

Title	ステップ状大変形により衝突させた2液滴の合一過程の観察
Author(s)	岡本, 健三; 田村, 良太; 石川, 優
Citation	日本レオロジー学会誌, 30(1): 45-48
Issue Date	2002
Type	Journal Article
Text version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/10119/7841
Rights	Copyright (C) 2002 日本レオロジー学会. 岡本 健三, 田村 良太, 石川 優, 日本レオロジー学会誌, 30(1), 2002, 45-48.
Description	

Article

Observation of Coalescence of Two Polyisobutylene Droplets in Polydimethylsiloxane under Large Step Shear Strain

Kenzo OKAMOTO, Ryota TAMURA, and Masaru ISHIKAWA

Department of Polymer Science and Engineering, Yamagata University
4-3-16 Jonan, Yonezawa 992-8510, Japan

We observed collision and coalescence after application of large step shear strains for two polyisobutylene (PIB) droplets in polydimethylsiloxane (PDMS) matrix using a stereo microscope. When coalescence occurred, interface vanished in an overlapped area of deformed droplets. Then a single droplet recovered to spherical shape. Time necessary for recovery to spherical shape with coalescence was longer than that without coalescence. Coalescence was easy to occur for larger strain and smaller d_0/r_0 , where d_0 and r_0 represent initial distance between centers of droplets and initial droplet radius, respectively. In the case of shape recovery without coalescence, the distance between the centers after shape recovery was smaller than d_0 . Time dependence of shape of droplets was similar in both cases with coalescence and without coalescence. Ratio of length of overlap, l_{ov} , to length of semi major axis, a , in view perpendicular to shear plane determines occurrence of coalescence.

Key Words: Coalescence / Large step shear strain / Polyisobutylene / Polydimethylsiloxane

ステップ状大変形により衝突させた2液滴の合一過程の観察

岡本 健三, 田村 良太, 石川 優

(原稿受理: 2001年9月28日)

1. 緒 言

高分子材料の衝撃吸収性能向上のためにエラストマーをブレンドする方法が有効であることが知られている。^{1,2)} 射出成形機でエラストマーブレンドの成形を行うと、射出条件によりエラストマー相が配向し衝撃吸収性能に著しい悪影響を与えることがある。²⁾ 射出成型品におけるエラストマー相の分散状態は液滴の分裂と合一により決まると考えられるので、³⁾ 射出成型時のエラストマーの配向を防ぎ衝撃吸収性能の高い材料を得るために流動中の液滴の分裂および合一の機構を明らかにする必要がある。

液滴に大変形を与えたときの分裂の挙動は理論、実験の両面から研究されており現在までに基本的な点は明らかになっている。^{4,5)} 一方、液滴が衝突したときの合一過程を扱った研究は少なく、衝突・合一がどのような要因に支配されるのかあまりよくわかっていない。

本研究では高分子液体のマトリクス中の2つの高分子液滴にステップ状大変形を与えたときの衝突・合一と形状回復の過程を観察し液滴の合一を支配する要因を明らかにする。

2. 実験方法

試料にポリイソブチレン(PIB) (ポリサイエンス社製) とポリジメチルシロキサン(PDMS) (信越化学工業株式会社製) を用いた。23°Cでのゼロせん断粘度はそれぞれ87.8 Pa.sと 1.08×10^3 Pa.sである。マイクロシリンジを用いてPDMS中にPIBの液滴(半径267~277 μm)を二つ作り、2枚のスライドガラスに挟んだ。厚さ1.2~1.5 mmのスペーサをスライドガラスの間に挟み、実験中試料の厚みが変化しないようにした。本論文では、時間0で瞬間的に所定のひずみ加わりその後ひずみの大きさが変化しない変形を「ステップ状変形」と呼ぶことにする。実験室の温度をほぼ23°Cに保ち、試料を挟んだガラス板の一方を液滴の中心間を結ぶ方向と平行に手で動かすことにより、ステップ状変形を0.5秒以内に加え、実体顕微鏡(Nikon; SMZ-10)とCCDカメラ(Nakamura; IK-920N)を用い、せん断面(すなわち、スライドガラスの面)に垂直な方向から液滴の衝突・合一過程を観察しビデオテープに記録した。この際、加えるひずみの量はガラス板の先に置いたストッパーの位置を調整することで誤差0.1程度で制御した。ひずみを加える間に液滴が局所的に形状回復する可能性はあるが、PIB/PDMSの界面張力 $3.1 \text{ mN}\cdot\text{m}^{-1}$ を用いてPalierneの理論から計算した⁶⁾液滴の線形緩和時間175 s(液滴半径267 μm のとき)に比べ十分に短い時間でひずみを加えているので、ひずみを加える間に液滴全体の形状回復は生じず、ステップ状のせ

