

令和 5 年 6 月 9 日現在

機関番号：32657

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2022

課題番号：18K03569

研究課題名（和文）電磁スピニング粘性測定システムによる超臨界流体のレオロジー計測法開発

研究課題名（英文）Development of Rheology measurement for Supercritical fluids by EMS system

研究代表者

細田 真妃子（Hosoda, Maiko）

東京電機大学・理工学部・教授

研究者番号：40366406

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は電磁駆動回転システムを、通常の粘度測定手法を用いることができない特殊環境下にある超臨界状態の流体の粘性計測に適用することを目的とした。研究ではまず、想定される圧力容器の底板を介して、遠隔距離を有効にトルク伝達する機構の開発を行った。これにより現在、100mm厚のステンレス板を介して圧力容器内部に設置した回転プローブを駆動することが可能になった。さらに超臨界状態では純水の1/10程度の低粘性を計測する必要があり、これを達成するために自立型の回転プローブを開発した。これにより空気程度の粘性を計測する能力を確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在、超臨界状態にある流体の工学プロセスへの応用が盛んに研究されているが、その機能と物性の探索についてはまだ途上にあり、その一つの分野が流体の力学物性を扱うレオロジー計測であった。超臨界流体は、分子の凝集状態といった静的な構造は液体と変わらないが、分子の運動性は気体に匹敵するという著しい物理的特徴を示す。今回の研究成果により提供されるレオロジー技術は、超臨界流体の物性を理解し、その優れた溶解性や化学反応性など工学上期待される機能が発現されるメカニズムを解明する上で、またこれを応用した流体プロセスを設計する上で重要な、広い物理条件下における超臨界流体の粘性の精密測定を可能にした。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to develop a viscosity measurement system based on the electromagnetically spinning system, which can measure the rheological properties of soft materials in the super critical state. In the initial stage of the study, we developed a new mechanism to extend the distance of the remote driving of the viscosity rotor beyond the thick wall of the pressure vessels. We successfully extended the distance to 100 mm, in which stainless steel board is sandwiched. A new type of the rotational viscosity probe is also developed, which can detect the viscosity of the atmosphere.

研究分野：機能性レオロジー

キーワード：粘性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

現在、超臨界状態にある流体の工学プロセスへの応用が盛んに研究されている。その代表例は様々な物質の溶解性に優れた二酸化炭素であり、必要物を溶解・抽出した後に減圧により容易に除去可能であることから、すでに食品など安全性が要求される工程にも新規の加工技術として利用されるに至っている。また超臨界状態の水は極めて酸化力が強く、このため毒性の強いダイオキシンやPCBの分解などへの応用研究が進められている。このように実用化研究が先行して進む超臨界流体であるが、その機能と物性の探索についてはまだ途上にあり、その一つの分野が流体の力学物性を扱うレオロジー計測である。

我々がこれまで継続して開発を行ってきた電磁駆動方式による粘弾性測定システムは、試料中に置かれた回転プローブに遠隔にトルクを印加し、周囲媒質の粘弾性による抵抗トルクを感じながらの回転運動の観察から対象物質のレオロジーを計測するものであり、これまで粘弾性測定が困難であった様々な対象物や環境における精密計測を可能にする。本研究ではその低粘性対応能力を活用し、超臨界状態にある流体の簡便かつ精密なレオロジー計測手法に応用できると着想した。超臨界液体は様々な工学プロセスへの応用が期待されており、すでに実用化が始まっている二酸化炭素の超臨界状態について、多様な抽出物が溶解してゆく過程を粘性計測によりモニタリングすることにより、工業プロセスの監視と制御などへの応用が期待される。

超臨界流体の一つの特徴は、その物性が気体と液体の「ちょうど中間」ではないことにある。すなわち超臨界流体は、分子の凝集状態といった静的な構造は液体と変わらないが、分子の運動性は気体に匹敵するという著しい物理的特徴を示す。これらの中でも粘性は、例えば流体の攪拌や輸送などの工業プロセスを設計する上で必須の物理量であるものの、先に述べたように気体とほぼ同程度の値しか持たないためこれを計測することは極めて困難であり、これまでに有効な測定手段が存在しなかった。例えば気体の粘性測定では、圧力を加えて細管を流れる気体の量から粘性を計測するのが一般的であるが、少なくとも数10気圧以上の超臨界流体圧力下でこの測定を行うことは、測定装置の作製という点からみても、あるいは「圧力一定の条件」を厳密に課すという点からみても妥当ではないことが明らかである。

