

令和元年6月3日現在

機関番号：14501

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H05552

研究課題名(和文)階層性を持つ低濃度高分子溶液の流動現象を伸長流動の観点から解明する実験的研究

研究課題名(英文) Experimental study on hierarchical flow characteristics of dilute polymer solution in terms of extensional rheology

研究代表者

日出間 るり (Hidema, Ruri)

神戸大学・工学研究科・助教

研究者番号：20598172

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,700,000円

研究成果の概要(和文)：乱流抑制，弾性不安定，急激な伸長粘度の増加など，低濃度高分子溶液の複雑な流動挙動の要因を，nm，umスケールでの「高分子と周囲の流体」や「高分子と周囲の高分子」の相互作用の観点から解明し，高分子溶液の階層性を明らかにした．各階層の実験から以下の成果を得た．高分子の流動抵抗を実測し，流動抵抗が流体中の高分子の形態変化に由来することを提案した．光ピンセットの局所粘度測定では，高分子溶液内部の粘度分布を抽出できた．また高分子溶液内部で生じる高分子の絡まり合いが，弾性不安定や伸長粘度に影響を与えることを見いだし，ひいては，高分子を添加した乱流中ではエネルギーの生成項，消散項が変化することを見いだした．

研究成果の学術的意義や社会的意義

低濃度高分子溶液の複雑な流動挙動は，nmスケールにおける高分子と水の相互作用が，um，cm，mスケールという上位の階層に影響を及ぼす複雑系であると考え，それを実験的に検証した．本研究の成果により，これまで別々に理解されていた高分子1本の挙動と，乱流抑制，弾性不安定性，溶液の伸長粘度といった，umからmスケールまでの各階層の高分子溶液の挙動を結びつけることができる．これによって，高分子溶液の流動挙動解明が進み，乱流抑制，3Dプリンタ，マイクロリアクター，Labo on a chip技術などの精度向上に貢献でき，工業，医療，様々な分野に応用が期待できるため，学術的にも社会的にも意義がある．

研究成果の概要(英文)：Addition of a little amount of polymers to water changes fluid properties drastically. Drag reduction, elastic instability, sudden increase of extensional viscosity of polymer solution are typical examples. In such complex phenomena, polymers may interact with each other in the flow, or polymers interact with the flow. Such interaction in micro scales induces non-uniform structure in fluids, which may affect fluid characteristics in macro scales. In order to clarify the hierarchic structure of polymer solution, we have conducted several experiments in each scale. We have measured polymer-polymer and polymer-fluid interaction in fluids by the drag force due to polymers and local viscosities of polymer solution by optical tweezers. Both are related to non-uniform structure in fluids. It was also clarified that the interactions and non-uniformity increase relaxation time of the polymer solution and viscoelasticity, which affects drag reduction and elastic instability.

研究分野：化学工学，レオロジー

キーワード：複雑流体 階層性 ソフトマター 相互作用

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

微量の高分子を含む流体は、ニュートン流体とは異なる複雑な流動挙動を示す。例えば高分子 0.001wt% 水溶液は乱流を抑制し流体輸送の省エネに貢献する(乱流抑制, 図 1a)。一方、 $\mu\text{m}$  オーダーの流路幅を持つマイクロ流路に高分子溶液を流すと、レイノルズ数が低くとも不安定な流動が生じる(弾性不安定, 図 1c)。弾性不安定は急縮小急拡大流路で発生しやすく、高分子が乱れを抑える乱流抑制とは全く逆の現象である。数値計算による研究から、これらの複雑な流動挙動には伸長流動、それに伴う溶液の伸長粘度  $\eta_{\text{ex}}$  の増加が関係していると示唆された。実際、乱流抑制や弾性不安定を起こす低濃度高分子溶液の剪断粘度を測定すると、値は水とほぼ同じである。 $\eta_{\text{ex}}$  は伸長応力  $\sigma$  を与えた際に伸長方向で感じる伸ばしにくさであり、伸長速度  $\dot{\epsilon}$  によって値が変わる。高分子が溶液中で伸長すると  $\eta_{\text{ex}}$  は急激に増加すると予想される(図 1b)。しかし低濃度高分子溶液の複雑な流動挙動を実験的に解明するのは非常に難しく道半ばである。その理由は高分子溶液が極めて低濃度で、静的には水とほぼ物性が変わらないこと、観察するスケールにより、挙動が変わることだと考えられる。

