

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 2 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560180

研究課題名(和文) アルカリ溶解性会合高分子溶液中における特異な気泡・液滴ダイナミクスの解明

研究課題名(英文) The study of unique bubble/drop dynamics in hydrophobically modified alkali-soluble emulsion polymer solutions

研究代表者

太田 光浩(OHTA, MITSUHIRO)

徳島大学・ソシオテクノサイエンス研究部・教授

研究者番号：00281866

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：アルカリ溶解性会合高分子(HASE)溶液中を上昇する気泡の運動が実験的に調べられる。濃度の異なる数種類のHASE溶液中の気泡運動が考察される。HASE溶液は特別なレオロジー特性を持たないにも関わらず、非常にユニークな形状を持った気泡運動が観察される。HASE溶液中の気泡上昇運動は、水溶性会合高分子中を上昇するカスプ形状気泡とは全く異なる。微視的な観点からは、物性・物理条件に依存して、魚の骨状のマイクロ構造が気泡のユニーク形状部において形成されるのが確認される。これらのマイクロ構造は肉眼では観察できない。マイクロ構造の形成のメカニズムは、HASE溶液の弾性効果と密接に結び付いていると考えられる。

研究成果の概要(英文)：The motion of single bubbles freely rising hydrophobically modified alkali-soluble emulsion polymer (HASE) solutions are experimentally examined. In this study, HASE solutions with several different concentrations are prepared and the bubble rising motion in these HASE solutions are considered. The motion of bubbles with very unique shapes is observed, even though the profile of rheological properties doesn't have special characteristics. The rising bubble in HASE solutions is quite different from bubbles with a cusped shape in water-soluble associative polymer solutions.

From a microscopic view, it is observed that fish backbone-type micro structures are formed at the unique shapes depending on physical properties and conditions. These microstructures are seldom visible to the naked eye. It is hypothesized that the mechanisms behind the formation of these microscopic structures are closely tied to the HASE elastic effect.

研究分野：流体工学

キーワード：弾性特性 気泡運動 気泡形状 マイクロ構造

1. 研究開始当初の背景

アルカリ溶解会合高分子 (HASE) は、近年、主として増粘剤として工業的に用いられている溶液である。ここ 10 年来、HASE 溶液の物性に関する論文は多くあり、剪断速度に依存した見掛け粘度および弾性特性は、通常の粘弾性流体の範疇にあり非ニュートン性は弱い。非ニュートン性が弱いにも関わらず、Soto ら (Phys. Fluids, Vol.18, 121510, 2006) は、HASE 水溶液中での上昇気泡がユニークな形状となることを発見した。Soto ら (2006) が高粘性の HASE 水溶液中での小気泡に限定して調べたのに対し、申請者は、ごく最近に低粘性～高粘性までの HASE 水溶液中を用い、非常に大きな気泡までの運動を大まかに調べた。Soto ら (2006) とは異なった特異な形状の気泡運動を観察されたが、詳細な検討は十分にできておらず、多くの検討の余地が残されている。また、HASE 溶液をハンドリングする上での実用的な操作指針を得ること、また、多種多様に存在する非ニュートン流体が示す特異現象の一例を示す意味でも、HASE 溶液の持つ非ニュートン性の特徴を把握し、特異な非ニュートン性の要因を明確にする必要がある。

2. 研究の目的

本研究ではより広範囲の物性物理条件で HASE 溶液中の気泡上昇運動をマクロ・マイクロスケールの両観点からの観察を行い、気泡形状を通して発現する特異な弾性効果について考察を行った。また、流動場での高分子の配向状態が最終的な気泡運動形態に影響を及ぼすかを調べるために、2 種類の気泡生成条件により実験を行い、初期流動条件の依存性を調べた。さらに液滴系に対しても同様の実験を行い、液滴には HASE 溶液の粘弾性特性がどのように反映されるかを調べた。

