

機関番号：16301  
 研究種目：基盤研究（C）  
 研究期間：2008～2010  
 課題番号：20560641  
 研究課題名（和文） ナノファイバー複合材料創成のためのマイクロ流れにおける流動誘起構造の可視化と解析  
 研究課題名（英文） Visualization and analysis of flow-induced structure in micro flow for production of nanofiber composite  
 研究代表者  
 保田 和則（YASUDA KAZUNORI）  
 愛媛大学・大学院理工学研究科・教授  
 研究者番号：80239756

研究成果の概要（和文）：カーボンナノチューブや天然のナノファイバーを分散させた流体や、高分子を溶解した流体は流動によってさまざまな特異な流れ現象を生じさせる。本研究では、そのようなファイバーがごくわずかであっても、特にマイクロスケールではマクロスケールとは流れが大きく異なることや、マイクロ流れでは流路の壁面の材質によって流れが大きく異なることを実験で明らかにした。さらには、流れによって誘起される複屈折の変化をとらえることで、高分子の配向状態を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：Fiber suspensions such as fluids containing carbon nanotube, natural nanofiber, or polymer show anomalous flow phenomena. In the present study, we experimentally found that even the small amount of fiber in the fluid largely affects the flow especially in the micro flow, and the material of the channel wall also affects the flow. Furthermore, we clarified the orientation state of polymer induced by the flow using measurement of birefringence of the fluid.

#### 交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,900,000	870,000	3,770,000
2009年度	500,000	150,000	650,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,900,000	1,170,000	5,070,000

研究分野：流体力学

科研費の分科・細目：材料工学・複合材料・物性

キーワード：可視化，射出成型，ナノ材料，流体力学，ソフトマター，内部構造

#### 1. 研究開始当初の背景

マイクロチャネル内では、ナノファイバーの長さおよび内部構造のスケールがマイクロチャネルの寸法に近づくため、流れ場に対してこれらの非一様性や壁面の影響が無視できなくなる。我々は既に、濃厚な高分子流体（ソフトマター）について、急縮小部を有するマイクロチャネル内の高分子溶液の流れ模様がマクロスケールのチャネル内の流れ模様と大きく異なることを実験により見

出し、さらに、急縮小部を持たないまっすぐなマイクロチャネル内の速度分布を測定した結果をもとに、流路壁面上での流体の滑りが流れに大きく影響しているメカニズムを示唆していた。また国外では、内部構造を作りにくい希薄高分子流体について、Roddらが急縮小流れにおける流れ模様について既に結果を公表していた。さらに我々は、それまでに、マイクロスケールの流れ場における高分子水溶液の内部構造と流れ場の関係を

光学測定によって調べていた。その結果、せん断流れ場、伸長流れ場などさまざまな流動によって誘起される内部構造を詳細に測定することで、流れとの内部構造との関係が推定できつつあった。しかし、本研究で用いたバイオナノファイバー分散流体やカーボンナノチューブ分散流体対象とした流動の研究はなく、それらが将来、複合材料の強化材として有望なこと、さらにはソフトマターのマイクロ流動には未知の点が数多くあり、それらを知ることでナノ複合材料の流動による内部構造の変化や流れ場を知ることが求められていた。

## 2. 研究の目的

上で述べた背景のもとで、ナノファイバー分散流体および非ニュートン流体のマイクロ流れ場や、分子・ファイバーが流動によって引き起こされる配向状態などを測定し、マクロスケールの流れと比較することで、これらの流体のマイクロ流れの特徴を明らかにすることを目的とする。

## 3. 研究の方法

(1) 非ニュートン流体であるポリアクリルアミド水溶液を用い、マイクロ流路内の流れの速度分布を測定する。流路は平行平板間流れおよび急縮小流れとし、PDMSにて作成する。急縮小部角部に生じる循環二次流れの大きさを調べ、壁面の材質の違いによる影響を調べる。

(2) ナタデココから抽出したナノファイバーをグリセリンに分散させた流体を用い、矩形断面を有する急縮小流路に流す。このとき、ナノファイバーの濃度とせん断速度を変化させて、急縮小部角部に生じる循環二次流れの大きさと流線を測定する。さらに、流路を急拡大流路に変更し、同様の実験を行う。

