

令和 4 年 6 月 9 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04194

研究課題名(和文) 複雑流体中の気液・液々界面で発現する微細自己組織構造の生成機構の解明

研究課題名(英文) Elucidation of the formation mechanism of microscale self-organization structures that emerge at gas-liquid/liquid interfaces in complex viscoelastic fluids

研究代表者

太田 光浩(OHTA, Mitsuhiro)

徳島大学・大学院社会産業理工学研究部(理工学域)・教授

研究者番号：00281866

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：アルカリ溶解会合性高分子(HASE)溶液中を上昇する気泡の気液界面に発現するマイクロ・スケール自己組織構造の生成機構が実験的に調べられた。特徴的な伸長形状とマイクロスケール構造は、HASEに添加するアルカリ物質に依存することが分かった。Na₂CO₃系で調整したHASE水溶液では、非常に複雑な構造が観察された。発現する伸長形状とマイクロスケール構造の形成過程については、まず気泡底部から1本の伸長形状が形成される。その伸長形状の先端から分岐構造が出現し、気泡径が大きくなるとともに、分岐構造も大きく成長する。最終的に分岐構造の大きな成長により、複数本の伸長形状とマイクロ・スケール構造が形成される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究対象は、これまでに観察(発見)されていない極めて珍しい流体・界面現象である。気泡底部の気液界面から形成する伸長形状およびマイクロ・スケールでの自己組織構造は、従来理論では説明がつかず、新しい原理と学理が存在する。本研究は、流体力学分野で発展してきた従来の理論体系の枠組みから外れた新しい原理に基づいた現象と言え、新しい知(原理)に対して、まずは実験的にその生成機構の解明を目指し、深く探究を行った点で価値が極めて高い基礎研究であると考えられる。得られる成果は、流体力学分野において非常に大きいインパクトを与え、今後の産業分野への応用展開が期待できる。

研究成果の概要(英文)：The formation mechanism of microscale self-organization structures that emerge at gas-liquid interfaces of single bubbles rising in hydrophobically modified alkali-soluble emulsion polymer (HASE) solutions with viscoelastic properties is experimentally examined. It is found that the characteristic elongated shapes and microscale self-organization structures depend on the alkaline substances added to HASE. When the HASE aqueous solution adjusted with Na₂CO₃ is used, very complicated elongated and microscale structures are observed. In the formation process of elongated shapes and microscale structures, a very elongated shape is first formed. At the same time, bifurcating structures appear from the tip of the very elongated shape. Bifurcating structures largely grow as the bubble diameter increases. Finally, several very elongated trailing edges with complex microscale self-organization structures are formed due to the significant growth of bifurcating structures.

研究分野：流体力学

キーワード：粘弾性流体 気液界面 伸長形状 マイクロスケール構造 HASE溶液

1. 研究開始当初の背景

アルカリ溶解会合性高分子(HASE)は、粘度調整剤として工業的に使用されている高分子である。HASEの原液は強酸性のエマルジョン状態にあるが、アルカリ物質を添加すると増粘した水溶性の高分子溶液(粘弾性流体)となる。見掛けのレオロジー特性(粘度・弾性特性)に大きな特徴はなく、見掛け上は弱い非ニュートン性を有する。研究代表者はHASE溶液中に気泡を上昇させると極めて特徴的な界面現象が発現することを発見した。気泡が上昇する際に気泡底部や気泡縁から細長い伸長形状が形成される。気液間の流体物性の差を考えれば、長く伸長する気相は想像し難い。さらに、伸長形状部の気液界面からマイクロスケールの自己組織構造が発現することを発見した。これは非常に興味深い現象で、これまでに観察されていない極めて珍しい流体・界面現象である。自己組織構造は伸長した形状部の界面で主として形成されるが、常に発現するとは限らない。特徴的な伸張形状やマイクロスケールの自己組織構造の形成については、従来理論では全く説明がつかず、これらの形成メカニズムの解明は非常に価値ある研究となる。

