

平成 21 年 5 月 15 日現在

研究種目：基盤研究 (C)
研究期間：2007～2008
課題番号：19560173
研究課題名 (和文) 複合ジェット崩壊メカニズムと微小カプセル技術への応用
研究課題名 (英文) Breakup mechanism of a compound liquid jet and its application to micro-encapsulation techniques
研究代表者 吉永 隆夫 (YOSHINAGA TAKAO) 大阪大学・基礎工学研究科・准教授 研究者番号：40158481

研究成果の概要：

コア部と円筒部からなる複合液体ジェットの非線形現象を記述する方程式を新しく導出した。この方程式を用いた解析により、両界面での表面張力比のある範囲内においてカプセル化が行われるが、レイノルズ数が十分小さくなるとコア部の閉塞現象がカプセル化をさまたげることがわかった。また、実際に形成されるカプセルの特性が非線形の意味で最も不安定な攪乱周波数により決定されることを明らかにした。これらの結果は、今後必要となる更なる微小カプセルの生成に多くの知見を提供できる。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2008 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,300,000	690,000	2,990,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：ジェット，複合，カプセル，非線形，表面張力，崩壊

1. 研究開始当初の背景

近年、微小液滴や粒子などを芯物質として、これらを高分子などの膜で被覆した微小（マイクロ）カプセルが、工業、食品、医薬農薬などの多くの工業分野において用いられ、その有用性が認められつつある。このような微小カプセルの形成にはこれまで化学的な方法が主に用いられてきた。最近、このような方法に対して、二重又は多重円筒ノズルから放出される複合ジェットの不安定現象を用いることにより、より均一で滑らかなカプセルを大量に短時間で生成できることが期待されて

いる。

近年、このような複合ジェットによるカプセル化技術は急速に進歩しつつあり、芯物質や皮膜のいろいろな材質に対して研究が行われているが、そのほとんどが試行錯誤的な実験的方法による。現在のところ実用化が見込まれているカプセル径は数十マイクロメートル程度であり、将来、特に医薬品等の分野で必要とされているさらなる微小なカプセル形成に対しては、ノズルの設計やカプセル化の実験はさらに困難になることは容易に想像できる。

2. 研究の目的

本研究では、これまで実験的な研究が主であったカプセル化現象に関して、理論及び数値解析的な研究により、カプセル生成メカニズムの解明と適切なカプセル化予測を目的とし、将来の更なる微小カプセル生成のための開発の労力やコストを減らすことを目指している。問題を簡単にするため、二重円筒ノズルによる複合ジェットに焦点を絞り、これにより作られるコア流体部の円筒流体部によるカプセル化を調べる。このとき、粘性、密度、表面張力などの流体の性質や噴出速度、ノズル径、攪乱の大きさや波長、周波数などに対してカプセル形成がどのように起こるか、そしてその基本的なメカニズムや重要なパラメータが何であるかを明らかにする。

3. 研究の方法

解析モデルとして図1に示すようなコア部 ($0 < r < h_1$) 及び円筒部 ($h_1 < r < h_2$) からなる軸対称複合ジェットを考える。ここで、添え字 $j=1, 2$ はそれぞれコア部、円筒部を示し、 ρ_j, μ_j, σ_j はそれぞれ流体の粘性率、密度、表面張力を表す。 u_j, v_j は軸方向、半径方向速度成分を示し、 R, b は円筒部中央面半径及び厚み、 p_1, p_2, p_3 はコア部、円筒部圧力および周囲流体部圧力(一定)を示す。基礎方程式は連続の式、ナビエーストークス方程式であり、境界条件として内界面 ($r=h_1$)、外界面 ($r=h_2$) での運動学的条件と力学的条件を課す。これらの方程式に攪乱の波長がジェット径に比べて十分長いと仮定する長波近似を用いることにより、比較的簡単な非線形連立方程式を導出する。このようにして得られた方程式系を種々のパラメータに対して数値的に解くことにより、ジェットの崩壊やカプセル化の様子を調べることができる。特に、実際の現象がノズルから流出するジェットに与えられた攪乱が時空間的に増幅し、ノズルからの適当な距離で崩壊しカプセル化することに注意し、解析では方程式の初期境界値問題に対するジェットの時空間不安定性を調べる。

