

令和元年6月21日現在

機関番号：24402

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06090

研究課題名(和文) 蛍光法による界面活性剤抵抗低減流れにおけるミセル組織構造の空間分布の解明

研究課題名(英文) Spatial distribution of micellar structure in drag-reducing surfactant solution flow clarified by fluorescence probe method

研究代表者

脇本 辰郎 (Wakimoto, Tatsuro)

大阪市立大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：10254385

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：管内を流れる液体にある種の界面活性剤を添加すると流動抵抗が著しく低減することが知られている。これは、液体内に活性剤分子の集合体であるミセルが形成され、さらにそれが流れの中で大きな組織構造を形成して、乱れの生成を抑制するためと考えられている。しかしこれまで、そのミセルの組織構造が管内のどこで形成されているのかを調べる手段が無く、抵抗低減の機構が十分に理解されていなかった。本研究では、ミセル内に取り込まれる性質を有する蛍光プローブを液体に添加し、溶液からの蛍光を調べることで組織構造の形成場所を調べた。その結果、管壁付近で形成されるミセル組織構造が乱れを抑制していると解釈できることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果の学術的意義として、まず新しい測定法の提案がある。蛍光プローブ法により、これまで不可能であったミセルの高次組織構造を局所的に検出することが可能となった。また、測定結果から、管壁付近で形成されるミセル組織構造が乱れを抑制していることを明らかにしたことにも大きな意義がある。乱流の乱れはバッファ層と呼ばれる管壁近傍の層で発達することが知られており、ミセル組織構造はこのバッファ層の流れを変えているものと考えられる。活性剤添加による抵抗低減機構が明らかになれば、液体輸送の大幅な省エネ化が可能となるので、この研究成果は社会に大きな貢献をもたらすものでもある。

研究成果の概要(英文)：As widely known, the addition of a specific type of surfactant to liquid in a pipe flow reduces drag remarkably. Previous studies suggested that the drag reduction results from the organized structures of micelles which are aggregation of surfactant molecules. It is interpreted that the organized structure is formed in shear flow and suppress the growth of turbulence. However, the mechanism of the drag reduction is not fully understood since it is very difficult to determine the organized micellar structures formed in the actual moving flow. In this study, we mixed fluorescence probe, which is captured in the micelle, into the liquid, and determined the formation of the organized structures by measuring fluorescence intensity locally. As a result, we clarified that the organized structure formed near pipe wall cause the drag reduction.

研究分野：流体工学

キーワード：抵抗低減 界面活性剤 ミセル 蛍光プローブ せん断誘起構造

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ある種の界面活性剤水溶液の管内流では、抵抗が低減されることが従来から広く知られていた。また、このような抵抗低減効果は、せん断流れの中で活性剤分子の集合体（ミセル）が配向・結合し、大きな組織的構造（Shear Induced Structure, SIS）を形成して、乱れの発生が抑制されるために生じると考えられていた。しかし、流動中の数百 nm 程度のミセルの構造を流動中に特定することは極めて困難であり、ミセルの構造変化と乱れ抑制作用の因果関係は必ずしも明白ではなかった。流動下のミセルの構造を特定する方法として、流れに中性子線を照射し、中性子線の散乱角度からミセルの配向等を調べる手法（Small angle neutron scattering, SANS）が知られていたが、SANS では空間局所の測定ができなかった。また、測定に中性子線源が必要であり、非常に時間やコストのかかる手法であることも問題であった。このため、流動中における SIS の形成や消滅を簡易な方法で局所的に測定する方法が望まれていた。

2. 研究の目的

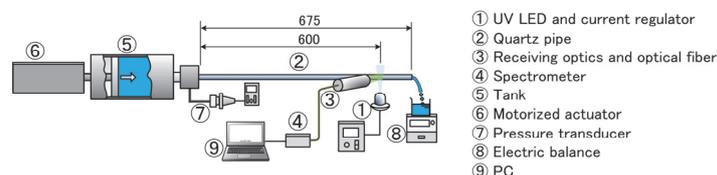
本研究では上記の背景を踏まえて、ミセルの構造変化に応じて蛍光特性が変化するプローブ分子を混入させ、実用上最も重要となる円管内流れを対象にして、局所的な蛍光特性と流動の摩擦損失特性の計測を行うことにより、管内のどの場所における SIS の形成/消失が抵抗低減効果の発現/消失と関係しているのかについて明らかにする。SIS が乱れの抑制の主因であるとするならば、レイノルズ数に依存した SIS の形成・崩壊と摩擦損失の減少・増大に高い相関があるはずである。本研究では、これを明らかにする。また、レーザードップラ流速計（Laser Doppler Velocimeter, LDV）により管内の流速測定を行い、SIS の局所的な形成/消失と活性剤添加による局所的な流れ構造の変化との関係について考察する。