2. 研究の目的

本研究では気液界面に発現する伸張形状や自己組織構造を空間・時間スケールで多角的に観察し、その結果を基に現象を考察する。具体的に以下を目的とする。

- (1) 気液界面に発現する特徴的な伸長形状の形成過程の解明
- (2) 気液界面に発現する自己組織構造の形成過程の解明
- (3) 気液界面に発現する自己組織構造の時間発展過程(特に出現開始時)の明確化
- (4) アルカリ物質に依存した伸長形状および自己組織構造の形成過程の相違

最終的に伸張形状と自己組織構造の発現要因をレオロジー特性、流動操作条件と関連づけた検討を行い、特徴的な界面現象の発現メカニズムを考察する。

3. 研究の方法

実験装置は、正方断面形状(0.15 m × 0.15 m)のアクリル塔(高さ 1.1 m)である。HASEとしてPrimal TT-935(Dow Chemical Co.)を用いた。本研究では、添加するアルカリ物質の影響を調べるためにNaOHとNa₂CO₃の2種類のアルカリを用いたHASE水溶液を準備し、pH ≈ 9に調整した。実験では装置内をHASE水溶液で満たし、所定体積の気泡(空気)を半球状のカップに貯めた後に単一気泡を放出した。気泡上昇運動を2台の高速度ビデオカメラ(500 ~ 1000 fps)で撮影し、気泡形状を観察した。また、撮影画像から上昇速度を算出した。流体の物性値は全て実測した。NaOHで調整したHASE水溶液を用いて液滴でも実験を行ったが、マイクロスケール構造の発現はなかったため、気泡を用いた実験に注力した。

実験で用いたHASE水溶液のレオロジー特性を図1に示す。図において η_L [Pa·s]は水溶液の見掛けの粘度、 N_1 [Pa]は第一法線応力差、 $\dot{\gamma}$ [1/s]は剪断速度である。赤シンボルは、NaOHをHASE原液に添加して調整した1.7wt% HASE水溶液、青シンボルは、Na₂CO₃をHASE原液に添加して調整した1.5wt% HASE水溶液である。白抜き丸は η_L を、塗りつぶしの丸は N_1 に対応した実測値である。表1にHASE水溶液の流体物性を示す。 ρ [kg/m³]は密度、 η_0 [Pa·s]はゼロ剪断速度粘度、 σ [N/m]は界面張力、 λ [s]は緩和時間である。図1および表1から明らかのように、1.7wt% HASE水溶液(NaOH系)と1.5wt% HASE水溶液(Na₂CO₃系)のレオロジー特性は、 η_0 に若干の差はあるが、ほぼ同じである。それぞれの水溶液の緩和時間は10⁻² sのオーダーであり、粘度減少も緩やかであることからレオロジー特性から非ニュートン性は弱いと判断できる。

4. 研究成果

(1) 1.7wt% HASE水溶液(NaOH系)の実験結果

図2に1.7wt% HASE水溶液(NaOH系)を上昇する気泡形状の全体図を示す。気泡体積相当直径(D)が $D = 3$ mm程度の気泡は球形形状をしており、気泡径が大きくなるにつれて気泡底部が少しずつ尖りカスプ型状となる。 $D = 4.6$ mmではかなりシャープなカスプが形成され、 $D = 4.9$ mmで気泡底部に1本の伸長形状が発現した。その後、気泡径が大きくなるにつれ1本の伸長形状が長く太くなる。 $D = 9.8$ mmでは1本の伸長形状の先端から、さらに1本の伸長形状が切れることなく伸縮を繰り返す特徴的な形状が発現した。 $D = 10.2$ mmでは1本の伸長形状の先端からさらに2本の伸長形状が発現し、それが伸縮する現象が観察された。その後、 $D = 10.7$ mmで1本の伸長形状の先端から伸びた2本の伸長形状が十分な長さになり2本の枝分かれ形状となった。その後、 D が大きくなるにつれて伸長形状の本数は増え、 $D = 24.8$ mmでは20本を超える伸長形状が形成された。また、 $D = 10.5 \sim 13$ mmの時、伸長形状部に