山形大学工学部機能高分子工学科
〒992-8510 山形県米沢市城南 4-3-16
Phone: +81-238-26-3043
Fax: +81-238-26-3410
E-mail: kenzo15@yz.yamagata-u.ac.jp

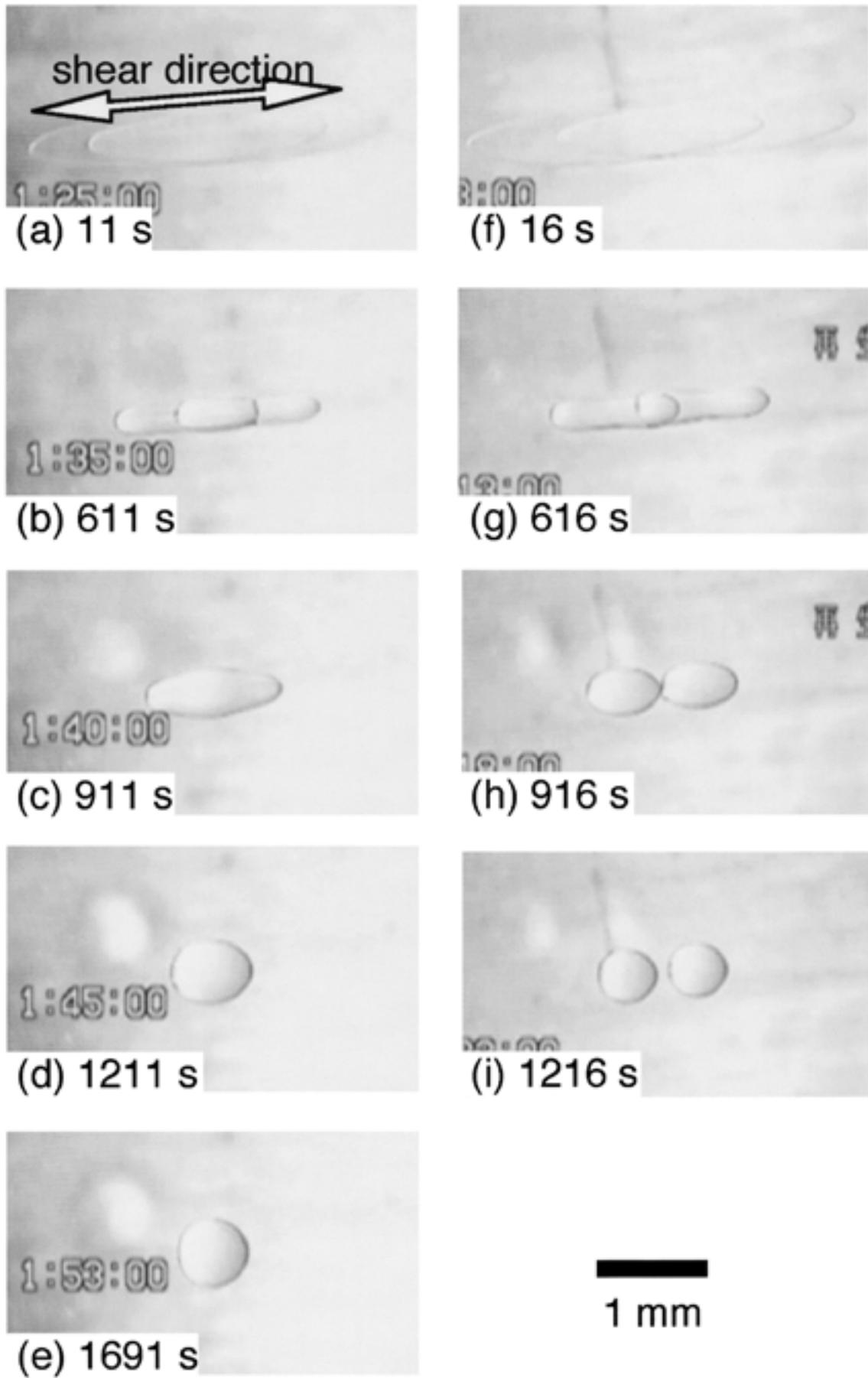


Fig.1 Micrographs of PIB droplets in PDMS matrix under step strain $\gamma = 4.58$. $d_0/r_0 = 2.29$ (a)-(e), and 2.68 (f)-(i). $r_0 = 270 \mu\text{m}$.

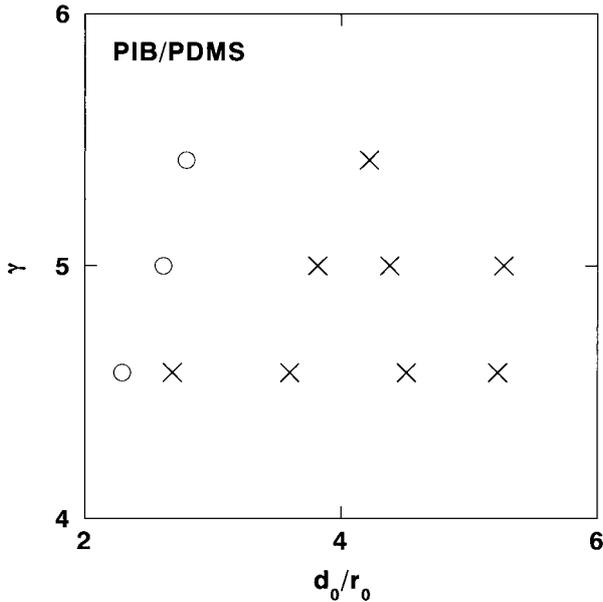