3. 研究の方法

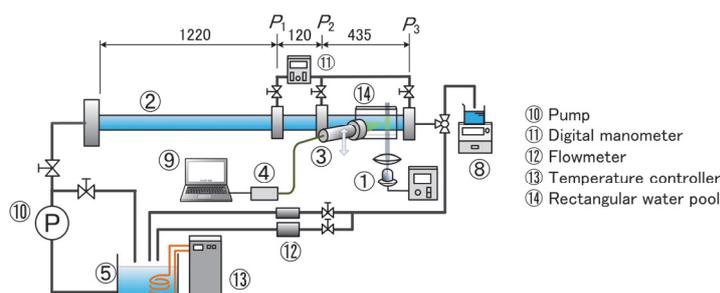
本研究では蛍光プローブ法による SIS の発生・消失の検出を試みる。そのため、供試液体は、水道水に蛍光物質である 1-ピレンカルバルデヒドを添加し、これの飽和溶液に抵抗低減界面活性剤であるテトラデシルトリメチルアンモニウムブロミドと同モル量のサリチル酸ナトリウムを溶解させて作成した。供試液体の臨界ミセル濃度(CMC)はおよそ 200ppm である。本実験では 0~330ppm の濃度の溶液を用いた。この溶液は波長 375nm の紫外光で励起されると波長 487nm をピークとする蛍光を発し、水溶液中のミセル量が増加すると蛍光強度が弱くなる特性を有する。本来、本手法はミセル量を測定する手法であるが、本研究では、波長 487nm の蛍光強度 I_{487} の変化より SIS の発生・消失の検出を試みた。

管内径 1.7mm の実験装置の概略を図 1(a)に示す。円筒タンク内⑤の供試液体をピストン⑥により管内径 1.7mm、全長 675mm の石英製試験管路②に流入させた。液流量は重量法により求め、試験管路入口の圧力をセンサー⑦で計測して管内の圧力損失を求めた。流動中の供試液体を紫外線 LED (波長:375nm) ①で励起し、管断面全体からの蛍光を受光器③で受光して分光器④により蛍光スペクトルを測定した。

管内径 10.6mm の実験装置の概略を図 1(b)に示す。タンク⑤内の供試液体をポンプ⑩により昇圧し、内径 10.6mm、全長 1770mm の石英製試験管路②に流入させた。液流量は重量法および流量計⑫を用いて求め、差圧区間の差圧をデジタル差圧計⑪で測定して圧力損失を求めた。差圧区間に設置した紫外線 LED①で供試液体を励起して、光学系③で蛍光を受光して蛍光スペクトルを測定した。内径 10.6mm の場合には、試験管路の局所的な蛍光を測定するため、凸



(a) 管内径 1.7 mm



(b) 管内径 10.6 mm

図 1 実験装置

レンズによる励起光および蛍光の集光を行い、検査体積を 1mm 角程度の立方体とした。また、受光光学系を管断面方向に移動させて蛍光強度の空間分布を測定した。

本研究では、SIS の形成によってみかけの粘度が増加する点に着目し、供試液体のみかけの粘度と蛍光の強度を種々のせん断速度で同時測定した。両者の変化に強い相関があることを明らかにした上で、界面活性剤水溶液の円管内流れを対象にして、蛍光法による SIS の局所検出を管壁面方向の各点で行い、摩擦係数の計測結果と比較した。さらに、LDV を用いて、平均速度、乱れ強度の分布を測定して SIS の分布との相関関係を明らかにした。