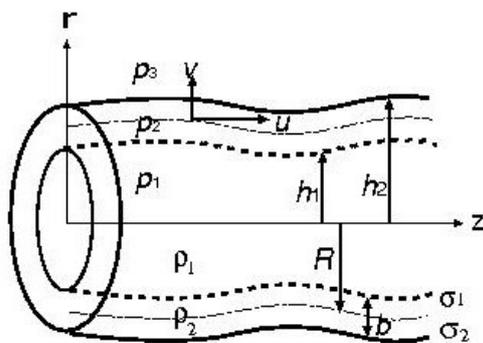


図1 複合ジェットの解析モデル

4. 研究成果

得られた結果を以下の四つの場合に分けて説明する：

(1) ジェット方程式の導出

コア部および円筒部の従属変数をそれぞれ、コア半径の二乗の冪と厚みの一乗の冪で展開する長波近似を用いて、各冪で整理し最低次の展開項を用いて、 b, R, u_1, u_2, v_2 に関する以下の発展方程式を得る：

$$\begin{aligned} \frac{\partial b}{\partial t} &= -\frac{\partial(bu_2)}{\partial z} - \frac{bu_2}{R}, \\ \frac{\partial R}{\partial t} &= v_2 - u_2 \frac{\partial R}{\partial z}, \\ \frac{\partial u_1}{\partial t} &= -u_1 \frac{\partial u_1}{\partial z} - \frac{1}{\rho} \frac{\partial p_1}{\partial z} \\ &+ \frac{\mu}{\text{Re}} \left[2 \frac{\partial^2 u_1}{\partial z^2} + 6 \ln\left(R - \frac{b}{2}\right) \frac{\partial u_1}{\partial z} \right], \\ \frac{\partial u_2}{\partial t} &= -u_2 \frac{\partial u_2}{\partial z} - \left(\frac{\partial P}{\partial z} - \frac{\Delta P}{b} \frac{\partial R}{\partial z} \right) \\ &+ \frac{\mu}{\text{Re}} [\Lambda] + \frac{1}{\text{Re}} [\Lambda], \\ \frac{\partial v_2}{\partial t} &= -u_2 \frac{\partial v_2}{\partial z} - \frac{\Delta P}{b} + \frac{\mu}{\text{Re}} [\Lambda] + \frac{1}{\text{Re}} [\Lambda] \end{aligned}$$

一方、コア部圧力 p_1 は次式で表される

$$A_1 \frac{\partial^2 p_1}{\partial z^2} + A_2 \frac{\partial p_1}{\partial z} + A_3 p_1 + A_4 = 0$$

ここで、無次元数としてウェバー数 $Wb (= \rho h_2 u_2^2 / \sigma)$ 、レイノルズ数 $Re (= \rho h_2 u_2 / \mu)$ 、および密度比、粘性比、表面張力比 $\rho (= \rho_1 / \rho_2)$ 、 $\mu (= \mu_1 / \mu_2)$ 、 $\sigma (= \sigma_1 / \sigma_2)$ が導入されている。また、 $P = (p_1 + p_3) / 2 - (\sigma \kappa_1 + \kappa_2) / (2Wb)$ 、 $\Delta P = -(p_1 - p_3) + (\sigma \kappa_1 + \kappa_2) / Wb$ であり、 $[\dots]$ 内、および A_j ($j=1, 4$) は従属変数の微分を含む複雑な式である。上式は一定流速 ($u_1 = u_2 = U, v_1 = v_2 = 0$)、一定半径 ($h_1 = h_1, h_2 = h_2, p_1 = p_1$) のジェットに対して p_3 は次式で与えられる：

$$p_1 = p_3 + \frac{1}{Wb} \left[\frac{\sigma}{R - b/2} + \frac{1}{R - b/2} \right].$$

