

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 4月30日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656137

研究課題名（和文） 対イオン添加による流動下のミセルネットワークゲルの生成・成長挙動に関する研究

研究課題名（英文） Formation and growth behavior of micellar network gels due to addition of counter ion under flow

研究代表者

山本 剛宏 (YAMAMOTO TAKEHIRO)

大阪大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：40252621

研究成果の概要（和文）：ひも状ミセル（界面活性剤）水溶液に対イオンを添加すると、ミセルネットワークゲルが形成され、種々の複雑な流れ挙動が現れる。実験により、ゲル化を伴う流動現象に対する基礎的知見を得た。界面活性剤に対する対イオン濃度が小さいと、ゲル化が十分に進まず、不安定現象が現れた。円管内の置換流れでは、ゲル化を伴う系の新しい流動パターンを見いだした。また、ゲル状物質を扱う数値シミュレーションのための計算モデルの提案を行った。

研究成果の概要（英文）：The addition of counter ion to an aqueous solution of wormlike micelles (a surfactant solution) causes the formation of a micellar networks, which derive various complicated flow behaviors. In the present experiments, fundamental knowledge of flows with gelation was obtained. If the concentration ratio of the counter ion to the surfactant is small, the gelation is not sufficient and hence the interface between the solutions is unstable. A novel flow pattern in penetration flows was found. In addition, numerical models for the simulation of gel-like materials were proposed.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：複雑流体力学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：ミセル、ゲル、複雑流体、界面活性剤

## 1. 研究開始当初の背景

ひも状ミセル水溶液に、対イオンを過剰に添加することによって、ミセルネットワークが形成され、ゲル状の物質となることが知られており、また、そのレオロジー特性は非常に複雑なもので、複雑流体力学の分野で、多くの研究者が研究対象としてきた。一方で、ゲル化過程の流れ現象や、ミセルネットワークの流動による変化の工学的利用に関する研究はあまりなされておらず、そのような流れ問題に対する基礎的な知見を得るための研究が必要な状況であった。

## 2. 研究の目的

本研究では、前項のような状況を踏まえ、ミセルネットワーク構造の形成によるゲル化を伴う流れに関する基礎的な知見の蓄積と、流れ現象のメカニズムの解明に必要なデータの収集を目的とする。さらに、数値解析のために、流れ中のゲル状物質を扱うための計算モデルの検討を行うことも目的とする。

## 3. 研究の方法

本研究は、実験および数値解析の両面から行われた。実験では次の3つの流れ問題を扱い、ゲル化を伴う流れ現象の基礎的知見の蓄

積を行った。

(1) Hele-Shaw セル内に充填されたひも状ミセル水溶液に対イオン水溶液を注入することで、二流体の界面で形成されるミセルネットワークゲルが界面成長パターンに及ぼす影響を調べる。

(2) 容器内に充填したひも状ミセル水溶液中に対イオンを射出し、その際に形成されるゲル状物質の可視化実験、小角光散乱法による配向測定、流動複屈折測定を行う。

(3) 円管内の対イオン水溶液のひも状ミセル水溶液による置換流れについて、可視化実験により、コア部の流動パターンと流動条件の関係を調べる。

数値計算では、ゲル状物質の数値シミュレーションのためのプログラム開発を目指し、次の2つの問題に対するシミュレーション・プログラムを作成した。

(4) 流動中のバイオフィーム成長現象について、ゲル状物質であるバイオフィームを多孔質体で近似し、有限体積法とセルオートマトン法の組み合わせによる数値計算を行う。

(5) 液体中のゲル状物質の挙動を、浸透圧の影響を考慮した二流体モデルを用いて数値解析する。

#### 4. 研究成果

前項の各研究テーマに対する成果を、以下にまとめる。

(1) 本研究では、ひも状ミセル水溶液 (CTAB 水溶液) と対イオン水溶液 (NaSal 水溶液) の二液界面におけるゲル化を伴う、Hele-Shaw セル内の粘性指状体成長現象の実験を行い、界面の不安定現象パターンと濃度比  $S$ 、注入流量 (圧力ヘッドで評価) との関係性を明らかにした。流量が大きくなると、ゲル化が弱く界面が不安定になる。また、 $S$  が小さいときにゲル化が不十分で、界面の破れが生じる現象も捉えられた。図1は界面でみ

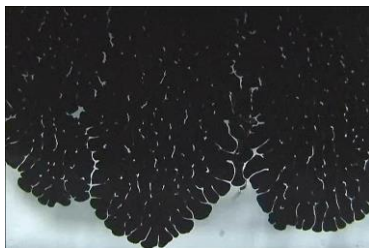


図1 Splitting パターンの一例

られるパターンのひとつである。図2は界面の破れが生じたときの様子の一例である。



図2 界面の破れが生じた例

(2) 本研究では、容器に充填したひも状ミセル水溶液 (CTAB 水溶液) に、注射器を用いて対イオン (NaSal) を射出することにより、ゲル化を伴うジェットの流れを調べた。小角光散乱 (SALS) 測定の結果、ジェット内でミセルネットワーク構造の配向が生じ、射出速度が大きいほど配向度が高くなることが分かった。図3は不安定化したジェットの様子と SALS 測定においてみられた、内部構造の配向を示すストリークの発生時の散乱パターンである。