以上の通り、超臨界流体の物性を理解し、優れた溶解性や化学反応性など工学上期待される機能が発現されるメカニズムを解明する上で、またこれを応用した流体プロセスを設計する上で、広い物理条件下における超臨界流体の粘性の精密測定は今後必須の要素技術である。

2. 研究の目的

以上を踏まえ本研究は、簡便でありながら高精度であり、さらに実際の超臨界流体を用いた工業プロセスに組み込み可能な粘性測定装置を開発することを目的とする。さらに完成した装置を用いて現在実用化が図られている二酸化炭素の超臨界状態を念頭に置いた気体における粘性の測定を行い、その温度・圧力依存性のデータベースを構築して工業界にこの方法論の有効性を示す。

また、例えばコーヒーからのカフェイン成分の抽出プロセスなどを念頭に置き、高压容器内でのレオロジー測定を行うための長距離遠隔プローブ技術を構築する。

3. 研究の方法

まず高压力下での適用を考慮した電磁回転式(EMS)システムを設計・製作する。このシステムについて簡単に説明する。測定ではディスク状の回転子を用いる。装置の上部には複数の磁石が配置されており、これが回転子に垂直な成分の磁場を発生する。磁石の回転により磁場の時間変動に応じた電界が生じて導電性の回転子内部に誘導電流が流れ、この電流と印加磁場のローレンツ相互作用により、回転子には磁場に追従する方向にトルクが加わる。印加されるトルクの大きさは磁場の大きさと回転数のみから決まるため、回転子の回転速度から試料が及ぼす粘性トルクの絶対値を決めることができる。さらに磁場の回転数を変化させることにより印加トルクの大きさを掃引し、粘性のずり速度依存性を調べることもできる。この関係は一般には流動曲線と呼ばれる液体材料のレオロジー特性の最も基本的な情報である。最新のシステムではこの回転子が反磁性材料であるグラファイトで形成され、かつその下部に配置された永久磁石によりこれを空中浮揚させことにより、一切の機械摩擦を排して気体程度の極めて小さい粘性も精密に決定することが可能になった。

これらこれまでに積み上げてきた要素技術を集約し、最終的には圧力容器内での実際の粘性測定を行うことを最終目標とした。

4. 研究成果

成果の説明にあたり、まず使用する電磁駆動式(EMS)粘性測定システムの概要を記す。電磁回転式(Electro-Magnetically Spinning; EMS)粘度測定システムは、遠隔で試料に接した回転子にトルクを印加できるため極限環境や密閉された試料の粘性を計測できるという利点がある。試料容器に配置された導電性の部材を有する回転子に、外部から回転磁場を印加することにより、回転子に誘導電流を誘起する。この電流と磁場とのローレンツ相互作用により、回転子には

磁場に追従する方向にトルクが加わる。トルクの大きさは磁場と回転プローブそれぞれの回転速度の差に比例し、ずり速度はプローブの回転数に比例するため、磁場回転速度が既知であればカメラなどを用いてプローブの回転速度のみを計測することにより、粘性を連続して測定することが可能となる。これにより数週間を超える粘性の計測を行っている。

さらにEMSシステムの特徴としては、回転子の形状に対する自由度が大きいことから、例えば揺動に強い球形やコーンプレート型の円板など任意形状を選択することができるため、用途や試料の特性に応じて最適なずり変形のモードを印加することが容易である。

(1) 長距離遠隔駆動のためのトルク中継器の開発

圧力容器を想定した仕様では、数 cm 程度の圧力隔壁を介して、内部に置かれた回転子にトルクを印加する必要がある。我々のシステムのように磁石を双極子配置した系では、印加トルクは磁石との距離の 6 乗に反比例して急速に減衰するため、何らかの方法によりトルクの遠隔駆動距離を拡張する必要がある。このため圧力容器内部にトルク中継器を配置する。この原理を Fig.1 に示す。

モーターを駆動して遠隔駆動磁石保持台に配置された遠隔駆動磁石を回転させると、滑らかに回転する軸受けに保持された回転子駆動磁石保持台軸ならびに保持台ならびに回転子駆動磁石が、遠隔駆動磁石と同期して同じ回転速度で回転する。この遠隔駆動磁石と回転子駆動磁石の距離は、双方の磁力が強いほど長距離にとることができる。例えば遠隔駆動磁石として幅 3 cm、長さ 6 cm、厚み 2 cm、表面磁束密度 0.5T の二つのネオジム磁石の組を用い、回転子駆動磁石として幅 1 cm、長さ 2 cm、厚み 0.5 cm、表面磁束密度 0.3T の二つのネオジム磁石の組を用いた場合、双方の距離が 10 cm であっても、毎秒 10 回転で同期して回転させることは容易であり、軸受けが十分になめらかであれば毎秒 20 回転で同期して回転させることも可能である。