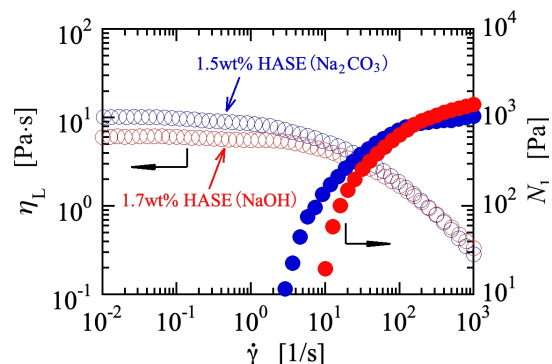


図1 レオロジー特性

表 1 流体物性値

	ρ [kg/m ³]	η_0 [Pa·s]	σ [N/m]	λ [s]
HASE 水溶液 (Na ₂ CO ₃)	1008.8	10.0	4.5×10^{-2}	6.0×10^{-2}
HASE 水溶液 (NaOH)	1005.7	6.0	4.5×10^{-2}	7.0×10^{-2}

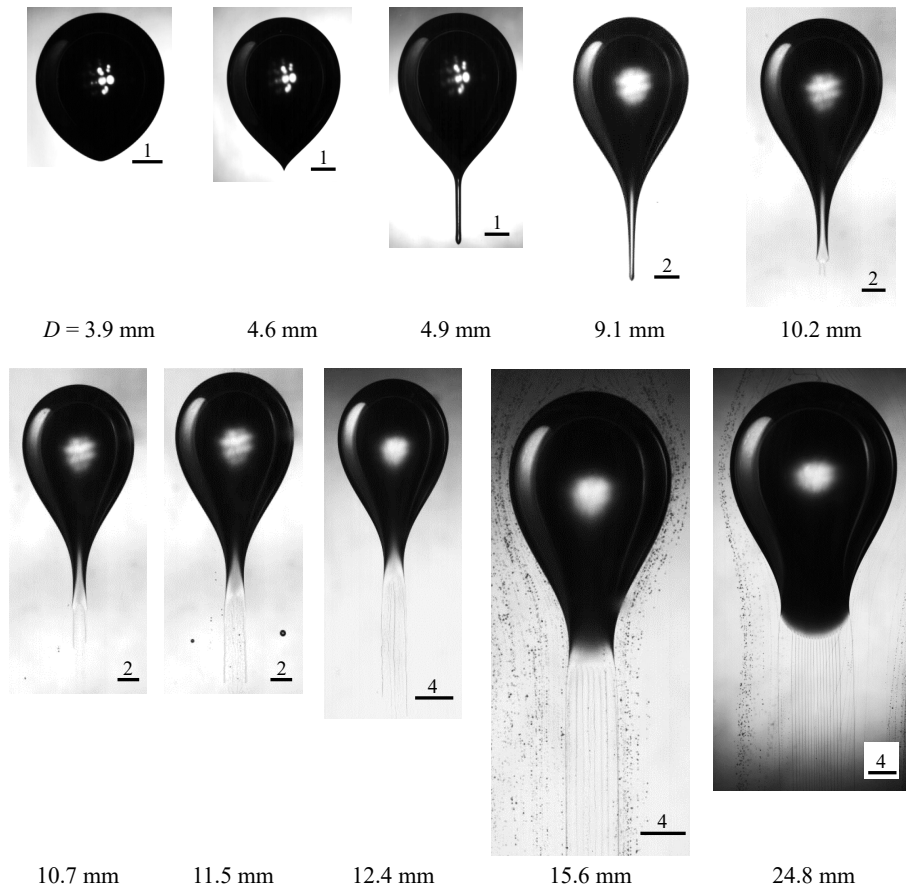


図 2 気泡全体形状 (1.7wt% HASE 水溶液 (NaOH 系))

