Measurement of Thrusts and Estimation of Elastic Stresses of Liquids Passing Through Micro-Orifices

Akiomi USHIDA*, Tomiichi HASEGAWA**, Shouta KUDOU***, Masato KAWAMI****,
Hiroshige UCHIYAMA***, and Takatsune NARUMI**

*Venture Business Laboratory, Niigata University

**Faculty of Engineering, Niigata University

***Graduate School of Science and Technology, Niigata University

****Graduate School of Engineering, Tohoku University

Niigata University, 8050, Ikarashi-2, Nishi-ku, Niigata-shi, 950-2181, JAPAN

Jet thrusts of several kinds of liquids issuing through small orifices were measured and compared with the predictions from numerical simulations of the Navier-Stokes equations. Reasonable agreements for so-called Newtonian fluids were obtained between the experimental and predicted thrusts for capillaries and orifices with openings of the order of 100 μm size, but the experimental thrusts were found to be below the predictions for orifices of the order of 10 μm . It was suggested that water and glycerol solutions have an elastic property for elongational flows passing through small orifices. As to surfactant aqueous solutions, cationic surfactant(BC) and non-ionic surfactant(AE(23)) provided thrusts lower than those of water, but anionic surfactant(LAS) showed almost the same thrusts as water. Also, lower thrusts were measured for dilute polymer aqueous solutions of PEO(18). A mean elastic stress for the tested liquids was evaluated by using the measured thrusts, and discussion was made on the idea that flows near the wall are affected by an interaction between anions on the surface of orifice and charged molecules of surfactants.

Key Words: Jet thrusts / Micro-orifices / Water / Surfactant solutions / Elastic stress

マイクロオリフィスから流出する液体の推力測定と弾性応力の算定

牛田 晃臣*, 長谷川 富市**, 工藤 昇太***, 川見 真人****, 内山 広成***, 鳴海 敬倫**

(原稿受理: 2010年6月14日)

1. 緒 言

高分子溶液や界面活性剤溶液のような複雑性液体の力学的挙動を調べるためには、その液体のもつ粘弾性を知る必要がある。通常、粘弾性挙動の測定は、回転型レオメータにより行われるが、回転型レオメータは、粘弾性の強い液体の低せん断速度域においてのみ有効であり、これを高せん断速度で使用すると、二次流動、粘性発熱、自由界面の影響等により測定が困難となる。特に、希薄高分子溶液に代表される粘弾性の小さな流体では、回転型レオメータによる測定はほとんど不可能に近い。したがって、このような流体については回転型レオメータ以外のタイプの装置を用いなければならないが、現状では小型で操作が簡単な市販の装置は存在しない。

しかし、実験室レベルでは、微小な粘弾性を示す流体に対しても有効なジェット推力法(または、ジェット反力法。両者は基本的に同等である。)が考案されている。

液体の高ひずみ速度領域における粘弾性を測定するために細管より空中に流出するジェットの推力を最初に利用したのはHarris¹⁾である。その後、Oliverはこの方法により高分子水溶液や低分子の液体の法線応力を求めた。²⁾ また、Metznerらは、この方法をオリフィスを通る流れに適用し、やや濃度の高い高分子水溶液の伸張応力を求めた。³⁾ このように、ジェット推力法は、その有用性が示されてきたが、空中に流出するジェットの不安定、表面張力に対する補正、推力測定の技術的困難などの欠点を有していた。これらの欠点は、特に、ppmオーダーの希薄高分子水溶液など微弱な粘弾性を有する流体の弾性力を測定しようとする時に致命的となった。この欠点を克服するために、長谷川らは、水中に流出するジェットの反力を測定する方法を用いた。⁴⁻⁸⁾ この装置によって、相当程度希薄な高分子水溶液の第一法線応力や伸張応力を測定することが可能となったが、この装置は大がかりなものであり、一般に使用するには不向き

* 新潟大学 ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー

** 新潟大学 工学部

*** 新潟大学大学院 自然科学研究科

**** 東北大学大学院 工学研究科

〒950-2181 新潟県新潟市西区五十嵐2の町8050 番地

新潟大学 工学部 機械システム工学科 流体工学研究室

Tel: 025-262-6712, Email: akiomiushida@nagoya-u.jp / akiomiushida@gs.niigata-u.ac.jp