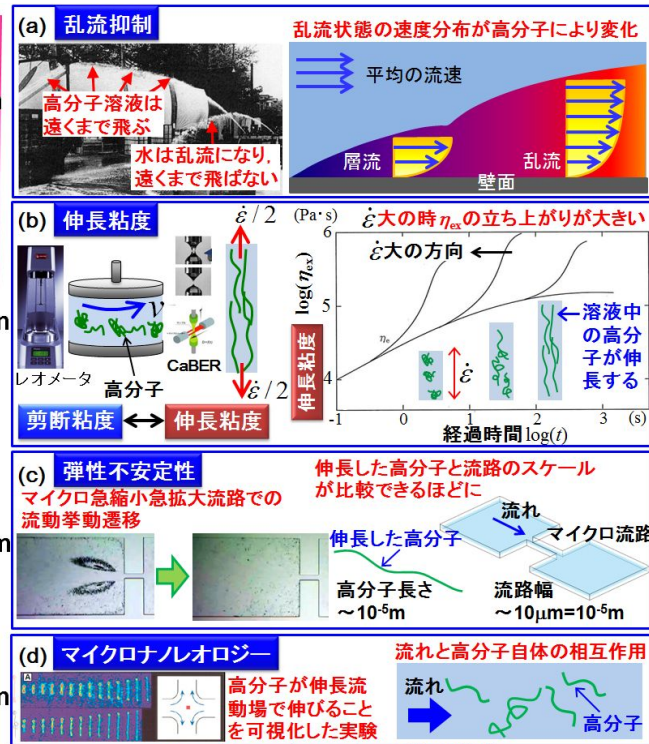


図1. 高分子複雑流体の階層構造

乱流抑制や  $\eta_{\text{ex}}$  など高分子が流体に及ぼす影響についての研究を進めようとする、階層性という概念に行き着く。つまり高分子溶液はいわゆる複雑系だと考えられ、図 1 に示すように nm スケールでの高分子伸長、高分子が受ける流動摩擦抵抗など高分子と水の相互作用による影響が、 $\mu\text{m}$  スケールで弾性不安定、cm スケールで  $\eta_{\text{ex}}$ 、m スケールで乱流抑制という現象に現れていると予想される。従って高分子溶液の流動挙動の解明には、階層内の相互作用、階層間の相互作用という複雑系の概念を取り入れることが重要だと考えられた。

乱流抑制や  $\eta_{\text{ex}}$  など高分子が流体に及ぼす影響についての研究を進めようとする、階層性という概念に行き着く。つまり高分子溶液はいわゆる複雑系だと考えられ、図 1 に示すように nm スケールでの高分子伸長、高分子が受ける流動摩擦抵抗など高分子と水の相互作用による影響が、 $\mu\text{m}$  スケールで弾性不安定、cm スケールで  $\eta_{\text{ex}}$ 、m スケールで乱流抑制という現象に現れていると予想される。従って高分子溶液の流動挙動の解明には、階層内の相互作用、階層間の相互作用という複雑系の概念を取り入れることが重要だと考えられた。

2. 研究の目的

本研究では高分子溶液の流動挙動が複雑系の概念で統括できることを実験的に証明することを目的とした。目的達成のために、nm から m スケールの各階層内で起きている現象が、下位の階層から影響を受け、上位の階層に影響を及ぼすことを実験に基づき検証することとした。従ってまずは、各階層への高分子の影響を捉えることができる装置を開発し、その装置を用いて得られた実験データを解析し、階層間の相互作用について検討した。

3. 研究の方法

3-1. cm から m スケールの流動挙動を定量化

二次元流体 (2D 流体) を用いて、乱流抑制への高分子溶液の  $\eta_{\text{ex}}$  の影響を実験的に検証する。2D 流体は壁面を持たない自立式の流動場で、流動場への剪断応力の影響を小さくできる。この 2D 流動場に、円柱が並んだ格子を差し、格子の下に 2D 乱流を発生させ、高分子の添加の有無で、乱流が変化する様子を測定する。測定方法は、照明光がつくる干渉縞による流動場の可視化と、粒子画像流速測定法 (PIV) による速度場の定量化である。干渉縞画像により可視化された 2D 乱流の画像を解析すると、2D 乱流場のエネルギー輸送に高分子が与える影響を調べられる。また、干渉縞により格子直下から放出される渦の、放出周期と形状についても調べた。PIV で測定した速度場から、乱流エネルギー、エネルギーの生成項、消散項など、乱流統計量を調べた。

