

ゾル-ゲル転移過程におけるヘレーショウセル中のパターン形成

許 宗焄*・久保山敬一**・岡部弘高***・原 一広***・甲斐昌一***

Pattern Formation of Hele-Shaw Experiment in Sol-Gel Transition

Jonghoon HUH, Keiichi KUBOYAMA, Hiroataka OKABE, Kazuhiro HARA, Shoichi KAI

(Received May 7, 1996)

Abstract: Pattern formation by injecting water into a radial Hele-Shaw cell is studied using an agar solution or gelling agar, of which solute is a mixture of water/glycerine. We show here changes of patterns as a function of agar concentration under the constant pressure of 9.0×10^3 Pa. Morphological transition from fingering patterns to fracturing ones is observed with the state of gelatinizing samples. The characteristics of observed patterns are correlated with tip velocity during growth of the patterns as well as fractal dimensions and perimeters in every last pattern. In the present paper, differences of pattern formation in viscoelastic materials from trivial viscous fingering and fracturing patterns are discussed.

Keywords: Hele-Shaw Cell, Agar, Viscous Fingering, Viscoelastic, Fracturing

1. はじめに

ヘレーショウセルは多孔質媒体中での流体の振る舞いを調べるために考案されたもので、2枚のプレートで構成される。その原理は多孔質媒体内の流体の振る舞いを支配する微分方程式と、2枚のプレート間の薄い準2次元空間内の粘性流体の振る舞いを表す方程式との数学的等価性にに基づいている¹⁾。2枚のプレート間の粘性流体に、それより粘度の低い粘性流体を注入すると、両流体の境界面での不安定性によってヴィスカスフィンガリングパターンが現れる。この境界面での不安定性は流体の粘性力と毛管力との競合によって生じる。ヘレーショウセルのヴィスカスフィンガリング実験は古くから石油採取や地下内ガス貯蔵などの研究に応用されている。このセルを用いた多くの研究が単純粘性流体から粘弾性流体である複雑流体まで行われている²⁾⁻⁹⁾。また、粘弾性流体やコロイド溶液中でのヴィスカスフィンガリングパターンから破壊パターンへのパターン転移などの研究も報告されている^{5),8)}。

線形安定性理論によると、フィンガーの幅（不

安定モードの波長）は、 $\lambda = \pi b \sqrt{\frac{\sigma}{\mu V}}$ で記述される (Saffman-Taylor instability)。ここで λ はフィンガーの波長、 b はセルのギャップ、 σ は界面張力、 μ は粘度差、 V はフィンガーの先端の速度である。最近にはポリマー溶液を用いたり、界面活性剤を添加したり、あるいは表面張力を異方性化するなどの手法で新しいフィンガリングの振る舞いが報告されている¹⁰⁾⁻¹³⁾。

この論文では寒天のゾル状態からゲル状態へ、すなわち粘性流体から粘弾性体への転移に伴うパターン変化に注目して研究を行った。寒天はゲル化度合によって粘性流体、粘弾性流体、及び粘弾性体として振る舞うと考えられる。粘性流体として振る舞う場合は粘性流動が支配的なメカニズムであり、粘弾性体の場合は破壊が重要なメカニズムである。しかし、粘弾性体として振る舞う場合は流動と破壊との2つのメカニズムが競合すると考えられる。ここでは以上の観点から各パターンの特徴を議論する。

2. 実験

2.1 ヘレーショウセル

本研究で使用したヘレーショウセルは、図-1のように一辺100mm、厚さ5mmの正方形プレート2枚（上側1枚はアクリル板、下側1枚はステンレス板）を、プレート間ギャップを0.8mmに固定したものである。下側の