(3) マイクロ流路のガラス面に透明ガラスであるITO膜を施し、壁面がガラスの場合と金属の場合とで速度分布を測定し、両者の違いについて調べる。

(4) カーボンナノチューブ (CNT) を分散させた流体を用い、急縮小部を有するマイクロ流路とマクロ流路とに流したときの速度分布を詳細に測定する。それによって、CNTが流れに及ぼす影響を調べる。

(5) 非ニュートン流体の流れの流路サイズの依存性を調べるために、相似形ではあるがさまざまな寸法を有する数種類の急縮小流路を用意し、同じポリアクリルアミド水溶液を流す。急縮小部角部に生じる循環二次流れの大きさを測定し、流れの流路サイズ依存性

について調べる。

(6) キサンタンガム水溶液を用い、ミリスケールサイズの流路内の流れにおける分子の配向と配向度を調べる。これは、流れによって誘起される流体の複屈折を測定することで実現する。

(7) ナノファイバー分散流体の単純せん断流れ場をレオメーターによって与え、ナノファイバーが凝集したり、その凝集が崩壊したりする過程を可視化し、ナノファイバーの運動について調べるとともに、ナノファイバー分散流体の流動の特異性について調べる。

(8) マイクロスケールの流れの可視化をさらにすすめてナノスケールの流れの可視化を実現するために、走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いての流れの可視化を行う。SEMのチャンバー内では一般の液体は蒸発するので、ここでは蒸気圧が極端に低いイオン液体 (ニュートン流体) を用い、トレーサー粒子として金メッキしたプラスチック微粒子を用いる。

## 4. 研究成果

(1) マイクロ流れ中における非ニュートン流体の流れの特徴をつかむため、PDMSを用いて作成したマイクロ流路内の流れを可視化し、急縮小部に発生する循環二次流れの大きさについて検討し、速度分布を測定した。試料流体として、力学特性の異なるアニオン系の各種のポリアクリルアミド (PAA と呼ぶ) の水溶液を用いた。その結果を図 1 に示す。図の図中の●はニュートン流体の測定結果、○は非ニュートン流体の結果である。マクロスケールの流路を流れる場合 (図中の実線) と大きく異なる流れになるとともに、特定のPAA(サンフロック AH-70P)に限って、壁面での滑りが顕著に見られることがわかった。こ

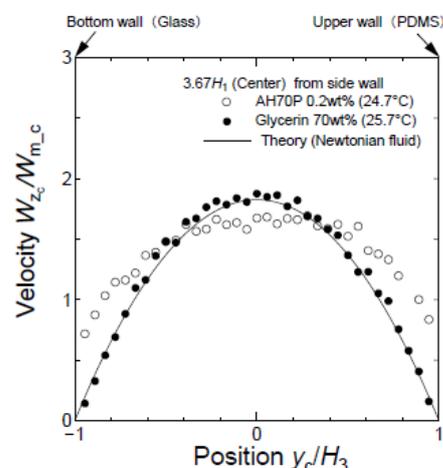


図 1 マイクロ流路内の速度分布

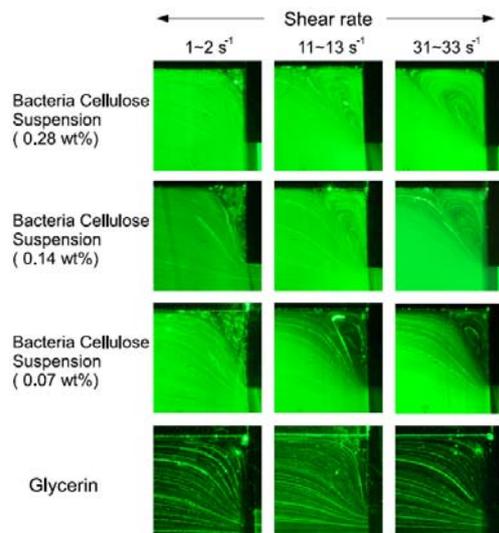


図2 急縮小流路内の流れ模様

これは予想に反する結果である。さらにグラフ左のガラス面と右のPDMS面とで速度が異なっている。この原因は界面と流体との物理化学的な相互作用によるものであると考えられる。