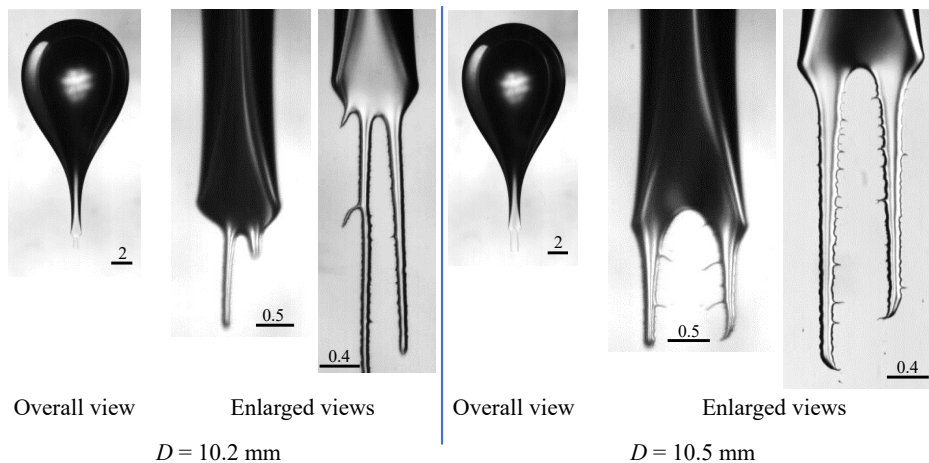


図 3 気泡の枝分かれ形状の形成過程の拡大図 (1.7wt% HASE 水溶液 (NaOH 系))

特徴的なマイクロ・スケール構造の形成が見られた。

図 3 に 1 本の伸長形状の先端からさらに伸長形状が発現する様子を示す。 $D = 10.2$ mm では、先端の伸長形状が伸縮を繰り返す。その際、不規則に 2 本の伸長形状が形成され、その先端がさらに 2 つに分岐することがあった。 $D = 10.5$ mm になると細い糸の本数や形状が不規則に変化することはなく、2 本の分岐した伸長形状が伸縮を繰り返す現象となった。また、このとき 2 本の伸長形状の内側にわずかに棘状のマイクロ・スケール構造が発現していることも確認できる。そ

の後、 D が大きくなると2本の伸長形状が下流方向に伸長するようになる。

図4に $D = 10.7 \text{ mm}$ における伸長構造とマイクロ・スケール構造の時間発展過程を示す。図から明らかなように、この場合、2本の伸長構造が形成される。また、伸長構造の内側には枝状のマイクロ・スケール構造の発現が見られる。マイクロ・スケール構造は全体としては時間的に安定しているが、伸長形状の先端で形成されるマイクロ・スケール構造は伸長形状部から切り離れる。切り離れたマイクロ・スケール構造は、界面張力の作用により球形気泡ならず、形状を保っており、HASEの流体特性によりその形状が維持されていると考えられる。非常に興味深い現象である。枝分かれした2本の伸長形状が形成され始める部分(伸長形状の付け根)では段差がある。これは1本の伸長形状とその先端から伸びた2本の伸長形状の境界であった部分であると考えられる。 $D = 10.5 \text{ mm}$ に比べ $D = 10.7 \text{ mm}$ では枝分かれの分岐点がこの段差より上流部に移動していることから、流速の速い外側の周囲流体に引っ張られるように1本の伸長形状が裂けることにより、2本の伸長形状が枝分かれ構造へと成長すると考えられる。

