

粘弾性流体の複雑挙動解明に向けた時系列応力分布計測法の開発

慶應義塾大学大学院理工学研究科 特任助教 市川 賀康 *

1. はじめに

石油増進回収のために使用される高分子溶液や血液に代表される粘弾性流体は、粘性力が支配的な微小スケールの流れ場においても、定常状態から複雑な不安定挙動を示す非定常状態へと遷移する。この遷移は、流体に働く応力に起因することが示唆されているが、その詳細は明らかにされていない。

流体に働く応力は、一般的に流体に働くせん断速度と粘度によって決定されるものであるが、粘弾性流体は非ニュートン性を有しているため局部的に粘度が変化することもあり、ニュートン流体における応力算出の式を適用できず、溶液に応じた構成方程式を適切に選択・使用する必要がある。このとき、構成方程式に含まれるせん断速度や粘度を高精度に取得する必要がある。特に、非定常状態における応力取得のため、粘度分布と速度分布を同時に取得できれば、構成方程式と合わせて時系列的な応力分布が取得可能と考えた。そのため、当初は粘弾性流体における応力の時系列計測の実現を目的とし、速度と粘度の同時計測手法の開発に取り組むことを予定していた。

粘度の計測にあたり、粘度に応じて蛍光輝度に変化する蛍光分子ローターを使用した手法の確立に取り組んだが、粘弾性流体における粘度には伸張粘度とせん断粘度の2種類が存在し、それらを別々に計測することが重要であることが研究を進める中で次第にわかってきた。そのため、時系列計測を行うための前段階として、まずは流動中におけるせん断粘度および伸張粘度の計測手法の確立に取り組んだ。

また、蛍光分子ローターを使用した粘度計測手法の確立と同時並行的に、粘弾性流体における流動現象の理解を深めるために、マイクロ流路中の微細構造周りにおける粘弾性流体の流動の可視化に取り組むことにした。

2. 粘度分布計測手法の検討

2.1. 使用した蛍光分子ローター

本研究では、Fig. 1 に示す 9-(2,2 ジシアノビニル)ジュロリジン (DCVJ) と呼ばれる蛍光分子ローターを使用した。DCVJ はビニル基が粘度に応じて回転し、その回転のしやすさで蛍光輝度に変化するという特徴を有している。せん断速度に対する感度は無く^[1]、粘度のみに反応するため、粘度計測に適しているといえる。本研究では、この分子の濃度を 0.1 mM に設定した水溶液を実験に用いた。そして、予めせん断および伸張粘度が既知の溶液を用いて蛍光輝度と粘度の関係を取得した。

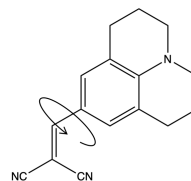


Fig. 1 DCVJ の構造式。矢印のように、ビニル基が回転する。

2.2. 実験装置

本研究では、倒立顕微鏡によるマイクロ流路の下方観察により、蛍光輝度の取得を行った。マイクロ流路を用いることで、その低いレイノルズ数により慣性の影響を無視でき、粘弾性流体におけ

* (助成採択時) 東京理科大学 工学部機械工学科

る粘性と弾性の影響のみを評価できる。マイクロ流路にはポリジメチルシロキサン(PDMS)製のものを使用し、実験に応じて流路形状を使い分けた。流路にはDCVJを混合した試料をシリンジポンプにより送液し、顕微鏡から照射される励起光によって励起された蛍光を科学計測用CMOS(sCMOS)カメラにより取得した。

2.3. セン断粘度 η_s の計測

まず、せん断速度とDCVJの蛍光輝度の関係を取得するため、グリセリン水溶液にDCVJを混合し、長方形断面の矩形マイクロ流路に送液しながら蛍光輝度を取得した。このとき、グリセリン水溶液の濃度を変化させながら計測を行っており、粘度に応じた蛍光輝度を取得している。なお、各濃度のグリセリン水溶液のせん断粘度はレオメータにより取得している。

