

# 混相流研究のながれ —気泡/液滴研究の動向と展望—

東京農工大学大学院 工学研究院

田 川 義 之\*

## Flow of Multiphase Flow Researches -Recent achievements and future outlook of researches on bubbles and droplets

\*Yoshiyuki Tagawa, Tokyo University of Agriculture and Technology, Faculty of Engineering

\*E-mail for correspondence: tagawayo@cc.tuat.ac.jp

### 1 はじめに

混相流は固相・液相・気相が2つ以上混合する流れである。2相間には界面を含むため、界面形状・界面張力・物質輸送(相変化)・熱輸送などの因子が流動場と相互作用し、複雑な様相を呈することが多い。粒子・液滴・気泡などの分散相を含む流れは特に分散混相流と呼ばれ、筆者はその研究に15年ほど携わってきた。当該研究分野では近年興味深い研究成果が次々と報告されており、発展著しい。

そこで本稿では筆者が当該分野の発展に重要と考える(1)ナノスケール分散混相流の進展、(2)マルチスケール現象の新発見、(3)他分野との融合領域の創出、の要素を含む実験的研究を中心に、近年発表された象徴的な成果を紹介し、今後10年の展望について述べる。

なお、分散混相流の著しい進展を支える要素として高速度画像撮影機器(ハイスピードカメラ)の普及を指摘しておきたい。本研究分野においては界面形状の高速度変形を正確に捉えることが有用な知見につながる場合が多い。CMOSセンサー技術の向上・普及により、10年前にはハイエンドのカメラであった10,000コマ毎秒以上の高解像度ハイスピードカメラが比較的手頃な価格で手に入るようになった。そのため高速度撮影に取り組む研究者が増加し、実験対象範囲が大幅に拡大したことにより、様々な分散混相流現象について重要な知見が得られている<sup>1,2)</sup>。高速度撮影技術による界面形状の情報は、界面の取り扱いに工夫を要する数値計算の精度向上にも大きく寄与しており、近年の混相流数値計算の発展に欠かせないものとなっている。この観点から、本稿では実験計測機器に関する今後の展望についても筆者の考えを述べる。その他、教育や機械学習に関しても簡潔に述べる。

### 2 これまでの約10年の動向

#### 2.1 [ナノスケール分散混相流] 壁面ナノバブルの観測と理論的理解の進展

壁面に付着したナノサイズの気泡(以下、壁面ナノバブル)の存在が水中AFM計測に基づき指摘されたのは約20年前<sup>3)</sup>であった。しかし、壁面上の気泡が球冠形状(spherical cap shape)を保ったまま溶解・収縮する場合には、ラプラス圧(表面張力と界面の曲率に起因する圧力)により気泡内圧が急激に上昇し、数マイクロ秒で全ての気泡が溶解すると予測される。報告当時にはこの理論予測に対する反証が不十分で、壁面ナノバブルの存在の流体力学的根拠が曖昧であった。そのため、壁面ナノバブルでなく壁面ナノ液滴や不純物なのではないか、など存在そのものに対する疑念を拭えないままであった。しかしここ10年間の活発な議論により理論的根拠が与えられてきた。理論的説明のポイントは固体壁面上の分子レベルの不均質により三相接触線(固体・気体・液体が接触する線)がピン止めされることである<sup>4)</sup>。気泡が三相接触線の位置を保つ場合、溶解するほど球冠形状からパンケーキのような平らな形に変形し、ラプラス圧が減少する。そのため、気液界面の物質交換動的平衡モデル<sup>6,7)</sup>に基づけば、数日間もの間、気泡は存在し続けることが理論的に可能となる。近年、AFM以外の観測手法による壁面ナノバブルの存在確認<sup>8)</sup>や壁面ナノバブルの簡易な生成手法<sup>9)</sup>などが提案されており、壁面ナノバブルの基礎的な理論・制御方法が確立した。