3-2. cm スケールの流動挙動を定量化

乱流抑制に高分子溶液の  $\eta_{\text{ex}}$  が与える影響を調べるため、実際に高分子溶液の  $\eta_{\text{ex}}$  を測定できるシリンドリ型急縮小流路を開発した。この装置は、シリンドリ急縮小部分での高分子伸長に起因する余分な圧力損失を測定し、 $\eta_{\text{ex}}$  を算出できる。

3-3.  $\mu\text{m}$  スケールの流動挙動を定量化

図 1c に示したマイクロ急縮小急拡大流路で生じる、高分子溶液の弾性不安定を観測・解析し、nm サイズの高分子が  $\mu\text{m}$  スケールの流動挙動に与える影響を明らかにする。そして、溶液の弾性不安定の起こりやすさが、cm スケールで測定される  $\eta_{\text{ex}}$  に及ぼす影響を明らかにする。

### 3-4. nm スケールでの高分子と水の相互作用の定量化

nm スケールでの高分子と水の相互作用を測定するため、まず走査型プローブ顕微鏡(SPM)を用いて、水中での高分子の流動抵抗測定を実測する装置を開発し、測定を行う。さらに、複雑流体内部の不均一性を定量化するために、光ピンセットを用いて溶液内部の粘度分布測定を試みる。

## 4. 研究成果

以下、それぞれの項目の研究成果は、「3. 研究の方法」に記した 3-1~3-4 の項目に対応している。

### 4-1. cm から m スケールの流動挙動を定量化

2D 乱流場の解析から、高分子を添加した溶液では、格子で放出される渦が変化することが解った。また、渦形成の場所が、高分子濃度の増加とともに、少しずつ下流側にシフトし、ある高分子濃度の領域では格子付近に全く渦が形成されなかった。ところが、さらに高分子濃度を増加させると、再び渦が形成された。これら、3 種類の渦（生成、消滅、再生成）を Vortex Type1, Vortex Type 2, Vortex Type 3 と分類し、これらの渦領域に溶液の何が影響を与えているのかを調べた。すると、高分子溶液の $\eta_{ex}$  にも関連する、伸長流動下の溶液の緩和時間が影響していることが見いだされた。また、再生成する Vortex Type 3 は、オリジナルの渦である Vortex Type1 とは乱流統計量が全く異なり、乱流中のエネルギー輸送が高分子の添加により大きく変わっていることが解った。

### 4-2. cm スケールの流動挙動を定量化

本研究で提案・開発したシリンジ型急縮小流路による測定法を用いて、高分子溶液、および、より粘弾性の強い紐状ミセル界面活性剤溶液の $\eta_{ex}$  を測定した。高分子には、屈曲性の異なる数種の高分子を選び、高分子の特性が $\eta_{ex}$  に影響を与えるかどうかを調べた。すると、測定された $\eta_{ex}$  は高分子特性を反映していた。また、伸長速度による $\eta_{ex}$  の上昇・下降傾向を調べると、溶液の緩和時間とにより説明することができ、測定された $\eta_{ex}$  の値の確からしさを確認できた。さらに、紐状ミセル界面活性剤溶液の $\eta_{ex}$  測定からは、 $\eta_{ex}$  の値と溶液の伸長流動場での流動挙動を対応づけることができた。

### 4-3. $\mu\text{m}$ スケールの流動挙動を定量化

高分子溶液の弾性不安定に高分子の屈曲性と絡まり合いが与える影響を明らかにした。研究当初は、高分子溶液の $\eta_{ex}$  が弾性不安定に影響を与えると考えていたが、実際は、高分子の屈曲性や絡まり合いが最も影響を与えていた。特に、絡まり合いの影響は、溶液の粘度、屈曲性、流路形状の影響を超えて、流れを変化させることが解った。