平成8年5月7日受理

* 応用物理学専攻修士課程

** 応用物理学専攻博士後期課程

*** 応用理学教室

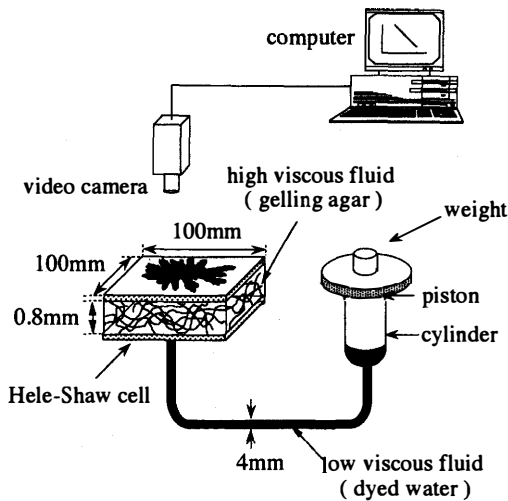


図-1 実験系

プレート中央には直径1mmの穴があり、ここから低粘性流体を注入するために、図-1のように内径24mmのシリンダに低粘性流体を入れ、ピストンの圧力を分銅重りによって調節し、 $9.0 \times 10^3 \text{ Pa}$ にした。低粘性流体としては精製水を使い、現れるパターンを見易くするために市販インクで色を着けた。

2.2 サンプルの調整

1. グリセリン（特級， 20°C の密度 1.26g/ml ，粘度約 1500cP ，キシダ化学）と精製水（ 20°C の粘度約 1cP ）が $80\text{vol.}\% : 20\text{vol.}\%$ の割合の溶媒（ 20°C の粘度約 140cP ）を用意した。注入低粘性流体は水である。また、溶媒にグリセリンと精製水の混合溶液を用いたのは粉末寒天がグリセリンには溶けないことによる。
2. 50ml の溶媒に粉末寒天（1級，キシダ化学）の濃度が、 $0.00\text{wt.}\%$ ， $0.11\text{wt.}\%$ ， $0.13\text{wt.}\%$ ， $0.15\text{wt.}\%$ ， \sim ， $0.29\text{wt.}\%$ ， $0.31\text{wt.}\%$ となるように溶液を調整した。
3. 次に、各寒天溶液を 120°C ，30分間保温することによって粉末寒天を溶かし、5分間水（ $15 \pm 1^\circ\text{C}$ ）で冷やした後、ヘレーショウセル内に入れて3時間放置（室内温度 $20 \pm 1^\circ\text{C}$ ）してゲル化させた。

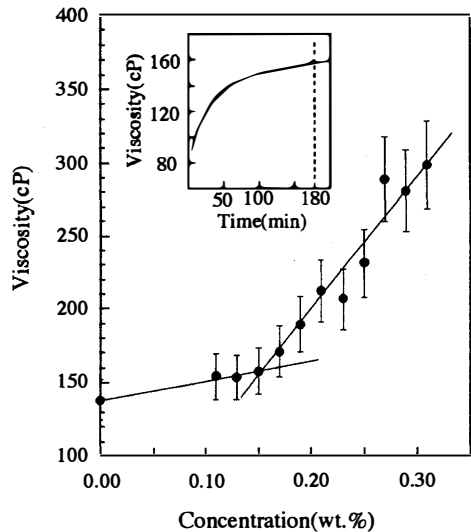


図-2 濃度に対する粘性の変化

2.3 測定

粘度測定に用いた装置は振動式粘度計ピスコメイトVM-1A-L（YAMAICHI社製，測定範囲： $0.4 \sim 1000\text{cP}$ ，測定精度：測定値 $\pm 10\%$ ）で前節の2，3の手順で作製した各濃度の寒天ゲルの粘度を測定した。なおこの装置では、試料が弾性を持つと、粘度は真の値より大きく測定される。

パターンの撮影は、ピストンに着いているトリガー（図-1には記されていない）の作動によって水が注入されると同時に、ビデオカメラNV-100（Panasonic社製）で行った。寒天の濃度を変化させ、ゲル化点近傍における様々な架橋度にあるサンプルで同様の測定を行った。