このとき遠隔駆動磁石が回転子駆動磁石に与えることのできるトルクの大きさは、遠隔駆動磁石の面の幅よりも遠隔駆動磁石と回転子駆動磁石の間の距離が大きいつき、この距離の 3 乗に逆比例して減少する。これに対し、回転子駆動磁石が回転子に与えることのできるトルクの大きさは、回転子駆動磁石の面の幅よりも回転子駆動磁石と回転子の距離が大きいつき、この距離の 6 乗に比例して減少する。したがって回転子駆動磁石を直接モーターなどで回転させて、回転子にトルクを与える従来の構成に比べて、遠隔駆動磁石をもたで回転し、さらにこれと磁氣的に結合した回転子駆動磁石を回転させる構成の方が、モーターと回転子間の距離をはるかに大きくとることができる。

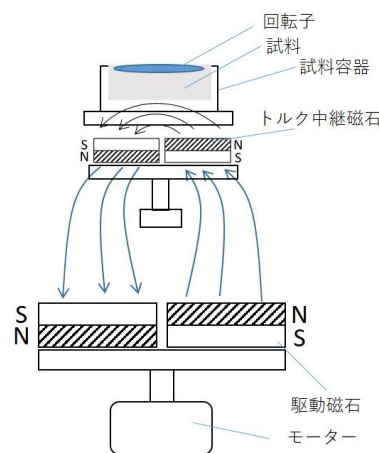


Fig.1 Configuration of Hat-type rotor

実際、これまで試料が厚みのある隔壁を有する密閉容器、たとえば高压容器や真空容器の収納されている場合、従来の構成では回転子駆動磁石と回転子の間の距離を大きくできないという制約から、十分なトルクを印加できなかつた。さらに密閉容器であるため隔壁を通過して、トルクを印加するシャフトなどを通すことは極めて困難であった。

回転子は、円盤形状の部材、例えば金属材料で形成されており、その一部または全部（全体）が導体（例えば、金属材料）にて構成されているが、回転子底板は、プラスチック製の円板の上面に市販のアルミ箔などを貼着させて作成しても良い。これにより、市販のプラスチックの円板と市販のアルミ箔とから容易に安価な回転子底 A を形成することができる。

このトルク中継器により、トルクの到達距離を 100mm 以上に拡張することが可能となった。もちろん、100mm の空間は真空でも、あるいは金属、コンクリートでもよく、このため遠隔駆動が必要とされる様々な実験条件にも応用することが可能である。

(2) 自立型回転子による低粘性の精密測定

これまでに非常に薄い円板形状をしたアルミニウム薄板を回転子として用いることにより、主に浮力を利用して試料表面上に回転子を浮上させ、これにより機械的な摩擦が極めて小さい浮上型 EMS を作製し、低粘性試料の粘性の精密測定などを行ってきた。この方式はまた、液体表面に特徴的に形成される薄膜などの機械的性質を測定することにも優れており、実際に著者らは昇温により牛乳表面などに形成されるタンパク質膜の凝集状態の経時変化などを報告してきた。

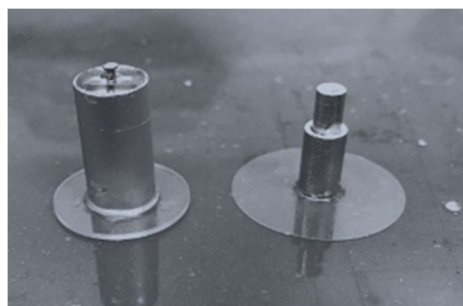


Fig.2 Photo of Hat-type EMS rotor (left) and supporting rod (right).