### 4-4. nm から $\mu\text{m}$ スケールでの高分子と水の相互作用の定量化

SPM に取り付けられた金コートのカンチレバーに、高分子を結合させ、流動場に浸すことで、高分子の流動抵抗を測定した。測定した値の確からしさは抵抗係数のレイノルズ数によるプロットから検証した。さらに、その流動抵抗の起源を探るため、流動場における高分子形態のモデルを提案し、実験値に適用すると、非常に良い一致を示した。このような測定は、これまでに一度も行われたことのないものである。

光ピンセットによる粘度測定法を提案した。さらに、ニュートン流体と高分子溶液の局所粘度を測定し、レオメータによる測定値と比較して、非常に良い一致を得た。さらに、高分子溶液内の粘度分布を数学的解析により抽出した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計9件)

1. Ruri Hidema, Takuya Tano, Hideki Sato, Yoshiyuki Komoda, Hiroshi Suzuki, “Ammonium Alum Hydrate Slurries with Surfactants and Polyvinyl Alcohol as a Latent Heat Transportation Material for High Temperature”, International Journal of Heat and Mass Transfer, 124, 1334-1346 (2018), DOI: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.04.030 査読有
2. Ruri Hidema, Ikumi Murao, Yoshiyuki Komoda, Hiroshi Suzuki, “Effects of the Extensional Rheological Properties of Polymer Solutions on Vortex Shedding and Turbulence Characteristics in a Two-Dimensional Turbulent Flow”, Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 254, 1-11 (2018), DOI: 10.1016/j.jnnfm.2018.02.001 査読有
3. Hiroshi Suzuki, Ruri Hidema, Keiichiro Tanomura, Yoshiyuki Komoda, Kosuke Suzuki, “Velocity Fields around the Bulge Structure Observed in a Cavity Swept by a Visco-Elastic Fluid”, Nihon Reoroji Gakkaishi, 46, 29-36 (2018), DOI: 10.1678/rheology.46.29 査読有
4. Ruri Hidema, Takahito Shiraki, Yuki Tanino, Yoshiyuki Komoda, Hiroshi Suzuki, “Extensional Viscosity of Low Viscous Polymer Solutions Measured by Pressure Drops in Abrupt Contraction Channels”, Nihon Reoroji Gakkaishi, 46, 13-22 (2018), DOI: 10.1678/rheology.46.13 査読有
5. 日出間るり, “高分子および界面活性剤の希薄溶液の流動挙動の研究”, 日本レオロジー学会誌, 45, 225-233 (2017), DOI: 10.1678/rheology.45.225 奨励賞受賞講演論文 査読無

6. Hideki Sato, Hiroshi Suzuki, Ruri Hidema, Yoshiyuki Komoda, "Effects of the Molar Ratio of Counter-Ions on Flow Characteristics of Surfactant Solutions Sweeping Cavities", *Nihon Reorji Gakkaishi*, 44, 143-151 (2016), DOI: 10.1678/rheology.44.143 査読有
7. Ruri Hidema, Takafumi Toyoda, Hiroshi Suzuki, Yoshiyuki Komoda, "Adhesive Behavior of a Calcium Carbonate Particle to Solid Walls Having Different Hydrophilic Characteristics", *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 92, 603-609 (2016), DOI: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2015.08.068 査読有
8. Ruri Hidema, Hiroshi Suzuki, Ikumi Murao, Shion Hisamatsu, Yoshiyuki Komoda, "Effects of Extensional Rates on Anisotropic Structures and Characteristic Scales of Two-Dimensional Turbulence in Polymer Solutions", *Flow, Turbulence and Combustion*, 96, 227-244 (2016), DOI: 10.1007/s10494-015-9647-8 査読有
9. Hiroshi Suzuki, Ruri Hidema, Yoshiyuki Komoda, "Flow Characteristics in a Micro-Cavity Swept by a Visco-Elastic Fluid", *Experimental Thermal and Fluid Science*, 67, 96-101 (2015), DOI: 10.1016/j.exptthermflusci.2015.02.025 査読有

〔学会発表〕(計 90 件)

