微小領域における複雑流体の可視化*

長谷川 富市**, 鳴海 敬倫**

Visualization of Complex Fluids in Minute Flow Fields

Tomiichi HASEGAWA and Takatsune NARUMI

1. はじめに

非ニュートン流体における可視化技術は、古くから高分子溶液や融液に対し流出ジェットの直径の測定や流動複屈折法により法線応力を求める方法として使われてきた。最近では、可視化の対象が高分子溶液の他に界面活性剤水溶液、生体高分子溶液、液晶などに拡がっており、得られた光の情報から流動場における分子の様態変化を探る方向にある^{1), 2), 3)}。本稿では、微小な領域の流れで工学的に重要なひずみ速度の大きい領域における粘弾性流体の可視化と液晶材料の流動に伴う配向構造の変化について、主に本研究室で得られた結果について述べる。

2. 流出ジェットの直径

粘弾性流体を細管や小オリフィスから流出させると、流出したジェットの直径が膨らむことが知られている(バラス効果)。この膨らみを利用して流体の弾性力を知ろうとする試みがある。Fig. 1, 2は小オリフィス(直径0.7 mm)から流出したジェットの写真を示す。オリフィス位置は矢印で示されている。水道水の場合(Fig. 1)はオリフィス流出後にやや縮流が起きその後直径はほぼ一定となっている。また、レイノルズ数(Re)の増加と共に大きな変化はみられない。一方、高分子(ポリエチレンオキサイド, PEO(18))の水溶液(重量濃度200 ppm)の場合(Fig. 2), ジェット形状は, Re が998までは水の場合とほぼ同じであるが、さらに流量を上げようとしてオリフィス上流域の圧力を上げると、急に膨らみを生じる。この場合流量は却って低下する(Fig. 2(c))。すなわちここで急に弾性力が大きくなっていることが推察される。このときオリフィス上流部に渦の生成が確認される⁴⁾。Fig. 3, 4は, PEO(18)100 ppmと200 ppm水溶液について、オリフィス下流でほぼ一定値を示すジェット直径 d をオリフィス直径 D で無次元化し, Re に対して示したグラフである。

図中には実験と同じ条件下の数値計算によって求めたニュートン流体の無次元ジェットの値が実線により示されている(ただし、表面張力の影響は考慮されていない)。

* 原稿受付 2002年7月1日

** 新潟大学 工学部

水のデータ(ここでは省略)は、数値計算による値よりやや高いが傾向はほぼ同じである。これに対し, Fig. 3, 4で示されるように, PEO(18)100 ppmと200 ppmでは,

Fig. 1 Extruded water jets from a small orifice ($D=0.7\text{mm}$).

Fig. 2 Extruded jets of PEO (18) 200 ppm from a small orifice ($D=0.7\text{ mm}$).

Fig. 3 Normalized jet diameter vs. Reynolds number.
[PEO(18) 100 ppm]

Fig. 4 Normalized jet diameter vs. Reynolds number.
[PEO(18) 200 ppm]

あるレイノルズ数（この値はオリフィス直径により異なるようである）からジェット径が増加していることがわかる。このデータを基に弾性力を算定する方法および結果については文献5)を参照されたい。

3. 光弾性則

光弾性則により、流体の屈折率の異方性から弾性が求められる。従って、屈折率分布測定の手法であるマッハツェンダー干渉計を利用し、流体の屈折率分布の異方性を求めることができれば、流体の弾性力分布を求めることが可能になる⁹⁾。本研究では、2次元流路内の隙間に流体を通過させ、隙間流入時の伸張流動場および流出後のジェット周辺における屈折率を、マッハツェンダー干渉計を用い観察する。また、流れ方向に振動（偏光）面をもつ光と、流れに垂直な方向に振動面をもつ光の各々について干渉縞を観察し、両者の違いから屈折率分布の異方性を考察する。

筆者らの実験に用いた流路を Fig. 5 に示す。この流路は真鍮製で、奥行きが 55 mm、隙間が 1.2 mm の 2 次元流路である。隙間部の角は 45° になっており、オリフィス通過流れに近い流動が得られるようになっている。観察窓は隙間を中心に配置されており、流入域、隙間、流出域の 3 ヶ所を同時に観察できるようになっている。流体の供給方法として、コンプレッサーによる圧力を使用

Fig. 5 Schema of slit flow and polarized lights.

Fig. 6 Optical setup of the Mach-Zehnder interferometer.

