

平成 21 年 4 月 10 日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2006 年度～2010 年度

課題番号：18068006

研究課題名（和文） 高分子溶液の微小流動におけるレオロジー

研究課題名（英文） Rheology of Microfluidics in Polymer Solutions

研究代表者

(1) 東京大学・大学院工学系研究科・教授 土井 正男

(2) 70087104

研究分野： ソフトマター

科研費の分科・細目： 理論・モデリング

キーワード： 乾燥プロセス、薄膜、ゲル化、シミュレーション

### 1. 研究計画の概要

本研究では、基板上の高分子溶液の溶媒蒸発とゲル化に伴う種々の運動（溶媒蒸発にともなう高分子の流れ、高分子と基板のすべり、ゲル化による表面膜の形成と変形）を記述する物理モデルの構築とその検証を行う。特に、気体と高分子溶液の界面、高分子溶液のゾル相とゲル相の界面、高分子と基板の間の界面、等について、界面のメソスケールの構造を考慮しつつモデル化を行い、微小領域における高分子液体の流動・変形・拡散の現象を予測するシミュレータを構築する。これと同時に、本特定領域の研究者と協力しつつ高分子溶液およびゲルの乾燥・変形過程の実験を行い、理論とシミュレーションの検証をおこなう。

### 2. 研究の進捗状況

基板上の高分子溶液の乾燥過程では、様々な物理的な現象が関与しているが、それらをすべて考慮してシミュレーションするのは困難である。したがって、まず各々の現象を表現する本質的な物理モデルを作り、それらを統合してシミュレーションモデルを構成し、実験と比較しながら総合的な理解を得る、という方針で研究を進めてきた。現在までに、溶媒蒸発に伴うゲル化とその蒸発速度に対する影響、高分子の流れと拡散、液滴の形状変化、および気相における溶媒拡散の影響に関して以下のような研究を行った。

(1) 表面膜形成に関する理論：協同拡散の概念に基づいた 1 次元の拡散モデルを提案し、モデルの理論解析により、表面膜が形成される条件を明らかにした。

(2) 弾性効果を考慮した蒸発速度の理論：弾性効果を考慮して溶媒の蒸発速度に関する

理論的な考察を行い、液体表面における高分子濃度の関数として蒸発速度の表式を得た。

(3) 基板上での高分子溶液の乾燥実験：隔壁をもつ基板を用いることにより接触線を固定し、その状況下での乾燥過程における液滴形状の変化に関する実験を行った結果、乾燥後の膜（残留物）の形状は初期の溶液の体積および高分子濃度に依存していくつかのタイプに分かれることがわかった。

(4) 液滴内部の高分子濃度の可視化実験：蛍光ラベルした高分子を用い、蛍光強度測定と、液滴形状の同時測定により、液滴内の高分子濃度分布の時間変化を明らかにすることに成功した。

(5) 液相と気相の結合モデルによる乾燥シミュレーション：液相および気相におけるダイナミクスを記述するモデルを構築し、それらを連成させたシミュレーションを行うことにより、複数の液滴の乾燥では、それらの間の干渉効果が乾燥後の形状に反映されることを明らかにした。

### 3. 現在までの達成度

おおむね順調に進展している。

本研究では、実験、理論、シミュレーションを有機的に関連づけながら研究が進められており、応用上重要な微小領域における高分子溶液の乾燥ダイナミクスに関して、着実な成果を上げている。

### 4. 今後の研究の推進方策

本研究の意図に即し、その目的を達成するため、より物理的な条件が明確である接触線を固定した場合に限定して、応用上重要な界面活性剤の効果や表面膜の粘弾性効果の問

題を優先的に研究をおこなう。そのため、以下のようなテーマを設定し研究を遂行する。

(1) 高分子溶液の乾燥過程における界面活性剤効果の解明：界面活性剤を添加した系で乾燥実験を行い、乾燥後の膜形状を測定する。界面活性剤による界面張力変化およびそれによって惹き起こされるマランゴニ効果を考慮したモデルを構築し、シミュレーションを行う。実験およびシミュレーション結果を比較・検討し、最終膜形状を決定する主要因子を明らかにする。

(2) 蒸発速度が速い場合の膜形状予測：蒸発速度が速く、表面膜を形成する場合において、蒸発速度を乾燥後の膜形状を測定し、それらの間の相関を調べる。表面膜の粘弾性効果を考慮したモデルを構築し、それに基づいてシミュレーションを行い、膜形状を予測する。

(3) 微小流動シミュレータの構築：これまでの研究成果をベースに、蒸発にともなう高分子溶液の液滴形状変化をシミュレーションするシミュレータを構築する。

## 5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 12 件)

(1) Y. Jung, T. Kajiya, T. Yamaue, and M. Doi, "Film Formation Kinetics in the Drying Process of Polymer Solution Enclosed by Bank", Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, 48 巻, 2009 年, 031502-1—031502-6 頁

(2) T. Kajiya, D. Kaneko, and M. Doi, "Dynamical visualization of "coffee stain phenomenon" in droplets of polymer solution via fluorescent microscopy", Langmuir, 査読有, 24 巻, 2008 年, 12369—12374 頁

(3) T. Okuzono and M. Doi, "Effects of elasticity on drying processes of polymer solutions", 査読有, 77 巻, 2008 年, 030501-1—030501-4 頁

[学会発表](計 26 件)

(1) 土井正男, 「高分子溶液の乾燥と成膜」, 日本化学会情報化学部会特別講演, 2008 年 11 月 13 日, 東京大学山上会館(文京区)

(2) 奥園透, 「基板上的高分子溶液乾燥過程のモデリングとシミュレーション」, 第 56 回高分子討論会, 2007 年 9 月 19 日, 名古屋工業大学(名古屋市)