#### 2.2 [マルチスケール現象] 液滴-固体衝突現象

液滴が固体面に衝突する現象において、液滴の慣性力は周囲気体のそれより極めて大きいため、これまで周囲気

体の影響は無視されてきた。しかし衝突液滴が保持する慣性力が同じ場合でもスプラッシュと呼ばれる液滴飛散現象が減圧環境下では大幅に抑制されることが報告された<sup>10)</sup>。液滴衝突直前には固体面と液滴との間にナノ・マイクロメートルオーダーの厚さの空気薄膜が形成され、この薄膜挙動（薄膜内圧）によってミリサイズの液滴挙動全体が影響を受ける。すなわち液滴衝突現象は実はマルチスケール性の強い現象であることが示された。この研究成果をきっかけに、周囲気体と液滴挙動の相互作用を含めた液滴衝突現象の理解について盛んに研究が行われた<sup>11)</sup>。ここ数年でニュートン流体の液滴衝突におけるスプラッシュ現象のメカニズムの議論は収束してきたように思われる<sup>12)</sup>。数値計算においてはミリサイズ液滴の変形とマイクロサイズの空気薄膜のダイナミクスを同時に解くことにより、現象の再現に成功している<sup>13)</sup>。

### 2.3 [融合領域] 振動面上の浮遊液滴と量子力学

ある周波数で振動する水面上に液滴を滴下すると、液滴は接触せずに浮遊し続ける。ただし接触しないものの液滴-水面間の空気薄膜を介した反力によって液滴を中心とした波紋が水面上に広がる。Couderら<sup>14)</sup>はこの浮遊液滴の挙動と量子（光子/素粒子など粒子と波動の二重性をもつもの）のそれとに類似性があることを発見した。これにより、量子力学における *pilot-wave theory* を水面上に再現することが可能となり、複数の光子間の相互作用などを擬似的に可視化することができる<sup>15)</sup>（例えば、二重スリットを通した光の回折現象と同様の現象を、水面下にスリットを設置することにより浮遊液滴の軌道で再現できる）。量子力学と分散混相流における関連が見出され、量子力学的不確定性に対する新しいアプローチ<sup>16)</sup>など、新しい研究領域が創出された。

## 3 これからの約 10 年の展望

### 3.1 [ナノスケール分散混相流] 壁面ナノバブル・ナノ液滴利用によるキャビテーション・沸騰制御

今後もナノスケール分散混相流の中心的話題の一つを壁面ナノバブルが占めると考える。特に壁面ナノバブルを利用したマイクロチャネル流れの制御やキャビテーション・触媒反応・伝熱沸騰制御など、流動全体を制御・効率化する研究の進展が見込まれる。ただし安定性の良さから壁面ナノ液滴による流動制御手法がまず確立されると予想する。なお壁面ナノバブル生成位置制御手法の検討はすでに開始されており、例えば金ナノ粒子を利用したプラズモン現象<sup>17)</sup>による気泡発生位置制御法などがある。また今後、壁面ナノバブルの動的（非定常）挙動の観測手法として、光の全反射および蛍光を利用した TIRF<sup>18)</sup>等を利用した非接触計測手法が盛んになると考え

る。学術的な新たな方向性として、壁面ナノバブルの高速応答現象の解明が挙げられる。これまでは液中圧力の時間変動が小さい環境が主な研究対象であったが、短時間で圧力が急激に変化する場などでの壁面ナノバブルの研究は少ない。例えば壁面ナノバブルは液中圧力が急減圧された際のキャビテーション<sup>19)</sup>の核として働くと考えられているが、そのダイナミクスは未だ解明には至っていない。我々は壁面微小気泡を導入することによりキャビテーションの発生量を制御できる可能性を報告しており、今後、流体機械などへの貢献を目指している<sup>20)</sup>。

さて、これまでの研究から、分子レベルで平らな面あるいは溶存ガス濃度が極めて低い特別な環境でない限り、壁面ナノバブルは生じるものと予測される。そのため過熱・過冷却操作など新材料生成に繋がる操作を行う場合には壁面ナノバブルを根本的に除去するため、液滴を浮遊させる手法<sup>21)</sup>などにより、液体と壁面との接触を完全に断つことが考えられる。このようにして壁面ナノバブルの影響を除去した上で、今後はバルク中のナノスケール以下のガス状態に関して議論が活発になると考える。

### 3.2 [マルチスケール現象] ソフトマターと液滴衝突

今後は軟質材料（ソフトマター）や多孔質材料を含む環境においてインパクトのあるマルチスケール現象の発見があると予想する。例えば軟質材料に対する液滴衝突現象である。これは 2.2 節で紹介したマルチスケール性に加え、軟質材料の変形を伴う流体構造連成問題である。なお液滴と軟質材料との相互作用については、液滴を軟質材料上に静置した場合の釣り合いについて、基礎理論が構築されている<sup>22)</sup>。今後は動的な相互作用についての実験・数値計算・理論構築が盛んになると展望する。液滴がソフトマターに衝突する問題は生体組織と液体の相互干渉問題など医療分野との関連など学際的に重要度の高いものが多い。我々のグループでは超音速マイクロジェットを用いた無針注射の研究<sup>23,24)</sup>を進めているが、薬剤を液体ジェットとして体内に注入するプロセスは、このマルチスケール性を有する流体構造連成問題を解明する必要がある。