し、タンクに蓄えられた流体を最大 150 kPa で圧送する。

本研究で使用したマッハツェンダー干渉計の光学系を、Fig. 6 に示す。He-Ne 5 mW のレーザー光はポライザーにより、流れ方向への偏光（0° 偏光）、あるいは流れに垂直な偏光（90° 偏光）に変えられる。偏向された光は、流路を通過する光路と通過しない光路に二分され、この二つの光はスクリーン上で重ね合わされ干渉縞を作り出す。流路を通過する光は、流動による屈折率変化のために位相のずれを生じ、干渉縞の明暗分布が変化し、その結果、干渉縞に歪みが現れる。干渉縞の歪みが大きいほど、流動による屈折率変化が大きいことになる。

界面活性剤である臭化セチルトリメチルアンモニウム (CTAB) の 0.03 mol/l 水溶液に、サリチル酸ナトリウム 0.23 mol/l (NaSal) を加えた試験流体の、流動を観察した結果を Fig. 7 に示す。偏光角が流れ方向と一致する 0° の場合、流入域において干渉縞が左に歪んでいる。その一方、偏光角が 90° の場合、流入域において干渉縞が右に歪んでいる。もしも、流入域の外周部において屈折率の変化が生じていないとすれば、干渉縞の歪みは流入域の屈折率変化を表すことになる。ここに、Fig. 7 の (a) と (b) では干渉縞の歪み方向が異なるので、一方では屈折率の低下が生じ、他方では屈折率の増加が生じている。つまり、屈折率に異方性が現れていることになる。Fig. 8 はポリエチレンオキサイド PEO(27) 0.5% 水溶液の同種の写真である。この場合、オリフィス上流部に干渉縞の変形は見られるけれども、偏光角の違いによる干渉縞の大きな差は見られない。この原因や詳細な解析は今後の課題である。

Fig. 7 Examples of distorted interference fringes observed with CTAB-NaSal solution. Polarizing angle is (a)0°, (b)90°.

Fig. 8 Examples of distorted interference fringes observed with PEO(27) 0.5%. Polarizing angle is (a)0°, (b)90°.

4. 電場下の液晶の配向と電気粘性 (ER) 効果

液晶ディスプレイの原理で知られているように、液晶はその誘電異方性により、Fig. 9に示すように電場によって分子の向きを制御できる。流動している液晶に電

Fig. 9 Schema of molecular alignment under electric field.

Fig. 10 Molecular alignment patterns and Miesowicz's viscosity.

Fig. 11 Typical apparent viscosity change (ER effect) of liquid crystal in shear flow.

場を印加した場合も同様の挙動を示し、流動中の分子の長軸方向 (ディレクター) を Fig. 10 のように制御すると、それぞれの見かけの粘度が異なってくる。この粘度変化はミエソビッツの粘度と呼ばれ、 $\eta_1 > \eta_3 > \eta_2$ となる⁷⁾。通常、無電場時の流れは η_2 の状態に近いと言われ、 η_1 となる方向の電場を印加して、流動抵抗を増加させることにより、電気粘性流体 (Electro-Rheological Fluid) として ER ダンパーなどへの応用が期待できる。Fig. 11 は液晶の ER 効果 (粘度変化) を示した例であるが、①の低ひずみ速度域の粘度変化は前述の通りと考えられ、粘度は無電場時も電場印加時もニュートン粘性を示す。

しかし、せん断速度が高くなると、せん断により液晶分子に加わるモーメントが大きくなり、電場による配向状態を崩し始め②、最終的には無電場時と同様の流動状態になる。ER 流体として利用する場合の一つの問題として、いかに高いせん断速度まで ER 効果を維持できるかを明らかにする必要がある。その場合、まずどのように配向構造が崩れるかを知ることが重要である。

Fig. 12 に本研究で用いた液晶用の ER 流路の主要部を示す。このすきまが $50 \mu\text{m}$ 程度の二次元流路内の流

Fig. 12 Schema of minute ER channel tested.

(a) Aligned flow pattern (b) Flow pattern in high shear rate region

(c) Flow pattern in DS mode (d) Pattern with no main flow in DS mode

Fig. 13 Typical optical flow patterns of liquid crystals obtained with polarized microscope.

れをクロスニコル下の偏光顕微鏡で下方向からの透過光により可視化した。偏光方向は流動方向に対しそれぞれ 45° 傾いた状態である。Fig. 13 に撮影された画像例を示す。同図(a)は交流印加時の Fig. 11 の①付近の撮影例で、配向状態を保った流れであり、平坦な画像になっている。この状態が最も高い ER 効果（粘度増加）を示す。(b)は Fig. 11 ②以上の高せん断速度域で観察される電場による配向状態が流れによるせん断で崩れ、不規則な分子の回転または揺動運動などを伴ったと考えられる状態であり、ER 効果は(a)の状態よりも低下する。なお、これらの状態はあくまで液晶分子の光学異方性により生じる画像パターンで分子レベルの運動によるものであり、流れ自体に大規模な二次流が生じているとは言い難い。この状態は流動により流れ方向に分子軸を向けるモーメントが強くなると考えられるが、逆向きの電場によるモーメントも働いているため、分子のディレクターが安定せず、不安定な動きを伴った流れになっていると予想される。この乱れをいかに発生させないかに関しては、主として液晶物性、特に液晶の誘電異方性の大小に依存するが、この点の詳細は文献 8) を参照されたい。一方、(c)は液晶の比抵抗を下げ、流動停止時でも(d)のように電気力により分子の微小な対流が生じている状態（動的散乱モード：DS mode）に流れを加えた場合の映像である。この対流を伴う場合にもある程度 ER 効果が得られるが、十分に配向した状態ほど高くはならない⁹⁾。

