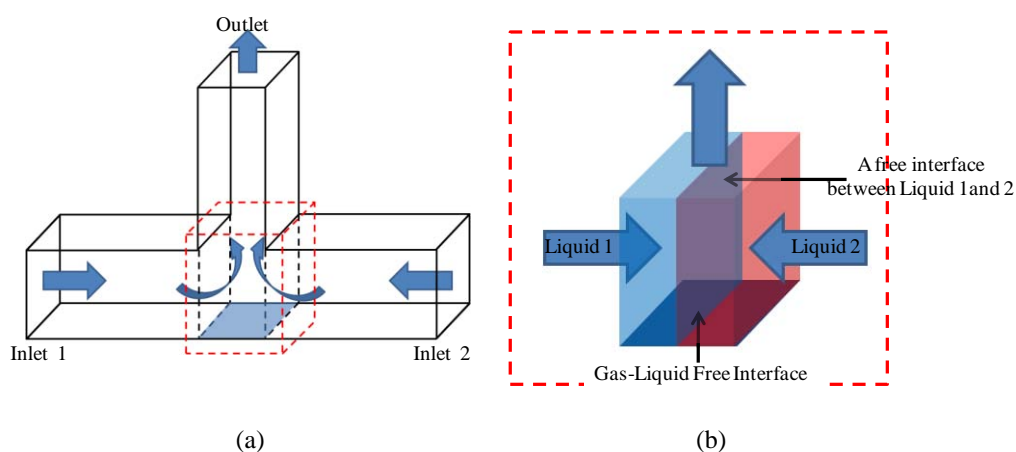


Fig. 2-4 Flow system installed in T-type micro channel, (a) flow pattern at the junction point, (b) flow system installed at the junction[8]

実験の結果, マイクロ混合流の生成には成功したが, 数秒で消滅してしまい, 継続的な混合流生成を行うことが出来なかった.

これは早期に, 気液自由界面上における二液体間の濃度差が飽和してしまい, ごく短時間でマランゴニ対流が止まってしまった可能性が高いと思われた. それを回避するために, 気液自由界面のごく局地的な一点にだけでも濃度勾配を配置することのできる可能性のある流れ系を構築することを狙い. T型流路の合流部内に, Fig. 2-5に示す流れを配置する流路を案出した[9].



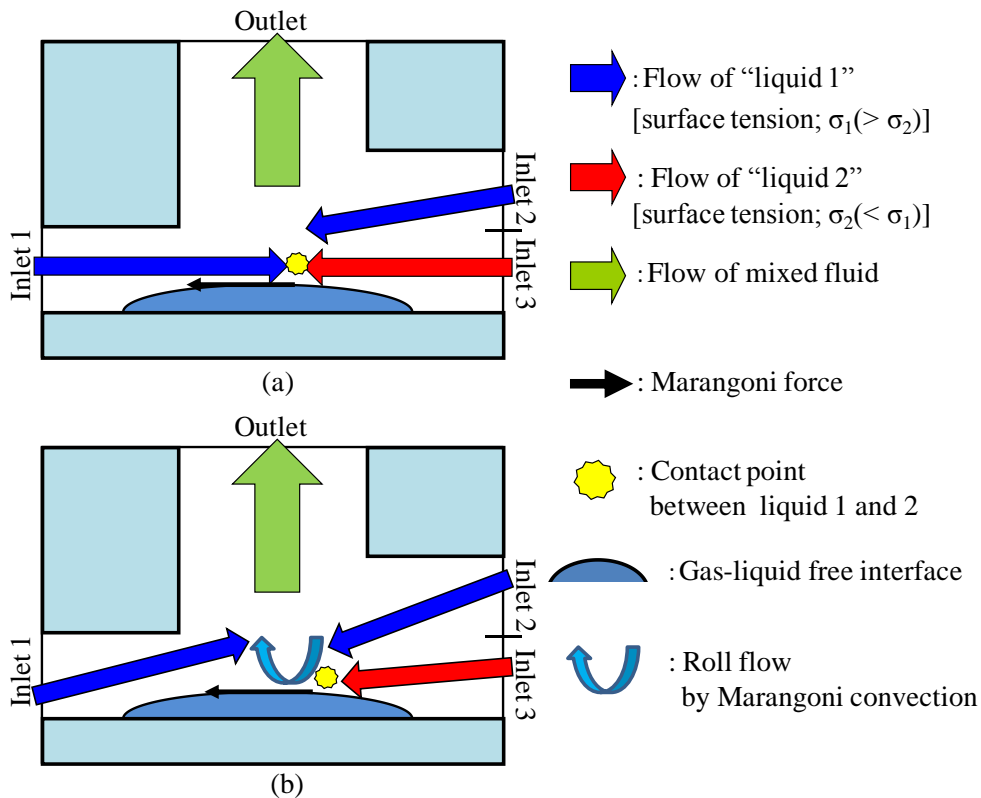


Fig. 2-5 Concept of the Flow system of the mixing device utilizing Marangoni effect at the junction point in T-type capillary channel, (a) initial condition of the flow into the junction point.(b) estimation of the steady flow condition near the gas-liquid free interface into the junction point.

Fig. 2-5 (a) は、このような流路配置に対して初期に想定される流体の流れを示している。Inlet 1とInlet 2からは大きさ $\sigma_1$ の表面張力を持つ液体を、Inlet 3からは大きさ $\sigma_2$ の表面張力を持つ液体を流入させることを想定している。このとき、その表面張力の大小関係は $\sigma_1 > \sigma_2$ であるとする。合流部には気液自由界面が設置されるとする。

Fig. 2-6に、実際に用いた実験流路の概形を、Fig. 2-7に、実験結果の画像を示す。実験装置や試験流体は、論文第3章、第4章にて詳述したものを使用した。

実験の結果、この形式の流路において、最大 20.0[s]程度、マイクロ混合流の生成に成功したが、継続的な混合促進には至らなかった。また、このときの実験条件では、2種の実験流体の流入量が等量にならないことも問題となった。

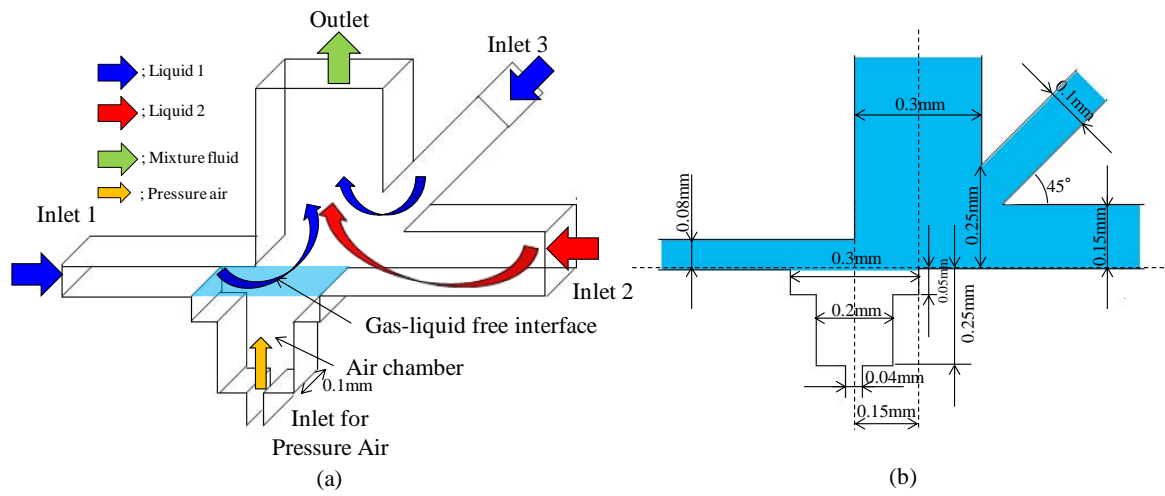


Fig. 2-6 Details of the junction point in “Type-A” test channel using the flow experiments, (a); Isometric projection drawing with flow pattern of each channel. (b); Front view of orthographic projection drawing with dimensions.

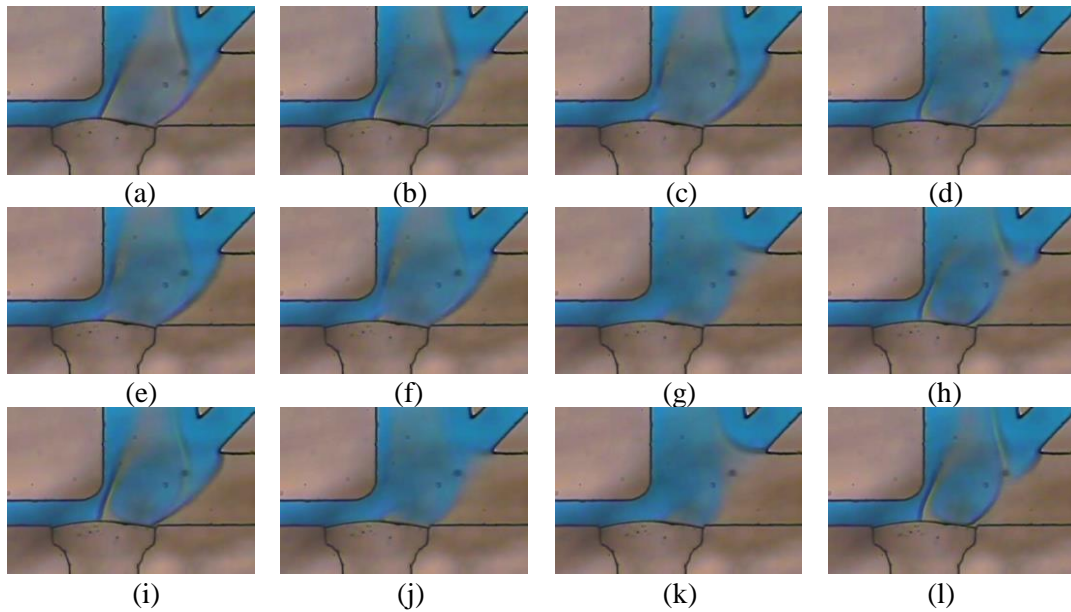


Fig. 2-7 A series of photos of the flow experiment using a test channel described in Fig. 2-6 every 0.1(s) from (a) to (l), volume flow rate; Inlet 1:2.0 $\mu$ l/min, Inlet 2:1.0 $\mu$ l/min and Inlet 3:2.0 $\mu$ l/min [9]

一連の実験結果から、これら実験流路の根本的な問題点として、2 実験流体の接触位置である、気液自由界面の設置位置を、T 字型流路の合流部に置いており、ここはいわゆる「よどみ点」として作用するので、マランゴニ対流が起こり、流れが発生したとしても、最終的にはその付近の気液自由界面上における 2 実験流体間の濃度分布は比較的短時間で飽和してしまうことが分かった。これらに対する解決策として、Fig. 2-8 に示す通り、流路内によどみ点による影響を極力排除するために、表面張力値の異なる実験流体を対向方向から接触させるのではなく、同方向から層状に流入させ、気液自由界面上に対する二液間の濃度分布を気泡表面と流路壁面間の最短距離を制御することにより発生・設置することを目的に、L 字型流路を基本とする混合デバイスのコンセプトを考案した[10].

この混合デバイスの実現にあたって考慮しなければならないことは以下の 2 点である。

- (1) 微細直線流路内での気液自由界面（気泡）設置（固定）方法
- (2) 気液自由界面（気泡）周辺部での表面張力勾配発生方法

まず、直線流路を  $90^\circ$  曲げた L 型流路の屈曲部に気液自由界面を設置する。L 型流路の屈曲部に気泡を設置する理由として、この部分は流れ方向が  $90^\circ$  変化する為、流れの淀み点として作用するものと考えられる。そのために、気泡上には圧力のみ作用することになり、その挙動が比較的安定すると期待される。

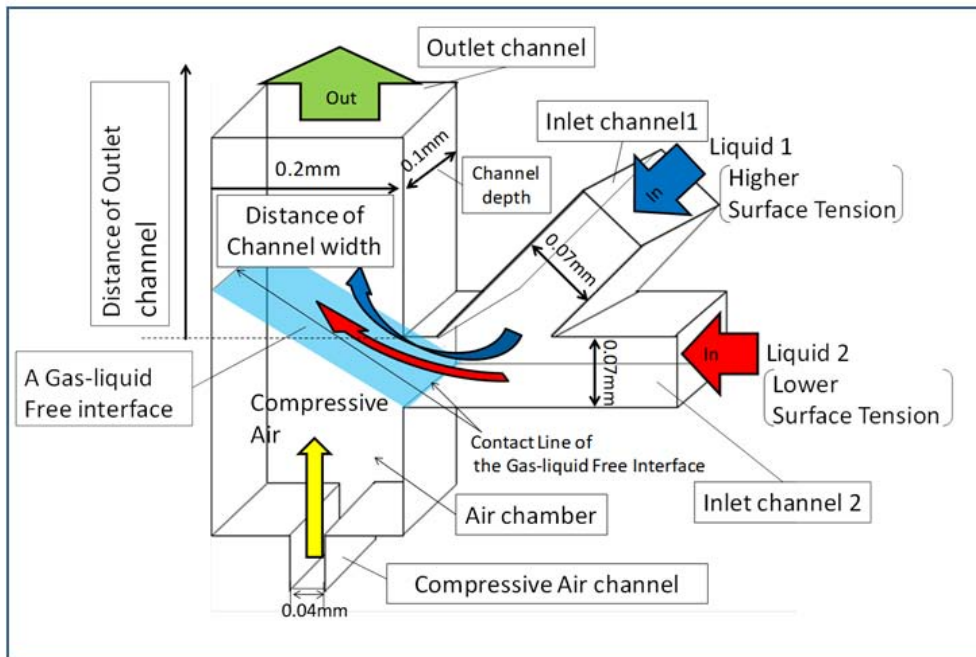
気泡形成については、作用するための空気室を設け、中に圧縮空気を供給することで気液界面を流路内に形成する条件を整える。

試験流体として、表面張力値の異なる二液体を選定する。表面張力差の異なる 2 液は流路片側から、流路断面に対して 2 層状になるように供給され、2 層は出来るだけ気泡表面に近い位置で形成されるようにする。

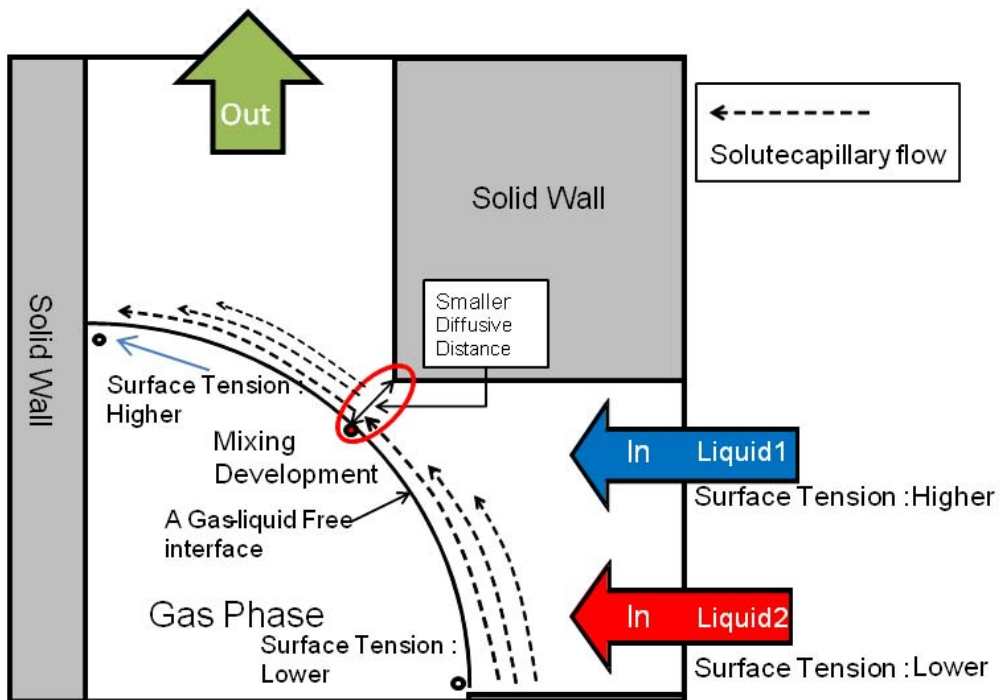
界面上の表面張力勾配は、Fig. 2-8(b) に示す通り、界面と流路屈曲部角との間の距離を短縮することで促進される二液間の分子拡散による混合濃度の分布により発生させる。この時、マランゴニ効果によるせん断流は、流路壁面での干渉により、せん断流の垂直方向に速度勾配が発生し、それが界面各位置で、微妙に異なるせん断流の発生方向、速度分布のプロフィールを持つものと思われる。これにより気泡近傍の液相内で、ストークス近似により計算された流れ分布に較べ、より複雑な流れが発生することが予想され、これがこの二液体の混合を大きく進展させることが期待される。

ストークス近似での理論解析の結果、表面張力分布が液相内主流の流れに対して表面張力勾配が減少するように与えられるとき、小さな表面張力勾配でも液相内の流れに大きく作用することが計算され、これを効果的に用いるとき、

より迅速な混合促進と混合流体に対する汎用性について期待できる。しかし、主流の流れ速度に対して、マランゴニ効果によるせん断流速が大きくなると、流路内液相の流れ自体を阻害してしまい、流れを途絶、あるいは逆流させてしまうことも考えられる。したがって今実験では、流路内の流れを阻害しないよう、マイクロ流路内の流体の速度について考慮した。本研究では、主流の流れが比較的遅いときには、液相内主流の流れに対して表面張力勾配が増加するように、主流の流れが比較的速いときには、液相内主流の流れに対して表面張力勾配が減少するように表面張力分布を与えるべきであると考えられる。



(a)



(b)

Fig. 2-8 the concept of the new mixing device, (a) Basic design at the elbow point of the new test channel, (b) The expected mechanism of the new mixing device

### 2-3-2 コンセプトの実現性に対する検討

この混合デバイス実現に対して問題となるのは、この流路形状がコンセプト通り気液自由界面上に濃度分布を与え得るかどうかである。これを確認するために、CFD を用いた簡易な数値解析を行うこととした。解析モデルは、二液の間に密度、粘度差は無いとする単相流二次元モデルとし、二液間に拡散係数と初期の濃度差、流入条件としての体積流量を与えることで、三次元移流拡散方程式を計算することとした。実際の計算には、Fig. 2-9 に示す通り、汎用熱流体解析ソフト「PHOENICS」[11,12]を用いて、デカルト座標系上に  $x = 0.4\text{mm}$ ,  $y = 0.3\text{ mm}$ ,  $z = 0.12\text{ mm}$  の計算領域を設定した計算モデルを構築した。計算手法は、第6章6-2内で触れている。計算セルは各座標に対して、 $x$ ; 350 cells,  $y$ ; 1 cell,  $z$ ; 500 cells を等分に配している。気液自由界面に形状を模擬した（モデル内青色で表した）固体オブジェクト（以下、界面オブジェクトと表記）表面の境界条件はせん断力を0としている。流体の物性は20°Cの純水のそれを使用している。拡散係数は文献値[16]から、酢酸の純水への拡散係数である  $1.24 \times 10^{-9}\text{ m}^2/\text{s}$  とした。計算の結果を Fig. 2-10 に示す。界面と流路屈曲部角との間の距離を  $30\mu\text{m}$  としたとき、Fig. 2-10(b)に示す界面オブジェクト上の距離  $0.8\text{mm}$  の区間 A-B に、Fig. 5(C)に示す通り、主流に対して正の方向に濃度差 - 10%の大きな濃度勾配が表れた。したがって、この混合デバイスは、その構成要件さえ揃えば、実際に有効に作動し得ることが分かった。

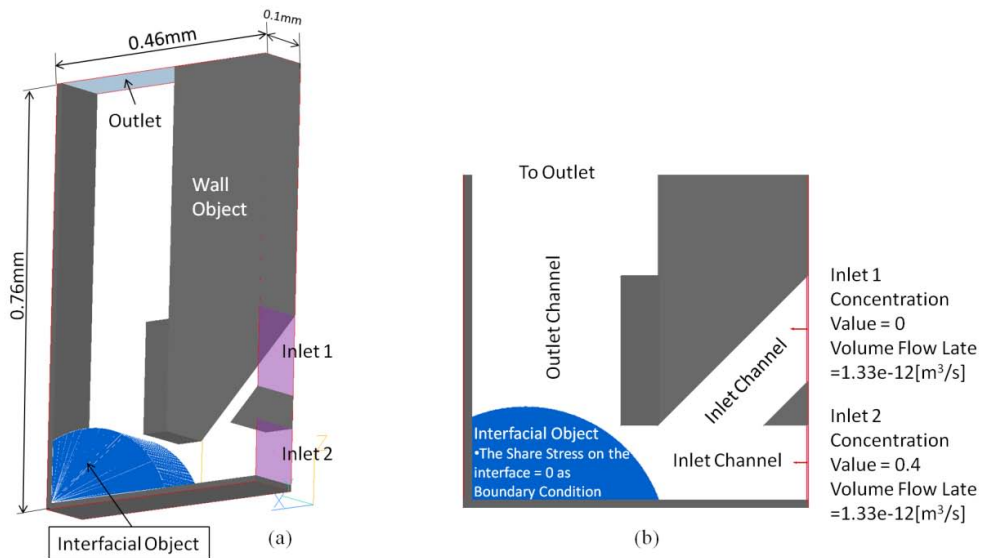


Fig. 2-4 Details of two-dimensional model using the CFD analysis, (a); Overall geometry of the CFD models, (b); Details of the CFD model.

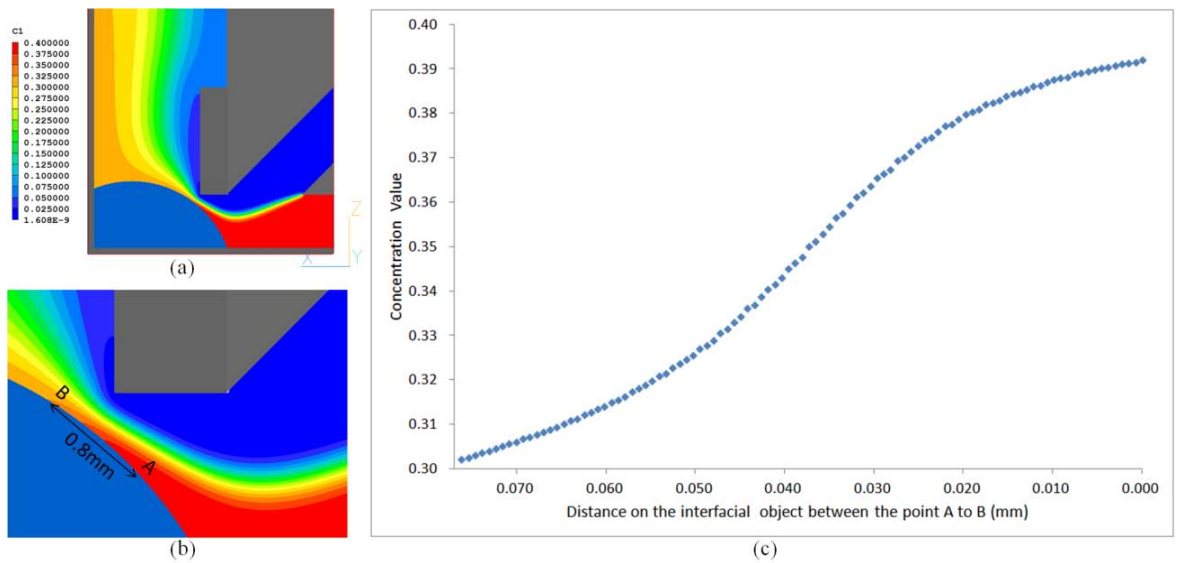


Fig. 2-5 The Result of CFD analysis of the concentration distribution, (a) The contour view at the elbow point of the simulation model, (b) Definition of the section A to B on the surface of “Interfacial Object”, (c) Results of the concentration value at points in the section A to B

次に問題となるのは、この気泡界面と流路壁面との最短距離の適合値についてである。デカルト座標系における三次元移流拡散方程式から、y方向の一次元非定常の拡散輸送のみを考えると

一般に、

$$t \approx \frac{L^2}{D}$$

の関係が成り立つことが知られている[13-15].

そこで、代表長さ 0.1mm の本実験系において、平均流速 1.0[mm/s]オーダーで考えると、気泡界面と壁面との最小距離 L を 0.01mm とすると考えるとき、その地点の流速を 10.0mm/s, すると、0.1mm (気泡半径を取る) 移動するのに 0.01[s]オーダーかかる。このとき拡散係数を  $1 \times 10^{-9}$ [m<sup>2</sup>/s]オーダーとすると、拡散時間 t のオーダーは 0.1[s]となり、本実験系成立に際して、拡散時間のオーダーが大きすぎることになる。即ち、濃度勾配が気泡表面に発生しにくい状況に置かれることになる。

気泡界面と壁面との最小距離 L を 0.001mm とするとき、その地点の流速は 100.0mm/s であり、0.1mm (気泡半径を取る) 移動するのに 0.001[s] オーダーかかる。このとき拡散係数を  $1 \times 10^{-9}$ [m<sup>2</sup>/s]オーダーとすると、拡散時間 t のオーダーは 0.001[s]となり、流路内主流の気泡上通過時間のオーダーと拡散時間のオーダーが一致するため、濃度勾配が気泡表面に発生し得る状況になると思われる。したがって、本実験系が成立することになる。

以上より、気泡界面と壁面との最小距離 L は 0.001mm オーダーで調整することが望ましく、本実験に当たっては、それを目指して気泡界面と流路壁面との間隔を調整するための実験装置を整備していくことになる。



## 2-4 本章のまとめ

この章ではまず、マイクロ領域での二液混合の基礎理論について示した。

次に気液自由界面上に生じるマランゴニ対流が周囲の液相にどのような影響を与えるか、一様流中にある気泡に対する軸対象流れによる「遅い粘性流に対するストークス近似」を用いて、その理論解を示した。さらに、過去に行った研究を概観し、その成果と問題点について述べた。

これらの検討から、本研究で扱うマランゴニ対流を用いたマイクロ混合流生成プロセスのコンセプトを、その開発の変遷を辿りながら示した。その実現可能性については、気泡表面での二液間の濃度分布に関する簡単な CFD 解析と拡散時間のオーダーによる検討を加え、実験条件を整備することで、そのコンセプトが基本的に実現可能であることを示した。

## 第2章の参考文献

- [1] Incropera, F.P., Dewitt, D.P., Bergman, T.L. and Lavin, A.S., *Fundamentals of Heat and Mass Transfer*, WILEY, NJ, USA, 2007,
- [2] 宗像健三, 守田幸路, 輸送現象の基礎, コロナ社, 2006, pp. 12-51.
- [3] 小川浩平, 黒田千秋, 吉川史郎, 化学工学のための数学, 数理研究社, 2007, pp. 69-108
- [4] 吉田純一監修, ”マイクロリアクターの開発と応用”シーエムシー出版, 2008.
- [5] Scriven, L.E. and Sternling, C.V., The Marangoni Effect, *Nature*, **187**, 1960, 186-188.
- [6] 今井 功, 流体力学 (前編), 裳華房, 1973, pp. 259-399.
- [7] Brennen, C.E., *Fundamentals of Multiphase Flow*, Cambridge University Press, 2005, pp. 30- 67.
- [8] 山田 崇, 小野直樹, マランゴニ力を活用したマイクロ混合流の生成, 日本機械学会論文集B編 79, 2013, pp888-899.
- [9] 山田崇, 加藤直毅, 竹田和幹, 小野直樹, 「マランゴニ対流を用いたマイクロ混合プロセスに関する基礎研究」, 日本混相流学会年会講演会 2011
- [10] Yamada. T and Ono. N, A Study on Micromixing Utilizing Marangoni Effect Induced on Gas-Liquid Free Interfaces, *ASME; J. Micro Nano-Manuf.* 3(2), 2015, 021003, doi:10.1115/1.4029684
- [11]<http://www.phoenics.co.jp/>
- [12] S. V. Patankar, 水谷幸夫, 香月正司 共訳, コンピュータによる熱移動と流れの数値解析, 1985, 森北出版.
- [13] R. B. Bird, W. E. Stewart, and E. N. Lightfoot, *Transport Phenomena* second edition, 2006, WILEY.
- [14] 吉田純一監修, マイクロリアクターの開発と応用, シーエムシー出版, 2008.
- [15] Incropera, F.P., Dewitt, D.P., Bergman, T. L., and Lavine, A. S., 2007, “Fundamentals of Heat and Mass Transfer,” John Wiley and Sons, NJ, USA, pp. 880–897.
- [16] E. W. Washburn, *International Critical Tables of Numerical Data, Physics, Chemistry and Tecnology*, vol.5.



### 第3章 実験用マイクロ流路の作成

この項は

- ・ 3-1 実験流路の概要
- ・ 3-2 気相内圧力制御機構の構築
- ・ 3-3 試験流路の詳細
- ・ 3-4 マイクロ流路内での気泡形成実験
- ・ 3-5 本章のまとめ

の五項で構成されている。

### 3-1 実験流路の概要

前章において、ストークス近似による理論解析の結果から、気液自由界面にマランゴニ対流によるマイクロ混合流生成のコンセプトが立案された。このマランゴニ対流によるマイクロ混合流の生成コンセプトをマイクロ流路内に組み込み、これによる混合実験を行うための実験用マイクロ流路と界面形状を制御するデバイスの検討を行い、その設計、製作を行った。

マランゴニ対流によるマイクロ混合流の生成コンセプトを改めて確認すると、以下のように整理される。

- ・ 直線流路を  $90^\circ$  曲げた L 型流路を基本形として、その屈曲部に気液自由界面を設置する。
- ・ 屈曲部には気液自由界面（気泡）形成のための「空気室」を設け、中に圧縮空気を供給することで気液界面を流路内に形成する条件を整える。
- ・ 試験流体として、表面張力値の異なる 2 液体を用いる。
- ・ 2 液は流路断面に対して層状になるように供給される。
- ・ 界面上の表面張力勾配は、界面と流路屈曲部角との間の距離を短縮により促進される二液間の分子拡散による混合濃度の分布により発生させる。

気液自由界面（気泡）の形成および、その制御を行うためには、気液自由界面（気泡）の性質を確認しなければならない。とくに、気液自由界面（気泡）の界面形状の決定とその制御に関しては、「毛管現象」と、「ラプラス圧」による「表面張力と圧力の不連続性」についての知識について確認しておく必要がある。

これらの基礎知識を、以下、簡単に示す[1]。

#### ① 毛管現象

毛管現象とは、交じり合わない二つの液体の境界、あるいは液体と空気の境界に見られる科学現象である。これらの境界は移動し、その境界面のエネルギーが最小になるように変形する。この減少は多くの科学分野、精密化学分野において重要な役割を果たしている。

#### ② 表面張力と圧力の不連続性

互いに交じり合わない二種の流体 A, B の間の表面エネルギーは界面張力  $\sigma$  によって特徴付けられる。 $\sigma$  は、その単位が  $[\text{J}/\text{m}^2]$  で表され、「表面を単位面積分だけ増加させるのに必要なエネルギーである」と定義される。また、表面

張力は単位長さあたりとの力（毛管力）とみなすことも出来、その単位を N/m で表すこともできる。表面張力の概念は、滴や泡の内部圧力  $P_{in}$  は、外部環境の静水圧  $P_{out}$  との間の圧力差が生じることを示している。この圧力差である  $(P_{in} - P_{out})$  を、静水圧のジャンプ ( $\Delta p$ ) と定義する。

この静水圧のジャンプが、「ラプラス圧」である。この圧力差、即ち「ラプラス圧」はさまざまな結果をもたらす。気液自由界面（気泡）表面の形状が任意の曲面を持つとする状態を想定するとき、ラプラスの定理は以下のように表される

2種の流体を分ける表面を横切るときに生じる静水圧のジャンプ  $\Delta p$ （ラプラス圧）は、式 (3-1) から表面張力  $\sigma$  と面曲率  $C = 1/R + 1/R'$  の積に等しい。

$$\Delta p = (P_{in} - P_{out}) = \sigma \left( \frac{1}{R} + \frac{1}{R'} \right) \dots (3-1)$$

$R, R'$ : 面の曲率半径

上式から、気液自由界面（気泡）表面の形状（曲率）は、ラプラス圧  $\Delta p$  により決定されることが確認される。とくに、外部環境（液相）の圧力  $P_{out}$  が決まっている場合、その界面形状は、気相内圧力  $P_{in}$  の値により、一意に決まることが分かる。

以上の、気液自由界面（気泡）表面形状に対する性質を用いて、マイクロ流路内に、その形成及び形状制御を行うための流路形状を改めて Fig. 3-1 に示す。

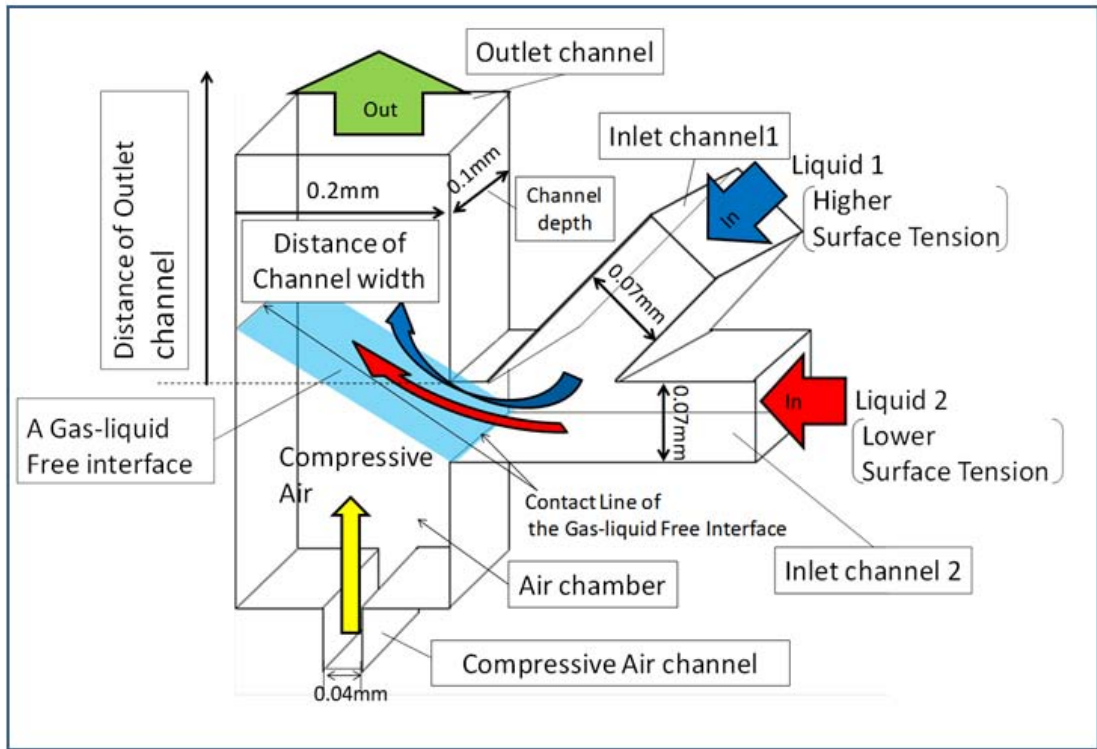


Fig. 3-1 The concept of the new mixing device as basic design at the elbow point of the new test channel

Fig. 3-1 に示す通り，マイクロ流路内には，気液自由界面（気泡表面）を L 字型マイクロ流路屈曲部に形成するため，空気室（Air Chamber）と圧縮空気を供給する為の流路（Air Channel）を設け，空気室（Air Chamber）部分に圧縮空気を送り，マイクロ流路内に流れる液相内主流の静水圧より高い気相内圧力にすることで，ラプラス圧による気液自由界面を形成し，その気相内圧力を変化させることで，界面形状を制御する。

以上のコンセプトをマイクロ流路内に成立させるために検討しなければならない要素として，以下の二点が挙げられる。

- ・ 圧縮空気により，マイクロ流路内に気液自由界面を形成し，その形状を外力で制御する為のデバイス開発。
- ・ マイクロ流路内に設けられる，気液自由界面形成の為の「空気室」（Air Chamber）の設計指針。

このうち，「圧縮空気による気液自由界面（気泡）形成・制御デバイス」については，この空気室の内部容積は極めて微小（ $10^{-11} \sim 10^{-12} [\text{m}^3]$  オーダー）であり，制御対象である気液自由界面の曲率半径は最小で  $10^{-4} [\text{m}]$  オーダーである。液相の流体を純水と仮定し，気相の流体を空気とすると，純水と空気間の表面張力は 293.15K において， $72.5 [\text{mN/m}]$  であるため，取り扱う二流体間の界面張力は通常  $10 [\text{mN/m}]$  オーダーと考えることができる。このとき，界面間のラプラス圧は，式 (3-1) から，大体  $10^2 \sim 10^3 [\text{Pa}]$  オーダーとなる。これは，非常に小さい値であると評価され，その制御は，非常に繊細な操作が要求されることが分かる。また，気相内の圧力制御対象は静圧のみであり，その流れは出来るだけ排除されることが望ましい。そのため，通常考えられる，コンプレッサーを用いて圧縮空気を導入する手法は，以上の点について満足する，適切な手段ではないと思われる。

そのため，「体積弾性率」を利用した「気相内圧力制御」機構を構築し，そのための圧力制御デバイスを製作した。



### 3-2 気相内圧力制御機構の構築

体積弾性率とは，系の体積変化に対して，系にかかる圧力がどの程度変化するかを表す状態量である．

いま，その体積変化を断熱変化と仮定すると

$$B = \frac{-dP}{\frac{dV}{V}} = -\frac{dP}{dV} V = -V \frac{dP}{dV} = -V \frac{d}{dV} (\kappa V^{-\gamma})$$
$$= -\kappa V (-\gamma V^{-\gamma-1}) = \kappa \gamma V^{-\gamma} = \gamma P$$

$$\therefore \Delta P = -\gamma P \frac{\Delta V}{V} \quad \dots(3-2)$$

但し、断熱変化： $PV^\gamma = \text{const}(=\kappa)$

$\gamma$ ：比熱比( $\cong 1.4$ )

体積弾性率： $B$

式 (3-2) から，気相の圧力  $P$  を 1 気圧 ( $\cong 101300[\text{Pa}]$ ) として，圧力変化量  $\Delta P$  の目標値を，1 気圧に対して  $+100 [\text{Pa}] \sim +1000 [\text{Pa}]$  程度とすると，その体積変化量  $\Delta V/V$  を  $-7.1 \times 10^{-4} \sim -7.1 \times 10^{-3}$  程度に制御することが実現できれば，気液自由界面（気泡）の形成および，その制御に成功することになると計算される．

以上の条件を満たすために，Fig. 3-2,3 に示すような気相内圧力制御系を設定し，その制御に適した条件を持つ，手動制御（Manual Driven）シリンジドライバを製作した．Fig. 3-3 に示す圧力制御系の構成内容から，シリコンチューブ及び実験流路内の容積が微小なため，そのほとんどの容積はシリンジポンプの内部容積により占められる．この気相系の体積変化の制御のため，Fig. 3-4,3-5 に示す手動制御（Manual Driven）シリンジドライバを作成した．Fig. 3-4 中にそのコンセプト，Fig. 3-5 に全体形とその操作方法を示す．機構としては非常に単純なもので，気相内内圧制御に必要な，シリンジポンプの微小なピストンストローク量を，細目メートルねじのピッチ量を用いて管制することを目的としている．シリンジはハミルトン社製ガスタイトシリンジ（N1701）を採用した．容量は  $1.0 [\text{ml}]$  であり，そのストローク量は  $67 [\text{mm}]$  である．シリンジドライバに用いる細目メートルねじは M12 を用いており，その一回転のピッチ量は  $1.0 [\text{mm}/\text{回転}]$  である．これを用いた場合，約  $1/20$  回転（約  $18^\circ$ ）

で  $\Delta V/V$  を  $-7.1 \times 10^{-4}$  に、約 1/2 回転（約  $180^\circ$ ）で  $\Delta V/V$  を  $-7.1 \times 10^{-3}$  に到達させることが可能になる。上記の理論的背景から、この手動制御（Manual Drive）シリンジドライバを用いることにより、実験時において、気相内内圧を適切に制御することが可能になった。

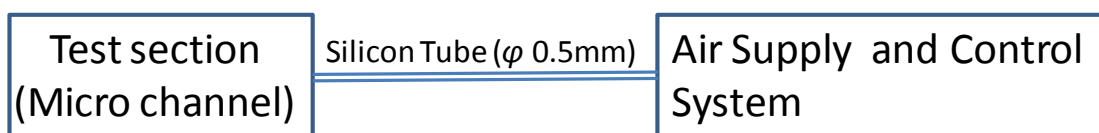


Fig. 3-2 Diagram of the air pressure control system

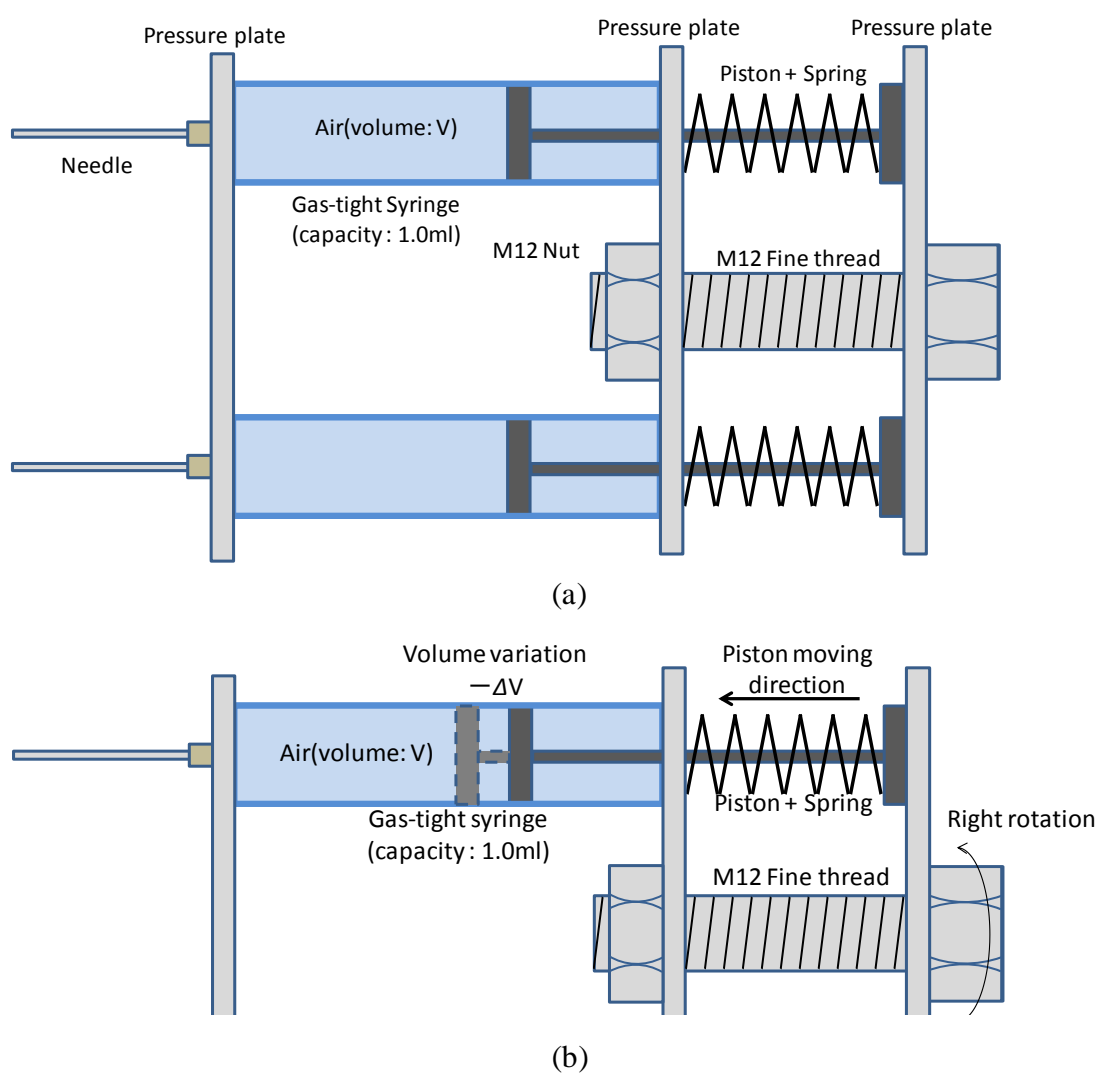
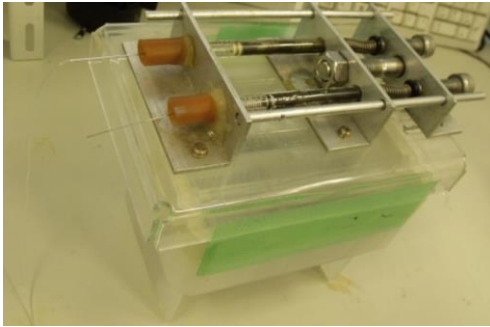


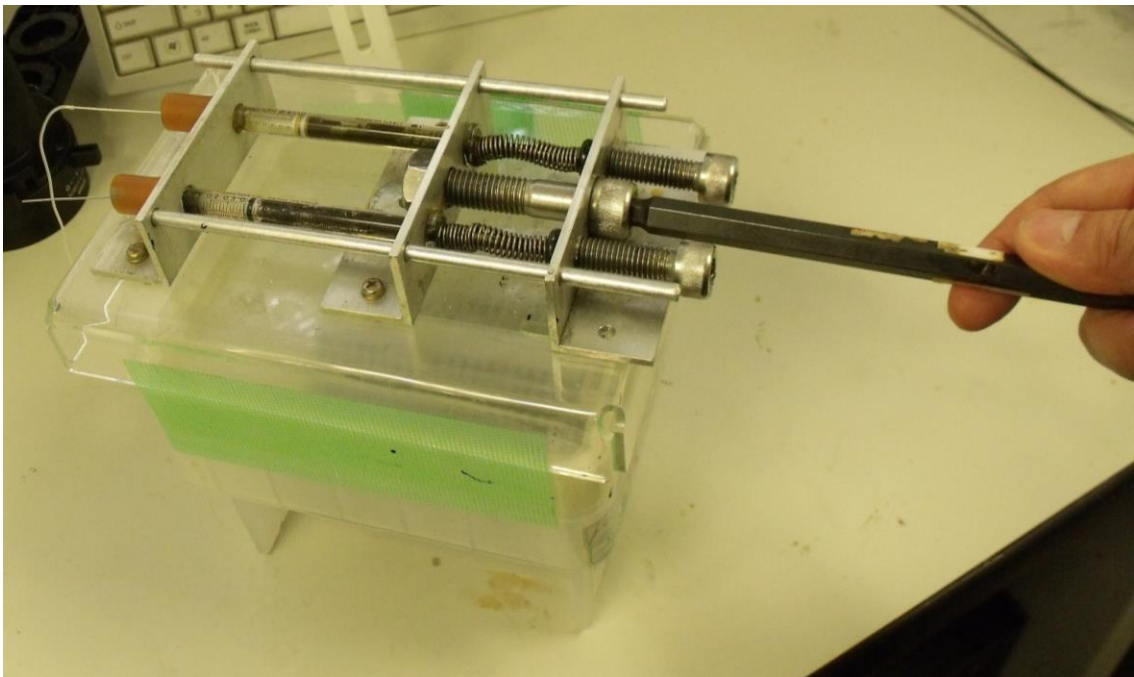
Fig. 3-3 Schematic view of air pressure control device, (a) general construction, (b) control mechanism of the air pressure



(a)



(b)



(c)

Fig. 3-5 Photos of manual drive air pressure control device, (a)(b) general construction, (c) the operation procedure

### 3-3 試験流路の詳細

マイクロ流路は、その断面寸法が一般に数十～数百  $\mu\text{m}$  のものを指し、二枚の基板、微細な溝を加工した基板と、平らな基板を接合することにより形成されるのが一般的である。微細加工の基本プロセスとして、転写加工（フォトリソグラフィ）により作成されることが多い。この方法はフォトレジストと呼ばれる感光性樹脂をシリコン板などの平滑面に一定の厚みで塗布（本実験では  $100\mu\text{m}$ ）し、各種熱処理を加えた後、紫外線にて一定時間フォトレジスト上にマスクパターンを露光した後、更に熱処理を加えた後に現像液にて不要なレジストを除去して、平滑面上に構造物の型を作成する方法である[2,3]。

現像すると感光部（ポジ型レジストの場合）、あるいは非感光部（ネガ型レジストの場合）が選択的に除去される。マスクパターンの転写に当たって、マイクロ加工で標準的に用いられるのは近紫外線（波長； $380\sim 200\text{ [nm]}$ ）である[2,3]。

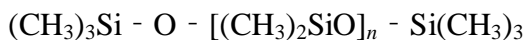
マイクロスケールでの加工については、「アスペクト比」というキーワードが重要である。これは、基板に対して（垂直）/（水平）方向の寸法比を指し、マイクロ流路では、（深さ）/（幅）を指すことが多い。

アスペクト比 1.0 以上の高アスペクト比のマイクロ流路を安価で比較的容易に作成する方法として、厚膜レジストを用いる方法が知られている。本研究では、この厚膜レジストを用いてマイクロ流路の作製を行った[2,3]。

作成に用いた厚膜レジストは、紫外線用厚膜レジスト SU 8 (MICRO CHEM 社製) である[4]。これは、1997 年ごろから市販され、現在でも CPU 基板やマイクロ流路製造などに広く使用されているものである。SU 8 は、エポキシ樹脂をベースとしたネガティブフォトレジストであり、重ね塗りによる樹脂の積層が容易に出来ることが最大の特徴となっている。そのため、最大 5 層の積層により、 $0.5\sim 0.7\text{mm}$  程度までの厚さまで、露光、現像が可能とされている。サブマイクロメートルオーダーでの精度は、その原理的に出すことはできないとされている[2,4]。

SU 8 の構造体をそのままマイクロ流路に用いることも可能であるが、その構造体をほかの材料にキャスト転写して用いるのが一般的である。本研究では、熱硬化性シリコンゴムの一種である PDMS (Polydimethyl siloxane) にキャスト転写して、所望の流路を得ている。これは、あらゆるマイクロ流路製作方法の中でもっとも簡単な方法であり、この PDMS 自体が「微細な溝を加工した基板」となるとき、「平らな基板」の材質を考慮することで、シリコンゴム自体の粘性や両基板間の表面張力により接合工程が不要になる利点がある[2]。

PDMS は、多くの工業（潤滑剤、（紙、繊維の）防水加工、防泡剤など）で大量に使われており、その一般化学式は以下の通りである。



PDMS の構成単位は、シロキサン（Si - O 基）に二つのメチル基が付いたものである。これらの基を持つことから、この鎖は、非極性、疎水性、大きな熱力学的安定性を持つと同時に、光学的透明性も有する。（モノマーの）単位数  $n$  は重合度と呼ばれる[1]。