3. 研究の方法

図 1 に本研究での実験システムを示す。実験装置本体は、正方断面形状 (0.25 m × 0.25 m) のアクリル塔 (高さ 1.1 m) である。HASE として Primal TT-935 (Rohm and Haas Co.) を用いた。本研究では NaOH 水溶液を添加し、pH ≈ 7 に調整した。また、濃度の異なる数種類の HASE 溶液を準備した。実験では、装置内を HASE 溶液で満たし、所定体積の気泡を半球状のカップに貯めた後に単一気泡を放出した。気泡運動を高速度ビデオカメラ (500 ~ 1000 fps) で撮影し、撮影映像から上昇速度と形状を観察した。また、実験で用いた流体の全物性を実測した。

4. 研究成果

(1) 高粘性 HASE 溶液系に対する結果

図 2 に 1.57wt% HASE 溶液中での気泡形状を示す。1.57wt% HASE 溶液はゼロ剪断速度粘度が $\eta_0 = 1.9 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ であり高粘性系となる。見掛けの Morton (M) 数 ($= g(\rho_L - \rho_G) \eta_0^4 / \rho_L^2 \sigma^3$,

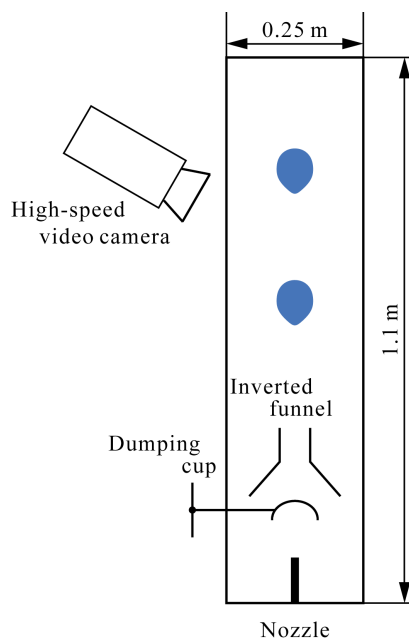


図 1 実験システム

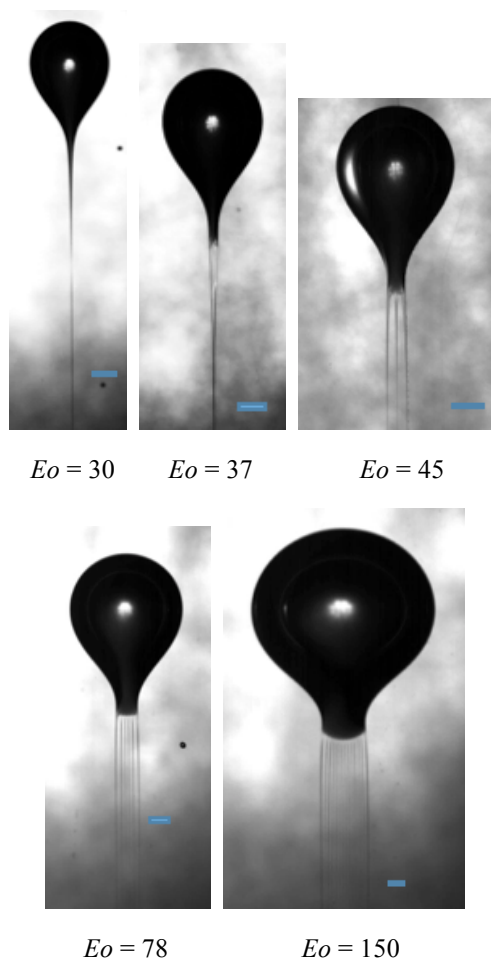


図 2 1.57wt% HASE 溶液中での気泡形状

g : 重力加速度, ρ_G : 気相密度, ρ_L : 液相密度, σ : 界面張力)条件は $M = 2.1 \times 10^3$ である. 図中の Eötvös (EO) 数 ($= g(\rho_L - \rho_G) d^2 / \sigma$) は気泡直径(体積)と等価であり, EO 数が大きくなるほど気泡体積が大きいことを表す. 