

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年3月31日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560177

研究課題名（和文）

複合ジェットによるカプセル生成に及ぼす非ニュートン粘性とマランゴニー効果の影響

研究課題名（英文）

Effects of Non-Newtonian viscosity and Marangoni on producing of capsules by using a compound jet

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（和文）：

コア部と円筒部からなる複合ジェットにおいて、高分子溶液などを用いた場合現れる非ニュートン粘性の効果や、表面張力の制御のために用いる界面活性剤の濃度変化によるマランゴニー現象による効果が微小カプセル生成にどのような影響を与えるかを調べた。特に、低レイノルズ数領域で現れる円筒部が大きく膨らむバルーニング現象による破断に対して、高分子などの擬塑性流体の場合、内界面の表面張力やウェバー数が十分小さい場合を除けば、ニュートン流体やダイラタント流体などに比べてより破断しやすくなることがわかった。

研究成果の概要（英文）：

On producing liquid micro-capsules by using a compound liquid jet which consists of core and annular phases, effects of non-Newtonian viscosity in a polymer liquid and Marangoni effects due to locally varying concentration of a surfactant are investigated. In particular, disintegrations of the annular phase due to the ballooning phenomena appearing in a low Reynolds number region become worse when the viscosity is pseudo-plastic comparing with Newtonian and dilatant, except for sufficiently low Weber numbers and inner surface tension.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	500,000	150,000	650,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	1,500,000	450,000	1,950,000

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：非線形、表面張力、ジェット、非ニュートン粘性、マランゴニー、崩壊、カプセル、不安定

## 1. 研究開始当初の背景

液体ジェットの安定性の問題は古くから理学・工学における代表的な問題の一つであるだけでなく、工業的にも液体の微細化技術に関連して燃料噴射、スプレー、乾燥粉末や丸

薬製剤等において重要である。このようなジェットによる液体の微細化には、表面張力や周囲流体との速度シェアによりノズル付近の攪乱が不安定化され増幅し、最終的にジェット崩壊を導いたり微細粒子が形成された

りする。  
 とところで近年、微小液滴や粒子などを芯物質とし、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（インクジェットプリンターや液晶など）、食品（人工イクラなど）、医学（人工血液、細胞など）、医薬農薬（持続放出性や局所集中性薬品、香り物質カプセルや化粧品）など多くの分野において用いられ、またその有用性が期待されている。従来このような微小カプセルは、微小粒子を適当な媒質中に分散させ各々を膜で化学的に被覆する手法（界面重合法や界面沈殿法）が主に用いられてきた。しかしこのような方法では、カプセル化は比較的容易である反面カプセル径や膜厚さなどのコントロールが難しく、また用いることのできる芯物質も制限され、さらにカプセル形成に時間を要するなどの欠点がある。一方、二種類の流体からなる同軸の円筒部とコア部からなる複合ジェットを用いることにより、コア部流体の円筒部流体によるカプセル化が可能であることが知られている。この場合、ノズルの設計や流出条件、粘性や表面張力など流体の特性をうまく設定してやれば、化学的な方法に比べて均一で継ぎ目のない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できる。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る。特に、医薬品の分野では、親水性の芯物質を親油性の保護物質で包むだけでなく、多重円筒ノズルなどを用いて、さらに何層かの被膜溶液で覆って、芯物質の効果発生の時間をうまく調節するなどの方法が試みられている。しかし、このようなカプセル化に関する研究は、その解析は容易ではないため僅かな理論的研究を除き、ほとんど試行錯誤で実験的に調べられているのが現状である。そのような状況の下で、現在のところ実用化が見込まれているのはカプセル径が 0.1mm 程度までであるが医薬品、化粧品等においてはさらに微少なカプセル化が求められている。そのためのノズルの作製やカプセル化の実験はさらに困難になることは容易に予想でき、カプセル化に関する理論的、数値解析的な研究による形成メカニズムの解明と生成条件の予測は、将来の開発の労力やコストを十分減らせると期待できる。

最近、我々はカプセル化のメカニズムやカプセル生成条件等について、長波近似を用いた理論解析を行い、以下のことを明らかにした：(i)コア部がガスの気-液複合ジェットの場合、ジェット本来の強い不安定性のためノズルでの攪乱のコントロールが難しく、カプセル生成周期や形状は主にウェバー数（慣性力と表面張力の比）とコア-円筒部の流速比により決定される。ジェットの時空間発展の非線形解析による生成周期の予測は実験結果と

