

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 26 日現在

機関番号：12401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560917

研究課題名(和文) 同心二重マイクロノズルより生成する複合液滴の数値解析

研究課題名(英文) Numerical Analysis of Compound Droplet Formation from a Co-Axial Dual Nozzle

研究代表者

本間 俊司 (HOMMA, Shunji)

埼玉大学・理工学研究科・准教授

研究者番号：90219246

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：流路の設計指針や最適な操作条件を見出すことを目的とし、同心二重ノズルからの液滴生成に関する数値シミュレーションを行い以下の知見を得た：外部流体を加速するためにノズル前方に配置したオリフィスの径によって、液滴生成モードが変化する。外部流体を加速するためにノズル前方に配置したオリフィスの長さは、液滴生成にほとんど影響がない。外部流体の流量を制御することによって、複合液滴の生成モードが変化する。殻流体の流量がある一定値を超えると液滴径が急に大きくなり、その大きさは元の液滴体積の整数倍である。外部流体の流量がある一定値を超えると液滴径が急に大きくなり、その大きさは元の液滴体積の整数倍である。

研究成果の概要(英文)：The formation of compound droplets from a co-axial dual nozzle, where core and shell fluids are imposed, is simulated numerically by a three-fluid front-tracking method. The modes of droplet formation depends on the diameter of the orifice ahead of the nozzle, the flow rate of the shell fluid, and that of the external fluid. The volume of core droplet as well as compound droplet itself suddenly increases as the flow rate of shell fluid increases beyond a critical value. The flow rate of shell fluid can be one of the control parameters for the size of compound droplets.

研究分野：化学工学、数値流体力学

キーワード：Compound Droplet Numerical Simulation Front-Tracking Dual Nozzle

1. 研究開始当初の背景

近年、マイクロ流体工学の技術を応用し、マイクロノズルと外部流体の流れを利用した均一で微小な液滴を生成する技術が開発された (例えば Anna, S. L., et al., *Appl. Phys. Letters*, **82**, 364 (2003)). この技術では、外部流体の流れによってジェットを生成させ、その先端から液滴を分裂させるため、マイクロノズルの径よりずっと小さな液滴の生成が可能である。さらにノズルを交換することなく外部流体の流速を制御することによって液滴径を制御できる利点がある。この技術を応用すれば単分散のエマルション生成が可能で新しい材料の開発とその応用技術に発展する可能性がある。

我々は、この技術による液滴生成の直接数値シミュレーションに成功し、物性値、ノズルなどの寸法、外部流体の速度を与えることで実験することなく液滴生成を計算機上で再現し、液滴生成の合理的な設計指針を見出した (Homma, S., et al., *J. Chem. Eng. Japan*, **43**, 7 (2010)). 界面の移動を含む流体のシミュレーションには、界面運動を精度良く計算でき、自由界面流れのシミュレーションに定評のある **Front-Tracking** 法を用いている。

一方、同心二重ノズルを用いれば微小で単分散の複合液滴が生成可能で非常に小さなマイクロカプセルの製造技術へと応用できる。複合液滴とは、液滴の中に別の不混和性の液体が核として存在するもので、核に医薬品を装填することによりドラッグデリバリーシステムを構築できるなど、粒子に様々な機能を持たせることが可能な液体粒子である。これまで、同心二重ノズルを用いて気体中にミリメートルサイズの粒子を生成させる技術は確立されているが、最近、マイクロメートルサイズの複合液滴を液体中に生成する技術が開発された (Utada, A. S., et al., *Science*, **308**, 537 (2005)).

この技術では、同心二重ノズルの外側に外部流体も流入させ、条件を変化させることによって様々な種類の複合液滴が生成できる。しかしながら、ノズルの寸法、液体の物性値、およびその流入条件、など設計指針や操作条件が明確ではない。そのため、経験による試行錯誤での装置製作が中心であった。また、流路幅が 10~100 μm のオーダーであり、試行錯誤や経験を中心とした開発では製作コストの増大を招く恐れがある。そこで、数値シミュレーションによって同心二重ノズルからの液滴生成を再現し、流路の設計指針や最適な操作条件を見出すことがコスト削減の面でも望ましい。本研究ではこの数値シミュレーション技術の開発およびシミュレーションによる合理的な液滴生成条件を見出すことを目的とした。

2. 研究の目的

同心二重マイクロノズルから生成する複合液滴の数値解析を実施し、その生成条件を

明らかにすることによって、均一なマイクロカプセル製造の合理的な設計指針を与えることを目的とする。また、数値実験の結果から複合液滴の生成機構を明らかにし、さらに効率的な複合液滴生成装置の設計に寄与することを目的とする。

3. 研究の方法

界面の追跡のアルゴリズムとして **Front-Tracking** 法を用いた数値計算コードを開発し、それを利用して流量や物性値などの条件を変えた数値実験を実施する。既に関済みの二流体の軸対称液滴生成のための数値計算コードを三流体同時に扱えるように変更し、軸対称複合液滴の生成に関する数値実験を実施する。