3. 結果と考察

図-2には、各濃度の寒天ゾルあるいは寒天ゲルの粘度の時間変化を測定し（図中の挿入図に例示），3時間経ったときの各濃度の粘度をプロットした。試料は寒天濃度が $0.15\text{wt.}\%$ までは徐々に粘性が増加する。しかし、 $0.17\text{wt.}\%$ 以上の濃度では粘性が急激に増加する。これは $0.17\text{wt.}\%$ の濃度からゲル化の進行が始まったためと考えられる。したがって、 $0.00\text{wt.}\%$ の濃度から $0.15\text{wt.}\%$ の濃度まで試料は粘性流体として、

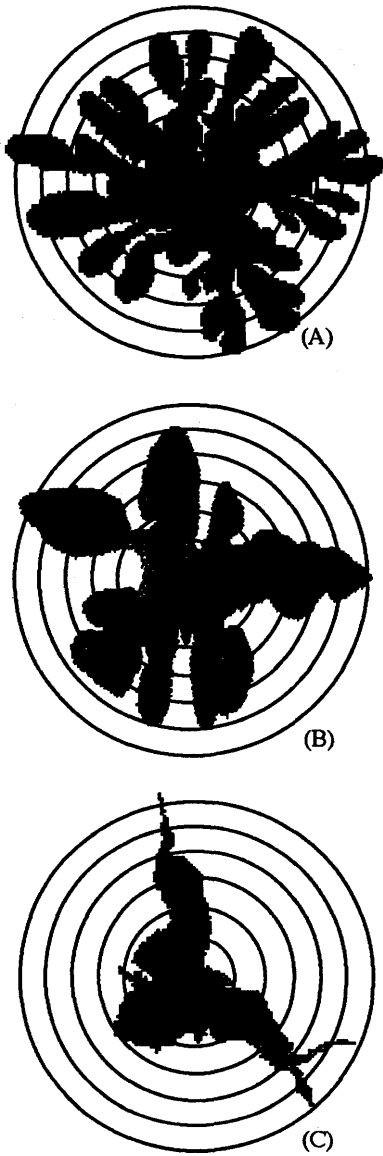


図-3 異なる寒天濃度で現れた3つの代表的パターン

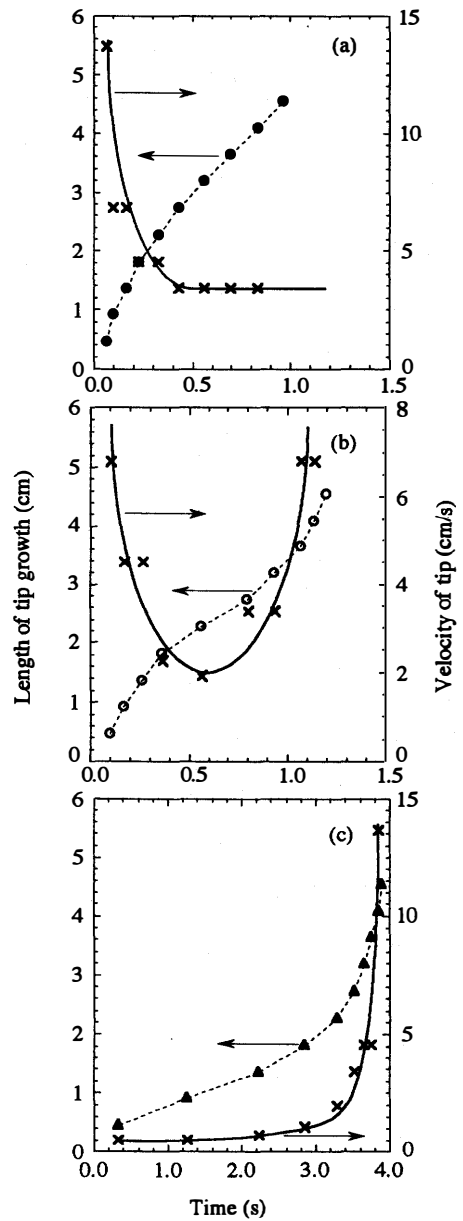


図-4 代表的な3つのパターンのフィンガー先端の位置と成長測定

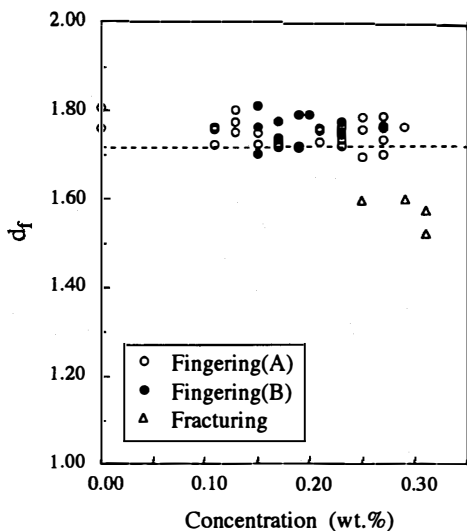


図-5 各パターンフラクタル次元

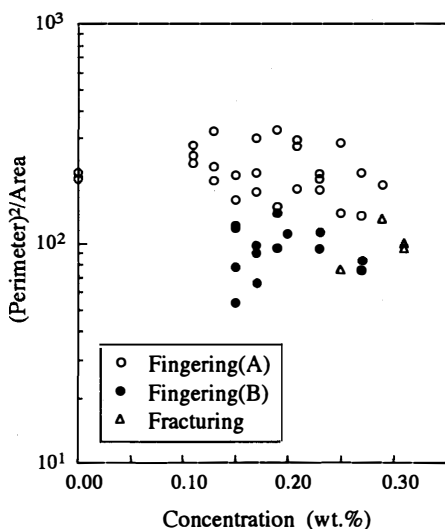


図-6 各パターンの面積と周囲長さの比

0.17wt.%以上では粘弾性流体,あるいは粘弾性体として振る舞うと予想される。本研究では0.17wt.%の近傍濃度,すなわちゲル転移点近傍での特性に注目した。

様々な寒天濃度で現れた代表的パターンを図-3に示す。濃度によって3つのタイプのパターンが現れた。ゲル化していない状態では粘性流体で現れるヴィスカスフィンガリングパターン(A)が生じ,ゲル状態では弾性

体で現れる亀裂パターン(C)が生じた。ゲル転移点近傍ではパターン(A)とは違うヴィスカスフィンガリングパターン(B)が生じた。図-4(a)~(c)には図-3に示した3つのパターンの時間経過に伴うフィンガー先端の成長とパターン成長の速度を示した。測定手法は以下の通り,撮影した各パターンのビデオテープを用いて,図-3のように各同心円(半径:0.45cm~5.0cm)にフィンガー先端が到達するのに要する時間を測定する。