一方で現在市場展開されている主力の回転子では、試料中にピボットを浸した状態となっている。連続した化学反応のモニタリングでは、このピボット部に析出物が凝集することにより、プローブの安定した回転を維持できないという欠点があった。このためピボット部が試料中に没せず、かつ安定した垂直姿勢を維持できる新しい回転プローブを作製した。

今回、導入した回転プローブは、いわゆるやじるべえの原理により垂直姿勢を維持するもので、その形状から新たなハット型回転子と呼称している。これにより低粘性試料のさらなる高精度粘度測定を試みた。この回転子は基本的には平行平板型の回転粘度計と同じ形態であり、粘性測定にかかわる液体試料の厚みが固定される仕組みとなっている。この厚みを狭くすることで円板の回転における抵抗力を大きくし、低い粘性の液体でもトルク検出が容易に行えるよう設計されている。

前述のように EMS 粘度測定システムは非接触で印加トルクを与え、粘度を測定するシステムである。今回作製したハット型回転子と支柱の写真を Fig.2 に示す。また Fig.3 に回転子の設置状態の模式図を示す。試料と接する円板はアクリル製であり、また円筒胴体部はアルミで構成されている。磁場の回転によるトルクはこのアルミスリーブが受ける。

アクリル円板は比較的安価で大きな直径のドーナツ形状の部材が入手可能であり、試料量が許せば大型プローブを採用することにより低粘性の高精度測定が可能となる。これについて以下に説明する。この回転子に加わる抵抗トルクは、 $T = \pi\eta\omega(R_2^4 - R_1^4)/2d$ となる。ここで R_1 および R_2 はそれぞれドーナツの小円、大円の半径であり、 d は試料の厚み、 ω は回転子の角速度、 η は流体の粘性を示す。このように粘性トルクは回転半径の 4 乗に比例するが、ピボット部に働く摩擦トルクは回転子の重量すなわちその半径の 2 乗に比例するため、半径を大きくすることで低粘性に対応が可能である。

今回は回転子の精度を調べるため、純水ならびに粘度計校正用標準液(日本グリース)の JS5、JS10 を用いた。Fig.4 に結果を示す。それぞれの 20.0 °C の粘度は 1.0, 4.065, 8.230 mPa・s である。

測定時の試料温度はすべて 20.0 °C、試料量は 0.700 ml であり、図中で M は磁石の回転数、 D は回転子の回転数をそれぞれ表している。図からわかるとおり、純水程度の低粘性領域でも十分に粘性の差を検出できていることがわかる。

(3) 気体粘性の計測

EMS の特徴は、遠隔駆動によるトルク印加により駆動軸部分の摩擦抵抗を排除し、かつ粘性プローブを軽量化し回転軸支持部を単純な構造の突起とすることで、回転に対する摩擦を大きく低減させて粘性測定の精度を向上させる点にある。この摩擦トルクを測定することで、粘性の測定精度を定量的に評価することができる。

そこで定常状態で回転する回転子に対し、駆動トルクを停止した後の回転数変化を測定して摩擦トルクを決定した。回転子は半径 40 mm、厚み 1 mm のアクリル製でありその慣性モーメントは $I = \pi\rho h R^4/2$ より $I = 4.9 \times 10^{-6} \text{ kg m}^2$ の程度である。

通常の測定配置で試料を入れない場合、回転子の回転速度 ω の時間変化は摩擦トルクを T_{fric}

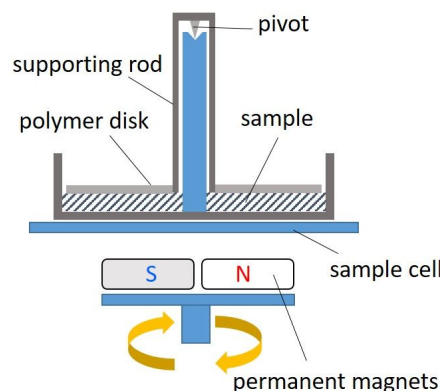


Fig.3 Configuration of Hat-type rotor and EMS driver.

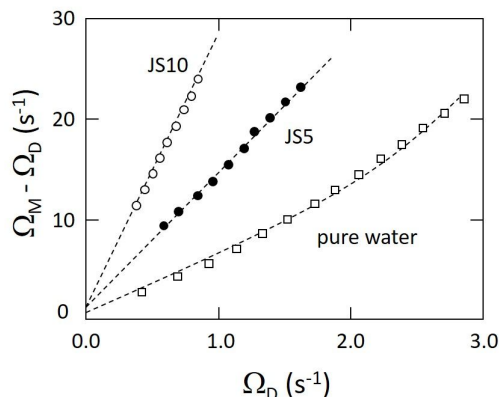


Fig.4 Relation between shear rate and applied torque obtained for lowly viscous samples.

