

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 3 月 31 日現在

機関番号：13101
研究種目：基盤研究 (B)
研究期間：2009～2011
課題番号：21360080
研究課題名（和文） マイクロ流れでの水系複雑流体の構造制御による機能性発現と 医療系 $\mu$ 流動制御への展開
研究課題名（英文） New functional properties of aqueous complex fluid generated with its structural control in micro flows and its application to micro-flow control in medical devices
研究代表者 鳴海 敬倫 (NARUMI TAKATSUNE) 新潟大学・自然科学系・教授 研究者番号：20143753

研究成果の概要（和文）：マイクロ流れでの高分子水溶液を用いた流動制御については、(1) マイクロチャンネル内の高分子の挙動に対するすき間の影響を明らかにし、続いて、(2) 高分子水溶液の電場によるイオン濃度の調整による流動性の制御および(3) マイクロチャンネル内の二液混合に対する高分子の渦発生機能の利用に関して実験的に明らかにした。また、粒子分散系については、(4) 電場を印加し、粒子運動を制御することにより、粒子の分散状態が制御できることを解析的に明らかにした。

研究成果の概要（英文）：The following results were clarified with this study about flow controls in micro channels utilizing aqueous polymer solutions: (1) the behaviors of the polymers were influenced with the gap size in the micro channels. (2) Flow rates of aqueous polyelectrolyte solutions were controlled using ion strength conditioning system. (3) Effective mixing in micro channels was obtained utilizing unstable vortexes generated with the polymer solutions. Moreover, we have found that (4) particle mixing was encouraged by applying electric fields from numerical simulation.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	8,400,000	2,520,000	10,920,000
2010 年度	4,400,000	1,320,000	5,720,000
2011 年度	1,800,000	540,000	2,340,000
年度			
年度			
総計	14,600,000	4,380,000	18,980,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：複雑流体, 機能性流体, マイクロ流れ, 流動制御, エレクトロロロジ

## 1. 研究開始当初の背景

本研究の関連分野は、機能性流体（ER 流体など）、マイクロ流れ、マイクロデバイスのように分類される。それぞれの分野にお

ける背景と本研究との関連について以下に述べる。機能性流体については、ER（エレクトロロロジ）流体などが挙げられ、様々な応用が検討されているが、ほとんどが通常の

サイズのデバイスへの応用であり、マイクロ流れへの応用はほとんど検討されていない。また、通常のER流体はオイルに粒子を分散させた系や液晶などであり、閉じた系での利用に限られる。本研究では、これまで実現していない水での輸送を水中の高分子の変形や微粒子の運動で制御する新しい発想の研究である。マイクロ流れも多く研究されており、複雑流体についてもレオロジー的観点から最近多くの研究がなされている。しかし、その流れの特異性を明らかにするに止まり、積極的応用の段階には至っていない。本研究は、単にレオロジー特性の解明に止まらず、機能性としての応用を意識した研究である。マイクロデバイスに関してはMEMS、NEMS技術の発展に伴い、製造法などは発展してきている。DNAチップや $\mu$ TASなどの個々の流体デバイスの開発も進められている。本研究はの中で、マイクロ混合について検討し、複雑流体の持つ新しい特性を利用した混合法を検討する。

## 2. 研究の目的

複雑な構造を有しニュートン流体とは異なる特性を示す流体について、マクロ流れ場では見られないが、サイズ効果や壁面の条件の影響を大きく受けるマイクロ流れで発現する新奇な機能性を明らかにすることを最初の目的とする。そして、特に従来のER流体等とは異なり、例えば薬液などの輸送制御に用いることの出来るように、水にイオン基を持つ高分子または電荷を有する微粒子を分散した系で壁面電荷やイオン濃度等の制御により、それぞれの流動構造を変化させることによる流動を制御することを目指す。具体的には、水溶性高分子についてはイオン濃度を調整する機構を試作し、その流量制御を試みる。また、粒子分散系では電荷を持つ粒子の運動を解析的に調べ、その粒子の分散状態の制御を検討する。最後に、マイクロデバイスとして、高分子溶液を用いたマイクロ流れ内での効率的二液混合実験を行い、 $\mu$ TASへの展開を考慮した検討を行う。