良い一致を示す。(ii)コア部が液体の液-液複合ジェット場合、不安定化は比較的遅いが、コア部での表面張力が円筒部外部の表面張力に比べて大きくなると、コア部がより早く不安定化してカプセル化できなくなる。時空間発展解析では、カプセル化可能なコア部の臨界表面張力を見積もることができた。(iii)液-液複合ジェットでレイノルズ数が十分小さい場合、コア最細部でコア流体の閉塞現象が現れ、その結果上流での円筒部のバルーニング現象が起き大きく膨れ上がり、最終的には円筒部が破断する可能性があること等が示された。

## 2. 研究の目的

これまでの非線形解析によりカプセル生成メカニズムはかなり明らかになってきたが、適切なカプセル化のためにはコア-円筒部間での表面張力を十分小さく抑え（同じ流体の場合には表面張力は0になる）、また低レイノルズ数になり過ぎるとコア流体の閉塞現象が現れることに注意しなくてはならない。このことは、自由にコア部や円筒部の流体を選ぶことができず、また微少なカプセルの形成時には円筒部の破断が現れる可能性があることを示唆している。一方、実際のカプセル生成では流体に高分子溶液などが用いることが多いため、変形が大きくなるにつれて粘性の低下が予想される。また適切なカプセル化のために界面活性剤などを用いて表面張力を低下させることも考えられる。

そこで、本研究では高分子などの非ニュートン粘性と界面活性剤の濃度分布により引き起こされるマランゴニー特性の影響が微小カプセル生成にどのような影響を及ぼすかを調べる。最も簡単な二重円筒ノズルによる複合ジェットに焦点を絞り、従来の解析に加えて非ニュートン粘性とマランゴニー効果を考慮した解析を行い、カプセル化に重要なパラメータ値とその範囲を明らかにし、詳しいカプセル形成条件を求めることを最終的な目標とする。

## 3. 研究の方法

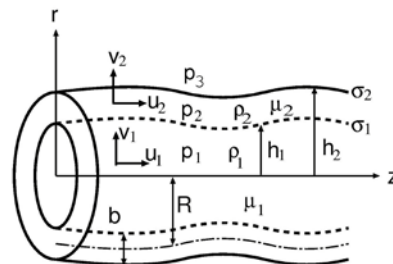


図1. 軸対称複合ジェットの解析モデル

図1に示すような $(z, r)$ 軸対称系で複合ジェ

ットのモデルを考える。流速，圧力，密度，粘性率，表面張力などの諸量をコア，円筒部に対して添え字  $j=1, 2$  で表す。また，円筒部中心面半径及び厚みを  $R, b$  で表す。さらに周囲気体の運動は考えず，一定圧力  $p_3$  のみ作用しているものとする。また，崩壊までの時間・距離が短いとして重力の影響は無視する。

まず，非ニュートン粘性を考えるため，粘性率  $\mu_j$  がひずみ速度  $\dot{\gamma}$  により変化する以下の Carreau モデルを導入する：

$$\mu_j = \mu_{0j} \left[ 1 + (\alpha_j \dot{\gamma}_j)^2 \right]^{\frac{(n-1)}{2}}. \quad (1)$$

ここで，パラメータは通常  $0 \leq \alpha_j \leq 10$ ,  $0 \leq n \leq 2$  を取り， $n=1$  はニュートン流体， $n < 1$  擬塑性流体， $n > 1$  はダイラタント流体を示す。 $\dot{\gamma}$  はひずみ速度であり，流速ベクトル  $\mathbf{u}_j = (u_j, v_j)$  を用いて以下のように表される：

$$\dot{\gamma}_j = \left[ 2 \left( \frac{\partial v_j}{\partial r} \right)^2 + 2 \left( \frac{v_j}{r} \right)^2 + \left( \frac{\partial v_j}{\partial z} + \frac{\partial u_j}{\partial r} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial u_j}{\partial z} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (2)$$

一方，界面活性剤により表面張力  $\sigma_j$  が以下のように表されると仮定する：

$$\sigma_j(\Gamma_j) = \sigma_{0j} [1 + \beta_j \ln(1 - \Gamma_j)]. \quad (3)$$

ここで， $\Gamma_j$  は界面活性剤の単位面積あたりの表面濃度， $\beta_j$  は活性度を示し，活性剤は界面にのみ分布し内部に溶け込まないとする。このとき，表面張力は界面濃度の減少関数である。

