Award Lecture Article

Anomalous Phenomena of Complex Fluids
in Small-Sized Flow Fields and Effect of Fine Bubble MixturesAkiomi USHIDA[†]Faculty of Engineering, Niigata University
8050-2 Ikarashi, Nishi-ku, Niigata-shi, Niigata, 950-2181

Micro fluid mechanics, which deal with relative small-sized flow field, is very attractive and interesting study for many applications. We investigated flow properties of several types of complex fluids passing through small apertures and capillaries. Pressure drops were measured with constant flow rates due to observe flow properties of water, polymer solutions, surfactant solutions, and their fine bubble mixtures. For flows through small-sized apertures with ranges from 5 μm to 1.0 mm, agreement between the experimental results of water and the numerical predictions of the Navier-Stokes equation was obtained in more than 100 μm . However, the resultant pressure drops for less than 100 μm did not agree with the predicted ones. The results for glycerol and silicone oils suggested the same tendency. Furthermore, the possibility of elastic properties of water flows in high strain rates was explained because of discussing the anomalous phenomena. For spherical micelle surfactant solutions, the pressure drops were dependent of the electric charges (cationic, non-ionic, and anionic). For rod-like micelle surfactant solutions, the experimental values were increased at any Reynolds number which was approximately 10^2 order. For capillary flows of 133 μm and 430 μm , pseudo-laminarization of rod-like micelle surfactant solutions was observed, which maintained the laminar flows in the transition regions. Moreover, relationship between the phenomena and their non-Newtonian viscosities was discussed. For fine bubble (FB) mixtures, the pressure drops were measured with constant flow rates by using relative small-sized orifices. Agreement polymer solutions and their FB mixtures was not obtained. Additionally, elastic properties were measured by using jet thrust method due to discuss the relationship between the flow properties and their elastic properties.

Key Words: Micro-aperture / Water / Complex fluid / Fine bubble / Flow property

複雑流体の微小サイズの流れ場における
特異挙動と微細気泡混合効果牛田 晃臣[†]

(原稿受理: 2016 年 10 月 4 日)

1. はじめに

近年、微細加工 (MEMS) 技術の発展に伴い、微小サイズの流れ場の高精度加工が可能となっている。¹⁻³⁾このようなサイズの流れ場を扱う分野は、“マイクロ流体工学”などと呼ばれ、流体力学分野において、注目を集める分野の1つとなっている。これまで、筆者らは、水、および、複雑流体 (界面活性剤水溶液、高分子水溶液) の微小サイズの流れ場 (特に、代表長さ 1.0 mm 以下の流れ場) における流動特性の評価、および、微細気泡混合の効果について、主として、実験的な検討を行ってきた。本稿では、これまでに得られた知見の一部について報告する。なお、詳細については、筆者らの参考文献を参照されたい。

2. 微小孔を通過する流れ

代表長さ 100 μm 以下の微小孔を用いた実験において、水の実験結果が Navier-Stokes 方程式による予測値と一致しないことが報告されている。^{4,6)}しかし、それらの実験結果は、系統的に整理できているとは言い難く、そのため、これらの実験結果に対して、理論的根拠を得ることも難しい状況であった。よって、特徴的な流体を用いて、実験データを取得し、多面的に考察することが有効な手段と考えられる。ここでは、シンプルな実験系 (Fig. 1(a)), および、内径 $D = 5 \mu\text{m} \sim 1.0 \text{ mm}$ の微小孔を使用して、水、高分子水溶液、および、界面活性剤水溶液を用いた実験結果を報告する。なお、Fig. 1(b), (c) に示すように、微小孔 (PA, Sigma Koki Co Ltd, Japan) は表面と裏面で異なる形状をしているが、一連の実験において、この形状の違いが流動特性に影響しないことは確認している。

[†] 新潟大学工学部〒950-2181 新潟県新潟市西区五十嵐2の町8050 番地
Tel/Fax: 025-262-7009, E-mail: ushida@eng.niigata-u.ac.jp

2.1 水

水（脱イオン水, GSR-200, ADVANTEC Co Ltd, Japan）を用いた実験結果の一例を Fig. 2(a), (b) に示す。Fig. 1(a) に示すように、シリンジポンプ (JP-H1, Furue Science Co Ltd, Japan) による一定の流量 Q での流動下における圧力損失 Δp の測定 (SPX-D, SDP-12, Tsukasa Sokken Co Ltd, Japan) を行った。縦軸に無次元化圧力損失 K_t (eq. (1)), 横軸にレイノルズ数 Re (eq. (2)) で整理している。

$$K_t = \frac{2\Delta p}{\rho V^2} \quad (1)$$

$$Re = \frac{\rho V D}{\mu} \quad (2)$$

Fig. 1. (a) Schema of the experimental apparatus for measuring pressure drops with constant flow rates and image of micro-orifices for (b) frontward and (c) backward.