であった。そこで、より小型で汎用性のある装置の改良が行われた。^{9,10)}

本論文では、文献¹⁰⁾の装置を用い、水、グリセリン水溶液、各種界面活性剤、希薄高分子水溶液の推力を測定し、測定された推力を基に弾性応力を算定する。

2. 実験概要

2.1 試験流体

本研究では、蒸留水（以下、水と呼ぶ。）、グリセリン水溶液（濃度 50 wt%）、陽イオン系界面活性剤水溶液としての Benzalkonium Chloride（以下、BC）：濃度 1%、非イオン系界面活性剤水溶液としての Polyoxyethylene (23) Lauryl Ether（以下、AE(23)）：濃度 1%、陰イオン系界面活性剤水溶液としての Laurylbenzenesulfonic Acid Sodium Salt（以下、LAS）：濃度 1%、高分子水溶液としての Polyethylene Oxide(18)（以下、PEO(18)）：濃度 100 ppm の合計 6 種類の液体を用いた。Table. I(a)(b) に試験流体の各種物性値を示す。なお、本研究で用いた界面活性剤水溶液および高分子水溶液はニュートン粘性を示す。また、Table. I(b) の中の c.m.c は臨界ミセル濃度を表す。^{11,12)} 本実験で用いた界面活性剤水溶液はいずれも c.m.c 以上の値となっている。

2.2 マイクロオリフィス

本研究では、(株)シグマ光機社製の光学式ピンホールを使用した。Fig. 1(a)(b) に電子顕微鏡による拡大写真を示す。表面と裏面で異なる形状を有していることが分かる。実験においては流出方向を表から裏に統一した。なお、このマイクロオリフィスは、長谷川ら¹³⁾や牛田ら¹⁴⁾が圧力損失の測定で使用したものと同様の仕様となっている。

(a)

(b)

Fig. 1. Image of 50 μm orifice, (a)Front, (b)Back.

2.3 ジェット推力法

本研究では、Fig. 2(a) に示すようなジェット推力測定装置を用いた。¹⁰⁾ すなわち、試験流体は古江サイエンス社製シリンジ式ポンプ (JP-H1) により一定の流量で円筒流路（内径 25 mm）に輸送される。流路先端にはマイクロオリフィスが取り付けられており、試験流体はこれを介しジェットとして水槽中に設置したカップ内に流出され、カップは流出ジェットによる推力を受ける。カップはナイロン製の糸によって上部の電子天秤（AND 社製：GR-200）につながれており、これによりジェット推力が測定される。測定原理を Fig. 2(b) に示す。破線のように検査体積 (C.V.) を取り、ジェットの推力

Table I. Fluid properties, (a)water, glycerol 50 %, and PEO(18). (b)surfactant solutions.

Test liquid	Density ρ $10^3[\text{kg/m}^3]$	viscosity μ $10^{-3}[\text{Pa.s}]$
water	1.0	1.0
glycerol 50%	1.1	10.0
PEO(18) 0.01%	1.0	1.1

(a)

Test liquid	Density ρ $10^3[\text{kg/m}^3]$	viscosity μ $10^{-3}[\text{Pa.s}]$	Molecular Mass[M]	c.m.c[ppm]
BC 1%	1.0	1.0	354.0	400.0
AE(23) 1%	1.0	1.0	1199.5	100.0
LAS 1%	1.0	1.0	348.0	150.0

(b)

(a)

(b)

Fig. 2. Schematic of (a)apparatus for measuring jet thrusts, (b)jet thrust method.

を T_M , カップ上部から流出する運動量を T'_M すると, 運動量の法則により, カップ上部の電子天秤が検出する力 F_B は, 次式で表せる.

$$F_B = T_M + T'_M \quad (1)$$

ここにおいて, カップの内径は約 120 mm であり mm オーダー以下のオリフィス径と比較すると十分大きい. したがって, $T_M \gg T'_M$ であり, 式 (2) となる.