Fig. 2 Coalescence diagram of PIB droplets in PDMS matrix. Circles and crosses indicate coalescence and recovery to two droplets, respectively. $r_0 = 267\text{--}277 \mu\text{m}$.

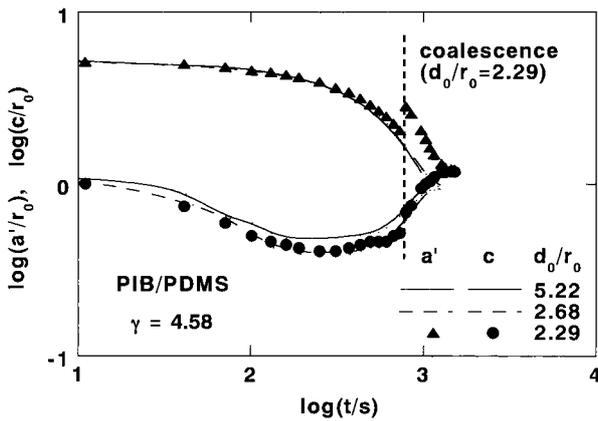


Fig. 3 Time dependence of a'/r_0 and c/r_0 of droplets at various d_0/r_0 . $\gamma = 4.58$, $r_0 = 270 \mu\text{m}$.