以上に述べた性質は、PDMS が化学的に非常に安定した物質であることを示しており、マイクロ構造物の転写材として好適であることを表している。また、その光学的透明性により、マイクロ流路内部の流れ観察に際しても好適であると言える。

本研究では、東レ・ダウコーニング社製の Silpot 184 という PDMS を用いた。これは、一般的特性としては疎水性を有するものではあるが、例えば石英ガラス基板に対しては、むしろその接触角が鋭角（ $< \pi/2$ ）になるので、マイクロ流路の構成材である平面基板に石英ガラスを用いることにより、先に述べた通り、その表面張力による効果から、接合工程が不要となる。

マイクロ混合器の作製工程を以下に示す（Fig. 3-6 参照）。[4]

#### (1) スピンコート

4 インチのシリコン基板の上に SU 8 を 4.0[ml] 滴下しスピナー上に設置する。スピナーで 500[rpm] で 2 分間回転させ、基板の上の SU8 の厚さを 100[ $\mu\text{m}$ ]にする。

#### (2) プレベイク

SU 8 を塗布した基板をドラフトチャンバー内に設置したホット・プレート上で 65[ $^{\circ}\text{C}$ ]で 15 分間、95[ $^{\circ}\text{C}$ ]で 35 分間加熱する。これを「プレベイク」という。これは、溶液等の不純物を揮発させ、樹脂の純度を高めるために行う。SU 8 の重ね塗りによる積層を行う場合は、以上の段階までを複数回（~5 回まで）行う。

#### (3) 露光

ソフトベイク後、シリコン基板をマスク・アライメント装置（ミカサ マスクアライメント装置 MA10）の基板台に設置する。シリコン基板に転写する

流路のマスクパターンを設置し、シリコン基板とマスクパターンのアライメントを適正に保ちながら 20~30 秒間露光する。本露光装置の紫外線量は、測定により  $10[\text{mW}/\text{cm}^2]$  であることが分かっている。また、SU8 の感光性硬化に必要なエネルギーは  $100\sim 400 [\text{mJ}/\text{cm}^2]$  であり、これと出来上がるマイクロ構造物の精密性を考慮して露光時間を定めている。マイクロ混合器作製における露光の工程は非常に重要であり、マスクパターンが正しく転写出来ているか、露光時間に間違いはないかなど確認を怠らないよう心がける。

#### (4) ポストベイク

露光が完了したシリコン基板をホット・プレート上で再度加熱する。これは、硬化した樹脂内に”架橋”(Bridging)することによって、樹脂内部の強度を増加させるためである。加熱時間は  $65[^\circ\text{C}]$  で 1 分間、 $95[^\circ\text{C}]$  で 15 分間とする。加熱が終了したら、シリコン基板をホット・プレートから下ろし、常温で 1 分間ほど冷却する。

#### (5) 現像

冷却したシリコン基板を現像液 (SU8 Developer) につけ、現像を行う。現像はドラフトチャンバー内のバット上で一回につき現像液  $75[\text{ml}]$  を使用し、二回に分け行う。1 回の現像時間は約 15 分と定められている。この時バットを揺らしながら現像すると現像時間は短縮できるが、流路に欠陥ができてしまう可能性が高くなるため、バットを揺らさず自然に現像を行うこととする。

現像液は IPA (イソプロピルアルコール) で洗浄することが推奨されている。その後、スピンドーターで乾燥させる。

#### (6) PDMS によるキャストイング

シリコン基板上に出来上がったマイクロ構造物を PDMS で型取りする。48 時間後、固まった PDMS 流路をシリコン基板から剥がす。流路は  $0.17\text{mm}$  厚のカバーガラス板に張り付け、各種接続部を工作することでマイクロ流路が完成する。

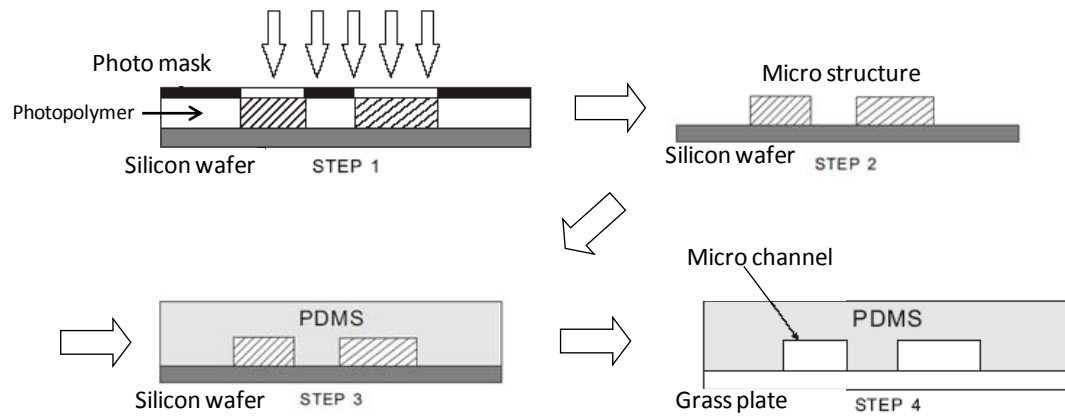


Fig.3-6 Schematic view of photolithography process, exposure→developing →casting by PDMS →construction of the test channel

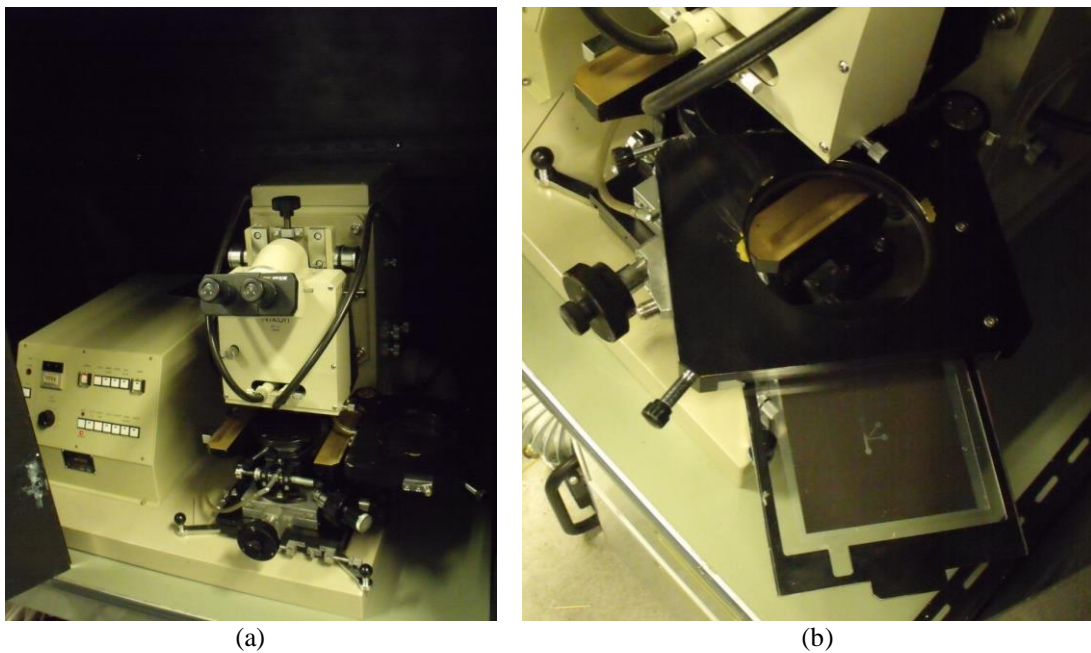


Fig. 3-7 Photos of the mask alignment device, (a) a general view, (b) with a photo mask pattern

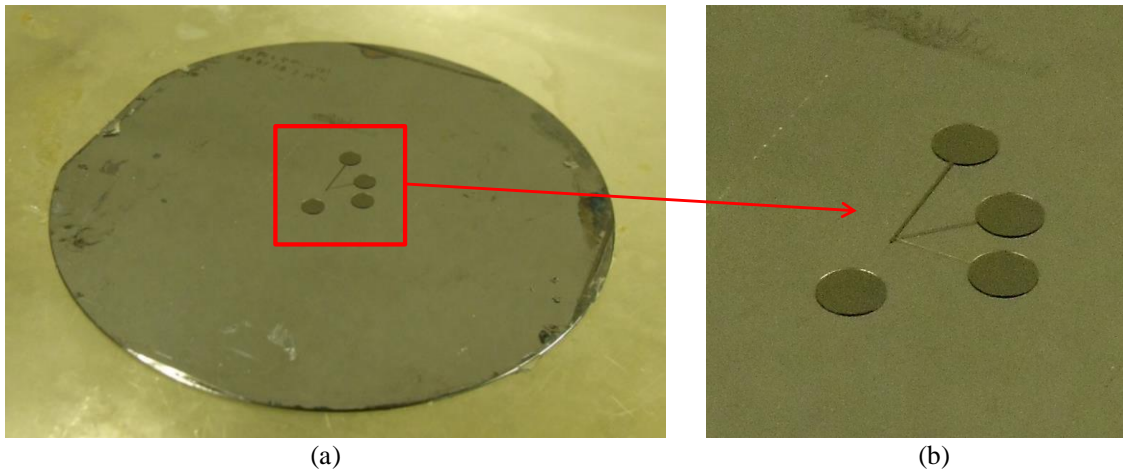


Fig. 3-8 the micro structure of the mold of the test channel on a silicon wafer made by photolithography method, (a) a general view, (b) a enlarged view

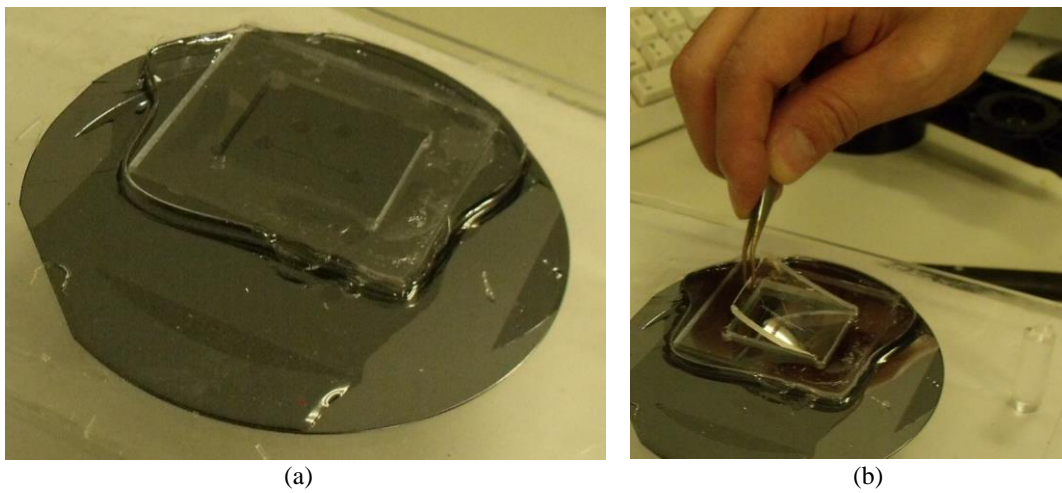


Fig. 3-9 Photos of the casting of the micro structure made by photolithography method, (a) a general view, (b) work on detachment process



実際に実験で用いた流路の形状は、Fig. 3-10 に示す通りである。Fig. 3-10(a)に試験流路の全体形、(b)に流路屈曲部の形状および寸法を示す。

マスクパターンは実験流路の CAD データをフィルム上に転写し、現像したものを用いた。Fig. 3-10(c), (d)に、フォトリソグラフィーを用いて作成した試験流路をレーザー顕微鏡 (Olympus LEXT4000) にて測定した結果を示す。流路の深さ方向が大体  $100\mu\text{m}$ 、平面方向の各寸法がマスクパターン通り転写されていることが分かる。

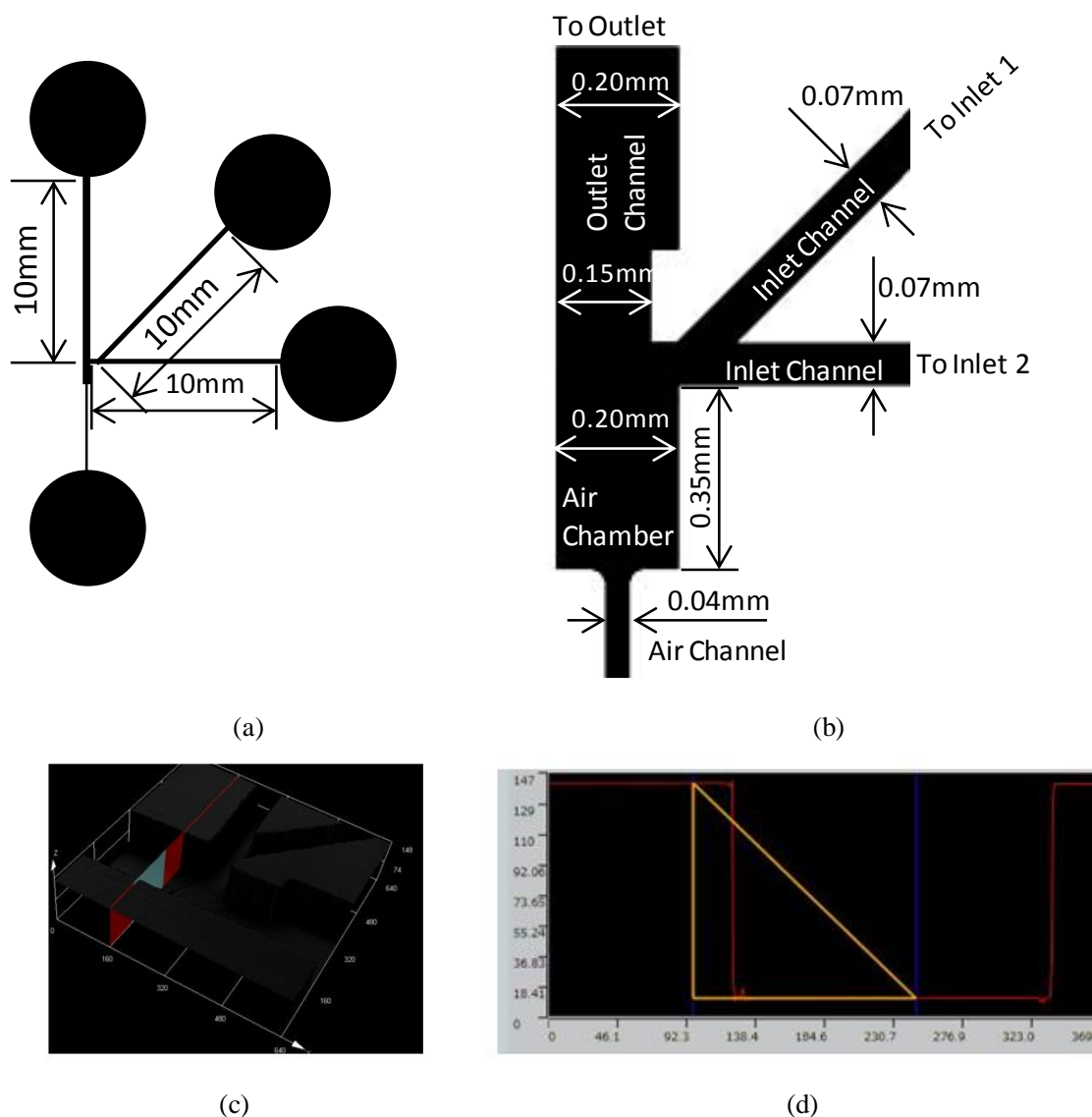


Fig. 3-10 The design of Type-B channel, (a) Schematic view of the general construction, (b) Detail of the bending point of Type-B channel including bubble holding section as air-chamber and air-channel, (c)The measuring result of PDMS rubber installing Type-B channel by  $\times 10$  of laser micro scope

### 3-4 マイクロ流路内での気泡形成実験

このデバイスを成立させるためには、微細管内に気泡を形成した後、それを静止、維持させなければならない。しかし、ラプラス圧を表す式 (3-1) に示す通り、気泡の内圧増加が、あるいは気泡周辺を流れる液相の静圧が低下する時、液膜を構成する気液自由界面の曲率半径は変化し、その形状が変形することになる。その結果、気泡表面に形状不安定性が生じることが考えられる[1]。このとき、デバイス、即ち流路屈曲部上に形成される気泡表面の維持・管理に著しい困難が生じることが予想される。とくに、実験では気泡表面に「不均衡な表面張力分布によるせん断流」が生じるため、とくにこれらの外乱による界面の不安定性に対する影響について考慮する必要がある。気泡内外の圧力差と気泡形状（曲率半径）の関係は、 $\Delta P$ : ラプラス圧,  $P_{gas}$ : 気相（気泡内部）内圧,  $P_{liq}$ : 液相内静圧,  $\gamma$ : 表面張力,  $R$ : 曲率半径として、次の式(3-3)で表される。

$$\Delta P = P_{gas} - P_{liq} = \frac{\gamma}{2R} \quad \dots(3-3)$$

液側の静圧の微小ながら急激な変化に対して気泡の挙動を穏やかに制御するためにはラプラス圧  $\Delta P$ （気相側と液相側の静圧差）の変化に対する気泡の体積変化を緩やかにする必要があると思われる。

このためには、元の気泡体積に対する体積変化量の比率を考慮するべきであると考えられる。液膜は気液自由界面部だけでなく空気室も含めた体積の気体により形成されると考えると、その圧力変化による挙動は、気泡保持部の空気室の形状と特に容積に依存すると思われる。

そこで、この関係性を実験的に明らかにするために、先に述べた圧力調節用手動シリンジドライバを用いて、マイクロ流路内の気泡形成に関する予備的な実験を行った。

実験に用いる試験流路には、流路内に気泡形成部を Fig. 3-11,12 のように作成し、A: chamber width, B: chamber depth, C: Device distance と定義する3つのパラメーターを置いた。これらのパラメーターを用いて気泡形成とその挙動についての考察を行った[5]。

Fig. 3-11(a), (b) に気泡形成実験の概念を示す。直線流路中の一部分に空気室と圧縮空気流路を対向におき、そこに気液自由界面を形成する。Fig. 2(a) のように気泡を置くことにより2つの気泡を形成し、その挙動を観察した。気泡間の液相内流速は「連続の式」[6]により、流路内の平均流速より数倍のオーダーで増加するはずである。そのために、その部分の液相内静圧は低下するはずであり、気泡間距離が接近するほど液相内の静圧は低下し、ラプラス圧が高くなる。このとき、気液自由界面（気泡表面）上のラプラス圧には不均衡な分布が存在することになり、この状態は、先に記したマランゴニ対流によるマイクロ混合流生成デバイスが機能している時の気泡表面の状態を模擬していることになる。本来、この実験は気泡表面を用いた別の混合デバイス開発時に行った実験であるが[5]、この研究成果は、本研究で用いたマイクロ混合流生成デバイスの成立に関しても重要な役割を果たしている。

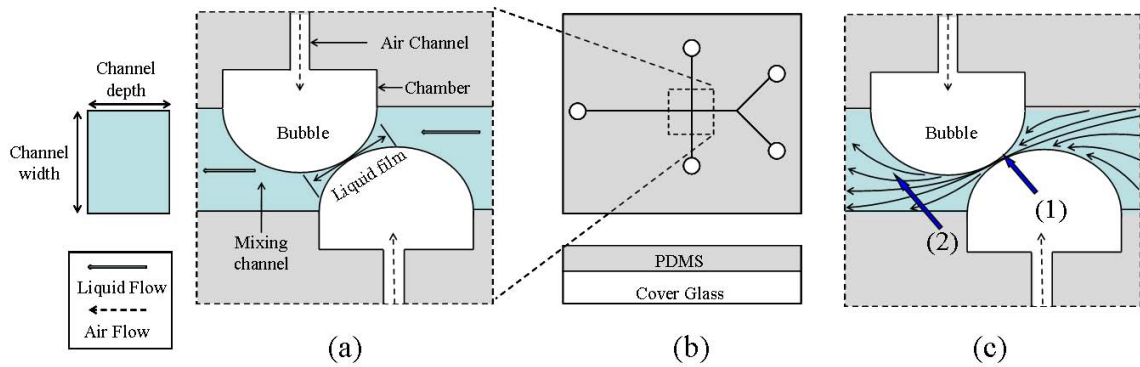


Fig.3-11 Concept of “Micromixer with Thin Liquid Film” (a) The detail of “Bubble holding section” (b) The image of the mixer (c) Important effects in mixing near the bubbles : (1) Decreasing diffusive distance between two bubbles and (2) ambient flow change near the bubble [5]

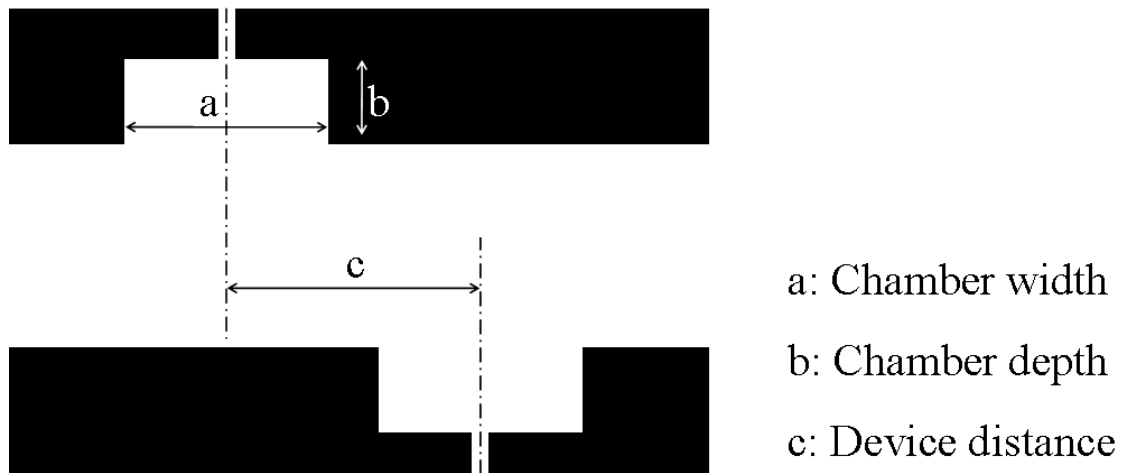


Fig.3-12 Parameters put into the bubble holding section [5]

気泡形成とその挙動を調査する実験に際して、Fig. 3-12 に示す a~c のパラメータを変化させた Type-A,B,C の三種類の流路を用意した。(Fig. 3-13 参照)

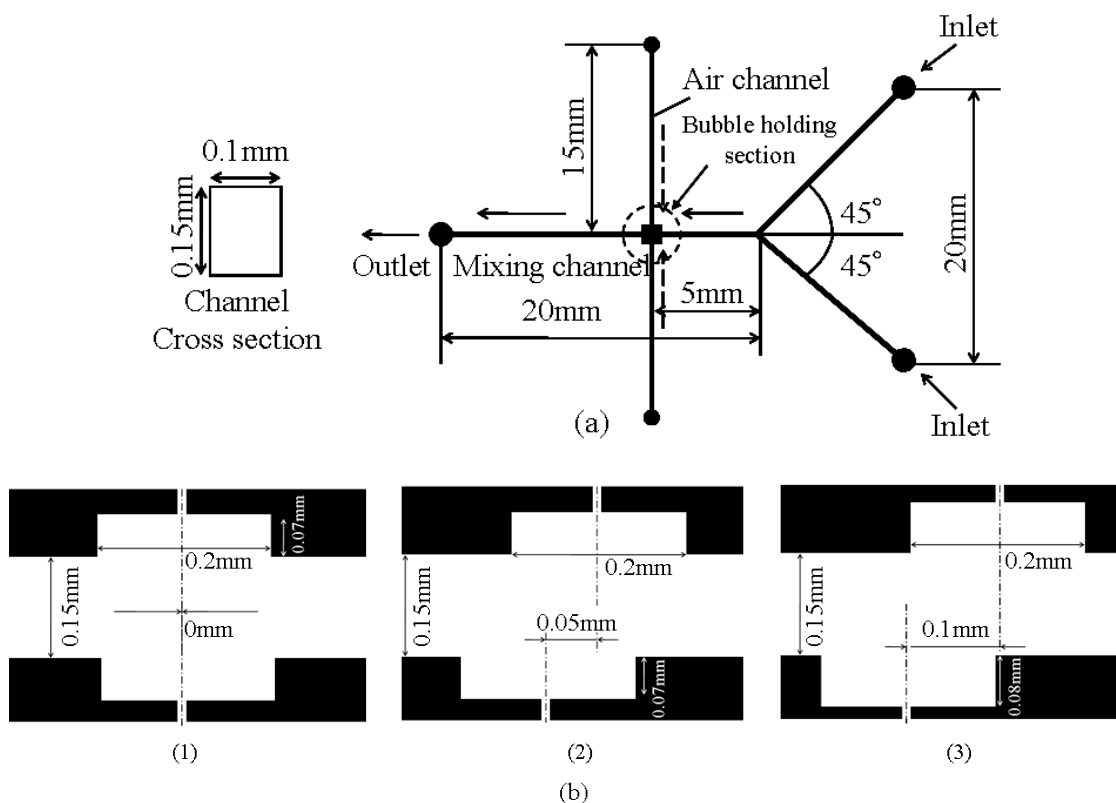


Fig.3-13 Schematic view of dimensions in the three test channels (a) Over all dimension of test channel, (b) Different designs of “bubble holding section”: (1) Type-A, (2) Type-B and (3) Type-C[5]

三種類の流路は Fig. 3-13(a)に示すとおり，基本的に流路幅 0.15mm，奥行き 0.1mm，主流路に対する Inlet の角が，水平線に対してそれぞれ 45° の Y 型ミキサーであり，2 液合流部から 3mm 地点に，Fig. 5(b)に示す気泡保持部を設ける．気泡保持部の 3 つのパラメーターについては表 3-1 にある通りである．

Table 3-1 Dimensions of the bubble holding section in different test channels[5]

Test channel	Chamber width	Chamber depth	Distance
Type-A	0.20mm	0.07mm	0.00mm
Type-B	0.20mm	0.07mm	0.05mm
Type-C	0.20mm	0.08mm	0.10mm
Type-D	0.15mm	0.10mm	0.08mm

実験装置は Fig. 3-14 に示す通りであり，それは大きく分けて 4 つの部分からなり，それぞれ試液供給部，気泡制御部，観察部，記録部からなる．試液供給部は 2 本のマイクロシリンジとシリンジドライバーからなり，各流入口から 0.5 $\mu$ l/min の割合で試液を流入させる．気泡制御部は Fig. 10 に示すとおり，容量 1ml のマイクロシリンジ 2 本と先に述べた手動のシリンジドライバーで構成

され、流路内に圧縮空気を供給、気泡形状の制御を行う。観察部、記録部は倍率4~10倍の光学顕微鏡、アナログ CCD カメラ、モニター、PC からなり、実験映像の観察、動画での記録を行った。実験に用いる流体は 25°Cの純水を用いる。流入条件については表 2 に示す。

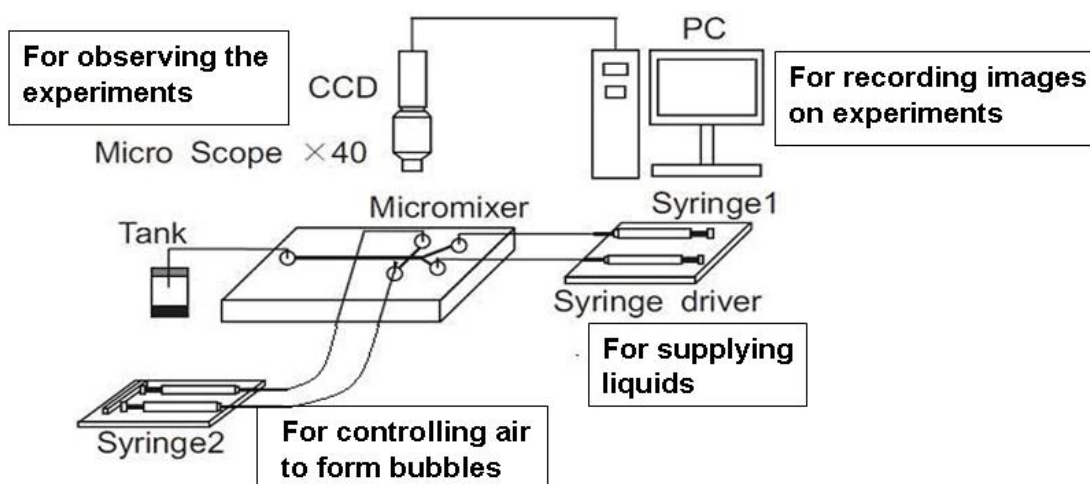


Fig.3-14 Schematic view of the experimental apparatus[5]

Table.3-2 Flow condition after the junction point in the experiments[5]

Volume flow rate ( $\mu\text{l}/\text{min}$ )	Flow velocity (m/s)	Reynolds number
1.0	$1.11 \times 10^{-3}$	0.17

Type-A,B,C 試験流路を用いた気泡形成実験の結果をそれぞれ Fig. 3-15(a),(b),(c)に掲載する。

Fig. 3-15(a)にある Type-A 流路では、二気泡間の最小距離を 0.03mm 以下にすることが出来ず、それ以上接近させようとすると気泡が破裂した。また、気泡形成実験中、その挙動は常に不安定かつ神経質であり、気泡形状を安定させることは非常に難しかった。

Fig. 3-15(b)の Type-B 流路では、気液自由界面の三重線を、空気溜めの角に形成することが出来なかった。これは空気溜めの深さが不足していたため流路内に気泡を形成する十分な空間を確保することが出来なかったからである。また、気泡の形成に際してはその挙動にかなりの不安定性が見られ、これは空気溜の容積の不足によるものと思われる。しかし、一旦気泡が形成されると、その挙動はかなり安定して、気泡間隔を 0.02mm 程度まで安定して接近させることができた。

これに対して、Fig. 3-15(c)の Type-C 流路では、安定して気泡を形成するこ

とが出来、またこの間の気泡の挙動も安定したものとなった。

気泡間隔についても 0.01mm 程度まで安定して形成することが出来た。この理由として、Type-A,B と比較して、空気室深さが十分であったため、気泡形成に必要な空間が確保できたこと、空気室容積もまた増加したため、気泡形成による液膜内の静圧の減少に対しての気泡の挙動が穏やかになったこと、また、気泡配置により気泡の流れ方向の自由度が確保され、気泡変形に自由度が増したことが考えられる。

微細流路内の気泡と液膜の安定した形成に関しては、一定以上の空気溜め深さ (Chamber depth) を確保すると、気泡の挙動が安定する傾向が得られた。そこで、Type-D として、表 3-1 にある通り、空気溜の幅 : 0.15mm 空気溜の深さ : 0.1mm 気泡間距離 : 0.15mm の試験流路を用いた実験を行った。Fig. 3-15(d)にあるとおり、実験では、非常に明瞭な液膜を形成することができた。これは、空気室の容積が増大して、気泡膨張時のラプラス圧の上昇量が小さくなったことにより、液膜形成時の気泡の挙動が安定したためであると考えられる。また、その挙動は Type-C 流路での実験時と非常に類似した傾向を示し、両気泡間を過度に接近させ破裂させるまで、挙動は常に安定していた。

これらから、気泡保持部の設計指針として、空気溜め深さ (Chamber depth) の十分な深さ、この流路では少なくとも 0.1mm 以上の Chamber depth を確保することが望ましいことが判った。Fig. 3-10 で、この部分の寸法を確認してみると、気泡表面の保持部分の Chamber width に相当する寸法は 0.25mm、対して Chamber depth に相当する部分の寸法は 0.35mm とその比は 5:7 となり、先の実験結果を反映した設計になっている。

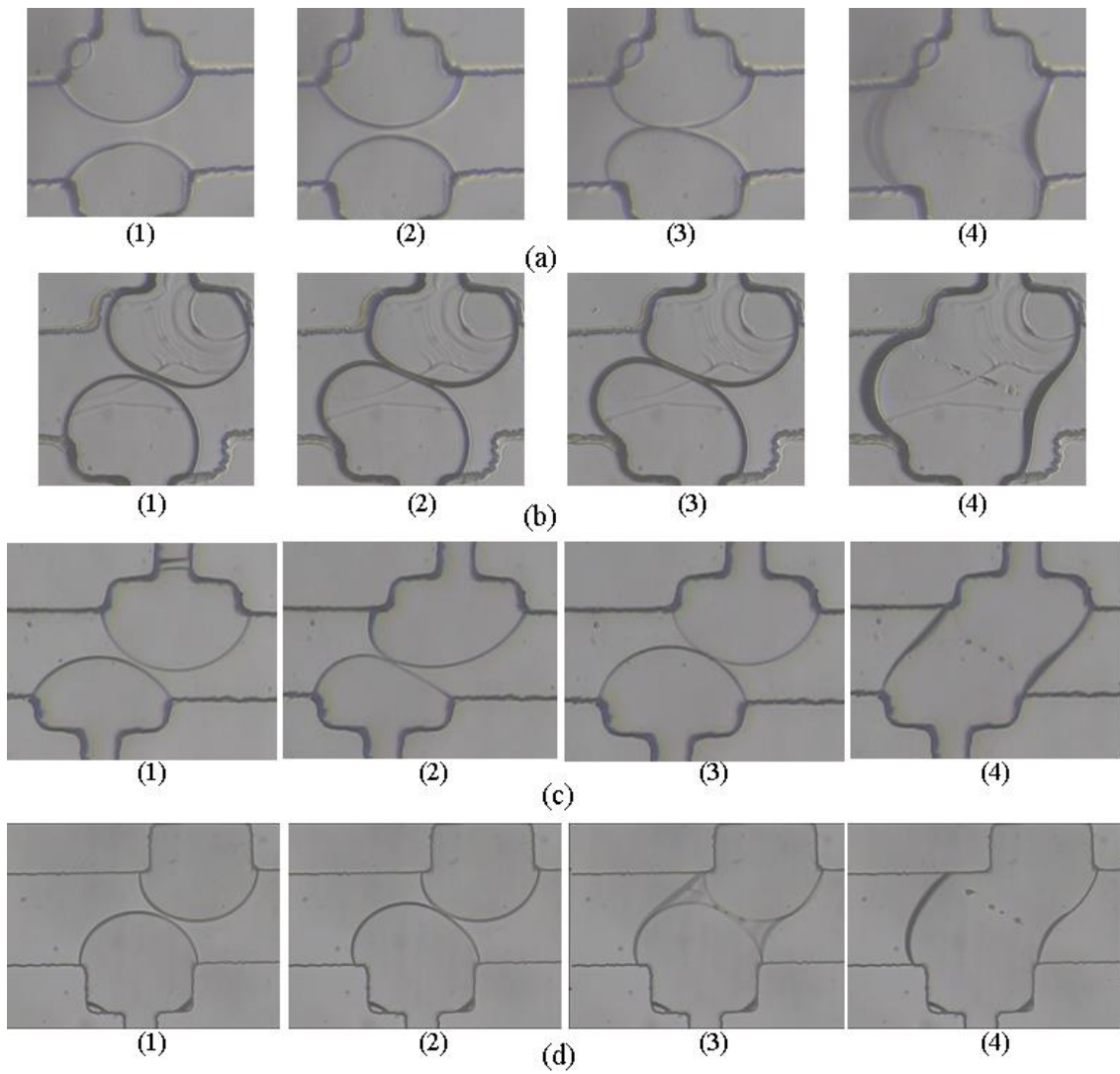


Fig. 3-15 Photos of bubble in the forming experiments (1): stable state in mixing process, (2)-(4): at the moment of the bubble bursting taken by every 0.1(s), (a): Type-A, (b): Type-B, (c): Type-C, (d): Type-D [5]

### 3-5 本章のまとめ

この章のまとめとして、以下に示す。

- ・ 第 2 章で検討したマランゴニ対流によるマイクロ混合流の生成コンセプトを実際に組み込み、混合実験を行うための実験用マイクロ流路と界面形状を制御するデバイスの検討を行い、その設計、製作を行った。
- ・ 界面形状を制御するデバイスの検討としては、
  - (1) 圧縮空気により、マイクロ流路内に気液自由界面を形成し、その形状を外力で制御する為のデバイス開発
  - (2) マイクロ流路内に設けられる、気液自由界面形成の為の「空気室」(Air Chamber) の設計指針の追求が行われた。
- ・ 同時に、マイクロスケールの実験流路製作に関して、感光性樹脂とシリコンポリマーを用いた「フォトリソグラフィー」法を導入し、それにより作成される実験流路の概形、基本的な諸元を示した。
- ・ 「圧縮空気により、マイクロ流路内に気液自由界面を形成し、その形状を外力で制御する為のデバイス開発」については、体積弾性率を用いた、気相内内圧を 10[Pa]単位で制御可能な手動制御装置の開発に成功した。
- ・ 「マイクロ流路内に設けられる、気液自由界面形成の為の、空気室の設計指針」については、実際にフォトリソグラフィー法を用いた気泡形成実験を行い、それにより、空気室設計に関する適切な条件についての有益な知見を得た。



### 第 3 章の参考文献

- [1] de Gennes, P.G., Brochard-Wyart and F.B., Quere, D., 奥村剛訳, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2003, pp. 1-83.
- [2] 吉田純一監修, ”マイクロリアクターの開発と応用”シーエムシー出版, 2008.
- [3] Kazawa, E., Ueno, T. and Shinoda, T., High-aspect-ratio lithography for micro module fabrication, Bulletin of Tokyo metropolitan industrial technology research institute, **5**, 2002.
- [4] <http://microchem.com/pdf/SU-8%203000%20Data%20Sheet.pdf>.
- [5] Yamada, T. and Ono, N., A Basic Study of a Straight Flow Micromixing Device Utilizing a Very Thin Liquid Film, Journal of Fluid Science and Technology **7**(1), 2012, pp. 64-77.
- [6] Bird, R. B., Stewart, W. E. and Lightfoot, E. N. *Transport Phenomena second edition*, 2006, WILEY.

## 第4章 実験手法

この項は、実験用マイクロ流路を用いた実験手法について、

- ・ 4-1 実験装置全体の構成と各装置の役割
- ・ 4-2 試験流体の選定とその理由
- ・ 4-3 混合評価法
- ・ 4-4 PIV（粒子画像化速度計測法）の概要と本研究での適用法
- ・ 4-5 本章のまとめ

の五項で構成されている。

#### 4-1 実験装置全体の構成と各装置の役割

実験装置の概念は、Fig. 4-1 に示すとおりであり、これに基づいて構成される実験装置を Fig. 4-2 に示す。

実験装置の構成は、Fig. 4-1,2 に示すとおり、実験に用いるマイクロ試験流路、試験流路内へ試液を供給し、その流速を管理するセクション、マイクロ流路内に圧縮空気を供給し、実験中での気泡の形成とその維持のために圧力を管理するセクション、さらに実験の状況を観察し画像または映像で記録するセクションの、主要な4つのセクションから構成されている。

各セクションの構成する各装置について述べる。

試験流路の詳細は、第三章で述べた通りだが、Fig. 4-3 に示す通り、試液の流入出口、気泡形成用の圧縮空気の導入口として、PDMS 部分に直径 0.7mm の穴を四カ所開け、そこに外径 0.7[mm]、内径 0.4[mm]の硝子管( Drummond Micro-cap 容量 2.0 $\mu$ l を流用)を挿入し、これを試液供給部あるいは圧縮空気導入部との接続口とする。挿入部周辺を汎用ゴム系接着剤で被覆し、漏れ止めとしている。

試験流路内へ試液を供給し、その流速を管理するセクションは、2本の容量 1.0[ml]のマイクロシリンジと1台のシリンジドライバで構成されている。マイクロシリンジは、Hamilton 社製ガスタイトシリンジ N1001RT (容量 1.0[ml])を用いている。これをシリンジドライバ (AsOne MA-10) に2基掛けして用いている。シリンジドライバ (AsOne MA-10) は、注入誤差 0.01%、1.0[ml]のマイクロシリンジでは、 $1.0 \times 10^{-4} \sim 1.0 \times 10^{-1}$ [ml/min]の間で16段階の流入量調節が可能となっている。これを、外径 1.0[mm]、内径 0.7[mm]のシリコンチューブを介して試験流路に試液を供給する。

マイクロ流路内に圧縮空気を供給し、実験中での気泡の形成とその維持のために圧力を管理するシステムは、容量 1.0[ml]のマイクロシリンジと、第三章で詳述した手動シリンジドライバで構成されている。マイクロシリンジは、試液供給部と同じく Hamilton 社製ガスタイトシリンジ N1001RT (容量 1.0[ml])を用いている。これを上記の手動シリンジドライバに2基掛けしてそのうちの一基について試験流路に接続し、実験に用いている。手動シリンジドライバは 0.1[mm]単位での微小なストローク管理が可能であり、これにより 1.0[ml]のマイクロシリンジとの組み合わせで、10.0[Pa]単位での微小な圧力調節を可能としている。外径 0.7[mm]、内径 0.5[mm]のシリコンチューブを介して試験流路に接続され、実験中の試験流路内気相の圧力をコントロールする。

実験の状況を観察し画像または映像で記録するセクションは、光学顕微鏡、アナログカラーCCDカメラ、デジタル（モノラル）高速度カメラ、外部LED光源、PC、モニターにて構成されている。

光学顕微鏡 (Nikon TS100) には、4倍 (Nikon CFI Plan Fluor 4x, NA; 0.13), 10倍 (Nikon CFI Ph1 DL 10x, NA; 0.25), 20倍が二種類 (Nikon CFI Plan 20x, NA; 0.45), (Nikon CFI Plan Apo  $\lambda$  20x, NA; 0.75) 各レンズが装着されており、目的に応じて（混合濃度測定、或いは流れの可視化実験）使い分けている (Fig. 4-4 参照)。

アナログカラーCCDカメラ (Vixen C0014-3M) は41万画素の1/3インチカラーCCDセンサーを備えており、1秒間あたり30コマ (30[fps]) 撮影できる。アナログカラーCCDカメラは、実験状況の確認、実験結果の撮影に用いており、光学顕微鏡 (Nikon TS100)のカメラ塔に装着され使用される。

デジタル（モノラル）高速度カメラ (Kato ko-ken k II -EX) は、160万画素の1/3インチカラーCCDセンサーを備えており、1秒間あたり50コマ (1200×1056 [pixels]) ~ 3000コマ (160×120[pixels]) の撮影が可能となる。

デジタル（モノラル）高速度カメラは、実験結果の撮影、とくにトレーサー粒子を用いた流れの可視化とPIV解析用に用いており、光学顕微鏡 (Nikon TS100)の接眼部に、アダプター(Micronet NY-CZ) を介して装着され使用される (Fig. 4-5 参照)。

アナログカラーCCDカメラ、デジタル（モノラル）高速度カメラともに、画像データは専用のグラバードを介してPC内に取り込まれ、それぞれの専用ソフトウェアにより、映像として保存される。また、同時にPCに接続されたモニターにて実験状況をリアルタイムで確認できる。実験中における気液自由界面の形状制御は、このリアルタイム映像を確認しながら、手動で行っている。

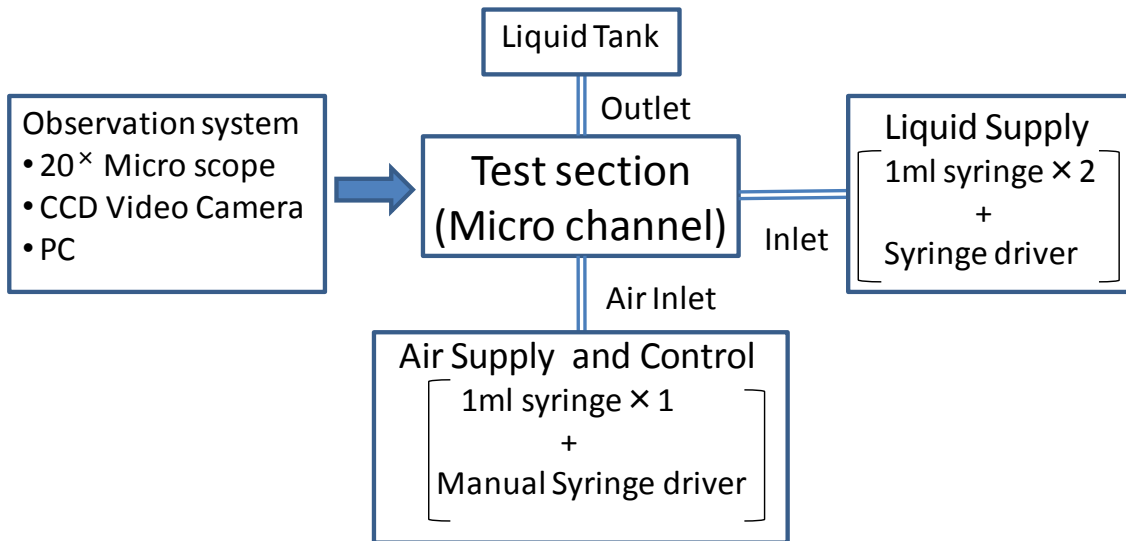


Fig. 4-1 Diagram of the apparatus for the experiments; Overall structure of the apparatus

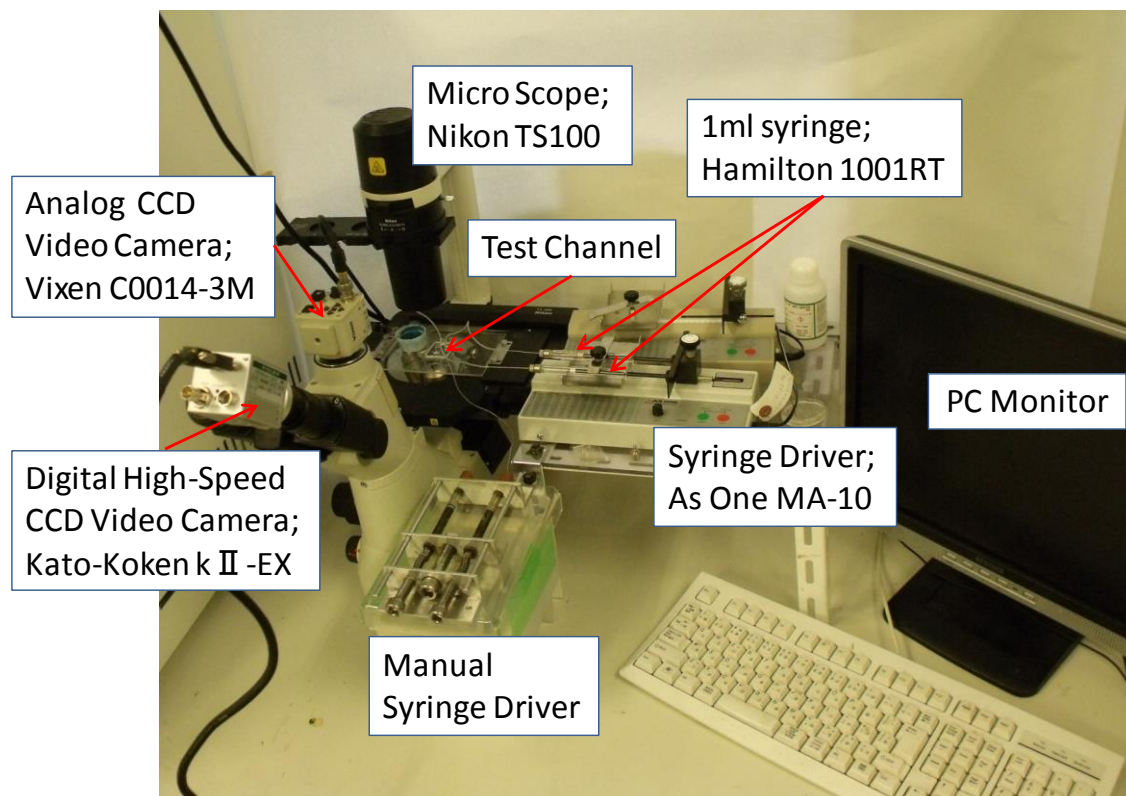


Fig. 4-2 a photo of the apparatus for the experiments; general construction

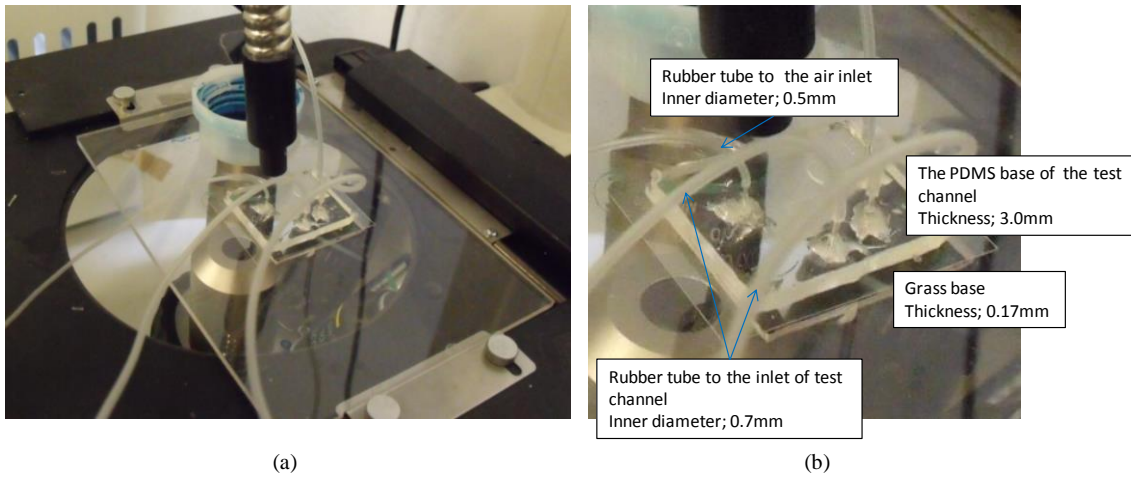


Fig.4-3 Details of installation of a test channel in the apparatus

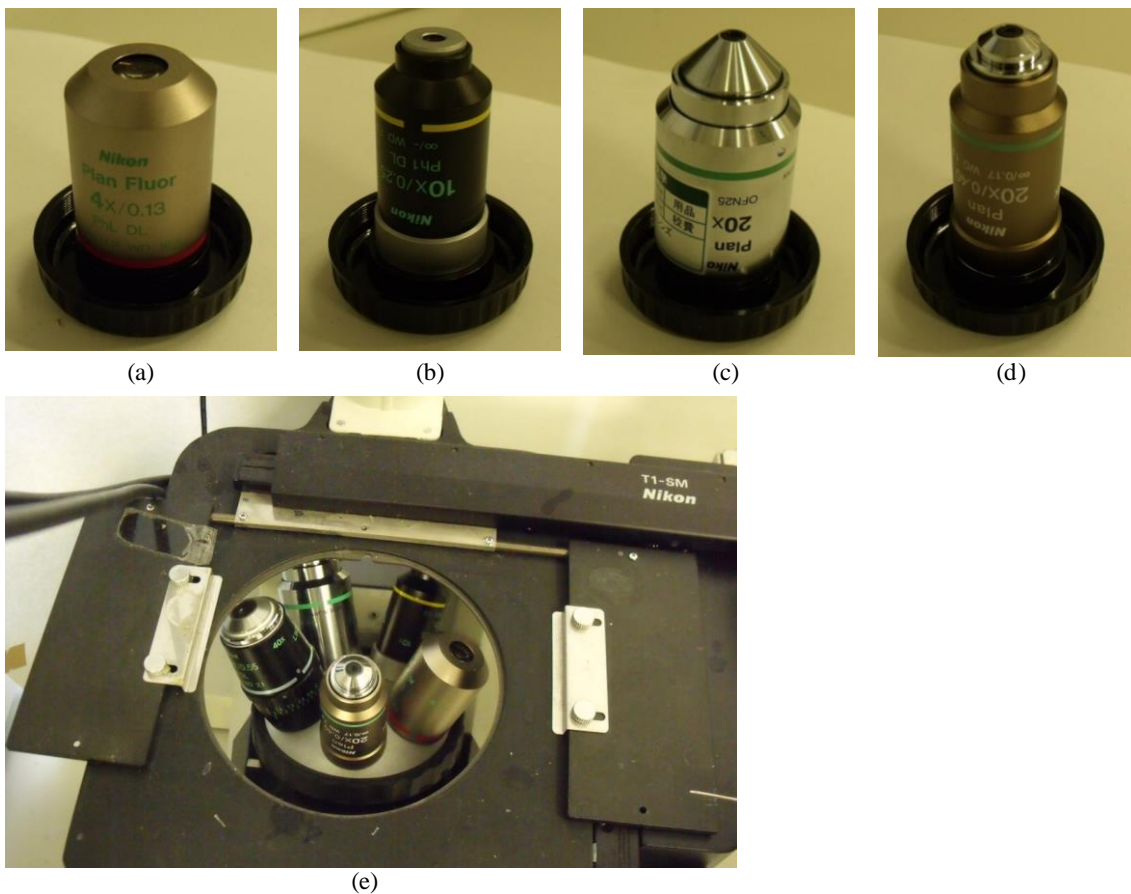


Fig. 4-4 Microscope objective lens, (a) 4<sup>×</sup>(Nikon CFI Plan Fluor 4x, NA; 0.13), (b) 10<sup>×</sup>(Nikon CFI Ph1 DL 10x, NA; 0.25), (c) 20<sup>×</sup>(Nikon CFI Plan 20x, NA; 0.45),(d) 20<sup>×</sup>(Nikon CFI Plan Apo λ 20x, NA; 0.75), (e) The microscope (Nikon TS100) mounting these lenses