### 3.3 [融合領域] 高粘度機能性流体の液滴吐出・動的性質の把握

マイクロ流体デバイスの成功例の一つはインクジェットプリンタである<sup>25)</sup>が、今後、デジタルものづくりが盛んになるものづくり業界においては 3D プリンタなどに使える高粘度機能性流体の液滴吐出・動的性質の把握が重要となる<sup>26)</sup>。特に界面が大変形する高粘度非ニュートン流体の挙動解明が重要となる。一方、レオロジーの分野では大変形する界面の制御は困難であった。現在、我々をはじめ高

粘度液体のジェット吐出に関する研究<sup>27,28)</sup>が進められており、サスペンション・二層流体・血液など生体液・液体金属などの非ニュートン性流体の取り扱いの幅が今後広がると展望する。これらの機能性流体を利用した技術は産業界からの需要が大きく、また農業・医療分野など応用範囲が非常に広いことを背景に、新たな融合領域が生まれると予想する。これに伴い分散混相流現象を利用した画期的な計測機器が生まれる可能性があると考えている。例えば動的界面張力の計測<sup>29)</sup>や伸長粘度計の構築<sup>30)</sup>は今後10年間で顕著な進展があると予想する。

### 3.4 [計測機器] 圧力場計測・高度画像計測

高速度画像計測技術の発達により流体の非接触速度場計測は特別なものではなくなった。今後は非接触圧力場計測が混相流計測分野のキーワードになると予測する。非接触圧力計測手法として、現在までに背景シュリーレン法 (BOS 法)<sup>31,32)</sup>や PIV による圧力算出<sup>33)</sup>、CARS<sup>34)</sup>などが提案されている。これらの手法に加え、今後さらに開発が進むと期待される高速度画像計測機器がブレイクスルーをもたらすと考える。具体的には精密工学的技術を利用してハイスピードカメラの受光素子前方にマイクロレンズやフィルタ等を設置することにより、新たな画像情報の取得が見込まれる。現在、それぞれの受光素子に異なる偏光方向のフィルタを設置することにより、光の位相差情報を画像情報としてハイスピードで取得し、応力場計測を可能とするカメラが製品化されている<sup>35)</sup>。またライトフィールドカメラ (plenoptic camera)<sup>36)</sup>などにマイクロレンズアレイと組み合わせ、一つのカメラで三次元計測を行うものなどがある。現在の機器の問題点をいち早く解決し、普及した機器が、今後の混相流進展に大きく影響すると展望する。

### 3.5 [その他] 混相流教育・機械学習

最後に今後の混相流教育・機械学習について述べておきたい。学部生向けの流体力学の入門講義では单相流の基礎方程式を学ぶのが一般的であり、混相流について学ぶ機会は少ない。しかし混相流は液滴衝突現象など身近で美しい対象が多く、流体力学そのものへの興味喚起・裾野の拡大に大いに役立つものと考えられる。これまで指摘してきたように、混相流においては界面の存在が現象において極めて重要であり、その挙動を正確に捉えることが不可欠である。有難いことに、ほとんどの学生が所有しているスマートフォンには時間解像度 960 fps で撮影可能なカメラを搭載しているものもある。身近な混相流現象のハイスピード撮影画像を講義中などに紹介することで、学生自身で興味深い流体現象にアクセスできるよう促すことが未来の流体研究者養成の一助になると考える。

次に今後発展が見込まれる機械学習について触れた<sup>37)</sup>。混相流研究の特徴の一つに非常に多くのパラメータの範囲設定を行う必要性および結果の多様性が挙げられる。私はここに機械学習を役立てる意義があると考えている。例えば液滴衝突実験において設定すべきパラメータは、液滴の密度、粘度、表面張力、衝突速度、周囲気体の種類、圧力、温度、固体の剛性、表面荒さ、濡れ性、など数多く、液滴の拡大挙動、スプラッシュの有無など膨大な実験データが蓄積している。これまで研究対象のパラメータ設定にあたっては理論的予測・数値計算・予備実験が主な手段であったが、ここに機械学習による結果予測という新しい視点が加わることで、これまで実施されていない研究が立ち上がり、新しい現象の発見・解明につながる可能性があると考えている。