ここで、 ρ は密度 ($= 1.0 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$), μ は粘度 ($= 1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$) であり、実験時の温度で補正を行った。また、 D は内径、 V は微小孔通過時の平均流速 (eq. (3)) である。

$$V = \frac{4Q}{\pi D^2} \quad (3)$$

Fig. 2(a) に示すように、 $D = 100 \mu\text{m}$ (厚さ $L = 20 \mu\text{m}$) 以上の実験結果と予測値 (Navier-Stokes 方程式を用いた数値解析による定常解) は一致した。しかしながら、 $D = 50 \mu\text{m}$ 以下の場合、予測値よりも大幅に下回る値となった。⁷⁾特に、Fig. 2(b) に示すように、 $D = 15 \mu\text{m}$ ($L = 20 \mu\text{m}$) の場合、 K_t が最大で 2 桁程度減少した。また、Fig. 3 に示すように、水の粘度の 10 倍の粘度 ($\mu = 1.0 \times 10^{-2} \text{ Pa}\cdot\text{s}$) の 50 wt% のグリセリン水溶液 (075-00611, Wako Pure Chemical Industries Co Ltd, Japan), シリコンオイル (KF-96, Shin-Etsu Chemical Co Ltd, Japan) においても同様の結果を確認することができた。⁸⁾ 上記の実験結果につい

Fig. 2. Experimental results for plotting dimensionless pressure drops, K_t , against Reynolds number, Re , of water flow of (a) $D = 100 \mu\text{m}$ and (b) $D = 15 \mu\text{m}$.

て、漏れ、粘性発熱、圧縮性、壁面すべりの影響などを検討したが、実験結果を説明することはできなかった。本実験結果を考察するに当たり、高分子水溶液 PEO(Polyethylene Oxide 18, Sumitomo Seika Chemicals Co Ltd, Japan) 1000 ppm の挙動と類似していることから、弾性の点から考察を加える。そのため、ジェット推力法による推力の測定を行った。実験結果の一例を Fig. 4(a), (b) に示す。縦軸に無次元化ジェット推力 S (eq. (4)), 横軸に Re で整理している。

$$S = \frac{T_m}{\rho Q V} \quad (4)$$

比較のために、予測値を示す。 $D = 100 \mu\text{m}$ の場合、実験結果と予測値は一致したが、 $D = 25 \mu\text{m}$ の場合、実験結果は、予測値よりも減少した。^{9,10} また、本手法は、希薄高分子水溶液の弾性測定に使用され、推力の減少分が弾性力に相当すると報告されており¹¹、本実験結果は、水の弾性的性質が要因である可能性を示唆するものである。¹²

2.2 界面活性剤水溶液

水の実験結果を踏まえ、同様の実験装置 (Fig. 1) を使用して、種々の界面活性剤水溶液を用いた実験を行った。まず、濃度 1.0 wt% の球状ミセル界面活性剤水溶液を用いた実験結果の一例を Fig. 5(a), (b) に示す。非イオン系界面活性剤水溶液 Polyoxyethylene (23) Lauryl Ether (Wako Pure Chemical Industries Co Ltd, Japan) を AE、陽イオン系界面活性剤水溶液 Benzalkonium Chloride (MP Bio Japan KK Co Ltd, Japan) を BC、陰イオン系界面活性剤水溶液 Laurylbenzenesulfonic Acid Sodium Salt (Lacalai Tesque Co Ltd, Japan) を LAS、Sodium Dodecyl Sulfate (Wako Pure Chemical Industries Co Ltd, Japan) を SDS と表記する。LAS と SDS は、水との結果とほぼ同じ値を示し、BC は、圧力損失が減少した。一方、AE は、あるレイノルズ数において、圧力損失が急上昇した。このように、極性により、異なる流動特性を示した。^{8,13} 次に、棒状ミセル界面活性剤水溶液を用いた実験結果の一例を Fig. 6(a) に、縦軸は