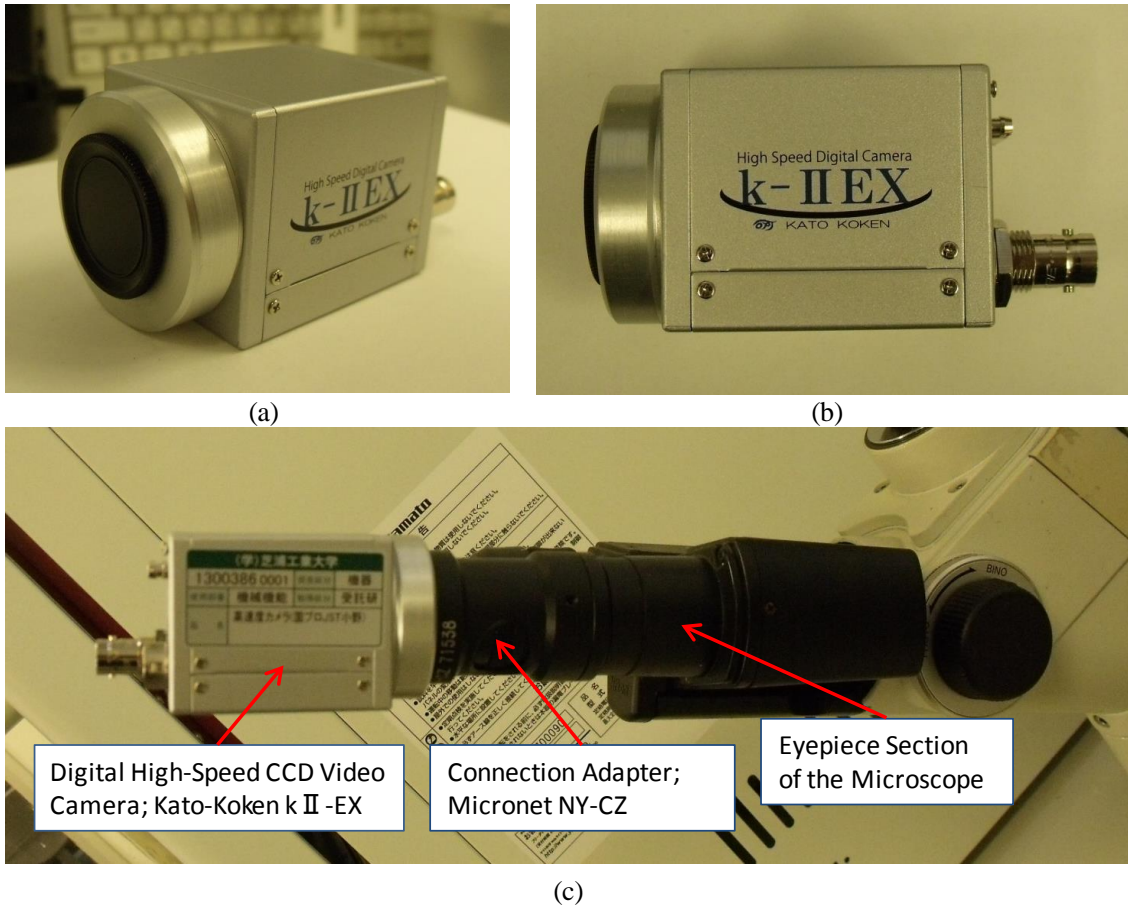


Fig. 4-5 Details of digital CCD high-speed camera (Kato ko-ken k II -EX), (a)(b) general view, (c) connection to the eyepiece barrel of the microscope

## 4-2 試験流体の選定とその理由

流動実験に用いる試験流体には、基本的な組み合わせとして、酢酸 30wt% 水溶液と純水を用いた。両者の表面張力と粘性係数を Table 4-1 に示す。この 2 液体を選択した理由として、次の三点があげられる[1]。

第一に、この実験に用いる試験流体は、微細流路本体の材料として第 3 章で述べた通り、PDMS (polydimethyl siloxane) [4]を使用しているため、これを浸食しない物質であることが必要である。代表的な有機基の一つであるエタノール等のアルコール類は PDMS を溶解させることが知られており、この条件を満たすことが難しいと思われる。一方、酢酸や純水は PDMS に対する浸食性が低いとされており、安心して使用できると思われる。

第二に、試験流路に設置される気泡の界面保持機構を有効に機能させるためには、基本的に流体が気泡保持部にある程度浸入しにくいことが要求される。しかし試験流路自体には試験流体が流入できることが必要である点を考えれば、接触角という指標で濡れにくさを見ると、試験流体と PDMS との間の接触角は、 $90^\circ$  程度となるのが望ましいと考えられる。酢酸水溶液の PDMS に対する接触角を測定したところ、表 4-2 にある通り、純水（酢酸濃度 0wt%）で接触角  $94.02^\circ$ 、酢酸 30wt% 水溶液で  $91.02^\circ$ 、同 50wt% 水溶液では  $81.96^\circ$  となり、酢酸水溶液を試験流体に用いる場合、濃度 50wt% 程度までは実験に用いるのに都合がよいことがわかった。以上の結果から、酢酸水溶液の濃度を選定している。

第三に、今回の実験系を考えると、2 試液間の表面張力差はできるだけ大きいことが望ましい。気液自由界面上での表面張力勾配が大きいほど、界面上で発生するマランゴニ力も大きくなるためである。酢酸水溶液の表面張力を著者らがあらためて常温下で測定したところ、表 4-2 に示す通り、純水の表面張力  $72.5 \text{ mN/m}$  に対して、酢酸水溶液は 30wt% 水溶液で  $44.6 [\text{mN/m}]$  であった。これに対して、同 50wt% 水溶液では、 $40.4 [\text{mN/m}]$  と 30wt% 水溶液に比して  $4.2 [\text{mN/m}]$  差異が生じた。また、酢酸水溶液に後述するトレーサー粒子を 0.1wt% 添加した場合、その表面張力特性は表 4-2 から、酢酸濃度による表面張力差が比較的付きにくいことを表している。以上の検討から総合的に考えた結果、試験流体として用いる酢酸水溶液の濃度を 30wt%、あるいはトレーサー粒子による流れの可視化実験用オプションとして、40wt% を採用することとした。純水に青色食用色素をトレーサーとして 1.4wt% 混入させた液体は、表 1 にある通り、その密度、粘性係数、表面張力が純水のそれと大差がないことがわかる。

この混合流生成手法についての将来の実用的な使用分野として、我々は有機化学・反応分野への適用も検討している。そこでの使用例として有機化合物水



溶液であるカルボニル化合物と、無機化合物水溶液である塩酸をマイクロリアクター内で、混合および反応させて、マイクロミキサーのテストをしている例が挙げられる[5].

酢酸はカルボニル基を含んだ化合物であり、その水溶液の表面張力は純水より通常小さくなり、また無機化合物の水溶液の表面張力は一般に純水と同等もしくは若干大きくなることが知られている[12]. したがって、酢酸水溶液と純水という試験流体の組み合わせによる実験は、モデルケースではあるが将来の適用を検討する上でも有用であると考えられる.

以上選定した2試液には、どちらか一方の試液に、目的に応じて二種類のトレーサーを混入している.

混合評価実験においては、気液自由界面上に発生したマイクロ混合流による二液混合の状態を評価・確認することを目的に、青色食用色素 (Brilliant Blue FCF 8% + Dextrin 92%) を 1.4wt% 添加したものをを用いている.

流れ可視化実験においては、気液自由界面上に発生したマイクロ混合流とその周囲の流れへの影響を可視化するとともに、その PIV 解析を試みることを目的に、直径 0.60 $\mu\text{m}$  アクリル樹脂を 0.1wt% 添加したものをトレーサーとして用いている.

Table 4-1 Physical properties of the two fluids in the experiments[1,12]

Test fluids	Density (kg/m <sup>3</sup> )	Surface tension (N/m)	Viscosity (Pa·s)
	$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-3}$	$\times 10^{-3}$
Pure water blue dye 1.4wt% dissolved	0.997	69.0	0.96
Acetic acid 30wt% solution	1.035	44.6	1.54

Table 4-2 Values of surface tension, viscosity and contact angle in acetic acid solution[1,12]

Concentration (wt %)	Surface tension (N/m)	Contact angle (degree)	Viscosity (Pa·s)
	$\times 10^{-3}$		$\times 10^{-3}$
0	72.75 <sup>[10]</sup>	94.02	1.00
10	59.10		1.17
20	52.00		1.33
30	44.60	91.02	1.54
40	42.66	-	1.75
50	40.43	81.96	1.95
60	38.23	-	2.18
70	36.25	72.70	2.49
100	27.60 <sup>[10]</sup>	56.98	1.23

## 4-3 混合評価法

### 4-3-1 酢酸水溶液の拡散に対する混合評価法の検討

本研究では基本的に純水と酢酸 30wt% 水溶液の 2 液間の混合を扱っている。一方、その混合評価に対するトレーサーとして、どちらかの試液に青色食用色素 (Brilliant Blue FCF 8% + Dextrin 92%) を 1.4wt% 添加したものをを用いている。

純水と酢酸 30wt% 水溶液間の拡散係数  $D$  は、20°Cにおいて、

$$D=1.24 \times 10^{-9} [\text{m}^2/\text{s}] \quad \text{である.}$$

一方、青色食用色素本体 (Brilliant Blue FCF) の拡散現象は、純水を溶媒とした色素の拡散であると考えることができる。青色色素である Brilliant Blue FCF の実効濃度は  $1.4\% \times 0.08 = 0.112\%$  であるので、十分希薄濃度と考えることが出来る。希薄溶液中の拡散係数  $D$  はストークス・アインシュタインの式から導かれた以下の Wilke and Chang の実験式である式(4-1)から求められる[14].

$$D = 7.4 \times 10^{-15} \frac{(\psi_B M_B)^{1/2} T}{\mu \tilde{V}_A^{0.6}} \quad \dots(4-1)$$

このとき、

$\psi_B$  : 会合パラメーター (水の場合 2.6),  $M_B$  : 溶媒分子の分子量[g/mol]

$T$  : 温度[K],  $\mu$  : 粘性係数[Pa·s]

$\tilde{V}_A$  : 大気圧下の沸点における成分 A の分子容量[cm<sup>3</sup>/mol]

である。

20°Cのとき純水 (H<sub>2</sub>O) 中における Brilliant Blue FCF (C<sub>37</sub>H<sub>34</sub>N<sub>2</sub>Na<sub>2</sub>O<sub>9</sub>S<sub>3</sub>) の拡散係数は、式(4-2)の通りとなる。

$$\begin{aligned} D &= 7.4 \times 10^{-15} \frac{(2.6 \cdot 18)^{1/2} \cdot 293.15}{0.89 \times 10^{-3} \cdot 815^{0.6}} \quad \dots(4-2) \\ &= 2.99 \times 10^{-10} [\text{m}^2 / \text{s}] \end{aligned}$$

これは、酢酸の拡散係数である、 $1.24 \times 10^{-9} [\text{m}^2/\text{s}]$ に対して、0.238 倍の値である。したがって、拡散係数については同オーダーとして考えられるレベルであることが分かる。したがって、青色色素の拡散によって混合度合いを判定することは、この実験系である純水と酢酸 30wt% 水溶液の 2 液間の混合効果の概要や傾向を表すものとして、考察に用い得るものであると考えられる。

また、色素の拡散を用いて混合度合いを判定する手法は、Hesselらの論文にて、「最も簡便に混合効果を判定する手法」として紹介されており、一般に用いられている手法の一つであると認識される[13].

#### 4-3-2 評価手法概要

マランゴニ対流によるマイクロ混合流による混合評価には、純水に食用色素を添加した水溶液を用いた流動実験において、その実験画像の輝度を測定することにより行った。純水に青色食用色素をトレーサーとして 1.4wt% 混入させた液体は、Table 4-1 にある通り、その密度、粘性係数、表面張力が純水のそれと大差がないことがわかる。

実験画像の輝度測定手法として、画像解析ソフト” Image J” [2]を用いた画像内輝度値計算を行った[3].

実際の手順は、Fig. 4-6 にあるとおり、まず” Image J” を用いて、実験画像の RGB 分割を行う。赤、緑、青各成分の輝度値に基づいて二値化された三枚の画像が得られる。そのうち、赤色の輝度について二値化した画像を用いて輝度値の計算を行った。

測定範囲の輝度値の「最大値」と「最小値」の差分を「最大輝度差」とし、二液が接触していない部分での 2 液間の輝度差を基準として正規化を行い、混合進展の指標とした。

「最大輝度差」は本論文に掲載しているグラフ中では "Relative Concentration Difference", 或いは, "Maximum concentration difference" と表記しており、その定義式は、「最大輝度差」を  $l_{diff}$ , 輝度値の「最大値」を  $l_{max}$ , 「最小値」を  $l_{min}$  と定義すると、次の(4-3)式で表される。

$$l_{diff} = l_{max} - l_{min} \quad \dots(4-3)$$

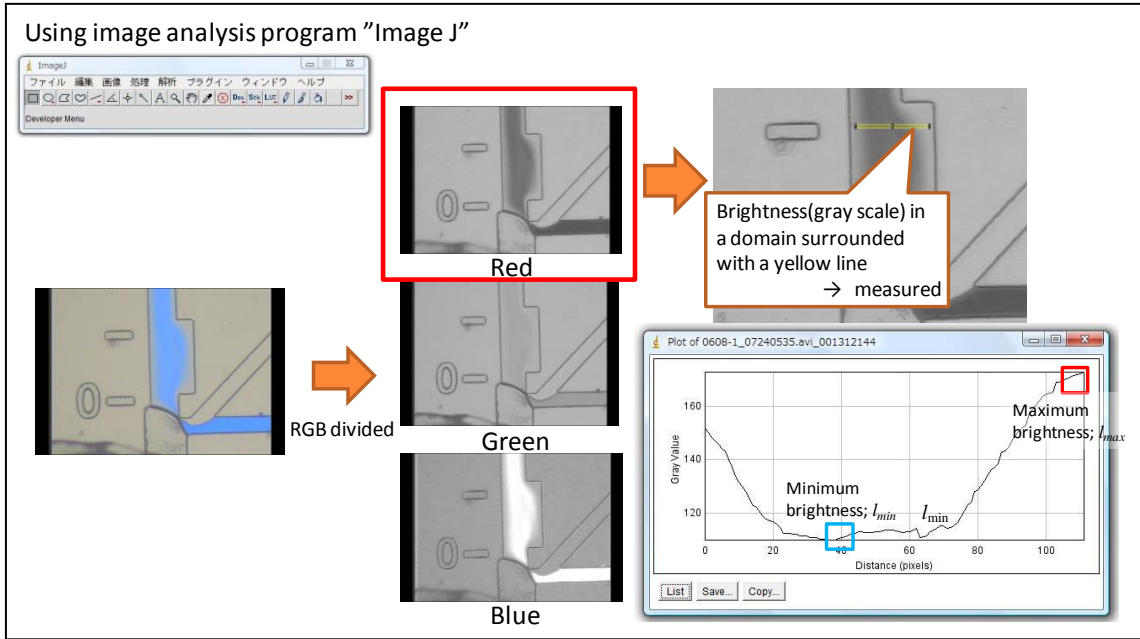


Fig. 4-6 The process of the luminance measurement evaluating the efficiency of the micromixing flow used by a image processing software "Image J"

#### 4-4 PIV（粒子画像化速度計測法）の概要と本研究における適用

Particle Image Velocimetry (PIV. 日本語では粒子画像流速計測法と呼ばれる.) は, 流れの中に識別可能な微粒子 (トレーサー) を混入させ, その動きを撮影することで個々の微粒子, 或いは微粒子群の移動距離と撮影時間, 或いは撮影・露光間隔から速度や速度ベクトルを推定する方法の総称である[6]. PIV の大きな特徴として, 流れに対して非接触で2次元2成分, または2次元3成分の流速を計測できる点が特徴となる.

Fig. 4-7 に示す通り, PIV には大きく分けて,

「流跡線速度計測法」

「粒子追跡法」

「画像相関法」

「レーザスペックル法」

「ホログラフィック PIV」の5種類がある.

このうち, 今日よく用いられるのは, 「粒子追跡法」と「画像相関法」の2種類である.

以下, 「粒子追跡法」と「画像相関法」の概要について述べ, 本研究における PIV 解析の活用法について言及する[6,7].

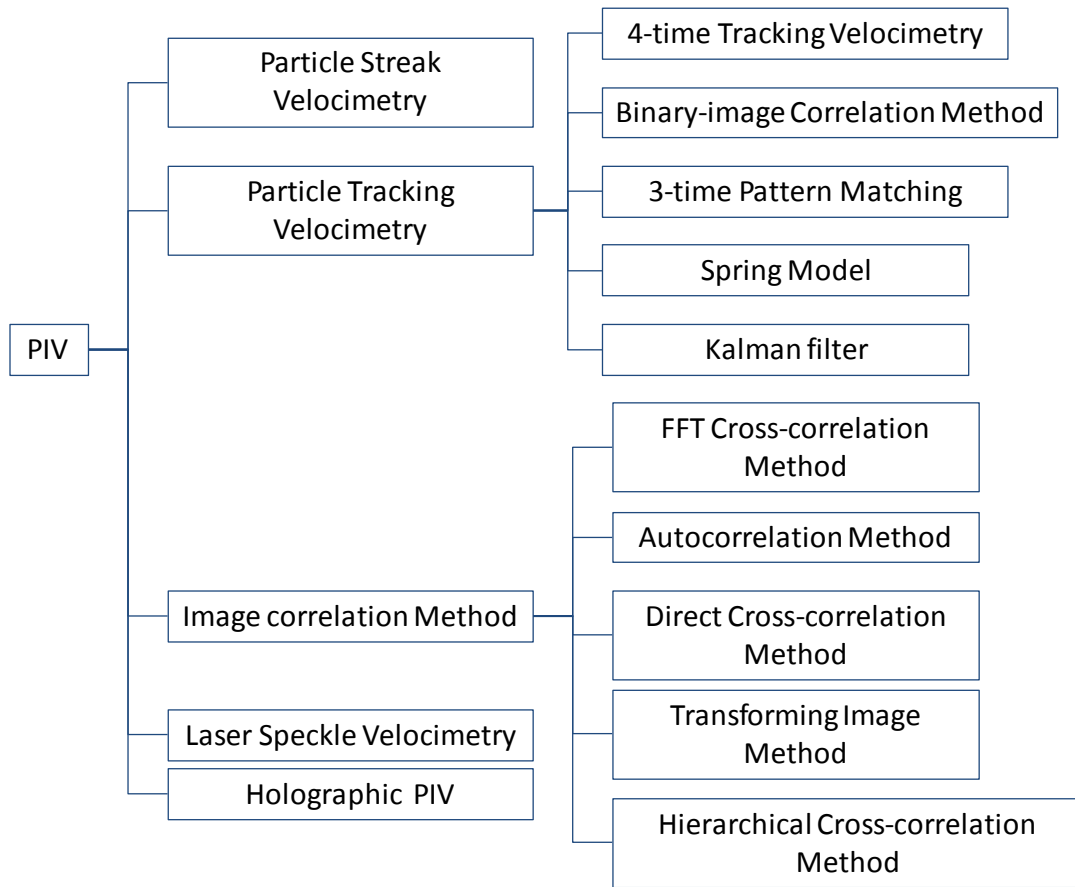


Fig. 4-7 Classification scheme for PIV analysis[6]

#### 4-4-1 粒子追跡法

粒子追跡法 (Particle Trace Velocimetry, PTV) は, ある時間間隔で画像中の各トレーサー粒子の移動を自動的に追跡し, 流れ場を計測する方法である. PTV の利点として, 画像相関法と比較して高い空間解像度の計測が出来る点が挙げられる. PTV では, 個々の粒子増の移動を求めるため, 同じ粒子密度の画像から, 画像相関法の数倍から 10 数倍の空間解像度が求められる.

一般的な PTV では,

- ① 撮影された粒子画像から粒子像のみを抽出する (粒子像抽出)
  - ② 個々のトレーサー粒子を自動追跡する (自動粒子追跡)
  - ③ 得られた粒子像の位置を画像座標から実空間に変換する (逆投影)
- 等の処理が必要となる.

①の粒子像抽出法では, 画像から高精度の粒子情報を抽出することが課題となる. PTV では, それが計測精度に大きく関わる. また, 粒子数が①画像中に数 1,000 個程度になると, 画像上での粒子数の重なりが生じる. この場合, 通常の日化法では処理できず, 1つの粒子として判断して, 計測上の誤差の原因となる. このため, 個々の粒子像からサブピクセルオーダーでの精度良い粒子情報の抽出, および粒子の重なりでの精度良い分離が求められる.

一般に, 粒子位置検出では, 粒子画像は二値化, ラベリング, 粒子像中心計算の順に実施される. 二値化は暗い背景から明るい粒子像を抽出する為の処理であり, 背景の輝度値が 0 (黒色) の場合, 一つの粒子像は輝度値 1 (白色) の画像の集まりとして表される. この輝度値 1 をもつ画素の一つの集まりは基本的に 1 個の粒子像に対応する. 粒子画像中にはこのような画素の集まりが多数存在するため, 個々の粒子像を区別するためそれぞれの画素の集まりに番号付けを行い, これをラベリング (labeling) という. そして, その番号ごとに画素の集まりの中心を求め, その座標をその粒子像位置として PIV 解析で利用する. 通常, 画素の集まりの中心は重心を求めることによって与えられるが, 重心計算の際, すべての画素に対する重みを 1 とする場合と, もとの粒子画像の輝度値を重みとする場合がある.



一方、一つの理想的な粒子像をテンプレートとしてあらかじめ準備し、粒子画像の中からテンプレートに類似した領域を粒子像として抽出する方法もある。その手法の中から、ガウス分布のテンプレートを用いる粒子マスク相関法 (particle mask correlation method) [7] について述べる。

各トレーサー粒子はほぼ点状に見えるため、旧来より点広がり関数として用いられてきたガウス分布で個々の粒子像の輝度値パターンが表現できると考えられる。粒子マスク相関法は、予め用意したガウス分布と粒子画像の局所領域との相互相関を取り、ある相互相関係数閾値以上のピーク位置を粒子位置として求める方法で、非常に粒子数密度が高い場合でも比較的良好な粒子像位置検出が行える。また、トレーサー粒子以外の大きな相互相関係数値が現れないため、その除去にも利用できる。パラメーターの一つである閾値は、後述する 4-4-2 画像相関法においても用いられる、(4-2)式に示す相互相関係数  $R_{fg}$

$$R_{fg}(\Delta X, \Delta Y) = \frac{\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \{f(X_i, Y_i) - f_m\} \{g(X_i + \Delta X, Y_j + \Delta Y) - g_m\}}{\sqrt{\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \{f(X_i, Y_i) - f_m\}^2 \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \{g(X_i + \Delta X, Y_j + \Delta Y) - g_m\}^2}} \quad \dots(4-2)$$

(ただし、 $f_m, g_m$  は、Fig. 4-8 中のそれぞれ第 1, 2 画像における  $N \times N$  の検査領域内の輝度値パターン  $f, g$  の平均値を表す。)

において、最大値 1 に対して 0.7 が一つの目安となる。また、基準粒子像として用いるガウス分布の標準偏差は、粒子像の大きさにも依存するが、大体 2~3pixel 程度、検査領域の大きさはその 3~4 倍程度に設定する。

②の自動粒子追跡法に関しては、自動的に追跡する粒子数が十数個程度であれば、二時刻間の粒子位置の最も近い同士 (nearest neighbor) を対応付ける「最近法」などの比較的簡単なアルゴリズムで計測できるとされている。しかし、これでは、実際の流速測定に十分な空間解像度が得られない。1000 個以上のトレーサー粒子を自動的に追跡する場合、「最近法」では同一粒子でないものを同一粒子と誤って判断し (誤判断)、計測誤差が多く生じる。この誤差は、トレーサー粒子の画像中での数密度が増加すれば顕著となる。この誤対応確率をなるべく低く抑えるため、追跡性能を向上させる手段として、時間情報を利用する手法と、空間情報を利用する手法に大別できる。前者は粒子像の軌跡が滑らかであることを仮定する方法で、後者は粒子像の分布パターンが移動の前後で同一であることを仮定する方法である。

③の逆投影法は、2次元計測と3次元計測の場合で大きく異なる。一般的に用いられているレーザー光シート照明による2次元計測の場合、基準点を精度良く配置した校正板をレーザーシート光断面と同じ位置にセットして、その画像を撮影することで画像座標から実座標変換係数を比較的簡単に求めることができる。

#### 4-4-2 画像相関法

画像相関法は、可視化画像の局所的輝度値パターンの移動量を求めることにより速度ベクトルを測定する手法であり、異なる二時刻間の画像で輝度値パターンの類似度の高い部分に対応付けるものである。この解析手法の持つ最大の特徴は、流れの可視化法や解析パラメーターの設定などの自由度が比較的高く、可視化対象に対する応用範囲が広い点である。例えば、この手法では個々のトレーサー粒子像ではなく輝度値パターンの移動を求めるため測定点が任意に設定でき、渦度・せん断応力等を求める測定結果の後処理に便利のように正方形格子状の測定点を設定することが画像解析・計測の段階で可能である。画像相関法では2枚の瞬間照明された可視化画像が用いられるが、これらの画像が取り込まれる時間間隔の間に輝度値パターンが大きく変化しないことが解析の前提になる。ここでは、画像相関法の一方法である、①「直接相互相関法」と②「再帰的相関法」について、その概要を述べる。

##### ① 直接相互相関法

###### ・測定原理

直接相互相関法 (direct cross-correlation method) は局所的な輝度値パターンの類似度を相互相関で評価するもので、相互相関値の算出に直接的な相互相関関数 (cross-correlation function) の定義式を用いる。

測定原理として、微小時間だけ異なる二時刻の可視化画像がデジタル画像としてある場合、先の時刻に取得した第一画像中の輝度値パターンが、次の時刻に取得した第二画像中のどの位置に移動したかを、相互相関関数を用いて検出する。一般的な信号処理として、二つの時系列信号の位相関係が相互相関関数を用いて調べられるが、これを二次元画像輝度値パターンの信号に対して適用されたものと解釈される。

いま、二種類の二次元信号  $f(X, Y)$ ,  $g(X, Y)$  を用いて相互相関関数の計算方法を示す。原関数  $f(X, Y)$  と  $g(X + \Delta X, Y + \Delta Y)$  との相互相関関数  $C_{fg}(\Delta X, \Delta Y)$  は次のように定義される。

$$C_{fg}(\Delta X, \Delta Y) = \overline{f(X, Y)g(X + \Delta X, Y + \Delta Y)} = \lim_{L_0 \rightarrow \infty} \frac{1}{L_0^2} \int_{-\frac{L_0}{2}}^{\frac{L_0}{2}} \int_{-\frac{L_0}{2}}^{\frac{L_0}{2}} f(X, Y)g(X + \Delta X, Y + \Delta Y) dx dy$$

但し、 $L_0$ : 領域サイズ

…(4-3)

実際に取り扱う原関数  $f, g$  は連続的には与えられないので、次の離散表現の定義式で相互相関関数を計算する。但し、検査領域サイズを  $N \times N$  [pixel] とする。

$$C_{fg}(\Delta X, \Delta Y) = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N f(X_i, Y_j) g(X_i + \Delta X, Y_j + \Delta Y) \quad \cdots(4-4)$$

また、相互相関をとるとき、値域が  $[-1, 1]$  の範囲をとる次の相互相関係数で評価することも多い

$$R_{fg}(\Delta X, \Delta Y) = \frac{\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \{f(X_i, Y_j) - f_m\} \{g(X_i + \Delta X, Y_j + \Delta Y) - g_m\}}{\sqrt{\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \{f(X_i, Y_j) - f_m\}^2 \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \{g(X_i + \Delta X, Y_j + \Delta Y) - g_m\}^2}} \quad \cdots(4-5)$$

ただし、 $f_m, g_m$  は、それぞれ第 1, 2 画像における  $N \times N$  の検査領域内の輝度値パターン  $f, g$  の平均値を表す。また、上式にて、 $f_m = g_m = 0$  とする相互相関係数の定義式を用いることもある。

Fig. 4-8 に直接相互相関法による輝度値パターン移動量検出の概略を示す。最初に第一画像における任意の位置  $A$  を中心とする  $N \times N$  の検査領域 (inspection domain) を設定する。次に、第二画像の中に同じ位置  $A$  を中心とする  $N_s \times N_s$  の領域を探索領域 (Detection target domain) として設ける。探索領域内に中心を持つ多くの候補領域 (candidate domain) の中で第一画像に設定した検査領域の輝度値パターンと最も類似した領域を、(4-4)式または(4-5)式で示した相互相関の最も高い値を持つ領域として求める。

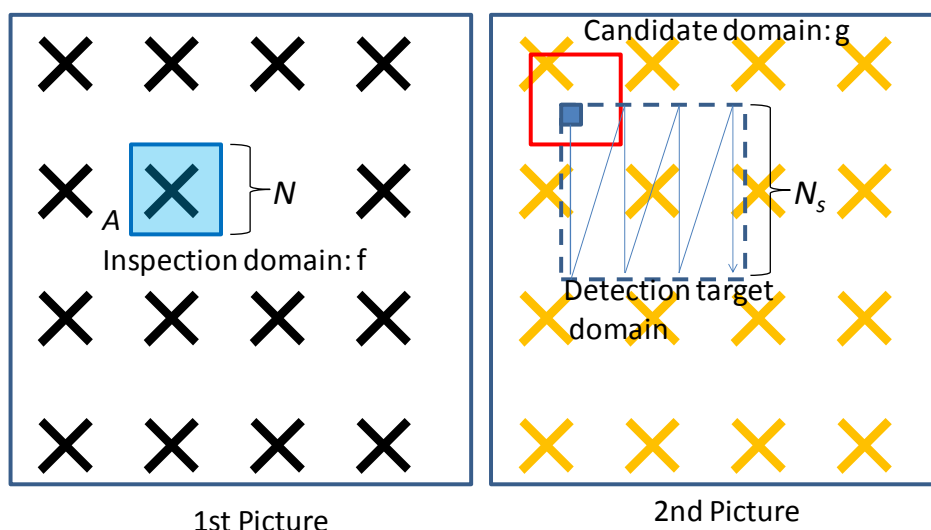


Fig.4-8 estimation process of "direct cross-correlation method"[5]

直接相互相関法には、処理対象とする画像が輝度階調 256 程度の濃淡画像を用いる方法と、0 か 1 で表される二値画像を用いる方法とがある。前者は可視化画像の種類を選ばず、濃淡のある煙の画像であってもよく、測定点の位置も自由に設定できる。これは中間輝度を表せる濃淡画像を対象とする相関法であるため、直接濃度相関法とも呼ばれる。後者は、二値化の閾値の大きさに左右されるような粒子画像に適している。背景に対してトレーサー粒子像が高いコントラストを持つ場合が望ましいが、相互相関関数の実数演算を論理演算で置換しているため、前者に比べて計算量が著しく、極めて高速である。また、これは通常、測定点がトレーサー粒子像位置に設定されるため粒子追跡法 (PTV) に分類されることもある。

#### ・パラメーターの設定

直接相互相関法では，検査領域サイズ  $N$  と探査領域サイズ  $N_s$  が主要パラメーターとなる．検査領域サイズ  $N$  は，基本的に自由に設定可能である．但し，実際はどの画素位置が検査領域の中心であることを明確にするために  $N$  を奇数とすることが多く，また，回転やせん断による輝度値パターンの変形の影響を極力低減させるために，基本的に  $N$  は小さくとることが望まれる．パラメーター  $N$  の決定は，粒子像数密度とも密接な関係がある．仮に輝度値パターンの変形を抑えるために小さな  $N$  を採用した場合，極端な場合トレーサー粒子像が検査領域内に全く存在しない場合や 1 個しか記録されていない場合が考えられ，このときには相互相関による輝度値パターンの移動量計測が正しく行われず，一般には， $N \times N$  [pixel] の検査領域中に 5 個以上のトレーサー粒子が記録されるように  $N$  の大きさが決められる．逆に  $N$  の大きさが先に決められる場合，トレーサー密度を適切に調整する必要がある．

探査領域サイズ  $N_s$  であるが，これは輝度値パターンの画像上最大移動量との関連で決定する必要がある．予想される最大移動量を  $X_{\max}$  と表すと

$$|X_{\max}| < \frac{N_s}{2} \quad \dots(4-6)$$

(4-6)式を満足させる必要がある． $N_s$  は任意の値を取り得る．そのため，誤ベクトル発生を避けられるよう対象流れ場によっては縦横比の違う探査領域を設定することもできる．しかし，通常は検査領域と中心を一致させた一辺が奇数画素の正方領域を設定する．

通常，測定点は正方格子状に設定され，その格子間隔は検査領域サイズ  $N$  の 1/2，即ち隣同士の測定点における検査領域が互いに 50%オーバーラップするように設定されることが多い．

#### ・サブピクセル解析

サブピクセル解析は，画像輝度値パターンの画像上平均移動量を高精度に測定する手法である[9]．デジタル画像上で輝度値パターンを追いかける場合，標本化の影響で画素単位の移動量しか得られないことになる．サブピクセル精度は更にもう 1 桁小さな値まで移動量を検出しようとするもので，相関法の場合，次のように適用できる．

例として，簡単のため輝度値パターンを 1 次元で表し，Fig. 4-9 のような相互相関関数を考える．相関ピーク値の両側の相関値は高さが異なるので，本当の相関ピーク値は 2 番目に高い輝度をもつ画素側に寄っているように見える．

この相関ピーク位置を求めるために、ピーク値を中心とする三つの相関値にガウス分布や二次曲線を当てはめてその極大値位置を求めるか、重心を計算する。相関ピーク値で得られる整数画素単位の移動量を  $i$  とすると、ガウス分布、二次曲線、重心によるサブピクセル移動量  $P_{sub}$  は、相関値  $R$  を用いてをういてそれぞれ次のように与えられる。

$$\text{ガウス分布} \quad P_{sub} = i - \frac{1}{2} \frac{\ln R_{i+1} - \ln R_{i-1}}{\ln R_{i+1} - 2 \ln R_i + \ln R_{i-1}} \quad \dots(4-7)$$

$$\text{二次曲線} \quad P_{sub} = i - \frac{1}{2} \frac{R_{i+1} - R_{i-1}}{R_{i+1} - 2R_i + R_{i-1}} \quad \dots(4-8)$$

$$\text{重心} \quad P_{sub} = \frac{(i+1)R_{i+1} + iR_i + (i-1)R_{i-1}}{R_{i+1} + R_i + R_{i-1}} \quad \dots(4-9)$$

上記の式に従い、 $X$  方向移動量、 $Y$  方向移動量それぞれ別々にサブピクセル移動量  $P_{sub}$  を求め、これにより 0.1pixel の精度で輝度値パターンの移動量を測定することが出来る。

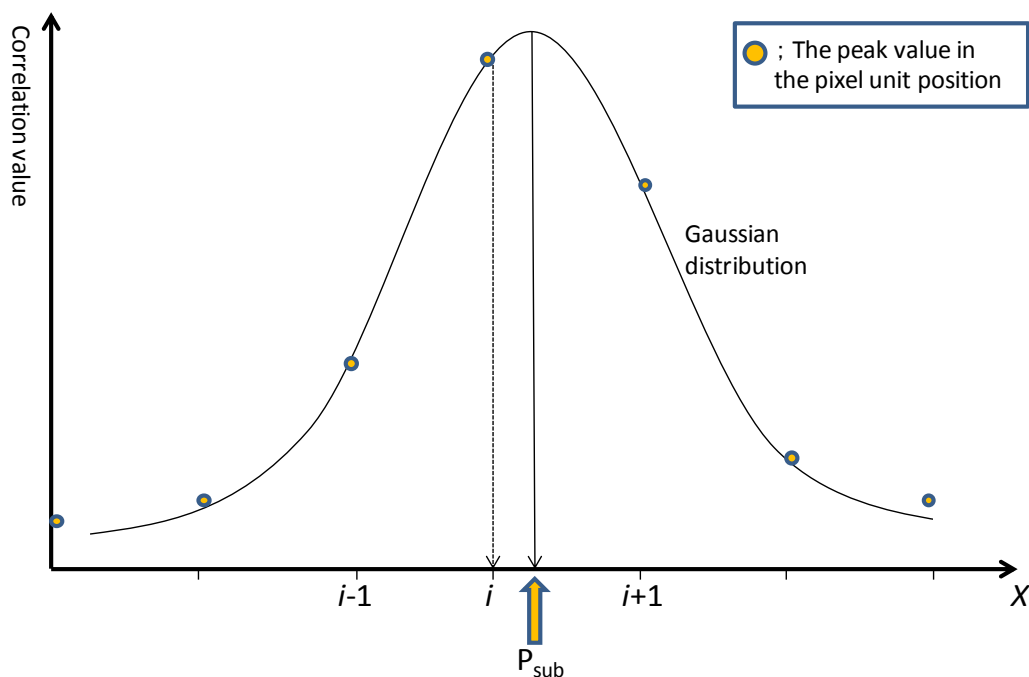


Fig. 4-9 estimation process of "sub-pixel precision" for Gaussian distribution [6]

サブピクセル解析を用いる際には、ピークロック（peak locking）に対する注意が必要である。ピークロックは、整数値に測定値が偏ってしまい、サブピクセル移動量が正確に測定されない現象を指す。これを避けるためには個々のトレーサー粒子像を $2 \times 2 \sim 3 \times 3$  [pixel] 以上の大きさに撮影することが必要である。

## ② 再帰的相関法

### ・従来の手法の問題点

一般に、PIVで得られる流速分布に望まれるものは、高空間解像度で分布が得られること、得られるベクトルの精度が高いこと、微小な変位も計測できることなどである。PIVにおける誤差には、誤った対応付けを選択すること起因する誤ベクトルと、ピクセル以下の変位量の算出に起因するサブピクセル誤差の2つがある。これらの誤差はほぼ独立であり、別々に考慮する必要がある。相関法においては、小さな検査領域を用いるほど似たパターンが存在するパターンが存在する確率が高くなり、誤ベクトルが増大する。なお、画像中の情報が減るのでサブピクセル誤差も増大する。検査領域が小さいほど、空間解像度が良くなるので、できるだけ小さい検査領域を用いた方が望ましいが、誤ベクトルが増大するため、あまり小さな検査領域は用いることが出来なかった。従来の手法（直接相互相関法）では、検査領域は $32 \times 32$  [pixel]程度であった。

### ・再帰的相関法

検査領域サイズが大きければ、誤ベクトルの発生は抑えられるが、空間解像度は悪くなる。一方、検査領域を小さくすれば、解像度は良くなるが誤ベクトルが増大する。この両者のメリットのみを用いる試みとして、再帰的相関法がある。小さな検査領域での誤ベクトルの発生は、似たパターンが多数発生することに起因する。そこで、検査領域を正しい移動先の近傍に限定出来れば、似たパターンの発生確率を小さくすることが出来る。

以下に、その具体的な解析手法を直接相互相関法について示す。

(1) 大きな検査領域（ $64 \times 64$  [pixel] など）を用いて解析し、輝度値パターンの移動量ベクトルを求める。このとき、計算時間を速くするため、画像をダウンサンプリングすることも行われる。ダウンサンプリングの例としては、 $2 \times 2$  [pixel] の平均輝度を用いることで、 $1024 \times 1024$  [pixel] を  $512 \times 512$  [pixel] に変換する方法などがある。検査領域が十分大きいので、誤ベクトルは多くは発生しないと考えられる。



(2) 誤ベクトルの除去を行う。このとき、誤ベクトルが残らないように注意する必要がある。さらに、除去された誤ベクトル位置におけるベクトルを補間して求め、ベクトル候補とする。

(3) 検査領域サイズを一回り小さくする（例えば  $32 \times 32$  [pixel] など）とともに、探査領域をステップ(2)で求められたベクトル候補の周囲に限定する。探査領域を限定することで、小さな検査領域でも誤ベクトルの発生を抑えることが出来る。

(4) ステップ(2)と(3)を繰り返す。このことで、検査領域サイズはどんどん小さくなるが、誤ベクトルの発生も抑えられる。

検査領域の縮小を再帰的に行うことから、再帰的相関法、階層的相関法 (hierarchical cross-correlation method) などと呼ばれる。

再帰的相関法には、以下の利点がある。

- (1) 空間解像度が増大する。検査領域が小さくなるので、得られるベクトルは小さな検査領域の平均ベクトルとなり、細かな情報を検出できるようになる。
- (2) 誤ベクトルが減少する。正解ベクトル候補近傍のみに探査領域を限定することによって、誤って似たパターンを抽出する可能性が低くなる。
- (3) 探査領域を狭くすることができるため、（直接相互相関法などの従来の手法に比べ）計算時間の増加はあまり大きくない。条件によっては速くなることもある。

一方、再帰的相関法を用いる際は、以下の点について検討する必要がある。

- (1) 高解像度のベクトルが粒子情報に基づいていることを確認する必要がある。正解ベクトル候補を補間によって求めているため、場合によっては粒子がない部分にもベクトルが出てくることもあり得る。これは補間されたベクトル情報であり、PIVの計測結果ではない。
- (2) 検査領域が小さくなり、相関値に寄与するデータが減ってくるので、サブピクセル誤差が増大してくる。誤差の中で誤ベクトルは減少するが、サブピクセル誤差が増大することに留意する必要がある。

再帰的相関法は、PIV画像の持っている情報をできるだけ多く抽出したいという要求から生まれてきたアイデアであり、ベクトル候補の情報を利用して、検査領域をオフセットすることに重要な意味がある。十分高密度な粒子画像を取得できれば、空間解像度を飛躍的に増大させることが出来る手法であり、今

後の主流となると考えられる．なお，粒子密度以上のベクトルが求められたとしても，それはベクトルを空間補間していることに注意する．

### ③ 回転，変形を考慮した画像相関法

画像相関を用いる手法は，輝度値パターンの画像相関や差の絶対値を用いて比較を行っている．このとき，検査領域と，その相手側（候補領域）として小領域を取り出している．画像相関法では，輝度値パターンの比較は単純に並行移動を仮定して求められている．しかしながら，微小時間の間にも流体は変形したり回転したりしている．このような流体の変形や回転を考慮する為には，従来は粒子追跡法（PTV）に頼らざるを得なかった．粒子追跡法では，並行移動のみではなく回転や変形にも考慮しているが，輝度値パターンの並行移動を本質的に仮定している画像相関法では，大きな変形がある場合には誤差が大きくなってしまう．そこで，回転（rotation）や変形（trans-formation）が考慮される画像相関法が開発された[10]．

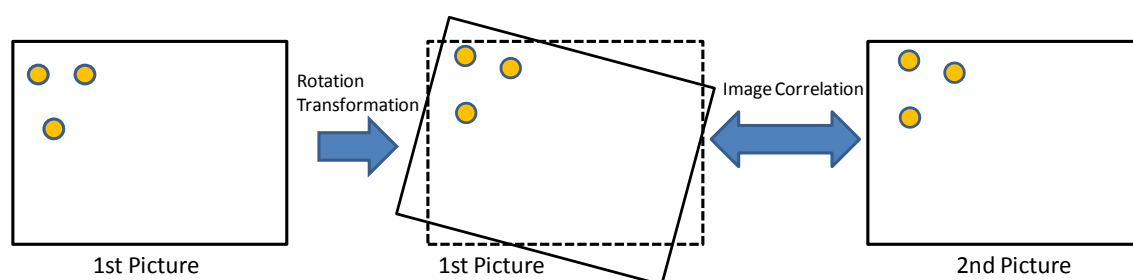


Fig. 4-10 correlation method considering for rotation or transformation of the fluid

再帰的相関法を用いることで，空間的に解像度の高いベクトルを得ることが出来る．この得られたベクトルは，検査領域の並行移動を仮定して求められている．ある検査領域に着目すると，この検査領域の周囲で得られているベクトルを参照することで，検査領域の回転や変形行列を算出することが出来る．1時刻目の検査領域をこの回転変形行列によって変形させたものを計算する．その概略を，Fig. 4-10に模式的に示す．Fig. 4-10の点線領域に示す，この変形後の検査領域と2時刻目の対応領域とを用いて，画像解析を行い詳細な移動先を決定する．なお，この移動先はサブピクセルの決定に用いられる．

なお，変形後の画像と2時刻目の画像の相関を計算する場合には，画素ごとの計算を実施する必要がある．一般に変形後の画素位置は，ずれているため，画像補間によって各画素位置における変形後の輝度値を算出する必要がある．画像を変形させているため，より精度の高い解析が行えるとされている．この

方法では、回転や変形が激しい流れ場に対しても、0.1 [pixel] 以下の高精度で解析が可能とされている。

#### 4-4-3 本研究で用いた流体・粒子画像システム構成

近年、一般的に用いられる PIV 計測のシステム構成は、時間分解能を高める目的から、可視化光源として連続発振レーザー光による光シートを用い、これと高速度カメラとの組み合わせが主流となっている。しかし、本研究では、可視化光源にレーザー光線を用いず、高輝度の可視光を用いている。

その理由を以下に述べる。

まず、本研究に用いる PIV 計測のシステム構成は、それ専用のテストセクションを新たに構築することなく、第4章「実験装置全体の構成と各装置の役割」に示す実験装置内にて、生体顕微鏡 (Nikon TS 100) を中核とする「観察・測定部」の構成を極力変更しない、あるいは実験観察系と PIV 計測系を並存させる形で構成されることを目的としており、実験を実行しながら、その状況を PIV 解析に耐える映像により記録されることを目指した。可視化光源にレーザーシート光を用いる場合、その干渉光により、トレーサー粒子が発光しているよう (輝度値 1) に見せる効果を持つ。しかし、この場合流れの主体である流体自体は、干渉物がないため映像に映らない (輝度値 0)。このため、可視光での観察画像のように流路形状の詳細等と重ね合わせながら流れの変化を把握することが困難となる。

技術的な問題として、レーザーシート光は通常、最薄 0.4mm 程度までしか集光されないとされている。プリズムを用いる等の処理でシート光の薄さ 0.1mm 程度にまでは集光することは可能であるとされているが、この場合、これらの処理により輝度のロスが大きくなり、流れの可視化自体に支障を来す恐れがある。

また本研究のように、流路内の代表長さ (流路断面長さ) が 0.1mm 程度では、レーザーシート光を用いた場合、流路幅全体が照射されるので、その解析画像には、流路内壁面付近の極めて遅い流れや、流路断面中心付近の流れの最速値が混在する結果となる。そのため、ある流体断面における流れ場の速度分布を把握することがきわめて困難となることが予想される。

一方、高輝度の可視連続光を用いることが出来る場合、その干渉光により、トレーサー粒子は影のように (輝度値 0) に移ることになる。しかし、この場合流れの主体である流体自体は、通常の観察画像のように映像に反映される。このため、可視光での観察画像のように流路形状の詳細等と重ね合わせながら流れの変化を把握することが容易となり、またトレーサー粒子と周囲と

の輝度差から、PIV 解析にも耐えうる画像が得られると考えられる。

また、高輝度の可視連続光の照射方向は、顕微鏡レンズの入射方向に正対しているため、PIV 観察断面の厚さ (thickness) は、通常顕微鏡観察による被写界深度 (焦点深度) (Depth of Field; DOF) から決定されることが考えられる。

被写界深度 (焦点深度) を計算する理論式はいくつか提案されているが、その中に、(4-10)式に示す Martin の式 (Martin's equation) がある。

$$DOF = n \left( \frac{\lambda}{NA^2} + \frac{1}{7mNA} \right) \quad \dots(4-10)$$

但し、

$\lambda$  ; 可視光の波長

$NA$  ; 顕微鏡レンズの開口数

$m$  ; 顕微鏡レンズの倍率

$n$  ; 媒質の屈折率

式 (4-10) は、「物理学的焦点深度」と「幾何光学的焦点深度」の和として表現されている。「幾何光学的焦点深度」は、肉眼での観察のときに、人体の眼の焦点の限界により問題となる要素であり、CCD カメラによる PIV 解析画像の撮影に関しては、「物理学的焦点深度」のみがパラメータとして重要になると考えられる。この点を考慮して式 (4-10) を書き直すと、式 (4-11) のようになる。

$$DOF = \frac{n \cdot \lambda}{NA^2} \quad \dots(4-11)$$

式 (4-11) から、比較的  $NA$  値 (開口数) の大きなレンズを本研究に用いる (第 4 章 4-1 Fig. 4-4(b)~(d) 参照) ことにより、その被写界深度 (焦点深度) を数  $\mu\text{m}$  ~ 十数  $\mu\text{m}$  程度にすることが可能となり、極めて薄い流体断面の解析画像を得ることができると考えられる。

以上の理由により、本研究ではその可視化光源として高輝度の可視光を用いている。

可視化光源は、Fig. 4-12(a) に示す通り、高輝度 LED 可視化光源 LA-HDF158AS (東京硝子製) を用いている。これは、出力 150W の LED 光源であり、その

色温度は 600,000[Lux]に達する. この可視化光源を用いることにより, ハイスピードカメラのシャッタースピードを 1/21,000[1/s]の条件で撮影することが可能となった. この光源を, 長さ 1.0m のエクステンションにより, 試験流路直上まで導いて実験流路上に照射している (Fig. 4-12(b),(c)参照).