成長速度は時間微分を行って求めた。時間経過に伴うパターン成長の様子に明確な違いがあった。図-4(a)のヴィスカスフィンガーの先端は2段階で成長する。最初の段階ではある程度フィンガーが幅を持つまでは最初にできたフィンガーが大きな速度で成長し,フィンガーの幅が少しづつ大きくなるとフィンガーの先端成長の速度はどんどん減少してフィンガーが枝分かれをしながら一定の速度(第2段階)で成長する。図-4(b)のヴィスカスフィンガーの先端成長では,最初はパターン(A)の第1段階と同様であるが,第2段階ではパターン(A)とは違って急激に速度が大きくなる。これはパターン(A)とはフィンガーの枝分かれの様子が違うことを意味している。図-4(c)は弾性体の亀裂に特徴的な先端速度を示している。図-3で分かるように,パターン(A)とパターン(B)は亀裂パターン(C)とは明確に区別される(例えば,先端の曲率)が,パターン(A)とパターン(B)との違いは明確ではない。そこで,パターン(A)とパターン(B)との定量的な違いを調べるために2つの画像を分析した。まず,図-5は一般的なボックスカウンティング法で求めた各濃度のパターンのフラクタル次元である。しかし,こうして求めたフラクタル次元ではパターン(A)とパターン(B)とは区別できなかった。ただし,パターン(A)とパターン(B)はDLAのフラクタル次元値や他論文のヴィスカスフィンガリングのフラクタル次元値より少し大きい値を示した^{8),9),14)}。図-6は各濃度に対するパターンの周囲長と面積の比であり,パターンのフィンガーの波長が小さく,枝分かれが多いほど大きな値を示す。図-6ではパターン(A)とパターン(B)との違いが明らかであり,また図-3からも分かるように,パターン(B)はパターン(A)よりフィンガーの幅が大きく,フィンガーの枝分かれの数が少ない(パターン(B)は1,2番目の分岐しか見えない)。これまでのヘレーショウセル実験の研究では,最終的なパターンの形態に関する議論に限られており,その解析にはフラクタル数値が用いられ