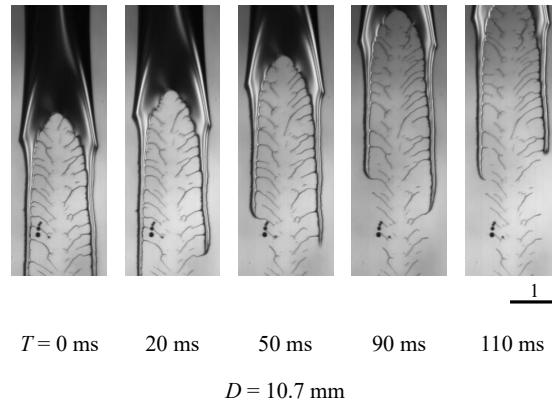


図4 マイクロ・スケール構造の時間発展過程
(1.7wt% HASE 水溶液(NaOH系))

(2) 1.5wt% HASE 水溶液(Na_2CO_3 系)の実験結果

1.5wt% HASE 水溶液(Na_2CO_3 系)の気泡形状の全体図は、1.7wt% HASE 水溶液(NaOH系)の実験結果と良く似ていた。しかし、マイクロ・スケールレベルでは、1.7wt% HASE 水溶液(NaOH系)とは顕著な相違が見られたため、ここでは、特徴的な伸長構造に焦点を当てて撮影、整理した結果を示す。図5に1本の伸長形状の先端からさらに伸長形状が発現し、枝分かれ形状が形成されていく過程を示す。図から明らかなように、NaOHで調整したHASE水溶液よりも複雑なマイクロスケール構造が発現していることが分かる。これより、HASEに添加するアルカリ物質によりHASE溶液の流体特性は変化し、 Na_2CO_3 で調整したHASE水溶液は、より複雑な非ニュートン特性を持つと言える。 $D = 9.5 \text{ mm}$ では伸長形状の先端が扁平な形状になっており、先端から1本の伸縮を繰り返す細い伸長形状が発現した。 $D = 9.8 \text{ mm}$ では伸縮を繰り返す1本の伸長形状の伸びが大きくなる。また、2本の伸長形状が不規則に合体し、1本の細い伸長形状から左右に複数の枝が伸びたような特徴的な構造が観察された。 $D = 10.2 \text{ mm}$ になると伸長形状の本数や形状が不規則に変化することなく、2本の伸長形状が発現する。また、このとき2本の細い伸長形状の両側にマイクロ・スケール構造が発現している。その後、 D が大きくなるにつれ2本の細い糸が伸長し、 $D = 10.5 \text{ mm}$ ではマイクロ・スケール構造を伴った枝分かれ構造が明白に観察できる。 $D = 10.7 \text{ mm}$ では、内側にも数本の伸長形状が形成され始め、複数本で構成される伸長形状が形成される。この時、両端の伸長形状が太くなる。 $D = 10.7 \text{ mm}$ よりも気泡径が大きくなると、明白に複数本で構成される伸長形状が形成される。HASE高分子が、気液界面に強く作用し、界面張力の作用に打ち勝って複雑な形状が維持されていると考えられる。

図6に $D = 10.7 \text{ mm}$ および 11.0 mm における枝分かれ伸長構造と枝分かれ状のマイクロ・スケール構造の時間発展過程を示す。マイクロ・スケール構造を伴う伸長構造は下流方向に大きく伸び、NaOH系での時間変化と同様に全体としては時間的に安定している。外側の枝分かれ伸長形状が形成され始める箇所段差があり、段差の上流部ではマイクロ・スケール構造が見られない。一方、下流部ではマイクロ・スケール構造が発現することから、段差の部分は1本の伸長形状と2本の伸長形状の境界であった部分と考えられる。 $D = 10.5 \text{ mm}$ に比べ $D = 10.7 \text{ mm}$ や 11.0 mm では枝分かれの分岐点がこの段差より上流部に移動していることから、NaOH系と同様に流速の速い外側の周囲流体に引っ張られるように1本の伸長形状が裂けることにより、2本の枝分かれ伸長形状へと成長すると考えられる。ただし、 D が大きくなり、気泡上昇速度が大きくなると枝分かれの本数は増えるが、複雑なマイクロ・スケール構造の形成は見られなくなる。これは、気泡上昇速度が大きいことに起因すると考えられる。NaOH系の結果と比べた場合、NaOH系よりも Na_2CO_3 系の気泡形状は、特にマイクロ・スケールレベルで非常に複雑な構造をしており、見掛けのレオロジー特性は類似していても流体特性はNaOHで調整したHASE水溶液と Na_2CO_3 で調整したHASE水溶液では異なることが分かる。