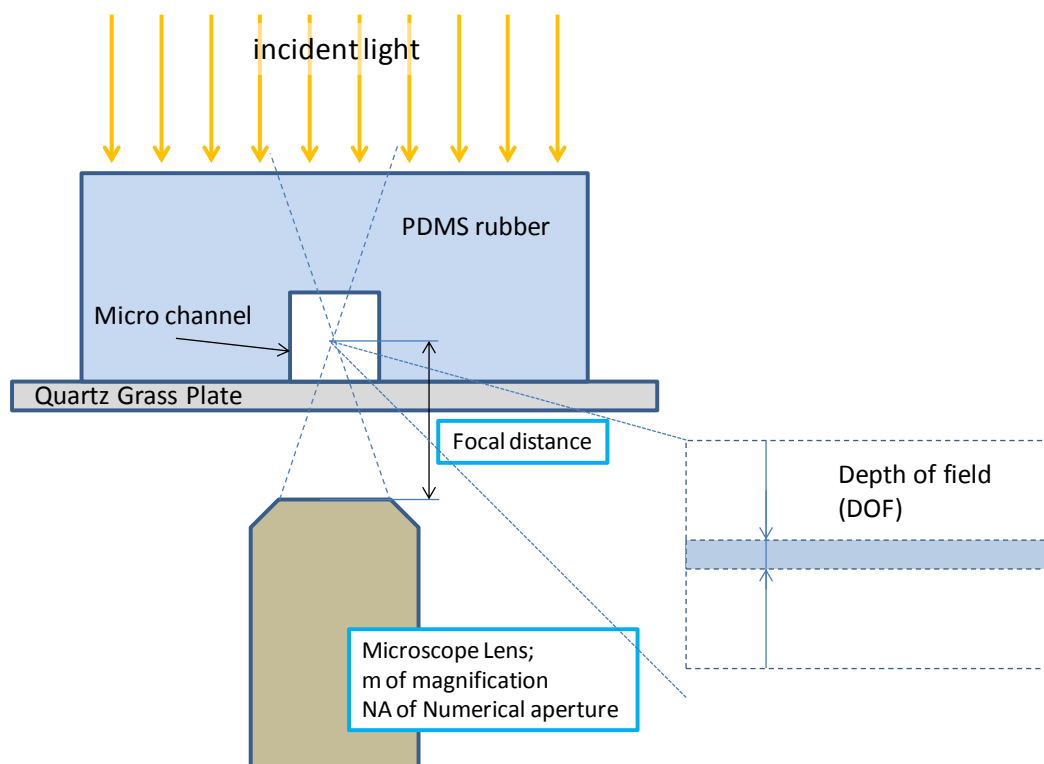
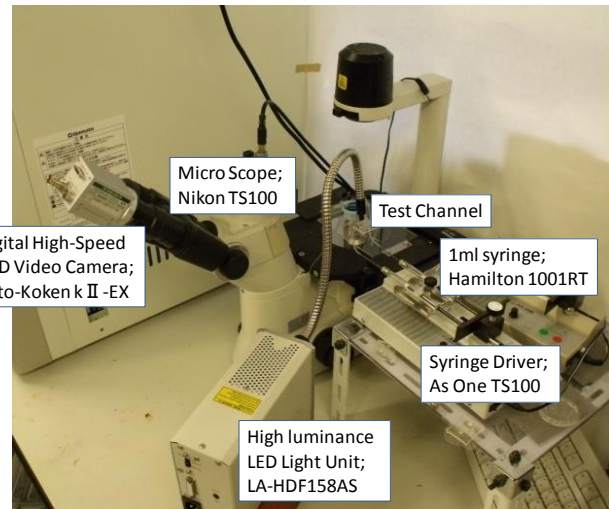


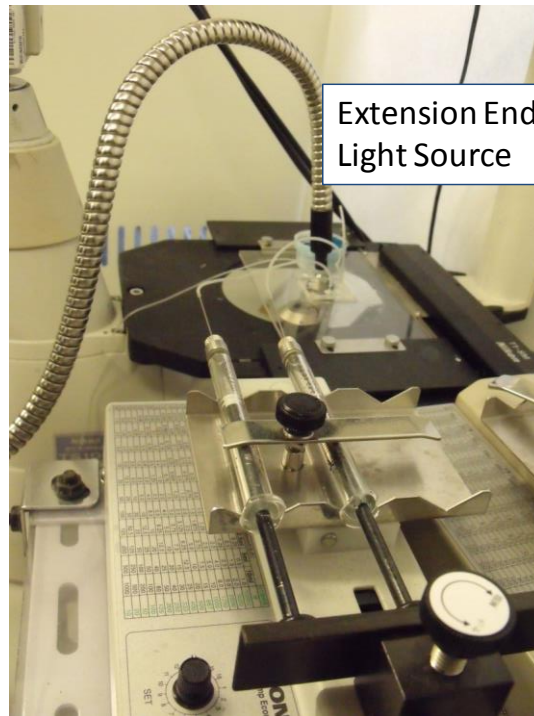
Fig. 4-11 relationship between the optical system of visible light and depth of field in the experiment apparatus



(a)



(b)



(c)

Fig. 4-12 photos of the experiment apparatus for PIV measurement, (a) LED lighting system LA-HDF158AS (Tokyo Grass, Co.LTD) (b) general construction using LED lighting system, (c) detail of the experiment system using extension end of the LED lightning system

本研究では，取得画像から PIV 解析によりベクトル量を算出し，その流れ速度を解析する為に，Flow Expert 2D2C（カトウ光研）という PIV 解析ソフトウェアを用いた[11].

Flow Expert 2D2C は、上述した直接相互相関法、再帰的相関法、画像変形法による PIV 解析が可能であり、粒子追跡法 (PTV) による解析 (2 値化相関法、粒子マスク相関法) にも対応する。また、誤ベクトルの除去、補間やサブピクセル解析に対しても対応している。以上から、本研究で扱う流体内の変形量が大きいことが予想される流れ分布の解析に対応し得ると考えられるため、これを採用した。本研究における PIV 解析では、これら、直接相互相関法、再帰的相関法、画像変形法そして粒子追跡法を、適宜使い分けている。

本研究で用いる PIV システムの測定精度についてであるが、本研究で用いた PIV ソフトウェアは、直接相互相関法については、相互相関関数に加えてサブピクセル補間まで行っているため、0.1 ピクセルまでの分解能を持っていることになる。これは、1 フレーム当たりのトレーサー1 個当たりの移動距離の適正值といわれる 5~7[pixel]に対して約 2%の分解能を持っていることになる。したがって、この条件下では、測定精度 2%以下ということになる。

本実験系に対しての測定精度を確認するため、実験流路内における純水とトレーサー粒子 (0.1wt% 添加) の組み合わせによる流動観察を行った。これは流路幅 0.2mm、流路深さ (流路平面形に対する) 0.1mm の直線流路を用いて行った。実験流路は第 3 章 3-3 で述べた方法にて作製、構成された流路を用いた。流入条件は、体積流量 3.0[ $\mu\text{l}/\text{min}$ ]( $5.0 \times 10^{-11}[\text{m}^3/\text{s}]$ )、顕微鏡レンズ倍率 20 $\times$ (NA: 0.75)、撮影条件は 1000[fps]とし、このときの 1[pixel]当たりの相当距離は約 0.5[ $\mu\text{m}$ ]であった。PIV 解析は、再帰的相関法 (hierarchical cross-correlation method) を用い、サブピクセル解析以外の補間方法は一切行わなかった。

測定された流速の時間平均値 (1.0[s]間) を取り、同じ寸法で構築された CFD モデルによる同条件での三次元定常 CFD 計算結果と比較することにより評価を行った (Fig. 4-13,14 参照)。

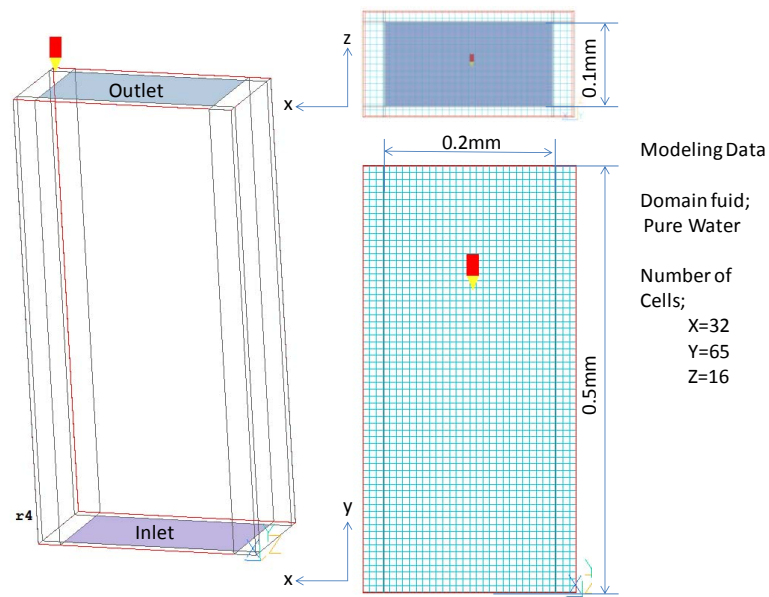


Fig. 4-13 the dimentions of the CFD model compared with the result of PIV analysis, volume flow rate from inlet ;  $5.0 \times 10^{-11} [\text{m}^3/\text{s}]$

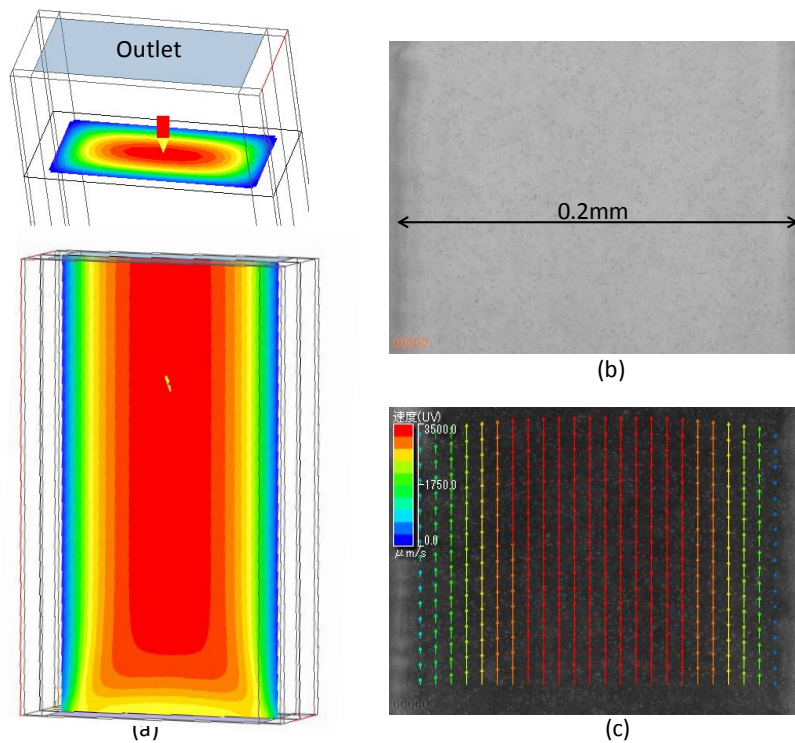


Fig. 4-14 (a) contour views of the CFD result, above; Z-X plane, below; X-Y plane (Z=0.05mm), (b) a image for PIV measurements, (c) the result of PIV analysis for hierarchical cross-correlation method



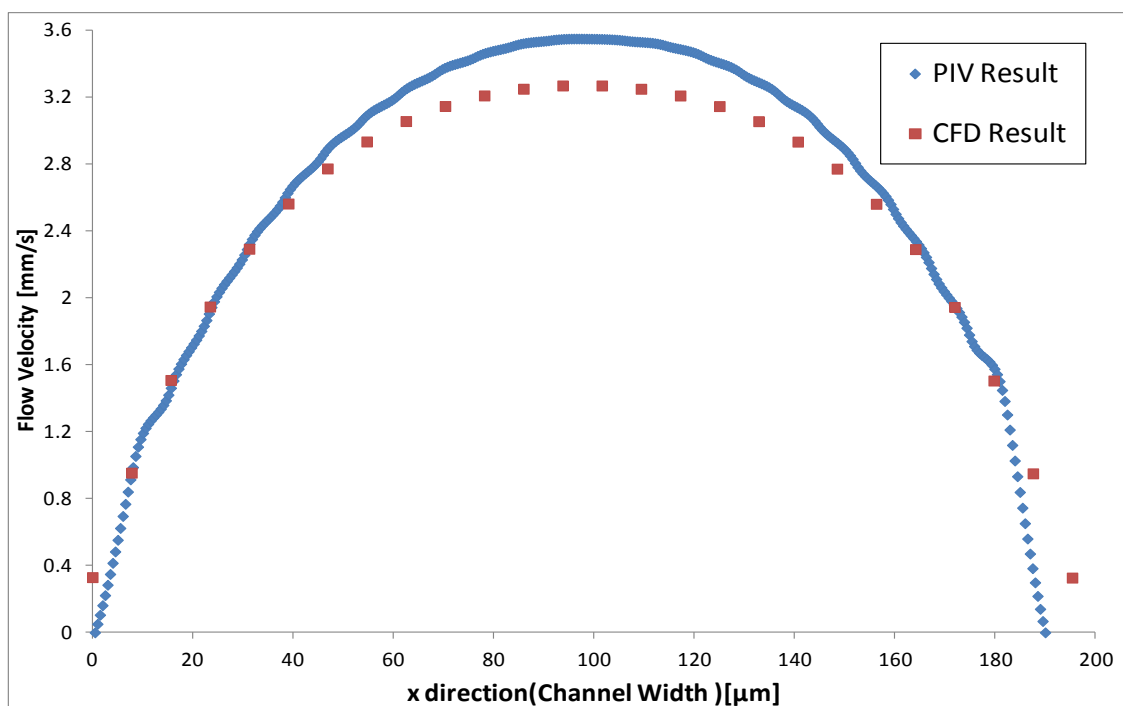


Fig. 4-15 the result of PIV analysis compared with CFD result of X-Y plane (Z=0.05mm)

流れ速度を比較した結果を Fig. 4-15 に示す。流れ分布については概ね両者は一致しているが、最大速度に関しては三次元 CFD 計算値と約 8.7% の誤差(実験値のほうが大きい)が記録された。これだけの誤差が生じた理由として、トレーサー粒子の 1 フレーム当たりの移動量も関係していると考えられる。最大流速付近においては、1 フレーム当たりのトレーサー移動量は大体 7~8[pixel]程度と考えられ、これは、PIV 解析におけるトレーサー移動量の推奨値の限界に近い。したがって、この付近での流れの測定に比較的大きな誤差が生じることとなったと考えられる。

ではあるが、その条件下においても、その誤差は 10% 未満であり、流れ分布についての測定結果の正確さから考え併せると、PIV による流速測定自体は、ほぼ妥当な結果が得られたのではないかと考えられる。ただし、PIV の使用に関しては、1 フレーム当たりのトレーサー移動量に注意を払うべきであることも確認された。

#### 4-5 本章のまとめ

この章のまとめとして、以下に示す。

まず第 3 章で検討した実験流路を実際に組み込んだ実験装置の全体図を示し、その構成要素について詳述した。

次に、実験で用いる表面張力の異なる 2 種の試験流体を選定し、選定理由について詳述した。

さらに、実験結果に対する混合評価法について説明し、流れ可視化実験の評価に用いる PIV（粒子画像流速計測法）の基礎と最近主流の解析法について概観し、本研究に対する適用方法と実験装置、解析ソフトについて簡潔に説明した。

#### 第4章の参考文献

- [1] 山田 崇, 小野直樹, マランゴニカを活用したマイクロ混合流の生成, 日本機械学会論文集B編 79, 2013, pp888-899.
- [2] <http://imagej.nih.gov/ij/>
- [3] Yamada, T., Watanabe, Y., Osato, N., and Ono, N., Experimental and Numerical Study on Micromixing utilizing Movement of Gas - Liquid Free Interface, *Journal of Fluid Science and Technology*, **6**(2), 2011, pp.128-138.
- [4] de Gennes, P.G., Brochard-Wyart, B. and Quere, D., 奥村剛訳, 表面張力の物理学, 吉岡書店, 2003, pp. 1-83.
- [5] Ehrfeld, W., Golbig, K., Hessel, V., Löwe, H. and Richter, T., Characterization of Mixing in Micromixers by a Test Reaction: Single Mixing Units and Mixer Arrays, *Ind. Eng. Chem. Res.* **38**, 1999, pp.1075-1082.
- [6] (社) 可視化情報学会編, PIV と画像解析技術, 朝倉書店, 2004, pp. 1-46.
- [7] (社) 可視化情報学会編, PIV ハンドブック, 森北出版, 2002, pp.69-103.
- [8] 竹原幸生, 江藤剛治, 道奥康治, 久野悟志, 粒子マスク相関法の性能評価, 可視化情報, vol.17, Suppl. No1, 1997, pp. 117-120.
- [9] M. Raffel, C.E. Willert and J. Kompenlans, Particle image velocimetry, a particle guide, Springer-Verlag, 1998.
- [10] 北洞貴也, 笠原鋼一, 黒川淳一, 松井純, 画像変形方式 PIV 法の提案, 可視化情報, vol.19, Suppl, No 1, 1997.
- [11] [http://www.kk-co.jp/detail/flowexpert\\_.php](http://www.kk-co.jp/detail/flowexpert_.php)
- [12] Washburn, E. W., *International Critical Tables of Numerical Data, Physics, Chemistry and Tecnology*, vol.5.
- [13] Hessel, V., Löwe, H. and Sohnfeld, F., Micromixers – a review on passive and active mixing principles, *Chemical Engineering Science* **60**, 2005, 2464-2501.
- [14] 水科篤郎, 荻野文丸, 輸送現象, 産業図書, 1981

## 第5章 混合流生成実験

この項は

- ・ 5-1 実験概要
- ・ 5-2 実験を支配するパラメーター
- ・ 5-3 流れと同方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験
- ・ 5-4 流れと逆方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験
- ・ 5-5 周期的な流れ場発生を考慮に入れた次元解析
- ・ 5-6 本章のまとめ

の四項で構成されている。

## 5-1 実験概要

### 5-1-1 実験条件の設定

混合流生成実験の実験条件について説明する。

実験流路の外形と、2試液合流部の平面図を Fig. 5-1 に示す。混合流生成実験では、第2章2-3で述べた通り、第3章3-3で示した実験流路内に、第4章4-1,4-2でそれぞれ説明した実験装置と2試液を用い、表面張力値の異なる2液を気液自由界面上で合流させることでマランゴニ対流によるマイクロ混合流を生成させる。しかし、Fig. 5-1に示す二つのインレット、即ち Inlet 1, Inlet 2 に対して、実験で用いる2試液のうち、どちらにどの試液を用いるか（流入させるか）で、実験開始時のマランゴニ対流発生の方向が異なり、それが実験流路内主流に及ぼす影響についても相違すると考えられる。

Fig. 5-2(b)に、Inlet 1に純水、Inlet 2に酢酸 30wt%水溶液を流入させたときに予想される、気液自由界面上の表面張力分布の概形と、マランゴニ対流の発生方向について表す。マランゴニ対流は、表面張力値が小さいほうから大きいほうへ向けて発生するものなので、マランゴニ対流は「流路内主流に対して順方向に、発生する。これは、Fig. 5-2 (a)に示すとおり、気泡周辺の流れは、気泡表面の一点に引力が生じるように影響を受けていることが分かる。これにより、管内主流の流線が歪むので、これによる混合効果の増加が期待できる。しかし、気液自由界面上に発生するマランゴニ対流が、管内主流に対して十分に大きくなければ、マランゴニ対流は実質上、管内主流の平面内速度分布内に埋もれる形となり、十分な混合促進効果を持たなくなる恐れがある。

Fig. 5-3(b)に、Inlet 1に酢酸 30wt%水溶液、Inlet 2に純水を流入させたときに予想される、気液自由界面上の表面張力分布の概形と、マランゴニ対流の発生方向について表す。マランゴニ対流は、表面張力値が小さいほうから大きいほうへ向けて発生するので、マランゴニ対流は「流路内主流に対して逆方向に、発生する。これは、Fig. 5-3(a)に示すとおり、一様流の流れと、それに逆行するマランゴニ対流、即ち気泡表面上に発生するせん断流との相互作用により、旋回流が発生することが予想される。これにより混合に関する何かしらの影響を与えることが可能になると考えられる。しかし、この場合逆に、発生するマランゴニ対流の速度が、管内主流に対して十分以上に大きくなれば、管内主流の流れを妨害、あるいは途絶させ、実験自体が成立しなくなる恐れがある。したがって、この条件で実験を行う場合には、主流内流速を一定以上の速度に設定する必要があることに留意しなければならないと考えられる。本研究では、前記2パターンいずれについても実験を行った。

本論文中では、Fig. 5-2 に示す、実験初期にマランゴニ対流が「流路内主流に対して順方向に」発生すると思われる条件については、実験条件「Case 1」、Fig. 5-3 に示す、実験初期にマランゴニ対流が「流路内主流に対して逆方向に」発生すると思われる条件については、実験条件「Case 2」として定義し、以後、実験結果の整理・区別、考察等に用いることとする。

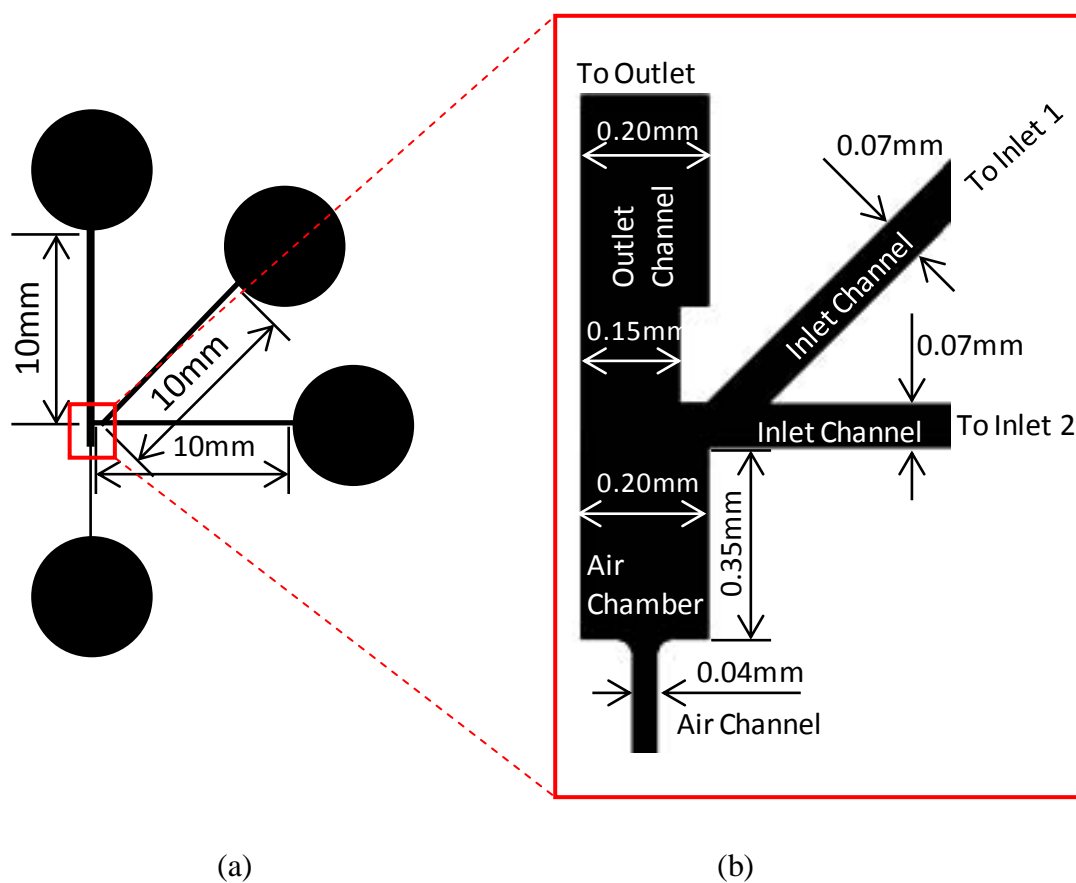


Fig. 5-1 the test channel, (a) General view, (b) Detail of dimensions in the bending point including bubble holding section as air-chamber and air-channel

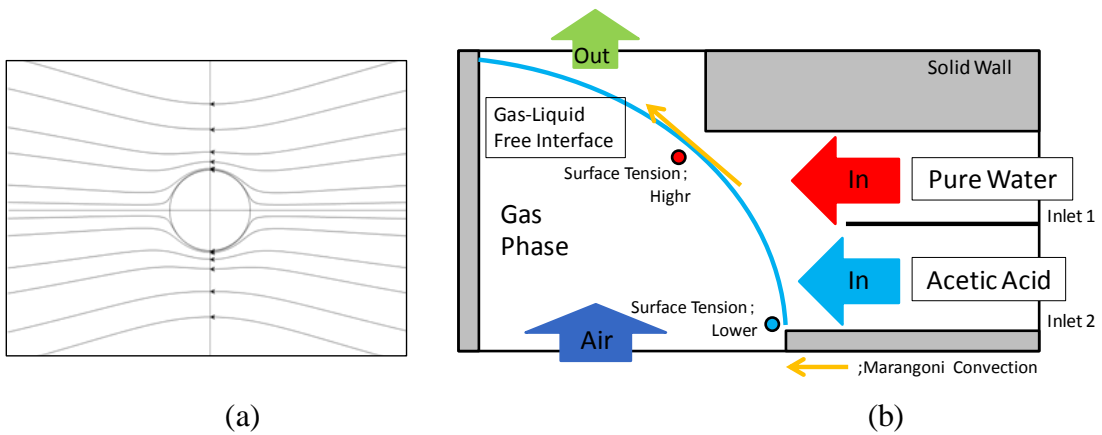


Fig. 5-2 (a) Stream line near a spherical bubble in constant flow of horizontal direction with surface tension gradient with the Marangoni force at follow direction to the constant flow (b) The experimental system for the flow experiment with Marangoni convection at follow to the main flow direction in initial condition

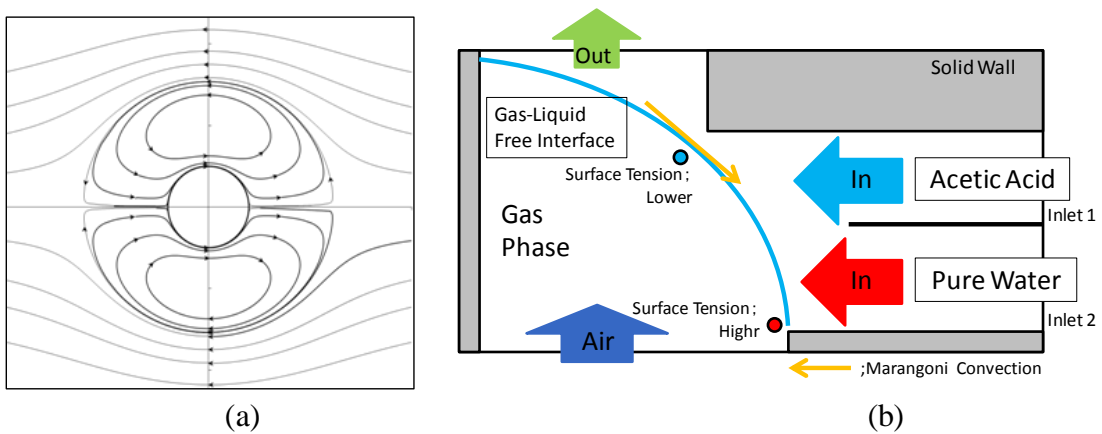


Fig. 5-3 (a) Stream line near a spherical bubble in constant flow of horizontal direction with surface tension gradient with the Marangoni force at against direction to the constant flow (b) The experimental system for the flow experiment with Marangoni convection at against to the main flow direction in initial condition

### 5-1-2 流入条件とその範囲の設定

本研究では、第4章4-1で述べているように、実験流路への試液の供給はシリンジとシリンジドライバーの組み合わせにより行われている。この組み合わせによる実験において、厳密に流量一定下の条件にする困難性は存在する。それは、本実験で用いたシリンジポンプの構造が、ステッピングモーターを使って駆動されていることが大きいと考えられる。

ステッピングモーターによる制御では、シリンジを連続的にではなく、段階的に押すので、押している（圧力を加えている）ときと、押していない（圧力を加えていない）ときとでは、微細管内の流速に時間によるばらつきが起り易い。このシリンジドライバー（As One MA-10）の単位時間当たりの体積流量の誤差は、通常 0.1%以下とカタログ上では保証されている。但し、その単位時間当たりの速度変動値までが 0.1%以内の誤差で保障されているわけではないと思われる。

本実験系のような、2試験流体間の界面張力が異なる系、更に、微細管内に設置した気液自由界面のように、他の壁面条件とは異なる境界条件を有している箇所が存在する系では、その差が流体挙動に対して、比較的大きな影響を与える可能性があることは、予備実験により確認している。本実験系においては、経験的に、流量 0.5[ $\mu\text{l}/\text{min}$ ]以上では、そのような不安定な流れが起きないにくく、1.5[ $\mu\text{l}/\text{min}$ ]以上では、2液界面が微小に揺れることはあるが、ほぼ連続的に流れていることを確認している。

したがって、実験時においては、最低でも 0.5[ $\mu\text{l}/\text{min}$ ]以上の流量、出来れば 1.5[ $\mu\text{l}/\text{min}$ ]以上の流量で実験を行うことが望ましいと考えられる。

一般に、流量一定の条件が求められる実験においては、厳密には、ステッピングモーターを用いたシリンジドライバーを使用せず、ガス圧による連続的な液供給機構を構築することが望ましいと認識されている。本研究では諸事情により、その導入を見送っているが、以上の点を考慮した実験条件の設定を行うことで、シリンジポンプによる流れの変動に対する影響を最小限に抑えることで、この論文の結論にほとんど影響を与えないよう配慮した。



## 5-2 実験を支配するパラメーター

### 5-2-1 $\pi$ 定理による次元解析結果

実験時において、どのようなパラメーターが現象を支配しているのか、確認することは非常に意義のあることと思われる。そのひとつの手段として、また本実験で扱う現象を支配する無次元量を知るために、 $\pi$  定理による次元解析を行った結果を以下に示す[11]。

本実験系に関係すると思われる物理量を次元とともに示すと、以下のようなになる。

表面張力差  $\Delta\sigma$  [ $M^1 \cdot t^{-2}$ ], 代表長さ  $x$  [ $L^1$ ], 密度  $\rho$  [ $M^1 \cdot L^{-3}$ ], 粘性係数  $\mu$  [ $M^1 \cdot L^{-1} \cdot t^{-1}$ ], 流路内主流速度  $v$  [ $L^1 \cdot t^{-1}$ ], 拡散係数  $D$  [ $L^2 \cdot t^{-1}$ ]

基本単位は、 $M$  : 質量,  $L$  : 長さ,  $t$  : 時間である。

物理量が 6 個, 基本単位 3 個であり,  $\pi$  定理により, 独立な無次元数は 3 個となる。

各物理量の指数を  $\pi_1 \sim \pi_6$  として, 次式が無次元になると置く。

$$\{[M^1 \cdot t^{-2}]^{\pi_1} [L^1]^{\pi_2} [M^1 \cdot L^{-3}]^{\pi_3} [M^1 \cdot L^{-1} \cdot t^{-1}]^{\pi_4} [L^1 \cdot t^{-1}]^{\pi_5} [L^2 \cdot t^{-1}]^{\pi_6}\} \dots (5-1)$$

上の式が無次元になることから, 次の式が得られる。

$$\left. \begin{aligned} M \text{の指数} : \pi_1 + \pi_3 + \pi_4 &= 0 \\ L \text{の指数} : \pi_2 - 3\pi_3 - \pi_4 + \pi_5 + 2\pi_6 &= 0 \\ t \text{の指数} : -2\pi_1 - \pi_4 - \pi_5 - \pi_6 &= 0 \end{aligned} \right\} \dots (5-2)$$

これを,  $\pi_1, \pi_4, \pi_6$  に付いて解くと式(5-3), (5-4), (5-5)が得られる。

$$\pi_2 = -\pi_1 - \pi_4 - \pi_6 \quad \dots (5-3)$$

$$\pi_3 = -\pi_1 - \pi_4 \quad \dots (5-4)$$

$$\pi_5 = -2\pi_1 - \pi_4 - \pi_6 \quad \dots (5-5)$$

これらの結果を, 式(5-1)に代入すると, 式(5-6)が得られる。

$$\begin{aligned} & \Delta\sigma^{\pi_1} x^{-\pi_1 - \pi_4 - \pi_6} \rho^{-\pi_1 - \pi_4} \mu^{\pi_4} v^{-2\pi_1 - \pi_4 - \pi_6} D^{\pi_6} \\ &= \{ \Delta\sigma / (x\rho v^2) \}^{\pi_1} \{ \mu / (x\rho v) \}^{\pi_4} \{ D / (xv) \}^{\pi_6} \\ &= \{ \Delta\sigma x / (x^2 \rho v^2) \}^{\pi_1} \{ \mu / (x\rho v) \}^{\pi_4} \{ D\mu / (\mu x v) \}^{\pi_6} \\ &= \{ \Delta\sigma x / (x^2 \rho v^2) \}^{\pi_1} \{ \mu / (x\rho v) \}^{\pi_4} \{ D\mu / (\mu x v) \}^{\pi_6} \\ &= \{ (\Delta\sigma x / \mu D) (\mu D / x^2 \rho v^2) \}^{\pi_1} \{ \mu / (x\rho v) \}^{\pi_4} \{ D\rho\mu / (\rho\mu x v) \}^{\pi_6} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= \{(\Delta \sigma x / \mu D)(\mu / x \rho v)(D / x v)\}^{\pi_1} \{\mu / (x \rho v)\}^{\pi_4} \{(D \rho / \mu)(\mu / \rho x v)\}^{\pi_6} \\
&= \{(\Delta \sigma x / \mu D)(\mu / x \rho v)(D \rho / \mu)(\mu / x \rho v)\}^{\pi_1} \{\mu / (x \rho v)\}^{\pi_4} \{(D \rho / \mu)(\mu / x \rho v)\}^{\pi_6} \dots(5-6)
\end{aligned}$$

以下のように定義される無次元数

$$\text{Marangoni 数 } Ma = \Delta \sigma x / \mu D$$

$$\text{Reynolds 数 } Re = x \rho v / \mu$$

$$\text{Schmidt 数 } Sc = \mu / D \rho$$

から、式(5-6)は、次の式(5-7)のように変形される。

$$= \{Ma \cdot Re^{-2} \cdot Sc^{-1}\}^{\pi_1} \{Re^{-1}\}^{\pi_4} \{Sc^{-1} \cdot Re^{-1}\}^{\pi_6} \dots(5-7)$$

よって、マランゴニ対流によるマイクロ混合流生成に関して、現象を支配する独立な無次元数は3個であり、これらは Marangoni 数;  $Ma$ , Reynolds 数;  $Re$ , Schmidt 数;  $Sc$  から構成されることが分かる。これらをどのように組み合わせたときに完全に独立になるかまでは、この解析結果では不明だが、これら3個の無次元数 ( $Ma, Re, Sc$ ) が、本実験系に関して支配的に関与していると考えられる。

## 5-2-2 実験系を支配する無次元数と主要パラメーター

本研究に用いた実験系は、第5章 5-2-1 で実施した次元解析において、

- Marangoni 数( $Ma=\Delta\sigma l/\mu D$ ),
- Reynolds 数( $Re=\rho ul/\mu$ ),
- Schmidt 数( $Sc=\mu/\rho D$ ),

が支配する系として導かれた。

このうち、Marangoni 数はマランゴニ効果を支配する無次元数として知られており、ある臨界値を超えると対流は定常流から振動流に移行することが知られている[9].

Reynolds 数は流体の流れを支配する無次元数として知られており、臨界値を超えると流れは層流から乱流に移行することが知られている[10].

Schmidt 数は、流れと物質移動の関係を定める因子であり、流体の物性だけで決まる物性値である[10].

これらの無次元数は、表面張力差  $\Delta\sigma$ 、液相内主流の速度  $u$ 、液相内の粘度  $\mu$ 、純水-酢酸水溶液間の拡散係数  $D$ 、流路内代表長さ  $l$ 、以上をパラメーターとして用いることにより得られる。

実験中では、流入条件は体積流量により管理されている。実験においては、実験条件「Case 1」、「Case 2」を通じて、概ね一インレット当たり  $0.5\mu\text{l}/\text{min}$  から  $2.5\mu\text{l}/\text{min}$  までを用いている。このとき、流路平面内の流路幅  $l_1$  (第2章 Fig. 内の"channel width") を代表長さにとった Reynolds 数 ( $Re$ ) を考えると、体積流量は一定であり、また、平面内の流路幅は場所によって異なるが、流路奥行き方向の長さ  $l_2$  (第2章 Fig. 2-8(a) 内の"channel depth") は、常に一定である。また、平均 Reynolds 数の計算に必要な流路断面内平均流速  $u$  は、体積流量  $V$  を流路断面積  $l_1 \times l_2$  で除することで得られる。従って、流体の密度を  $\rho$ 、粘性係数を  $\mu$  とした時に、平均 Reynolds 数を

$$Re = \frac{\rho ul_1}{\mu} \dots (5-8)$$

とおくとき、式(5-1)は次のように変形される。

$$Re = \frac{\rho ul_1}{\mu} = \frac{\rho l_1}{\mu} \times \frac{V}{l_1 \times l_2} = \frac{\rho V}{\mu l_2} \dots (5-9)$$

以後、式(5-2)を用いて、実験時における試験流体の平均 Reynolds 数を計算することとする。

## 5-3 流れと同方向に生じるマランゴニカによる混合流生成実験

### 5-3-1 流入条件と主要パラメーター

実験時に採用した流入条件を Table 5-1 に示す.

Table 5-1.Flow condition at each inlet in the experiments[1,4]

Volume Flow Rate ( $\mu\text{l}/\text{min}$ )	Reynolds Number (Pure water)	Reynolds Number (Acetic acid solution)
0.5	0.08	0.06
0.8	0.13	0.09
1.0	0.17	0.11

本実験系は，第 5 章 5-2-1 から，本実験系においては，

- Marangoni 数( $Ma=\Delta\sigma l/\mu D$ ),
- Reynolds 数( $Re=\rho ul/\mu$ ),
- Schmidt 数( $Sc=\mu/\rho D$ ),

が支配する系として導かれた.

これらの無次元数は，表面張力差  $\Delta\sigma$ : 0.1~23.0 [N/m] (23.0 [N/m]; 酢酸 15[wt%] 水溶液と純水の表面張力値の差)，液相内主流の速度  $u$ :  $2.38\sim 11.90\times 10^{-3}$  [m/s]，液相内の粘度  $\mu$  :  $1.38\times 10^{-3}$  [Pa·s] (酢酸 15[wt%]水溶液の粘度)，密度  $\rho$ : 1000 [kg/m<sup>3</sup>] (純水と酢酸水溶液では，ほぼ一緒)，純水-酢酸水溶液間の拡散係数  $D$ :  $1.24\times 10^{-9}$  [m<sup>2</sup>/s]，流路内代表長さ  $l$ :  $7.0\times 10^{-5}$  [m] (流路合流部入り口流路幅) を採用して，本実験系での代表する無次元数 (Referenced dimensionless number) を計算すると，その範囲は Table 5-2 に示すようになる.

Table 5-2.The relations between the range of dominant dimensionless numbers and the condition of the main parameters in the experiment system

Reference Dimensionless number	$\Delta\sigma$ [N/m] $\times 10^{-3}$	$ul$ [m <sup>2</sup> /s] $\times 10^{-6}$	$\mu$ [Pa·s] $\times 10^{-3}$	$D$ [m <sup>2</sup> /s] $\times 10^{-9}$	$\rho$ [kg/m <sup>3</sup> ]	$u/l$ [1/s]	$l$ [m] $\times 10^{-5}$
$Ma=4090.70\sim 940860.22$	0.10~23.00	-	1.38	1.24	-	-	7.00
$Re=0.14\sim 0.29$	-	0.17~0.33	1.38	-	1000.00	-	-
$Sc=1112.90$	-	-	1.38	1.24	1000.00	-	-

Table. 5-2 から、この実験系の代表 Marangoni 数  $Ma$  については、この実験系における代表 Marangoni 数の最大値が 940860.2 となり、これは気泡表面上の表面張力差がこの系で最大になるときに記録されるものである。また、想定される最小値も、4090.7 となる。これは、過去、報告された値と比較して、非常に大きいといえる[9]。本来 Marangoni 数は、温度変化による表面張力差から生じるマランゴニ対流に対する無次元数であり、この差は流体中の物性値である、(熱) エネルギー輸送に関する熱拡散率  $\kappa$  ( $10^{-6} \sim 10^{-7} [\text{m}^2/\text{s}]$  オーダー) と質量輸送に関する拡散係数  $D$  ( $10^{-8} \sim 10^{-10} [\text{m}^2/\text{s}]$  オーダー) の差に起因するものである。

$Ma$  の値から、この系はマランゴニ対流自体が振動流に移行しやすいことを表している。しかしこの実験系における臨界 Marangoni 数はまだ分かっていない。本実験条件では代表 Marangoni 数  $Ma$  を 940860.2 としておく。

この実験系の代表 Reynolds 数  $Re$  については、二液が合流する地点での流速により計算されており、 $Re < 1.0$  の完全な層流となることが分かる。

この実験系の代表 Schmidt 数  $Sc$  に関しては、二液が合流する地点での流路幅 (0.07mm) を用いて計算されている。拡散係数が小さいため、 $Sc = 1112.90$  が計算された。この結果から、この実験系内は粘性による関与が比較的大きいと評価され、もし対流を発生させることが出来れば、その混合促進効果は比較的高いことが予想される。

### 5-3-2 固体壁面をもつ実験流路との比較実験

実験条件「Case 1」では、Fig. 5-4 にその平面形を示す、3 種類の実験流路を用いて混合実験を行った[1].

Fig. 5-4 (a)は、Fig. 5-1 に示した実験流路そのものである。ここでは、それを Type -A と呼称する。

Fig. 5-4 (b)は、その平面形に示す通り、Type -A から気泡形成／保持機構を取り除いたもので、二液合流部は単純な L 字型の流路となっている。これを Type-B と呼称する。

Fig. 5-4(c)は、その平面形に示す通り、Type-B の流路屈曲部に、気泡表面を模した、幅 (Fig. 5-4 内  $x$  方向) 0.25mm, 高さ (同  $y$  方向) 0.1mm, 曲率半径 0.9mm の曲面を持つ固体構造物を追加して作成したものである。これを Type-C と呼称する。流路壁面との最小距離は、流路製作上の制約から、0.02mm としている。

第 3 章 3-3 で詳述したフォト・リソグラフィ法では、その精度の限界は 0.001mm オーダーとされている[8]。また我々は、厚さ約 0.1mm の感光性樹脂を用いて、流路パターンの転写に関する事前検証を行っている。この検証において、我々が用いている装置で精密にパターンを転写し得る限界の流路幅は、約 0.02mm までが限界で、これ以下では流路断面の形状が矩形ではなく、傾斜状に崩れてしまい、正確に流路パターンを転写できないことを確認している。

以上の理由から、Type-C 流路の固体曲面と流路壁との最小距離は 0.02mm として作成された。

Type-B,C 流路を用いた実験結果は、第 5 章 5-3-3 混合評価実験の項で用いた。

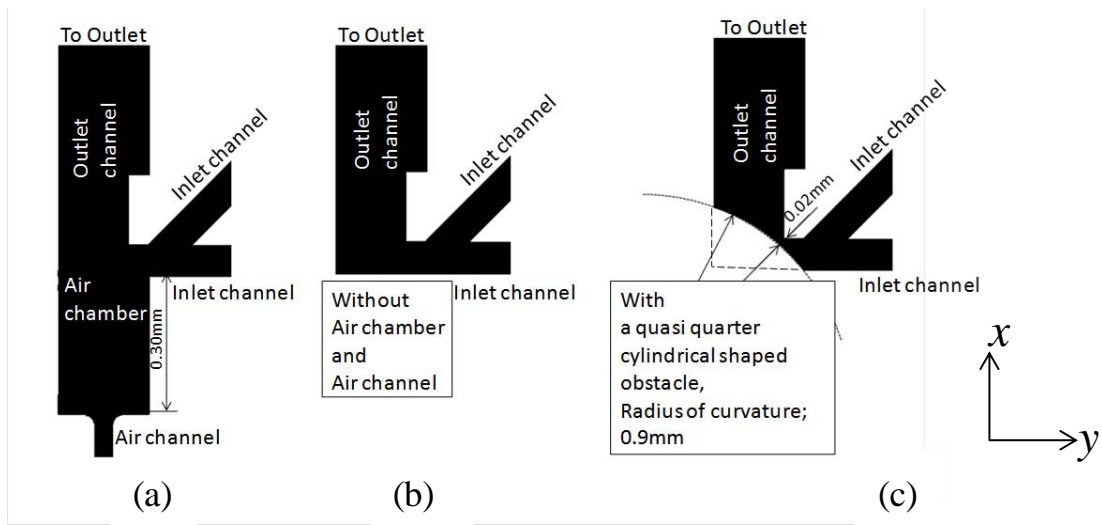


Fig.5-4 vertical cross-sectional views of the flexion area in the L-shaped region of the three test channels, (a) Type-A, (b) Type-B, (c) Type-C [1]

### 5-3-3 混合評価実験

Fig. 5-5,6,7 に, Type-A,B,C 各実験流路において, 両インレットの体積流量を各  $0.8[\mu\text{l}/\text{min}]$  ( $Ma=940860.2$ ,  $Re=0.192$ ,  $Sc=1112.9$ ) として行った混合評価実験の結果をそれぞれ示す. 各流路の L 型屈曲部内での, 酢酸水溶液と着色純水の挙動を  $0.1$  秒毎に比較した.

Fig. 5-8,9,10 は, Type-A,B,C 各実験流路において, 流路屈曲部を起点に, その部分から下流部における流路各地点における二液の混合状態をそれぞれ記録した画像である.

Fig. 5-11 は Fig. 5-8,9,10 で表した画像から, アウトレット流路各地点における 2 液間の青色色素の最大濃度差をプロットしたものである. 2 液間の最大濃度差は, 第 4 章 4-3 で述べた通り, 実験画像の輝度の RGB 値の R (レッド) 値を比較することで得ている.

Fig. 5-12 は, Fig. 5-8 のうち, Fig. 5-12(a)で示す, 流路屈曲部から  $0.5\text{mm}$  地点でのアウトレット流路上の流路断面方向 A-B の二液間の濃度分布をプロットしたものである[1-3,5-6].

実験の結果, Fig. 5-5 から, 気泡による混合デバイスを持つ実験流路では, 気液自由界面形成後, ゆっくりと気泡内圧を上げていったところ, 界面の頂点と流路屈曲部角との距離が  $30\mu\text{m}$  以下となったと思われる時点で界面と界面周辺で流れが周期的に強く駆動され, これにより混合が大きく促進している様子が見られた. そしてこの状態は, 曲率半径等, 気泡形状が維持されている間, 途切れることなく持続されていた. 但し両流路による実験中, シリンジから供給される試験流体の流れには, 脈動のような周期的な流れの変化が表れていた. このような流れの変化は, Fig. 5-6,7 に示す, Type-B,C 流路を用いた流動実験にはほとんど表れなかった.

今回用いた 2 種の試験流体間の界面張力差により, 二液の接触界面の挙動自体が不安定になったことも脈動流の挙動を助長したと考えられる. また, 特に L 字型流路の屈曲部にてその挙動が不安定になったことから, 試験流路の物理的形状もこのような流れの挙動に関係していることも推察される. これは, Type-B,C 流路を用いた流動実験にはほとんど表れなかった.

Fig. 5-8,9,10,11 から, 本実験条件 (体積流量  $0.8\mu\text{l}/\text{min}$ ,  $Ma=9408.6$ ,  $Re=0.192$ ,  $Sc=1112.9$ ) においては, Type-A,B,C 各実験流路を用いた流動実験ともに, 流路屈曲点後からその下流  $3.5\text{mm}$  地点まではアウトレット流路内で混合はほとんど進展していないことが確認できる. したがって, 二液の混合は気泡による混合デバイスによってのみ行われ, それにより約 40%程度混合が進んだことが分かる. 但しこの濃度分布は純水に添加された青色色素の濃度分布であり,



酢酸濃度が厳密に反映させたものでないことを断わっておく。

最後に Fig. 5-12 についてであるが、この地点での流路断面方向全域に青色色素の濃度分布（約 0.37～0.86）が生じ、混合が均質に行われていないことが確認された。Fig. 5-12 (b) から、Fig. 5-12(a)で定義した区間 A-B 間の、点 A からの距離 133～200 $\mu\text{m}$  における青色色素の濃度は 0.83～0.86 と非常に大きく、この部分にて青色色素が大量に残留することで全体の混合評価を大幅に低下させていることが分かった。

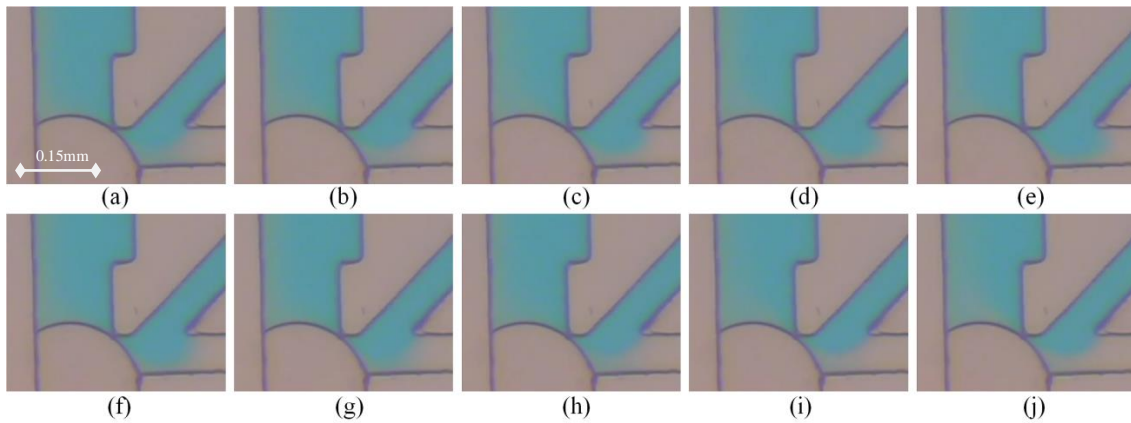


Fig. 5-5 A series of photos at the bending point of the test channel in a flow experiment every 0.1 s from (a) to (j) using "Case 1" condition on Type-A channel, volume flow rate;  $0.8 \mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets, ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.19$ ,  $Sc=1112.90$ ) [1,5].

