

令和 2 年 5 月 22 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06191

研究課題名（和文）感温性ゲル微粒子の運動により誘起される流動および熱輸送

研究課題名（英文）Fluid flow and heat transfer induced by dispersed particles of temperature-sensitive gel

研究代表者

長谷川 雅人（Hasegawa, Masato）

金沢大学・機械工学系・助教

研究者番号：40324107

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,800,000円

研究成果の概要（和文）：温度による体積の変化が顕著である感温性ゲルの微粒子を液中に分散させることにより、通常安定成層を形成する上部加熱系において粒子の浮沈によって生じる流動、あるいは粒子自身による熱輸送などを発現させることを目標として、まず粒径の均一な感温性ゲル粒子の作成方法を考案し実際に作成を行った。ゲル粒子は上部加熱系において反復的な運動を示し、粒子径によりその運動の様態が異なることが明らかになった。実験的に求めた粒子および周囲流体の物性値を利用して粒子運動の解析を試み、温度応答の遅れを仮定することで反復的な運動が起こりうることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究において主要な物質として利用したN-イソプロピルアクリルアミドのゲルは転移温度を境に低温側で膨潤、高温側で収縮し特に水中における体積変化は顕著であるが、この点に着目し熱流体工学の分野での利用を試みた研究例は少ない。本研究によって得られた、粒子生成方法、粒子の膨潤収縮特性、運動特性などの結果は、未解決の課題も含め、今後熱流動・伝熱現象への応用を目指した研究を進展させるうえで有用な知見となるものと考えられる。

研究成果の概要（英文）：This research has been conducted with a goal of inducing fluid flow or heat transfer by dispersing millimeter-sized particles of temperature-sensitive gel, whose volume changes significantly with temperature, in the upper heating fluid system that normally forms a stable stratification. A method for making temperature-sensitive gel particles of uniform size was devised. It was clarified that the gel particles showed repetitive motion in the upper heating system, and the mode of motion varied depending on the particle size. An attempt was made to analyze the particle motion using the physical properties of the particles and the surrounding fluid obtained experimentally, and it was shown that iterative motion could occur by assuming a delay in the temperature response.

研究分野：熱工学

キーワード：感温性ゲル 粒子運動

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

本研究で着目する「逆自然対流」は、高温時に収縮し低温時に膨張するという負の熱膨張特性を有する粒子・流体素子が「収縮時密度 > 周囲流体密度 > 膨張時密度」となる条件下で、加熱されて沈降し、冷却されて浮上するという挙動を示し周囲流体に流動を誘起する、という原理で発生する。機能性粒子を利用した逆自然対流現象に関する数例の先行研究に対し、本研究は逆熱対流機能性粒子の構成要素として、温度による密度変化が顕著な N-イソプロピルアクリルアミド (NIPA)ゲルを利用し逆対流を発現する素子を微粒化することを特徴とする。ゲル粒子の利用であれば、構造の簡易化、微粒化、分散化が可能であり、より均質な作動流体とすることが期待できる。

代表者は、一定温度で上部から加熱・下部から冷却した容器内の高分子(ポリアクリルアミド)水溶液中で NIPA ゲル微粒子が膨潤収縮し浮沈を繰り返すことを明らかにしている(Intl. Comm. Heat Mass Transfer, 2016)。浮沈運動の継続のメカニズムは以下のように推測される。ゲルは容器内上方の高温領域で水あるいは水溶液を放出して収縮する。ゲルの密度が周囲流体の密度を超過するほどまでに収縮が進めばゲルは沈降する。容器下部は低温のためゲルは周囲流体を吸収して膨潤する。この際、水溶液(周囲流体)中の高分子の分子量が大きい場合はゲルの網目を通過しにくく、ゲル内部の水溶液濃度は周囲よりも低くなりうる。これによりゲル全体で周囲流体よりも密度が小さくなり上昇運動を始める。このように高分子水溶液の利用は周囲流体の比重調整のためだけでなく、ゲル微粒子の比重変化の観点からも一定の効果を及ぼすものと推測している。