Fig. 14 Schematic diagram of apparatus for the flow visualization in a gap.

さて、これまでの流路のすきま方向には均一なせん断と電場によるモーメントが分子に働くような議論をしてきたが、実際には壁面（電極面）近くが最もせん断速度が高いため、配向の乱れの状態もすきま方向に違いが生じていることが予想される。しかし、このような狭いすきま内の可視化は困難であり、十分な検討はなされていない。そこで筆者らは Fig. 14 に示すような装置を作成し、すきま方向の配向状態の変化の可視化を試みた。流路のすきまは 0.2 mm と広く、両サイドのアクリル板との摩擦による配向の傾きも生じるため、すなわち二次元性が乏しいため、Fig. 13(a)に示したような理想的な映像は得られていない。Fig. 15 に本装置で撮影された映像の例を示す。光源側のアクリル板内面にピントを合わせた映像になっており、低いせん断速度ではすきまの広い範囲にわたって鮮明な映像(a)が見られる。なお、壁面近くに見られる不鮮明な層は回折による影響でないことは水を流して確認している。せん断速度が高くなるに従い、電極面近傍から明さが落ち、不鮮明な領域が広がっていき(b)、最終的には全面的にやや暗く不鮮明な映像(c)となる。この変化は分子の3次元的な配向構造を透過した光を観察しているため、その厳密な説明は難しい。ひとつの解釈としては、配向状態では偏光は受けるが鮮明な映像が得られるのに対し、配向が大きく乱れた場合には結果的に等方的に近い状態となり、クロスニコル状態の偏光板により、映像が暗くなったとも考えられる。いずれにしても、(a)が電場による配向状態に近く、(c)ではそれが崩れた状態に対応することを考えると、すきま内での配向状態は壁面近傍から崩れ、中心部に広がっていくことがわかる¹⁰⁾。このことから、壁面（電極面）の配向処理などで液晶の配向の安定性を増すことにより、高せん断域まで良好な ER 効果を維持できる可能性があることがわかる⁸⁾。

このように流速の増加により生ずる配向状態の変化は例えば Fig. 13 のような光学パターンの変化として観測される。逆に言えば、この映像の変化を定量化できれば、画像情報から流速（流量）を算定できる可能性がある。著者らは ER デバイスの制御のための情報を得るひとつ

Fig. 15 Optical flow patterns obtained in a gap (0.2 mm) under AC electric field of 500 V/mm (Width=0.2 mm).

の手段として、パターンニングしたガラス電極を用いた可視化情報からの流量算定法を検討している。詳細は文献11)を参照されたい。

5. 液晶高分子の過渡流れにおける構造変化

液晶高分子は、前節の低分子液晶と同様に配向性を示し、成型後もその配向状態を維持した構造となる。例えば繊維状に成型した場合、その配向構造により高い機械的強度が得られる。しかし、その構造や強度の異方性が不利となる場合もある。目的とする配向状態を得るには、成型流れでの配向過程を知る必要があるが、その挙動は複雑で不明な点も多い。著者らは単純せん断流の再スタートアップ流れでの液晶高分子の過渡挙動について、応力応答と可視化による構造変化の対応を検討してきた。ここでは流れの方向を変えた場合の例について示す。

実験では Hydroxy Propyl Cellulose (以下 HPC) 水溶液を用い、プレシア流れ後に一旦停止させ、90度方向を変えてクエット流れを再スタートさせた。Fig. 16は応力測定実験装置の主要部を示す。すきまが0.5 mmの平行平板間に HPC 水溶液を満たし、下側の平板を移動させてクエット流れを発生させ、測定板に作用するせん断力を測定し、応力を求めた。Fig. 17に示す可視化

Fig. 16 Schema of main part of experimental apparatus for stress measurement.

Fig. 17 Schema of visualization system.

Fig. 18 Estimation of strain-based frequency of light intensity.