(3) まとめ

本研究で調整した流体のレオロジー特性条件下での気泡底部に発現する伸長形状とマイクロ・スケール構造の形成過程は、まず気泡底部から1本の伸長形状が形成され、その後、その先端から分岐構造が発現する。気泡径が大きくなるとともに、分岐構造も大きく成長し、複数本の伸長形状とマイクロ・スケール構造が形成される。HASE水溶液が持つ特徴的な流体特性は、気泡径や上昇速度の条件の兼ね合いで大きくその特性が発現する条件がある。

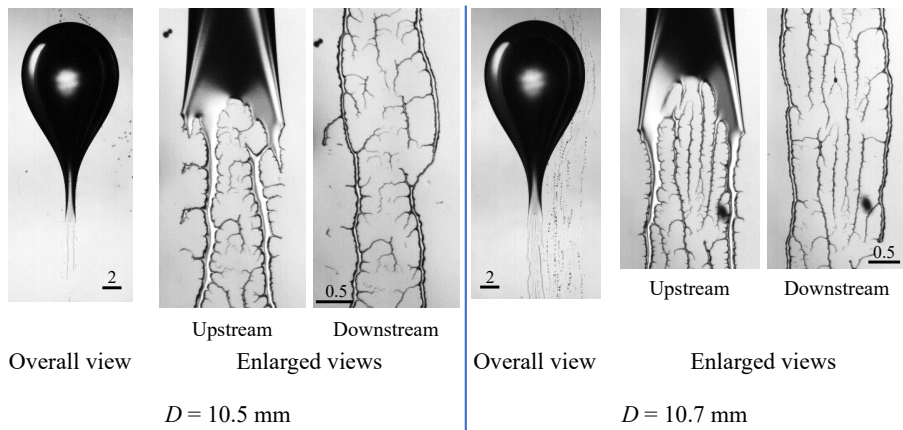
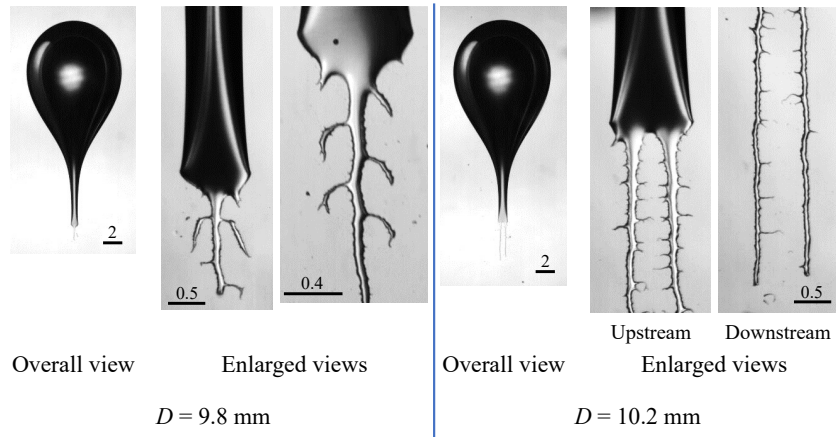


図5 気泡の枝分かれ形状の形成過程の拡大図(1.5wt% HASE 水溶液(Na_2CO_3 系))