## 3. 研究の方法

研究は以下の4つに分類される。扱う流体で分けて、まず、高分子溶液については、(1)マイクロチャンネル内の高分子の挙動に対する流路サイズの影響の解明、(2)高分子水溶液の電場によるイオン濃度の調整による流動性の制御、および(3)マイクロチャンネル内の二液混合に対する高分子の渦発生機能の利用について検討した。さらに、粒子分散系に関しては、(4)電場を印加による粒子運動を変化させることによる粒子の分散状態の制御を解析的に検討した。それぞれ研究の方法は異なるので、以下の研究成果の章の中で

述べることとする。

## 4. 研究成果

### (1) マイクロチャンネル内の高分子の挙動に対する流路サイズの影響の解明

流路高さが十分に小さくなれば、高分子自体のサイズが流動に大きく影響すると考えられ、通常のマイクロ流れ場とは異なる挙動を示す可能性がある。そこで、本研究では、まず、マイクロチャンネルではどの程度の流路サイズから高分子の挙動に影響があるかを調べた。本研究では特に流路高さが $10\mu\text{m}$ から $50\mu\text{m}$ のマイクロ急縮小流路での渦の挙動、特に渦の安定性について検討した。具体的には、流路高さが異なるマイクロ急縮小平面流路において、さらに幅方向の縮小比を変化させた場合の、渦の挙動を観察、測定した。

本実験では高分子溶液としてpolyethylene oxide (PEO)の100ppm、200ppm水溶液を用いた。また、トレーサーとして平均粒径 $0.5\mu\text{m}$ の蛍光粒子を用いている。流路内の試験流体の流動(蛍光粒子の挙動)を、倒立型蛍光顕微鏡を用いて観察し、CCDカメラで撮影した。また、断面積が大きい矩形流路を急縮小流路に直列に接続し、そこで粒子の動きを撮影し、その映像から流速を算出した。図1-1に急縮小流路の模式図を示す。マイクロ流路は高さ $H=10$  および $30, 50\mu\text{m}$ であり、流路幅 $W_u=200\mu\text{m}$ の上流側から幅 $W_c=20$ および $30, 50\mu\text{m}$ の下流側に急縮小する形状とした。図に定義する渦長さ $L_v$ は変動する場合もあったため、一定時間内の渦長さの最大値 $L_{v\text{max}}$ および最小値 $L_{v\text{min}}$ を算定して検討した。

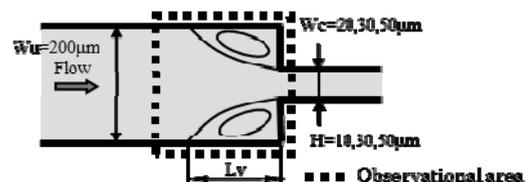


図 1-1 急縮小平面流路の概形と渦長さ  $L_v$  の定義

図 1-2 に PEO200ppm において、(a)縮小部の等価直径  $4m$  で無次元化した最大渦長さ、(b)最大渦長さで無次元化した最大渦長さとの差(以下変動幅)を示す。なお、流路高さおよび縮小比の影響を記号の違いで表している。どちらも横軸はワイゼンベルグ数  $We(=\lambda \times V_c/4m)$  である。 $\lambda$  は Zimm 理論によって得られた試験流体の緩和時間、 $V_c$  は縮小部での平均流速である。(a)において、すべての場合で  $We$  が大きくなると共に無次元渦長さも大きくなり、渦の成長過程は同様の傾向を示すことが分かる。また(b)で、流路高さ  $H=30, 50\mu\text{m}$  においては変動幅がほぼ 1