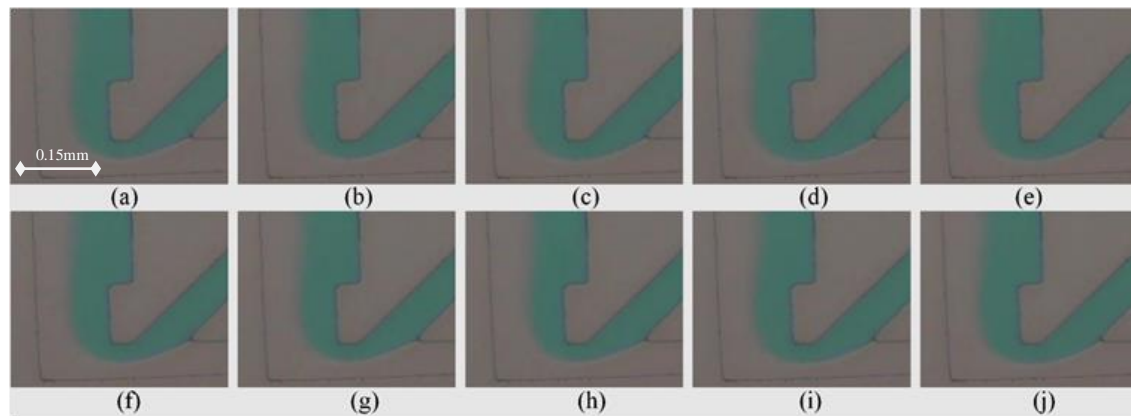


Fig. 5-6 A series of photos at the bending point of the test channel in a flow experiment every 0.1 s from (a) to (j) using "Case 1" condition on Type-B channel, volume flow rate;  $0.8 \mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets, ( $Re=0.19$ ,  $Sc=1112.90$ ) [1,5].

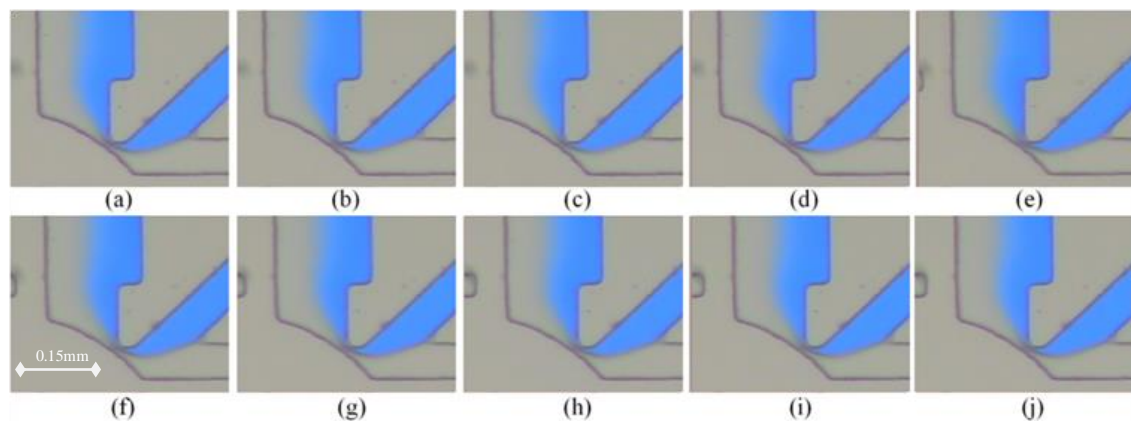


Fig. 5-7 A series of photos at the bending point of the test channel in a flow experiment every 0.1 s from (a) to (j) using "Case 1" condition on Type-C channel, volume flow rate;  $0.8 \mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets, ( $Re=0.19$ ,  $Sc=1112.90$ ) [1,5].

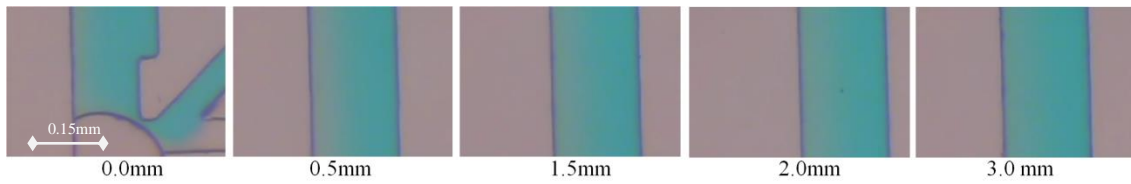


Fig. 5-8 A series of photos at each point of outlet channel between 0.0mm and 3.0mm from the bending point in the test channel in a flow experiment using "Case 1" condition on Type-A channel, volume flow rate;  $0.8 \mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets, ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.19$ ,  $Sc=1112.90$ ) [1,5].

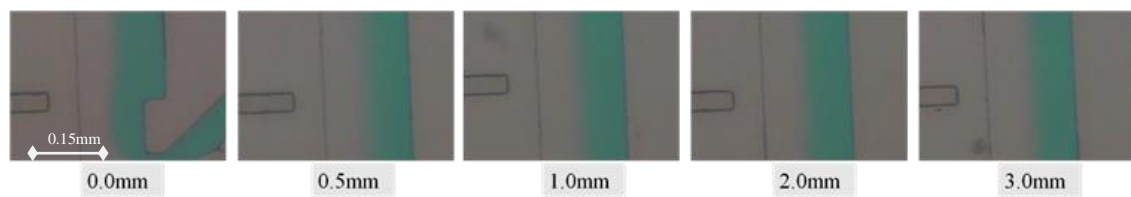


Fig. 5-9 A series of photos at each point of outlet channel between 0.0mm and 3.0mm from the bending point in the test channel in a flow experiment using "Case 1" condition on Type-B channel, volume flow rate;  $0.8 \mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets, ( $Re=0.19$ ,  $Sc=1112.90$ ) [1,5].

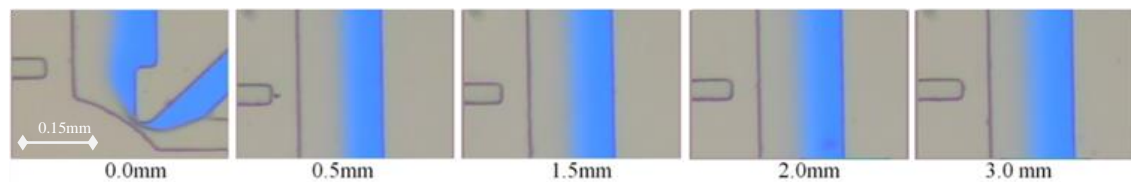


Fig. 5-10 A series of photos at each point of outlet channel between 0.0mm and 3.0mm from the bending point in the test channel in a flow experiment using "Case 1" condition on Type-C channel, volume flow rate;  $0.8 \mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets, ( $Re=0.19$ ,  $Sc=1112.90$ ) [1,5].

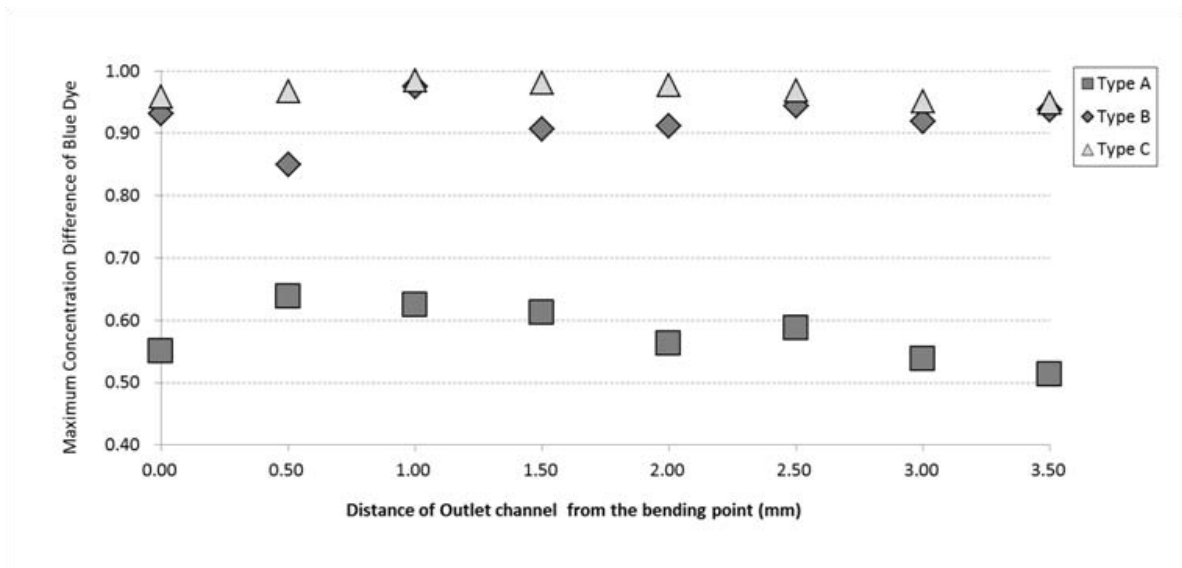


Fig.5-11 Results of maximum concentration difference of blue dye at some distances of outlet channel from the bending point in the test channel in the mixing experiments in Type-A, B and C channels using "Case 1" condition [1,5,7]

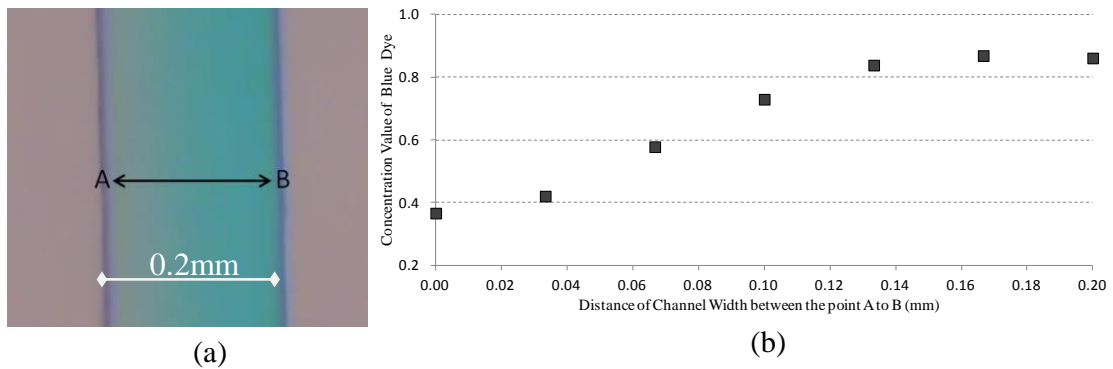


Fig. 5-12 (a) Definition of section A to B at the point of 0.5mm of outlet channel from the bending point of the test channel, (b) The result of concentration value of blue dye at some points of section A to B in the mixing experiments using "Case 1" condition( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.19$ ,  $Sc=1112.90$ ) [1,7]

### 5-3-4 流れ可視化実験

Fig. 5-13, 5-14 は、両インレットの体積流量を、各  $0.8[\mu\text{l}/\text{min}]$ とした時 ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.19$ ,  $Sc=1112.90$ )における、流れ可視化実験時における実験画像である。酢酸 30wt%水溶液に直径  $0.6\mu\text{m}$  のアクリル樹脂を 0.1wt%添加した。Fig. 5-13 は、L字型流路屈曲部内上流側にて毎秒 2000 フレームで撮影した画像を、二次元 PIV 解析により速度ベクトルを解析した。PIV 解析は「全画像変形法」を用いた。Fig. 5-14 は、L字型流路屈曲部内下流側にて、毎秒 1000 フレームで撮影した画像を二次元 PIV 解析により速度ベクトルを解析した実験画像である。PIV 解析は「再帰的相関法」を用いた[4]。

Fig. 5-13 の結果から、L字型流路屈曲部上流側にて周期的に渦流が発生していることが PIV 解析により確認された。ストークス近似で計算された気泡周辺の流れとは異なる流れだが、この渦流れによりトレーサー粒子が添加された酢酸水溶液が気液自由界面上に引き寄せられていることには違いはなく、これは、マランゴニ対流の速度と流路壁面の形状等から来る境界条件に関係するものと思われる。この渦流の形状は、当然のことながら、「混合評価実験」にてアナログ CCD カメラに捉えられた実験画像とその傾向が一致する。したがって、「界面と界面周辺で流れが周期的に強く駆動され、たのは、この渦流れの発生によるものと思われる。トレーサー粒子の挙動から、この渦流れに取り込まれるトレーサー粒子は多くはなく、これは、純水（側）に発生した渦流れ内に取り込まれ、混合される酢酸水溶液の量は、あまり多くはないことを示している。これは、第 2 章で示した、遅い粘性流中の気泡周辺に対するストークス近似の結果から、渦流れの外側には、その渦流をなめるように一様流が存在し、両者間の境界における摩擦力は存在しないかのように振る舞う。このため、渦流は渦流として存在し、本来その部分にあるべき流体を巻き込みつつ進行する。しかし、渦流の外側にある流体には、基本的にその影響が行使されないため、渦流れ自体での混合促進が Fig. られないと考えられる。

Fig. 5-14 の結果から L字型流路屈曲部下流側の流れの挙動を確認する。上流側で見られる渦流れは、むしろ下流側の流れに大きな影響を与えていることが分かる。この渦流れは、 $0.03\sim 0.04[\text{s}]$ 毎に、その発生と消滅を繰り返していた。Fig. 5-14 (b)が、乱れのない流れであるのと対照的に、Fig. 5-14(c)以降は、上流部の渦流れの消滅によって、下流部の流路全体に広がる形で噴流が発生し、一気にトレーサー粒子が拡散される様子が確認された。これが、このマイクロ混合流による混合促進効果の要因の一つであると考えられる。これは、周期的に発生する現象なので、この性質が、「混合評価実験」時において、流路断面方向の混合の均質度に不均衡が生じた原因と考えられる。

この渦流れに周期性を持つ理由として、流路内気泡表面（気液自由界面）上の表面張力分布、即ち二試液間の濃度分布の非定常性に関係があると考えられる。ある瞬間に決定された二試液間の濃度分布により、マランゴニ対流によるマイクロ混合流が発生すると思われる。しかし、その混合促進により、気泡表面上の液相の濃度分布は均一になると考えられる。マランゴニ対流は表面張力勾配により発生するため、液相内濃度分布の均一化はマランゴニ力消失につながる。その結果、マイクロ混合流が停止する。これは、実験初期の条件そのものであるため、時間の進展に従って、気泡周辺には再び不均一な二試液間の濃度分布が醸成され、マランゴニ対流が発生し、以下周期的に繰り返されると考えられる。



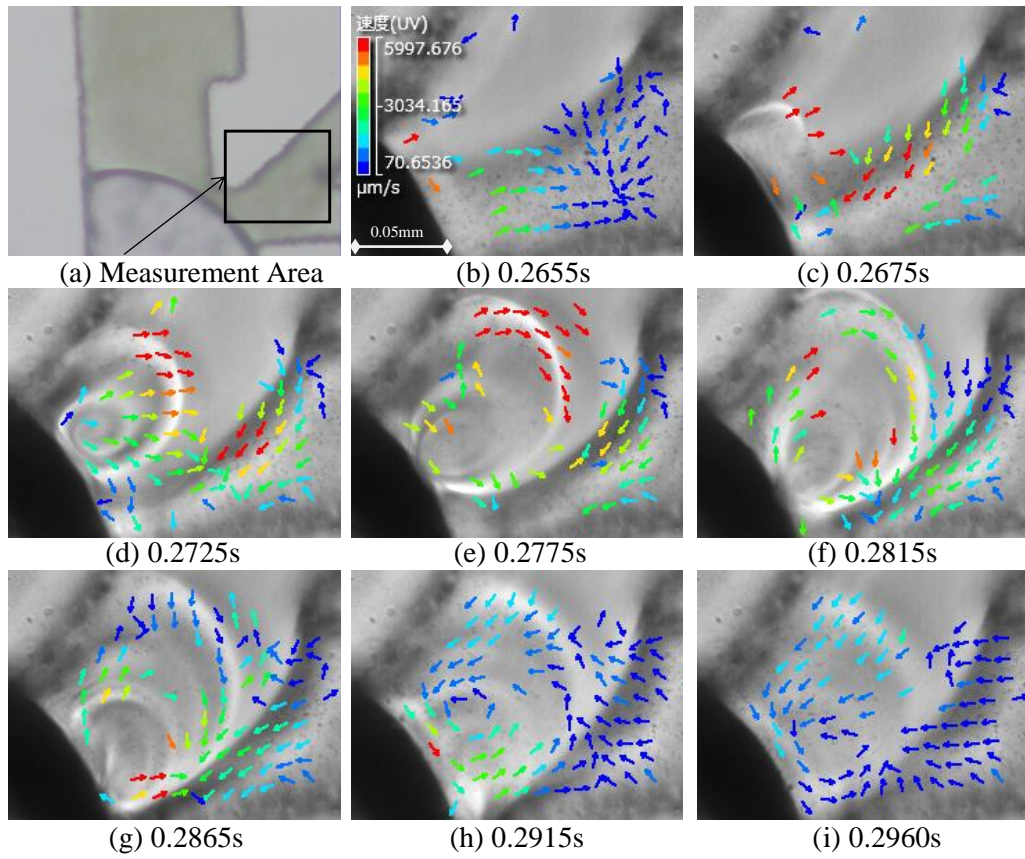


Fig. 5-13 The series of high-speed photos, (a) Illustration of the measurement area (inside the frame line), (b) to (i) the PIV analysis of flow velocity at the upstream of the mixing device, volume flow rate;  $0.8 \mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.19$ ,  $Sc=1112.90$ ), frames per second;  $2000[\text{fps}][4]$



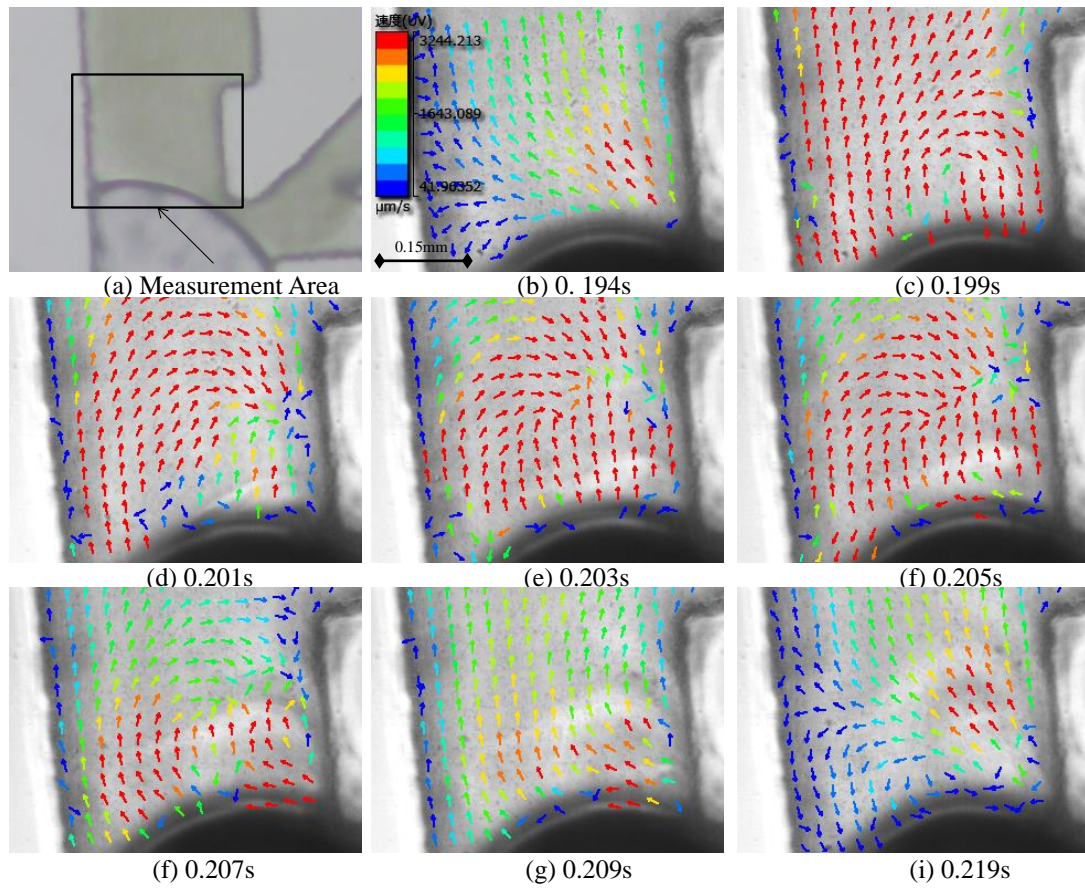


Figure 5-14. The series of high-speed photos, (a) Illustration of the measurement area (inside the frame line), (b) to (i) the PIV analysis of flow velocity at the downstream of the mixing device, volume flow rate;  $0.8 \mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.19$ ,  $Sc=1112.90$ ), frames per second;  $1000[\text{fps}]$ [4]



## 5-4 流れと逆方向に生じるマランゴニカによる混合流生成実験

### 5-4-1 流入条件

実験時に採用した流入条件を Table. 5-3 に示す.

Table 5-3.Flow condition at each inlet in the experiments

Volume Flow Rate ( $\mu\text{l}/\text{min}$ )	Reynolds Number (Pure water)	Reynolds Number (Acetic acid solution)
1.0	0.17	0.09
1.5	0.25	0.14
2.0	0.33	0.18

次に、本実験系は、第 5 章 5-2-1 から、少なくとも液相内においては、

- Marangoni 数( $Ma=\Delta\sigma l/\mu D$ ),
- Reynolds 数( $Re=\rho ul/\mu$ ),
- Schmidt 数( $Sc=\mu/\rho D$ ),

が支配する系として導かれた。

これらの無次元数は、表面張力差  $\Delta\sigma$ : 0.1~23.0 [N/m] (23.0 [N/m]; 酢酸 15[wt%] 水溶液と純水の表面張力値の差), 液相内主流の速度  $u$ :  $2.38\sim 11.90\times 10^{-3}$  [m/s], 液相内の粘度  $\mu$ :  $1.38\times 10^{-3}$  [Pa·s] (酢酸 15[wt%]水溶液の粘度), 密度  $\rho$ : 1000 [kg/m<sup>3</sup>] (純水と酢酸水溶液では、ほぼ一緒), 純水-酢酸水溶液間の拡散係数  $D$ :  $1.24\times 10^{-9}$  [m<sup>2</sup>/s], 流路内代表長さ  $l$ :  $7.0\times 10^{-5}$  [m] (流路合流部入り口流路幅) を採用して、本実験系での代表する無次元数 (Referenced dimensionless number) を計算すると、その範囲は Table 5-4 に示すようになる。

Table 5-4.Relations between the range of dominant dimensionless numbers and the condition of the main parameters in the experiment system

Referenced dimensionless number	$\Delta\sigma$ [N/m] $\times 10^{-3}$	$ul$ [m <sup>2</sup> /s] $\times 10^{-6}$	$\mu$ [Pa·s] $\times 10^{-3}$	$D$ [m <sup>2</sup> /s] $\times 10^{-9}$	$\rho$ [kg/m <sup>3</sup> ]	$l$ [m] $\times 10^{-5}$
$Ma=4090.70\sim 940860.22$	0.1~23.0	-	1.38	1.24	-	7.0
$Re=0.24\sim 0.60$	-	0.33~0.83	1.38	-	1000.00	-
$Sc=1112.90$	-	-	1.38	1.24	1000.00	-

Table. 5-4 から、代表 Marangoni 数  $Ma$  については、第 5 章 5-3 で述べたとおり、この実験系の代表 Marangoni 数  $Ma$  については、この実験系における代表 Marangoni 数の最大値が 940860.2 となり、これは気泡表面上の表面張力差がこの系で最大になるときに記録されるものである。また、想定される最小値も、4090.7 とかなり大きく、この系はマランゴニ対流自体が振動流に移行しやすいことを表している。しかし、この実験系における臨界 Marangoni 数は分かっていない。本実験条件でも、代表 Marangoni 数は 940860.2 としておく。

代表 Reynolds 数  $Re$  については、二液が合流する地点での流速と代表長さにより計算しており、本実験条件においても、その流れは  $Re < 1.0$  の完全な層流となる。

代表 Schmidt 数  $Sc$  に関しては、本実験条件においても、拡散係数が小さいため、比較的大きな値が計算され、対流による混合への関与が比較的大きいことが確認される。

#### 5-4-2 混合評価実験

Fig. 5-15 に、両インレットの体積流量を各  $1.0[\mu\text{l}/\text{min}]$  ( $Ma=940860.2$ ,  $Re=0.24$ ,  $Sc=1112.9$ ) として行った混合評価実験における L 型屈曲部内での酢酸水溶液と着色純水の挙動を 0.1 秒毎に比較した結果を示す。

Fig. 5-16,17,18,19 に、両インレットの体積流量がそれぞれ  $1.0,1.5,2.0\mu\text{l}/\text{min}$  とした時 ( $Ma=9408.6$ ,  $Re=0.24,0.36,0.48$ ,  $Sc=1112.9$ ) における、気液自由界面を起点にその部分から下流部における流路各地点における二液の混合状態を記録した画像および、2 液間の青色色素の最大濃度差をプロットしたグラフを示す。2 液間の最大濃度差は、第 4 章で述べた通り、実験画像の輝度の RGB 値の R (レッド) 値を正規化することで得ている。

Fig. 5-20 は、Fig. 5-16(b)に示す流路屈曲部から  $0.5\text{mm}$  下流地点での流路断面方向 A-B 間の青色色素の濃度分布をプロットしたグラフを示す。

実験の結果、両インレットの体積流量が  $1.0,1.5,2.0\mu\text{l}/\text{min}$  のいずれの実験条件においても、気液自由界面形成後、ゆっくりと気泡内圧を上げていったところ、界面の頂点と流路屈曲部角との距離が  $10\mu\text{m}$  以下となったと思われる時点で流路屈曲部角上流付近において旋回流が発生し、これによって混合が大きく促進している様子が見られた。そしてこの状態は、曲率半径等、気泡形状が維持されている間、途切れることなく持続された。

両流路による実験中、シリンジから供給される試験流体の流れ自体には、周期的な脈動は強くは起きなかった。但し、旋回流は周期的に発生と消滅を繰り返しているように見えた。これは、Fig. 5-15 から確認できる。

Fig. 5-16,17,18,19 から、実験画像の輝度解析により、Case 2 においても、各インレットの体積流量が  $1.0\mu\text{l}/\text{min}$  ( $Ma=940860.2$ ,  $Re=0.36$ ,  $Sc=1112.9$ ) においては、このマイクロ混合流により約 40~45%程度混合が進展することが分かった。しかし、各インレットの体積流量が  $1.5$  あるいは  $2.0\mu\text{l}/\text{min}$  ( $Ma=940860.2$ ,  $Re=0.48\sim 0.60$ ,  $Sc=1112.9$ ) においては、マイクロ混合流は発生するものの、その混合の進展度は 30~35%程度まで低下した。各実験条件とも、流路屈曲点後からその下流  $3.5\text{mm}$  地点まではアウトレット流路内で混合はあまり進展していないことが確認できる。したがって、各実験条件とも、二液の混合はほぼマランゴニ対流によるマイクロ混合流よってのみ行われたと考えられる。

最後に Fig. 5-20 についてであるが、この地点での流路断面方向全域に青色色素の濃度分布 (約  $0.26\sim 0.98$ ) が生じ、混合が均質に行われていないことが確認された。Fig. 5-20(b)から、Fig. 5-20(a)で定義した区間 A-B 間において、区間 A-B 間の A からの距離  $25\sim 75\mu\text{m}$  地点における青色色素の濃度が  $0.93\sim 0.98$  と非常に大きく、この部分で青色色素がほとんど拡散されていないために全体の混合進展を大幅に低下させていることが分かった。

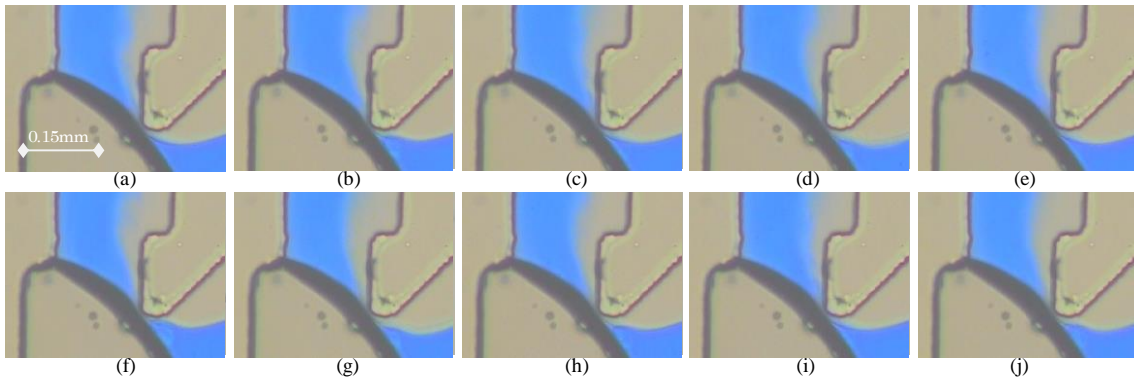


Fig. 5-15 A series of photos at the bending point of the test channel in a flow experiment every 0.1 s from (a) to (j) using "Case 2" condition, volume flow rate; 1.0  $\mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets, ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.24$ ,  $Sc=1112.90$ )

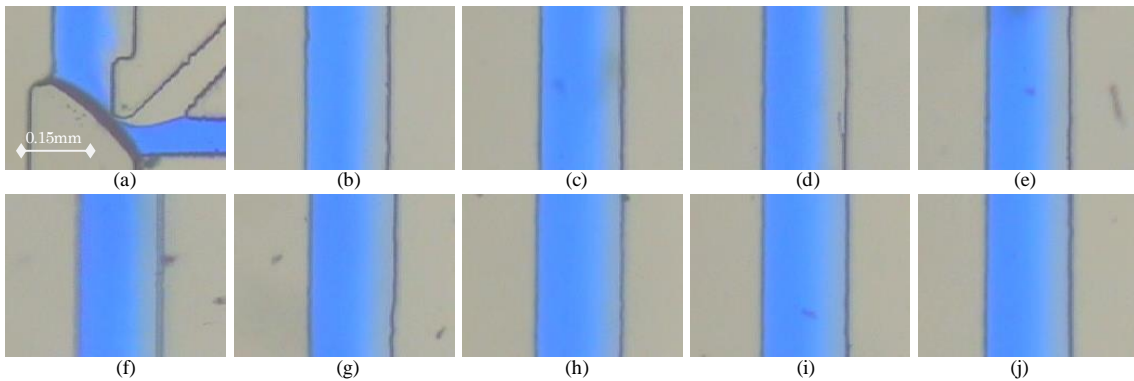


Fig. 5-16 A series of photos at each point of outlet channel every 0.5mm between 0.0mm and 4.5mm from the bending point of the test channel in a flow experiment of "Case 2" condition, volume flow rate; 1.0 $\mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.24$ ,  $Sc=1112.90$ )

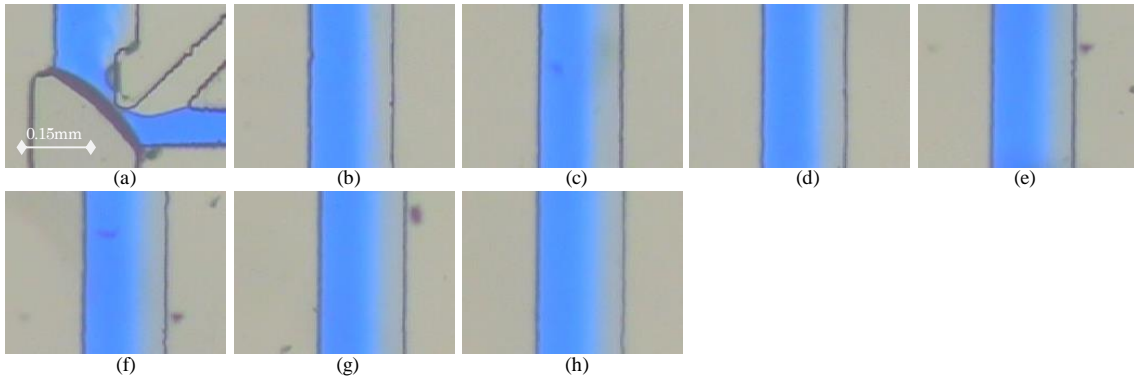


Fig. 5-17 A series of photos at each point of outlet channel every 0.5mm between 0.0mm and 3.5mm from the bending point of the test channel in a flow experiment of "Case 2" condition, volume flow rate; 1.5 $\mu$ l/min in each inlets( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.36$ ,  $Sc=1112.90$ )

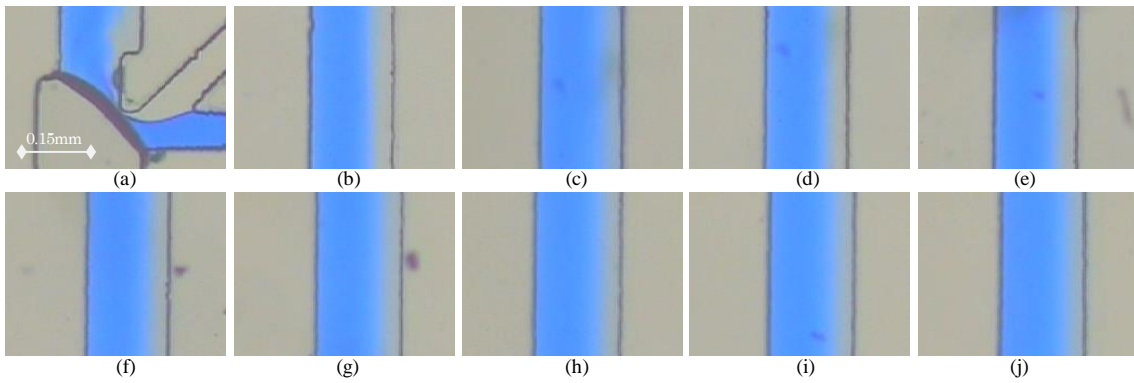


Fig. 5-18 A series of photos at each point of outlet channel every 0.5mm between 0.0mm and 4.5mm from the bending point of the test channel in a flow experiment of "Case 2" condition, volume flow rate; 2.0 $\mu$ l/min in each inlets( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.48$ ,  $Sc=1112.90$ )

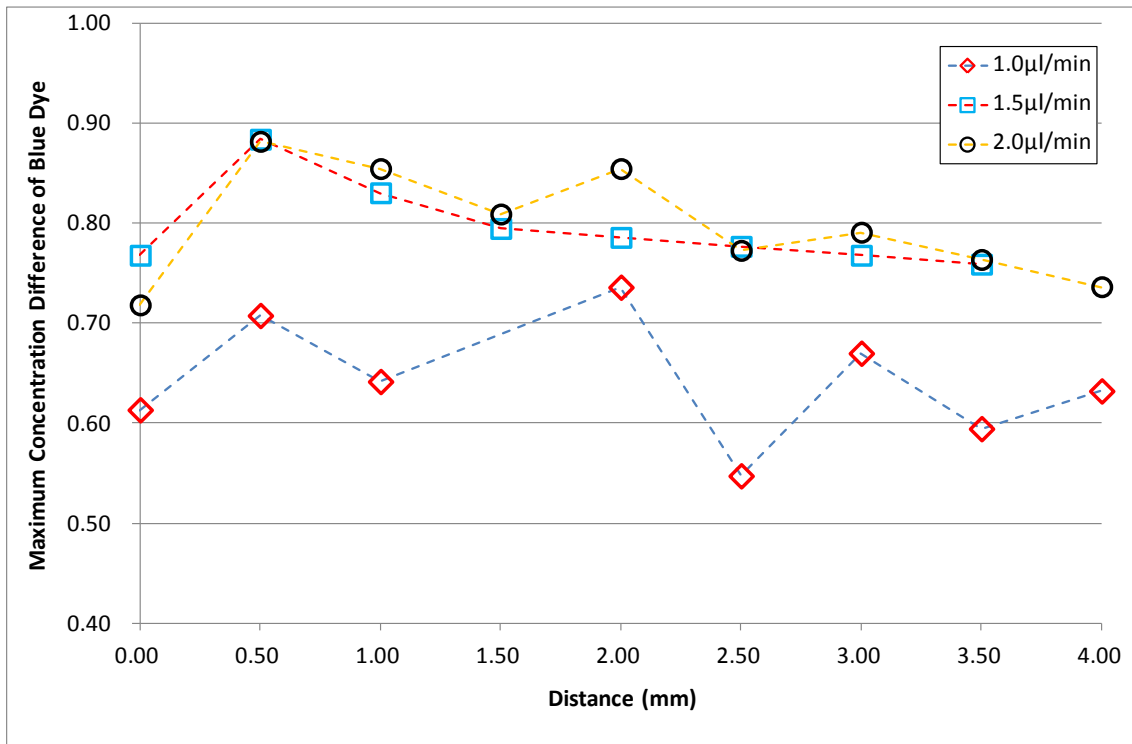


Fig.5-19 Results of maximum concentration difference of blue dye at some distances of outlet channel from the bending point in the test channel in the mixing experiments of "Case 2" condition ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.24\sim 0.48$ ,  $Sc=1112.90$ )

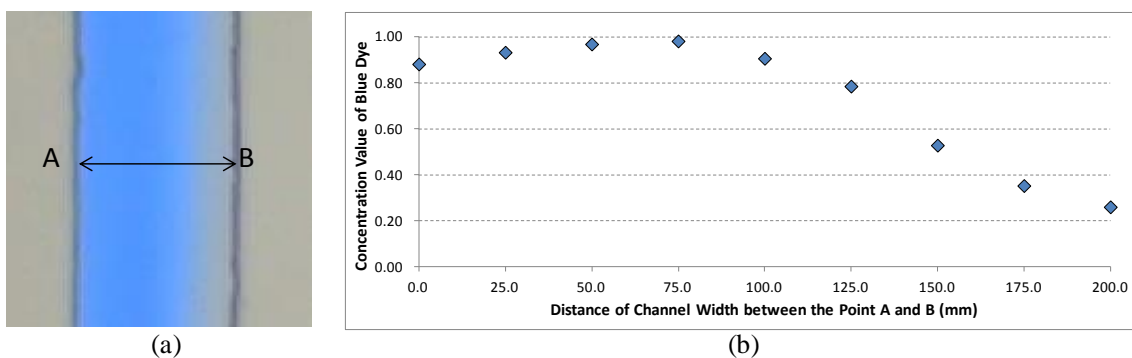


Fig.5-17 (a) Definition of section A to B at the point of 0.5mm of outlet channel from the bending point of the test channel, (b) The result of concentration value of blue dye at some points of section A to B in the mixing experiments in "Case 2" condition volume flow rate; 1.5 μl/min in each inlets ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.36$ ,  $Sc=1112.90$ )

### 5-4-3 流れ可視化実験

Fig. 5-18 は両インレットの体積流量が  $2.5\mu\text{l}/\text{min}$  とした時 ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.60$ ,  $Sc=1112.90$ ) における, 流れ可視化実験時における, L字型流路屈曲部内で撮影した画像を二次元 PIV 解析にて速度ベクトルを解析した結果である. 純水に直径  $0.6\mu\text{m}$  のアクリル樹脂を  $0.1\text{wt}\%$  添加して行った. Fig. 5-18 は毎秒 1000 フレームの画像を用いて解析した. 解析手法は「再帰的相関法」を用いた.

L字型流路屈曲部上流側にて周期的に渦流が発生していることが PIV 解析により確認された. その発生周期は  $0.033[\text{s}]$  と計算され, Case 1 での結果とほぼ同一となった.

その流れ概形については, ストークス近似で計算された気泡周辺の流れと近似した流れとなっていることが注目される. この渦流の形状は, 「混合評価実験」にてアナログ CCD カメラに捉えられた実験画像とその傾向が一致する. したがって, 界面と界面周辺で流れが周期的に強く駆動されたのは, この渦流の発生によるものと思われる.

トレーサー粒子の挙動から, 上流側で見られる渦流れは, 下流側の流れに大きな影響を与えていることが確認でき, それらは同時にではなく, 時間差を持って発生していることが分かる. この渦流れも,  $0.03\sim 0.04[\text{s}]$  毎に, その発生と消滅を繰り返していることが確認できる.

上流部の渦流れの消滅によって, 下流部の流路全体に広がる形で噴流が発生し, トレーサー粒子が拡散される様子が確認できる. これが "Case 2" においても, このマイクロ混合流による混合促進効果の主たる要因であると考えられる. 但し, この結果は各インレットの体積流量が  $2.5\mu\text{l}/\text{min}$  での結果であるので, その混合促進効果は限定的であることが分かっている. したがって, 混合流が生成されても, その混合に寄与する割合は高くなく, これは流路内平均流速に依存する, 流体の流路内の一地点に存在できる時間を表す「滞留時間」に依存すると考えられる. 「滞留時間」が長くなると, マイクロ混合流が流体に及ぼす時間が増加することで, その流体への影響度も増大すると考えられる.

Fig. 5-19 は, 両インレットの体積流量が  $2.0\mu\text{l}/\text{min}$  とした時 ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.48$ ,  $Sc=1112.90$ ) での流れ可視化実験時における, L字型流路屈曲部内で撮影した画像を二次元 PIV 解析にて速度ベクトルを解析した結果を  $0.00033[\text{s}]$  ごとに示したものである. 撮影領域は, Fig. 5-18(e)で示す赤枠内に相当する地域である. 本画像は, 第4章 4-1 で述べたデジタル高速度カメラ k II-EX (カトウ光研) ではなく, 同じくカトウ光研製のデジタル高速度カメラ k 5 を用いた[12]. L字型流路屈曲部上流側の気泡表面上を, 毎秒 30000 フレーム (シャ

ッター速度 1/50000[s]) で撮影した。このような実験機材の一部変更を行った理由として、第 4 章 4-1 で述べたデジタル高速度カメラ k II -EX を用いた場合には、以下の問題が生じたと思われる。

このとき、実験画像は 20 倍の顕微鏡レンズ (Nikon CFI Plan Apo  $\lambda$  20x,NA; 0.75) を用いて、画像サイズ 240×160[pixels], 1 秒間に 3000 フレームの条件で取得することになる。この条件では、1[pixel]当たりの距離は、約 0.5[ $\mu$ m]相当となる。実験画像中の旋回流の流速が 20.0[mm/s]を超えている場合、トレーサー粒子の 1 フレーム間の移動距離は 13[pixel]を超えることになる。この場合、画像相関法に対する「相関係数」を適切な値 (目安として、1 フレーム間の移動距離; 最大 10[pixel]以内、理想は 5[pixel]程度) に保つことは困難となる。このため、正確に流速を評価するためには、1 秒間の撮影フレーム数を増やす必要があった。1 秒間に 3000 フレームではフレーム数が不足していると思われる。これらの影響を避けるため、この実験のみ高速度カメラの機種変更を行い、実験画像を取得した。PIV の解析手法は、「全画像変形法」を用いた[6,7]。

Fig. 5-19 から、L 字型流路屈曲部上流側の渦流の詳細な PIV 解析が得られた。また、この渦流れの概形は、第 2 章 2-2 に示したストークス近似にて計算された結果に、形状、流れ方向共に極めて近い。トレーサー粒子の挙動から、酢酸水溶液 (側) に発生した渦流れ内に取り込まれ、混合される純水の量は、あまり多くないことを示している。これは、Case 1 での結果と同様、第 2 章で示した遅い粘性流中の気泡周辺に対するストークス近似の結果から、渦流れの外側には、その渦流をなめるように一様流が存在し、両者間の境界における摩擦力は存在しないかのように振る舞うため、渦流は渦流として存在し、渦流れの外側にある流体には、あまりその影響が行使されないため、渦流れ自体での混合促進が図られていないためと考えられる。

気泡表面上に発生した渦流れは、周期的に発生と消滅を繰り返していることが確認できる。PIV 解析結果から渦流れ外縁部の流速を確認するため、Fig. 5-21, 22 に、Fig. 5-20 に示す、実験画像各フレーム内の赤枠で囲った部分の速度計測値を 1 フレーム毎に 2000 フレーム分を表したグラフを示す。

Fig. 5-21, 22 から、この小領域内において、速度が周期的に変化していることが分かる。このグラフはマランゴニ対流により生じる渦流れの発生周期をも表していることになる。とくに、Fig. 5-21 において明瞭であるが、この周期的な流れは、流れ 1 周期内にデルタ関数と正弦曲線が合わさったかのような二つの速度ピークが現れる非常に特殊な概形が計測された。デルタ関数に見られるような 10 フレーム (1/3000[s]間) 程度で速度が極大に達する流れは、その最大流速が 60.0[mm/s]以上と、その空間スケールを考える非常に高速である。また、これは前述したように大体 10 フレーム以内で最高速度に達していること



から、これはマランゴニ対流の発生により生じた流れであると考えられる。一方、正弦曲線に見られるような概形を描く流れにおいても、PIV 解析により、その最大流速は 20.0[mm/s]以上とかなり速いことが確認された。この流れは、マランゴニ対流により引き起こされた旋回流が、一定時間維持され、減衰するまでの流れの概形を表していると考えられる。この流れの概形は、旋回流を維持するためには、20.0[mm/s]程度の流速が必要であり、それ以下では旋回流を維持できないことを示していると考えられる。

デルタ関数のような鋭い概形を持つ流れのピークは、フレーム No. 102～2271 の 2169 フレーム間に 4 回記録されており、1 フレーム間の時間は 1/30000[s] であることから、この渦流れの平均発生周期は、 $1/30000[\text{s/frame}] \times (2271)[\text{frame}] \div 4 = 0.018 [\text{s}]$  であり、Fig. 18 で示した結果よりも短いことが確認された。この結果は、30000[fps]で撮影された画像からの結果であり、さらに、PIV 測定データから直接書き出して得られた結果から得られたものであるため、その信頼度は Fig. 18 で示した結果よりも高いと思われる。

以上から、流れと逆方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験での渦流の発生周期  $T[\text{s}]$  は流れと同方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験時のそれとは異なり、 $T=0.018 [\text{s}]$  (但し、 $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.48$ ,  $Sc=1112.90$  時) として結論付けられる。

本実験条件においても、この渦流れの発生には周期性があることが PIV 解析により確認された。周期性を持つ理由としては、流れと同方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験である Case 1 同様、流路内気泡表面 (気液自由界面) 上の表面張力分布、即ち二試液間の濃度分布の非定常性に関係があると考えられる。ある瞬間に決定された二試液間の濃度分布により、マランゴニ対流によるマイクロ混合流が発生する。しかし、その混合促進により、気泡表面上の液相の濃度分布は均一になる。マランゴニ対流は表面張力勾配により発生するため、液相内濃度分布の均一化は、マランゴニ力消失につながり、マイクロ混合流が停滞することになる。これは、実験初期の条件そのものであるため、時間の進展に従って、気泡周辺には再び不均一な二試液間の濃度分布が醸成され、マランゴニ対流が発生し、以下周期的に繰り返されると考えられる。

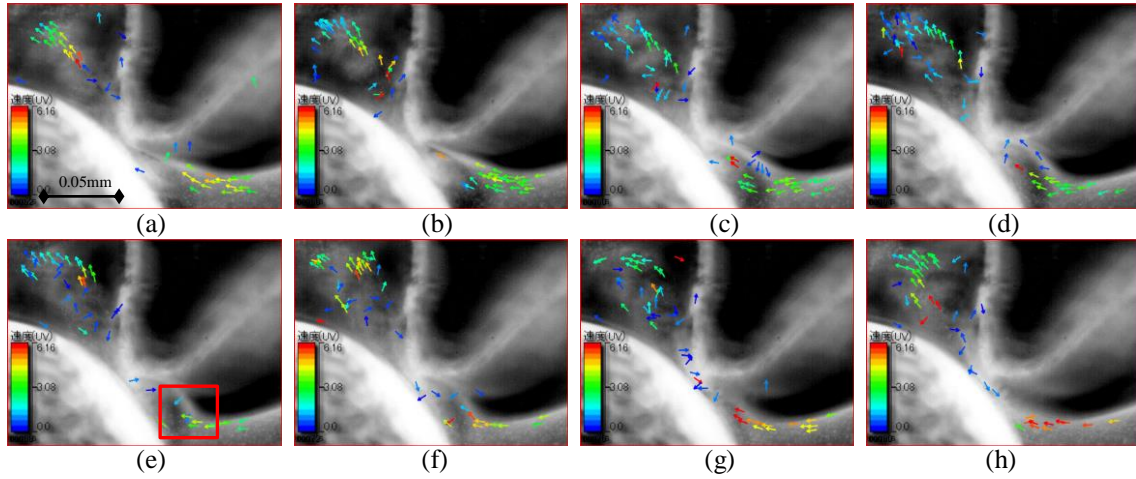


Fig. 5-18 The series of high-speed photos with the PTV analysis of flow velocity every 0.002[s] from (a) to (h), volume flow rate; 2.5 $\mu$ l/min in each inlets ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.60$ ,  $Sc=1112.90$ ), frames per second; 1000[fps][7]