各写真にある太線は 4 mm のスケールを表す. $EO \leq 30$ の条件では, 気泡の形状は細長い球状で気泡下部には細長い 1 本のテール形状を確認できる. このテールの先端から連続的に微細気泡が発生している事は確認できず, $EO \geq 30$ でテール形状の先端が崩壊し微細気泡を形成している事が確認された. $EO \geq 45$ の条件では, 気泡下部のテール形状は複数に分かれ, EO を増加するにつれてその本数が増加した. 図 3 にテール形状の拡大図を示す. 各写真にある太線は 0.4 mm のスケールを表す. 図からテール本数は, EO 数の増加と共に増加している事が分かる. このことから, テール形状が増加する現象は, テール形状が分裂して起こるのではなく, 気泡底部に弾性応力が集中して形成されると考えられる.

(2) 中粘性 HASE 溶液系に対する結果

図 4 に 1.35wt% HASE 溶液中での気泡形状を示す. 各写真にある太線は 4 mm のスケールを表す. 1.35wt% HASE 溶液はゼロ剪断速度粘度が $\eta_0 = 0.3 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ で, $M = 1.5$ である. $EO = 5.0$ 条件では, 球形状の底部が少し尖った形状をしているが, $EO = 8$ では, 球形状の底部に一本の細いテール形状が形成され, 気泡上昇運動に弾性特性が強く影響を及ぼしている事が分かる. またテール形状の先端では, 気相が連続的に分裂して微細気泡が形成される現象も確認できた. さらに EO 数を増加

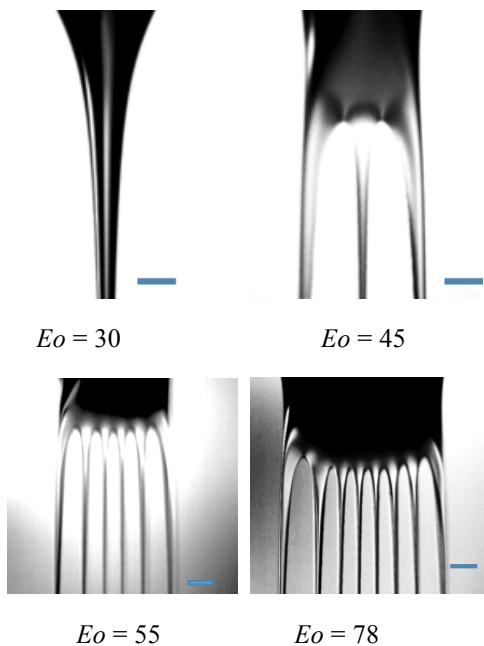


図 3 気泡テール部の拡大 (1.57wt% HASE 溶液中での)