2. 研究の目的

(1)単分散球形ゲル微粒子の形成

微粒子による対流発生には、微粒子のサイズや数密度が大きく影響することが考えられる。そこで、均一径の微粒子を多数作成する必要がある。本研究では、注射針様の細管および数ミリ径の管からなる二重管状流路中の二相流による微小液滴生成を試み、連続相の流量や粘度(比)が粒径に及ぼす影響を調査する。また従来の研究で微粒子は高温収縮時に粒子間および粒子-周囲壁間の付着を生じ、活発な粒子運動の持続の妨げとなる。これは、高温時に粒子表面の NIPA 鎖が収縮し付着が生じやすくなっているためと考えられる。そこで、水(水溶液)との親和性が高く高温時でも収縮しないポリエチレングリコール層を粒子表面に形成することを試みる。

(2)周囲水溶液の濃度調整・物性値測定

所定の温度範囲の高分子水溶液中で粒子を活発に浮沈させるには適切な溶液の比重が必要であり、その条件を見出す。これまでの知見から、一定程度以上の分子サイズを有する水溶性高分子を溶質とし、比重が 1 をやや上回る程度の濃度の水溶液を対象とする。

(3)ゲルの運動・周囲流体の流動観測

温度成層の形成された容器内に単一あるいは多数の粒子を投入し、粒子の運動を観察し、運動の周期・持続時間や粒子径の影響について調べる。さらに、粒子の運動により周囲流体中の流れが発生しうるか検討する。

3. 研究の方法

(1)球形ゲル粒子生成

作成したゲル粒子作成装置を図 1 に示す。中心に分散相注入針(外径 0.3mm)を有する正方形断面流路(2×2mm)で液滴生成を行う。連続相にはシリコンオイルを用いる。分散相については、シリンジを二つ使用し、一方には NIPA、架橋剤、促進剤、多孔化試薬の水溶液、もう一方には開始剤の水溶液を補充する。ゲル粒子を多孔化させることで溶液の透過性が向上し、吸収及び排出速度が向上する。二種の水溶液を合流させゲル試料溶液として、針から流路に注入する。液滴は界面張力の力で保持されて成長するが、液滴がある程度の大きさに達すると周囲流体が及ぼす剪断力により分離し、流路を流下する。このような液滴の成長・分離が一定間隔で繰り返し生じる。カメラで液滴生成の様子を撮影し、画像処理により液滴径を算出する。図 2 に実際の液滴生成の写真を示す。

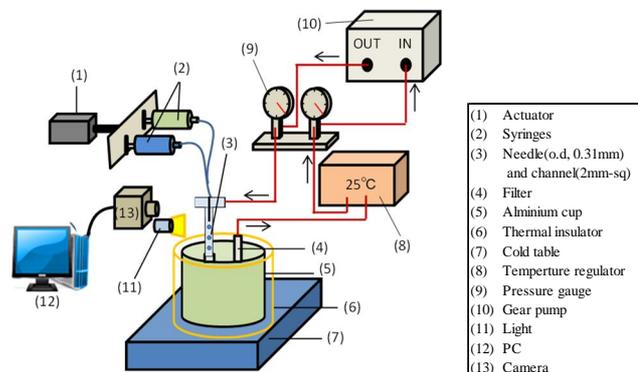


図 1 ゲル粒子生成装置



(a) 成長時 (b) 離脱直後

図 2 液滴生成

生成後の液滴同士の衝突・合体による粒子径のばらつきを防ぐため、 -30°C のコールドプレート上に設置した容器内で液滴を凍結させた。その後容器を冷凍庫 ($\text{約}-20^{\circ}\text{C}$) で一日保管してゲル粒子の重合反応を進めたのち、常温でイソプロパノールおよび水で洗浄した。

表面層付与の主な手順としては、まずポリ(エチレングリコール)メチルエーテルメタクリレート溶液の入った供試容器に重合開始剤溶液を滴下し攪拌した。その後重合開始剤溶液を浸潤させたゲル粒子を投入しさらに攪拌した。その後大量の水で希釈し、表面層の重合反応を停止させた。