K_r , 横軸は一般化レイノルズ数 Re^* (eq. (5)) で整理した無次元化グラフ, Fig. 6(b) に縦軸に Δp , 横軸にみかけのひずみ速度 SR_{app} (eq. (6)) で整理した流動曲線として示す。

$$Re^* = \frac{\rho V^{2-n} D^n}{m \left(\frac{3n+1}{4n} \right)^{n-1} 8^{n-1}} \quad (5)$$

$$SR_{app} = \frac{V}{D} \quad (6)$$

また、試験流体には、陽イオン系界面活性剤水溶液 (Arquad C-50, Lion Akuzo Co Ltd, Japan) に対しイオンとしてサリチル酸ナトリウム (NaSal, Wako Pure Chemical Industries Co Ltd, Japan) を混合した棒状ミセル界面活性剤水溶液を使用した。なお、 ϕ は、モル濃度比 (eq. (7)) である。

$$\phi = \frac{C_n}{C_a} \quad (7)$$

Fig. 4. Dimensionless jet thrust, S , as a function of Re for (a) $D = 100 \mu\text{m}$ and (b) $D = 25 \mu\text{m}$.

Fig. 3. Experimental results for glycerol and silicone oils for $D = 10 \mu\text{m}$.

ここで、 C_n は対イオン水溶液のモル濃度、 C_a は界面活性剤水溶液のモル濃度であり、 $C_a = 0.10 \text{ mol/L}$ とした。これを見ると、 $\phi = 1.0$ の場合のみ、圧力損失が急上昇している。¹⁴⁾ なお、任意のレイノルズ数において、水の実験結果に漸近していることも確認できた。このレイノルズ数を Re_w とした場合、 $Re_w = 10^2$ のオーダーであることを確認することができた。この結果を考察するため、代表長さ $74 \mu\text{m}$ のスロット流路を用いた可視化実験を行った。可視化のため、試験流体の一部を青色染料 (FCF, Wako Pure Chemical Industries Co Ltd, Japan) で着色している。Fig. 7(a) に示すように、 $\phi = 1.0$ の場合、スロット上流部で不安定流動が発生しており、圧力損失が上昇したと考えられる。なお、水と同じ流動特性を示した $\phi = 10.0$ の場合は不安定渦は、確認できなかった (Fig. 7(b))。

3. 微小管内流れ

管内流れは、様々な工業分野における流体輸送に使用されており、流動における摩擦損失を検討することは非常に重要である。そのため、流体輸送に関する研究の中には、高分子水溶液や界面活性剤水溶液による乱流抵抗低減に着目した研究が報告されている。¹⁵⁻¹⁷⁾ しかしながら、応用の点から、比較的大きな内径が使用されており、内径 1.0 mm 以下の微小管内流れについての知見が十分とは言い難い。そこで、内径 $D = 133 \mu\text{m}$ 、および、 $430 \mu\text{m}$ を用いた微小管内流れにおける界面活性剤水溶液の摩擦損失測定を行った。なお、従来の多く研究では、溶媒に対する効果を検討するため、レイノルズ数の算定には、溶媒の粘度を使用している。¹⁸⁾ 一方、本研究が対象とする微小管の場合、代表長さが小さくなるため、注目すべきレイノルズ数域は、層流域から遷移域となる。そのため、従来の研究とは異なり、Serizawa らに

(a)

(a)

(b)

(b)

Fig. 5. Experimental results of spherical micelle surfactant solutions for (a) $D = 100 \mu\text{m}$ and (b) $D = 15 \mu\text{m}$.

Fig. 6. Flow properties of rod-like micelle surfactant solutions for (a) K_f versus Re and generalized Reynolds number, Re^* , and (b) pressure drops, Δp , plotted against apparent strain rates, SR_{app} .

より報告されている層流状態の維持（擬層流化現象）¹⁹⁾について検討した。試験流体には、陽イオン系界面活性剤水溶液（Ethoquad O/12, Lion Akuzo Co Ltd, Japan）に対しイオンとしてNaSalを混合した棒状ミセル界面活性剤水溶液を使用した。なお、前述と同様に、 φ は、モル濃度比（eq. (8)）を表し、 $C_e = 1.2 \times 10^{-2}$ mol/L, $\varphi = 1.5$ とした。

$$\varphi = \frac{C_n}{C_e} \quad (8)$$

実験結果を Fig. 8(a) に示す。縦軸に管摩擦係数 λ （eq. (9)）、横軸にレイノルズ数 Re 、および、一般化レイノルズ数 Re^* で整理している。

$$\lambda = \frac{2\Delta p}{\rho V^2} \cdot \frac{D}{L} \quad (9)$$

比較のために、層流の理論式（eq. (10)）、および、Blasiusの実験式（eq. (11)）を実線と破線で示す。

$$\lambda = \frac{64}{Re} \quad (10)$$

$$\lambda = 0.3164 \cdot Re^{-0.25} \quad (11)$$

水の実験結果は、層流域では理論式と一致し、乱流域では実験式と一致している。また、臨界レイノルズ数 Re_c は $Re_c = 2.2 \times 10^3$ 程度となった。次に、棒状ミセル界面活性