$$F_B = T_M \quad (2)$$

これより, 電子天秤が検出する力を T_M とすることが出来る. Fig. 3 に細管を用いた測定結果を示す. 細管直径は $D=0.75$ mm と $D=1.20$ mm であり, 試験流体は水と PEO(18) である. ここで, 縦軸は T_M を平均流出運動量 ρQV (Q は流量, V は平均流速) で除した無次元化ジェット推力 $T_M/\rho QV$, 横軸はレイノルズ数 Re ($=\rho DV/\mu$, ρ は密度, μ は粘度) である. この図から分かるように, $T_M/\rho QV$ は Re に対してほぼ一定であり, 水の場合は, ポアズイユ流れによる理論値 1.33 と一致し, PEO(18) の場合は, 粘弾性と思われる効果により大きく減少している. これにより, 本実験装置は正常に作動していると考えられる. なお, 長谷川らは, 細管を用いた実験により, 流出部とカップ底までの距離は実験結果に影響せず無次元化ジェット推力はレイノルズ数で整理できると報告している.¹⁰⁾ 本実験においては, オリフィスとカップ底までの距離を, 1.0~3.0 mm とした.

3. 実験結果

Fig. 4(a)~(d) に水とグリセリン水溶液のオリフィスによる結果を示す. なお, 比較のために, 長谷川らによって行われた数値計算の結果¹⁰⁾ (以下, 予測値と言う.) も併せて示す. ここに示すように, 水は, オリフィス 400 μm と 100 μm の場合は, 予測値とよく一致した (Fig. 4(a)). しかしながら, 50 μm 以下 (Fig. 4(b)~(d)) になると予測値から外れ減少していき, Fig. 4(d) から分かるように, 最大減少率は 30 % 程度となる. これは, 多孔質膜やスクリーンメッシュを用いて推力を測定した長谷川らの結果¹⁰⁾ と同じ傾向である. 一方,

Fig. 3. Dimensionless jet thrusts $T_M/\rho QV$ of capillary flows plotted against Reynolds number Re for water and 100 ppm PEO(18) solution.

グリセリン水溶液においては, 粘度が水の約 10 倍であるため, レイノルズ数が 1/10 程度となっているが, 水と同じように 400 μm と 100 μm では予測値と一致し (Fig. 4(a)), 50 μm 以下では予測値から外れる結果となっている (Fig. 4(b)~(d)). 次に, Fig. 5(a)~(e) に AE(23), BC, LAS, および, PEO(18) の結果を示す. AE(23) については, 400 μm と 100 μm において水と比べ 1 割程度の減少となり (Fig. 5(a)~(b)), オリフィス径が小さくなるにつれて, 水からの減少幅はやや大きくなっ

Fig. 4. $T_M/\rho QV$ of orifice flows plotted against Re for water and glycerol solution. Orifice diameters: (a) 400 μm and 100 μm , (b) 50 μm , (c) 25 μm , (d) 20 μm , and (e) 15 μm .

Fig. 5. $T_M/\rho QV$ of orifice flows plotted against Re for surfactant solutions and PEO(18) solution. Orifice diameters: (a)400 μm and 100 μm , (b)50 μm , (c)25 μm , (d)20 μm , and (e)15 μm .

ていく (Fig. 5(c)~(e)). BC においては, 減少の程度がさらに顕著になっている (Fig. 5(a)~(e)). LAS については, 水とほぼ同じ結果である (Fig. 5(a)~(e)). このように界面活性剤の種類によって T_M に差が生じるが, これについては後に考察を行う. また, PEO(18) は使用したオリフィス全体で水より大幅な減少をしている (Fig. 5(a)~(e)). PEO(18) は, 従来の研究によって伸張流による粘弾性を示すことが分かっており^{15,16}, その効果によって推力が減少したのと考えられる. 一方, 本実験で用いたオリフィスは表と裏で異なる形状を有しており, 実験においては表から裏を流出方向としたが, この形状の違いによってどのような変化が起きるかの検証を行った. Fig. 6 にオリフィス径 15 μm を用いた検証結果を示す. これによれば, 流出方向の違いによる差はほとんど見られず, Fig. 1 でみるようなオリフィス形状の違いは推力に大きな影響を及ぼさないことがわかる.