(2)球形ゲル粒子径測定

重合後のゲルの粒子径を、 $10 \sim 40$ (あるいは 50) の範囲の水および各種水溶液中で、マイクロスコープにより測定した。

(3)浮沈運動観察

図3に粒子運動観察装置の主要部を示す。実験装置は内寸が幅・奥行 16mm 、高さ約 13mm のアクリル樹脂製の容器である。上部伝熱面を銅板、下部冷却面をアルミ板として、容器の上面側に温水、下面側に冷水を流すことで加熱・冷却を行う。熱電対は上部伝熱、下部冷却面の熱(冷)水側および容器内に設置した。容器内に供試ゲル 10 個と水溶液を封入後、上面を約 40°C で加熱、下面を約 10°C で冷却しながら容器内を一定時間ごとに撮影した。

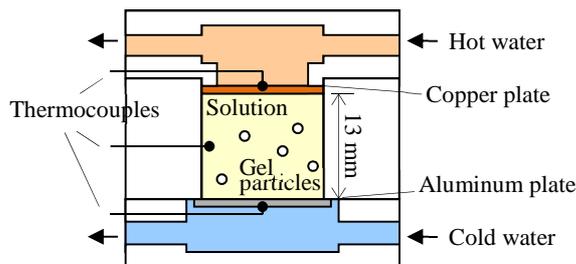


図3 浮沈運動観察容器

4. 研究成果

(1)球形ゲル粒子生成および粒径測定

図4に平均径と連続相流量、動粘度の関係を示す。ゲル粒子作成は連続相流量、動粘度を変えて9ケース行った。液滴径は、連続相流量を大きくすると小さくなる。また、連続相動粘度を大きくすると相対的に小さくなる。このような傾向は過去の研究にもみられるものである。また、CV値は全てのケースで10%未満であり、液滴はいずれも単分散と見なせる。重合後のゲル粒子についても同様に単分散であった。図5はポリアクリル酸ナトリウム(PAANA)水溶液中のゲル粒子の溶液温度変化に対する径変化(図4中のケースA, B, C)を示す。ゲル粒子径は溶液温度が上がるにつれて徐々に小さくなり、負の膨張特性を示した。

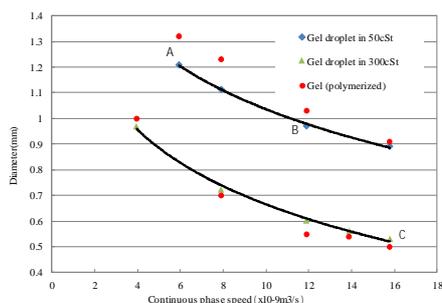


図4 各生成条件での液滴・ゲル粒子径

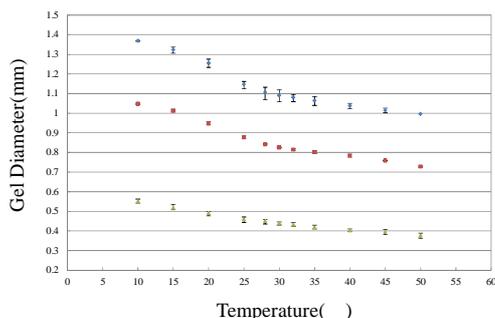


図5 ゲル粒子径の温度依存性

(2)ゲル粒子の浮沈運動

PAANA11wt%水溶液中のゲル粒子変位を図6に示す。(a)はケースA,(b)はケースCである。ケースAの粒子は周期約10~15分の上下運動を行い、次第に振幅は減衰した。ケースCの粒子は実験開始後すぐに運動を停止した。これは、粒子径が小さい場合、温度応答性が高くなるため、周囲流体との密度差が解消されやすく、ゲル粒子が素早く平衡状態になったためと考えられる。

図7はケースAと同程度の直径を有するゲル粒子のポリビニルピロリドン(PVP, 30K, 24wt%)およびグリセリン34wt%水溶液における結果を示す。PVPの場合は周期的な運動を示すもののその周期は約80分とかなり遅い。また、グリセリンの場合は周期的な運動を示さなかった。