実験では、同じすきまの透明な平行平板間に HPC 水溶液を満たし、それらを挟むように2枚の偏光板を配置し、再スタートクエット流れにおいてクロスニコル下で発生する明暗の変化(反転速度)を測定した。ここでは、プレシア流れと停止時間により再開前の液晶高分子の状態を変えた実験を行った。

可視化実験からは Fig. 18に示すようなフォトセンサーからの明るさ(電圧)の変動信号が得られる。その信号から一ひずみあたりの明暗の反転速度を算定した。Fig. 19に応力変化と明暗の反転速度の対比例を示す。再スタート後のひずみ速度は一定で、停止時間 t_h による変化を示している。図(a)には定常値で無次元化したせん断応力の変化を、(b)には明暗の反転速度をひずみに対して表した。この反転速度が大きい事は液晶高分子の回

Fig. 19(a) Shear stress response in subsequent flow with pre-shear rate of 6 (1/s).

Fig. 19(b) Strain-based frequency of light intensity obtained in subsequent flow with pre-shear rate of 6 (1/s).

転運動などが激しいことに対応すると考えられる。(b)より流動再開直後に分子の激しい運動変化があり、その後あるひずみからその運動が落ち着き始め、最終的には非常に遅い回転またはほとんど配向した状態になっていることが分かる。

この過渡現象はプレシア流れで生じたネマティック的構造が、流動方向が変わることにより崩され、再配向する過程と考えられる。オーバシュートに要するひずみ量は明確な違いが見られず、本実験の場合概ね5ひずみ程度であり、この値は明暗の反転速度が高くほぼ一定の範囲と一致している。その後、応力は一旦大きなアンダーシュートを経て定常値に向かうが、そのあたりで、(b)では明暗の反転速度が下がり、10ひずみに1回程度になる。このようにマクロな力学的情報と分子の配向構造変

化は概ね対応することが明らかになった¹²⁾。

6. おわりに

本稿では、複雑流体の微小領域の流れの可視化に関して紹介した。微小領域の流れや内部構造自体の変化が問題となる流れ場では可視化は流れ場の情報のみならず、ミクロ的な構造に関する情報が得られ、有効な手段である。この方面でのますますの発展が期待される。

参考文献

- 1) Austin, R.H., Brody, J.P., Cox, E.C., Duke, T., Volkmuth, W.: Stretch Genes, PHYSICS TODAY, February (1997) pp.32-38.
- 2) 早川一郎, 佐々木直樹, 引地邦男: 伸張流動場における巨大DNA分子の応用とコイル・グロビュール転移, 日本レオロジー学会誌, Vol. 25, No. 1 (1997) pp. 7-12.
- 3) Kulicke, W., Rheinhardt, U., Fuller, G.G., Arendt, O.: Characterization of the flow properties of sodium carboxymethylcellulose via mechanical and optical techniques, Rheol. Acta Vol.38 (1999) pp.26-33.
- 4) 長谷川富市, 高野一男: 希薄高分子溶液の伸張流に関する研究 (第1報, オリフィスを通る流れに関する実験), 日本機械学会論文集 Vol. 45-No. 399 (1979) pp. 1656-1668.
- 5) Hasegawa, T.: Elastic property of the so called Newtonian fluids, FED-Vol.246/MD-Vol.81, Rheology and Fluid Mechanics of Nonlinear Materials-1998, ASME (1998) pp.37-40.
- 6) 船津和守, 梶原稔尚, 西村寛之: マッハ・ツェンダー光干渉法による粘弾性流体の流動性の決定, 日本レオロジー学会誌, Vol. 14 (1986) pp. 30-36.
- 7) チャンドラセカール: 液晶の物理学, 吉岡書店, 1995
- 8) 鳴海敬倫, 菅原圭一, 長谷川富市, 五十嵐隆治: 微小すきま内の液晶のER効果に対する液晶物性と壁面配向処理の影響, 日本レオロジー学会第27年会講演予稿集 (2000) pp. 113-114.
- 9) Narumi, T., Maeda, H., Hasegawa, T., Sakai, M.: Electrorheological Effect of Liquid Crystals in Narrow Gaps, Proc. JSME ICFE '97, Vol.1 (1997) pp.497-500.
- 10) Narumi, T., Yoshizawa, H., Hasegawa, T.: Rheological Characteristics of Liquid Crystals in Narrow Gaps under Electric Field, Proc. 8th Australian National Conference on Rheology (1998) pp.169-172.
- 11) 岩谷圭太郎, 鳴海敬倫, 長谷川富市: 微小ERデバイスを流れる液晶の画像解析による流量算定法の開発, 第49回レオロジー討論会講演要旨集 (2001) pp. 283-284.
- 12) 鳴海敬倫, 渡部純一, 長谷川富市: 流動方向が異なる再スタート流れにおける液晶高分子溶液の過渡挙動, 日本レオロジー学会第29年会講演予稿集 (2002) pp. 93-94.