招待講演

1. 日出間るり, 「依頼講演: マイクロ流動場の流動制御-マイクロ流路を利用した粘弾性流体の流動特性評価とダブルエマルジョンの創成-」, 化学工学会第 84 年会女性技術者フォーラム (2019)
2. Ruri Hidema, Hiroshi Suzuki, "Flow Control in a Microchannel – Elastic Instability of Viscoelastic Fluids and Flow Focusing to Produce Soft Materials –", 6th International Workshop on Process Intensification (IWPI 2018), Taipei, Taiwan, 7-8 November (2018)
3. 日出間るり, 「高分子溶液の流動挙スケール依存性に関する実験研究」, 高分子学会九州支部フォーラム 女性研究者が拓く高分子化学の先端研究 (2018)
4. Ruri Hidema, Hiroshi Suzuki, "Effects of Extensional Rheological Properties of Polymer Solutions on Vortex Deformation in a Two-Dimensional Turbulent Flow", 18th International Workshop on Numerical Methods for Non-Newtonian Flows and 3rd Complex Fluids and Flows in Industry and Nature workshop (2017)
5. 日出間るり, 「マイクロ流路流動場における粘弾性流体の不安定挙動」, 日本トライボロジー学会第 3 種研究委員会分子シミュレーションのトライボロジーへの応用研究会, 第 22 回研究会 (第 5 回兵庫県立大学計算科学連携セミナー) (2017)
6. 日出間るり, 「マイクロ流路を利用した粘弾性流体の評価とソフトマテリアルの創成」, 第 64 回レオロジー討論会 若手招待講演 (2016)
7. Ruri Hidema, Hiroshi Suzuki, "Vortex Deformation on Two-Dimensional Turbulence Affected by Polymers", 24th International Congress of Theoretical and Applied Mechanics (ICTAM2016) (2016)
8. Ruri Hidema, Hiroshi Suzuki, "Vortex Deformation on Two-Dimensional Turbulence Affected by Polymers", New Aspect of Micro- and Macroscopic Flows in Soft Matters, Jointly organized by Okinawa Institute of Science and Technology Graduate University and The Society of Rheology (2016)
9. Hiroshi Suzuki, Ruri Hidema, Yoshiyuki Komoda, "Heat Transfer Recovery on a Surfactant Drag-Reducing Flow", New Aspect of Micro- and Macroscopic Flows in Soft Matters, Jointly organized by Okinawa Institute of Science and Technology Graduate University and The Society of Rheology, Japan (2016)
10. Ruri Hidema, "Flow Characteristics of Dilute Polymer Solution Observed in Micro to Macro Scale", Department of Chemical & Biomolecular Engineering, The University of California at Berkeley Seminar (2015)
11. Ruri Hidema, "Effects of Polymers on Two-dimensional Turbulent Flow", Department of Chemical & Biomolecular Engineering, The Ohio State University Seminar (2015)
12. Ruri Hidema, "Flow Characteristics of Dilute Polymer Solution Observed in Micro to Macro Scale", Department of Polymer Science and Engineering, Inha University Seminar (2015)
13. Ruri Hidema, "Hierarchical Flow Characteristics of Dilute Complex Fluids", Department of Chemical and Materials Engineering, National Central University Seminar (2015)

招待講演 他 6 件

国際会議発表

14. Ruri Hidema, Seika Hayashi, Hiroshi Suzuki, "Effects of Molecular Weight on Drag Forces of Polyethyleneglycol in a Flow Measured by a Scanning Probe Microscope", Annual European Rheology Conference 2019 (2019)
15. Ruri Hidema, Yuki Tanino, Yoshiyuki Komoda, Hiroshi Suzuki, "Extensional Viscosity of Highly Viscoelastic Solutions Measured by Pressure Drops in Abrupt Contraction Flows", The 29th International Symposium on Transport Phenomena (ISTP29) (2018)