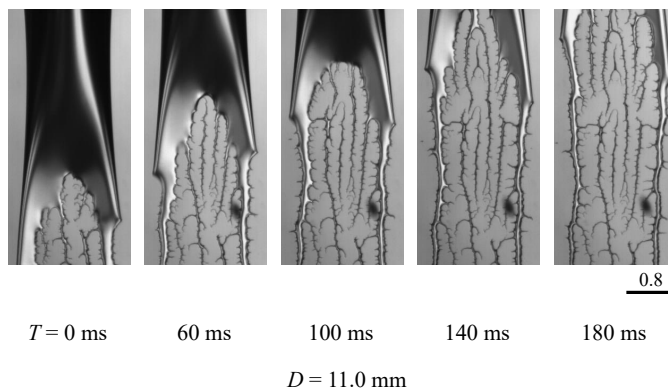
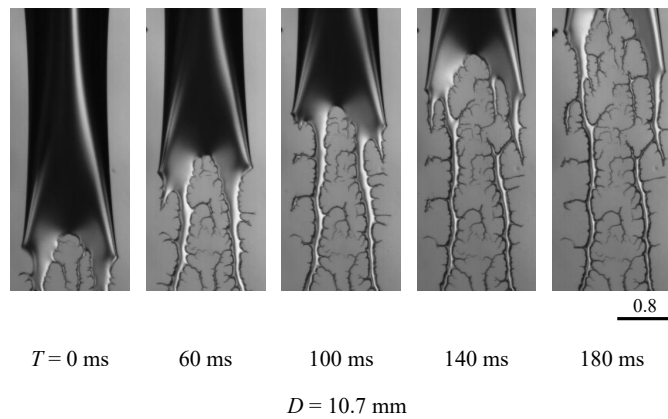


図6 マイクロ・スケール構造の時間発展過程(1.5wt% HASE 水溶液(Na_2CO_3 系))

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 坂本和輝, 太田光浩, 岩田修一
2. 発表標題 アルカリ溶解性会合高分子溶液中を上昇する気泡に形成される伸長形状への添加するアルカリ物質の影響
3. 学会等名 日本機械学会第99期流体工学部門講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山城浩晃, 太田光浩, 岩田修一
2. 発表標題 粘弾性流体を上昇する気泡に発現する枝分かれ形状の形成過程
3. 学会等名 混相流シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 坂本和輝, 太田光浩, 岩田修一
2. 発表標題 アルカリ溶解性会合高分子溶液中の気泡に発現する伸長構造へのアルカリ物質の影響
3. 学会等名 化学工学会第86年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 坂本和輝, 太田光浩, 岩田修一
2. 発表標題 高粘性アルカリ溶解性会合高分子溶液中における枝分かれ形状を有する気泡の上昇運動
3. 学会等名 化学工学会第51回秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 坂本和輝, 太田光浩, 岩田修一
2. 発表標題 粘弾性流体中を上昇する気泡の下部に形成される伸長形状に関する考察
3. 学会等名 化学工学会広島大会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takuya Makita, Mitsuhiro Ohta, Shuichi Iwata
2. 発表標題 An Experimental Study of the Morphology of a Drop Rising through a Hydrophobically Modified Alkali-Soluble Emulsion Polymer Solution
3. 学会等名 The 18th Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 三宅諒弥, 太田光浩, 岩田修一
2. 発表標題 アルカリ溶解性会合高分子溶液中の気泡運動への添加するアルカリ物質の影響
3. 学会等名 日本機械学会第97期流体工学部門講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Mitsuhiro Ohta
2. 発表標題 Exotic Shapes and Microscale Structure of a Bubble Rising in Hydrophobically Modified Alkali-Soluble Emulsion Polymer Solutions
3. 学会等名 The 72nd Annual Meeting of the American Physical Society 's Division of Fluid Dynamics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019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
研究 分担 者	岩田 修一 (IWATA Shuichi) (00293738)	名古屋工業大学・工学(系)研究科(研究院)・教授 (13903)	

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
---------	---------