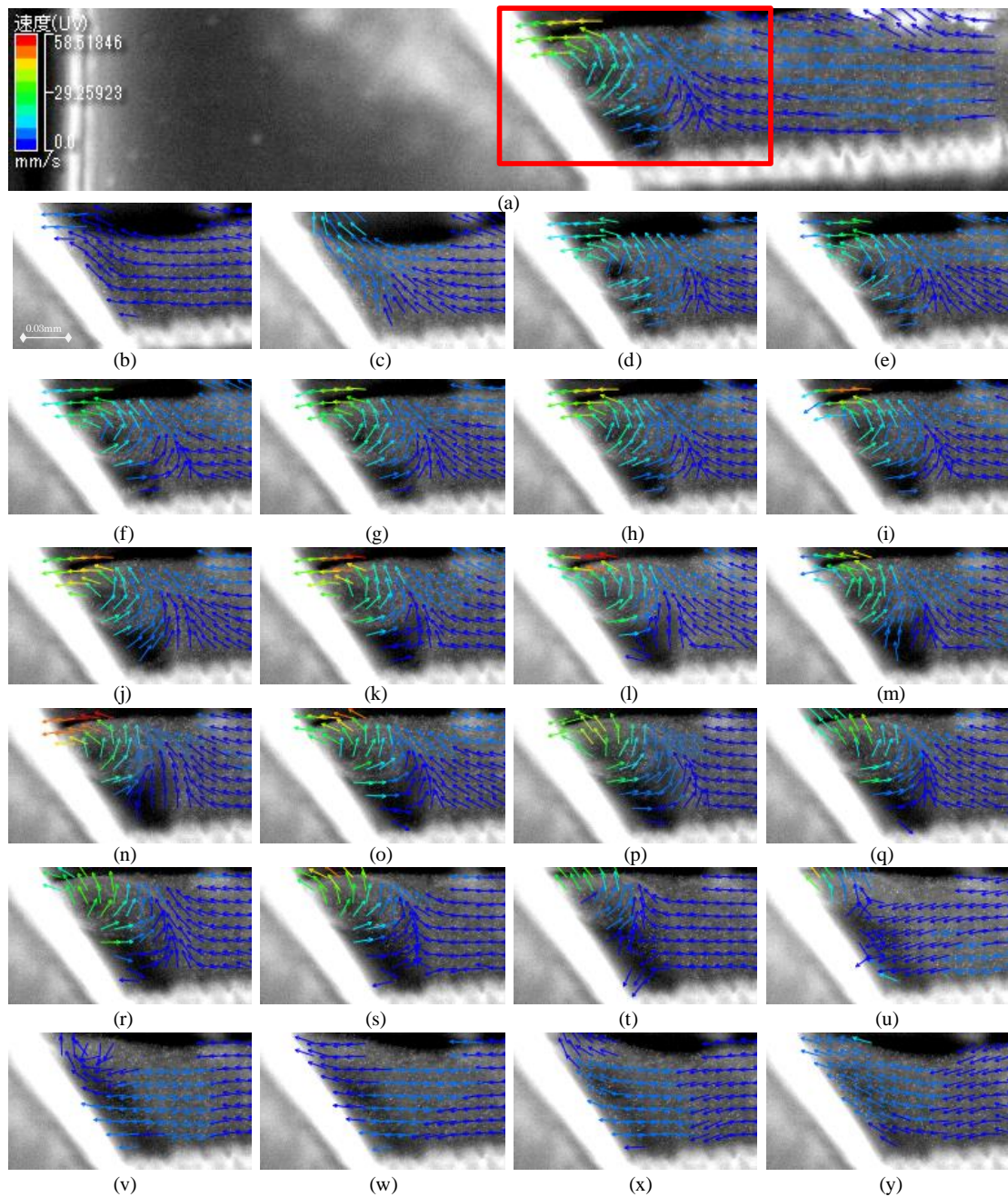


Fig. 5-19 The series of high-speed photos with the PIV analysis of flow velocity every 0.0033[s] from (b) to (y) at the area in the red frame described in (a), volume flow rate; 2.0 $\mu$ l/min in each inlets ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.48$ ,  $Sc=1112.90$ ), frames per second; 30000[fps]

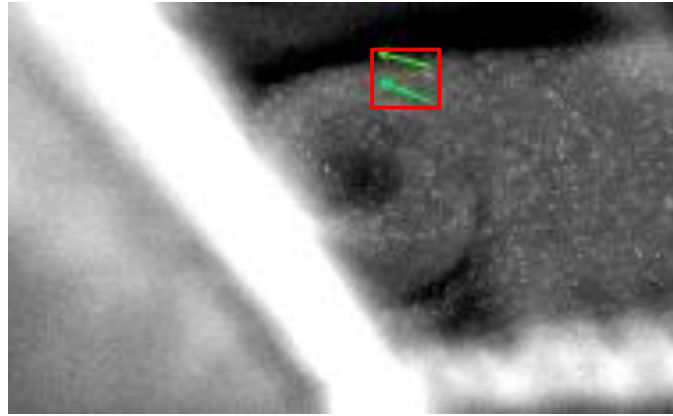


Fig. 5-20 A high-speed photo (Frame number; 2279) with two velocity vector (Lattice number; 241[bellow] and 272[above]) of a flow visualized experiment with PIV analysis, volume flow rate;  $2.0\mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.48$ ,  $Sc=1112.90$ ), frames per second; 30000[fps]

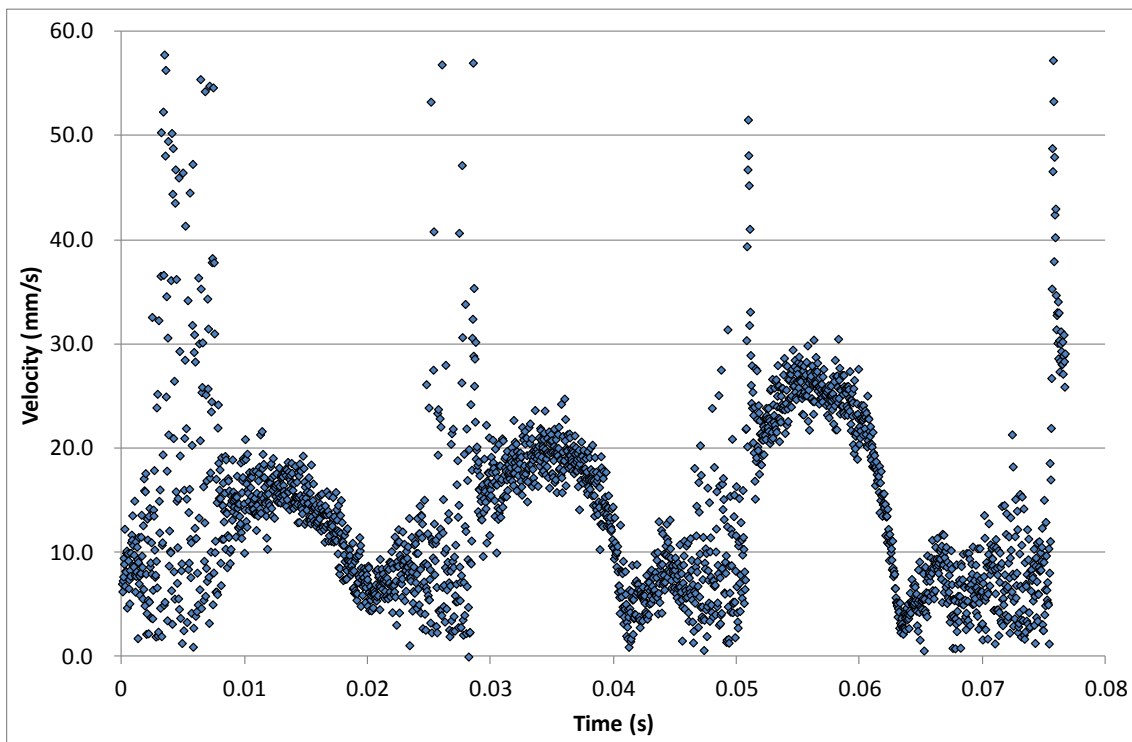


Fig. 5-21 The result of PIV analysis of flow velocity at lattice number 241 (in the red frame area described in Fig. 5-20) of every photo, volume flow rate;  $2.0\mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.48$ ,  $Sc=1112.90$ ), frames per second; 30000[fps]

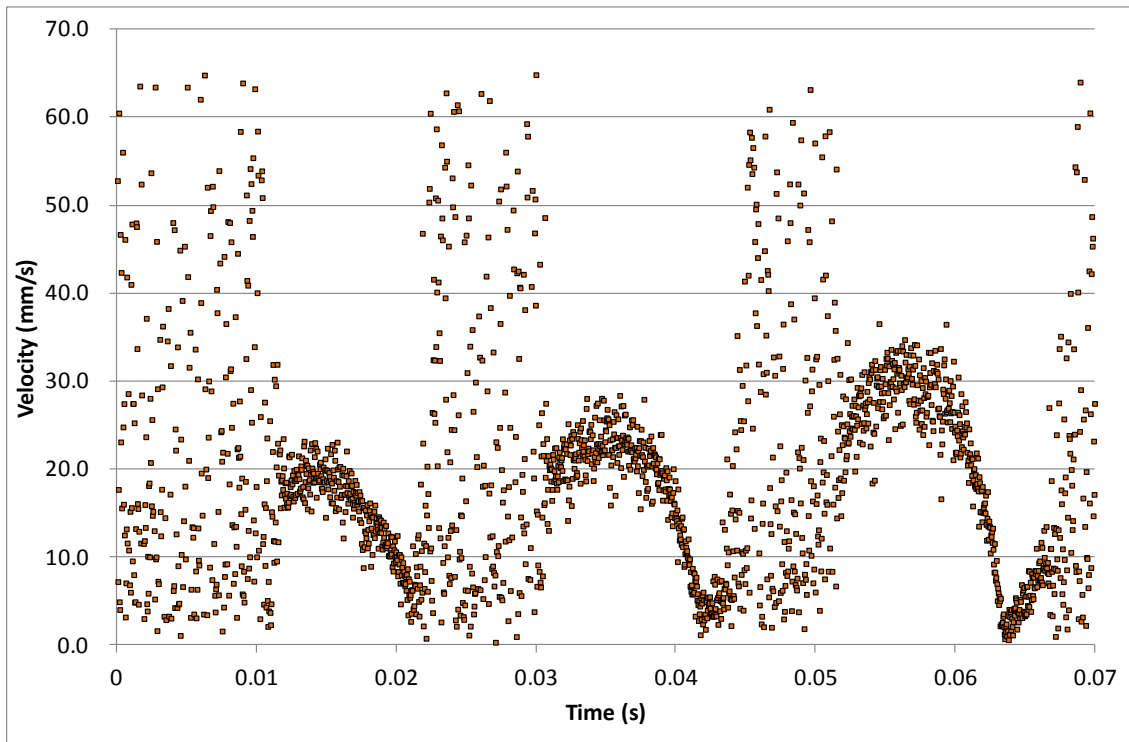


Fig. 5-22 The result of PIV analysis of flow velocity at lattice number 272 (in the red frame area described in Fig. 5-20) of every photo, volume flow rate;  $2.0\mu\text{l}/\text{min}$  in each inlets ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.48$ ,  $Sc=1112.90$ ), frames per second; 30000[fps]

## 5-5 周期的な流れ場発生を考慮に入れた次元解析

Case.1, Case. 2 ともに流れには周期性を伴っていることが確認された。流れの振動数  $f$  [ $t^{-1}$ ] を物理量に加えて、第 5 章 5-2-1 で試みた次元解析を再び行ってみる[11].

本実験系に関係すると思われる物理量を次元とともに示すと、以下のようになる。

表面張力差  $\Delta\sigma$  [ $M^1 \cdot t^{-2}$ ], 代表長さ  $x$  [ $L^1$ ], 密度  $\rho$  [ $M^1 \cdot L^{-3}$ ], 粘性係数  $\mu$  [ $M^1 \cdot L^{-1} \cdot t^{-1}$ ], 流路内主流速度  $v$  [ $L^1 \cdot t^{-1}$ ], 拡散係数  $D$  [ $L^2 \cdot t^{-1}$ ], 流れの振動数  $f$  [ $t^{-1}$ ]

基本単位は,  $M$ : 質量,  $L$ : 長さ,  $t$ : 時間である。

物理量が 7 個, 基本単位 3 個であり,  $\pi$  定理により, 独立な無次元数は 4 個となる。

各物理量の指数を  $\pi_1 \sim \pi_7$  として, 次式が無次元になると置く。

$$\{[M^1 \cdot t^{-2}]^{\pi_1} [L^1]^{\pi_2} [M^1 \cdot L^{-3}]^{\pi_3} [M^1 \cdot L^{-1} \cdot t^{-1}]^{\pi_4} [L^1 \cdot t^{-1}]^{\pi_5} [L^2 \cdot t^{-1}]^{\pi_6} [t^{-1}]^{\pi_7}\} \cdots (5-10)$$

上の式が無次元になることから, 次の式が得られる。

$$\left. \begin{array}{l} M \text{の指数: } \pi_1 + \pi_3 + \pi_4 = 0 \\ L \text{の指数: } \pi_2 - 3\pi_3 - \pi_4 + \pi_5 + 2\pi_6 = 0 \\ t \text{の指数: } -2\pi_1 - \pi_4 - \pi_5 - \pi_6 - \pi_7 = 0 \end{array} \right\} \cdots (5-11)$$

これを,  $\pi_1, \pi_4, \pi_6, \pi_7$  に付いて解く。

$$\pi_2 = -\pi_1 - \pi_4 - \pi_6 + \pi_7$$

$$\pi_3 = -\pi_1 - \pi_4$$

$$\pi_5 = -2\pi_1 - \pi_4 - \pi_6 - \pi_7$$

これらの結果を, 式(5-11)に代入すると

$$\begin{aligned} & \Delta\sigma^{\pi_1} x^{-\pi_1 - \pi_4 - \pi_6 + \pi_7} \rho^{-\pi_1 - \pi_4} \mu^{\pi_4} v^{-2\pi_1 - \pi_4 - \pi_6 - \pi_7} D^{\pi_6} f^{\pi_7} \\ &= \{ \Delta\sigma / (x\rho v^2) \}^{\pi_1} \{ \mu / (x\rho v) \}^{\pi_4} \{ D / (xv) \}^{\pi_6} \{ (fx)/v \}^{\pi_7} \\ &= \{ \Delta\sigma x / (x^2\rho v^2) \}^{\pi_1} \{ \mu / (x\rho v) \}^{\pi_4} \{ D\mu / (\mu x v) \}^{\pi_6} \{ (fx)/v \}^{\pi_7} \\ &= \{ \Delta\sigma x / (x^2\rho v^2) \}^{\pi_1} \{ \mu / (x\rho v) \}^{\pi_4} \{ D\mu / (\mu x v) \}^{\pi_6} \{ (fx)/v \}^{\pi_7} \\ &= \{ (\Delta\sigma x / \mu D) (\mu D / x^2\rho v^2) \}^{\pi_1} \{ \mu / (x\rho v) \}^{\pi_4} \{ D\rho\mu / (\rho\mu x v) \}^{\pi_6} \{ (fx)/v \}^{\pi_7} \\ &= \{ (\Delta\sigma x / \mu D) (\mu / x\rho v) (D / xv) \}^{\pi_1} \{ \mu / (x\rho v) \}^{\pi_4} \{ (D\rho/\mu) (\mu/\rho x v) \}^{\pi_6} \{ (fx)/v \}^{\pi_7} \\ &= \{ (\Delta\sigma x / \mu D) (\mu / x\rho v) (D\rho/\mu) (\mu/x\rho v) \}^{\pi_1} \{ \mu / (x\rho v) \}^{\pi_4} \{ (D\rho/\mu) (\mu/x\rho v) \}^{\pi_6} \{ (fx)/v \}^{\pi_7} \end{aligned}$$

Marangoni 数  $Ma$ :  $\Delta\sigma x / \mu D$

Reynolds 数  $Re$ :  $x\rho v / \mu$

Schmidt 数  $Sc$ :  $\mu / D\rho$

Strouhal 数  $St$  :  $v/fx$  から

$$= \{Ma \cdot Re^{-2} \cdot Sc^{-1}\}^{\pi^1} \{Re^{-1}\}^{\pi^4} \{Sc^{-1} \cdot Re^{-1}\}^{\pi^6} \{St\}^{-\pi^7} \dots (5-12)$$

よって、マランゴニ対流によるマイクロ混合流生成に関して、流体振動にまで考慮に入れると、この現象を支配する独立な無次元数は4個であり、これらは Marangoni 数  $Ma$ , Reynolds 数  $Re$ , Schmidt 数  $Sc$  に加えて Strouhal 数  $St$  から構成されることが分かる。

Strouhal 数は、流体の周期運動を支配する無次元数である。

この場合、Strouhal 数  $St$  は、振動数  $f$  を 33.3~55.6[1/s]、代表長さ  $l$  を二液合流部の入り口流路幅である 0.07mm とすると、実験系内の流速により  $St$  : 0.82~2.45 の範囲にあることが分かり、比較的近似した領域にあることが確認できる。

実験系を代表する無次元数と主要パラメーターの関係を Table 5-5 に示す。

Table 5-5. The relations between the range of dominant dimensionless numbers and the condition of the main parameters in the experiment system including oscillate flow

Reference Dimensionless Number	$\Delta\sigma$ [N/m] $\times 10^{-3}$	$ul$ [m <sup>2</sup> /s] $\times 10^{-6}$	$\mu$ [Pa·s] $\times 10^{-3}$	$D$ [m <sup>2</sup> /s] $\times 10^{-9}$	$\rho$ [kg/m <sup>3</sup> ]	$u$ [m/s] $\times 10^{-3}$	$l$ [m] $\times 10^{-5}$	$f$ [1/s]
$Ma=4090.70\sim 940860.22$	0.1~23.0	-	1.38	1.24	-	-	7.0	
$Re=0.12\sim 0.60$	-	0.17~0.67	1.38	-	1000.00	-	-	
$Sc=1112.90$	-	-	1.38	1.24	1000.00	-	-	
$St=0.82\sim 2.45$	-	-	-	-	-	2.38~9.52		33.33~55.56

## 5-6 本章のまとめ

この章のまとめとして、以下のことが確認された。

- ・ 第4章で詳述した実験系により、マランゴニ対流を主流と同方向に発生させるとき、逆方向に発生させるときの2種類の条件を設定して流動実験を行った。
- ・ 実験に先立ち、実験系を支配する無次元数とその主要パラメーターを特定するための次元解析を実施し、設定した実験条件にて、その代表する無次元数を値を計算した。その結果、本実験系は、**Marangoni 数**, **Reynolds 数**, **Schmidt 数**が支配する系であることが分かった。その主要パラメーターは主流内流速、気泡表面上の表面張力勾配、実験系内の代表長さであり、これらを変化させることで、無次元数が大きく変わることが分かった。
- ・ 上記二種の実験条件いずれの場合においても、気液自由界面周辺においてマイクロ混合流の生成に成功し、流れと同方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験では、実験時の試験流体に対する輝度値測定結果から、二試験液間の最大濃度差が50%前後（混合率50%）、流れと逆方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験においては最高60%前後（混合率40%）の長時間、安定した状態での二液の混合が行われた。
- ・ 上記二実験条件においても、流路断面方向の濃度分布に偏りが生じ、必ずしも均質に混合が行われていないことが確認された。これは気泡形状に依存する界面表面上のマランゴニ対流の分布の偏りに因るものと考えられる。
- ・ マイクロ混合流には周期的な流れの変化が起きた。その周期は、流れと同方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験においては、約0.033[s]、流れと逆方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験においては、約0.018[s]であることが、流れ可視化実験とPIV解析により確認された。
- ・ マランゴニ対流により試験流路内に生じる渦流れの概形は、ストークス近似により計算される流れの概形に近い形状であることが観察により分かった。その渦流れ外縁部の流速はPIV解析から、流れと逆方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験においては、1周期内にデルタ関数に見られるような鋭い速度ピークと正弦曲線のような速度ピークを併せ持つ流れの概形を持ち、その最大流速は20~70[mm/s]に達することが確認された。



## 第 5 章の参考文献

- [1] Yamada. T and Ono. N, 2015, A Study on Micromixing Utilizing Marangoni Effect Induced on Gas-Liquid Free Interfaces, ASME; Journal of Micro and Nano-Manufacturing. J. Micro Nano-Manuf. **3**, 021003, doi:10.1115/1.4029684
- [2] Takashi Yamada, Naoki Kato, Kazuki Takeda and Naoki Ono, Study on a Micromixing Device Utilizing Surface Tension Effect on Gas-Liquid Free Interface, *Eighth International Conference on Flow Dynamics Proceedings*, pp493-494, November 9-11, 2011, Hotel Metropolitan, Sendai , Miyagi, Japan
- [3] Takashi Yamada and Naoki Ono, A Study on the Effect of Surface Tension on Gas-Liquid Free Interface in the Application of Micromixing, *Ninth International Conference on Flow Dynamics Proceedings* pp. 638-639, September 19-21, 2012, Hotel Metropolitan, Sendai, Miyagi, Japan
- [4] Yamada. T and Ono. N, VISUALIZATION AND MEASUREMENT OF THE MICROMIXING FLOW ON A GAS-LIQUID FREE INTERFACE CAUSED BY THE MARANGONI EFFECT, *24th International Symposium on Transport Phenomena*, pp. 860-866, November 1 - 15, 2013, Yamaguchi Tokyo University of Science, Ube, Yamaguchi, Japan
- [5] 山田崇, 小野直樹, 「気液自由界面上に発生する表面効果のマイクロ混合促進への応用.」, 公益社団法人化学工学会第 44 回秋季大会, 2012 年 9 月 19 日, 東北大学 (宮城県仙台市)
- [6] 山田崇, 小野直樹, 「気液自由界面上に発生するマランゴニ効果によるマイクロ混合流の可視化」, 公益社団法人化学工学会第 45 回秋季大会, 2013 年 9 月 16 日, 岡山大学 (岡山県岡山市)
- [7] 山田崇, 小野直樹, 「気液自由界面上で生成されるマランゴニ対流を用いたマイクロ混合流の高効率化.」, 公益社団法人化学工学会第 79 年会, 2014 年 3 月 18 日, 岐阜大学 (岐阜県岐阜市)
- [8] 吉田純一監修, ” マイクロリアクターの開発と応用”, シーエムシー出版, 2008. pp. 40-41.
- [9] 今石宣之, マランゴニ対流の基礎, *Int. J. Microgravity Sci. No. 31 Supplement* 2014 (S5-S12).
- [10] Bird. R. B, Stewart.W. E, and Lightfoot. E. N, *Transport Phenomena second edition*, 2006, WILEY.
- [11] 甲藤好郎, ” 伝熱概論”, 養賢堂, 1983. Pp.47-55.
- [12] [http://www.kk-co.jp/detail/k5\\_.php](http://www.kk-co.jp/detail/k5_.php)

## 第6章 CFD解析

この項は

- ・ 6-1 マランゴニ対流による混合流生成プロセスの考察
- ・ 6-2 CFD解析モデルの構築
- ・ 6-3 CFD解析結果
- ・ 6-4 気泡表面で生成されるマイクロ混合流の「周期的な」変化の発生メカニズムとその発生周期に対する考察
- ・ 6-5 本章のまとめ

の五項で構成されている。

## 6-1 マランゴニ対流による混合流生成プロセスの考察

第5章から、実験条件 "Case 1", "Case2" 両方において、マランゴニ対流によるマイクロ混合流に周期的な変化が生じ、これにより気液自由界面周辺の流れに周期的な振動流が観察された。これは本研究で扱うマイクロ混合流を特徴付ける重要な現象であると考えられる。

この現象の発生については、第2章、第5章での議論から、以下のような仮説が成り立つと考えられる(Fig. 6-1 参照)。

- (1) 表面張力値の異なる二液体を L 型流路の屈曲部に層状に流入させる。  
その時に、気液自由界面が形成される。
- (2) L 型流路の屈曲部に層状に流入された、表面張力値の異なる二液体により気液自由界面（気泡表面）上には表面張力勾配が発生する。 [Fig. 6-1(a)]
- (3) この表面張力勾配により、マランゴニ対流が発生する。 [Fig. 6-1(b)]
- (4) マランゴニ対流により、気液自由界面（気泡表面）周辺の2液体の混合が進展する。それに伴い、気液自由界面上に展開する表面張力勾配が小さくなる。 [Fig. 6-1(c)]
- (5) 周囲の流れに埋もれる形で、マランゴニ対流によるマイクロ混合流が消失する。その結果、気泡周辺の流れは、気泡形成時と同様、初期条件と同様、一様流となる。 [Fig. 6-1(d)]
- (6) 流れの進展に伴い、気液自由界面上には、再び表面張力勾配が構築され、マランゴニ対流が発生する。 [Fig. 6-1(e)]

以上のプロセスが、一定周期で繰り返されると考えられる。

但し、本研究においては、流動実験中に気泡周辺部の流れ内における二試験流体間の濃度分布を測定する手段を持たないため、実験により上記の仮説を検証することが困難である。

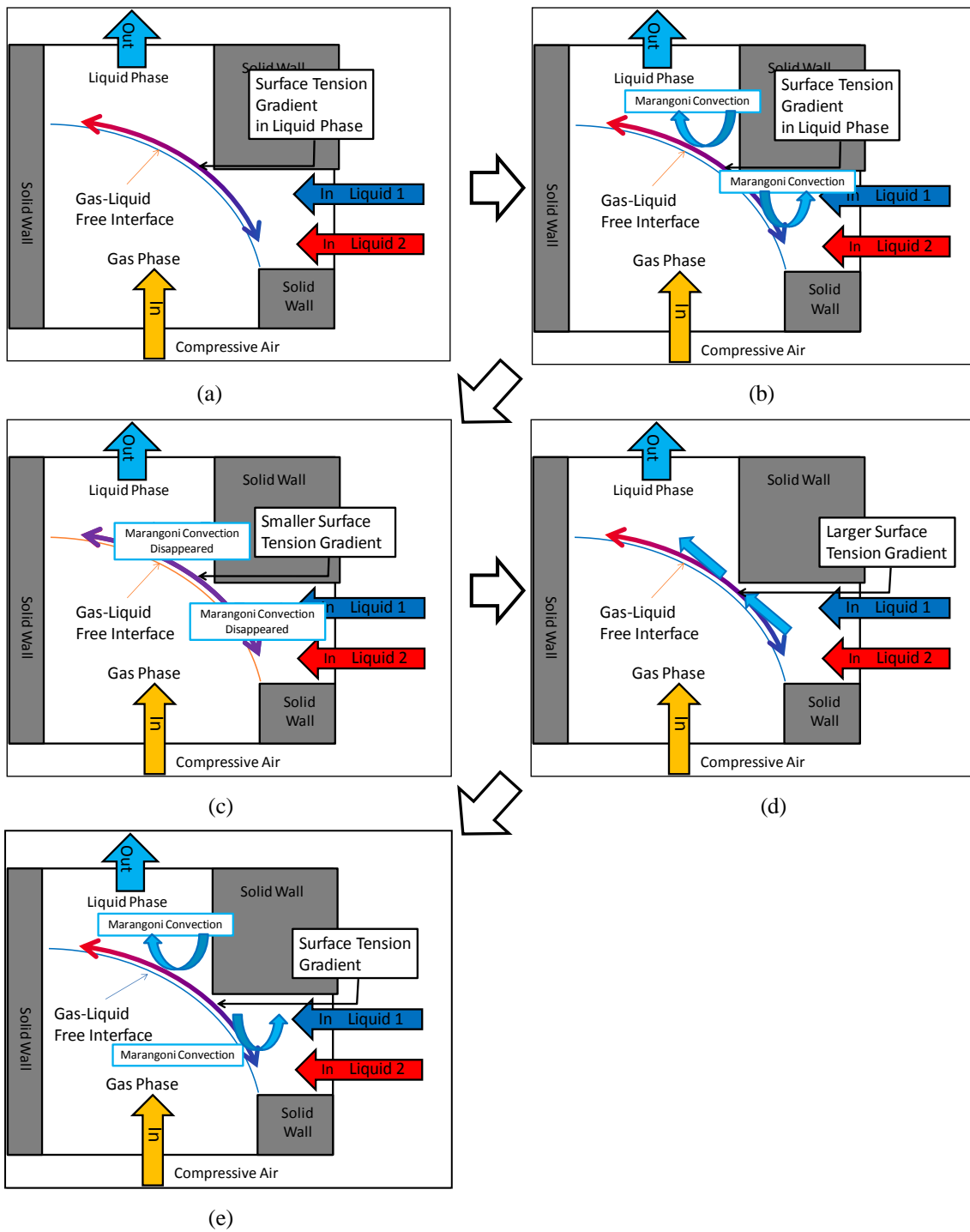


Fig. 6-1 assuming process for the "periodic" micromixing flow, (a) development of surface tension distribution on a gas-liquid free interface, (b) causing micromixing flow by Marangoni convection, (c) Disappeared micromixing flow by mixing promotion, (d) reconstruction of the surface tension distribution, (e) causing micromixing flow by Marangoni convection

## 6-2 CFD 解析モデル

本研究では、第2章で述べた通り、気泡表面上の流れ内における、表面張力の異なる二液体間による表面張力差によるマイクロ混合流生成が研究課題となる。上記課題に対する有効なアプローチとしては、流動実験中に二試験流体間の濃度分布を測定することが望ましい。しかし、本研究においては、実験中での二試験流体間の濃度分布を測定する手段を持たないため、実験により上記の仮説を検証することが困難である。このため、上記仮説の検証手段として、簡単な三次元 CFD モデルによる数値解析を行うこととした[1]。

### 6-2-1 CFD 解析モデルの概念

流動実験時の2液合流部での流れの解析には、有限体積法を用いた CFD による非定常計算を行った。液相内に拡散係数を設定し、(6-1)式に示す非圧縮流体(ニュートン流体)に対する運動量保存式(Navier - Stokes equation)と式(6-2)に示す質量輸送の基礎方程式を各セル間で連立させた单相流解析とした。

このような解析モデルを採用した理由として第一に、第4章4-2 Table 4-2 から、実験で用いた2試液はともに「水溶液」であり、水に可溶性であるため液相間のスリップはほぼ存在しないと考えられる。次に酢酸 30wt%水溶液の粘性係数は、純水の約 1.75 倍ではあるが、その密度は、ほぼ同一であること、また実験状況から、二液間の界面張力の変化に依る液-液界面形状の変化を無視することが出来ると判断できること。以上の三点の仮定の下で、单相流解析 CFD モデルを構築した。したがって、マランゴニ対流による濃度分布の変化から生じると予想される、界面張力差による(特に流路断面方向に対する)液-液界面形状の変化による流れへの影響は、この計算では反映されないこととなる。

気液自由界面(気泡表面)の取り扱いについてであるが、実験中の気泡形状については、第3章で述べているように、気相内の圧力をマイクロシリッジにて適宜制御することにより、極力その界面形状を保っている。しかし実際には、実験時において気泡は上下に動くことがある。気相内圧力を調整して、可能な限り気泡表面形状の維持を試みているが、完全ではない。

それでも CFD における気泡表面の取り扱いを、固体面としている理由は、この混合流生成デバイスにより生じる周期的な対流生成に関して、液相内主流とマランゴニ力により気泡表面に生じるせん断流の関係性から考察するべきであると考えたからである。

第5章5-2-1に示す「次元解析」において、本研究に用いた実験系は、少なくとも液相内においては、Marangoni数( $Ma$ )、Reynolds数( $Re$ )、Schmidt数( $Sc$ )、振動周期をも考慮すれば、Strouhal数( $St$ )が支配する系として導かれた。以上から、この実験系に現れた、周期的に生成されるマイクロ混合流は、液相内主流の流れと気泡表面に発生するマランゴニ対流との関係性に、その主たる要因

があると考えられる。その関係性による影響を確認するために、比較的単純で、かつ実績のある計算アルゴリズムである、単相流を用いた解析モデルを採用した。

気液界面間での物質のやり取り、例えば揮発しやすい有機物である酢酸 ( $\text{CH}_3\text{COOH}$ ) の気液界面間の移動による、気液界面上の液相内の酢酸濃度の分布、吸着[6]に対する影響については、実験状況から無視できる範囲にあると判断される。このとき、気液界面を、一般に気液間の圧力差により変形することを前提とした移動境界として表現する必要はなく、またその場合、気液2相流として扱う必然性がなくなる。

この計算は、実験時の物理的な状態を全て再現することを目的としていない。これを目的とするとき、気液自由界面を表現する手段として気液連続層の二相流解析を選択することが自然であると考えられる[4]。しかし、本解析は、流動実験中における振動流発生に関するメカニズムを第6章6-1で示した仮説に対して検証することを目的とするものであり、そのメカニズムを組み込んだ簡易 CFD モデルの計算結果を実験結果と比較することで、この振動現象の主因を検証することを目的としている。これを行うために、境界条件に関して大胆な解釈をすることにより、単相流計算による CFD モデルを構築している。

気泡表面を構築するオブジェクトについては、その境界条件として、固体表面でのせん断力を0としており、事実上、スリップする表面を用いた計算として行った。また、本研究で扱う微小空間内では、慣性力（重力）の影響が無視できると仮定される。

## 6-2-2 CFD 解析計算手法

第 6 章 6-2-1 で述べた方針の下，以下に述べる手法を用いて三次元非定常計算手法を行った。

まず，ナビエ・ストークス方程式である(6-1)式，移流拡散方程式である(6-2)式を各計算セル内に離散式として配置し，これを連立して解くことで，計算領域内部の速度と濃度分布を解いている。

$$\frac{\partial \rho \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot (\nabla \mathbf{u}) = \mu \nabla^2 \mathbf{u} - \nabla p_{liq} + S_\phi \quad \dots(6-1)$$

$$\frac{\partial \omega_i}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u} \omega_i) = \rho D \nabla^2 \omega_i \quad \dots(6-2)$$

但し， $t$ : 時間[s]， $p_{liq}$ : 液相内の圧力[Pa]， $\mathbf{u}$ : 流体の速度ベクトル[m/s]， $\rho$ : 密度[kg/m<sup>3</sup>]， $\mu$ : 粘性係数[Pa・s]， $\omega_i$ : 質量分率， $D$ : 拡散係数[m<sup>2</sup>/s] である。

混合デバイス内に発生するマランゴニ応力については，気液二相流の理論を用いた自由界面による表面張力計算には依らず，第 4 章 4-2，Table. 4-2 に示した酢酸水溶液の濃度変化に依る表面張力の測定値の分布に対する近似式を用いて，隣り合うセル間の濃度差から表面張力を評価し，該当セル間の表面張力値の差からマランゴニ力を計算し，これを(6-1)式の生成項に組み込むことにより，マランゴニ応力による混合デバイス内の流れと混合の影響についてのシミュレーションを行っている。

具体的な手法として，気液自由界面上で 2 液の濃度差によりマランゴニ対流が発生する場所に該当するセルには，Fig. 6-2 の通り，そのセルの上端に隣接するセルとの濃度差により発生するせん断力をソースとする速度境界を設けている。

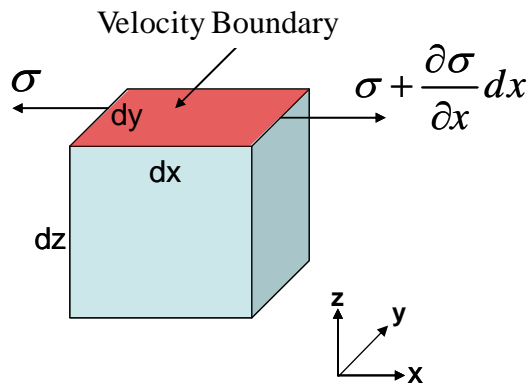


Fig.6-2 discretization method at each calculation cell on the bubble object to estimate shearing force by Marangoni effect which depends on concentration distribution near the calculation cell

上記に記した気液界面オブジェクト上のせん断速度境界は, (6-1)式内にある生成項 ( $S_\phi$ ) で取り扱われる. 生成項となるせん断力の評価は, Fig. 6-2 に示される速度境界面の  $x$  方向におけるマランゴニ力  $f_x$  については, 式(6-3)で評価される.

$$f = \left( \sigma + \frac{\partial \sigma}{\partial x} dx \right) dy - \sigma dy = \frac{\partial \sigma}{\partial x} dx dy \quad \dots(6-3)$$

本計算では, 該当セルに対して表面張力値を与えるため, 拡散濃度から算出される表面張力値の評価関数;  $ST[C]$ を導入している. 評価関数  $ST[C]$ は, Fig. 6-3 に示す酢酸水溶液の濃度に対する表面張力の分布に対する近似値関数が,  $C$ を該当するセルの中心における濃度値と置いて, 次の式(6-4)で表される.

$$ST[C] = -0.1571C^3 + 0.2397C^2 - 0.1378C + 0.0690 \quad \dots(6-4)$$



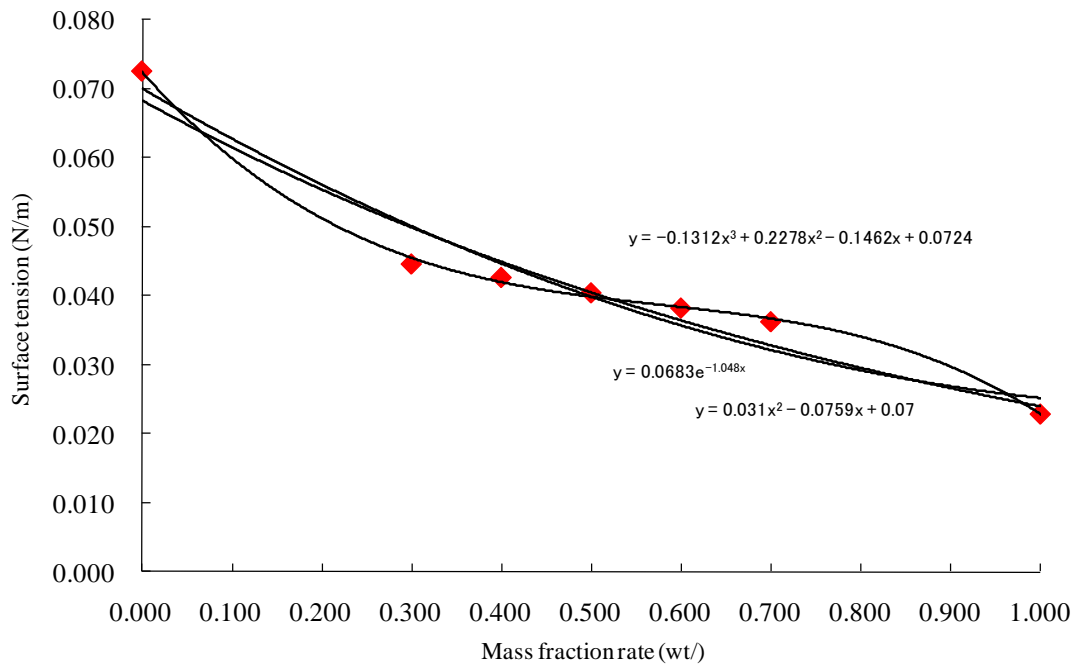


Fig. 6-3 surface tension distribution of acetic acid aqueous solution for different mass fraction rate

Fig. 6-4 に示すとおり，速度境界を設置する隣り合うセル内の濃度値  $C(1), C(2)$  に対し，式(6-4)で導かれる  $ST[C(1)], ST[C(2)]$  を，隣り合うセル  $C(1), C(2)$  の中心における表面張力値の判定値であると定義するとき，これらセルに対する表面張力差と  $ST[C]$  の関係は

$$\left( \sigma + \frac{\partial \sigma}{\partial x} dx \right) - \sigma \cong ST[C(2)] - ST[C(1)] \quad \dots(6-5)$$

とすることができる。(但し， $\sigma$  ; 表面張力[N/m])

従って，マランゴニカに相当するせん断力  $f$  は， $ST[C]$  を用いて，式(6-6)のように表される。

$$f = \left( \sigma + \frac{\partial \sigma}{\partial x} dx \right) dy - \sigma dy = \frac{\partial \sigma}{\partial x} dx dy$$

$$\frac{\partial \sigma}{\partial x} = \frac{ST[C(2)] - ST[C(1)]}{dx} (= \tau)$$

$$\therefore f = \frac{ST[C(2)] - ST[C(1)]}{dx} dx dy = (ST[C(2)] - ST[C(1)]) \cdot dy \quad \cdots(6-6)$$

(6-6)式で評価された値は、Fig. 6-5 に示す気液自由界面を模した構造物（これを以後、「気泡オブジェクト」と呼ぶことにする）表面上にある各計算格子内において、(6-1)式の生成項に代入される。

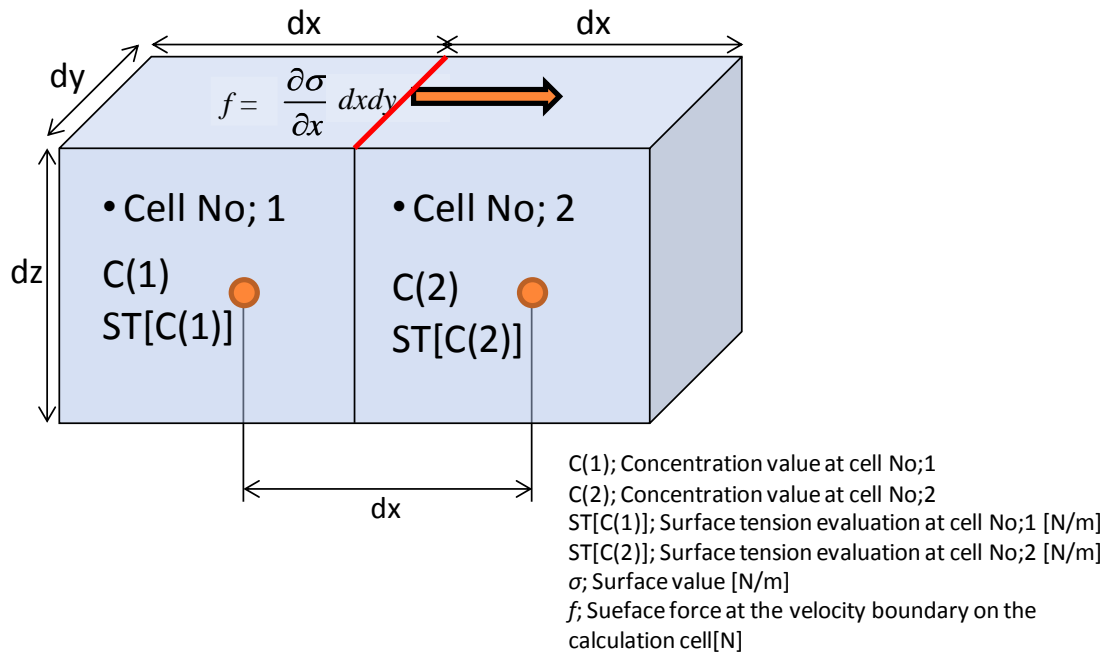


Fig. 6-4 Discretization method of Marangoni force for the calculation domain in the CFD analysis

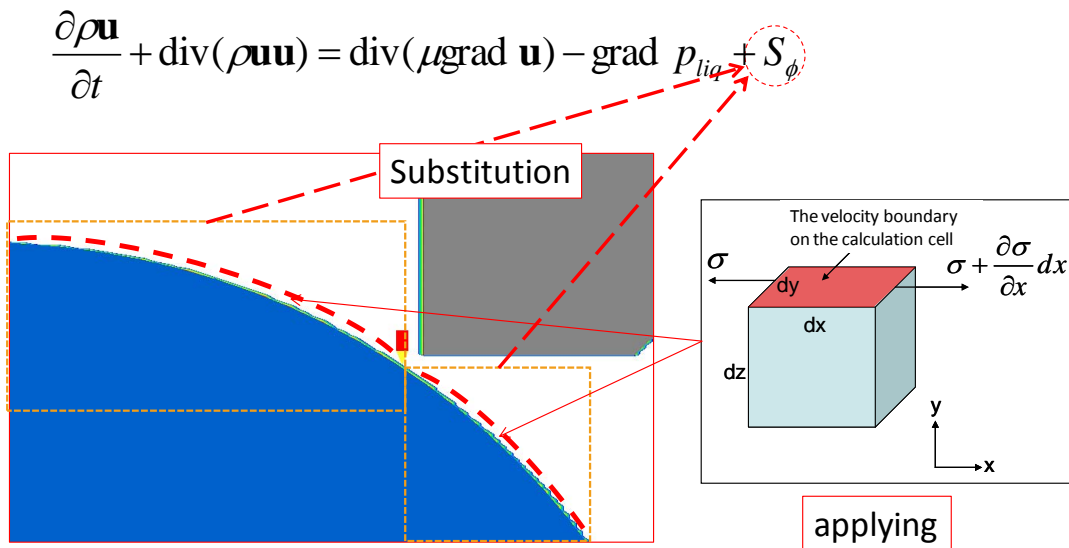


Fig. 6-5 Application for the Marangoni force in the CFD model

### 6-2-3 解析モデルの構築

計算モデルは、汎用熱流体解析ソフト「PHOENICS」を用いて構築した[2,3]. デカルト座標系上に  $x = 0.4\text{mm}$ ,  $y = 0.3\text{mm}$ ,  $z = 0.12\text{mm}$  の計算領域を設定し, その内部に 3次元解析モデルを構築した[1]. 解析モデルを Fig. 6-6 に示す. 解析モデル内において, 計算セルは各座標に対して,  $x$ ; 250cells,  $y$ ; 300cells,  $z$ ; 50cells を等分に配している. したがって, 計算セルの総数は 3,750,000cells となる. L 型流路の合流部にあたる部分には, 気液界面を模したオブジェクト (Fig. 中の左下方にある淡青色の物体) が置かれる. Fig. 6-5 に示す通り, このオブジェクトの直上に対してのみ, (6-6)式に示す, 濃度依存のマランゴニ力となるせん断力の値  $f$  をソース項として加えている. 流入境界 Inlet1 と Inlet 2 は, Fig. 中に示すように,  $y-z$  平面に縦に並べて設置され, 流入実験に近似した解析条件が形成される.