16. Ruri Hidema, Ryohei Yoshida, Yoshiyuki Komoda, Hiroshi Suzuki, "Vortex Deformation and Lock-on in a Two-Dimensional Turbulent Flow of Polymer Solutions", The 7th Pacific Rim Conference on Rheology (2018)
17. Ruri Hidema, Seika Hayashi, Yoshiyuki Komoda, Hiroshi Suzuki, "Polymer-Polymer Interaction in a Flow Measured by a Scanning Probe Microscopy", Annual European Rheology Conference 2018 (2018)
18. Ruri Hidema, Yuki Tanino, Hiroshi Suzuki, Yoshiyuki Komoda, Kosuke Suzuki, "Flow Characteristics of Viscoelastic Fluids with Abrupt Contraction Channels", The 9th JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference (TFEC9) (2017)
19. Ruri Hidema, Ikumi Muraio, Ryohei Yoshida, Hiroshi Suzuki, Yoshiyuki Komoda, Kosuke Suzuki, "Extensional Properties of Polymer Solution Effect on Vortex Generation on Two-Dimensional Turbulence", 10th World Congress of Chemical Engineering (WCCE10) (2017)
20. Ruri Hidema, Taiki Oka, Hiroshi Suzuki, Yoshiyuki Komoda, "Effects of the Contraction Ratio on Elastic Instability of Polymer Solutions in Micro Planer Abrupt Contraction-Expansion Channels", The Annual European Rheology Conference (AERC2017), Co-organized with the 26th Nordic Rheology Conference (2017)
21. Ruri Hidema, Yuki Tanino, Takahito Shiraki, Hiroshi Suzuki, Yoshiyuki Komoda, "Extensional Viscosity of Low Viscous Polymer Solutions Measured by Pressure Drops in Abrupt Contraction Flows", The 27th International Symposium on Transport Phenomena (2016)
22. Ruri Hidema, Hiroshi Suzuki, Hideki Sato, Yoshiyuki Komoda, Kohei Nakamura, "Particle Sedimentation Depression with Stabilizers and Surfactants on Phase Change Materials", 11th International Conference on Phase Change Materials and Slurries for Refrigeration and Air Conditioning (2016)
23. Ruri Hidema, Taiki Oka, Hiroshi Suzuki, Yoshiyuki Komoda, "Effects of Contraction Ratio on Elastic Instability of Sodium Hyaluronate Solution in a Micro Channel", The Society of Rheology 87th Annual Meeting (2015)
24. Ruri Hidema, Taiki Oka, Hiroshi Suzuki, Yoshiyuki Komoda, "Elastic Instability of Biopolymer Solutions in Micro Abrupt Contraction-Expansion Channels", International Conference on Nanospace Materials (2015)

国際会議発表 他 19 件

国内会議発表 40 件

〔図書〕(計 1 件)

監修・鈴木洋, 日出間るり(第IV編9章), 潜熱蓄熱・新材料・新素材シリーズ, 潜熱蓄熱・化学陸熱・潜熱輸送の最前線ー未利用熱利用に向けたサーマルギャップソリューションー, pp.229-235, シーエムシー出版 (2016)

〔産業財産権〕

○取得状況(計 1 件)

名称: 伸長粘度測定方法および伸長粘度測定装置

発明者: 日出間るり, 鈴木洋, 菰田悦之

権利者: 国立大学法人神戸大学, 株式会社ユーピーエム

種類: 特許

番号: 特許 6126403

取得年: 2017

国内外の別: 国内

〔その他〕

受賞

1. 日出間るり, 平成 30 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞, 「流動石鹸膜可視化技術による高分子添加乱流抑制効果の研究」, 文部科学賞 (2018)
2. 日出間るり, 日本レオロジー学会奨励賞, 「高分子および界面活性剤の希薄溶液の流動挙動の研究」, 日本レオロジー学会 (2017)
3. 日出間るり, 神戸大学 平成 27 年度優秀若手研究賞(理事賞), 神戸大学 (2016)
4. Ruri Hidema, APL Materials Poster Award at the 2015 International Conference on Nanospace Materials, "Elastic Instability of Biopolymer Solutions in Micro Abrupt Contraction-Expansion Channels", AIP, APL Materials Organized Committee (2015)

解説記事

5. 日出間るり, 「研究総覧 プラスチック成形加工の最近の研究動向 高分子溶液の伸長流動特性測定法」, 成形加工, Vol.31, No. 7, pp.415-418 Seikei-Kakou (Journal of JSPP) (2019)

6. 日出間るり,「研究総覧 プラスチック成形加工の最近の研究動向 粘弾性流体の弾性不安定」, 成形加工, Vol.30, No. 8, pp.411-418 Seikei-Kakou (Journal of JSPP) (2018)
  7. 日出間るり,「TOPICS 乱流抑制に及ぼすレオロジー特性の影響と計測法」, 化学工学, Vol.80, No.2, pp.138-139 (2016)
- 解説記事 他 3 件

ホームページ

<http://www2.kobe-u.ac.jp/~hidema/fluparlab/>

## 6 . 研究組織

### (2)研究協力者

研究協力者氏名：鈴木 洋

ローマ字氏名：Hiroshi Suzuki

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。