Fig. 2 に、取得した蛍光輝度 I とせん断粘度 η_s の関係を示す。このとき、せん断粘度 η_s の上昇に伴い、蛍光輝度 I が上昇していることがわかる。ここで、輝度 I とせん断粘度 η_s の関係を $I = a\eta_s^n$ (a, n は定数) でフィッティングした^[1]。これを、粘度が変化する場におけるせん断粘度計測の検量線として使用した。

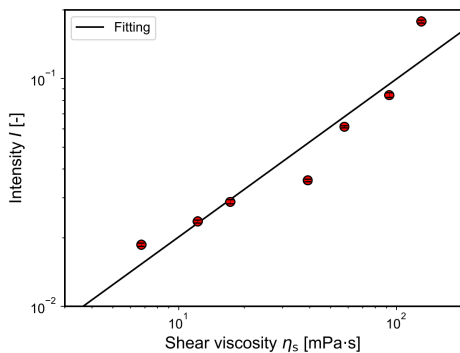


Fig. 2 蛍光輝度 I とせん断粘度 η_s の関係。

次に、マイクロ流路中においてせん断粘度計測を行うために、せん断速度の増加に応じてせん断粘度が低下する shear-thinning 性を有するカルボ

キシメチルセルロース(CMC)水溶液の濃度 1.5 wt% のものを用いた。そして、流路幅 $W = 400 \mu\text{m}$ 、流路の中央に直径 $D = 200 \mu\text{m}$ の円形ピラーを配置したマイクロ流路において、DCVJ を混合した CMC 水溶液をシリンジポンプで流量を変化させながら送液し、蛍光輝度の取得に取り組んだ。一例として、送液流量を $30 \mu\text{L/h}$ としたときの蛍光輝度の分布を Fig. 3 に示す。Fig. 3 より、ピラーと流路壁面で囲まれる領域において蛍光輝度がわずかに減少していることが確認できる。これは、流路中央に円形ピラーが存在することにより、この領域において流速の増加に伴ってせん断速度が増大し、せん断粘度が低下するためである。

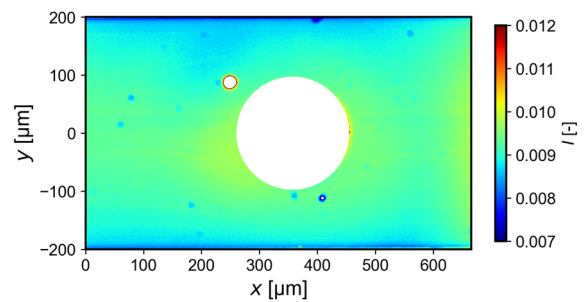


Fig. 3 DCVJ を混合した CMC 水溶液を流量 $30 \mu\text{L/h}$ で送液した際に得られた蛍光輝度の分布。中心の円形の空白部分は円形ピラーの位置に相当する。また、左から右へと水溶液は流れている。

このとき、流量を変化させながらピラーと流路壁面間の領域における輝度の平均値と、Fig. 2 に示したフィッティング関数を用いて、せん断粘度 η_s の値を算出した。その結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 より、流量増大に伴ってせん断速度が増加し、せん断粘度が低下すること、そして、ある流量を超えるとせん断粘度の数値がほぼ一定の値を示すようになった。本研究で使用したマイクロ流路は PDMS 製のものであり、粘度の大きなニュートン流体の蛍光溶液を大流量で送液すると、圧力の影響で流路が高さ方向に変形して蛍光

輝度が増大することが予めわかっている。CMC 水溶液を用いた場合、流量の増大によるせん断速度の上昇に伴ってせん断粘度は低下する、即ち、蛍光輝度は低下するが、前述したように、同時に流路の変形に伴う輝度の上昇の影響を受けて、流量が増加しても輝度に変化しなかったと考えられる。そのため、本研究のように圧力で変化する可能性のある流路を使用した場合、低流量の条件においては DCVJ を用いた shear-thinning 製を有する溶液のせん断粘度イメージングは可能と考えられる。