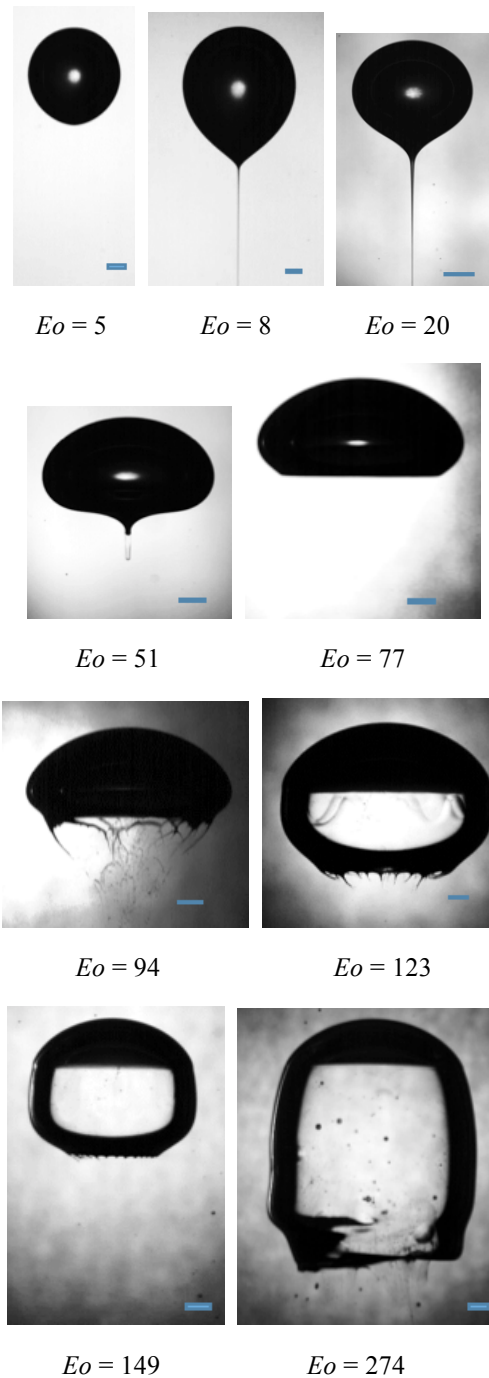


図 4 1.35wt% HASE 溶液中での気泡形状

させると, 気泡形状は球形状から扁平型形状へと変化し, テール形状の長さは短くなる. $EO = 77$ では, ニュートン流体中で見られるような扁平型の気泡形状となり, HASE 水溶液の弾性特性の影響がなくなった. この現象は, 気泡形状が横に伸びるにつれて, 高分子溶液の流れが気泡底部に回り込まず, 弾性応力が弱まったためであると考えられる. さらに EO 数を増加させると, $EO = 94$ では, 気泡の縁から不安定な糸状を有する扁平形状が確認でき, $EO = 123$ になると, スカート型

形状の気泡が確認できた。しかし、ニュートン流体系でのスカート形状とは異なり、気泡本体背後の大きな領域が気泡で覆われた形状となり、中央部だけが穴が空いたとなっている。さらに穴の中心に向かって複数の糸状の気相が形成される。これは、スカート形状の底部に弾性効果が大きく作用し、スカートを形成する気相を下に引っ張っているためであると考えられる。さらに Eo 数を増加させると、 $Eo = 149 \sim 274$ でスカート形状が下に大きく伸びる現象が確認できた。

(3) 低粘性 HASE 溶液系に対する結果

図 5 に 1.03wt% HASE 溶液中での気泡形状を示す。各写真にある太線は 4 mm のスケールを表す。1.35wt% HASE 溶液はゼロ剪断速度粘度が $\eta_0 = 0.1 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ で、 $M = 4.0 \times 10^2$ である。 $Eo = 6$ の条件では、気泡形状は大きく弾性効果の影響を受けず、底部が若干カスプ状となっているだけである。 $Eo = 10$ の条件では、球形の底部に一本の細いテール形状を形成している。 Eo 数が増大すると $Eo = 16$ の条件では、気泡底部の非常に短い糸形状を有する形状が形成され、 $Eo = 37$ では、ニュートン流体中で見られるような扁平型の気泡形状が見られるなど、気泡形状に弾性効果が現れない。これは、1.35wt% HASE 系での結果と同様の傾向である。さらに Eo 数を増加させると $Eo \geq 58$ の条件では、気泡形状の縁に複数の糸状の形状が形成されていることを確認できる。気泡の縁に弾性応力が集中することに起因していると考えられる。また、気泡の縁の糸形状は、 $Eo = 58$ の条件では、下部方向に伸びた形状であるが、 $Eo = 76$ の条件では、不安定な形状となった。 $Eo \geq 92$ では、斜め下方向に引っ張られたような形状となり、まるで糸形状の付け根が、気泡の縁にそって回転している状態が確認できた。