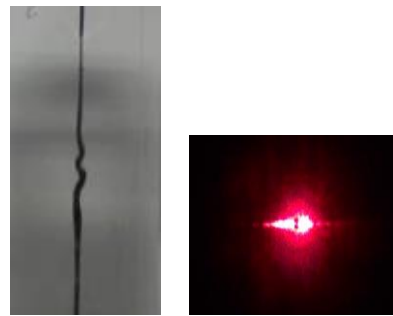


図3 (左) 可視化実験結果 (不安定現象)、(右) SALS 測定による散乱パターン

散乱パターンには、強いストリークと円状の分布が混在してみられることから、ゲル化がジェットの表面近くで起き、その部分の配向が強いストリークとして現れ、ジェット内部のゲル化が進んでいないと思われる領域では等方的な配向分布が残り、円状の散乱パターンも比較的強く現れたものと考えられる。

(3) 本研究では、対イオン (NaSal) 水溶液をひも状ミセル水溶液 (CTAB 水溶液) で置換する際に現れる流動様式を、注入速度 ( $U$ ) と CTAB 水溶液に対する NaSal 水溶液の濃度

比 ( $S$ )により特徴付けることができることを示した(図4)。また、ゲル化が進行しながら流動する流れにおいてみられる新しい流動様式として、先端界面の再安定化や弾性はね戻り現象を伴う流動を見いだした。図5にそれらの流動様式が起きた時との可視化写真を示す。弾性はね戻り現象が現れた際には、先端上流側のくびれ部分が、弾性はね戻りにより、伸長収縮を繰り返すような挙動がみられた。

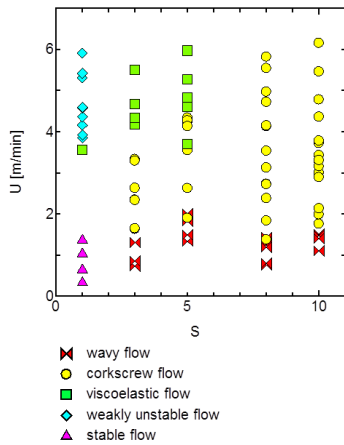


図4 流動様式マップ



図5 特異な先端界面挙動の例：(上)再安定化現象、(下)弾性はね戻りを伴う流動、流れは左から右

低注入流速では、比較的安定な流動様式であるが、濃度比  $S$  が高い領域で界面に波上の不安定が発生する。また中速度域では、ゲル化した領域が回転するコークスクリュー・パターンが発生し、ある濃度比の領域においては、弾性はね戻りを伴う流動がみられた(図4の viscoelastic flow, 図5の下図)。この濃度比領域は、二流体を混合した CTAB/NaSal 水溶液の緩和時間が長くなる領域に対応し、弾性特性が強くなる。このようなレオロジー特性と流動様式の関連性が示唆された。

(4) 本研究では、微生物が生成するゲル状物質であるバイオフィーム(図6)を対象にし、成長を伴うようなゲル状物質の流れ中の挙

動を解析するための計算モデルを作成した(5. 学会発表④の予稿集参照)。バイオフィームを透水率の低い物質として表現し、また、その成長をセルオートマトン法による質量移動(図7)で表現することにより、比較的複雑な流路中のバイオフィームの成長を模擬することができた。図7はL字形流路内のバイオフィームの成長の様子のスナップショットである。

ゲル状物質を透水性の低い多孔質体で近似することで、比較的複雑な流れ中のゲルの挙動を数値シミュレーションすることが可能となった。今後、塩添加によるゲル化現象や弾性特性を取り入れることで、ゲル化を伴う物質の数値シミュレーションへの応用の可能性が見いだされた。