課題としては、まず、大流量の条件下で実験を行う場合は、変形量が小さな材質の流路、例えばガラス製のマイクロ流路などを使用することが好ましい。また、CMC 水溶液は DCVJ と相性が悪く、溶解が不十分もしくはコロイドのような物質が析出することが確認されていた。そのため、DCVJ を良好に溶解可能な shear-thinning 性の溶液の使用を検討する必要がある。

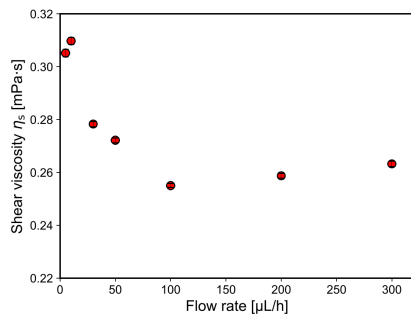


Fig. 4 送液流量を変化させながら取得した、円形ビラー-流路壁面間におけるせん断粘度 η_s の変化。

2.4. 伸張粘度 η_E の計測

次に、伸張粘度 η_E の計測手法の確立に取り組んだ。伸張粘度は溶液が伸張している際の挙動から算出されるため、CaBER^[2]や DoS^[3]などの手法を用いて、液体が伸張する際における液糸の径の変化量から定量化されることが一般的である。しか

し、マイクロ流路中においては撮影方向に対して溶液の厚みが一定であるため、径が変化する手法を校正に用いることができない。そのため、本研究では extensional viscometer-rheometer-on-a-chip (EVROC)^[4]と呼ばれる、マイクロ流路を使用した伸張粘度の定量化手法に着目した。この手法は、Fig. 5 に示すような拡大・縮小部を有する流路を用い、流路全体の圧力損失、拡大・縮小部における圧力損失、そして、縮小部を通過する際における流速分布に基づいたひずみをそれぞれ取得することで、伸張粘度が得られるというものである。

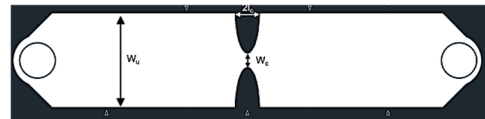


Fig. 5 EVROC に用いたマイクロ流路の概形。

本研究では、強い弾性を有するポリエチレンオキサイド (PEO) の 0.5 wt% 水溶液に DCVJ を混合したものを用いて実験を行った。PEO 水溶液はせん断速度の変化に対して粘度の変化が非常に小さいという特徴を有している。蛍光輝度の取得は Fig. 5 に示す流路の縮小部において行った。

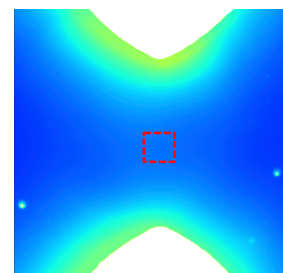


Fig. 6 縮小部における蛍光輝度の画像、赤枠の領域における平均値を伸張粘度 η_E に対応する輝度とした。

流量を変化させながら取得した、伸張粘度 η_E と蛍光輝度 I の関係を Fig. 7 に示す。Fig. 7 には校正実験実施時における送液流量の値も同時に示している。Dinic らは、溶液に働くひずみの増大

に伴って伸張粘度が増大することを報告しており^[3]、本研究においても、流量の増大に伴ってひずみが増加し、伸張粘度も増加することを期待していた。しかし、流量が 1500 $\mu\text{L/h}$ 以上の条件で伸張粘度の値が低下した。これは、大流量の条件下において、EVROC における η_E 決定のための圧力損失の計測に原因があると考えられるが、更なる検証が現段階では必要である。