基礎方程式は各層 ( $j=1, 2$ ) での連続の式とナビア-ストークス方程式であるが，粘性項は(1)式を考慮した記述に注意する必要がある。さらに，内界面，外界面それぞれに課される境界条件は，運動学的条件(内界面での速度連続  $\mathbf{u}_1 = \mathbf{u}_2$  の式を含む)と，力学的条件である。特に力学的条件では，界面の法線方向成分が圧力の不連続量，粘性応力や表面張力との釣り合いを示し，応力テンソル  $\mathbf{T}$ ，界面での単位法線，接線ベクトル  $\mathbf{n}, \mathbf{s}$ ，曲率  $\kappa$  を用いて以下のように示される(添え字は省略)：

$$[\mathbf{Tn}] = \sigma \kappa \mathbf{n} - \mathbf{s}(d\sigma/ds). \quad (4)$$

ただし， $[\mathbf{Tn}]$  は界面でのとびを表す。また，界面活性剤の表面濃度  $\Gamma_j$  は界面の変形による面積の増減と局所的な流速変動などに依存して変化する。活性剤の全質量は一定であることから， $\nabla \mathbf{s} = \nabla - \mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \nabla)$ ， $\mathbf{u}_s = \mathbf{u} - \mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{u})$ ， $\mathbf{u}_n = \mathbf{u} \cdot \mathbf{n}$  とするとき，濃度変化

は以下の方程式で記述される：

$$\left[ \frac{\partial \Gamma}{\partial t} + \mathbf{u}_n(\mathbf{n} \cdot \nabla) \Gamma \right] + \nabla \mathbf{s} \cdot (\mathbf{u}_s \Gamma) + \Gamma \mathbf{u}_n \nabla \mathbf{s} \cdot \mathbf{n} = 0. \quad (5)$$

このようにして得られた基礎方程式及び境界条件に以下の長波近似を用いる；

コア部：

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_1 &= \mathbf{u}_1^{(0)} + r^2 \mathbf{u}_1^{(2)} + \dots \\ p_1 &= p_1^{(0)} + r^2 p_1^{(2)} + \dots \end{aligned}$$

円筒部：

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_2 &= \mathbf{u}_2^{(0)} + \mathbf{u}_2^{(1)}(r-R) + \mathbf{u}_2^{(2)}(r-R)^2 + \dots \\ v_2 &= v_2^{(0)} + v_2^{(1)}(r-R) + v_2^{(2)}(r-R)^2 + \dots \\ p_2 &= p_2^{(0)} + p_2^{(1)}(r-R) + p_2^{(2)}(r-R)^2 + \dots \end{aligned}$$

コア部半径および厚みの高次項を無視するとにより，以下のような非線形方程式系を得る(マランゴニー効果は無視した場合)：

$$\frac{\partial b}{\partial t} = -\frac{\partial(bu_2)}{\partial z} - \frac{bv_2}{R} \quad \frac{\partial R}{\partial t} = v_2 - u_2 \frac{\partial R}{\partial z}$$

$$\frac{\partial u_1}{\partial t} = -u_1 \frac{\partial u_1}{\partial z} - \frac{1}{\rho} \frac{\partial p_1}{\partial z}$$

$$\frac{\partial u_2}{\partial t} = -u_2 \frac{\partial u_2}{\partial z} - \left( \frac{\partial P}{\partial z} - \frac{\Delta P}{b} \frac{\partial R}{\partial z} \right) + f_2$$

$$\frac{\partial v_2}{\partial t} = -u_2 \frac{\partial v_2}{\partial z} - \frac{\Delta P}{b} + f_3,$$

(6)

さらに，コア部と円筒部の運動を結び付ける

$$A_1 \frac{\partial^2 p_1}{\partial z^2} + A_2 \frac{\partial p_1}{\partial z} + A_3 p_1 + A_4 = 0 \quad (7)$$

を得る。ここで，粘性項  $f_1, f_2, f_3$  は

$$f_1, f_2, f_3 \propto 1/\text{Re}, (\partial \dot{\gamma}^2 / \partial z) / \text{Re}, (\partial \dot{\gamma}^2 / \partial r) / \text{Re}$$

で表される  $\text{Re}$  の複雑な関数であり，以下の無次元パラメータが導入されている：

$$\begin{aligned} \text{We} &= \rho_2 \bar{h}_2 \bar{u}_2^2 / \sigma_{02}, \quad \text{Re} = \rho_2 \bar{h}_2 \bar{u}_2 / \mu_{02}, \\ \rho &= \rho_1 / \rho_2, \quad \mu = \mu_{01} / \mu_{02}, \quad \sigma = \sigma_{01} / \sigma_{02}. \end{aligned}$$