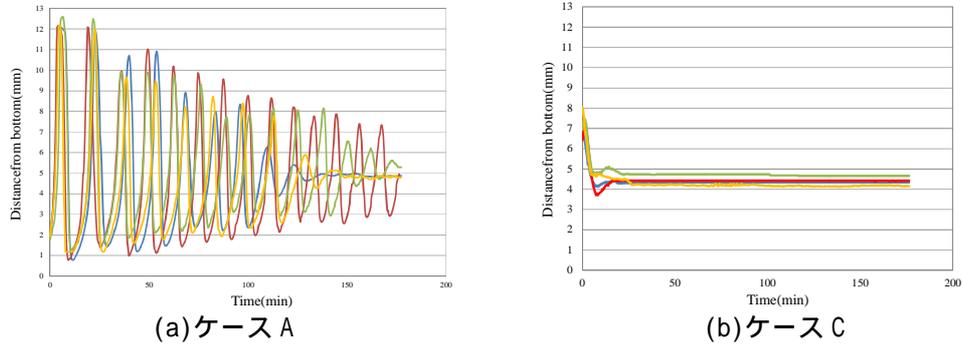


図 6 PAANA 水溶液中における粒子の運動

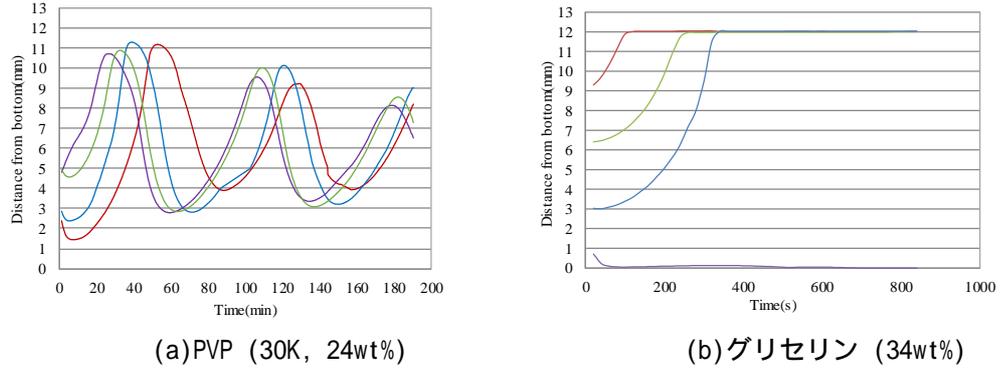


図 7 各種水溶液中における粒子の運動

(3)ゲル運動のモデル化

球形のゲル粒子には、重力、浮力、および Ossen 近似した抗力がはたらくとする。粒子径はケース A を想定し上下面間距離は図 3 の装置と同じとした。周囲流体は静止しており、底部で 10、上部で 40 に保たれその間は直線的に温度分布を持ち時間的に定常とする。周囲流体 (PAANA11wt%水溶液)の密度と粘度は計測値を補間し温度の多項式関数として与えた。定常状態のゲル粒子と周囲流体の密度は図 8 に示すように 10-40 の間のある温度で等しくなるため、粒子はその温度に対応する伝熱面間の位置で静止することが考えられる。そこで、ゲル粒子の温度が周囲温度に到達するまでに時間を要するものと仮定し、また、ゲル粒子内外の水溶液の移動も同様に遅れがあるものと仮定し、ゲル粒子温度 T_g とゲル内水溶液質量 m'_g が、 $\dot{T}_g = -\alpha_T(T_g - T_l)$ 、 $\dot{m}'_g = -\alpha_m(m'_g - m'_{g0})$ に従うとした。ただし、温度はゲル粒子内で一様であるとする。 T_l は周囲流体温度、 m'_{g0} はゲル粒子温度に対する粒子内水溶液質量の定常値を与えており時間とともに変化し得る。遅れの程度を表す定数 α_T, α_m [s^{-1}] を与えてその影響を調べた。一般に膨潤と収縮の速度は互いに異なるが本解析では同一であるとみなし、 α_T, α_m は時間に対し不変とした。 α_m を $=0.025, 0.01, 0.008$ としたときのゲル粒子中心の垂直方向位置を図 9 に示す。 α_T は 0.025 とし、初期位置は下面に接した位置とした。周囲環境への応答が最も速い場合 ($\alpha_m=0.03$) は振動的な挙動を示さず、約 5 分経過後周囲流体とゲル粒子の密度が等しくなる定常位置に静止した。 $\alpha_m=0.01$ の場合は周期約 10 分の振動挙動を示すがその振幅は時間経過とともに減衰した。 α_m を更に減少させる ($=0.008$) と、上面および下面に到達後一時静止し、数分後に逆方向への移動を開始するという安定した振幅挙動を示した。また、 $\alpha_m = 0.01$ の場合に比べ、応答特性が若干遅くなったことに加え、振幅の増加や上下面での静止期間の発生により周期が増加し約 14 分となった。