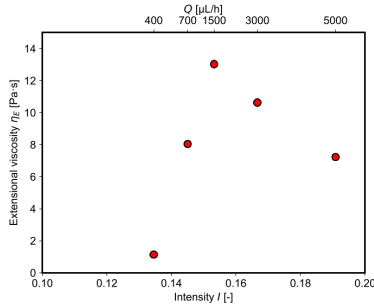


Fig. 7 セン断粘度 η_E と蛍光輝度および送液流量の関係。

一方、低流量の条件では伸張粘度の上昇に伴って蛍光輝度が上昇することが確認できた。EVROC では、2.3 節同様に PDMS 流路を使用して校正を試みたことから、流路の高さ方向に対する変形に起因した輝度の増大の影響も考えられるものの、Fig. 2 に示したせん断粘度の場合とは異なり、伸張粘度の増大に伴って蛍光輝度は増大すると考えられる。そして、適切な関数を選択して検量線を作成すれば、伸張粘度が変化する場においてそのイメージングが可能になるといえる。

3. 微細構造周りにおける粘弾性流体の挙動

微細構造周りにおける粘弾性流体の挙動の可視化に取り組んだ。ここでは、2.3 節で利用した 1 つの円形ピラーを有するマイクロ流路を用いた場合における流れの 3 次元流速計測と、複数の円形ピラーが敷設されたマイクロ流路において実施した、蛍光粒子の流跡線を用いた可視化について説明する。

3.1. 円形ピラー周りにおける低速域の 3 次元流動

高分子であるポリアクリルアミド(HPAM)の水溶液は非常に強い粘弾性を有する。HPAM 水溶液を、ピラーを有する流路に送液すると、ピラーの上流側に低速領域を形成することが知られている^[5]。これは、高分子溶液がピラーと壁面間のような急縮小部において、弾性応力が溶液に蓄えられ、それに伴ってせん断が働くようになるためである。この低速域は、その周りの高速域とのせん断と、蓄えられた応力の緩和に伴い、3 次元的な挙動を示すが、流動構造に関しては不明点が多い。このような背景から、詳細に低速域の挙動を解明することを目的として、本研究では非点収差 PTV (APTV)^[6]と呼ばれる手法を用いて 3 次元流速分布の計測に取り組んだ。

3.1.1. 非点収差 PTV(APTV)

APTV は、カメラのイメージングセンサの前方にシリンダリカルレンズを設置することにより、焦点面から外れた位置にあるトレーサ粒子の像のボケを異方的に歪ませ、粒子像の重心位置の変位および像形状の変化を時系列的にトラッキングすることで 3 次元 3 成分流速を取得可能な方法である。実際に、円形ピラー周りで取得された粒子像の様子を Fig. 8 に示す。