(4) 気泡に出現するマイクロ構造

図 6 に 1.89wt% HASE 水溶液 ($\eta_0 = 3.8 \text{ Pa}\cdot\text{s}$) で $Eo = 49$ の条件での気泡形状を示す。各写真にある太線は 4 mm (左: 全体像) と 0.2 mm (右: 拡大図) のスケールを表す。1.57wt% HASE 溶液で見られた気泡と同様に数本のテールが出現している状態である。テール部を拡大して観察すると全体形状の側面から水平方向に向かって伸びるマイクロ構造があることを確認できる。

図 7 に 1.35wt% HASE 水溶液の気泡形状の拡大図を示す。各写真にある太線は 4 mm (全体像) と 0.4 mm (拡大図) のスケールを表す。本系では、糸形状の先端が連続的に切れて微細気泡が生成する現象が確認できた $Eo = 8 \sim 23$ の領域では、マイクロ構造は確認する事ができなかった。しかし、糸形状の先端が連続的に崩壊する事が確認できなかった $Eo = 42$ の条件で糸形状の側面部から水平方向に伸びる魚の骨型形状の形成が確認できる。また、 $Eo = 84$ の条件では、気泡の縁に形成される糸

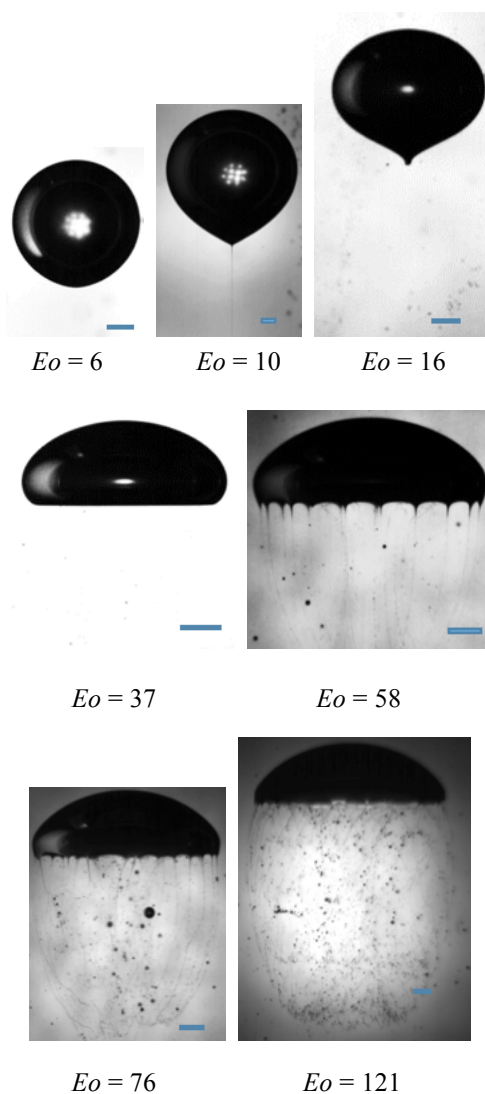


図 5 1.03wt% HASE 溶液中での気泡形状

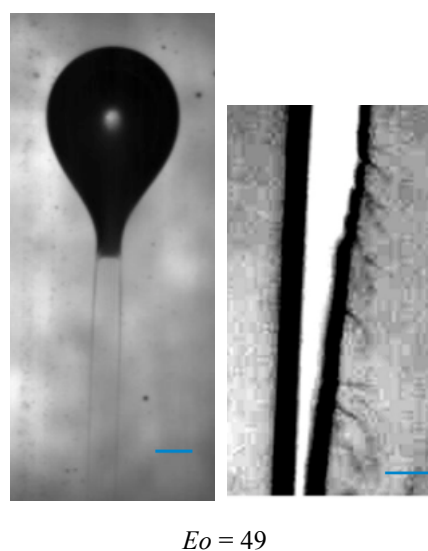
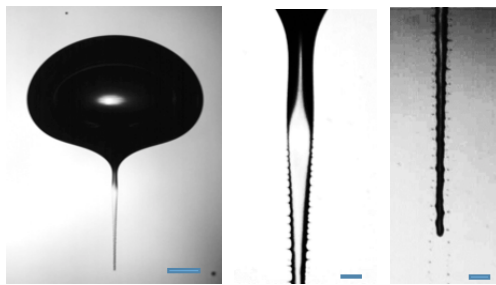
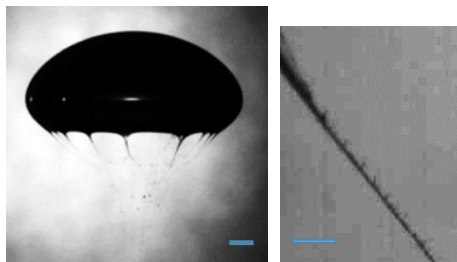


図 6 1.89wt% HASE 溶液中での気泡形状 (左: 全体像 右: 拡大図)

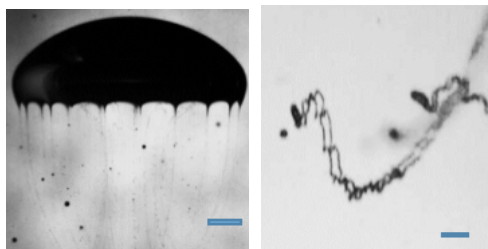


$Eo = 42$



$Eo = 84$

図7 1.35wt% HASE 溶液中での気泡形状
(左：全体像 中央，右：拡大図)



$Eo = 84$