となる領域, すなわち渦が成長と消失を繰り返す領域がある. それに対し,  $H=10\mu\text{m}$ , 縮小比 4:1 の流路では変動幅は大きくても 2 割程度に抑えられており, 流路高さが非常に小さい場合には変動が抑えられ, 安定な渦が発生していることが分かる. しかし  $H=10\mu\text{m}$  でも, 縮小比 10:1 の流路においては, 1 には満たないものの変動が増大している領域が見られ, 縮小比も流動に大きく影響していることが分かる. このように, 流路高さが  $10\mu\text{m}$  になると, 渦が安定化する傾向が見られたが, これは高分子サイズが流路高さとなってきたためその運動に影響が現れたためと考えられる. また, 図は示さないが, 変動状態の観察から, 流路高さが大きい( $H=30, 50\mu\text{m}$ )ときに発生する変動と流路高さが小さく縮小比が大きいとき( $H=10\mu\text{m}, 10:1$ )に発生する変動では, 高分子のミクロ的な挙動が異なる可能性があることが分かった.

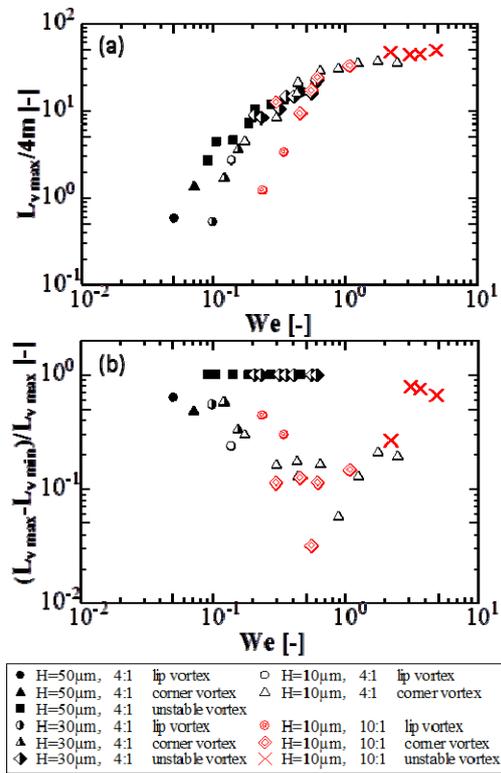


図 1-2 PEO200ppm 水溶液の場合の, (a)最大渦長さに対する流路高さ等の影響, (b)渦変動に対する流路高さ等の影響

(2) 高分子水溶液の電場によるイオン濃度の調整による流動性の制御

この研究では, 高分子電解質を用い, その水中での広がり, 溶媒中のイオン濃度を調整することにより, 変化させて流動性を制御する実験を行った.

実験には, ポリアクリル酸ナトリウム (PAANa) を蒸留水に分散させた 200ppm 水

溶液を用いた PAANa は水中で末端の  $-\text{COONa}$  が  $-\text{COO}^-$  と  $\text{Na}^+$  に電離するため,  $\text{Na}^+$  と同符号の  $\text{H}^+$  を供給イオンとした.

図 2-1 にイオン調整装置の構成を示す. イオン調整装置は, ポリカーボネイトフィルター, 対イオン供給源, 電極および PC 制御された電源で構成される.

図 2-2 に, 対イオンの可逆的供給・回収の原理を示す. 対イオン供給源として採用したポリスチレン微粒子は末端のカルボキシル基が  $-\text{COO}^-$  と  $\text{H}^+$  に解離するため, 負に帯電したポリエチレン粒子を中心に電気 2 重層を形成する. 電極に正電圧を印加して, 正電界を加えると, フィルター近傍に  $\text{H}^+$  の高濃度領域が形成されて, 浸透圧効果によって拡散する. 逆に電極に負電圧を印加すると, ポリスチレン粒子がフィルター側に押し出され, この粒子によってフィルター近傍に  $\text{H}^+$  の枯渇領域が形成され, ここに高分子側の  $\text{H}^+$  が回収される.