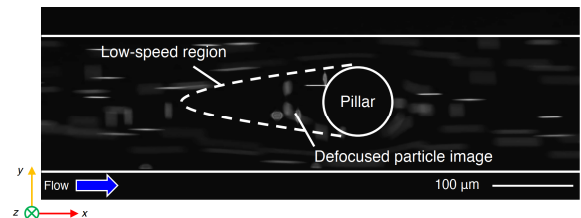


Fig. 8 シリンダリカルレンズを設置して得られた、ピラー周りにおける歪んだ粒子像の様子の一例

このとき、歪んだ粒子像を速度計測に使用していることから、高速領域ではカメラの露光時間の

都合で像が必要以上に伸びてしまう．そのため、低速域にのみ着目し、画像処理によってこの領域のみの粒子像を抽出するようにして速度場の取得に取り組んだ．

3.1.2. 3次元可視化の結果

Fig. 9(a)に、流路幅 $W = 200 \mu\text{m}$ 、ピラー径 $D = 100 \mu\text{m}$ の流路を用い、HPAM 水溶液を流量 $100 \mu\text{L/h}$ で送液した場合において、低速域内部の平均速度分布を流線にしたものを示す．Figure 9(a)より、ピラー上流側で速度分布は得られているものの、流線だけでは低速域内部が複雑な流動をしていることが分かるのみであり、具体的な流れの構造を把握するにはいたらなかった．そこで、 z 方向の速度 w 成分のみに着目し、速度成分の等値面を可視化した．Fig. 9(b)に、 $w = \pm 10 \mu\text{m/s}$ の等値面の様子を示す．等値面の表示では、赤い領域が z 方向上向き、青い領域が z 方向下向きの流れを示している．このとき、青と赤の領域が上流側から下流側にかけて交互に現れていることを確認した．実際にこの実験条件において取得した粒子画像を時系列的に見てみると、粒子像が縦伸びから横伸びへと交互に変化する様子が確認できしており、低速域の内部において、回転流もしくは z 方向に対する振動流のようなものが存在することが示唆された．

更に、流量およびピラーの径 D を変化させながら w 成分を抽出した．そして、ピラー-壁面間におけるせん断速度 γ_{pillar} と w 成分の最大値の大きさの関係を取得した．その結果を Fig. 10 に示す．Fig. 10 では $|w|$ の最大値をバルク流速 U_∞ で無次元化しており、 γ_{pillar} の増加にともなって $|w|/U_\infty$ が低下することが確認できた．ピラーの上流側に形成される低速域は、流量の増大に伴い xy 平面においてはその領域が拡大し、流路スパン方向に振動することがわかっている．一方、 z 方向に対し

ては xy 平面同様に領域が増大した結果、3次元的な形状から2次元的な形状へと変化し、それに伴い低速域内部の3次元的な流動が鈍化したのでは無いかと考えられるが、考察の域を出ていない．

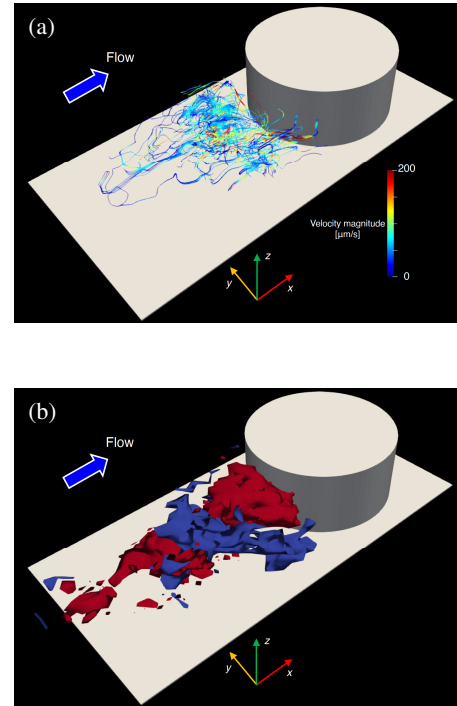


Fig. 9 ピラー上流に形成された低速域内部の流動の様子．(a) 流線で平均流速を示したもの、(b) $w = \pm 10 \mu\text{m/s}$ の等値面を示したもの．($W = 200 \mu\text{m}$, $D = 100 \mu\text{m}$, 流量 $100 \mu\text{m/s}$)