## 4 まとめ

筆者が携わってきた分散混相流の実験的研究を中心に、当該分野の発展に重要と考える (1) ナノスケール分散混相流の進展、(2) マルチスケール現象の新発見、(3) 他分野との融合領域の創出、の要素を含む実験的研究を中心に、近年発表された象徴的な成果を紹介し、今後10年の展望について述べてきた。筆者はこれからも混相流の織りなす現象の多様性と魅力を追求していきたいと考えている。本稿では筆者の立場から動向と展望について述べてきたが、読者の貴重なご意見を頂戴できればありがたい。お気軽に tagawayo@cc.tuat.ac.jp までご連絡いただきたい。最後にこの貴重な機会を下さった編集委員会の皆様に御礼申し上げる。

## 引用文献

- 1) Thoroddsen, S. T., Etoh, T. G., and Takehara, K.: High-speed imaging of drops and bubbles, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 40 (2008) 257–285.
- 2) Versluis, M.: High-speed imaging in fluids, *Exp. Fluids*, 54 (2013) 1458–35.
- 3) Parker, J. L., Claesson, P. M., and Attard, P.: Bubbles, cavities, and the long-ranged attraction between hydrophobic surfaces, *J. Phys. Chem.*, 98 (1994) 8468–8480.
- 4) Zhang, X., Chan, D. Y. C., Wang, D., and Maeda, N.: Stability of interfacial nanobubbles, *Langmuir*, 29 (2013) 1017.
- 5) Weijs, J. H., and Lohse, D.: Why surface nanobubbles live for hours, *Phys. Rev. Lett.*, 110 (2013) 054501.
- 6) Brenner, M. P., and Lohse, D.: Dynamic equilibrium mechanism for surface nanobubble stabilization, *Phys. Rev. Lett.*, 101 (2008) 214505.
- 7) Petsev, N. D., Shell, M. S. and Leal, L. G.: Dynamic