4. 研究成果

・ SIS の形成と蛍光強度の関係

一般に、SIS が形成されると粘度がひずみ速度に依存して増減することが知られている。そこで、図 1 (a)(b)の装置を毛細管粘度として用い、みかけの粘度と蛍光強度を同時に測定して SIS と蛍光強度の関係について調べた。その結果を管内径 d が 1.7mm と 10.6mm の場合について各々図 2(a)(b)に示す。図 2(b)では管壁付近(半径位置 $r = 5.3\text{mm}$)で測定した蛍光強度を示している。下の横軸は壁面ひずみ速度 $\dot{\gamma}$ 、上の横軸は水の粘度を用いて表したレイノルズ数 Re 、上図の縦軸はみかけの粘度 η 、下図の縦軸は相対蛍光強度 I_{487}^* を表す。 I_{487}^* は流動時の波長 487nm の蛍光強度値を静止時の蛍光強度値で除した値で定義した。CMC 以下である濃度 100ppm の結果を見ると (図 2(a)), η と I_{487}^* は $\dot{\gamma}$ に依存せずほぼ一定であり、みかけの粘度および蛍光特性はひずみ速度に依存しないのがわかる。一方、CMC 以上の 300ppm では (図 2(b)), $\dot{\gamma} < 300\text{ s}^{-1}$ で η と I_{487}^* は一定であるが、 $\dot{\gamma} > 300\text{ s}^{-1}$ で η はステップ状に急増し、SIS が形成される。また、これに対応して I_{487}^* が減少している。図 2(b)の管内径 10.6mm の場合にも、 $\dot{\gamma} > 90\text{ s}^{-1}$ において η の増大と I_{487}^* の減少が呼応して生じていることから、管内径に依らず SIS の形成と蛍光強度の変化に強い相関が認められることがわかる。これは、SIS の形成に伴い、ミセル内部の空間の体積が増大するなどして、水溶液中に単分散している蛍光分子をミセルが内部により多く取り込んだためと推察される。本研究では、SIS の形成と蛍光強度の間の強い相関に基づいて、蛍光強度による SIS 形成の判別を行った。