また、急縮小部の循環二次流れの大きさは、PDMS側がガラス側よりもやや小さくなり、壁面滑りがより大きい影響が現れているものと考えられる。

(2) マイクロ流路にナノファイバー分散流体を流すための準備として、まず大きなスケールの流路におけるナノファイバー分散流体の流動を観察した。流路には急縮小部を有する流路を用いた。その結果を図2に示す。ナノファイバー分散流体では、ニュートン流体と異なり、急縮小角部に大きな渦が発生した。これは、分散流体が非ニュートン性を有することが原因である。ナノファイバーの濃度を上昇させていくにともない渦は大きくなると予想された。急縮小流れでは、流体の持つ伸長粘度が大きく影響し、ナノファイバーの濃度とともに伸長粘度が上昇すると考えたからである。しかし、本分散流体では、ある濃度のときに最大値をとり、その後、濃度を増大させても渦は大きくなり、逆に小さくなった。これは、ナノファイバーの濃度が上昇するとともに、ナノファイバーが凝集し、濃度を上げると逆に伸長粘度が小さくなったためではないかと考えられる。

さらに、急拡大流れについてもその流れ場を調べた。その結果、ナノファイバーを最大で0.28%添加するだけで流れ場は大きく変化し、ナノファイバーの影響が顕著に表れることが明らかとなった。これは、急拡大部において、この程度の濃度であっても複雑流体の

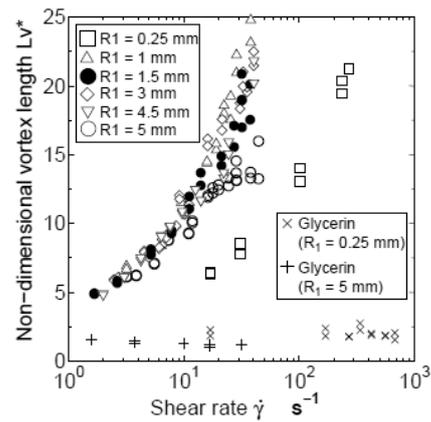


図3 急縮小流部の循環二次流れの大きさ

バラス効果が大きく生じた結果であると考えられる。

(3) マイクロ流路内における複雑流体（高分子流体）の流れを知るために、詳細な速度分布測定を行った。マイクロ流路はPDMSとガラスでできており、PDMS面上においてのみスリップ現象が見られた。しかし、ガラス面に金属コーティング（ITO膜）を施すと、その現象は見られなくなり、ニュートン流体の場合とほとんど変わらない速度分布となった。ニュートン流体では、ガラス面のコーティングの影響がないことから、これは複雑流体特有の現象であり、複雑流体では壁面の影響が非常に大きいことがわかった。

マイクロスケールの流路においてその現象が、流路スケールにかかわらず壁面から一定の割合の位置まで影響が及ぶことを明らかにした。ニュートン流体ではこのような現象はまったく見られないので、これは複雑流体特有の現象である。

この原因についてはいまだ明らかとなっていないが、高分子と壁面との電気化学的な相互干渉が影響していると考えている。

(4) マイクロ流路内に、カーボンナノチューブ（CNT）を希薄に分散させた流体を流し、CNTが流れに及ぼす影響を調べた。CNTは水には分散しないが、カテキン水溶液には比較的分散しやすいという性質を用い、CNT分散流体の急縮小流れについて速度分布を測定した。その結果、CNT分散流体では、平行平板間あるいは急縮小部における速度分布に、ニュートン流体とは明らかに異なる速度分布が見られた。これは、レオメーターによる粘度測定によっても粘度特性に違いが見られたことから、微細なCNTであっても、流れに大きな影響を及ぼすことが明らかとなった。