4. 平均弾性応力の算定

(a) 水とグリセリン水溶液

長谷川らは, ジェット推力・反力^{9,10}や圧力損失¹³の研究において, 高ひずみ速度域において, ニュートン流体とされている水でさえも弾性が発現する可能性があるとして報告している. 本研究においても, この考えに則って, 50 μm と 15 μm の実験結果から水とグリセリン水溶液の平均弾性応力を算出した. 本実験における平均弾性応力 ES は, 式 (3) のように表される.⁹⁾

$$ES = \frac{4(T_N - T_M)}{\pi D^2} \quad (3)$$

ここで, T_N と T_M は, それぞれ, 推力の数値計算による予測値と実験値を表す. その結果を Fig. 7 に縦軸を ES , 横軸を V として示す. 比較のために, 多孔質膜などの推力を基に算定された ES と圧力損失のデータを基に長谷川らによって提案された方法¹³)によって求めた ES を併せて示す. 多少のばらつきはあるが, 本研究で得られた ES は過去の研究で得られたものとおおむね一致している. また, グリセリン水溶液においても, 水と同様の傾向が得られ, ES は V で整理できることが分かる. また, この図から ES の全体は傾き 2.1 の

Fig. 6. Influence of flow direction on jet thrusts by 15 μm orifice.

直線ではほぼ近似できることが見てとれる。¹⁰⁾ このことにより、本来ニュートン流体とされている液体にも弾性が発現する可能性が本研究においても示唆された。

(b) 界面活性剤水溶液、高分子水溶液

まず、従来、比較的良好に研究されてきた PEO(18) の弾性応力について検討する。Fig. 8 は、PEO(18) 水溶液の ES' を V に対して示す。ここでは、水を基準とした場合の ES として次の式 (4) によって与えられる ES' を算出する。

$$ES' = \frac{4(T_M|_{\text{water}} - T_M|_{\text{PEO(18)}})}{\pi D^2} \quad (4)$$

Fig. 7. Mean elastic stress ES vs. mean velocity V for water and glycerol.

Fig. 8. ES' vs. V for surfactant solutions.

また、この図には、長谷川らによって以前に求められた PEO(18)100 ppm 水溶液の ES' ⁹⁾ も含まれている。この図によれば、オリフィス径によらず ES' は V で整理でき、また、オリフィスで求めた ES' と細管により求めた ES' との間に大きな差がないことが分かる。伸張流動の 1 つであるオリフィスとせん断流動の 1 つである細管の ES' に差がないことは、以前の報告⁹⁾ と一致している。しかし、以前の報告⁹⁾ では粘弾性のかかなり大きい CTAB/NaSal 水溶液について細管とオリフィス流れの ES' がほぼ等しいことを述べていた。ここでは、粘弾性のより小さい PEO(18)100 ppm 水溶液でも同様のことが示されている。次に、本研究で使用した界面活性剤について、Fig. 5(c)-(e) で見たように、陰イオン系の LAS はほとんど水と同じ推力を示すが、陽イオン系の BC と非イオン系の AE(23) は水より低い推力を示す。界面活性剤水溶液においても推力は ES' によって水と比べ減少したと考え、PEO(18) と同様に次の式 (5) で与えられる ES' を算出した。

$$ES' = \frac{4(T_M|_{\text{water}} - T_M|_{\text{AE(23),BC}})}{\pi D^2} \quad (5)$$

この結果を、Fig. 9 に示す。これによると、 V が同じであれば、BC の方が AE(23) よりも約 2 倍の ES' の値をとる。この原因については、次節で考察する。

5. 考 察

前節では、高分子水溶液と界面活性剤水溶液の両者について ES' が求められた。ここに高分子水溶液の ES' は流動場中の高分子鎖の伸びにより生じることは従来の研究から容易に推察される。しかしながら、PEO(18) に比べるとかなり低分子である界面活性剤が PEO(18) と同様の機構により ES' を生じることは考えにくい。そこで、ここでは、流動場における界面活性剤分子と壁面との相互作用により ES' が生じると考え以下に考察を行う。牛田らはオリフィスを用いた遅い流れにおいて、壁面近傍の液体が壁面との電氣的相互作用により固体のように振舞う可能性を述べている。¹⁴⁾ しかし、

Fig. 9. ES' vs. V for PEO(18) solution.