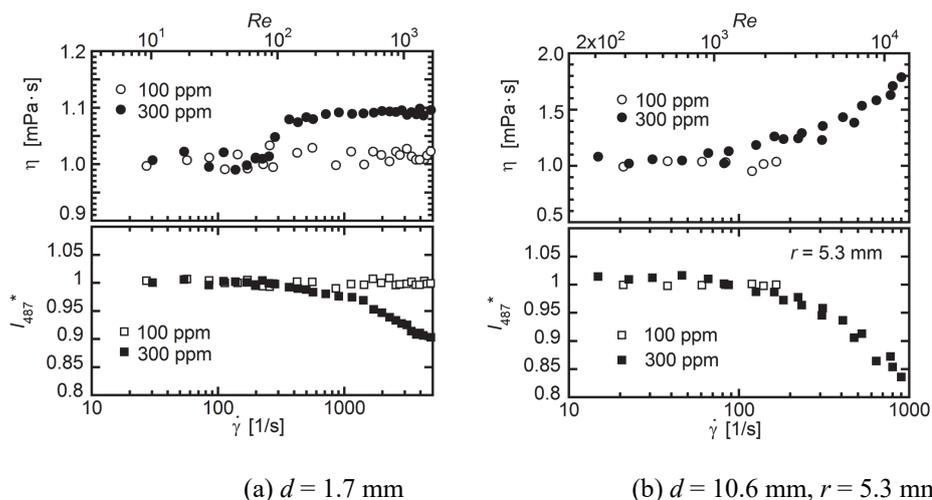


図 2 見かけの粘度と相対蛍光強度の関係

・ 管摩擦係数と蛍光強度の関係

活性剤濃度 300ppm の場合の蛍光強度と管摩擦係数の同時測定結果を管内径 1.7mm と 10.6mm の場合についてそれぞれ図 3(a)(b)に示す。図 3(a)(b)は各々 3つのグラフで構成されており、上から順に、相対蛍光強度 I_{487}^* 、管摩擦係数 λ 、管摩擦係数比 λ/λ_{th} を表している。管摩擦係数比は λ を層流の管摩擦係数の理論値 $\lambda_{th} = 64/Re$ で除した値である。図の横軸は水の動粘度を用いて算出したレイノルズ数 Re を表す。図 3(a)を見ると $Re < 100$ では λ は $\lambda_{th} = 64/Re$ に一致しており、 $I_{487}^* \approx 1$ である。しかし、 $Re = 100$ を超えると λ が λ_{th} に対して 10%程度大きくなり、 I_{487}^* が 1 から減少する。 Re を水の動粘度を用いて算出しているため、SIS の形成による粘度の上昇が図 3 では λ の増加として現れている。さらに Re が増大し、 $Re = 3400$ にまで至ると、 λ が急増し、流れは乱流に遷移する。一般的な液体では $Re = 2000$ で遷移するので、300ppm 溶液では $Re = 3400$ まで遷移が抑制され、抵抗が低減されている。また、 I_{487}^* は $Re = 3400$ に最小値を取り、その後は Re とともに増大する。 $Re = 5000$ で λ はブラジウスの実験式 $Re = 0.3164Re^{-1/4}$ と完全に一致し、発達した乱流となる。それと同時に I_{487}^* は 1 へと戻る。すなわち、SIS の崩壊と乱流への遷移に高い相関が認められる。

次に、 $d=10.6\text{mm}$ の場合の結果(図 3 (b))に注目する。図 3 (b)では半径位置 r を変化させて測定した蛍光強度が上から順にずらして表示されている。管摩擦係数 λ は $Re=1300$ まで λ_{th} と一致するが、それより大きい Re では λ_{th} より数十%程度大きくなる。これは SIS によるものである。さらに Re が大きくなって 15000 に至ると、 λ は急増して流れは乱流に遷移し、 $Re=41000$ で発達した乱流となって、 λ がブラジウスの式と一致する。管壁付近($r=5.3\text{mm}$)で測定した相対蛍光強度 I_{487}^* の Re に対する変化は、上述した流動状態の変化との相関が極めて高い。 Re が 1300 を超えて SIS が形成され、 λ が僅かに上昇し始めると、 I_{487}^* は Re の増大に対して減少し、乱流遷移レイノルズ数($Re=15000$)で最小値を取る。さらに高いレイノルズ数では再び上昇し、 $Re=41000$ で発達した乱流になると 1 へと戻る。管壁近傍以外の点($r \leq 4.0 \text{ mm}$)の I_{487}^* についても、 Re の増大に対して、一旦減少して最小値を示した後、増加する挙動が認められる。ただし最小値とする Re は、 $r = 4, 3, 2, 1, 0 \text{ mm}$ に対してそれぞれ、 $22000, 25000, 28000, 31000, 36000$ であり、中心側では SIS の形成/消失がこうレイノルズ数側にシフトしている。以上の結果から、抵抗低減界面活性剤水溶液の乱流遷移現象は管路中心付近ではなく、管壁近傍に形成される SIS の崩壊によって生じていると考えられる。

