

令和 4 年 5 月 26 日現在

機関番号：34310

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2021

課題番号：19K23499

研究課題名（和文）流動誘起ゲル相転移を可逆・不可逆にするプロセス構築-ソフトマター作製の新たな戦略

研究課題名（英文）Process construction for reversible and irreversible flow-induced gel phase transition-A new strategy for soft matter production

研究代表者

原 峻平（Hara, Shumpei）

同志社大学・理工学部・助教

研究者番号：20844088

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：多種のフィルター付き滲出装置によって形成した流動誘起ゲルの可逆・不可逆相転移の条件と力学的特性を、可視化実験、レオメータによる動的粘弾性試験、粒子画像流速測定法および平面レーザー誘起蛍光法によって評価した。数十ppmオーダーの低濃度溶液であったとしても適切な変形率・変形量を与えると流動誘起ゲルが形成される。可逆・不可逆相転移の違いは、貯蔵弾性率と損失弾性率の低周波数域の標準偏差に現れることがわかった。また、乱流中で形成された流動誘起ゲルは乱流拡散により周囲の流体を取り込み二桁大きいサイズまで膨潤することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

流動誘起ゲルの理論構築はソフトマテリアルの安定生産及び相転移現象を利用した新技術・次世代の新規高機能性材料の開発に繋がる。流動誘起ゲル相転移の具体的事例が少ないこともあり、その可逆・不可逆相転移の条件や力学的特性など未解明な部分が多い。本研究は相転移の可逆・不可逆性を整理しつつ、力学的特性まで含めた流動誘起ゲルの作製プロセスを構築した。この知見は、ゾル-ゲル相転移に関する研究の進展に大きく寄与するものであり、今後はさらに汎用性の高いゲル形成条件の予測式の提案に向けた重要な知見となる。

研究成果の概要（英文）：The conditions for reversible and irreversible phase transitions and mechanical properties of flow-induced gels formed by dosing devices with various filters were evaluated by visualization experiments, dynamic viscoelasticity measurements using a rheometer, particle image velocimetry, and planar laser-induced fluorescence. Flow-induced gels are formed in an adequate condition of an adequate deformation rate and deformation amount, even in solutions with low concentrations on the order of tens of ppm. The difference between reversible and irreversible phase transitions was found to appear in the standard deviation of the storage modulus and loss modulus in the low-frequency range. It was also found that the flow-induced gel formed in turbulent flow swells to a size two orders of magnitude larger than that of the surrounding fluid by turbulent diffusion.

研究分野：熱工学

キーワード：流動誘起ゲル 乱流 界面活性剤 相転移 可逆・不可逆性

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ゲルとは、高分子が架橋された三次元的網目構造を骨格とする膨潤体であり、溶媒に不溶のものとして定義される。その中でも、流動中のせん断・伸長によって高分子鎖が絡み合い架橋する流動誘起ゲル相転移現象では、ゾル-ゲル間の相転移（構造相転移）が可逆・不可逆となる。流動誘起ゲル相転移の具体的事例が少ないこともあり、その相転移理論は未だ構築されていない。この理論構築はソフトマテリアルの安定生産及びこの相転移現象を利用した新技術・次世代の新規高機能性材料の開発に繋がる。そのためには、流動中の対流拡散も考慮しつつ、周囲の環境から与えられる条件に対して、高分子構造が形成と崩壊を繰り返しながら、どのように構造変化を起こし、ゲルとしての強度をもつに至るのか理解することが重要な課題と言える。これらを念頭に可逆・不可逆相転移の条件とともに流動誘起ゲルを調査する必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、界面活性剤溶液の濃度を変更しつつ、層流から乱流まで多岐に渡る流動条件で溶液にせん断・伸長を加えて実験を行うことで流動誘起ゲル相転移を調査する。そして、相転移の可逆・不可逆性も整理しつつ、力学的特性まで含めた流動誘起ゲルの作製プロセスを構築することが研究目的である。

3. 研究の方法

研究目的を念頭に、多種のフィルター付き滲出装置によって作り出した流動誘起ゲルを、可視化実験、レオメータによる動的粘弾性試験、高速度カメラを用いた粒子画像流速測定法および平面レーザー誘起蛍光法によって調査した。また、フィルターサイズとフィルター枚数を変えることで溶液に与えるせん断・伸長の変形率と変形量を幅広い範囲で変更して実験を行った。