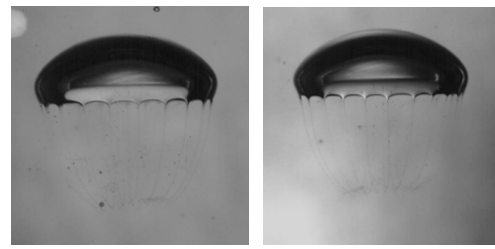
図8 1.03wt% HASE 溶液中での気泡形状
(左：全体像 右：拡大図)

形状に垂直方向に向かって伸びるマイクロ構造が観察できた。

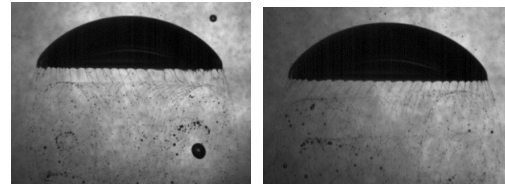
図8に1.03wt% HASE 溶液で $Eo = 84$ の条件での気泡形状を示す。各写真にある太線は4 mm (全体像)と0.2 mm (拡大図)のスケールを表す。拡大図から分かるように糸形状の先端では非常に特異なマイクロ構造した状態となっている。これらのマイクロ構造の出現は個々のHASE分子が直接気液界面に力を作用させた結果であると予想できる。これらのマイクロ構造は常に出現するわけではなく、出現する物性・物理条件が存在する。この非常にユニークな現象は今後より深く研究する価値がある。

(5) 気泡上昇運動の初期値依存性

図9に1.07wt% HASE 溶液での気泡形状を



$Eo = 71$



$Eo = 170$

図9 1.07wt% HASE 溶液中での気泡形状
(左：流動条件1 右：流動条件2)

示す。図の左は流動条件1、右は流動条件2であり、「流動条件1」は気泡生成カップを左回転させて気泡を生成した場合、「流動条件2」は、右回転させて気泡を生成した場合に対応している $Eo = 71$ の条件では流動条件による気泡形状の違いは確認できない。しかし、 $Eo = 170$ の条件時では、「流動条件1」では、全ての糸形状は縁から右斜め下方向に伸び、気泡真上から見て、時計回りに回転をしていた。逆に、「流動条件2」では、全ての糸形状は縁から左斜め下方向に伸び、気泡真上から見て、反時計回りに回転をしていた。 $Eo = 170$ の場合は、初期流動状態の影響が最終的な気泡運動にまで影響を及ぼしたと考えられる。すなわち、気泡が運動を開始する際に形成される流動場が高分子の配向を決定づけ、その影響が最後まで残る。流動条件依存性も依存性が出現する物性・物理条件が存在する。今後より深く探究する価値がある。