剤水溶液の場合、 $D = 430 \mu\text{m}$ において、 $Re_c = 4.0 \times 10^3$ となった。同様に、 $D = 133 \mu\text{m}$ の場合、 $Re_c = 3.1 \times 10^3$ となった。次に、実験結果を考察する。本実験で使用した微小管（ $D = 430 \mu\text{m}$ 、および、 $133 \mu\text{m}$ ）では、擬層流化現象が終わる（遷移が開始する）レイノルズ数に違いがあることが分かる。 $D = 430 \mu\text{m}$ の場合、遷移が始まるレイノルズ数に対応する壁面せん断速度 SR_w は、 $SR_w = 2.0 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ 程度であり、 $D = 2.87 \text{ mm} \sim 133 \mu\text{m}$ の微小管を用いた細管粘度計により測定した粘度曲線では、水の粘度に漸近する SR_w とほぼ一致している（Fig. 8(b)）。すなわち、 $D = 430 \mu\text{m}$ の場合、非ニュートン粘性を示す壁面せん断速度範囲で擬層流化現象が発現し、水の粘度に漸近するせん断速度域で遷移が始まると考えられる。²⁰⁾

Fig. 7. Observation of the inlet regions of micro-slot channel for (a) unstable flows (molar concentration ratio, $\varphi = 1.0$) and (b) stable flows ($\varphi = 10.0$).

Fig. 8. (a) Frictional coefficient of pipe, λ , as a function of Re and Re^* for rod-like micelle surfactant solutions in capillary flows ($D = 133 \mu\text{m}$ and $D = 430 \mu\text{m}$) and (b) shear viscosity, μ , versus shear rate on wall, SR_w , by using capillary viscosity meter.

4. 微細気泡混合効果

前述の通り、微小サイズの流れ場において、水、および、複雑流体の流動挙動を確認することができた。一方、ファインバブル（マイクロバブル）やウルトラファインバブル（ナノバブル）と呼ばれる微細気泡が注目を集めており、液体中での高い安定性、比表面積の増大、液体中での電気的性質などの物理化学的に興味深い報告がされている。²¹⁾ しながら、従来の研究の多くは、水への混合を対象としており、複雑流体への混合を検討した例は少ない。そこで、高分子水溶液 PEG(Polyethylene Glycol, Sumitomo Seika Chemicals Co Ltd, Japan) 1000 ppm へのファインバブル混合の効果を検討した。ファインバブル (FB) として、市販の発生装置 (OM1-C200, Aura Tech Co Ltd, Japan) を用いて発生させた平均粒径 20 μm の気泡（体積分率 1.0 vol%）を使用した。なお、PEG はニュートン粘性を示し、水と同じ粘度 ($\mu = 1.0 \times 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$) である。

実験結果の一例を Fig. 9(a) に示す。PEG の K_t は、水の結果よりも低い値を示した。これは、従来の研究と同様に、PEG の弾性により減少したと考えられる。¹¹⁾ 次に、FB を混合した PEG(FB/PEG) の場合は、水の結果よりも低くなった。しかしながら、FB/PEG の K_t は、PEG のみの場合より、約 2 倍高い値となった。本実験結果を FB 混合による弾性変化の点で考察を行い、ジェット推力法により、弾性を算定した。算定結果を Fig. 9(b) に示す。縦軸に弾性応力 ES (eq. (10)), 横軸に平均流速 V で整理している。

$$ES = \frac{4(T_{pre} - T_m)}{\pi D^2} \quad (12)$$

FB/PEG の ES は、PEG のみの ES よりも、約 2 倍高くなり、圧力損失の変化と弾性の変化が対応することが確認できた。^{22,23)}

5. おわりに

微小孔、および、微小管を用いて、微小サイズの流れ場における種々の複雑流体の流動特性、および、微細気泡混合効果を実験的に検討し、微小サイズの流れ場を対象とする多くの分野に波及する可能性のある知見を提供することができた。しかしながら、現時点においても詳細なメカニズムの解明には至っておらず、今後も深く検討を進めていきたい。また、本稿では言及していないが、関連研究として、微小孔を通過する複雑流体の低レイノルズ数域における特異流動性^{24,25)}、多孔質膜を通過する複雑流体の流動特性²⁶⁾、洗浄時の機械的作用とファインバブル混合液の相乗効果の検討^{27,28)} などがある。これらについても参照されたい。