ここで、 $R = (h_2 - h_1) / 2$ 、 $b = h_2 - h_1$ で、表面張力の影響で p_1 は p_3 よりも常に大きい。以下では、このような平衡状態に $t > 0$ 、 $z = 0$ で速度攪乱を与えた場合、どのようにしてジェットが崩壊しカプセル化が行われるかを典型的なパラメータの場合について見ていく。

(2) 液-液複合ジェットのカプセル化
 コア・円筒両部が液体の場合、界面での粘性効果のため平衡状態ではコア、円筒両部の流速は等しい。ここでは、 $\underline{u1}=\underline{u2}=1$, $\underline{h2}=1$, $\underline{h1}=0.5$, $\rho=\mu=1$, $Wb=50$ として、実験結果 (Hertz & Hermanrud, 1983) との比較から速度攪乱を $u1=1+0.0005\sin 1.47t$ で与える。図2は、 $Re=\infty$ (非粘性) のとき、異なる表面張力比 σ に対する崩壊形状の違いの解析結果を示してい

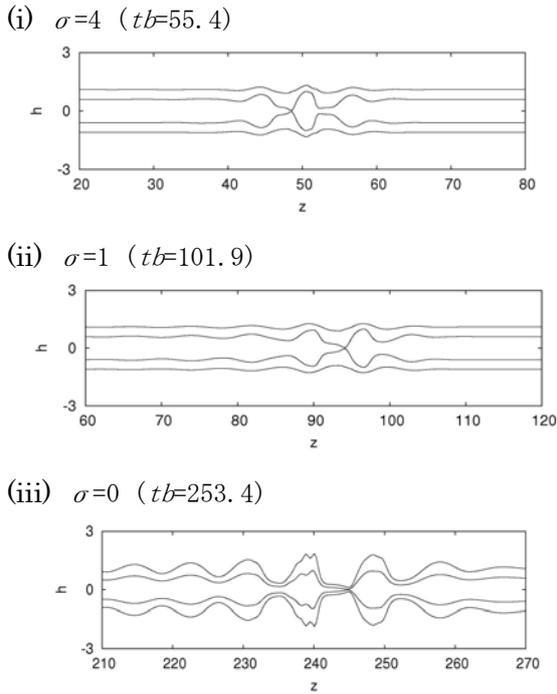


図2 異なる σ に対する崩壊形状 ($Re=\infty$)

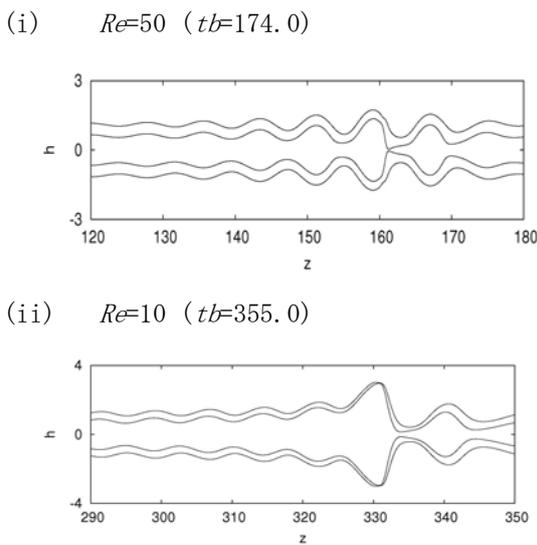


図3 異なる Re に対する崩壊形状 ($\sigma=1$)

る。 σ が大きいほど内界面での表面張力が外界面よりも大きくなることから、コア部の不安定による崩壊が円筒部よりも速やかである。そのため、図(i)に示すようにコア部のみが液滴状になってしまいカプセル化はうまく行われない。この傾向は $\sigma=1$ の図(ii)の場合も同様である。しかし、図(iii)のように0 (媒質1, 2は同種) になるとコア、円筒両部が不安定性のためほぼ同時期に崩壊しカプセル化が行われるが、内界面での形状は不安定である。このため、内界面での表面張力は0ではないが十分小さくなるような材料 ($0 < \sigma \ll 1$) を選ぶことが重要である。線形理論からは σ が大きくなるほど不安定性が強くなることしかわからないが、そのことは崩壊時間 tb の違いに現れてきている。