ている。しかしわれわれの系では、最終的なパターンのフラクタル次元の解析は有効ではなく、周囲長と面積の比の解析が有効であった。また、時間経過に伴うパターン成長の様子から粘性流体と粘弾性流体との間にはパターンのダイナミクスに違いがあることを示した。

4. ま と め

寒天を用いたヘレーショウセル実験において、粘性流体、粘弾性流体、及び粘弾性体中でのパターン成長の特性を明らかにした。注目した粘弾性流体では弾性の影響によって、特有なパターン成長を示した。そして、粘弾性流体の最終的なパターンは、周囲長と面積の比が粘性流体でのヴィスカスフィンガリングパターンとの違いを示した。

5. 今後の課題

今回はフィンガーの波長の定量的な議論はできなかった。これは線形安定性理論で議論するパラメータとして界面張力の問題、つまり、ゲル化状態の物質の表面張力をどのように定義するかの問題になる。ゲルの表面張力が定義できれば粘弾性流体及び粘弾性体での線形安定性理論を適用し、それがどの程度有効である

か、あるいは新しく非線形理論で取り扱わなければならないのかが分かると考えられる。

参 考 文 献

- 1) L. Paterson: *J. Fluid Mech.* **113** (1981) 513.
- 2) Jing-Den Chen: *Phys. Fluid Mech.* **201** (1989) 223
- 3) L. Paterson: *Phys. Fluids* **28-1** (1985) 26
- 4) J. Nittmann, G. Daccord and H. E. Stanley: *Nature* **314** (1985) 141
- 5) E. Lemaire, P. Levitz, G. Daccord and H. Van Damme: *Phys. Rev. Lett.* **67**(1991)2009
- 6) H. Zhao and J. V. Maher: *Phys. Rev.* **A45** (1992) R8328
- 7) K. Makino, M. Kawaguchi, K. Aoyama and T. Kato: *Phys. Fluids* **7-3** (1995) 455
- 8) H. Zhao and J. V. Maher: *Phys. Rev.* **E47** (1993) 4278
- 9) J. Nittmann and H. E. Stanley: *Nature* **321** (1986) 663
- 10) E. Corvera, Hong-Guo and D. Jasnow: *Physica A* **220** (1995) 48
- 11) D. Bonn, H. Kellay, H. Braunlich, M. Ben Amar and J. Meunier: *Physica A* **220** (1995)60
- 12) M. Ben Amar, R. Combescot and Y. Couder: *Phys. Rev. Lett.* **70** (1993) 3047
- 13) K. V. McCloud and J. V. Maher: *Phys. Rev.* **E51** (1995) 1184
- 14) G. Daccord, J. Nittmann and H. E. Stanley: *Phys. Rev. Lett.* **56** (1986) 336