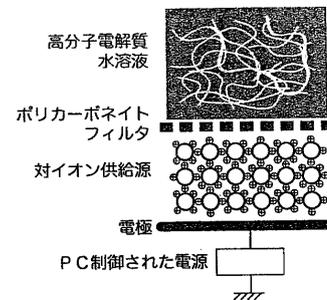


図 2-1 イオン調整装置の構成

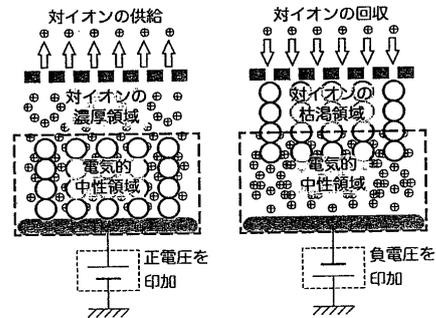


図 2-2 対イオンの可逆的供給・回収の原理

実験では, このイオン濃度調整装置により  $\text{H}^+$  イオン濃度を調整した PAANa 水溶液を矩形流路に流し, 圧力損失および流量を測定し, 流動性の変化を調べた. その一例を図 2-3 に示す. イオン調整装置に電圧を印加しなかった場合 (0V) にも, 原液よりも流動性が向上している. これはイオン調整装置内には元々  $\text{H}^+$  イオンが高濃度で蓄えられているため, 接触させただけで,  $\text{H}^+$  の拡散が生じた結果と考えられる. 続いて, 電極に  $-60[\text{V}]$  を印加すると, その結果より流動性が減少し,  $+60[\text{V}]$  を印加すると流動性が向上した. この

ように印加電圧の正負を変化させる事により、流動性を制御出来ることが分かった。

しかし、ここでは示さないが、正電圧を印加後に負電圧を印加した場合は、流動性の低下が見られず、これは、一度供給された  $H^+$  イオンが高分子と結合し、離れにくくなるためと考えられる。この点の改善が必要である。

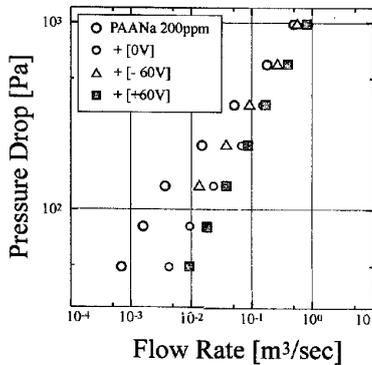


図 2-3 イオン濃度調整による流動性の変化

(3) マイクロチャネル内の二液混合に対する高分子の渦発生機能の利用

比較的濃度の高分子溶液を用い、高分子溶液の粘弾性で誘発される不安定流動がマイクロ混合現象に及ぼす影響を実験的に検討した。特に、急縮小急拡大の繰り返される流路において、ニュートン流体である水と渦変動の発生しやすい高分子溶液を用いて、その濃度および流路の形状を変化させた場合の効果について検討した。

イオン交換水とその水に染料（青色 1 号）を 1000ppm 溶解させ色付けした着色水を使用した。また高分子溶液には濃度が 10 ppm ~ 100ppm のポリエチレンオキサ이드（以降、PEO）18 の水溶液を用いた。

本研究で用いたマイクロチャネルの概略を図 3-1 に示す。流路は T 字型をしており、図のように流路合流後に凸部を交互に 5 つ設けてある。また流路下流部には混合評価の際に用いる拡大部を設けた。流路は、深さが  $100\mu\text{m}$ 、流路幅は入口から合流部分までが  $100\mu\text{m}$ 、流路合流後が  $200\mu\text{m}$  である。また流路内部に設けた凸部は表 3-1 に示すように凸部幅  $t$  を  $100\mu\text{m}$  で一定とし、凸部高さ  $h$  を  $100\mu\text{m}$  と  $150\mu\text{m}$ 、凸部間隔  $p$  を  $1000\mu\text{m}$  と  $500\mu\text{m}$  に変えた A, B, C, D の 4 種類の流路を用いた。実験では二液を流入させ、その流動状態を撮影した。流入させる溶液は一方を着色水とし、もう一方を水または、PEO 水溶液とした。

図 3-2 に混合部での流れの様子を観察した結果を示す。図から分かるように、凸部上流部で高分子による不安定渦が発生し、混合が促進されていることが分かる。下流部での染料の拡散による彩度分布の変化を定量化し、