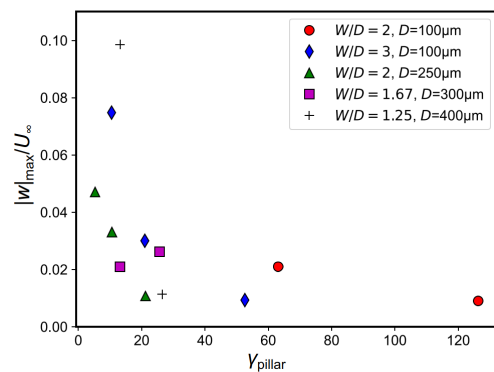


Fig. 10 低速域内部における w 成分の最大値とピラー-流路壁面間におけるせん断速度 γ_{pillar} の関係．

3.2. マイクロピラーアレイ周りにおける流動の計測

次に、微細な円形ピラーを複数並べた場合における流動の計測を行った。円形ピラーアレイが敷設されたマイクロ流路に粘弾性溶液を送液すると、弾性の影響で流れが不安定化することが知られている^[7]。この不安定な流動は、流路スパン方向に対して振動するような挙動を示すが、不安定流動への遷移を引き起こす原因は明らかにされていない。本研究でも、HPAM 水溶液の準希薄溶液にトレーサ粒子を混合して流れの可視化を行ってきた。そして、Fig. 11 に示すように、スパン方向に輝度が歪む挙動が確認された。この輝度の変化に着目し、流れの時系列的な進行方向を割り出す方法を検討した。

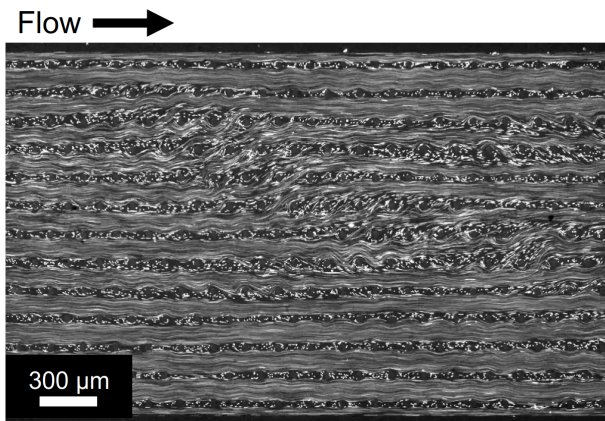


Fig. 11 準希薄な HPAM 水溶液を円形ピラーが大量に敷設されたマイクロ流路に送液した際に得られた流れの挙動。

3.3. 構造テンソルの導入

不安定な挙動の解析を目的として、輝度 I の変化を時系列的にトラッキングするために、本研究では Eq. (1) で定義される構造テンソル $\mathbf{J}$ を導入した。

$$\mathbf{J} = \begin{bmatrix} \langle I_x^2 \rangle & \langle I_x I_y \rangle \\ \langle I_x I_y \rangle & \langle I_y^2 \rangle \end{bmatrix} \quad \text{Eq. (1)}$$

構造テンソル $\mathbf{J}$ は、輝度情報から局所的な方向

を解析するものであり、流跡線から局所的な流れの角度を推定できる。これを用いて、Fig. 11 から角度を推定した結果を Fig. 12 に示す。Fig. 11 において輝度の歪みが確認された領域が Fig. 12 では赤くなっており、図の上方向へ移動する挙動が反映されている。

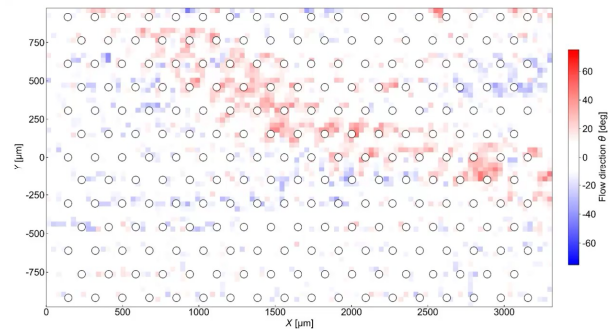


Fig. 12 Fig. 11 の可視化結果に対して構造テンソル $\mathbf{J}$ を適用し、流れ方向に対する振動挙動の角度を算出した結果。

最後に、流跡線の時系列的な可視化結果に対して構造テンソル $\mathbf{J}$ を適用して流れの角度を算出し、観察領域の上流、中流、下流において角度の時間発展の様子をそれぞれ算出した。その結果を Fig. 13 に示す。