4. 研究成果

流動誘起ゲルの形成条件を探る予備実験として、先端にフィルターを取り付けた中空ステンレスパイプ内に界面活性剤溶液を入れ、押し出し板をパイプ内部へ挿入した上で、パイプのみを手動で動かして溶液にせん断・伸長を与えた。界面活性剤濃度、フィルターの種類・枚数、パイプの引き上げ速度を変更しつつ、水で満たされた水槽内において、フィルターを通過した溶液が流動誘起ゲルを形成するかどうか調べた。その結果、せん断・伸長に対する流動誘起ゲルの形成条件に見当をつけることに成功した。

予備実験の結果をもとに、フィルター部を有する浸出装置を作成した。浸出装置にはダイヤフラムポンプによって溶液が送り込まれ、途中のバルブ開度を変更することで、浸出速度を調整することができる。この機構により流動誘起ゲルの形成条件を定量的に調べた。浸出時の水と界面活性剤溶液の挙動をそれぞれ経時観察したところ、数十 ppm オーダーの低濃度溶液であったとしても適切な変形率・変形量を与えると不可逆相転移によって流動誘起ゲルが形成されることがわかった（図1, 2）。この時形成されたゲルは二時間以上経過しても塊の状態を保っていた。水槽内に放出された溶液をビーカーで回収し、レオメータ（HAKKE 6000）により、動的粘弾性測定を行った。その結果、流動誘起ゲルは広い周波数帯で固体的性質を示し、Maxwellモデルにより見積もった緩和時間は、浸出時の変形率の増加とともに4.5-12秒の範囲内で増加することがわかった。また、流動誘起ゲルの貯蔵弾性率と損失弾性率の周波数依存性を調べることで、可逆・不可逆相転移の違いが、低周波数域の標準偏差に現れることが分かった（図3, 4）。これは、可逆相転移の場合、流動誘起ゲル内部の大スケールの架橋がまばらであったものと考えられる。この流動誘起ゲル相転移は不安定であるが故に、これまで具体的事例の報告が少なかったものと推測される。

予備実験の結果をもとに、変形率の影響をほぼ無視できる、完全発達した平行平板間乱流の中央付近から、フィルター付きノズルを用いて形成したゲルを流し込み、対流拡散のゲル形成への影響を調査した。高速度カメラを用いた粒子画像流速測定法および平面レーザー誘起蛍光法の実験結果から、流動誘起ゲルが乱流拡散により周囲の流体を取り込み二桁大きいサイズまで膨潤すること、また、乱流拡散係数の増加とともにゲルも大きくなることを明らかにした。

上述の結果を取りまとめることで、可逆・不可逆性も踏まえた形成条件とレオロジー測定から明らかになった力学的特性の詳細まで含めた、流動誘起ゲル作製のプロセスを構築した。

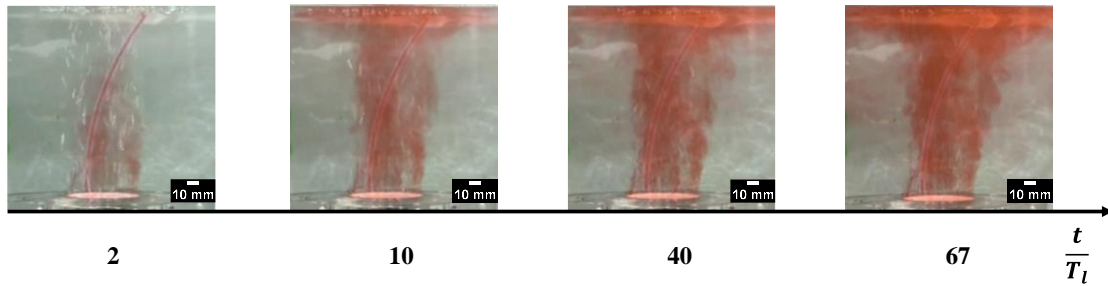


図1 水を満たした水槽内にフィルターを介して染色した水を浸出した際の様子. 浸出からの経過時間を t (s), 浸出溶液が水面に到達するまでの時刻を T_l (s)としている.