(6) HASE 溶液中での液滴上昇運動

HASE 溶液中での液滴上昇運動については、気泡のようにHASE溶液の粘弾性効果が液滴に反映されることはなく、通常のニュートン流体系での運動と同じであった。HASE溶液の非ニュートン性は高剪断域で出現するため、液滴では上昇速度が遅く非ニュートン性が顕著に出る運動にはならなかったと推測できる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

- ① [Mitsuhiro Ohta](#), Naoto Kobayashi, Yoshihiko Shigekane, Yutaka Yoshida, [Shuichi Iwata](#), "The Dynamic Motion of Single Bubbles with

Unique Shapes Rising Freely in Hydrophobically Modified Alkali-Soluble Emulsion Polymer Solutions”, *Journal of Rheology*, Vol.59, No.2, 2015, pp.303–316.
DOI: 10.1122/1.4904911

[学会発表] (計 7 件)

- ① Norihiko Tokui, Mitsuhiro Ohta, Shuichi Iwata, Microstructure of Thread-Like Trailing Edge from a Bubble Rising in Hydrophobically Modified Alkali-Soluble Emulsion Polymer Solutions”, The 2nd International Symposium on Multiscale Multiphase Process Engineering (MMPE), Hamburg, Germany, September 25, 2014.
- ② 太田光浩, 徳井紀彦, 岩田修一, アルカリ溶解会合性高分子溶液中を上昇する Fish-backbone 型形状を有する気泡の運動特性, 混相流シンポジウム 2014, 2014 年 7 月 28 日, 北海道立道民活動センターカデル 2.7 (北海道札幌市).
- ③ 徳井紀彦, 太田光浩, 岩田修一, アルカリ溶解性会合高分子溶液中を上昇する気泡に作用する特異な弾性効果, 第 91 期日本機械学会流体工学部門講演会, 2013 年 11 月 9 日, 九州大学 (福岡県福岡市).
- ④ 徳井紀彦, 太田光浩, 岩田修一, アルカリ溶解会合性高分子溶液中を上昇運動する気泡への初期流動条件の影響, 化学工学会第 45 回秋季大会, 2013 年 9 月 17 日, 岡山大学 (岡山県岡山市).
- ⑤ 太田光浩, 小林尚斗, 大平勇一, 小幡英二, 岩田修一, アルカリ溶解会合性高分子溶液中を上昇する気泡への溶解高分子量の影響, 混相流シンポジウム 2013, 2013 年 8 月 10 日, 信州大学 (長野県長野市).
- ⑥ Mitsuhiro Ohta, Naoto Kobayashi, Yutaka Yoshida, Shuichi Iwata, Buoyancy-Driven Motion of a Large Bubble Rising through Hydrophobically Modified Alkali-Soluble Emulsion Polymer Solutions, The 8th International Conference on Multiphase Flow (ICMF2013), Jeju, Korea, May 27, 2013.
- ⑦ 太田光浩, 小林尚斗, 吉田 豊, 岩田修一, アルカリ溶解性会合高分子溶液中を特異な形状で上昇する気泡の詳細観察, 第 90 期日本機械学会流体工学部門講演会, 2012 年 11 月 17 日, 同志社大学 (京都府京都市).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

太田 光浩 (OHTA MITSUHIRO)

徳島大学・大学院ソシオテクノサイエンス
研究部・教授

研究者番号：00281866

(2) 研究分担者

岩田 修一 (IWATA SHUICHI)

名古屋工業大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：00293738