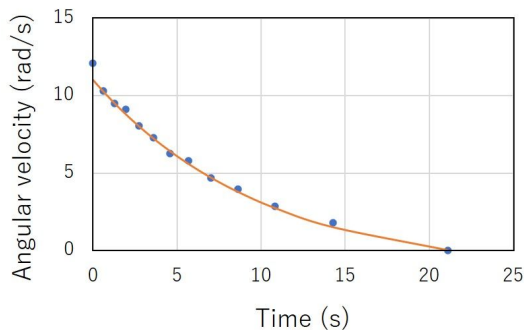


Fig.5 Configuration of Hat-type rotor and EMS driver.

として $I\dot{\omega} = -T_{fric}$ で与えられる。この解は一定加速度で原則する運動を表す。しかし結果は上図のように一定の回転数の減速を示さない。

そこで空気の粘性の効果を考慮すると運動方程式は $I\dot{\omega} = -\Gamma\omega - T_{fric}$ となる。ここで Γ は空気の粘性による抵抗トルクである。この解は $\omega(t) = (\omega_0 + \beta)e^{-\alpha t} + \beta$ である。この $\omega(t)$ の $t=0$ における微係数はとなって、これより摩擦トルクが評価できる。結果は純水を試料とした場合、 $\omega = 6.28 \text{ rad/s}$ における粘性トルクの 0.8% であり、十分に小さい。また図の実線は空気の粘性を考慮した場合の理論曲線であり、実験結果とよく一致していることが分かる。この結果は、Hat 型の EMS により気体の粘性測定が可能であることを示している。以上のように Hat 型 EMS は純水程度の粘性測定に対しては 1% 以上の精度が保障され、さらに純水の 1/50 程度の気体の粘性測定にも応用可能であることが示された。これにより超臨界条件における粘性測定の要素技術はすべて完成させることができた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 M. Hosoda, Y. Yamakawa and K. Sakai	4. 巻 60
2. 論文標題 Extension of remote distance of electromagnetically spinning viscometer	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SDDB04-1 - 4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/abec8a/	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 細田 真妃子, 山川 義和, 酒井 啓司	4. 巻 33
2. 論文標題 EMSシステムによるインライン連続粘性測定	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 超音波TECHNO	6. 最初と最後の頁 86 - 89
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Maiko Hosoda, Yoshikazu Yamakawa and Keiji Sakai	4. 巻 59
2. 論文標題 Continuous in-line measurement of viscosity using self-balancing electro-magnetically spinning technique	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SKKA09-1 - -4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ab7fe4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Maiko Hosoda, Yoshikazu Yamakawa, and Keiji Sakai	4. 巻 59
2. 論文標題 Continuous in-line measurement of viscosity using self-balancing electromagnetically spinning technique	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SKKA09-1:-4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ab7fe4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Maiko Hosoda, Taichi Hirano, Yoshikazu Yamakawa, and Keiji Sakai	4. 巻 39
2. 論文標題 In-Line measurement of visco-elasticity by EMS system	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Proceedings of Symposium on Ultrasonic Electronics	6. 最初と最後の頁 2P1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計5件(うち招待講演 0件/うち国際学会 5件)

1. 発表者名 Maiko Hosoda, Yoshikazu Yamakawa, and Keiji Sakai
2. 発表標題 Measurement of rheology in reaction chamber by immersion type EMS system
3. 学会等名 The 42nd Symposium on UltraSonic Electronics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Maiko Hosoda, Yoshikazu Yamakawa, Keiji Sakai
2. 発表標題 Extension of remote distance of Electro-Magnetically Spinning viscometer
3. 学会等名 The 41st Symposium on Ultrasonic Electronics (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Maiko Hosoda, Yoshikazu Yamakawa, and Keiji Sakai
2. 発表標題 Continuous in-line measurement of viscosity by self-balancing EMS technique
3. 学会等名 The 40th Symposium on UltraSonic Electronics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Maiko Hosoda, Keiji Sakai
2. 発表標題 Electromagnetically Spinning Viscometer for Observing Dynamics of Langmuir Films
3. 学会等名 PIERS(Progress In Electromagnetics Research Symposium) 2018 in Toyama (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Maiko Hosoda, Taichi Hirano, Yoshikazu Yamakawa, Keiji Sakai
2. 発表標題 In-line measurement of visco-elasticity by EMS system
3. 学会等名 The 39th Symposium on UltraSonic Electronics(USE2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関