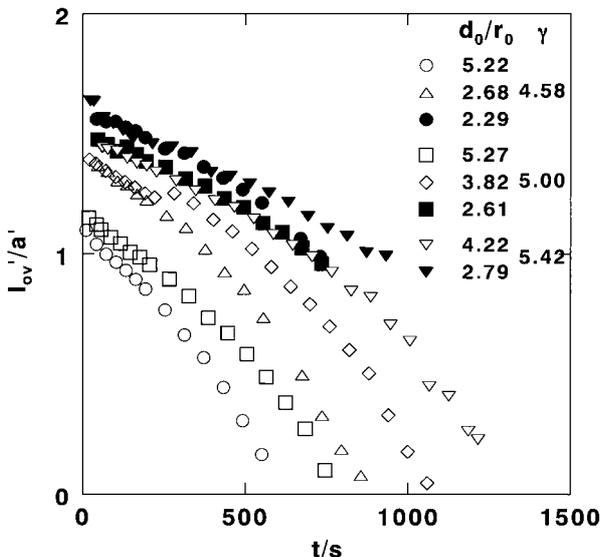


Fig. 4 Time dependence of l_{ov}'/a' at various strains and distance between droplets center. Open and filled symbols indicate coalescence and recovery to two droplets, respectively.

ん断大変形が加わっていると見なした. なお, 本論文では二つの液滴がせん断面と平行にならんでいる場合のみ実験を行った. ステップ状ひずみを加える前に光学顕微鏡 (OLYMPUS; BH-2) でせん断面と垂直方向から液滴の赤道部分を観察し, 一方の液滴の赤道部分に焦点をあわせたときにもう片方の液滴の赤道部分にも焦点が合っているか否かを調べることにより, 2液滴がせん断面に平行に並んでいるか否かを確認した.

3. 結果と考察

Fig.1にせん断ひずみ $\gamma = 4.58$ を加えた場合に液滴形状が時間とともに変化する様子を示す. 衝突後合一したとき (a)~(e) は $d_0/r_0 = 2.29$ の場合であり, 合一せずに再び二つの液滴に分かれ形状回復したとき (f)~(i) は $d_0/r_0 = 2.68$ である. ここで d_0 と r_0 はそれぞれ液滴の変形前の中心間距離と初期半径を表す. 合一したときは変形して重なった液滴の重なり部分から液滴界面が消え2倍の体積の液滴となり球状に回復している. 合一しないときは液滴が変形し重なるが界面が消滅することなく再びもとの二つの液滴に形状回復する. 同じひずみの場合, 合一するときのほうが球形に回復するまでに時間がかかる. また, 合一しない場合でも液滴どうしに引き合う力が働き, 形状回復後の液滴中心間距離が衝突前より小さくなっていった. これを利用し, 同じ二つの液滴に繰り返し同じ大きさのせん断ひずみを加えることで液滴中心間距離を変化させながら二つの液滴が合一するまで繰り返し実験を行った.

Fig.2にせん断ひずみ γ と d_0/r_0 に対して衝突後の合一の有無を示した. プロットのOとXはそれぞれ合一が生じた場合と生じなかった場合を示している. γ が大きいほど, また d_0/r_0 が小さいほど衝突した液滴が合一しやすいことがわかる.

Fig.3に $\gamma = 4.58$ を加えたときの液滴形状の時間依存性を a'/r_0 と c/r_0 を用いて示す. ここで, $2a'$ と $2c$ がせん断面に垂直方向から見た液滴の長軸方向の長さ(ダンベル状の場合はもっともくびれた部分)の長さをそれぞれ表す. d_0/r_0 は5.22, 2.68, 2.29であり $d_0/r_0 = 2.29$ のとき $\log(t/s) = 2.9$ で液滴の合一が生じている. 合一が起こらないとき ($d_0/r_0 = 5.22, 2.68$) a' は時間とともに単調に減少し r_0 へと形状回復している. また, c は初め r_0 とほぼ同じ値をとり, いったん減少したのち増大して r_0 へと回復する. これは, 単一液滴にステップ状大変形を加えたときの形状回復と同じ挙動である. 合一が起こるとき ($d_0/r_0 = 2.29$) も合一するまでは合一しないときとほぼ同じ挙動を示し, せん断面に垂直方向からの観察では合一するときとしないときの液滴形状の違いを見出すことができなかった.