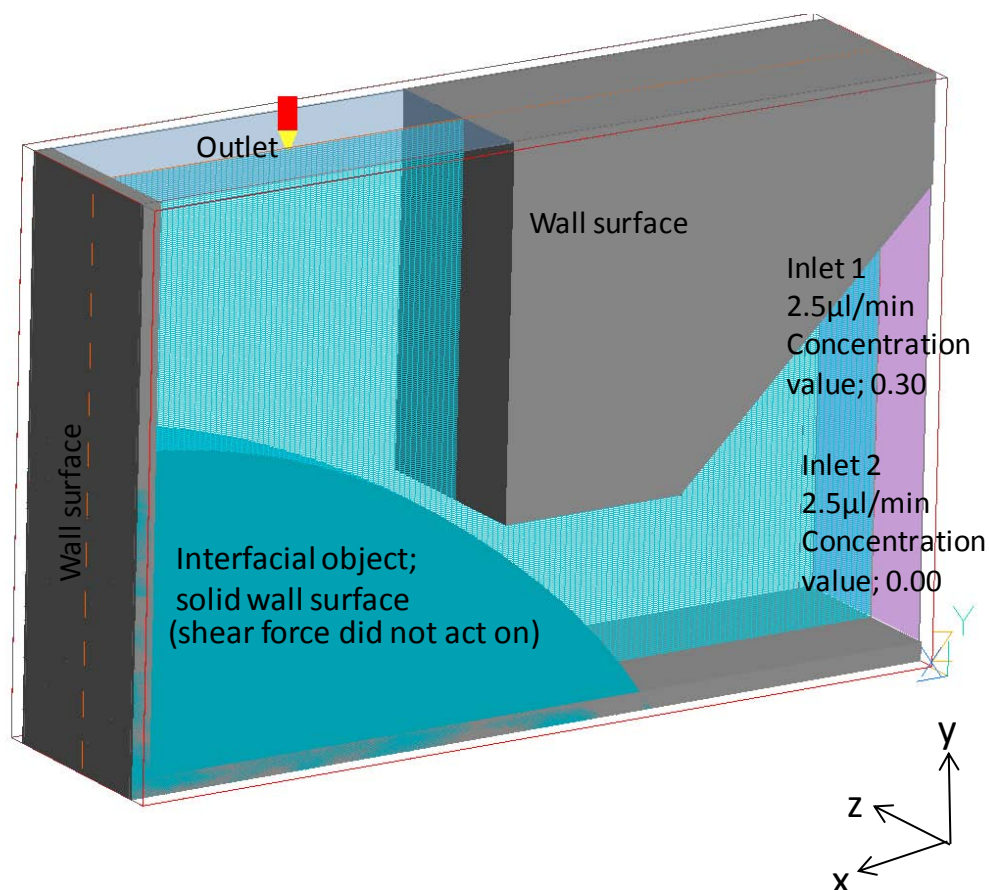


Fig.6-6 the three dimensional CFD model built by “PHOENICS”

Table 6-1. Specifications for the calculation model

Calculation model	One-phase flow
Analysis domain size	0.4[mm]×0.3[mm]×0.1[mm]
Number of cells	3,750,000[cells]
Domain fluid	↓
Density	998.23[Kg/m <sup>3</sup> ]
Kinetic viscosity	1.006×10 <sup>-6</sup> [m <sup>2</sup> /s]
Diffusive coefficient	1.24×10 <sup>-9</sup> [m <sup>2</sup> /s]
Unsteady calculation condition	0.05second by every 0.0005[s]

計算諸元は Table6-1 に示す通りである。計算領域に設定する流体の物性は、基本的に 20℃の純水のそれを使用している。酢酸水溶液は、酢酸の濃度が増加するに従い、その粘性係数も変化するが、この解析モデルでは、それには対応していない。拡散係数は文献値[7]から、酢酸の純水への拡散係数である  $1.24 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  としている。各 Inlet に設定する流体の濃度値は、Fig. 11, 12 に示す通り、濃度値 0.30 に設定した Inlet1 は酢酸 30wt%水溶液が、濃度値 0.00 に設定した Inlet2 は純水が流入することに対応している。これは第 5 章で述べた、Case2、即ち、流れと逆方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験での実験条件に対応している。従って、計算結果は第 5 章 5-4 にて述べた流れ可視化実験の結果（旋回流発生周期；0.2[s]、渦流外縁部流速；20～30[mm/s]）と比較されることになる。この計算モデルを用いた、時間間隔(計算ステップ) 0.0005[s]毎で 0.05 秒間の非定常計算を行った。

### 6-3 CFD 解析結果

気泡オブジェクト周辺部における解析モデル中央部の  $x-y$  平面上の CFD 解析結果を示す。Fig.6-8 に、0.002[s]毎の濃度分布のコンター図と速度ベクトルを、Fig. 6-9 に、0.002[s]毎の速度分布のコンター図と速度ベクトルを、Fig. 6-10 に、0.002[s]毎の  $x$  方向の速度分布のコンター図と速度ベクトルを示す。

Fig.6-8,9,10 から、計算開始から 0.20[s]までは、第 5 章 5-4-3 に示す実験結果に近似した流れが計算された。計算結果から、この流れは気泡オブジェクト右側に現れている旋回流のプロフィールが変化することにより発生しており、その原因として、気泡オブジェクト表面上に展開するせん断流、即ちマランゴニ対流の発生位置が、旋回流の進展に伴って移動するためであることが示されている。したがって、上記した「仮説」にあるようにマランゴニ対流が「消滅」することによるものではないことが示されている。しかし、二周期目以降については、PIV 解析値とは周期、流速とも異なる結果しか得られなかった。

つぎに、Fig. 6-11 内に示す、旋回流外縁部に存在する 1 つの計算格子に注目した。この格子は、位置的には、第 5 章 5-4-3 に示す PIV 解析内の格子 No.241 に対応する (Fig. 5-20 参照)。

この計算格子内での流速の計算値を 0.00[s]~0.16[s]まで表した結果を Fig. 6-12 に、Fig. 6-11 の結果と PIV 解析内の格子 No.241 での測定結果 (フレーム No. 1~600) との比較を Fig.6-12 に、同様に PIV 解析内の格子 No.241 での測定結果 (フレーム No.675~1275) との比較を Fig.6-13 にそれぞれ示す。

Fig. 6-12, 13 から、計算結果の 1 周期目の振動周期は 0.016[s] と、第 5 章 5-4-3 で得られた PIV 解析による振動周期 0.0217[s] と比較してかなり近似した結果が得られた。また、PIV 解析でみられた、デルタ関数のような鋭い立ち上がりを持つ曲線と正弦曲線を合わせたような、2 つのピーク値を持つ特徴的な流速分布に近い、2 つのピークを持つ流れが計算されている。さらに各計算時間での流速についても大体近い値が計算されていることが確認できる。しかし、二周期目以降については、PIV 解析値とは周期、流速とも異なる結果しか得られなかった。

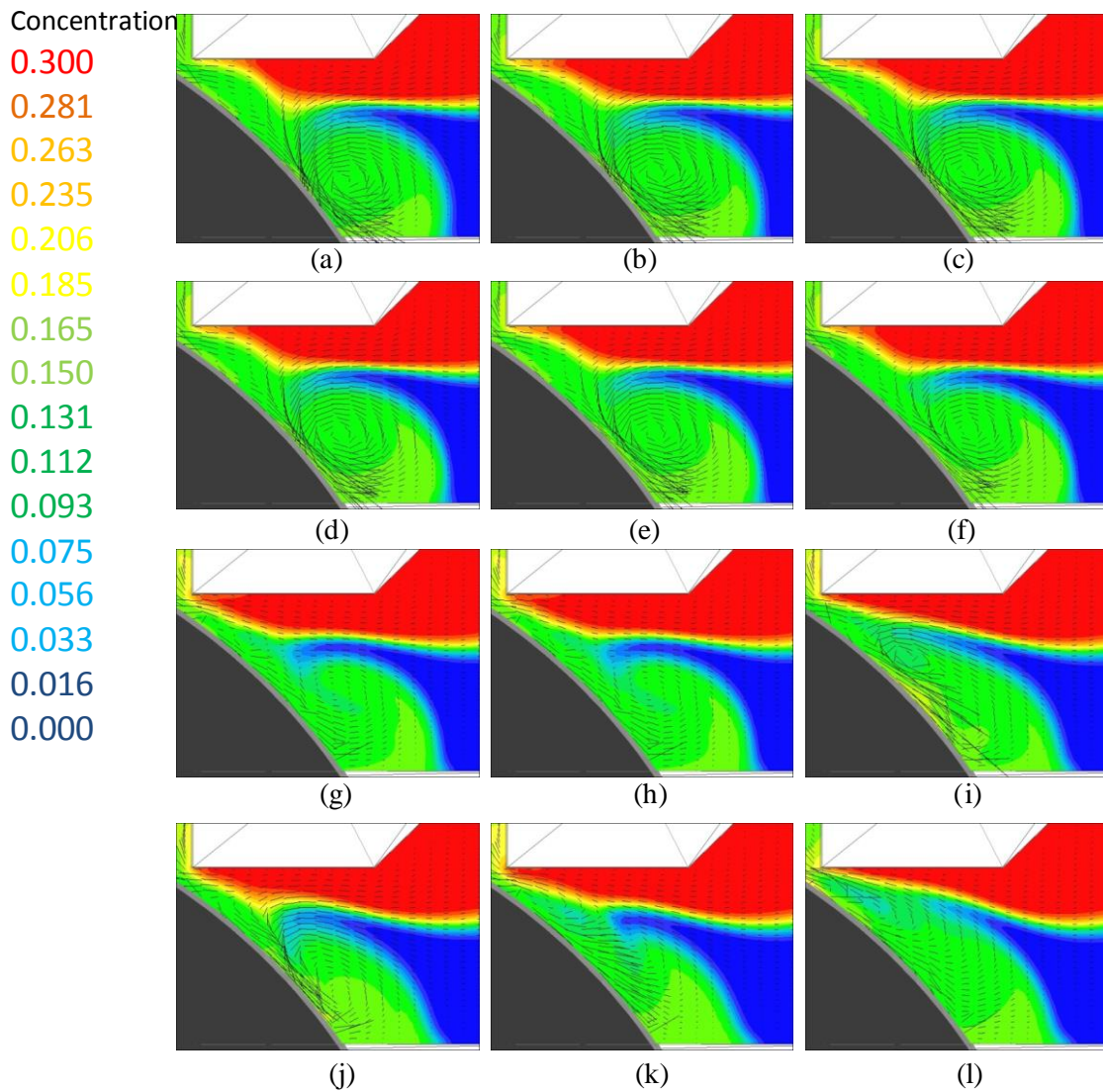


Fig. 6-8 Photos of concentration distribution with velocity vector in the CFD results every 0.002[s] from 0.024[s] at x-y plane ( $z=4.0\times 10^{-5}$ [m]) from (a) to (l)

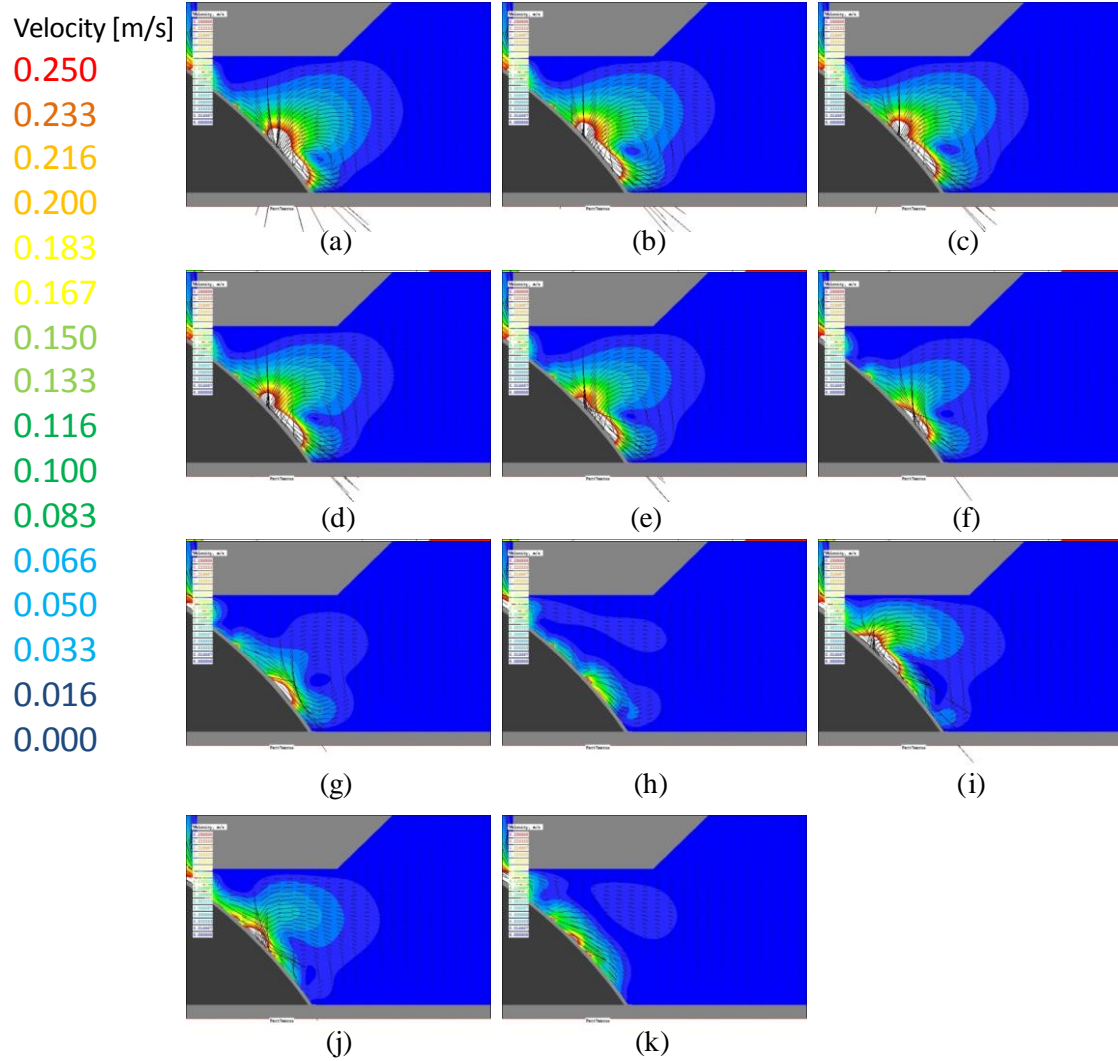


Fig. 6-8 Photos of concentration distribution with velocity vector in the CFD results every 0.002[s] from 0.022[s] at x-y plane ( $z=4.0\times 10^{-5}$ [m]) from (a) to (k)



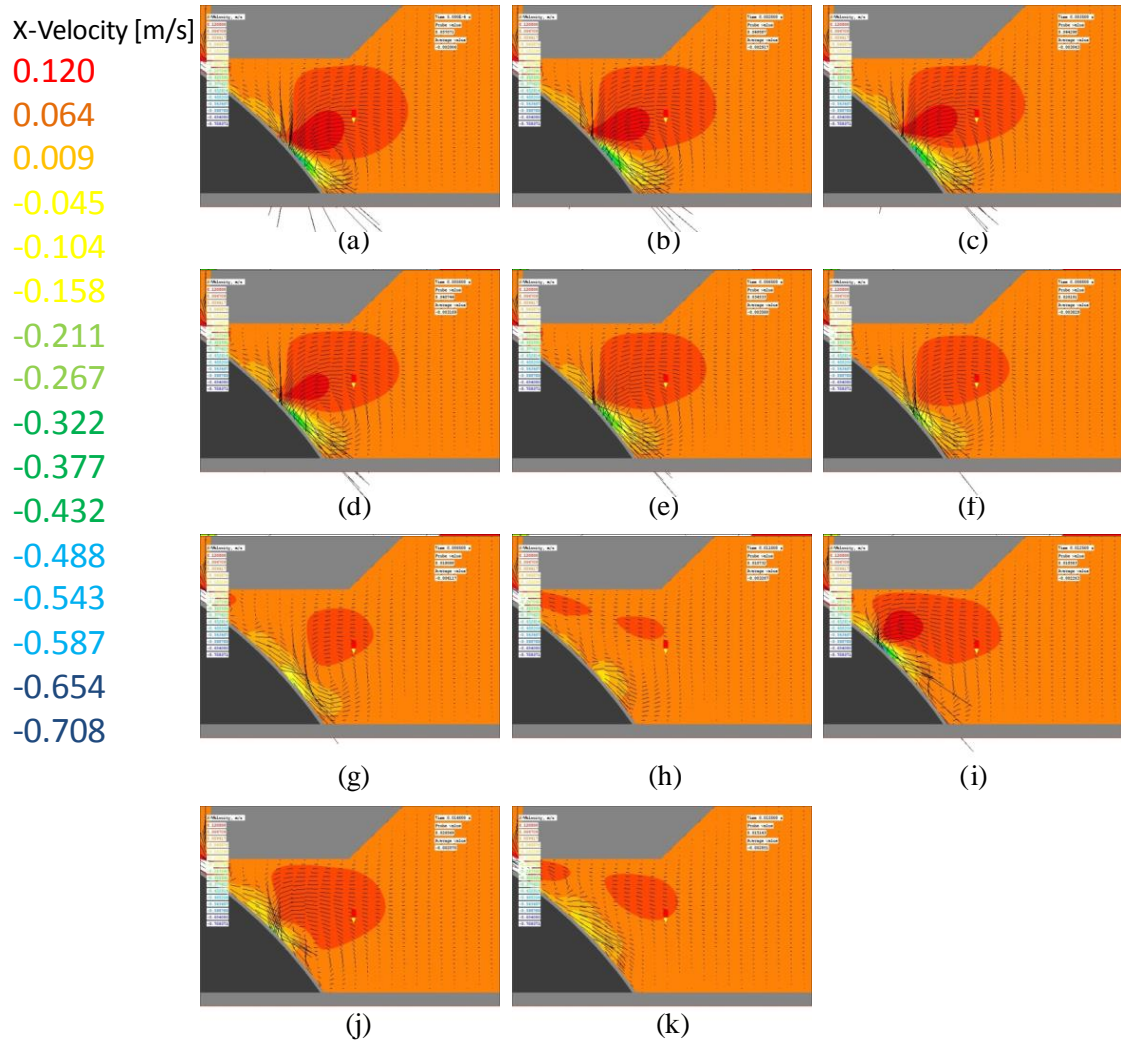


Fig. 6-9 Photos of velocity value for x-direction with velocity vector in the CFD results every 0.002[s] at x-y plane ( $z= 4.0 \times 10^{-5}$ [m]) from (a) to (j)

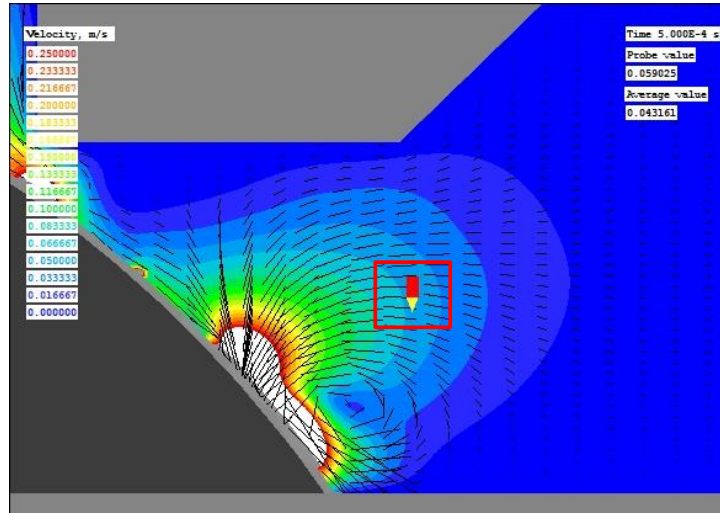


Fig. 6-10 A contour view of the CFD result (Time; 0.0005[s]) every 0.0005[s] with a arrow indicating at a calculation lattice (x; 46, y; 60, z; 13) shown in the red frame, volume flow rate; 2.5 $\mu$ l/min in each inlets( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.60$ ,  $Sc=1112.90$ )

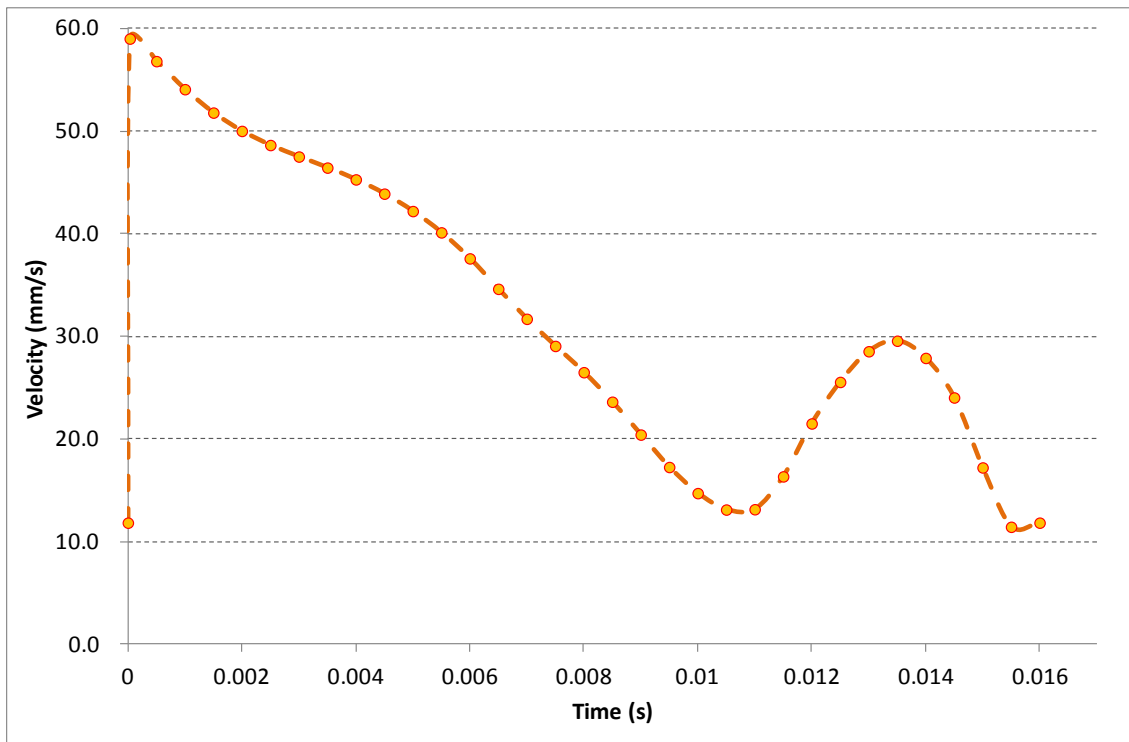


Fig. 6-11 the CFD result of flow velocity at a calculation lattice (x; 46, y; 60, z; 13) every 0.0005[s] from 0.00[s] to 0.016[s], volume flow rate; 2.5 $\mu$ l/min in each inlets ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.60$ ,  $Sc=1112.90$ )

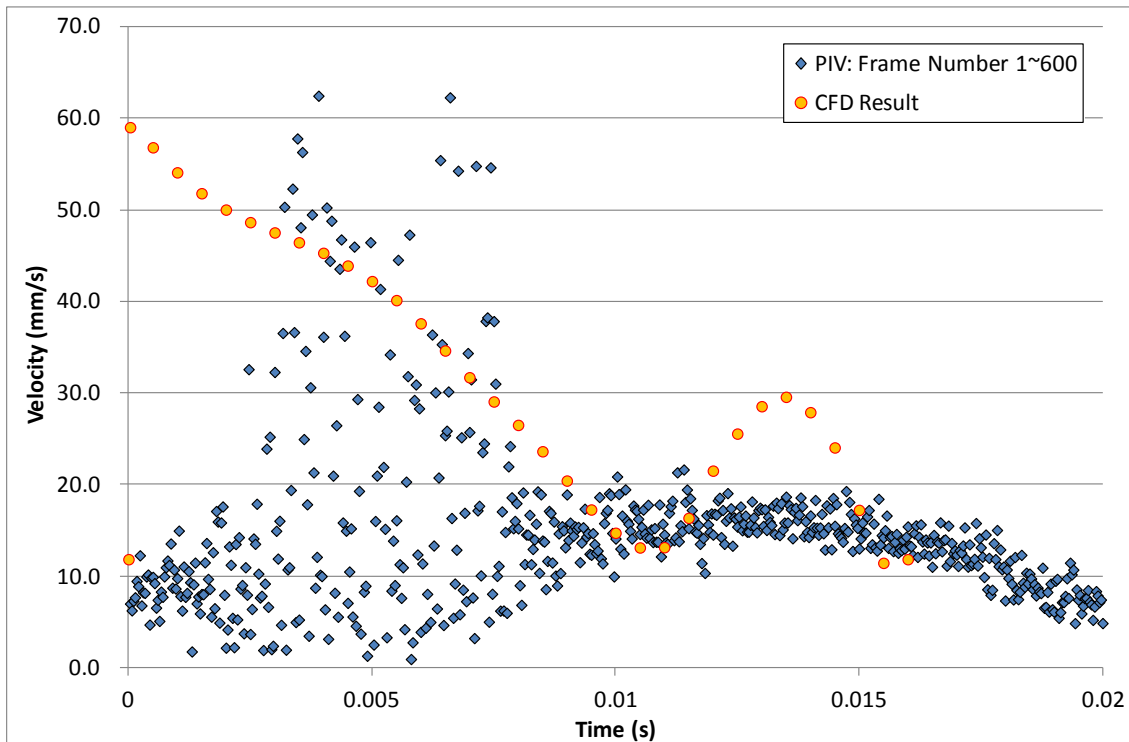


Fig. 6-12 Comparison between the CFD result and PIV results, CFD: indicated at a calculation lattice (x; 46, y; 60, z; 13 in the CFD model) every 0.0005[s] from 0.00[s] to 0.016[s], volume flow rate; 2.5 $\mu$ l/min in each inlets ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.60$ ,  $Sc=1112.90$ ), PIV: frame number; 1~600 at lattice number 241 in the PIV analysis, volume flow rate; 2.0 $\mu$ l/min in each inlets( $Ma=940860.2$ ,  $Re=0.48$ ,  $Sc=1112.9$ ), frames per second; 30000[fps]

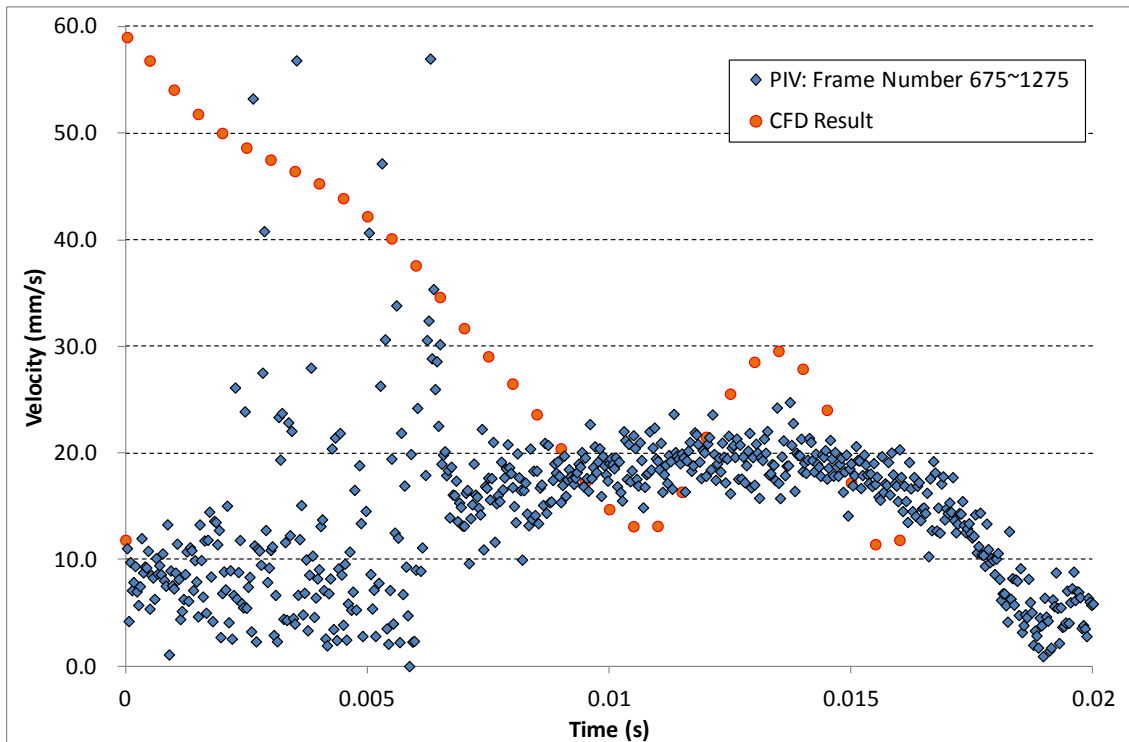


Fig. 6-13 Comparison between the CFD result and PIV results, CFD: indicated at a calculation lattice (x; 46, y; 60, z; 13 in the CFD model) every 0.0005[s] from 0.00[s] to 0.016[s], volume flow rate; 2.5 $\mu$ l/min in each inlets ( $Ma=940860.22$ ,  $Re=0.60$ ,  $Sc=1112.90$ ), PIV: frame number; 625~1225 at lattice number 241 in the PIV analysis, volume flow rate; 2.0 $\mu$ l/min in each inlets( $Ma=940860.22$   $Re=0.48$ ,  $Sc=1112.90$ ), frames per second; 30000[fps]

実験値と CFD 計算値の間で旋回流外縁部の流速がほぼ一致したにもかかわらず、その発生周期に相違が生じた理由を考える。

まず、旋回流外縁部の流速がほぼ一致したことから、この CFD 解析における Marangoni 力の取り扱い自体はほぼ妥当であったと判断される。境界条件の設定も適切であり、これらは、第 5 章 5-2 で述べた次元解析の結果から、本実験系が Marangoni 数、Reynolds 数、Schmidt 数が支配する系であることを裏付ける結果といえる。

それにもかかわらず、2 周期目以降の周期において CFD 計算と実験結果に大きな相違が生じた理由として、まず CFD 計算における計算領域内の粘性係数の取り扱いにより実験との誤差が生じた可能性が挙げられる。

流れ可視化実験で用いられた酢酸水溶液は、Fig. 6-14 に示す通り、濃度 0~30[wt%]で、その粘性係数が 1.00~1.75[mPa·s]の範囲でほぼ線形に変化する。しかし、CFD 解析では、その粘性係数を、20°Cの純水での値である、1.006[mPa·s]に固定している。代表長さ 0.1mm オーダーのマイクロ領域では、その表面積／体積比から、せん断力の影響が顕著であり、その流体内の行使に対しては、粘性係数の影響が大きくなる。濃度 15~30[wt%]での粘性係数値の範囲は、CFD の解析領域内に設定した値に比べて、1.4~1.75 倍に達する。これが、CFD 計算における気泡オブジェクト表面の液相濃度の評価、とくに緩和時間の評価に影響を及ぼし、解析結果に大きな影響を与えた可能性は否定できないと考えられる。また、この計算では、前述の通り、界面形状の変形や界面間の物質移動による影響が反映されていない。これらについても関係していると考えられる。

1 周期目での計算結果から考えて、渦流の発生メカニズムとその流速分布については、ほぼ実験条件を再現できたと考えられる。しかし、その発生周期を決定するメカニズムについては、この計算モデルを用いて正確に再現することが難しかった。これが、気泡半径やその形状、それが変化する等の幾何学的な要因にも依存すると考えられるが、また PIV 解析に用いた画像の撮影コマ数は 1 秒間に 30000 コマであり、それにより初めてこの旋回流の流れ特性が明らかになった事を考えると、CFD における非定常計算の時間間隔が大きすぎたとも考えられる。今まで検討してきた要因とは異なる要素が介在していることも否定できず、これについては、今後さらに調査していく必要があると思われる。

旋回流発生周期に関しては多くの問題点を残したが、このような簡易的な CFD 解析によっても、その特性や旋回流の外縁速度について、実験結果に比較的近似した結果を得た。そして、その主たる原因が気泡オブジェクト平面上の濃度分布に起因する「マランゴニ力」の変化にあることが示された。これは、本実験系における特異的なものであると言える。

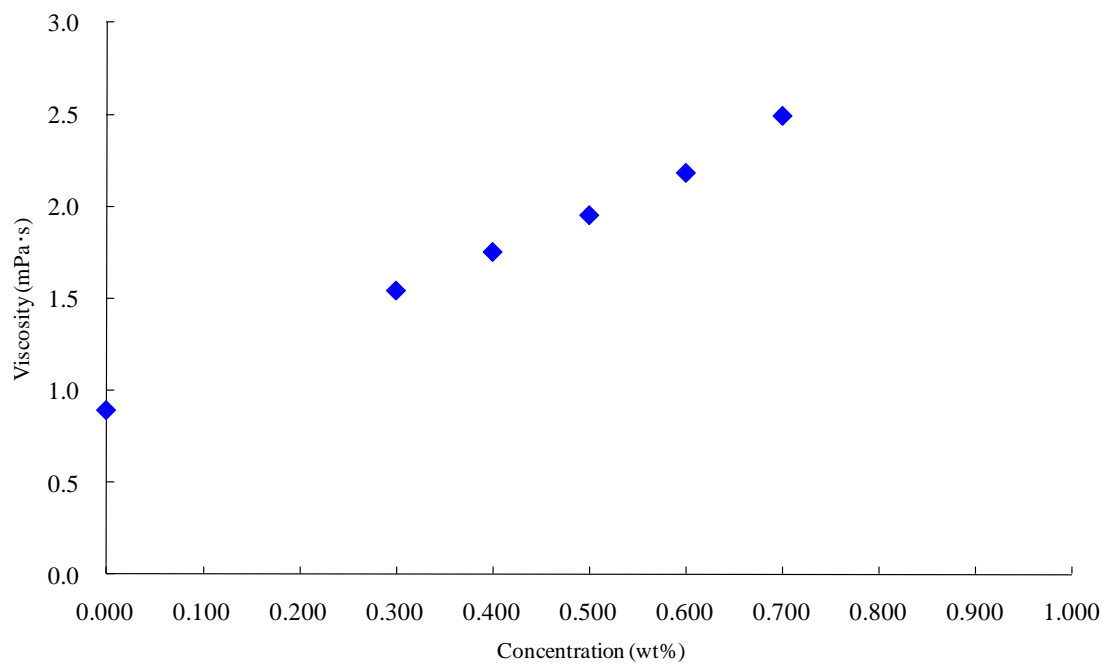


Fig. 6-14 viscosity distribution of acetic acid aqueous solution for different concentration value

## 6-4 気泡表面で生成されるマイクロ混合流の発生メカニズムに対する考察

第6章 6-1 では、実験条件 "Case 1", "Case2" , すなわち、流れと同方向に生じるマランゴニ力、流れと逆方向に生じるマランゴニ力両方における、マランゴニ対流によるマイクロ混合流に生じた周期的な変化の発生原因について、「気泡表面上の液相内の酢酸水溶液の濃度分布の変化により起こる」との仮説を立て、それに基づいた CFD 計算モデルにより解析を行った。Fig. 6-8, 9, 10 に示す結果から、少なくとも  $x$ - $y$  平面上に見られる「マランゴニ対流」は、以下のようなプロセスを経て流れを形成すると考えられる (Fig. 6-15 参照)。

- (1) L 型流路の屈曲部に層状に流入された、表面張力値の異なる二液体により、気液自由界面（気泡表面）上には表面張力勾配が発生する。この表面張力勾配により、マランゴニ対流が発生する。 [Fig. 6-15(a)]
- (2) マランゴニ対流により、気液自由界面（気泡表面）周辺の 2 液体の混合が進展する。それに伴い、気液自由界面上に展開する 表面張力勾配の分布が変化し、それに伴い、気液自由界面上のマランゴニ対流が、流路屈曲部角から互いに離れる方向に移動し、マイクロ混合流の混合促進効果が低下する。 [Fig. 6-15(b)]
- (3) マランゴニ対流の発生地点が移動することにより、マランゴニ対流によるマイクロ混合流と、一様流が共存する瞬間が生じる。その結果、気液自由界面上の表面張力勾配は再び変化し、それに伴い、気液自由界面上のマランゴニ対流は、流路屈曲部角から互いに近づく方向に移動し、マイクロ混合流の混合促進効果が向上する。 [Fig. 6-15(c)]

以上のプロセスが、一定周期で繰り返されると考えられる。

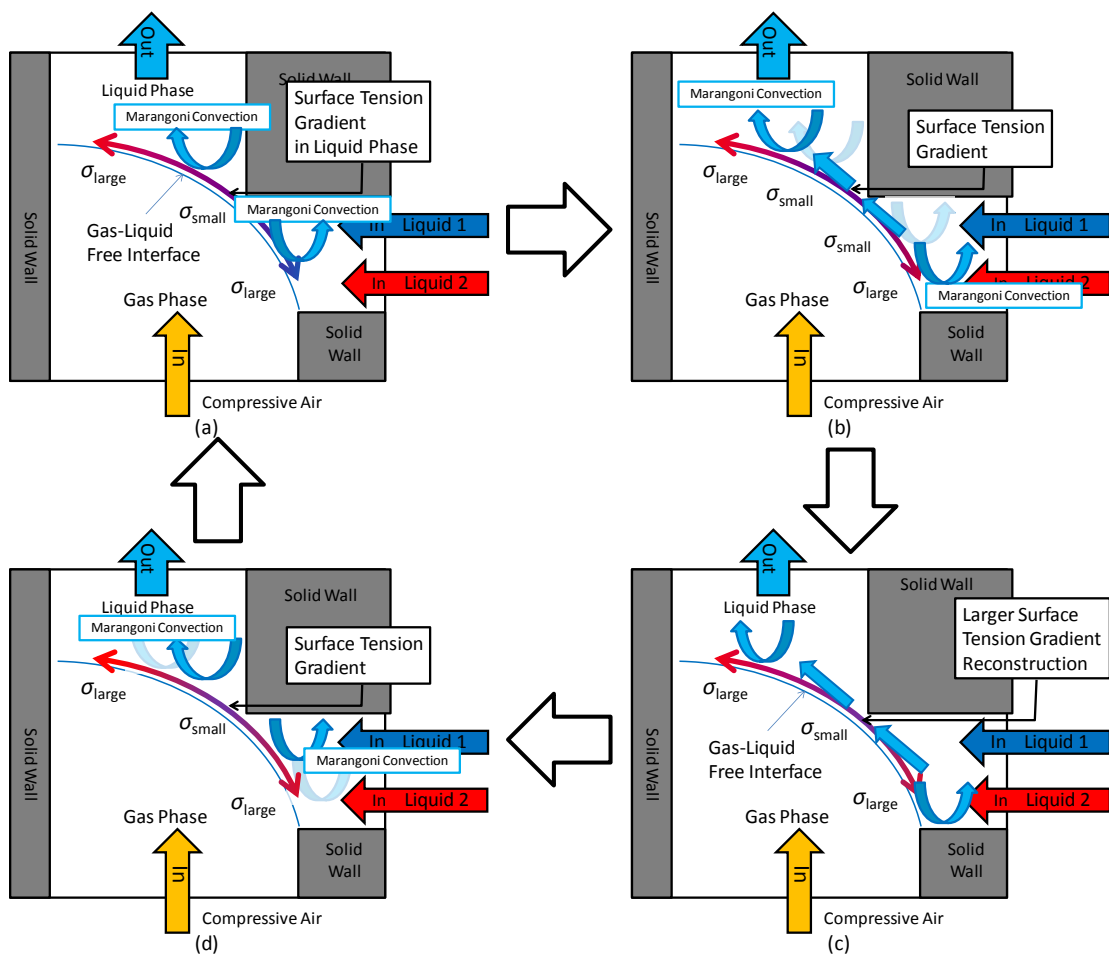


Fig. 6-15 outline of the process for the "periodic" micromixing flow by CFD result, (a) development of the surface tension distribution and causing micromixing flow by Marangoni convection, (b) transformed the micromixing flow to the direction apart from the bend corner of the test channel (c) reconstructed the surface tension distribution under the coexisting condition with the Marangoni convection and the uniform flow in the bend part of the test channel. (e) transforming the micro mixing flow to the direction approach from the bend corner of the test channel



したがって、気液自由界面上の表面張力は、マイクロ混合の促進に従い、気泡表面全体が「均一」から「勾配」, 「勾配」から「均一」に変化するわけではなく、気泡表面と流路壁面との最小距離である「流路屈曲部角」付近で、その付近の局地的な混合率がその物理的な条件の許す範囲で、「最大」から「最小」, 「最小」から「最大」と変化を繰り返し、これが気泡表面上の表面張力勾配の分布に影響を与え、マイクロ混合流の周期的な変化に一定の影響を与えていると考えられる。

気泡表面と流路壁面との最小距離である「流路屈曲部角」付近では、二液の局地的な混合の進展は、主に分子拡散に依存すると考えられる。このとき、拡散距離： $l$ [m], 拡散係数： $D$ [m<sup>2</sup>/s], 混合に要する時間（拡散時間）： $t$ [s]には、以下の関係があることが知られている[5]。

$$l \approx \sqrt{Dt}$$

$$l^2 \approx Dt, \quad t \approx \frac{l^2}{D} \quad \dots(6-7)$$

(6-7)式を用いることにより、気泡表面と流路壁面との最小距離である流路屈曲部付近での二液の拡散時間のオーダーを見積もることが出来る。

流路屈曲部付近の拡散距離： $l$ [m]のオーダーを、 $1[\mu\text{m}] = 10^{-6}[\text{m}]$ オーダーとし、酢酸と純水との間の拡散係数  $D$  が、 $D = 1.24 \times 10^{-9}[\text{m}^2/\text{s}]$ であることから[7], 二液間の拡散係数  $D$  を  $10^{-9}[\text{m}^2/\text{s}]$ オーダーとすると、この領域で二液の混合に要する時間（拡散時間） $t$ [s]のオーダーは、

$$t[\text{s}] \approx \frac{(10^{-6})^2}{10^{-9}} = \frac{10^{-12}}{10^{-9}} = 10^{-3}[\text{s}]$$

流路屈曲部付近の拡散距離： $l$ [m]のオーダーを、 $10[\mu\text{m}] = 10^{-5}[\text{m}]$ オーダーとすると、

$$t[\text{s}] \approx \frac{(10^{-5})^2}{10^{-9}} = \frac{10^{-10}}{10^{-9}} = 10^{-1}[\text{s}]$$

実験時の流路屈曲部付近の最小距離は、数  $\mu\text{m}$  程度と思われるので、拡散時間  $t$ [s]のオーダーは、概ね  $0.001 \sim 0.1[\text{s}]$ の間であることになる。

実験におけるマイクロ混合流の変動周期は  $0.02[\text{s}]$ であるので、上記範囲内にある。これから、本研究で扱ったマイクロ混合流の変動周期は気泡表面と流路壁面との最小距離と二液間の拡散係数により決定し、マランゴニ対流によるマイクロ混合流生成のプロセスを考えると、混合する二液の物性にもよるが、概

ね 0.001~0.1[s]の範囲で周期的な流れの変動が生じると考えられ、これは本研究で扱うマイクロ混合流に備わる本質的なものと考えられる。

## 6-5 本章のまとめ

この章のまとめとして、以下のことが確認された。

- ・ 第5章で示した、混合流生成実験の結果から、流れと逆方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験生成されたマイクロ混合流に周期 0.02[s]の周期的な流れの変化が観測された。
- ・ これについて、気泡表面上の2液体間の濃度分布による表面張力分布の変化が主要因であると仮定し、その仮定に基づいた物理モデルを構築した簡易的な单相流の三次元モデルを用いて非定常 CFD 解析を実施した。
- ・ CFD 解析の結果、実験時と同様の周期的な流れが一部計算された。その発生周期は、発生から一周目目は 0.16[s]と実験値である 0.217[s]と近似した値が計算された。また旋回流外縁部の流速に関しては実験値とだいたい一致し、PIV 解析で明らかとなった、1 周期内に二つの速度ピークが現れる特異な流れ分布に関しても、ほぼ同じ傾向、大きさを持つ流れが計算された。
- ・ 解析結果から、この「周期的な流れの変化」は気泡表面上に展開する表面張力分布の変化により生じることが確認された。
- ・ CFD 解析結果から、気液自由界面上の表面張力は、マイクロ混合の促進に従い、気泡表面全体が「均一」から「勾配」、「勾配」から「均一」に変化するわけではなく、気泡表面と流路壁面との最小距離である「流路屈曲部角」付近で、その付近の局地的な混合率の変化により、これが気泡表面上の表面張力勾配の分布に影響を与え、「マイクロ混合流」の「周期的な」変化に一定の影響を与えていると考えられる。
- ・ 気泡表面と流路壁面との最小距離である流路屈曲部角付近では、二液の局地的な混合の進展は、主に分子拡散に依存すると考えられ、その変化に要する時間のオーダーは、概ね 0.001~0.1[s]の間であることが計算された。これは実験、CFD 計算の双方に見られるマイクロ混合流の変動周期である 0.01 秒オーダーがその範囲内にあり、マイクロ混合流の変動周期に一定の関係があると思われる。

## 第 6 章の参考文献

- [1] Takashi Yamada and Naoki Ono, The Experimental and Numerical Analysis for the Micromixing Flow Generated by Surface Tension Effect on a Gas-Liquid Free Interface, *Eleventh International Conference on Flow Dynamics, Proceedings*, pp. 164-165, October 8-10, 2014, Sendai International Center, Sendai, Miyagi, Japan
- [2] <http://www.phoenics.co.jp/>
- [3] Patankar, S. V., 水谷幸夫, 香月正司 共訳, コンピュータによる熱移動と流れの数値解析, 森北出版, 1985.
- [4] 湊 明彦, 気液二相流の力学と数値解析入門, アドバンスソフト, 2008.
- [5] 吉田純一監修, ”マイクロリアクターの開発と応用”シーエムシー出版, 2008.
- [6] 今石宣之, マランゴニ対流の基礎, *Int. J. Microgravity Sci. No. 31 Supplement* 2014 (S5-S12).
- [7] Washburn, E. W., *International Critical Tables of Numerical Data, Physics, Chemistry and Technology*, vol.5.



## 第7章 マランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイスの「スケール・アップ」. チャンネルへの応用

この項は

- ・ 7-1 今後の展開についての考察とその試行
- ・ 7-2 本章のまとめ

の2項で構成されている.

## 7-1 今後の展開についての考察とその試行

流動実験，特にトレーサー粒子による流れの可視化画像からは，気泡表面に発生する旋回流自体はあまり混合に寄与していないことが伺える．これは，旋回流周辺の流れに対する流路壁面のせん断力による拘束が大きく，流れ自体の自由度が高くないことが理由のひとつであると考えられる．せん断流れの自由度が高くなることにより，生成されたマイクロ混合流の混合に対する寄与が大きくなることが期待される．これに対する一つの打開策として，現状用いている流路サイズに対して，その流路断面を流路幅，深さともに拡大する流路を作成し，これを実験に用いることで，流れに対する壁面（境界）の影響を減じることを目指すことが考えられる．これについては，試行する価値があると思われる．

そこで，本研究の発展的展開として，流路サイズを流路幅，深さともに拡大した流路を用いて試行した流動実験の概要とその実験結果を以下に示す[1]．

### 7-1-1 スケール・アップ コンセプトと本実験の目的

本実験では、流路サイズを流路幅、深さともに拡大した流路を用いる。これを以後「スケール・アップ」と称し、本論文中にて用いることとする。このような流路に対する、本論文中で扱ってきた「マランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイス」の適用について、以下に述べる。

Fig. 7-1 は、「スケール・アップ」流路への「マランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイス」の適用を示したものである。

Fig. 7-1 に示す通り、流路平面の代表長さを  $0.5\sim 1.0[\text{mm}]$  としたとき、これはミニ～マイクロスケールの範疇にある長さである。しかし、「マランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイス」のコンセプトは、第2章で示した通り、気液自由界面（気泡表面）とL字型流路屈曲部角の固体壁面間の距離を数  $\mu\text{m}$  程度にまで短縮させることにより、気液自由界面上に表面張力勾配を発生させ、マイクロ混合流を生成するというものである。流路平面の代表長さを  $0.5\sim 1.0[\text{mm}]$  としたときでも、気泡表面と固体壁面間の距離を数  $\mu\text{m}$  程度にまで短縮させることは、幾何的に可能であることが確認できる。これにより、代表長さ数  $\mu\text{m}$  の空間内で生成されたマイクロ混合流が、代表長さ数百  $\mu\text{m}$ ～数  $\text{mm}$  の空間内にどのような影響を与えるのか確認すること、これが本実験の目的となる。

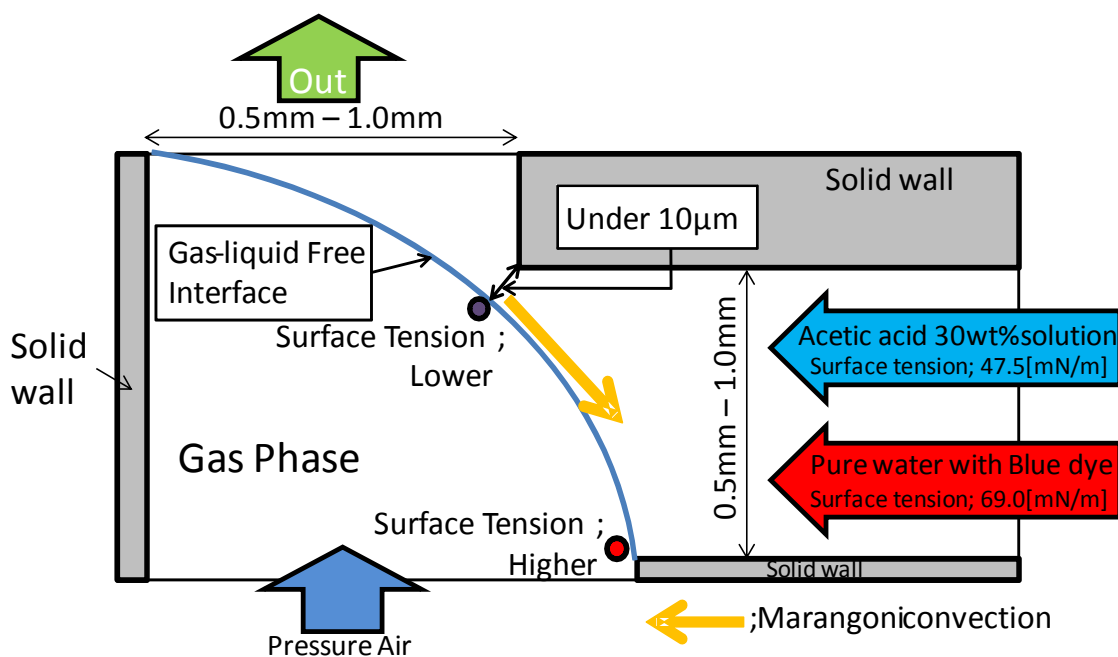


Fig. 7-1 the concept of the new mixing channel



### 7-1-2 実験流路の概要

実験流路の全体形と流路集合部の平面図を Fig. 7-2 に示す. 実験流路は第 3 章 3-2 で述べた通り, 感光性樹脂 (MICRO CHEM, SU 8-3050) を用いたフォトリソグラフィーにより流路平面形を模った雄型を製作し, それを PDMS (polydimethyl siloxane) でキャストし, 流路を作成した. 先に述べた通り, SU 8 は重ね塗りによる積層により構造物 (雄型) のアスペクトを大きくすることが可能であることが知られている [2]. この性質を用いて, 流路深さ 0.49mm (スピコート回転数×重ね塗り回数; 250[rpm]×3) の流路を作成した. 流路深さ 0.49mm のレーザー顕微鏡観察結果を Fig. 7-3 に示す. 観察結果から, 設計通りの流路平面形が正確に転写されていることが確認された. 本実験で用いた実験流路の平面形の各流路幅は, 第 3 章 3-2 で示す実験流路の流路平面形での約 7 倍としている. したがって, 本実験で用いる実験流路の流路断面積は第 3 章 3-2 で示す実験流路の 34.3 倍 (流路深さ 0.49mm) となる.