この報告におけるレイノルズ数は本研究が対象としているレイノルズ数よりかなり低いために同様の考えを本研究に適用することは妥当でないと思われる。また、ES'増加 (T_M 減少) の要因については、粘性発熱による粘度変化や壁面スリップ、オリフィスの変形などが考えられるが、Pearson ら¹⁷⁾ や長谷川ら¹³⁾ は、これらの現象は流動に大きく影響しないことを報告している。したがって、ここでは、電気的相互作用という点では牛田ら¹⁴⁾ と共通であるが、やや異なる考えに基づき考察を行う。水中にある固体表面は一般に水に対して負に帯電しており、本実験で用いたニッケル製オリフィスも例外ではない。^{18,19)} この負電荷に誘引されて表面近傍の水や水溶液は正電荷過多の状態になっており、この現象は電気二重層として広く知られている。本研究で見られた推力減少効果についても界面活性剤の陽イオン性、陰イオン性、非イオン性によって減少効果の度合いが異なるので、電気二重層の寄与が考えられる。しかしながら、電気二重層はその厚さが大きく見積もっても $1\ \mu\text{m}$ 程度であり¹⁸⁾、これを本研究で得られた推力減少効果にそのまま適用することは無理である。したがって、現在の表面科学の常識からやや外れるが、電気二重層と類似の考えで推力減少効果に対する考察を以下に行うこととする。水ないし水溶液に接する壁（今後は壁を固体表面と同じ意味で用いる）とその近傍の水の状態を模式的に表すと、Fig. 10(a)~(d) のようになる。水の場合 (Fig. 10(a))、壁の負電荷に対応して、壁近傍の水中には H^+ が集まる。一方、陽イオン性の BC 水溶液の場合 (Fig. 10(b))、 H^+ の他に BC^+ も壁近くに集まり、ここでの BC^+ 濃度は、壁から離れた場所における溶液（バルク）中の BC^+ よりも高くなる。また、中性の AE(23) 水溶液の場合 (Fig. 10(c))、壁近傍には H^+ の他に AE(23) 分子が存在する

が、AE(23) 分子は非イオン性のため壁の負電荷の影響を受けない。したがって、ここでの AE(23) 分子濃度はバルクの AE(23) 分子濃度と同じ程度である。さらに、陰イオン性の LAS 水溶液の場合 (Fig. 10(d))、 LAS^- は、壁の負電荷による反発力のために壁から遠方に排除され、壁近傍の液中 LAS^- 濃度は、バルク中の LAS^- 濃度よりも低くなる。このように、壁近傍の界面活性剤分子の濃度を比べると、 $\text{LAS}^- < \text{AE}(23) < \text{BC}$ の順になると考えられる。一方で、液体が流れている場合、ひずみ速度は壁面で最大である（壁近傍の境界層内速度分布を線形と仮定すれば、壁面と壁近傍におけるひずみ速度は一定で、その値は境界層外のひずみ速度よりも大きく、最大値となる。Fig. 10(a)~(e) に速度分布を概念的に示す。v は壁からの距離 y における速度である。）。したがって、ひずみ速度が最大となる壁近傍に水分子よりも大きい AE(23) や BC の界面活性剤分子またはそのミセルが複数存在する（その場合、回転楕円体状に変形したミセルや棒状の分子がその長軸を流れに平行にして並んで存在すると考えることが自然である）ことになる。ここで、PEO(18) は孔内の流動場全体にわたって高分子鎖が伸びているために弾性が生じると考えられる。しかし、界面活性剤はミセルを形成しても球形であり、また、分子単体もそれほど縦横比は大きくないため、せん断流中で分子またはミセルが変形によって楕円体か棒状分子とみなせる状態で存在していると考えられる。そして、この状態において弾性が発現することは過去のいくつかの論文で述べられている。²⁰⁻²²⁾

以上の考察によって、界面活性剤水溶液では、壁近傍の分子濃度 $\text{LAS}^- < \text{AE}(23) < \text{BC}$ の順にしたがって弾性応力は大きくなる（推力は減少する）ことになる。実際、このことは実験結果 (Fig. 5(a)~(e)) と定性的に一致する。

Fig. 10. Conceptual figure of phenomenon for (a) water, (b) BC solution, (c) AE(23) solution, and (d) LAS solution. This figure contains an assumed linear velocity profile near the wall. v is the local velocity at the distance y from the wall.