混合度を求めた。

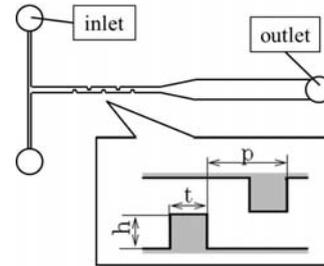


図 3-1 マイクロチャネルの概形

表 3-1 マイクロチャネルの寸法

Channel type	A	B	C	D
t [ $\mu\text{m}$ ]	100	100	100	100
h [ $\mu\text{m}$ ]	100	150	100	150
p [ $\mu\text{m}$ ]	1000	1000	500	500

図 3-3 に流路 B の混合度のグラフを示す。横軸は凸部における  $Re$  数、縦軸は混合度  $DM$  である。着色水 + 水の場合でも、 $Re$  数が低い領域で高い  $DM$  を示しているが、これは流速が非常に低いために、測定点までの間に、ブラウン運動による染料の拡散が十分進むためと考えられる。水同士での混合の場合、 $Re$  数が高くなるほど  $DM$  は小さくなっていくが、着色水 + PEO の場合、ある  $Re$  数からは  $DM$  の値が高くなり、水同士の場合と比較して混合が促進されていることが分かる。この  $Re$  数から、不安定渦が発生したと考えられる。また、その後  $DM$  は最大値を示し、高  $Re$  数ではかえって低くなる現象が観察される。PEO100ppm と 50ppm では同程度の  $DM$  が得られ、最大で 80% 程度の混合度が得られることが分かる。以上の結果から、最高の混合効果を得るには、最適な  $Re$  数が存在することが明らかになった。

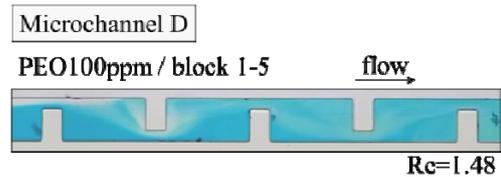


図 3-2 流動状態の観察結果

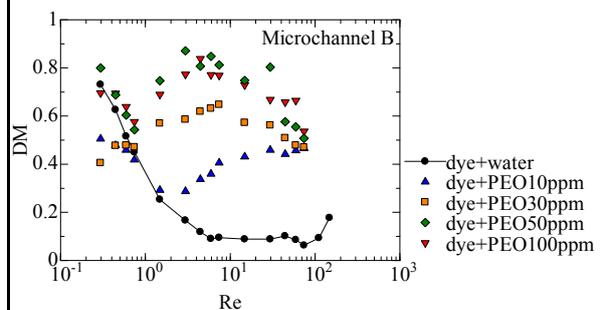


図 3-3 混合度の算定結果

(4) 電場を印加による粒子運動を変化させることによる粒子の分散状態の制御

マイクロチャンネル内の粒子の混合促進を目的とした数値解析を行った。流路壁面の電極から電場を印加して、電気浸透流を発生させた。対流と電気浸透流の相互作用により、電極付近に渦が発生するが、交流電位を印加することで、混合促進効果を期待した。交流周波数を変化させて、粒子の混合特性を調査した。

計算領域は図4-1に示す2次元の平行平板間流路とし、この領域において流体中での微粒子の混合を計算した。流路入口に放物線状の速度分布を与え、流路出口でx軸方向の速度勾配をゼロとした。また、図4-1に示す四つの電極に交流の電位を与えた。対角線上の電極が同位相とした。電場を印加すると、壁面と液体の界面のゼータ電位によって電気浸透流が発生する。この状態を流路壁面の境界条件とした。基礎方程式は非圧縮性ナビエーストークス方程式・連続の式・電位のポアソン方程式である。