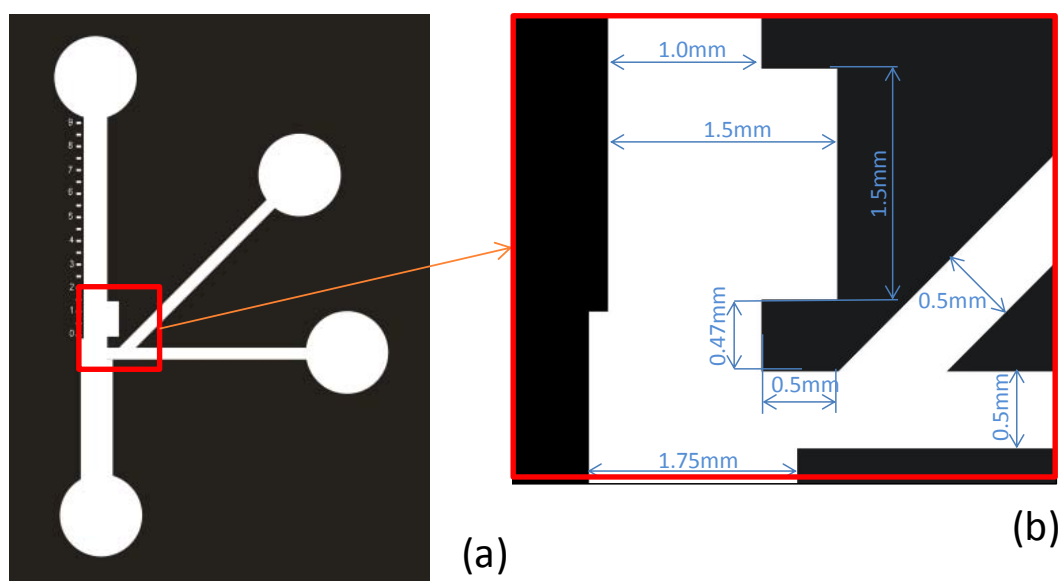
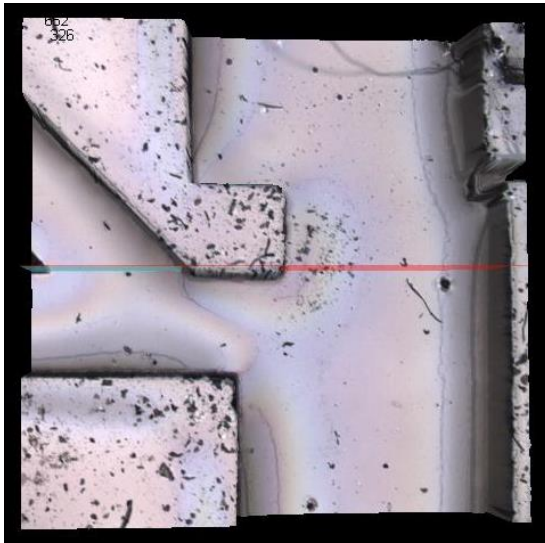
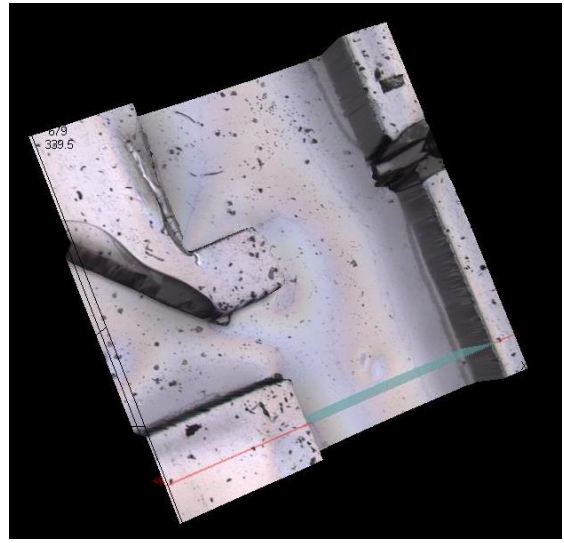


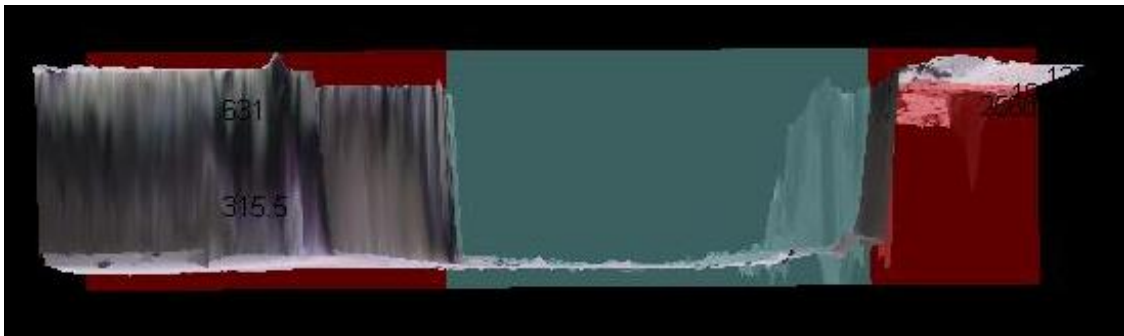
Fig. 7-2 plane figures of the new test channel (a) general view (b) dimensions of the bend part



(a)



(b)



(c)

Fig.7-3 measurement results of new test channel (channel depth; 0.49mm) by laser micro scope (Olympus LEXT4000) from (a) to (c)

### 7-1-3 実験条件と実験時の測定範囲

実験に用いる試験流体は、基本的に第4章に述べたものと同様、純水と酢酸30[wt%]水溶液を用いている。これを第5章5-2で述べた実験条件「Case 1」, 「Case 2」のうち、実験条件「Case 2」を用いて流動実験を行った。

表7-1に、試験流体の流れ条件とその試液流入時の $Re$ 数を示す。

Table 7-1. Flow condition at each inlets in the experiments

Volume Flow Rate ( $\mu\text{l}/\text{min}$ )	Reynolds Number (Purewater)	Reynolds Number (Acetic acid solution)
8.00	0.27	0.15
10.00	0.33	0.19
20.00	0.66	0.38
50.00	1.66	0.95
100.00	3.32	1.90

本実験で用いた実験流路の平面形の各流路幅は、第5章5-1Fig. 5-1で示す実験流路の流路平面形での約7倍である、したがって、流路深さ0.49mmの流路では、流路断面積は34.3倍となり、流路断面平均速度を考えると、その流入条件（体積流量）は、流路断面積の増大に比例して増加されるべきである。よって、試験流体の流れ条件は、Table. 7-1に示すとおり、両インレット等量に8.0, 10.0, 20.0, 50.0, 100.0[ $\mu\text{l}/\text{min}$ ]の6条件で実験を行った。

次に、本実験系は、第5章5-5から、今回は流れの振動周期については考えないことにすると、

- Marangoni 数( $Ma=\Delta\sigma l/\mu D$ ),
  - Reynolds 数( $Re=\rho ul/\mu$ ),
  - Schmidt 数( $Sc=\mu/\rho D$ ),
- が支配する系として導かれる。

これらの無次元数は、表面張力差 $\Delta\sigma$ : 0.1~23.0 [N/m] (23.0 [N/m]; 酢酸15[wt%]水溶液と純水の表面張力値の差), 液相内主流の速度  $u$ :  $2.38\sim 11.90\times 10^{-3}$  [m/s], 液相内の粘度  $\mu$ :  $1.38\times 10^{-3}$  [Pa $\cdot$ s] (酢酸15[wt%]水溶液の粘度), 密度  $\rho$ : 1000 [kg/m<sup>3</sup>] (純水と酢酸水溶液では、ほぼ一緒), 純水-酢酸水溶液間の拡散係数  $D$ :  $1.24\times 10^{-9}$  [m<sup>2</sup>/s], 流路内代表長さ  $l$ :  $5.0\times 10^{-4}$  [m] (流路合流部入り口流路幅)

を採用して、本実験系での代表する無次元数 (Referenced dimensionless number) を計算すると、その範囲は Table 7-2 に示すようになる。

Table 7-2. The relations between the range of dominant dimensionless numbers and the condition of the main parameters in the experiment system

Referenced dimensionless number	$\Delta\sigma$ [N/m] $\times 10^{-3}$	$ul$ [m <sup>2</sup> /s] $\times 10^{-6}$	$\mu$ [Pa·s] $\times 10^{-3}$	$D$ [m <sup>2</sup> /s] $\times 10^{-9}$	$\rho$ [kg/m <sup>3</sup> ]	$l$ [m] $\times 10^{-4}$
$Ma=29219.26$ $\sim 6720430.11$	0.10~23.00	-	1.38	1.24	-	5.0
$Re=0.24\sim 4.93$	-	0.34~7.09	1.38	-	1000.00	-
$Sc=1112.90$	-	-	1.38	1.24	1000.00	-

代表 Marangoni 数  $Ma$  については、この実験系における最大値が 6720430.11 となり、最小値でも 29219.26 に上る。これは、過去に報告された値と比較しても、非常に大きい[3]。本来 Marangoni 数は、温度変化による表面張力差から生じるマランゴニ対流に対する無次元数であり、この差は、流体中の物性値である、(熱) エネルギー輸送に関する熱拡散率  $\kappa$  ( $10^{-6}\sim 10^{-7}$ [m<sup>2</sup>/s]オーダー) と質量輸送に関する拡散係数  $D$  ( $10^{-8}\sim 10^{-10}$ [m<sup>2</sup>/s]オーダー) のオーダーの差に起因するものである。また、代表長さが 0.5mm となっており、これも  $Ma$  の値が非常に大きくなっている原因であると考えられる。

したがって、この系に対する臨界 Marangoni 数は確認されていないが、本質的に振動流を発生しやすい系であると考えられる。本実験では、代表 Marangoni 数  $Ma$  を、想定される表面張力差の最大値である  $\Delta\sigma = 23.0$  [N/m]にて求められる、 $Ma=6720430.11$  とする。

Reynolds 数  $Re$  については、二液が合流する地点での流速と代表長さにより実験時の代表 Reynolds 数を求めている。Table 7-2 から、その流れは  $Re < 6.0$  の完全な層流となる。ただし、流速が 100.00[ $\mu$ l/min]になると、 $Re > 1.0$  となり、流れのふるまいは、相応に変化することになると思われる。Table 7-3 に、実験で用いた流入速度ごとの代表 Reynolds 数(Reference Reynolds Number)  $Re$  を示す。

Table 7-3. Flow condition at the flexion point of the test channel in flow experiment

Total Volume Flow Rate ( $\mu\text{l}/\text{min}$ )	Reference Reynolds Number ;Re
16.00	0.39
20.00	0.49
40.00	0.99
100.00	2.47
200.00	4.93

Schmidt 数  $Sc$  に関しては、第 5 章 5-2-2 での検討結果と同様、拡散係数  $D$  が小さいため、比較的大きな値が計算され、対流による混合への関与が比較的大きいことが予想される。

実験観察のために用いるトレーサーについては、基本的に第 4 章 4-2 で述べた内容と同一のものを使用しているが、後述する画像サイズの変更に合わせて、流れ可視化用トレーサー粒子の粒子径を  $0.6[\mu\text{m}]$  から  $3.1[\mu\text{m}]$  に変更している。

Fig. 7-5(a)に混合実験、Fig. 7-5(b)に流れ可視化実験時の観察及び測定範囲について、それぞれ示す。混合実験では、流路集合部から下流部各地点 (Fig. の赤枠部) の目盛に沿って、観察画像を第 4 章で述べたアナログ CCD カメラ (Vixen C0014-3M)にて収集した。流れ可視化実験では、Fig. 中赤枠部の流路集合部における流れの変化を、デジタル (モノラル) 高速度カメラ (Kato ko-ken k II-EX)にて撮影した。

実験装置は第 4 章 4-1 で述べた実験システムをそのまま流用して実験を行った。実験の解析手法も第 4 章 4-3, 4-4 で述べた手法をそのまま使用している。しかしながら本実験で用いる実験流路は、第 5 章で扱った実験流路に比べ流路幅が約 7 倍となっているので、流路幅全体の画像を得るためには、 $4\times$  の顕微鏡レンズを、PIV 解析画像の撮影においても  $10\times$  の顕微鏡レンズを用い、さらに  $640\times 480[\text{pixels}]$  の撮影画面サイズを得なければならなかったため、高速度カメラの性能限界から、1 秒間に 500 フレームで実験映像を収集した。このため、PIV の解析結果に対しては、トレーサーの 1 フレーム当たりの移動量が大きくなる場合が見られ、またその被写界深度も  $4\times$  の顕微鏡レンズを用いた場合には数十  $[\mu\text{m}]$  から百  $[\mu\text{m}]$  近くまで大きくなる。したがって、これを PIV 解析に用いた場合、流路平面各断面の流速が入り組む誤差の多い画像となるため、その速度解析結果は、その現象の考察に当たり参考にする程度の測定精度しか確保されていないことを指摘しておく。

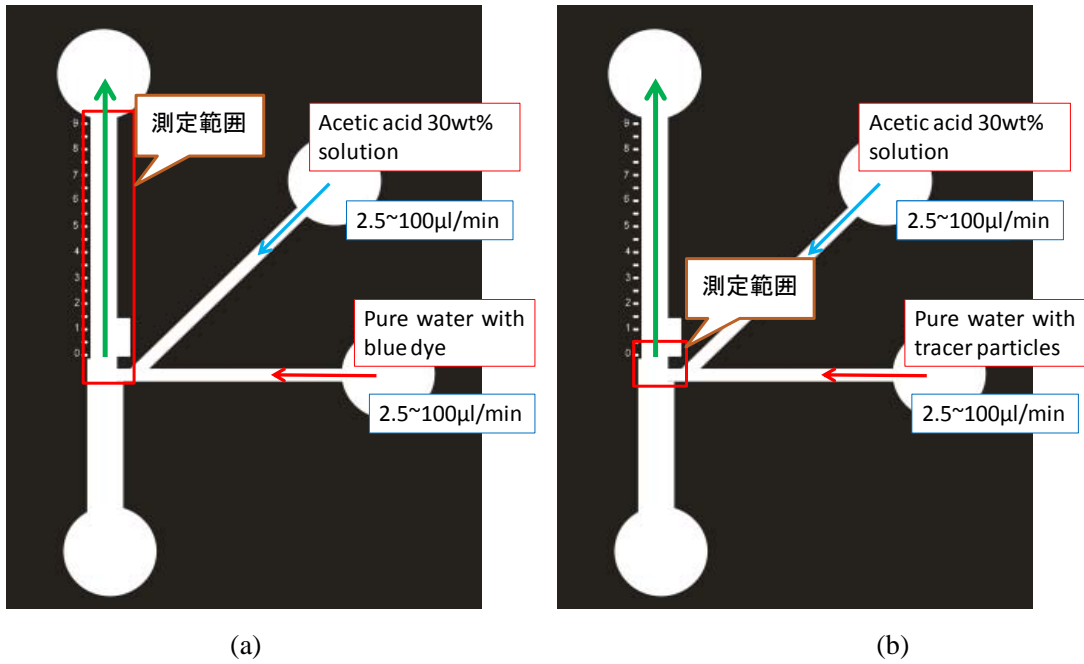


Fig. 7-5 view region in flow experiments (in a red frame), (a) for mixing estimation, (b) for flow visualization

#### 7-1-4 実験結果

Fig. 7-6 は、両インレットの体積流量が、各  $20.0[\mu\text{l}/\text{min}]$  ( $Ma=6720430.11$ ,  $Re=0.96$ ,  $Sc=1112.9$ )とした時の、流路合流部を起点に、その部分から下流部の流路各地点における二液の混合状態を記録した画像である。Fig. 7-7 は同様に両インレットの体積流量各  $50.0[\mu\text{l}/\text{min}]$  ( $Ma=6720430.11$ ,  $Re=2.47$ ,  $Sc=1112.9$ )とした時における、二液の混合状態を記録した画像である。Fig. 7-8 は、Fig. 7-5(a)にて示される、アウトレット流路の測定範囲各地点での2液間の青色色素の最大濃度差をプロットしたものである。

実験の結果、Fig. 7-6, Fig. 7-7 とともにマランゴニ対流により二液間の混合が大きく進展していることが確認できる。また、Fig. 7-8 から、両インレットの体積流量各  $50.0[\mu\text{l}/\text{min}]$ まで混合が大きく促進していることが分かる。両インレットの体積流量各  $20.0[\mu\text{l}/\text{min}]$ では、流路合流部から  $3.5\text{mm}$  地点で最大濃度差  $35\%$ 程度（混合率  $65\%$ 程度まで促進）まで、 $5.5\text{mm}$  地点で最大濃度差  $30\%$ 程度（混合率  $70\%$ 程度まで促進）まで進展しており、この条件が最も混合が進展することも確認できる。また、両インレットの体積流量各  $100.0[\mu\text{l}/\text{min}]$ 時( $Ma=6720430.11$ ,  $Re=4.93$ ,  $Sc=1112.9$ )でも、気泡形状を維持することが可能であり、実験において混合に有効なマランゴニ対流生成に成功した。

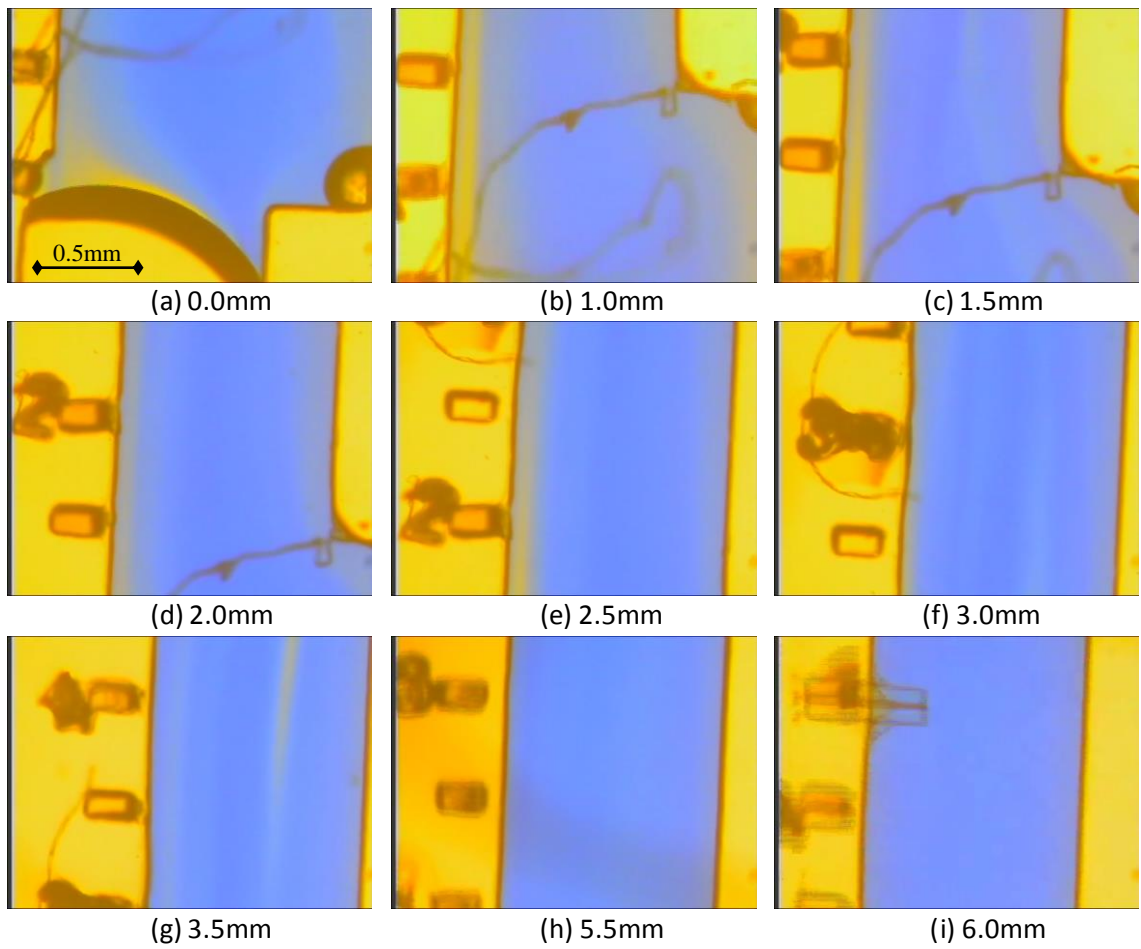


Fig.7-6 A series of photos in a mixing experiment using new test channel (0.49mm of channel depth) from (a) to (i) at each point of view region described in Fig. 7-5(a), volume flow rate; 20.00  $\mu\text{l}/\text{min}$  in each inlet



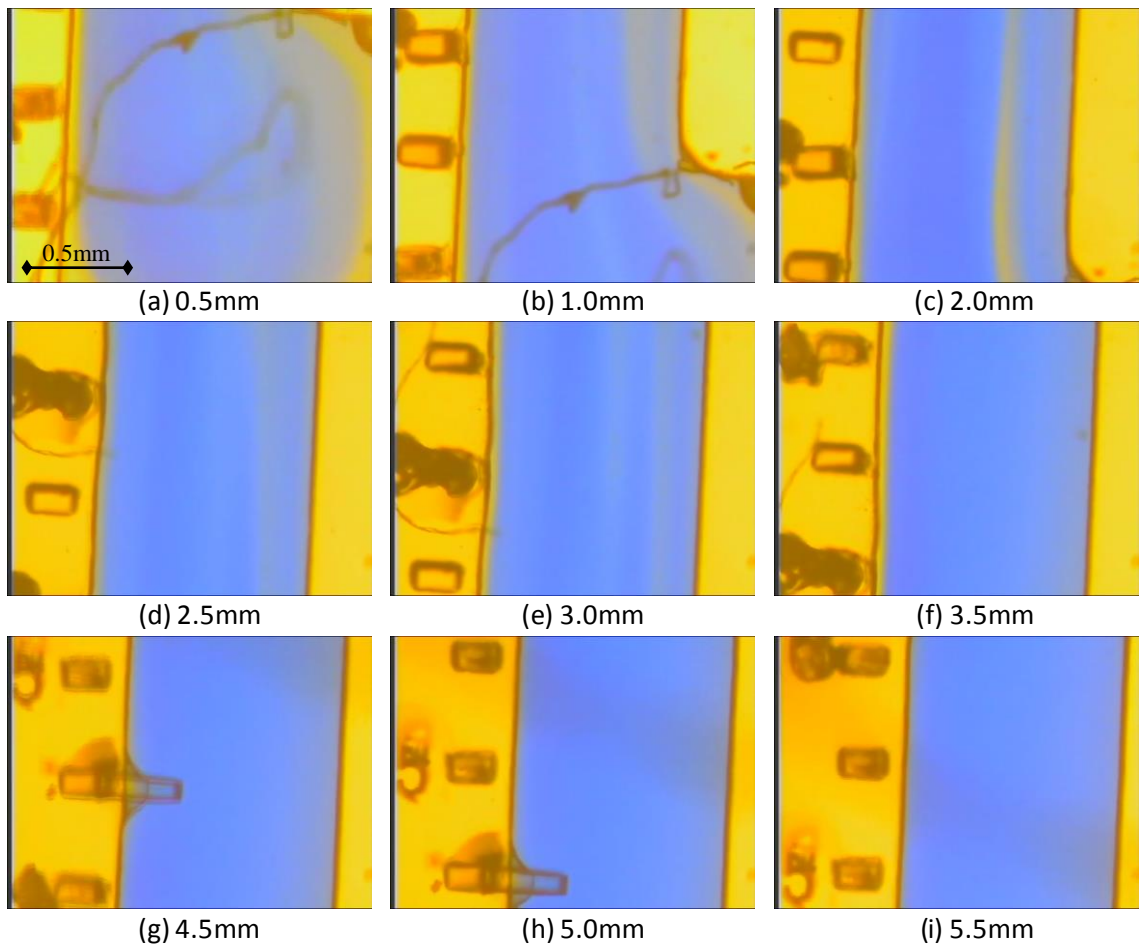


Fig.7-7 A series of photos in a mixing experiment using new test channel (0.49mm of channel depth) from (a) to (i) at each point of view region described in Fig. 7-5(a), volume flow rate; 50.00  $\mu\text{l}/\text{min}$  in each inlet

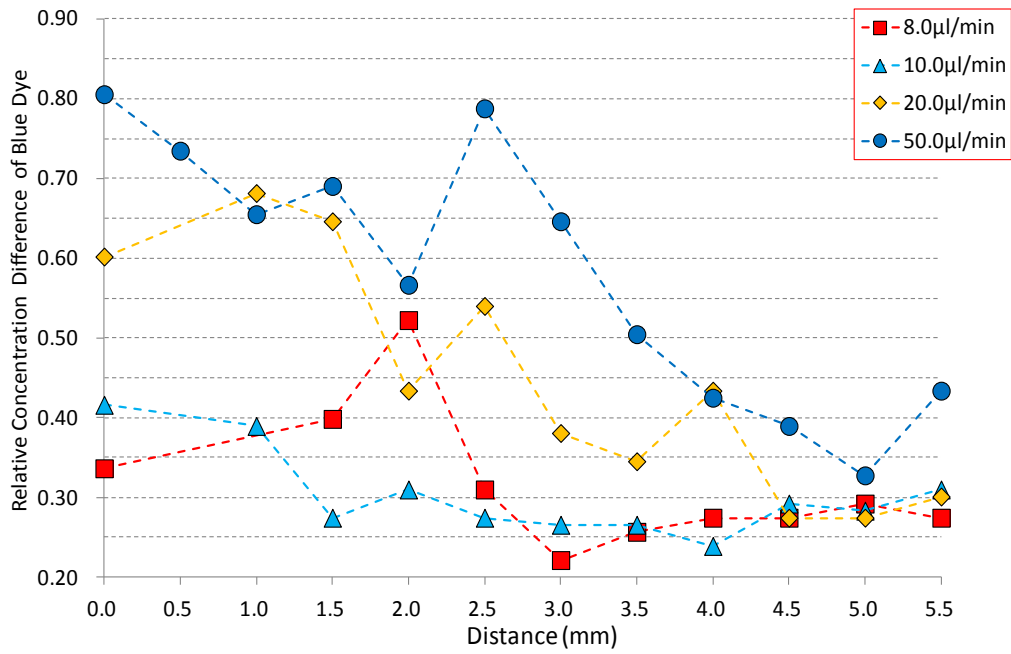


Fig.7-8 maximum concentration difference of two test fluids at each point of view region described in Fig. 7-5(a) in a mixing experiment using new test channel (0.49mm of channel depth), volume flow rate; 8.0,10.0, 20.0 and 50.0μl/min in each inlet

次に、Fig. 7-9(a), (b), (c), (d)に、流路深さ 0.49[mm]の試験流路における、両インレットの体積流量を各 10.0( $Ma=6720430.11$ ,  $Re=0.49$ ,  $Sc=1112.9$ ), 20.0 ( $Ma=6720430.11$ ,  $Re=0.96$ ,  $Sc=1112.9$ ), 50.0( $Ma=6720430.11$ ,  $Re=2.47$ ,  $Sc=1112.9$ ), 100.0[ $\mu\text{l}/\text{min}$ ]( $Ma=6720430.11$ ,  $Re=4.93$ ,  $Sc=1112.9$ )とした時のトレーサー粒子を用いた流れ可視化実験の画像を示す。Fig. 7-9 から、各流入条件による気泡周辺部において、マランゴニ対流による流れの変化が顕著に表れている様子が確認できる。また、マランゴニ対流の影響が流路幅全体に波及されていることも確認できる。

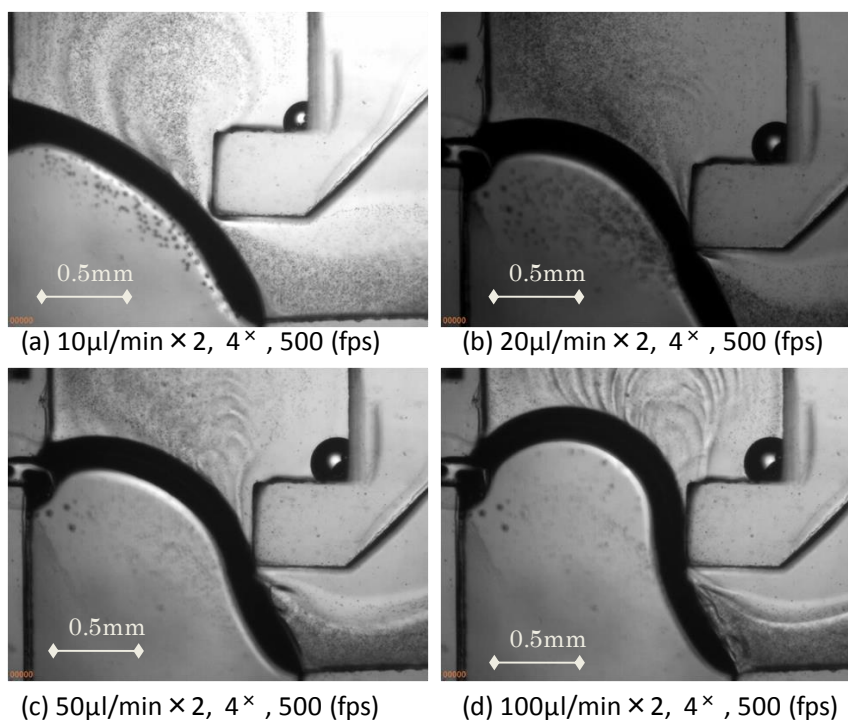


Fig.7-9 A series of photos in a flow visualization experiment using new test channel (0.49mm of channel depth) from (a) to (d)

次に、Fig. 7-11 に、両インレットの体積流量  $20.0 \text{ } [\mu\text{l}/\text{min}]$  ( $Ma=6720430.11$ ,  $Re=0.96$ ,  $Sc=1112.9$ )時のトレーサー粒子を用いた流れ可視化実験の画像を用いた PIV 解析結果の抜粋を示す。その測定範囲は図 7-10 左側に示す赤枠内に示す範囲である。

この実験においても、①気泡表面上のせん断流(Shear flow)、②旋回流(Swirling flow)、③旋回流消失に伴う噴流(Jet flow)、の三種が周期的に複合する流れにより混合が大きくされることが確認される。

実験結果から、この実験系にて混合が大きく促進される理由として、流路断面平均流速の影響よりも流路代表長さが拡大されたことにより、気泡表面上に発生するマランゴニ対流に対する流路壁面による拘束に対する影響が相対的に低くなったために、マランゴニ対流の主流に対する影響力が増したためであると考えられる。但し、代表 Marangoni 数  $Ma$  が、 $Ma=6720430.11$  と非常に大きくなっており、これがマランゴニ対流の挙動に影響を与えていることも確かであると考えられる。その代表長さは、流路合流部入り口流路幅 ( $0.5\text{mm}$ ) で取られている上、その長さが流路奥行き方向長さ ( $0.49\text{mm}$ ) とほぼ同一であることから、どちらの要因が、より支配的であるかを判断することは、現時点では困難である。

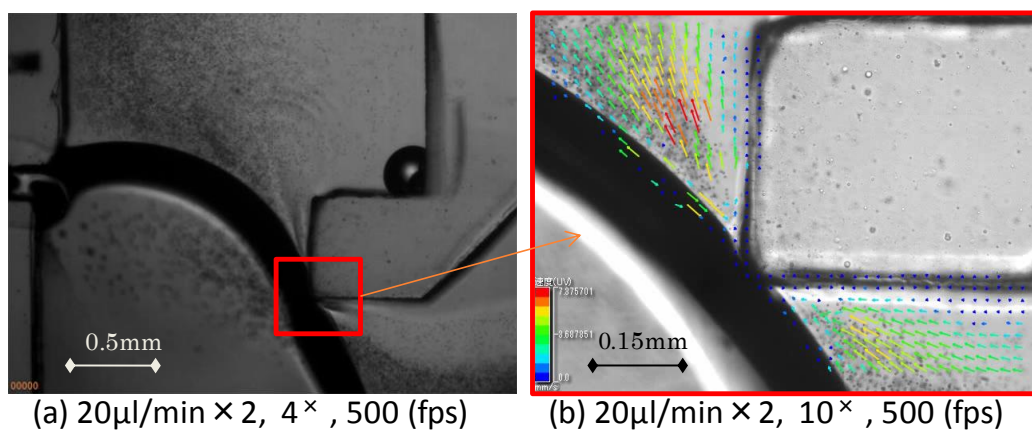


Fig. 7-10(a) view region in flow visualization measurement with PIV analysis (in a red frame), (b) measurement photo with PIV analysis

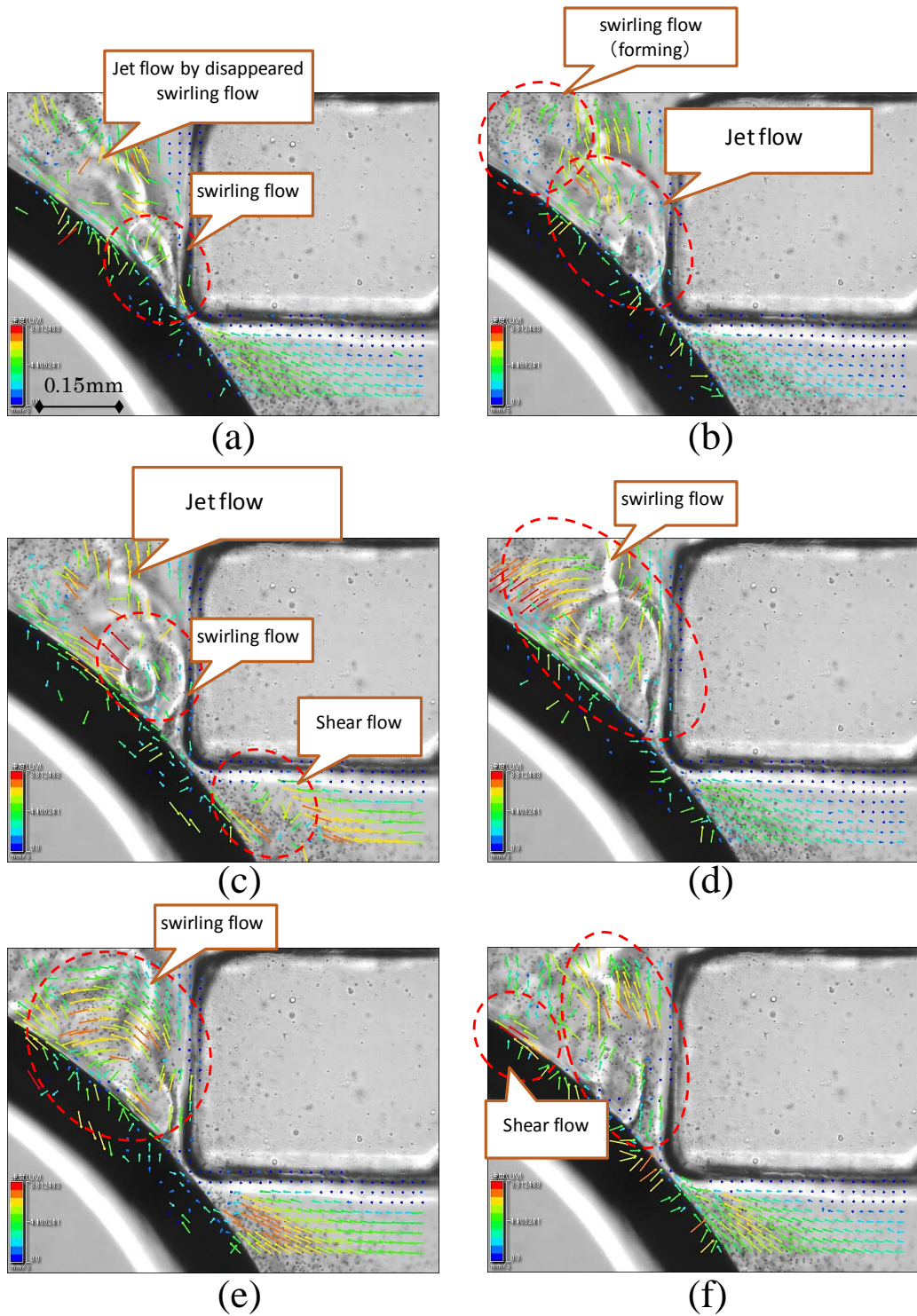


Fig.7-11 observation results of the flow visualized experiment with PIV analysis using "Scale-up" test channel from (a) to (f), volume flow rate: 20.0[ $\mu\text{l}/\text{min}$ ] in each inlets ( $\text{Ma}=6720430.11$ ,  $\text{Re}=0.96$ ,  $\text{Sc}=1112.90$ ), (a) 0.216[s], (b) 0.234[s], (c) 0.240[s],(d) 0.270[s], (e) 0.336[s], (f) 0.360[s]



## 7-2 本章のまとめ

二液混合におけるマランゴニ対流を利用したマイクロ混合流生成について、生成量増大に対応するための流れ条件に対する体積流量増大を図ると同時に気液自由界面上に生じるせん断流であるマランゴニ対流に対する壁面拘束を緩和し、流れの自由度を高める試みとして、流路断面積を増大させた試験流路を用いて、混合流生成実験を行った。その結果、以下のことが確認された。

- ・ 流路深さが 0.49mm の試験流路を用いたとき、各インレットの流入条件がそれぞれ 8.0,10.0,20.0,50.0 $\mu\text{l}/\text{min}$  まで、著しい混合効果の改善が見られ、100.0  $\mu\text{l}/\text{min}$  においても、混合に効果的と思われる流れの生成に成功した。
- ・ これらの流れは、①気泡表面上のせん断流、②旋回流、③旋回流消失に伴う噴流による複合した流れであることが、流れの可視化観測により明らかとなった。
- ・ 「スケール・アップ」流路を用いた実験においても周期的な流れの変化が発生しており、この現象はマランゴニ対流による混合流生成における大きな特徴であり、本質的な現象であるということが改めて確認された。この周期的な流れは、気泡表面上に展開する表面張力分布の変化により生じることが確認された。
- ・ 以上の結果については、その代表 Marangoni 数、代表 Reynolds 数から判断して、流路幅、深さ方向の長さが大きく関係していることが伺われる。これについては、実験結果の検証から考察されることであり、今後の調査が必要な点であると考えられる。
- ・ 流れ可視化実験から、このマイクロ混合流では今までの実験と比べて非常に複雑な構造の流れが観測されており、これは、本研究で扱った「二次元的」なアプローチでの実験・解析装置を用いては、詳細な流れ解析が困難であると思われる。
- ・ これについては今後、ステレオ PIV システムの導入などの三次元的なアプローチによる研究によって、詳細な流れ構造の解明を行うことが必要であると思われる。これについては、実験結果の検証から考察されることであり、今後の調査が必要な点であると考えられる。

## 第7章の参考文献

- [1] 山田崇, 小野直樹, 「気液自由界面上に生じるマランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイスの大スケールチャンネルへの応用.」, 公益社団法人化学工学会第46回秋季大会, 2013年9月18日, 九州大学(福岡県福岡市)
- [2] 吉田純一監修, マイクロリアクターの開発と応用, シーエムシー出版, 2008.
- [3] 今石宣之, マランゴニ対流の基礎, *Int. J. Microgravity Sci.* No. 31 Supplement 2014 (S5-S12).

## 第 8 章 結言

本研究は、代表長さ  $100\mu\text{m}$  オーダーの直線流微細流路の途中を  $90^\circ$  曲げた L 字型流路の屈曲部に気液自由界面を設置して、マランゴニ対流によるマイクロ混合流生成デバイスとする試験流路を製作した。この試験流路を用い、流路内に表面張力の異なる二液を等量流入させ、マイクロ混合流による混合促進とその周辺の流れに対する影響について観察し、その流れ速度と分布に対して PIV 解析を実施した。更に、流動実験時に観察された、このマランゴニ対流によるマイクロ混合流生成を特徴付ける「周期的に発生する流れ」のメカニズムについて考察するため、単相流のアルゴリズムを用いた簡易的な三次元 CFD 解析を実施した。

実験の結果、以下の点について確認された。

- ・ 実験時の試験流体に対する輝度値測定結果から、本研究で試行した混合システムを用いることにより、気液自由界面周辺において、二液間の最大濃度差が 50% 前後（混合率 50%）に達し、気泡形状が維持されている間の長時間、安定した状態で二液の混合が促進された。
- ・ 実験では、流路断面方向の濃度分布に偏りが生じ、必ずしも均質に混合が行われていないことが確認された。これは気泡形状に依存する界面表面上のマランゴニ対流の分布の偏りに因るものと考えられる。
- ・ 実験の初期条件として、マランゴニ対流を主流と同方向に発生させても、逆方向に発生させても、流路屈曲部上流には周期的に渦流れが発生し、その発生周期は、マランゴニ対流を主流と同方向に発生させたとき、約  $0.033[\text{s}]$ 、主流と逆方向に発生させたとき、約  $0.018[\text{s}]$  であることが流れ可視化実験で確認された。
- ・ マランゴニ対流により試験流路内に生じる渦流れの概形は、流れと逆方向に生じるマランゴニ力による混合流生成実験においては、ストークス近似により計算される流れの概形に近い形状が観察され、その渦流れ外縁部の流速は PIV 解析から、1 周期内にデルタ関数に見られるような鋭い速度ピークと正弦曲線のような速度ピークを併せ持つ、特異な流れの概形を持ち、その最大流速は  $20\sim 70[\text{mm/s}]$  に達することが確認された。



- ・ 一連の流れ可視化実験の観察結果から、このマイクロ混合流の主要な混合メカニズムは、上流部で発生した渦流が消滅するとき、下流部に向けて発生する「噴流」による対流拡散であると考えられる。
- ・ CFD 解析の結果、実験時と同様の周期的な流れが一部計算された。その発生周期は、発生から一周目目は 0.16[s]と実験値である 0.217[s]と近似した値が計算された。また旋回流外縁部の流速に関しては実験値とだいたい一致し、PIV 解析で明らかとなった、1 周期内に二つの速度ピークが現れる特異な流れ分布に関しても、ほぼ同じ傾向、大きさを持つ流れが計算された。
- ・ 解析結果から、この周期的な流れの変化は気泡表面上に展開する表面張力分布の変化により生じることが確認された。
- ・ これらの解析結果から、この研究で扱ったマイクロ混合の主要な混合メカニズムは、マランゴニ対流により発生するマイクロ混合流による対流輸送促進効果が支配的であることが確認された。

更に、今後に向けた発展的研究に対する一つの試行として、生成量増大に対応するための流れ条件に対する体積流量増大を図ると同時に気液自由界面上に生じるせん断流であるマランゴニ対流に対する壁面拘束を緩和し、流れの自由度を高める試みとして、流路幅、深さとも増大させ、流路断面積を大きくした試験流路を用いて、混合流生成実験を行った。

その結果、以下のことが確認された。

- ・ 各インレットの流入条件がそれぞれ 8.0, 10.0, 20.0, 50.0[ $\mu\text{l}/\text{min}$ ] ( $Ma=6720430.00$ ,  $Re=0.39\sim 2.47$ ,  $Sc=1112.9$ ) まで、流路内の最大濃度差が 30% 前後 (混合率 70%) まで低下し、著しい混合効果の改善が見られた。また、各インレットの流入条件を 100.0  $\mu\text{l}/\text{min}$  ( $Ma=6720430.00$ ,  $Re=4.93$ ,  $Sc=1112.9$ ) としたときにおいても、混合に効果的と思われる流れの生成に成功した。
- ・ 流れ可視化実験から、このマイクロ混合流では第 5 章で述べた実験結果と比べて非常に複雑な構造の流れが観測され、これらの流れは、①気泡表面上のせん断流、②旋回流、③旋回流消失に伴う噴流による複合した流れであることが、流れの可視化観測により明らかとなった。

- ・ また、このマイクロ混合流は今までの実験と比べて非常に複雑な構造の流れが観測されており、これは、本研究で扱った「二次元的」なアプローチでの実験・解析装置を用いては、詳細な流れ解析が困難であると思われる。

これについては今後、ステレオ PIV システムの導入などの三次元的なアプローチによる研究によって、詳細な流れ構造の解明を行うことが必要であると思われる。これについては、実験結果の検証から考察されることであり、今後の調査が必要な点であると考えられる。

その際の方向性としては、第 7 章 7-1 で扱った「スケール・アップ」流路のコンセプトを維持しつつ、さらに大きな流路断面積の流路を用いた流動実験を行うべきであると考えられる。

最後に、本研究を総括して以下に述べる.

本研究は、微細流路内の壁面上に「気液自由界面」を設置可能な機構を開発し、それを用いて表面張力の異なる二液体による流動実験を行った結果、流路内に設置した「気液自由界面」上において、その表面張力差による「マランゴニ対流」によるものと思われる、一定周期を持つ自発的な流れの発生と、その観察に成功した。また、その流れの影響により、微細流路内の二液の混合促進に大きく貢献することも見出した。

以上の成果は一定の価値を見いだせるものであると考えており、マイクロ空間内での流体挙動や、二液混合技術に対して新たな知見を与えることができたと考えている。

## 謝辞

本研究は、様々な方々に支えられて進められてきた。以下、それらの方々に  
ついて、改めて感謝の意を示したく思う。

まず、本研究の指導教員であり、博士論文審査の主査でもある、本学機械機  
能工学科、小野直樹教授に深甚の謝意を表す。学部4年時に小野先生の研究  
室に配属されてから6年間もの長い間、大変お世話になった。興味の赴くまま、  
好き勝手に研究してきた自分に対し、必要な時に、的確な助言を以って、研究  
が脱線し迷走するのを、ときに未然に防ぎ、ときには厳しくたしなめて頂いた  
ことを今も感謝している。こうして研究内容をまとめてみると、自分に対する、  
その影響力の大きさが改めて分かる。ありがとうございました。

つぎに、本研究の副担当教員であり、博士論文審査の副査でもある、本学機  
械機能工学科、田中耕太郎教授にも深く感謝したく思う。とくに、博士論文審  
査時の先生のコメントは、この研究に対する問題点を端的に指摘して頂き、大  
変有り難く思っている。先生の指摘により行った次元解析を通じて論点整理が  
進み、この研究に対する自分なりの見通しがかなりクリアになったことは、新  
鮮な驚きであり、収穫であった。改めて感謝の意を表す。

本博士論文審査の副査を務めて頂いた、本学機械工学科、角田和巳教授にも  
深い感謝の意を表す。博士論文審査時の有益なご助言もさることながら、自  
分にとっては修士課程在学時に履修した先生の講義「応用気体力学特論」に対  
する思いが強い。この講義は英文のテキストを翻訳し、その内容を用いて日本  
語で講義を進めるものだったが、この授業を通じて自分は、英文による科学論  
文読解のための基本的な語彙や用法等を学び、その授業スタイルにより、科学  
論文に対する英語と日本語の境界を確実に低くすることができた。その成果は、  
採録された4報の査読論文中、3報が英文論文であり、そのうち1報はASME  
に採録（決定）されたことに現れていると思う。そのきっかけを与えて頂いた  
先生が本論文の副査であることは、大変光栄に思う。

同じく本博士論文審査の副査を務めて頂いた、本学機械工学科、丹下学准教  
授にも深く感謝したく思う。博士論文審査時の先生の率直な助言は、適当に聞  
き流したりすることの許されない重みを持つものであった。それは科学に対す  
る誠実さによるものであると思う。これについては自分なりに虚心に受け止め、  
論文内に最大限反映させたつもりである。それについて、すこしでも認めて頂  
けたら嬉しく思う。

同じく本博士論文審査の副査を務めて頂いた、独立行政法人産業技術総合研究所集積マイクロシステム研究センター・ヘテロ融合研究チーム・チーム長、松本壮平博士にも深い感謝の意を表す。松本博士は自分が小野先生の研究室に配属される前から、本研究室に対して数多くの有益な助言をされており、その多くは、今も研究室内での実験ノウハウとして継承されている。本研究にもその多くが用いられており、それ無しには、実験遂行が不可能であったと思われる。また、前述の田中先生とともに、次元解析の実施を提案して頂き、それにより、この研究に対する見通しおよび、その課題と今後に向けての指針がかなりクリアになったことに対しても、感謝の意を表したく思う。

この研究には、小野研究室の同輩、後輩が多数関わり、その進展に対して後押しをしてくれた。とくに、竹田和幹（現オルガノ株式会社）、野中厚佑（本学大学院理工学研究科修士課程機械工学専攻2年）の2氏が、PIV解析についての基本的な知識とその微細流路内の流動に対する適用に関する調査を行ってくれた。その成果は本研究に余すことなく活用されている。その結晶が本論文である。ここに深く感謝の意を表す。

本研究には、自分の研究に関わる実験機器メーカー、商社の担当者にも大変お世話になった。

PIV解析機器メーカーであるカトウ光研株式会社の藤村浩一氏には、PIV解析に関する技術的に有益な助言や、その貴重なノウハウを多数頂いた。また、科学技術全般に対する雑談を通じて、自分の見識や見聞を上げることが出来、藤村氏との交流は、自分にとって得難い体験となった。ここに深く感謝の意を表す。

理化学機器に関する総合商社である、株式会社池田理化の谷内彩子氏には、消耗品から流れ可視化実験用LED光源まで、幅広い物品を購入させて頂いた。常に顧客（研究者）の立場に立ち、注文後はほとんど待つことなく物品を届けて頂いたので、研究に対する時間的ロスが最小限に抑えられたのは、非常に有り難かった。これは、会社全体の総合力のなせる業であると理解しているが、本学の担当として、代表して谷内氏に感謝の意を表したく思う。

最後に自分の家族に感謝の意を表す。とくに自分の弟には、勉学に対して常に激励してもらい、様々な形で常に自分を助けてくれた。正直、この三年間は苦しいばかりで報われないなと思う日々が多かったが、彼の励ましは、自分の精神的な支えであった。いくら感謝しても足りないくらいである。おかげで何とか学業を全うすることができた。ありがとうございました。

そのほか、ここに書ききれないくらい多くの方の御助力により、この研究をまとめることが出来た。その全ての方に一言感謝申し上げる。

2015年3月

芝浦工業大学大学院理工学研究科  
博士（後期）課程地域環境システム専攻  
学籍番号 NA12104 山田崇

## 研究業績

### 論文

- [1] T. Yamada, Y. Watanabe, N. Osato and N. Ono, Experimental and Numerical Study on Micromixing by Utilizing the Movement of Gas Liquid Free Interface, *Journal of Fluid Science and Technology* vol 6, No 2, 2011, pp128-138. doi:10.1299/jfst.6.128
- [2] T. Yamada and N. Ono, A Basic Study of a Straight Flow Micromixing Device Utilizing a Very Thin Liquid Film, *Journal of Fluid Science and Technology* vol 7, No 1, 2012, 64-77. doi:10.1299/jfst.7.64
- [3] 山田 崇, 小野直樹, マランゴニカを活用したマイクロ混合流の生成, *日本機械学会論文集 B 編* 79, 2013, pp888-899, doi: 10.1299/kikaib.79.888
- [4] T. Yamada and N. Ono, A Study on Micromixing Utilizing Marangoni Effect Induced on Gas-Liquid Free Interfaces, *ASME; J. Micro Nano-Manuf.* 3(2), 021003 (2015), doi:10.1115/1.4029684

### 参考論文

- [1] Li Fen, Hu Ruiqing, Yamada Takashi, He Yien and Ono Naoki, The Observations of the Flow behavior and Distribution of Red Blood Cells Flowing through a Micro-Network Channel, *Chinese Journal of Theoretical and Applied Mechanics*, Vol.46, No.1, 2014, pp1-9

## 受賞

- [1] 公益社団法人 化学工学会 粒子・流体プロセス部会 2013 年度動画賞  
タイトル：「気液自由界面上に発生するマランゴニ効果によるマイクロ混合流の可視化」
  
- [2] 公益社団法人 化学工学会 粒子・流体プロセス部会 2014 年度動画賞  
タイトル：「気液自由界面上に生じるマランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイスの大スケールチャンネルへの応用」



## 学会発表

### 国際学会

- [1] Takashi Yamada, Naoki Kato, Kazuki Takeda and Naoki Ono, Study on a Micromixing Device Utilizing Surface Tension Effect on Gas-Liquid Free Interface, *Eighth International Conference on Flow Dynamics Proceedings*, pp493-494, November 9-11, 2011, Hotel Metropolitan, Sendai , Miyagi, Japan
  
- [2] Takashi Yamada and Naoki Ono, A Study on the Effect of Surface Tension on Gas-Liquid Free Interface in the Application of Micromixing, *Ninth International Conference on Flow Dynamics Proceedings*, pp. 638-639, September 19-21, 2012, Hotel Metropolitan, Sendai, Miyagi, Japan
  
- [3] T. Yamada and N. Ono, Visualization and Measurement of the Micromixing Flow on a Gas-Liquid Free Interface Caused by the Marangoni Effect, *24th International Symposium on Transport Phenomena*, pp. 860-866, November 1 - 15, 2013, Yamaguchi Tokyo University of Science, Ube, Yamaguchi, Japan
  
- [4] Takashi Yamada and Naoki Ono, The Experimental and Numerical Analysis for the Micromixing Flow Generated by Surface Tension Effect on a Gas-Liquid Free Interface, *Eleventh International Conference on Flow Dynamics, Proceedings*, pp. 164-165, October 8-10, 2014, Sendai International Center, Sendai, Miyagi, Japan

## 国内学会

- [1] 山田崇, 小野直樹, 「気液自由界面上に発生する表面効果のマイクロ混合促進への応用に関する研究」, 日本混相流学会年会講演会 2012, 2012年8月11日, 東京大学柏キャンパス (千葉県柏市)
- [2] 山田崇, 小野直樹, 「気液自由界面上に発生する表面効果のマイクロ混合促進への応用」, 公益社団法人化学工学会第44回秋季大会, 2012年9月19日, 東北大学 (宮城県仙台市)
- [3] 山田崇, 小野直樹, 「気液自由界面上に発生するマランゴニ効果によるマイクロ混合流の可視化」, 公益社団法人化学工学会第45回秋季大会, 2013年9月16日, 岡山大学 (岡山県岡山市)
- [4] 山田崇, 小野直樹, 「気液自由界面上で生成されるマランゴニ対流を用いたマイクロ混合流の高効率化」, 公益社団法人化学工学会第79年会, 2014年3月18日, 岐阜大学 (岐阜県岐阜市)
- [5] 山田崇, 小野直樹, 「気液自由界面上に生じるマランゴニ対流とくびれ形状マイクロ流路の相乗効果によるマイクロ混合流」, 公益社団法人化学工学会第46回秋季大会, 2013年9月17日, 九州大学 (福岡県福岡市)
- [6] 山田崇, 小野直樹, 「気液自由界面上に生じるマランゴニ対流を用いたマイクロ混合デバイスの大スケールチャンネルへの応用」, 公益社団法人化学工学会第46回秋季大会, 2013年9月18日, 九州大学 (福岡県福岡市)