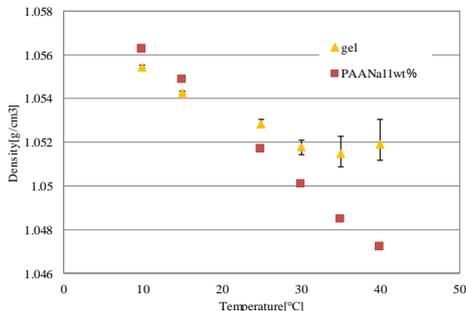


図 8 ゲル粒子と周囲流体の密度

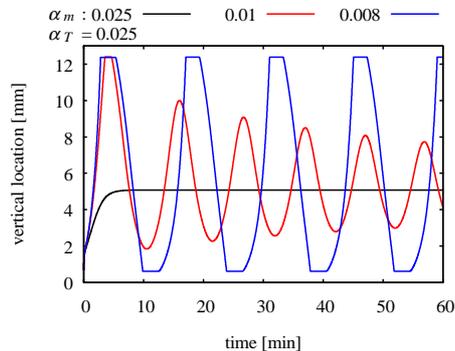


図 9 粒子の運動

(4)ゲル粒子表面層の付与

表面層を有するゲル粒子の一例を図 10 に示す(10℃水中) .白色部分がもとのゲル粒子であり、その周囲を囲む明褐色に見える(実際は透明)層が表面層に相当する。液中における付着力の直接測定は困難なため、傾斜面におけるゲル粒子の転落角を評価することで表面層付与の影響を検討した。周囲流体は 10℃ および 40℃ の水とし傾斜面は伝熱面を想定して銅を用いた。表面層のない粒子は 10℃ では傾斜角 10 度付近で転がり落ちるが、40℃ では 90 度でも付着し続けた。表面層付与粒子ではいずれの水温でも 27 度付近で転落した。これらの結果は表面層がない場合表面での高温時の高分子鎖の収縮により立体斥力が低下することの影響を示唆する。しかし高分子水溶液中においては表面層付与粒子でも付着が見られたことから、付着要因や表面層成分のさらなる検討が必要である。

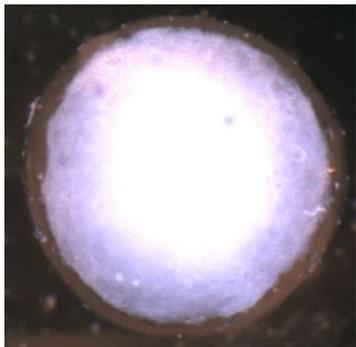


図 9 表面層付与粒子

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Raden Rinova Sisworo, Masato Hasegawa, Kousuke Nakashima, Yu Norimatsu, Yukio Tada	4. 巻 10
2. 論文標題 Generation of Monodispersed Spherical Thermosensitive Gels and Their Swelling and Shrinking Behaviors in Aqueous Polymeric Solutions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/app10062016	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 長谷川 雅人, SISWORO Raden
2. 発表標題 温度勾配を有する液中における感温性ゲル粒子の反復運動
3. 学会等名 日本機械学会熱工学コンファレンス2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 栗原 郁帆, 長谷川 雅人
2. 発表標題 core-shell構造を有する感温性ゲルの付着について
3. 学会等名 第57回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 乗松 悠右, SISWORO Raden, 長谷川 雅人
2. 発表標題 感温性ゲルの高分子水溶液中における挙動
3. 学会等名 日本機械学会北陸信越支部 第56期総会・講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山本 和也, 島田 敏広, SISWORO Raden, 長谷川 雅人, 川端 信義
2. 発表標題 各種水溶液中における感温性ゲルの挙動
3. 学会等名 第54回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 中嶋 晃祐, 乗松 悠右, Sisworo Raden, 長谷川 雅人, 川端 信義
2. 発表標題 感温性ゲルの単分散球形粒子作成
3. 学会等名 2017年度日本機械学会年次大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考