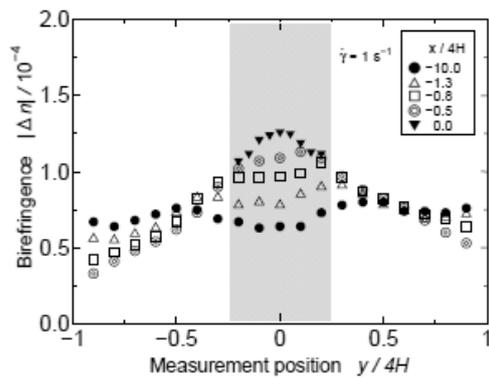


図4 急縮小流部における分子の配向度

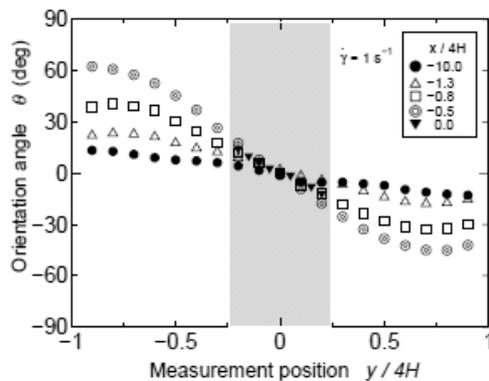


図5 急縮小流部における分子の配向角

(5) マイクロ流路の流れと比較するために、マクロなスケールの流路における複雑流体の流れ模様について検討した。その結果を図3に示す。この図は、相似であるが大きさの異なるさまざまな急縮小流路における非ニュートン流体の流れにおいて、急縮小部における循環二次流れの大きさを測定した結果である。横軸はせん断速度、縦軸は循環二次流れの大きさを示す。多くの流路では、せん断速度によって循環二次流れの大きさがほぼ整理できることがわかるが、管半径が0.25 mmの最も小さな流路の場合は急縮小流れのパターンがまったく異なることが明らかとなった。これは、複雑流体では、流路のスケール依存性が0.25 mm程度のスケールの場合にすでに存在することを明確に示している。

(6) 急縮小部を有する流路内において、高分子水溶液の流動と分子配向との関係を、レーザーを用いた複屈折測定により調べた。その結果を図4および5に示す。図4は分子の配向度合い、図5は分子の配向角を示す。図4では、横軸に流路の幅(実寸法は4 mm)をとり、縦軸に複屈折をとっている。複屈折が大きいほど、分子の配向度合いが大きい(特定の方向に多く向いている)ことを示す。各種

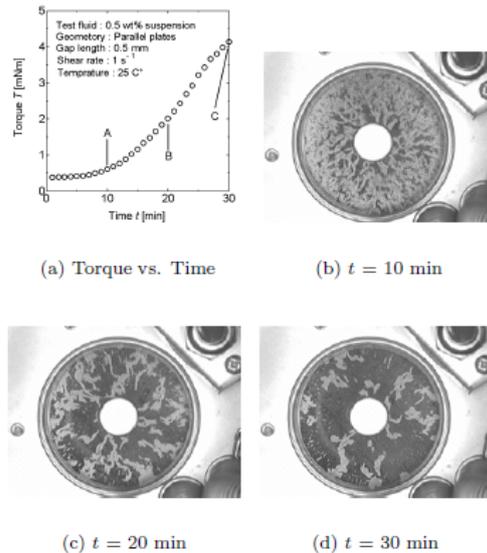


図6 ナノファイバーの凝集パターン

プロットの記号の違いは、急縮小部からの測定位置の違いを示す。急縮小部の影響を最も受けない最上流部(●)では、流路幅方向にわたってほぼフラットな分布であるが、流路中心線上付近では急縮小部に近づくにつれて複屈折が大きくなった。これは急縮小部に近づくにつれ、伸長流れの寄与が大きくなり分子が流れ方向に伸長され配向の異方性が増大したためだと考えられる。また、図5からわかるように、急縮小部の十分な上流部(●)の壁面( $y/4H = -1$ および $1$ )の近傍においても、分子は流れ方向には向かず(配向角が0度ではない)、流線の接線方向からはややずれた方向に配向した。これは、まっすぐな流れであっても、分子は平均的には流れ方向からやや傾いた方向に向いて流れていることがわかる。