- equilibrium explanation for nanobubbles' unusual temperature and saturation dependence, *Phys. Rev. E*, 88 (2013) 010402(R).
- 8) Chan, C. U., Chen, L., Arora, M., and Ohl, C. D.: Collapse of Surface Nanobubbles, *Phys. Rev. Lett.*, 114 (2015) 114505.
  - 9) Lou, S. T., Ouyang, Z. Q., Zhang, Y., Li, X. J., Hu, J., Li, M. Q., and Yang, F. J.: Nanobubbles on solid surface imaged by atomic force microscopy, *J. Vac. Sci. Technol. B*, 18 (2000) 2573.
  - 10) Xu, L., Zhang, W. W., and Nagel, S. R.: Drop Splashing on a dry smooth surface, *Phys. Rev. Lett.*, 94 (2005) 184505.
  - 11) Josserand, C., and Thoroddsen, S. T.: Drop impact on a solid surface, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 48 (2016) 365–391.
  - 12) Riboux, G., and Gordillo, J. M.: Boundary-layer effects in droplet splashing, *Phys. Rev. E*, 113 (2017) 024507.
  - 13) Eggers, J., Fontelos, M. A., Josserand, C., and Zaleski, S.: Drop dynamics after impact on a solid wall: theory and simulations, *Phys. Fluids*, 22 (2010) 062101.
  - 14) Couder, Y., Protiere, S., Fort, E., and Boudaoud, A.: Walking and orbiting droplets, *Nature*, 437 (2005) 207–208.
  - 15) Moláček, J., and Bush, J. W. M.: Drops walking on a vibrating bath: towards a hydrodynamic pilot-wave theory, *J. Fluid Mech.*, 727 (2013) 612–647.
  - 16) Fort, E., Eddi, A., Boudaoud, A., Moukhtar, J., and Couder, Y.: Path-memory induced quantization of classical orbits, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 107 (2010) 17515–17520.
  - 17) Wang, Y., Zaytsev, M. E., Lajoinie, G., The, H. L., Eijkel, J. C. T., van den Berg, A., Weckhuysen, B. M., Zhang, X., Zandvliet, H. J. W., and Lohse, D.: Giant and explosive plasmonic bubbles by delayed nucleation, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 115 (2018) 7676–7681.
  - 18) Chan, C. U., and Ohl, C. D.: Total-internal-reflection-fluorescence microscopy for the study of nanobubble dynamics, *Phys. Rev. Lett.*, 109 (2012) 174501.
  - 19) Pan, Z., Kiyama, A., Tagawa, Y., Daily, D. J., Thomson, S. L., Hurd, R., and Truscott, T. T.: Cavitation onset caused by acceleration, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 114 (2017) 8470–8474.
  - 20) Yukisada, R., Kiyama, A., Zhang, X., and Tagawa, Y.: Enhancement of focused liquid jets by surface bubbles, *Langmuir*, 34 (2018) 4234–4240.
  - 21) Sawaguchi, E., Matsuda, A., Hama, K., Saito, M., and Tagawa, Y.: Droplet levitation over a moving wall with a steady air film, *J. Fluid Mech.*, (2018) Under review.
  - 22) Karpitschka, S., Das, S., van Gorcum, M., Perrin, H., Andreotti, B., and Snoeijer, J. H.: Droplets move over viscoelastic substrates by surfing a ridge, *Nat. Commun.*, 6 (2015) 7891.
  - 23) Tagawa, Y., Oudalov, N., Ghalbzouri, A. E., Sun, C., and Lohse, D.: Needle-free injection into skin and soft matter with highly focused microjets, *Lab Chip*, 13 (2013) 1357–1363.
  - 24) Hayasaka, K., Kiyama, A., and Tagawa, Y.: Effects of pressure impulse and peak pressure of a shockwave on microjet velocity in a microchannel, *Microfluid. Nanofluid.*, 21 (2017) 166.
  - 25) Basaran, O. A., Gao, H., and Bhat, P. P.: Nonstandard inkjets, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, 45 (2013) 85–113.
  - 26) Derby, B.: Inkjet printing of functional and structural materials: fluid property requirements, feature stability, and resolution, *Annu. Rev. Mat. Res.*, 40 (2010) 395–414.
  - 27) Onuki, H., Oi, Y., and Tagawa, Y.: Microjet generator for highly viscous fluids, *Phys. Rev. Appl.*, 9 (2018) 014035.
  - 28) Foresti, D., Kroll, K. T., Amis, R., Sillani, F., Homan, K. A., Poulikakos, D., and Lewis, J. A.: Acoustophoretic printing, *Sci. Adv.*, 4 (2018) eaat1659.
  - 29) Hauner, I. M., Deblais, A., Beattie, J. K., Kellay, H., and Bonn, D.: The dynamic surface tension of water, *J. Phys. Chem. Lett.*, 8 (2017) 1599–1603.
  - 30) Bhat, P. P., Appathurai, S., Harris, M. T., and Basaran, O. A.: On self-similarity in the drop-filament corner region formed during pinch-off of viscoelastic fluid threads, *Phys. Fluids*, 24 (2012) 083101–13.
  - 31) Yamamoto, S., Tagawa, Y., and Kameda, M.: Application of background-oriented schlieren (BOS) technique to a laser-induced underwater shock wave, *Exp. Fluids*, 56 (2015) 93.
  - 32) Hayasaka, K., Tagawa, Y., Liu, T., and Kameda, M.: Optical-flow-based background-oriented schlieren technique for measuring a laser-induced underwater shock wave, *Exp. Fluids*, 57 (2016) 179.
  - 33) van Oudheusden, B. W.: PIV-based pressure measurement, *Meas. Sci. Tech.*, 24 (2013) 032001–46.
  - 34) Kearney, S. P.: Hybrid fs/ps rotational CARS temperature and oxygen measurements in the product gases of canonical flat flames, *Comb. Flame*, 162 (2015) 1748–1758.
  - 35) Onuma, T., and Otani, Y.: A development of two-dimensional birefringence distribution measurement system with a sampling rate of 1.3MHz, *Opt. Commun.*, 315 (2014) 69–73.
  - 36) Hall, E. M., Thurow, B. S., and Gueldenbecher, D. R.: Comparison of three-dimensional particle tracking and sizing using plenoptic imaging and digital in-line holography, *Appl. Opt.*, 55 (2016) 6410–11.
  - 37) Trafalis, T. B., Oladunni, O., and Papavassiliou, D. V.: Two-phase flow regime identification with a multiclassification support vector machine (SVM) model. *Indust. Eng. Chem. Res.*, 44 (2005), 4414–4426.