

令和元年6月10日現在

機関番号：12605

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06068

研究課題名(和文) 反応界面レオロジーを基軸とする液相反応流研究の展開

研究課題名(英文) Development of study of reacting liquid flow based on reactive interfacial rheology

研究代表者

長津 雄一郎 (NAGATSU, Yuichiro)

東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：60372538

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究ではいずれも化学反応によりゲルを生成するが、それが流動に及ぼす影響、特に流量の依存性に及ぼす影響が大きく異なる反応流の事例を示した。これらの違いはそれぞれの系における反応界面で形成されたゲルの大変形下でのレオロジー特性の差異に起因すると考え、反応界面で形成されたゲルのLAOS測定を実行した。これらのVF結果と界面LAOS結果からfractureパターンは二流体界面に生じるゲルがある程度の弾性を持ち、そのゲルが降伏することによって生じるというメカニズムを提示した。本研究は界面LAOSを用いることで現象を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

このことは反応流研究を通じて界面LAOS測定の新たな有効性を示唆したことになる。特に本研究は界面LAOS測定がゲル生成や沈殿生成によるレオロジー変化を伴う反応流研究に強力なツールであることを示唆している。

研究成果の概要(英文)：Viscous fingering (VF) is a hydrodynamic instability which occurs when a more viscous fluid is displaced by a less viscous one in a porous medium and in a Hele-Shaw cell. Here, we have investigated experimentally VF with chemical reaction producing gel. We focus influence of flow rate and kinds of gel on the dynamics. The fracture patterns are observed for different flow rate when we change the concentration. We try to elucidate their mechanism by Large Amplitude Oscillatory Shear (LAOS) measurement of the reactive miscible interface. Based on analysis of interfacial LAOS measurement, we propose that both yield of gel and a certain magnitude of gel's elasticity are necessary for the fracture formation.

研究分野：液相反応流

キーワード：液相反応流 Viscous fingering 界面レオロジー 流体力学不安定 LAOS

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

研究代表者(以下、代表者)は1998年の大学院修士課程1年次、反応流という観点からは液体と気体ではいくつかの重要な性質の相違があり、気体の場合と液体の場合でその取り扱い方が大きく異なる可能性があり、液相反応流の体系化を目指した基礎研究が必要であると考え、気体は有しない液体に特有な性質に着目した液相反応流の基礎研究を開始した。その中で2003年から、物質の高分子性に着目した高分子液体反応流の体系化に資する基礎研究を立ち上げた。これまでに特に、Viscous fingering (VF)を流動場の対象とし、高分子液体が有する粘度の化学種濃度への敏感な依存性を利用した、化学反応により溶液粘度の変化する反応流の実験研究および数値解析研究に関して成果を挙げている。

また近年、科研費若手研究(A)(2010~2013年度)の一部、挑戦的萌芽研究(2013~2015年度)の援助を受けて、高分子液体反応流の中でも、ゲル生成(粘弾性物質)を伴う液相反応流を展開している^{1,2}。これらの研究では、以下のことを明らかにしてきた。(1)ゲル生成が流動場に及ぼす影響はゲルの粘弾性特性に依存することが推測された、(2)このことを実証するには、液液反応界面で生成されるゲルのレオロジー測定 of in situ 測定が必要であり、代表者はこの確立に取り組み、この測定には界面レオロジー測定が適しており、Double wall ring (DWR)と呼ばれるセンサーを用いた測定が適しており、これを用いた測定により、液液反応界面に生成されるゲルのレオロジー of in situ 測定が可能であることを示した。(3)この粘弾性測定により、一つのゲルは、粘弾性流体的な、もう一つでは固体的なゲルであることを示し、その特性の違いにより、スパイラルパターンになるか、フラクチャーパターンになるかのメカニズムを提案した。これまでの粘弾性測定は、微小振幅振動せん断 (Small Amplitude Oscillatory Shear, SAOS) 測定で行っていた。しかしながら、これまでの研究では、SAOS 測定では流速の影響を明らかにすることはできなかった。これは、流動場は基本的には大変形場であり、SAOS 測定では、大変形場でのレオロジー特性を検出することが困難であるためと考えている。