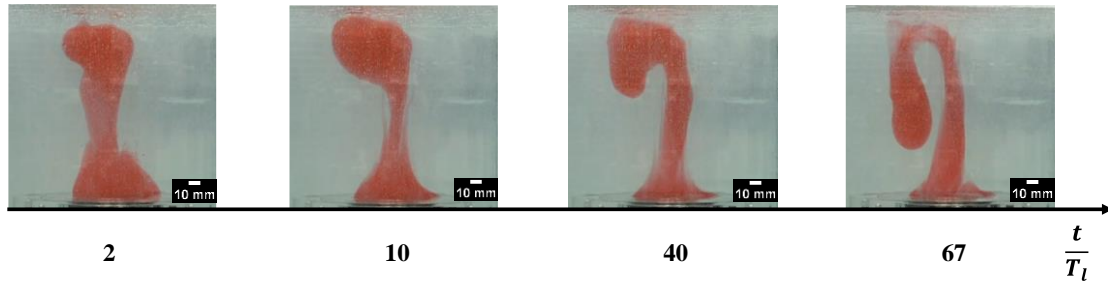


図2 図1の水槽内と浸出する溶液を界面活性剤溶液に変更した際の様子. 形成された流動誘起ゲルが, 時間経過とともに膨潤が進み, 周囲に比べて密度が増すために沈殿する.

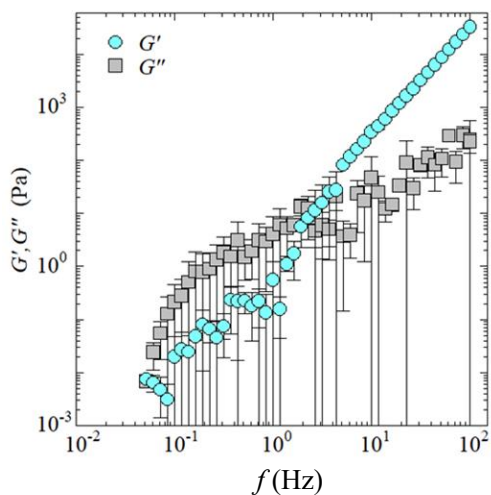


図3 可逆相転移による流動誘起ゲルの貯蔵弾性率 G' と損失弾性率 G'' の周波数 f 依存性. 図内のエラーバーは5回測定した結果の標準偏差を表す.

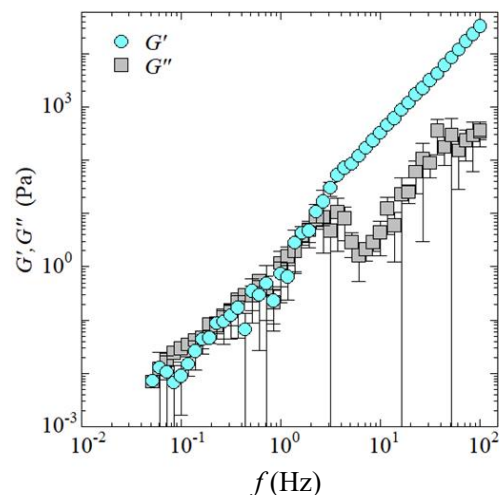


図4 不可逆相転移による流動誘起ゲルの動的粘弾性試験の結果. 見方は図3と同様.

得られた成果は, 国内学会で発表済みであり, 従来の考えが当てはまらない現象として関心を集めた. また, 国際学会で発表予定であり, 査読の段階で着眼点の良さについて評価されている. 本研究の知見は, ゼルゲル相転移に関する研究の進展に大きく寄与するものである. 今後はさらに汎用性の高いゲル形成条件の予測式の提案に向けて研究を進展する必要がある.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1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 廣田 慎, 原 峻平	4. 巻 -
2. 論文標題 界面活性剤水溶液の不可逆流動誘起ゲルの形成条件	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本機械学会2021年度年次大会講演論文集	6. 最初と最後の頁 -
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 無
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 Shin Hirota, Shumpei Hara	4. 巻 -
2. 論文標題 MECHANICAL PROPERTIES OF IRREVERSIBLE GEL INDUCED BY DOSING WITH SURFACTANT SOLUTION	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Proceedings of Fluids Engineering Division Summer Meeting FEDSM2022	6. 最初と最後の頁 -
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2件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 廣田 慎, 原 峻平
2. 発表標題 界面活性剤水溶液の不可逆流動誘起ゲルの形成条件
3. 学会等名 日本機械学会2021年度年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shin Hirota, Shumpei Hara
2. 発表標題 MECHANICAL PROPERTIES OF IRREVERSIBLE GEL INDUCED BY DOSING WITH SURFACTANT SOLUTION
3. 学会等名 Fluids Engineering Division Summer Meeting FEDSM2022 (国際学会)
4. 発表年 2022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
---------	---------