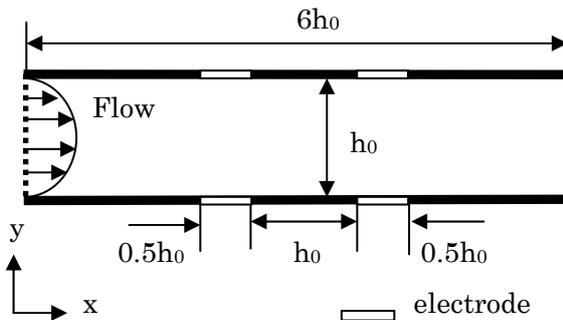


図 4-1 計算領域

計算結果の一例として、図 4-2 に無次元周波数  $f^*=1.0$ ,  $\sin 2\pi f^* t^*=1.0$  の時の速度分布を示す。対流と電気浸透流の相互作用によって、大きな渦が発生している。また、電極付近にも比較的小さい渦が発生している。

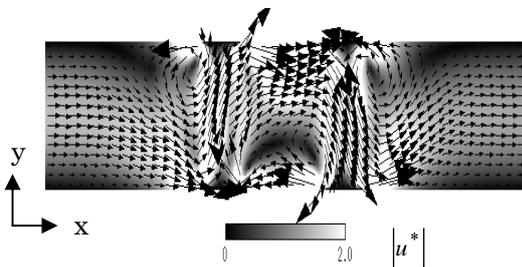


図 4-2 速度場の計算例( $\sin 2\pi f^* t^*=1.0$ )

図 4-3 に交流周波数  $f^*$  と粒子の混合状態を表す分離度  $I(t)$  の関係を示す。 $f^*$  が 0.1 のとき、 $I(t)$  は 1 に近く、ほとんど混合されていないことが分かる。このことから定常の電場を印加したとき、粒子は混合されないことが分かる。一方、 $f^*$  が大きくなるにつれて  $I(t)$  は小

さくなっていき、 $f^*=1.0$  付近で最小となる。つまり、対流の時間スケールと変動の周期が近い場合に混合効果が高いことが分かる。しかし、 $f^*$  が 1.0 を超えて大きくなるにつれて混合されなくなり、 $f^*=3.0$  以降は  $I(t)$  がほぼ 1.0 で一定となる。これは、電場の変動に流れが追いついていないことが原因と考えられる。

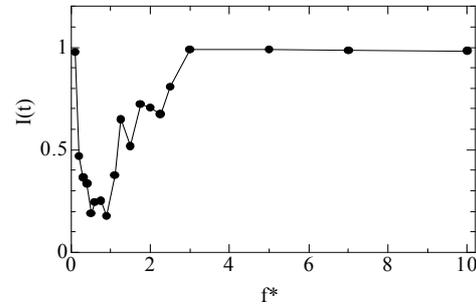


図 4-3 交流周波数による分離度への影響

### 5. 主な発表論文等

(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 9 件)

- ① A. USHIDA, T. HASEGAWA, S. KUDOU, M. KAWAMI, H. UCHIYAMA, and T. NARUMI, Flow Properties of Several Types of Liquid Flows through Micro-Orifices, Journal of Fluid Science and Technology, 査読有, Vol.6, No.6, 2011, 802-811.
- ② S. TOGA and T. NARUMI, Flow Induced Crystallization of Colloidal Dispersion, Proc. of AJK2011, 査読有, 14021(USB), 2011, 1-6.
- ③ 阿佐美宏, 鳴海敬倫, 長谷川富市, 松原幸治, 榎伸司, 電場による微小流路内の電解質高分子水溶液の流動制御に関する実験的研究, 第 60 回理論応用力学講演会講演論文集, 査読無, USB- OS07-10, 2011, 1-2.
- ④ T. NARUMI, M. TAKASHIMA, Y. ABE, M. OUCHI, T. HASEGAWA, Influence of Channel Size on Deformation Behavior of DNA Polymers in Micro Flows, Proc. 5th Pacific Rim Conference on Rheology, 査読有, USB, 2010, 1-2.
- ⑤ S. TOGA and T. NARUMI, Structure Transition of Colloidal Dispersion in a Contraction and Expansion Flow, Proc. 5th Pacific Rim Conference on Rheology, 査読有, USB, 2010, 1-2.
- ⑥ 堀川俊之, 鳴海敬倫, 長谷川富市, マイクロ流路における高分子溶液の 2 液混合に関する実験的研究, 日本機械学会 2010 年度年次大会講演論文集, 査読無, Vol.2,