2. 研究の目的

高粘性流体が微小な隙間で低粘性流体に置換される際、二流体の界面は不安定になり指状に広がる。この現象を Viscous Fingering (VF)といい、特に化学反応を伴う VF は石油の回収過程や生体内での物質輸送過程など様々なプロセスに影響を及ぼしている。近年、二流体界面での化学反応で生じるゲルが VF 流動場に及ぼす影響が注目されている。本報告では、界面 LAOS (Large amplitude oscillatory shear: 大振幅振動せん断) 粘弾性測定を行い、二流体反応界面において生成されるゲルの大変形下での粘弾性特性とゲル生成が VF 流動場に及ぼす影響の相関を調べ、ゲル生成反応を伴う VF の基本的な特性を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 溶液

高粘性流体として、0.4 wt% のポリアクリル酸ナトリウム (SPA) 溶液と 0.35 wt% のキサンタンガム (XG) 溶液、2.5 wt% のアルギン酸ナトリウム (SA) 溶液の三種類の溶液を用いた。低粘性流体として、SPA, XG 反応系では 0.1 M の鉄イオン (Fe^{3+}) を含む 20 wt% のグリセリン溶液を用い、SA 反応系では 0.05 M のカルシウムイオン (Ca^{2+}) を含む 20 wt% のグリセリン溶液を用いた。また非反応系として、20 wt% のグリセリン溶液を用いて実験を行った。

(2) VF 実験

間隔が 0.5 mm の Here-Shaw セル (Fig. 1) に高粘性流体を注入し、十分に広がった後、低粘性流体をセルの中心部から $q_0, 3.2q_0, 6.5q_0, 15q_0, 36q_0$ ($q_0 = 5.3 \times 10^{-10} \text{ m}^3/\text{s}$) の流量で注入した。

(3) 粘弾性測定

界面粘弾性測定は、TA-Instrument 社のひずみ制御レオメータ ARES-G2 を用い、微小振動を与える SAOS (Small amplitude oscillatory shear: 微小振幅振動せん断) 測定と大せん断を与える LAOS 測定の二つを行った。両測定で、ダブルウォールリングタイプの容器に二流体を注入し、二流体界面にセンサーをセットした (Fig. 2)。その後、SAOS 測定では、周波数 0.2 Hz、ひずみ 1% で時間スイープ測定を行った。LAOS 測定では、周波数を 1 rad/s で一定とし、せん断ひずみを 1 ~ 1000% まで変化させた際の応力を測定した。

4. 研究成果

(1) VF 実験結果

Fig. 3 に VF 実験結果を示す。非反応系では、すべての系、流量で通常の fingering パターンが観測された。反応系において、SPA 系では、 $q = q_0$ の流量で fracture パターンが観察され、XG 系では、 $q = 6.5q_0$ 以上の流量で fracture パターンが観察された。SA 系では、すべての流量で通常の fingering パターンが観測された。

(2) 粘弾性測定結果

Fig. 4 に反応系における LAOS 測定の実験結果を示す。SPA 系では γ 10%、XG 系では、 γ 25% の測定において初めて降伏挙動が観測された。SA 系では降伏挙動は観測されなかった。また、LAOS 測定結果において、ひずみ - 応力グラフの傾きが弾性を示していると考えられる。Fig. 4 では、この傾きを算出し各ひずみ毎にプロットした。この結果から、XG 系のゲルは SPA 系に比べて高い弾性を示した。

(3) VF 実験と粘弾性測定の相関

反応系の VF 実験結果より、SPA 系では低流量で fracture パターンが確認され、XG 系では高流量時で fracture パターンが確認された。LAOS 測定の結果から、SPA 系の界面に生じるゲルは XG 系の界面に生じるゲルに比べてより低ひずみで降伏することが観測された。SPA 系のゲルはひずみの増加に伴い弾性は減少していき、XG 系のゲルはひずみが増加しても弾性はほぼ一定ということが観測された。これらのことから、fracture パターンの形成には界面に生じたゲルがある程度の弾性を持ち、降伏することが要因であることが示唆された。