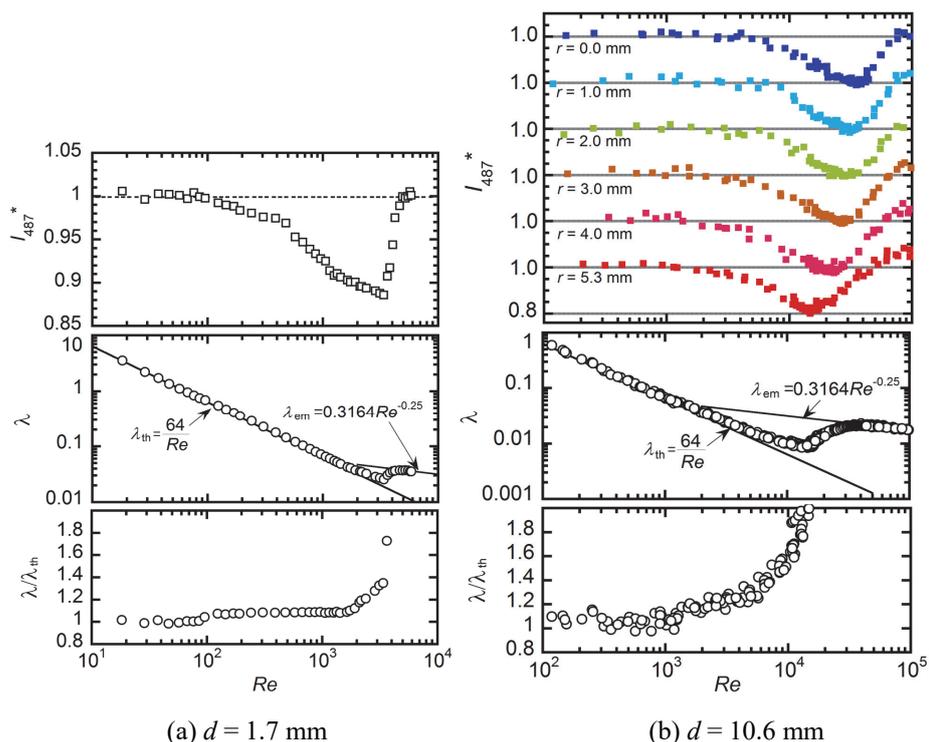


図 3 管摩擦係数と相対蛍光強度の関係

・管壁近傍の蛍光強度と平均速度および乱れ強さの空間分布

管内径 10.6mm の実験装置において、蛍光励起用の光源を LED から紫外線レーザーに交換してレーザービームを集束させるとともに、受光光学系の集光レンズを改良して測定体積を 0.1mm 角程度の立方体にして相対蛍光強度 I_{487}^* と管摩擦係数 λ を測定した。その結果を濃度 300ppm の場合について図 4 に示す。 λ の結果から、乱流遷移レイノルズ数は図 3(b)と同じ 15000 である。一方、相対蛍光強度 I_{487}^* に注目すると、 $r = 5.0\text{mm}$ の I_{487}^* が遷移レイノルズ数で最小値を示しており、それより壁側もしくは中心側の何れの場合にも、より高いレイノルズ数で I_{487}^* が最小値となる。すなわち、 $r = 5.0 \text{ mm}$ の位置における SIS の崩壊が乱流遷移と強い相関があり、この位置より壁面側もしくは中心側では、SIS の崩壊が乱流遷移より遅れて生じている。

次に、これの結果をふまえ、円管の断面全体に SIS が形成されており、かつ、抵抗低減効果が強く現れている 300ppm , $Re=14000$ の

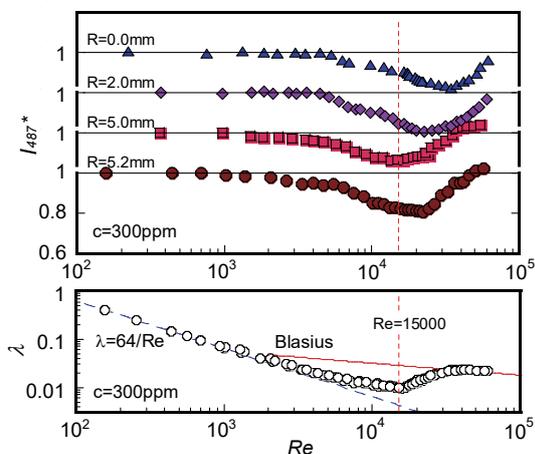


図 4 管壁近傍における管摩擦係数と相対蛍光強度の関係

流れ場について平均速度分布の測定を行った。その結果を図 5 に示す。図 5 の横軸は粘性長さで無次元化した壁面からの垂直方向座標 y^+ 、縦軸は摩擦速度で無次元化した平均速度 u^+ である。実験は、参考として 0ppm, $Re=8000$ の乱流速度分布測定も行った。両流れともに摩擦速度で定義した摩擦レイノルズ数は $Re_\tau=245$ である。図より、0ppm の場合、流れは完全な乱流状態であり、速度はニュートン流体の粘性底層および対数則の式によく一致していることわかる。一方、300ppm 水溶液の場合は SIS が初めに崩壊し始める位置である $y^+=14$ ($r=5.0\text{mm}$) 付近より壁側の領域では、おおよそ、 $u^+=y^+$ の式に一致しているものの、 $y^+>20$ 以上の領域では対数測に比べて大幅に速度が増加しているのがわかる。