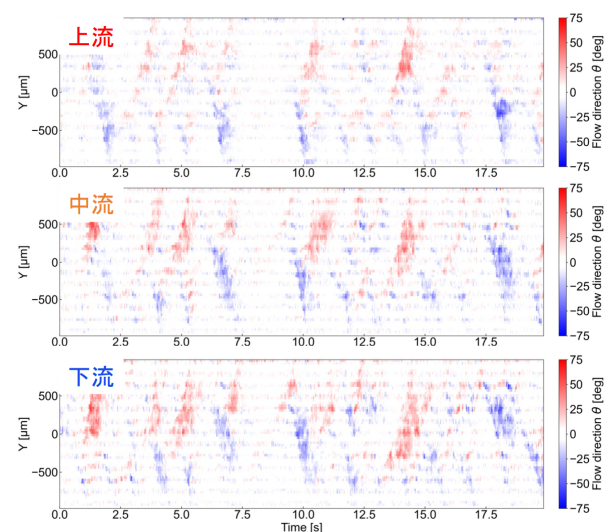


Fig. 13 上流・中流・下流において、流跡線の変化の様子に対して構造テンソル $\mathbf{J}$ を適用して取得した、流れの角度の時間発展の様子。

Fig. 13 より、流路スパン方向に対して特徴的な斜め方向の流動構造が間欠的に生じていること、そして、流路中の流れ方向に対する離れた位置においても角度の分布が非常に類似していることから、振動挙動そのものの同期、もしくは、非定常流動の中にコヒーレントな構造が存在していることが示唆される。

4. おわりに

本研究では、粘弾性流体の流動中における応力算出に向け、特に重要である粘度分布の計測手法の確立と、可視化計測に基づく3次元的速度分布の取得や、構造テンソルに基づいた角度算出手法の検討に取り組んできた。

まず、せん断粘度および伸張粘度の計測に関しては、この2つの粘度を計測する手法について、実施可能なことと課題について検討をすることができた。

可視化計測に関しては、粘弾性流体が障害物の周りで3次元的に非常に複雑な流動を示すことを明らかにできた。一方、流跡線の解析に基づく複数の障害物周りの流れにおいては、複雑な流動を示すものの、普遍的な流れの構造が存在することが示唆された。

当初の目的としていた時系列的な応力計測の達成には未だ至っていないが、研究を進める過程で、粘弾性流体の計測手法と、それに基づいた可視化において、現象面について非常に多くの知見を得ることができた。

5. 参考文献

- [1] Haidekker, M. A., Akers, W., Lichlyter, D., Brady, T. P., and Thodorakis, E. A.; Sensing of flow and shear stress using fluorescent molecular rotors, *Sensor Letters*, **3**-1 (2005), 42–48.

- [2] Miller, E., Clase, C., and Rothstein, J. P.; The effect of step-stretch parameters on capillary breakup extensional rheology (CaBER) measurements, *Rheological Acta*, **48**-6 (2009), 625–639.
- [3] Dinic, J., Zhang, Y., Jimenes, L. N., and Sharma, V.; Extensional relaxation times of dilute, aqueous polymer solutions, *ACS Macro Letters*, **4**-7 (2015), 804–808.
- [4] Ober, T. J., Haward, S. J., Pipe, C. J., Soulages, J., and McKinley, G. H.; Microfluidic extensional rheometry using a hyperbolic contraction geometry, *Rheological Acta*, **52**-6 (2013), 529–546.
- [5] Ichikawa, Y. and Motosuke, M.; Viscoelastic flow behavior and formation of dead zone around triangle-shaped pillar array in microchannel, *Microfluidics and Nanofluidics*, **26**-44 (2022), 1–12.
- [6] Ichikawa, Y., Yamamoto, K., and Masahiro, M.; Three-dimensional flow velocity and wall shear stress distribution measurement on a micropillar-arrayed surface using astigmatism PTV to understand the influence of microstructures on the flow field, *Microfluidics and Nanofluidics*, **22**-73 (2018), 1–9.
- [7] Walkama, D. M., Waisbord, N., and Guasto, J. S.; Disorder suppresses chaos in viscoelastic flows, *Physical Review Letters*, **124**-16 (2020), 164501.