Fig.4に二つの液滴が重なっている部分をせん断面に垂直方向から観察したときの長さ l_{ov}' と a' との比 l_{ov}'/a' の時間依存性を示す. 合一が生じる場合を黒いプロットで, 合一が生じない場合を白抜きのプロットで示している. Fig.4より時間 $t = 0$ sでの l_{ov}'/a' が1.48以上のとき合一が生じており, 1.48以下では合一が生じていないことがわかる. したがって, l_{ov}'/a' を用いて合一の有無を上手く整理できる. l_{ov}'/a' が合一の有無を整理する良い基準となるのは, 液滴が重なっている部分では液滴間または液滴界面の間に流体力学的な引力が働き, 重なっていない部分では液滴がもう一つの液滴から離れて元の形に戻ろうとする力が働くためと考えられる. ここで言う流体

力学的な引力とは液滴の形状が変化することによりマトリクスに局所的な流れが生じたときに、生じた流れが液滴に及ぼす、液滴が互いに引き合う方向の力のことである。また、液滴が元の形に戻ろうとする力とは液滴が元の液滴の重心を中心とする球形に回復しようとする力であり、液滴の界面張力により液滴界面の法線ベクトルを等方的にしようとする力である。

さらに別の要因を考えると、曲率が大きくしたがつて単位体積あたりの界面積が局所的に大きい部分では合一が起こりやすいはずであり、合一には液滴の曲率が大きく関係しているはずである。2液滴の合一過程を単一液滴の形状回復⁷⁾と比較すると、合一が生じている時点では液滴が長軸を対称軸とする棒状または垂鈴状の回転体になっているはずであり、曲率を考えれば a' が大きいほど液滴の曲率が大きくなり合一が起こりやすくなるはずである。しかしながら、Fig.4では a' の増大とともに合一が生じにくくなっている。したがって、合一には曲率以外の要素が影響していると考えられる。

なお、用いるステップ状せん断ひずみの大きさをさらに広い範囲で変化させたときには l_{ov}/a' が1.48より小さくとも合一が生じることもあり⁸⁾、 l_{ov}/a' だけですべての合一を整理することはできないが、いずれにせよFig.4の結果は重要である。

結 論

ステップ状せん断大変形を二つの液滴に加えた際の形状回復を観察し、本論文の実験条件の範囲では、せん断面に垂直方向から観察したときの液滴の重なり部分の長さ l_{ov}' と液滴のみかけの半長軸の長さ a' との比によって液滴の合一の有無を整理できることを見いだした。

謝 辞

本研究を始めるにあたり京都工芸繊維大学繊維学部、高橋雅興教授より多くのご教示をいただきました。また、 l_{ov}'/a' と液滴間に働く力の関係について京都大学化学研究所、尾崎邦宏教授よりたいへん有益なご指摘をいただきました。両先生に厚く御礼申し上げます。

本研究の一部は泉科学技術振興財団研究助成 (H12-J-84) により行われました。

参 考 文 献

- 1) 久松徳郎, 中野 哲, 足立朋史, 清水恒明, 石川 優, 岩倉賢次, 成形加工, 12(5), 287(2000)
- 2) Hisamatsu T, Nakano S, Adachi T, Ishikawa M, and Iwakura K, *Polymer*, 41, 4803 (2000).
- 3) Okamoto K, Hisamatsu T, Nakano S, Adachi T, Shimizu T, Ishikawa M, and Iwakura K, in preparation.
- 4) Taylor GI, *Proc R Soc London*, A138, 41 (1932); Taylor GI, *Proc R Soc London*, A146, 501 (1934).
- 5) Tomotika S, *Proc R Soc London*, A150, 322 (1935); Elemans PHM, Hanssen JMH and Meijer HEH, *J Rheol*, 34, 1311 (1990).
- 6) Hayashi R, Takahashi M, Yamane H, Jinnai H, Watanabe H., *Polymer*, 42, 757 (2001); Graebling D, Muller R and Palierne JF, *Macromolecules*, 26, 320 (1993).
- 7) Yamane H, Takahashi M, Hayashi R, Okamoto K, Kashiara H, and Masuda T, *J Rheol*, 42, 567-580 (1998).
- 8) 岩井繁典, 岡本健三, 石川 優, 第49回レオロジー討論会講演要旨集, 193 (2001).