次に、この流れ場における u^+ の乱れ強度の分布を図 6 に示す。縦軸は摩擦速度で無次元化した乱れ強度 u^+_{rms} である。図より 0ppm の場合は $y^+\approx 10$ にピークがあり、その値はおおよそ 3 である。これらの値は一般的な管内乱流の値と一致する。一方、300ppm の場合は乱れが最大となる位置は $y^+\approx 20$ となり、0ppm の場合と比較するとピーク位置が壁面から離れる傾向が認められる。また、 $y^+=14$ 付近では乱れの強度が低下しているのがわかる。すなわち、SIS によってバッファー層の比較的壁に近い領域における乱れの生成が抑制されていると推察される。SIS の生成による管壁付近における乱流抑制効果については継続的な検討課題である。

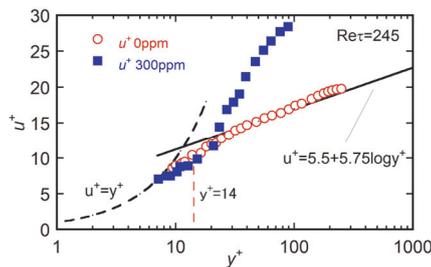


図 5 平均速度分布

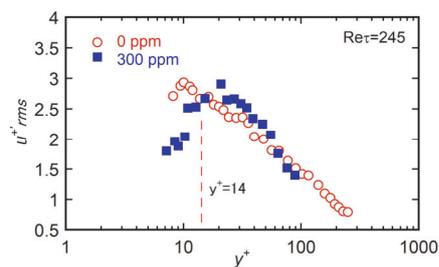


図 6 乱れ強度分布

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① [Tatsuro Wakimoto](#), Koichi Araga, and Kenji Katoh
 Simultaneous determination of micellar structure and drag Reduction in a surfactant solution flow using the fluorescence probe method
 Physics of Fluids, Vol. 30, 033103 (2018), 査読あり
 DOI : 10.1063/1.5017526

[学会発表] (計 7 件)

- ① 荒賀浩一, 高田裕司, [脇本辰郎](#), 加藤健司 : 日本機械学会 2018 年度年次大会, 2018 年
 界面活性剤水溶液流れの乱流遷移時におけるミセル高次構造変化
 ② 荒賀浩一, 高田裕司, [脇本辰郎](#), 加藤健司 : 日本実験力学学会 2018 年度年次講演会, 2018 年
 抵抗低減界面活性剤水溶液流れにおける壁面近傍のミセル構造と速度場の変化
 ③ 高田裕司, 荒賀浩一, [脇本辰郎](#), 加藤健司 :
 日本機械学会関西支部平成 29 年度関西学生会卒業研究発表講演会, 2018 年
 界面活性剤添加による抵抗低減効果とミセル高次構造変化との関係
 ④ 荒賀浩一, 弓本健人, [脇本辰郎](#), 加藤健司 : 日本機械学会 2017 年度年次大会, 2017 年
 界面活性剤水溶液流れの抵抗低減効果とミセル構造変化の関係
 ⑤ 荒賀浩一, 弓本健人, [脇本辰郎](#), 加藤健司 : 日本実験力学学会 2017 年度年次講演会, 2017 年
 抵抗低減界面活性剤水溶液流れにおける壁面近傍のミセル構造変化
 ⑥ 荒賀浩一, 東山祐大, [脇本辰郎](#), 加藤健司 : 2016 年度日本機械学会年次大会, 2016 年
 抵抗低減界面活性剤水溶液流れの乱流遷移時におけるせん断誘起構造の変化
 ⑦ 荒賀浩一, 東山祐大, [脇本辰郎](#), 加藤健司 : 日本実験力学学会 2016 年度年次講演会, 2016 年
 界面活性剤水溶液流れにおけるせん断誘起構造の変化と乱流遷移の関係

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
 ○取得状況 (計 0 件)

[その他]
該当なし

6. 研究組織

(1) 研究分担者
該当なし

(2) 研究協力者
研究協力者氏名：荒賀浩一
ローマ字氏名：Koichi Araga

研究協力者氏名：加藤健司
ローマ字氏名：Kenji Katoh

※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。