次に、 Re による崩壊形状の違いについてみる。ジェットのような自由界面の問題では Re の影響は通常大きく現れないが、複合ジェットの場合図3に示すように比較的小さな Re ではその効果が大きく現れる。 $\sigma=1$ のとき図では Re が小さくなるにつれて崩壊時間 tb が増加している。さらに、ある程度 Re が小さくなると (ii) 図よりわかるようにコア部崩壊付近で上流部にバルーニング現象が強く見られる。これは、コアジェット収縮部での流速増加が粘性効果のため円筒部に抑えられた結果、コア流れの閉塞現象が起こり、円筒部が大きく膨れ上がることを示している。このため、 Re が小さくなった場合、 σ の影響とは別のカプセル形成に対する問題点が現れる。このように、カプセル形成のためには σ , Re のパラメータを適切に選ぶ事が重要である。

(3) 気-液複合ジェットのカプセル化
 次に、実際に形成されるカプセルの生成周期と大きさをジェットの数式を用いて評価する。例として、コア部が気体で円筒部が液体のような ρ が十分小さい場合を考える。比較のための実験 (Kendall, 1986) では、円筒部流速に対してコア部の流速を増加させることにより、自然発生的なカプセル形成周期が短くなるとともに、カプセル径が大きくなることが観察されている。このような実験に対して、コア流体の運動を仮定しない現象論的モデル (Lee & Wang, 1986, 1989) により、限られた場合ではあるが、カプセル生成周期や径の大きさが予測されているが、そのメカニズムに関しては明らかではない。実験との比較のためにパラメータは以下のように設定している： $\rho=0.001$, $\sigma=1$, $\underline{h1}=0.625$, $\underline{h2}=1$, $\underline{u2}=1$, $Wb=26.9$, $Re=\infty$ 。解析では平衡解に $t > 0, z=0$ で $\underline{u1,2}=\underline{u1,2} + \eta \sin(\omega t + \phi)$ のような攪乱を $\eta=0.05, 0.0005$ と位相差 $\phi=0, \pi$ に対して加える。数値解析では、各 $\underline{u1}/\underline{u2}$ に対する崩壊時間 tb が最小になるような ω を求める。このような ω は非線形の意味で最も不安定な

攪乱周波数であり、現実の自然発生的なカプセル化現象に最も影響を及ぼすと仮定できる。図4に、種々の \bar{u}_2/\bar{u}_1 に対する ω の値の変化を示す。図では $\phi=0, \pi$ に対して崩壊距離がより短くなる周波数 ω が採用されている。図より η のどちらの場合も速度比が大きくなるにつれて ω も大きくなるが、 η が大きいほど全体的に ω は大きくなっている。実験による測定結果○印は $\eta=0.05$ の場合とよく一致している一方、現象論モデルによる結果□印は $\eta=0.0005$ の結果とよく一致している。 η の大きさはコア流速に加えられた攪乱の大きさであるので、より大きな攪乱は ω を大きくするといえる。このことは、コア流体の運動を考慮していない現象論的モデルの結果で η が小さい場合の数値解と一致することと矛盾しない。

一方、形成される球殻の大きさに関しては、形成周波数 ω から形成周期長さ λ が $2\pi u_2/\omega$ で決定されることから、最終的に形成される球殻の体積は、コア部と円筒部の速度差を考慮した長さ λ の一様なジェットの体積にほぼ等しいと見積もることができる。図5に外半径 R_1 、内半径 R_2 及び $\lambda/2$ の速度比に対する変化が示されている。図で η が大きい場合(実線)のほうが λ の値が全体的に小さくなり(実線)、その結果形成される球殻半径も小さくな