謝 辞

この度は、日本レオロジー学会 奨励賞と言う名誉ある賞を賜り、大変光栄に存じます。これまで以上に、日本レオロジー学会に貢献できるように一層努力する所存です。また、本研究を行うに当たり、学生時代からご指導頂いた新潟大学 長谷川富市名誉教授（現 新潟工業短期大学・学長）、新潟大学 鳴海敬倫教授に厚く感謝申し上げます。さらに、実験装置作製の際に多大なご協力頂いた新潟大学 技術専門職員 萱場龍一氏、関連する研究課題に関わった学生諸氏に深く感謝致します。

REFERENCES

- 1) Ho CM, Tai YC, *Annu Rev Fluid Mech*, **30**, 579 (1998).
- 2) Karniadakis GEM, Beskok A, Gad-el-Hak M, *ASME Appl Mech Rev*, **55**, B76 (2002).
- 3) Zhou H, Cai G, He B, *Appl Therm Eng*, **109**, 217 (2016).
- 4) Hasegawa T, Suganuma M, Watanabe H, *Phys Fluids*, **9**, 1 (1997).
- 5) Kusmanto F, Jacobsen EL, Finlayson BA, *Phys Fluids*, **16**, 4129 (2004).
- 6) Hasegawa T, Watanabe H, Sato T, Watanabe T, Takahashi M, Narumi T, Tiu C, *Phys Fluids*, **19**, 053102 (2007).

Fig. 9. (a) K_t plotted against Re for polymer solutions and their fine bubble mixtures and (b) elastic stress, ES , as a function of mean velocity, V , due to discuss the flow properties.

- 7) Hasegawa T, Ushida A, Narumi T, *Phys Fluids*, **21**, 052002 (2009).
- 8) Ushida A, Hasegawa T, Narumi T, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **165**, 1516 (2010).
- 9) Ushida A, Hasegawa T, Hoshina T, Kudou S, Uchiyama H, Narumi T, *ASME J Fluids Eng*, **134**, 081201 (2012).
- 10) Ushida A, Hasegawa T, Narumi T, *Microfluid Nanofluid*, **17**, 863 (2014).
- 11) Hasegawa T, Asama H, Narumi T, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **31**, 243 (2003).
- 12) Hasegawa T, Ushida A, Narumi T, *Phys Fluids*, **27**, 122001 (2015).
- 13) Ushida A, Hasegawa T, Kudou S, Kawami M, Uchiyama H, Narumi T, *J Fluid Sci Technol*, **6**, 802 (2011).
- 14) Ushida A, Murao S, Hasegawa T, Narumi T, Amaki K, *Exp Therm Fluid Sci*, **70**, 69 (2016).
- 15) Ohlendorf D, Interthal W, Hoffmann H, *Rheol Acta*, **25**, 468 (1986).
- 16) Sirovich L, Karlsson S, *Nature*, **388**, 753 (1997).
- 17) White CM, Mungal MG, *Annu Rev Fluid Mech*, **40**, 235 (2008).
- 18) Drappier J, Divoux T, Amarouchene Y, Bertrand F, Rodts S, Cadot O, Meunier J, Bonn D, *EPL*, **74**, 362 (2006).
- 19) Serizawa A, Inui T, Yahiro T, Kawara Z, *Multiph Sci Technol*, **17**, 79 (2005).
- 20) Ushida A, Ichijo A, Sato T, Hasegawa T, Narumi T, *Acta Mech*, **227**, 2061 (2016).
- 21) Terasaka K, Hirabayashi A, Nishino T, Fujioka S, Kobayashi D, *Chem Eng Sci*, **66**, 3172 (2011).
- 22) Ushida A, Hasegawa T, Kawami M, Uchiyama H, Narumi T, Kayaba R, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **40**, 61 (2012).
- 23) Ushida A, Hasegawa T, Narumi T, Nakajima T, *Int J Heat Fluid Flow*, **40**, 106 (2013).
- 24) Ushida A, Hasegawa T, Narumi T, *Exp Therm Fluid Sci*, **52**, 191 (2014).
- 25) Hasegawa T, Ushida A, Narumi T, Goda M, *Phys Fluids*, **28**, 092005 (2016).
- 26) Ushida A, Hasegawa T, Sato T, Narumi T, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **44**, 119 (2016).
- 27) Ushida A, Hasegawa T, Takahashi N, Nakajima T, Murao S, Narumi T, Uchiyama H, *J Surfactants Deterg*, **15**, 695 (2012).
- 28) Ushida A, Hasegawa T, Amaki K, Narumi T, *Tenside Surfactants Deterg*, **50**, 332 (2013).