6. 結 言

本研究においては, オリフィス径 $400\ \mu\text{m}$ ~ $15\ \mu\text{m}$ のマイクロオリフィスおよび直径 $1\ \text{mm}$ 程度の細管を通過する種々の液体のジェット推力の測定を行い, 以下の結果を得た.

1. 水とグリセリン水溶液について, 直径 $100\ \mu\text{m}$ 以上のオリフィスによる推力は, 数値計算による予測値と一致したが, 直径 $50\ \mu\text{m}$ 以下のオリフィスでは予測値から外れ, オリフィス径が小さくなるにつれ, 予測値との減少幅が大きくなった. この現象は, 高ひずみ速度領域において, ニュートン流体とされている水やグリセリン水溶液にも弾性が発現する可能性を示唆するものである.
2. 高分子の PEO(18) 水溶液は, 粘弾性の効果によると思われる推力の大幅な減少を示した.
3. オリフィス流れと細管流れにおける平均弾性応力を PEO(18) 水溶液について算定し, これらは平均流速で整理でき, また, 両者はおおむね同じ値をとることを示した.
4. 界面活性剤水溶液の推力については, 陽イオン系の BC 水溶液が水と比べ最も小さく, 非イオン系の AE(23) 水溶液が次に小さな値を取り, 陰イオン系の LAS 水溶液は水とほとんど同じ値を示した. このような推力減少について, 固液界面における電荷と界面活性剤分子との相互作用に基づく考察を行った.

7. 謝 辞

本研究を進めるにあたり, 実験装置の作製に協力いただいた新潟大学 技術職員 萱場龍一氏, 数値計算・実験にご協力いただいた新潟大学 流体工学研究室 高橋尚幸氏に深く感謝致します.

REFERENCES

- 1) Harris J, *Nature*, **190**, 993, (1961).
- 2) Oliver DR, *Canadian J Chem Eng*, **44**, 100, (1966).
- 3) Metzner AB, Metzner AP, *Rheol Acta*, **9**, 174, (1970).
- 4) Hasegawa T, *Bull Jpn Soc Mech Eng*, **22(163)**, 54, (1979).
- 5) Hasegawa T, Iwaida T, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **15**, 257, (1984).
- 6) Hasegawa T, Takano T, Yamada T, Narumi T, *Proc. of IX Int. Congress on Rheology*, 175, (1984).
- 7) Hasegawa T, Fukutomi F, Narumi T, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **27**, 133, (1988).
- 8) Hasegawa T, Nakamura H, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **38**, 159, (1991).
- 9) Hasegawa T, Asama H, Narumi T, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **31(4)**, 243, (2003).
- 10) Hasegawa T, Watanabe H, Sato T, Watanabe T, Takahashi M, Narumi T, Carlos T, *Phys Fluids*, **19**, 053102, (2007).
- 11) Karasawa M, Hasegawa T, and Narumi T, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **35(5)**, 265, (2007).
- 12) Amaki K, Hasegawa T, Narumi T, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **36(3)**, 125, (2008).
- 13) Hasegawa T, Ushida A, Narumi T, *Phys Fluids*, **21**, 052002, (2009).
- 14) Ushida A, Hasegawa T, Narumi T, Kudou S, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **38(1)**, 1, (2010).
- 15) Park S W, Choi B S, Lee W, *Korean-Australian Rheol J*, **17(4)**, 199, (2005).
- 16) Walter R, Walkenhorst R, Smith M, Selser JC, Piet G, Bogoslovov R, *J Power Soueces*, **89**, 168, (2000).
- 17) Pearson J RA, *Polym Eng Sci*, **18**, 222, (1978).
- 18) Li D, “*Electrokinetics in Microfluidics*”, Elsevier, 17, (2004).
- 19) Ushida A, Hasegawa T, Narumi T, Kudou S, *Proc. of 4th International Symposium on Advanced Fluid/Solid Science and Technology in Experimental Mechanics*, F-II-1, CD-ROM edition, (2009).
- 20) Batchelor GK, *J Fluid Mech*, **46(4)**, 813, (1971).
- 21) Ryskin G, *J Fluid Mech*, **178**, 423, (1987).
- 22) Hasegawa T, Narumi T, *JSME-B*, **57(534)**, 464, (1991).