- 2010, 67-68.
- ⑦ 梶伸司, 鳴海敬倫, ヘレシヨウセル内の縮小拡大流におけるコロイドの挙動, 第57回レオロジー討論会講演要旨集, 査読無, 2009, 274-275.
- ⑧ 江口崇行, 矢澤秀明, 松原幸治, 鳴海敬倫, 櫻井篤, 新田勇, 非ニュートン粘性を有するチャンネル乱流の組織構造, 第57回レオロジー討論会講演要旨集, 査読無, 2009, 250-251.
- ⑨ 阿部康弘, 鳴海敬倫, 長谷川富市, 大内真由美, マイクロチャンネル内の渦を伴う縮小流における DNA 高分子の伸張変形, 日本機械学会 2009 年度年次大会講演論文集, 査読無, Vol.2, 2009, 81-82.

[学会発表] (計 10 件)

- ① 梶伸司, 秋山裕幸, 鳴海敬倫, 高分子電解質水溶液の流動制御, 日本機械学会北陸信越支部第 49 期総会・講演会, 2012, USB1-2.
- ② S. TOGA and T. NARUMI, Flow Induced Crystallization of Colloidal Dispersion, Proc. of AJK2011, 14021(USB), 2011, 1-6.
- ③ 阿佐美宏, 鳴海敬倫, 長谷川富市, 松原幸治, 梶伸司, 電場による微小流路内の電解質高分子水溶液の流動制御に関する実験的研究, 第 60 回理論応用力学講演会講演論文集, USB- OS07-10, 2011, 1-2.
- ④ T. NARUMI, M. TAKASHIMA, Y. ABE, M. OUCHI, T. HASEGAWA, Influence of Channel Size on Deformation Behavior of DNA Polymers in Micro Flows, Proc. 5th Pacific Rim Conference on Rheology, USB, 2010, 1-2.
- ⑤ S. TOGA and T. NARUMI, Structure Transition of Colloidal Dispersion in a Contraction and Expansion Flow, Proc. 5th Pacific Rim Conference on Rheology, USB, 2010, 1-2.
- ⑥ 堀川俊之, 鳴海敬倫, 長谷川富市, マイクロ流路における高分子溶液の 2 液混合に関する実験的研究, 日本機械学会 2010 年度年次大会講演論文集, Vol.2, 2010, 67-68.
- ⑦ T. Narumi, M. Ouchi, M. Takashima, T. Hasegawa and T. Takahashi, Gap Size Effect on Deformation Behavior of DNA Polymers in Micro Channels, 5th Australian-Korean Rheology Conference, 2009, Sydney, Australia.
- ⑧ 梶伸司, 鳴海敬倫, ヘレシヨウセル内の縮小拡大流におけるコロイドの挙動, 第57回レオロジー討論会講演要旨集, 2009, 274-275.
- ⑨ 江口崇行, 矢澤秀明, 松原幸治, 鳴海敬

倫, 櫻井篤, 新田勇, 非ニュートン粘性を有するチャンネル乱流の組織構造, 第57回レオロジー討論会講演要旨集, 2009, 250-251.

- ⑩ 阿部康弘, 鳴海敬倫, 長谷川富市, 大内真由美, マイクロチャンネル内の渦を伴う縮小流における DNA 高分子の伸張変形, 日本機械学会 2009 年度年次大会講演論文集, Vol.2, 2009, 81-82.

[その他]

ホームページ等

<http://fluidlab.eng.niigata-u.ac.jp/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

鳴海 敬倫 (NARUMI TAKATSUNE)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号：20143753

### (2) 研究分担者

梶 伸司 (TOGA SHINJI)

富山高等専門学校・国際センター・教授

研究者番号：90270248

松原 幸治 (MATSUBARA KOJI)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号：20283004

(H23：連携研究者)