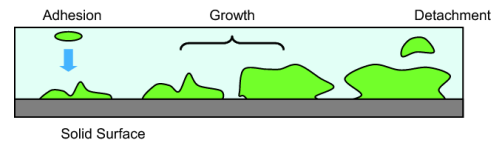


図6 バイオフィーム成長の概略図：微生物が固体表面に付着し成長する。微生物とその排泄物の高分子物質がゲル状のバイオフィームを形成する。

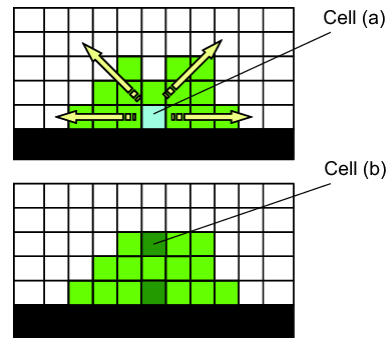


図7 セルオートマトン法によるバイオフィーム成長表現の概略図

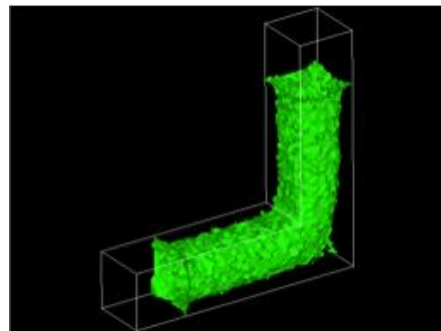


図8 L字管内のバイオフィーム成長の様子

(5) 本研究では、液体中のゲル状物質を、高分子ネットワークとして考え、周囲流体よりも流動度が低い流体として扱う二流体モデルで表現した。さらに、浸透圧の効果を取り入れることで、膨潤・圧搾を表現できる計算モデルを提案した。

ここでは、二流体の体積分率の移流拡散方程式により二流体界面の移動を表現し、その式中に Flory-Huggins 理論から得られる浸透圧と体積分率の関係式を加えることにより、浸透圧の効果を取り入れた (5. 雑誌論文①参照)。

図 9, 10 に円形ゲル状物質の膨潤問題の解析例を示す。図 9 は問題の設定を、図 10 は浸透圧分布図の時間変化を示したものである。ゲル状物質が膨潤し、浸透圧が低下して行く様子が捉えられるなど、実際のゲル状物質の挙動を定性的に表現でき、本モデルの有効性が示された。

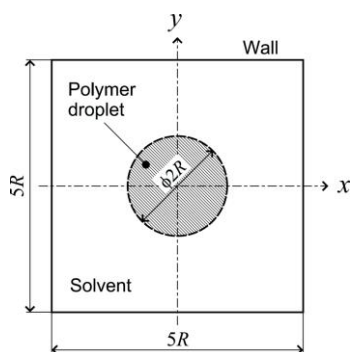


図 9 膨潤問題の設定

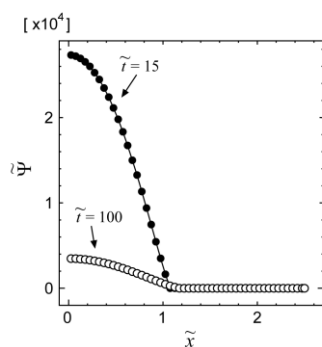


図 10 浸透圧分布の時間変化

## 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 1 件)

①Norichika Masaoka, Takehiro Yamamoto,

Numerical Simulation of Swelling Behavior of a Droplet of Polymer Solution Immersed in a Solvent, Nihon Reoroji Gakkaishi, Vol. 39(6), pp. 211-215, 2011, 査読有

[学会発表] (計 7 件)

①南 貴之、山本 剛宏、界面活性剤水溶液への塩添加によるゲル生成現象、日本機械学会関西学生会 平成 24 年度学生員卒業研究発表講演会 2013 年 3 月 15 日、大阪工業大学

②山本 剛宏、上田 修也、流れ中のバイオフィルム成長現象の数値シミュレーション、第 60 回 レオロジー討論会、2012 年 9 月 26 日、名古屋大学

③西口 隼人、山本 剛宏、Hele-Shaw セル内の界面活性剤水溶液への塩添加による界面形状の変化、日本流体力学会年会 2012、2012 年 9 月 16 日、高知大学

④ Takehiro Yamamoto, Syuya Ueda, Numerical Simulation of Biofilm Growth in Flow Channels using a Cellular Automaton Approach Coupling with a Macro Flow Computation, XVIIth International Congress on Rheology, 2012 年 8 月 6 日、リスボン・ベレン文化センター (ポルトガル)

⑤西口 隼人、山本 剛宏、Hele-Shaw セル内の CTAB と NaSal による粘性指状体の形成とその挙動、日本機械学会関西学生会 平成 23 年度 学生員卒業研究発表講演会、2012 年 3 月 18 日、京都工芸繊維大学

⑥上田 修也、山本 剛宏、流動下におけるバイオフィルムの成長現象の数値解析、第 59 回 レオロジー討論会、2011 年 10 月 8 日、桐生市市民文化会館

⑦政岡 範親、山本 剛宏、流体中のゲル状物質の数値流動シミュレーション、第 59 回 レオロジー討論会、2011 年 10 月 7 日、桐生市市民文化会館

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

山本 剛宏 (YAMAMOTO TAKEHIRO)  
大阪大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：40252621

### (2) 連携研究者

小柴 孝 (KOSHIBA TAKASHI)  
奈良工業高等専門学校・機械工学科・教授  
研究者番号：00215237