図 1 に解析体系の概略を示す。内径 R_{co} のノズルから密度 ρ_{co} 、粘度 μ_{co} の核流体を平均速度 v_{co} で、内径 R_{sh} のノズルから密度 ρ_{sh} 、粘度 μ_{sh} の殻流体を平均速度 v_{sh} でそれぞれ流入させる。さらに、内径 R_{out} の外管から密度 ρ_{out} 、粘度 μ_{out} の外部流体を平均速度 v_{out} で流入させる。また、外部流体を加速させるため、厚さ L_2 の円盤状の壁 (オリフィス) を計算領域内に配置した。このオリフィス径 $R_{orifice}$ を変化させ複合液滴の生成シミュレーションを行った。

両流体を非圧縮性 Newton 流体と仮定すると、一流体モデルにおける支配方程式は以下の連続の式および Navier-Stokes 式となる。

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \tag{1}$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho \mathbf{u} + \nabla \cdot \rho \mathbf{u} \mathbf{u} = -\nabla P + \nabla \cdot \mu (\nabla \mathbf{u} + \nabla \mathbf{u}^T) + \rho \mathbf{g} + \int_f \sigma \kappa \mathbf{n}_f \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_f) dA_f \tag{2}$$

ここに、 A は界面の面積、 f は界面、 \mathbf{n}_f は界面の法線ベクトル、 \mathbf{x}_f は位置ベクトル、 δ はデルタ関数、 κ は曲率、 σ は界面張力である。式 (1) および (2) は二次元軸対称座標上で有限差分近似し **MAC** 法で解く。界面の移動は **Front-Tracking** 法で追跡する。

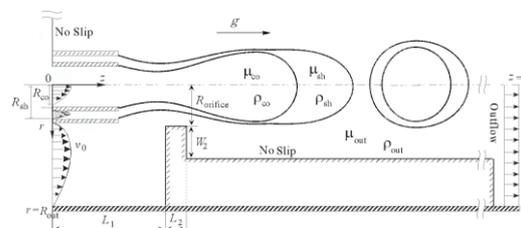


図 1 解析対象の模式図

4. 研究成果

平成 24 年度は、軸対称の複合液滴生成シミュレーションコードを開発し (Homma, S., et al., *J. Chem. Eng. Japan*, **47**, 195 (2014).)、その数値実験を行い、流路設計の指針となる以

下の知見を得た：①外部流体を加速するためにノズル前方に配置したオリフィスの径によって、液滴生成モードが変化する（図2）。②外部流体を加速するためにノズル前方に配置したオリフィスの長さは、液滴生成にほとんど影響がない（図3）。③外部流体の流量を制御することによって、複合液滴の生成モードが変化する（図4）。

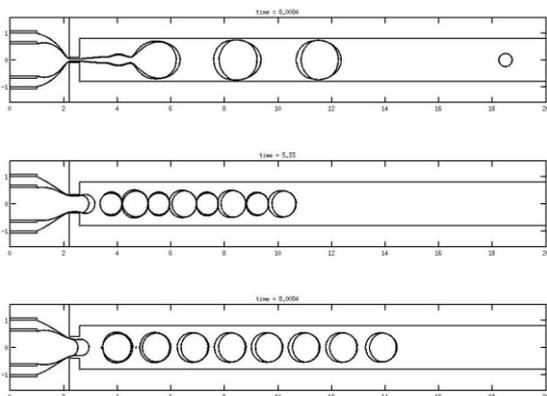


図2 オリフィスの径を変化させたときの複合液滴生成の様子：(上) $R_{\text{orifice}}/R_{\text{sh}}=0.1$
(中) $R_{\text{orifice}}/R_{\text{sh}}=0.35$ (下) $R_{\text{orifice}}/R_{\text{sh}}=0.4$

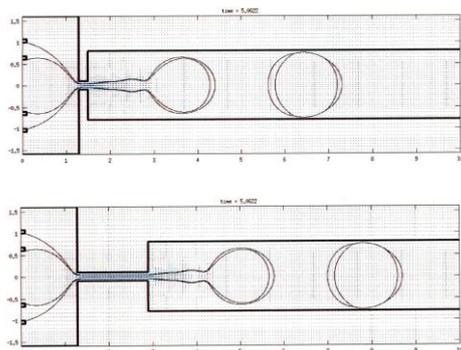


図3 オリフィスの長さを変化させた時の液滴生成の様子: $R_{\text{orifice}}=0.1$ (上) $L_2=0.2$ (下) $L_2=1.6$

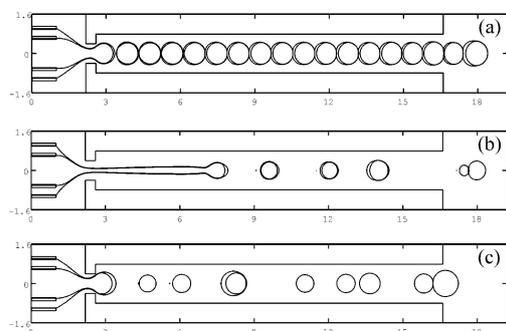


図4 流量を変化させた時の液滴生成の様子:
(a) $We_{\text{co}}=1.18 \times 10^{-2}$, $We_{\text{sh}}=1.44 \times 10^{-4}$, $We_{\text{out}}=2.52 \times 10^{-3}$
(b) $We_{\text{co}}=1.18 \times 10^{-2}$, $We_{\text{sh}}=1.44 \times 10^{-4}$, $We_{\text{out}}=1.33 \times 10^{-1}$
(c) $We_{\text{co}}=1.18 \times 10^{-4}$, $We_{\text{sh}}=6.40 \times 10^{-5}$, $We_{\text{out}}=1.33 \times 10^{-3}$
(ただし、 $We=2Rv_0^2\rho/\sigma$)