6. 本研究にかかわる成果発表等

- Yoshiyasu Ichikawa and Masahiro Motosuke; Velocity-based analysis of mainstream direction effects on low-speed region formation and

- oscillation in dilute polymer solution around triangular pillars in microchannel, *Journal of Applied Physics*, **137** (2025), 144702.
- ・ 市川賀康; マイクロ流路内における微細構造周りの高分子流動の 3D 可視化, *日本機械学会熱工学部門ニュースレター*, No. 107, 2025 年 12 月号.
 - ・ Yoshiyasu Ichikawa and Masahiro Motosuke; Visualization of three-dimensional velocity field around a micropillar in dilute polymer-solution flow by astigmatism PTV, *The 78th Annual Meeting of the American Physical Society Division of Fluid Dynamics (APSDFD2025)*, Houston, TX, USA, November 2025.
 - ・ Syusuke Takizawa, Yoshiyasu Ichikawa, and Masahiro Motosuke; Periodic flow oscillation of semi-dilute polymer solution in microchannel with pillar arrays, *The 78th Annual Meeting of the American Physical Society Division of Fluid Dynamics (APSDFD2025)*, Houston, TX, USA, November 2025.
 - ・ Yoshiyasu Ichikawa, Junying Yang, Syusuke Takizawa, and Masahiro Motosuke; Can fluorescent molecular rotor detect the viscosity changes in non-Newtonian flows around microstructures in microchannels?, *2nd European Fluid Dynamics Conference (EFDC2)*, Dublin, Ireland, August 2025.
 - ・ Yoshiyasu Ichikawa; Complex flow behavior of viscoelastic fluids in microchannel, *2nd International Workshop for Interfacial Thermofluidics*, Tokyo, Japan, August 2025.
 - ・ Syusuke Takizawa, Yoshiyasu Ichikawa, and Masahiro Motosuke; Velocity-based analysis of oscillatory flow instability around pillar arrays in a polymer solution using μ PIV, *16th International Symposium on Particle Image Velocimetry (ISPIV2025)*, Tokyo, Japan, June 2025.
 - ・ Yoshiyasu Ichikawa, Junying Yang, and Masahiro Motosuke; Viscosity imaging by fluorescent molecular rotor for polymer-solution flow around microstructures, *The 77th Annual Meeting of the American Physical Society Division of Fluid Dynamics (APSDFD2024)*, Salt Lake City, UT, USA, November 2024.
 - ・ Yoshiyasu Ichikawa; Optical flow diagnostics and their practical use on small-scale complex flow behavior, *King's College London Engineering Seminar Series*, London, UK, August 2024.
 - ・ Yoshiyasu Ichikawa; Optical flow measurement on small-scale complex flow behavior, *International Workshop for Interfacial Thermofluidics*, Tokyo, Japan, April 2024.
 - ・ 市川賀康, 楊俊英, 滝沢脩介, 元祐昌廣; 蛍光分子ローターは果たして粘弾性流体の粘度変化を捉えられるのか?, *第 21 回学際領域における分子イメージングフォーラム*, 東京, 2025 年 12 月.
 - ・ 滝沢脩介, 市川賀康, 元祐昌廣; マイクロ流路内の構造物が高分子溶液の流動と圧力損失に与える影響, *第 27 回複雑流体研究会*, 愛知, 2024 年 11 月.
 - ・ 市川賀康, 元祐昌廣; 高分子溶液がマイクロピラー周りに形成する低速域の 3 次元流動, *日本流体力学会年会 2024*, 宮城, 2024 年 9 月.
 - ・ 滝沢脩介, 市川賀康, 元祐昌廣; 高分子溶液がマイクロ流路内に形成する低速域の流動と圧

力損失の評価，第 52 回可視化情報シンポジウム，沖縄，2024 年 7 月．

究開発助成の助成金により実施されたものである．ここに謝意を表する．

7. 謝辞

本研究は島津科学技術振興財団の 2023 年度研