このようにして得られた方程式系は，強い非線形の連立偏微分方程式であるため，解析解は求めることはできず数値的に解く必要がある。

#### 4. 研究成果

解析は半無限ジェットに対して、ノズル出口  $z=0$  で正弦攪乱を与えた場合の崩壊の様子を調べた。以下のすべての結果は、それぞれの流れパラメータに対して、崩壊時間が最小になるような攪乱周波数を与えたときの結果を示している。自然なカプセル形成ではこの条件が有効であることがすでに我々により示されている。以下では、紙面の都合上、非ニュートン粘性の効果について述べるにとどめる。まず、図2にニュートン粘性での典型的な崩壊形状を示す。図2(a)は  $Re=395$ ,  $\sigma=0.1$ , (b)は  $Re=395$ ,  $\sigma=2.6$ , (c)は  $Re=10$ ,  $\sigma=2.6$  の場合を示す。図(a), (b)より内界面での表面張力が小さくなるにつれて、崩壊は単層ジェットの場合と同様になる。一方、図(c)より  $Re$  が十分小さく場合には、コア部の閉塞現象が見られ、閉塞上流部で円筒部が大きく膨らみ(ballooning), 最終的には円筒部の破断が起こることが示されている。

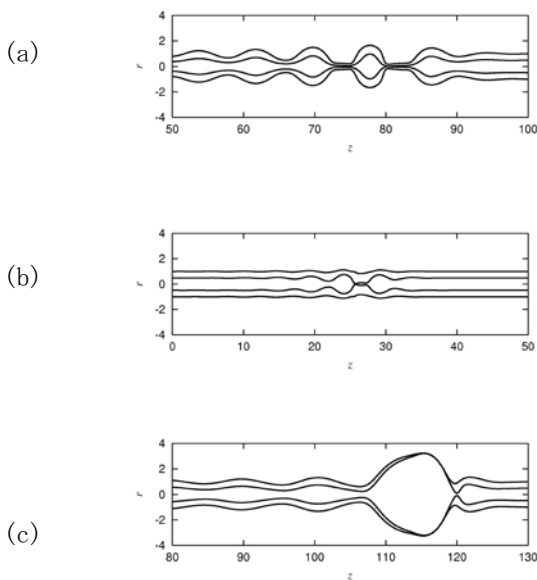


図2 半無限複合ジェットの典型的な崩壊

上で示した崩壊に対して、非ニュートン粘性の影響は  $Re$  が小さいときのみ顕著に表れることがわかった。そのとき、典型的な崩壊形状は図3(a)に示すようなバルーニング現れることなく円筒部の破断する場合(切れる), 図(b)の円筒部が閉じる場合(閉じる), 図(c)の円筒部が大きく膨らむバルーニングの場合(膨らむ)の3種類であることがわかった。図3での(a)切れる, (b)閉じる, (c)膨らむの3つの崩壊パターンをそれぞれ $\Delta$ ,  $\bullet$ ,  $\circ$ で示すとき, 図4では, 異なる  $n$  に対して, これらの崩壊パターンが  $We$  と  $\sigma$  をパラメー

タとした時, どのように分布するかを示している。図では  $Re=10$  とし, (a) $n=0.2$ , (b) $n=1$ , (c) $n=1.8$  と選んでいる(ただし,  $\alpha=10$ )。

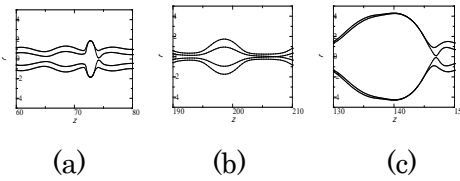


図3 典型的な崩壊パターン

図より分かるように, 小さな  $Wb$  や  $\sigma$  の領域を除いて, 非ニュートン粘性の影響は顕著である。  $n$  が大きくなるにつれて, 切れる( $\Delta$ )やバルーニング( $\circ$ )による崩壊から, 閉じる( $\bullet$ )による崩壊に変化することが分かる。その結果, 実際のカプセル形成に使われることが予想される高分子材料の場合, 擬塑性流体( $n<1$ )であるので, ニュートン流体( $n=1$ )やダイラタント流体( $n>1$ )で予想されるよりより破断しやすく, カプセル化が妨げられる傾向にあるといえる。