(7) ナノファイバー分散流体のレオロジー特性を回転型レオメーターで測定する場合、せん断速度等の条件によってはナノファイバーが凝集するところを見いだした。このときに生じる凝集パターンを観察し、そのときにレオメーターで検出されるトルクとの関係を明らかにした。また、ナノファイバーの大きさによる凝集パターンの依存性を調べ、その特徴を明らかにした。また、ある条件下では凝集体がいったん生成されたが、そのあと崩壊する現象が見られた。このときトルクは、凝集時に極大値をとり、その後、一定値に収束した。このトルク変化の様子は、分子とファイバーというスケールが異なるものの高分子流体でも見られるパターンとよく似ており、高分子流体でも同様の現象が起こっているのではないかと推測できる。

(8) マイクロスケールから一歩進んでさらに微細なナノスケールの流れを知るため、走査型電子顕微鏡（SEM）を用いて流れの可視化を行った。ただし、SEMの可視化では測定部を真空にする必要があるため、通常の液体は蒸発してしまい、流れを生じさせることすらできない。そこで真空中でも蒸発しないイオン液体を用い、手始めにミリスケールの流れの可視化を行い、SEMを用いて流れ場を可視化することに成功した。その可視化結果を図7に示す。この方法は、カーボンナノチューブ（CNT）のようなナノファイバーを含んだ流体のナノスケール流れと、CNTの分布状態を同時に可視化することが期待できる成果である。



図7 SEMによる流れの観察

## 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）

〔学会発表〕（計12件）

- (1) 保田和則，平山永遠，岩本幸治，十河基介，ナノファイバー分散流体のレオロジー特性と単純せん断流れ，日本繊維機械学会，2011/5/28，大阪科学技術センター
- (2) 佐藤大祐，保田和則，岩本幸治，十河基介，複雑流体の微小流路内流れにおける流動複屈折の測定と分布，日本繊維機械学会，2011/5/27，大阪科学技術センター
- (3) 西岡進治，保田和則，岩本幸治，十河基介，複雑流体のマイクロチャンネル内流れ，2011/3/5，日本機械学会，岡山理科大学
- (4) 平山永遠，保田和則，岩本幸治，十河基介，ナノファイバー分散流体の単純せん断流れ下における流動，2011/3/5，日本機械学会，岡山理科大学
- (5) 保田和則，平山永遠，岩本幸治，十河基介，ナノファイバー分散流体の単純せん断流れ中における流動の観察，2010/9/8，日本機械学会，名古屋工業大学

- (6) 平山永遠，保田和則，岩本幸治，十河基介，ナノファイバー分散流体の単純せん断下における流動の観察，2010/5/22，日本繊維機械学会，大阪科学技術センター
- (7) 平山永遠，保田和則，岩本幸治，十河基介，ナノファイバー分散流体のレオロジー特性と単純せん断流れ場における流動の観察，2010/3/6，日本機械学会，広島工業大学
- (8) 藤原健二，合田卓也，保田和則，岩本幸治，十河基介，急縮小部を通過する複雑流体のマイクロチャンネル内流れ，2010/3/6，日本機械学会，広島工業大学
- (9) 保田和則，千葉訓司，岩本幸治，十河基介，バクテリアセルロース繊維分散流体の急縮小流れ，2009/9/15，日本機械学会，岩手大学
- (10) 保田和則，非ニュートン流体のマイクロチャンネル内流れ，2009/9/11，山形大学
- (11) 保田和則，千葉訓司，岩本幸治，十河基介，マイクロファイバー分散流体の矩形管急縮小内流れ，2009/5/22，日本繊維機械学会，大阪科学技術センター
- (12) 藤原健二，宮田崇史，保田和則，岩本幸治，十河基介，急縮小部を通過する複雑流体のマイクロチャンネル内流れ，2009/3/6，日本機械学会，山口大学

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.me.ehime-u.ac.jp/labo/kikaie/ne/ryutai/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

保田 和則 (YASUDA KAZUNORI)

愛媛大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：80239756