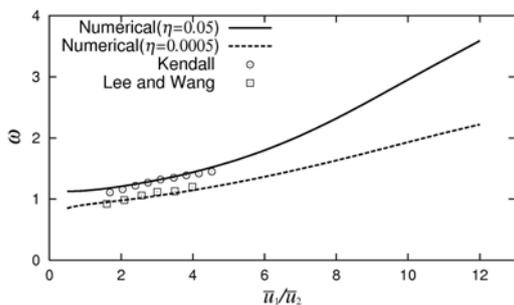


図4 速度比に対する殻形成周波数の変化

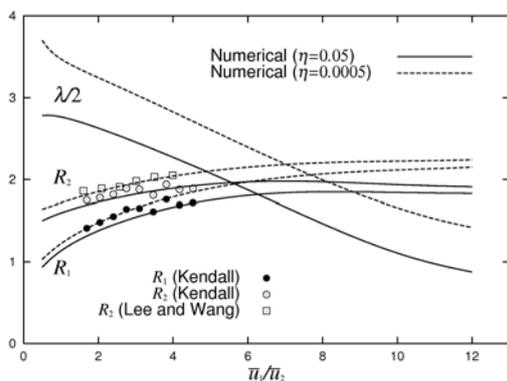


図5 速度比に対する球殻形成波長 λ と球殻の外半径 R_1 と内半径 R_2

る(実線)。しかしながら、 η のいずれの場合も速度比が大きくなると球殻半径および厚みは一定値に近づく傾向にある。 R_1, R_2 の実験値●, ○印および R_2 のモデルによる結果□印は、共に数値計算結果とよい一致を示していることがわかる。また、球殻形成周期長さ λ に関しては、球殻が数珠繋ぎにならないためには少なくとも $\lambda/2 > R_1$ となる必要がある。そのため、球殻が分離して生成されるためには、速度比は少なくともこれらの曲線が交差する位置での速度比よりも小さくなくてはならないことがわかる。そのような臨界速度比は約6であり、その値以上では実験データが得られていないことからこの結果は妥当であるといえる。

このように、球殻形成周期より球殻の大きさが決定されるが、そもそも形成周期は攪乱周波数のうちの最も不安定な周波数成分により決定され、その周期長さで径が決定される。これが球殻形成の基本的なメカニズムであるといえる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計3件)

①吉永隆夫, 複合ジェットの安定性に及ぼす速度不連続の影響, 京都大学数理解析研究所講究録, 出版予定, 2009, 無し

②T. Yoshinaga and M. Maeda, Instability and encapsulation of a compound liquid jet, Journal of Fluid Science and Technology (Special Issue on Jets, Wakes and Separated Flows), 2009, in press, 有り

③吉永隆夫, 菅健太郎, 円筒ジェットのカプセル化現象に及ぼす粘性の影響, 京都大学数理解析研究所講究録, 1594, 66-76, 2008, 無し

〔学会発表〕(計9件)

①吉永隆夫, 気液複合ジェットにおける液体殻形成, 日本物理学会, 2009. 3. 28, 立教大学

②吉永隆夫, 複合ジェットの非線形安定性とカプセル形成周期, 非線形テクノサイエンス, 2009.3.4, 大阪大学

③T. Yoshinaga, Instability and breakup process of a compound liquid jet, Symposium on Trends in Applications of Mathematics to Mechanics, 2008. 9. 24, トレント(イタリア)

④T. Yoshinaga and M. Maeda, Instability and Encapsulation of a Compound Liquid Jet, The 2nd International Conference on Jet, Wakes and Separated Flows, 2008. 9. 16, ベルリン工科大学(ドイツ)

⑤吉永隆夫, 粘性複合ジェットの定式化と安定性, 日本流体力学会年会, 2008.9.7, 神戸大学

⑥吉永隆夫, 粘性複合ジェットの定式化と崩壊現象, 日本物理学会, 2008. 3. 24, 近畿大学

- ⑦吉永隆夫, 複合ジェットの定式化, 非線形テクノサイエンス, 2008. 3. 3, 大阪大学
- ⑧吉永隆夫, 複合ジェットの不安定性とカプセル化, 第13回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム, 2007. 12. 5, 東京農工大学
- ⑨吉永隆夫, 菅健太郎, 円筒ジェットのカプセル化に及ぼす非ニュートン粘性の影響, 日本流体力学年会, 2007. 8. 8, 東京大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉永 隆夫 (YOSHINAGA TAKAO)
大阪大学・基礎工学研究科・准教授
研究者番号: 40158481

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

無し