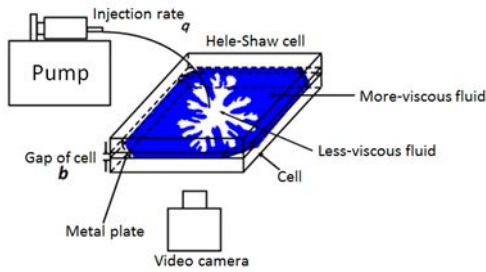


Fig.1 Apparatus of VF experiment

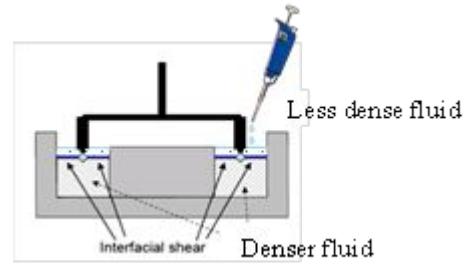


Fig.2 Schematic for the interfacial rheological measurement by using DWR sensor

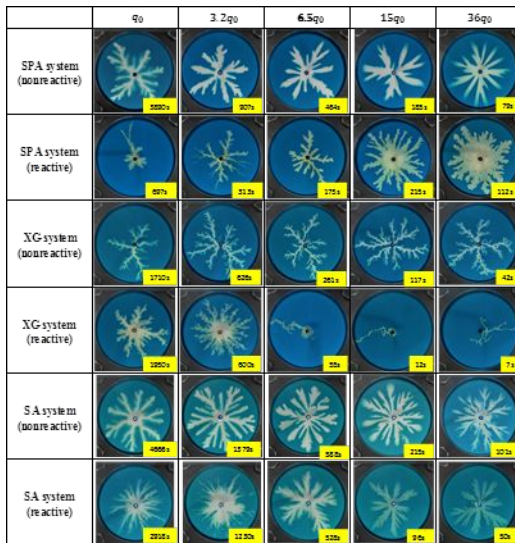


Fig.3 Result for VF experiment

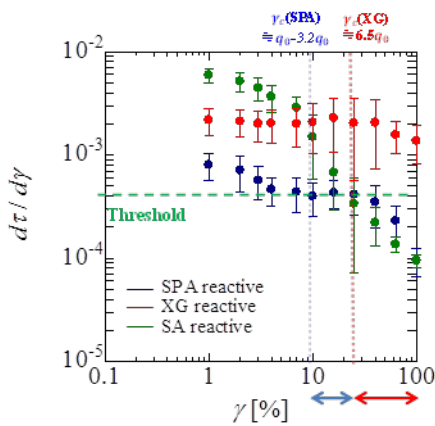


Fig.5 Relations of strain and elasticity

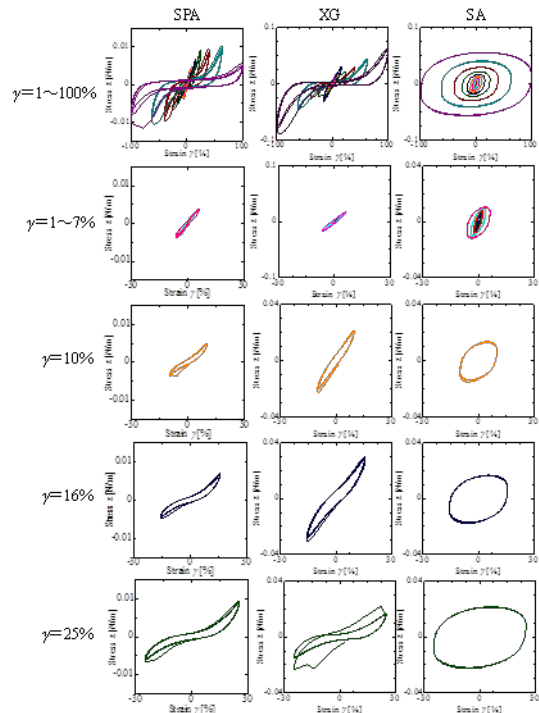


Fig.4 Result for LAOS measurement

< 引用文献 >

- [1] Nagatsu et al., Spiral pattern in a radial displacement involving a reaction-producing gel, *Phys. Rev. E* 78, 026307 (2008)
- [2] Ujiie, Nagatsu et al., Effects of gel properties produced by chemical reactions on viscous fingering, American Physical Society, Division of Fluid Dynamics, Annual Meeting, (2011)

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 10 件)

(1) Shingo Kadowaki, Yuichiro Nagatsu

Study on a reacting viscous fingering with gel production based on interfacial LAOS rheological measurement

American Physical Society, Division of Fluid Dynamics, Nov. 18 ~ 20, 2018 (Georgia, America)

(2) Shingo Kadowaki, Kenichi Hoshino, Yuichiro Nagatsu

Influence of flow rate on reactive viscous fingering with gel production

Fourteenth International Conference on Flow Dynamics, Nov. 1~3, 2017 (Sendai, Japan)

他 8 件

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://web.tuat.ac.jp/~nagatsu/>

6 . 研究組織

(1)研究分担者：なし

(2)研究協力者：なし

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。