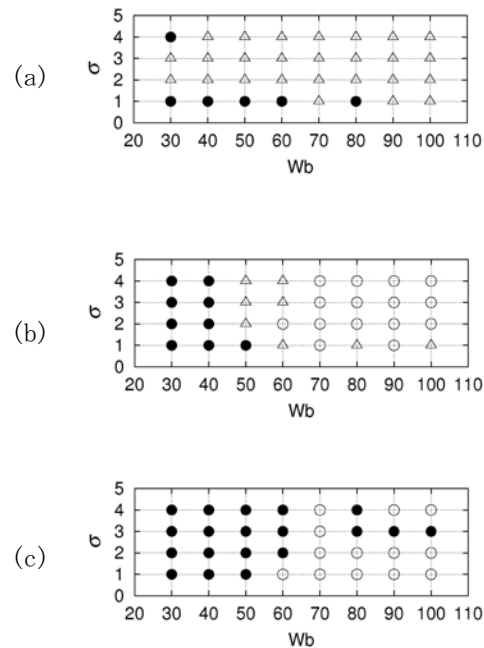


図4  $n$  の違いによる崩壊パターンの分布 (a) $n=0.2$ , (b) $n=1$ , (c) $n=1.8$ .

#### 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18件)

- ① T. Yoshinaga and T. Nakajima, Effects of transverse disturbances on disintegration of a planar liquid jet,

- Theoretical and Applied Mathematics, Japan, 60 (2011) pp.63-72 (査読有り)
- ② T.Yoshinaga and K.Yamamoto, Nonlinear Instability and Breakup of a Viscous Compound Liquid Jet, J. Fluid Science Technology, 6 (2011) pp.477 - 486 (査読有り).
- ③ T.Yoshinaga, ENCAPSULATION AND DISINTEGRATION OF A GAS-CORED ANNULAR LIQUID JET, Proceedings of ASME-JSME-KSME Joint Fluid Engineering Conference 2011 (Hamamatsu, Japan), AJK2011-10040 (査読有り)
- ④ T.Yoshinaga and K.Yamamoto, Nonlinear Instability and Breakup of a Viscous Compound Liquid Jet, Proceedings of 3rd International Conference on Jets, Wakes, and Separation Flows (2010, Cincinnati, Ohio, USA) Abstract 及び CD-ROM (査読有り).
- ⑤ 吉永隆夫, 絶対・対流不安定領域における液体ジェット崩壊の崩壊, 京都大学数理解析研究所講究録1701 (2010) pp.47-50. (査読無し)
- ⑥ T.Yoshinaga and M.Maeda, Instability and Encapsulation of a Compound Liquid Jet, J. Fluid Science Technology, 4 (2009) 324 - 334. (査読有り)
- ⑦ 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1645 (2009) pp.241 - 247. (査読無し)
- ⑧ T.Yoshinaga and M.Maeda, Nonlinear Instability and Encapsulation of a compound Liquid Jet, Proceedings of 11th International Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, (2009, Vail Colorado), CD-ROM. (査読有り)

[学会発表] (計22件)

- ① 吉永隆夫, 松本和樹, 複合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, 日本物理学会, 2012.3.25, 関西学院大学 (兵庫県).
- ② T.Yoshinaga, Nonlinear Instability and Breakup of a Viscous Compound Liquid Jet, 3rd International Conference on Jets, Wakes, and Separation Flows, 2010.9.28, シンシナチ, USA.
- ③ 吉永隆夫, 3次元攪乱に対する落下する平面ジェット崩壊の破断, 日本流体力学会, 2011.9.8, 首都大学東京 (東京都)
- ④ T.Yoshinaga, Encapsulation and Disintegration of a Gas-Cored Annular Liquid Jet, Proc. AJK2011-FED (12<sup>th</sup>

- International Symposium on Gas-Liquid Two-Phase Flows), 2011.7.26, 浜松ACTCITY 会議場 (静岡県)
- ⑤ 吉永隆夫, 液体円柱ジェットにおける攪乱の上流伝播モードの安定性, 日本物理学会, 2011.3.25, 新潟大学 (新潟県)
- ⑥ 松本和樹, 吉永隆夫, 複合ジェットの安定性に及ぼす非ニュートン粘性の効果, 日本流体力学会, 2011.3.19, 京都工業繊維大学 (京都府)
- ⑦ 吉永隆夫, 粘性複合ジェットの非線形安定性と崩壊, 日本機械学会流体工学部門講演会, 2010.10.30, 山形大学 (山形県)
- ⑧ 吉永隆夫, 半無限液柱ジェットの対流・絶対不安定と崩壊過程, 日本物理学会, 2010.3.21, 岡山大学 (岡山県)
- ⑨ 吉永隆夫, 絶対不安定から対流不安定への遷移における流体ジェット崩壊, 日本流体力学会, 2009.9.3, 東洋大学 (東京都)
- ⑩ T.Yoshinaga, Nonlinear instability and encapsulation of a compound liquid jet, International Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, 2009.7.28, コロラド, U S A

[その他]  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

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

### (2) 研究分担者 ( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者 ( )

研究者番号：