平成25年度は、殻流体（マイクロカプセル作成の際、芯物質を包む流体）の流量が複合液滴生成に与える影響の調査を行った。その結果、①殻流体の流量(Q_{sh})がある一定値を超えると液滴径が急に大きくなること、②その大きさは元の液滴体積の整数倍であることが確認された（図5）。これらのことから、複合液滴の生成は、界面張力波の成長による分裂機構が支配的であることが明らかとなった。

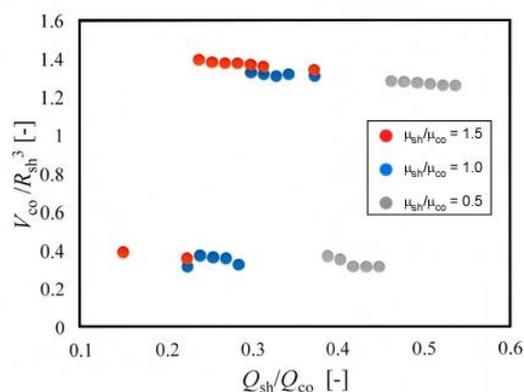


図5 Shell-Core流量比と液滴径との関係

平成26年度は、外部流体の流量が複合液滴の生成に与える影響を調査した。その結果、殻流体と同様に①外部流体の流量がある一定値を超えると液滴径が急に大きくなること、②その大きさは元の液滴体積の整数倍であることが確認された。これらのことから、外部流体の流量も液滴径を制御する変数として利用できることがわかった。

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 Homma, S., Moriguchi, K., Kim, T., Koga, J., Computations of Compound Droplet Formation from a Co-axial Dual Nozzle by a Three-Fluid Front-Tracking Method, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, Vol. 47, No. 2, pp. 195-200 (2014). DOI:10.1252/jcej.13we125
- ② Vu, T. V., Homma, S., Tryggvason, G., Wells, J. C., Takakura, H., Computations of Breakup Modes in Laminar Compound Liquid Jets in a Coflowing Fluid, *International Journal of Multiphase Flow*, Vol. 49, pp. 58-69 (2013). DOI:10.1016/j.ijmultiphaseflow.2012.10.004
- ③ Vu, T. V., Wells, J. C., Takakura, H., Homma, S., Tryggvason, G., Numerical Calculations of Pattern Formation of Compound Drops Detaching from a Compound Jet in a Co-flowing Immiscible Fluid, *Journal of*

[学会発表] (計 13 件)

- ① 佐藤太治, 馬場諒馬, シヤザハナニ, 本間俊司, 古閑二郎, 液液系における単一液滴の上昇シミュレーション, 化学工学会第 80 年会, 芝浦工業大学 (東京都・江東区), 2015 年 3 月 19 日~21 日.
- ② 佐藤太治, 本間俊司, 古閑二郎, 液液系における単一液滴の運動に関する数値シミュレーション, 化学工学会新潟大会, 新潟大学 (新潟県・新潟市), 2014 年 11 月 22 日~23 日.
- ③ Homma, S., Kim, T., Koga, J., Compound Droplet Formation with Flow Focusing, 2nd International Symposium on Multiscale Multiphase Process Engineering (MMPE2014), Hamburg (Germany), 2014 年 9 月 24 日~27 日.
- ④ 本間俊司, キムテソン, 古閑二郎, フロー・フォーカシングによる複合液滴の生成機構, 化学工学会第 46 回秋季大会, 九州大学 (福岡県・福岡市), 2014 年 9 月 17 日~19 日.
- ⑤ 本間俊司, キムテソン, 古閑二郎, Flow Focusing によるマイクロカプセル生成の数値シミュレーション, 混相流シンポジウム 2014, 道民センター「かでの 2・7」(北海道・札幌市), 2014 年 7 月 28 日~30 日.
- ⑥ 本間俊司, 古閑二郎, 液液系、液滴生成における Dripping-Jetting 遷移, 化学工学会第 79 年会, 岐阜大学 (岐阜県・岐阜市), 2014 年 3 月 18 日~20 日.
- ⑦ Homma, S., Computations of Compound Droplet Formation in a Flow Focusing Device (招待講演), 5th Asia Pacific Congress on Computational Mechanics (APCOM2013), Singapore (Singapore), 2013 年 12 月 11 日~14 日.
- ⑧ キムテソン, 本間俊司, 古閑二郎, 二重ノズルから生成する複合液滴のシミュレーション, 化学工学会第 45 回秋季大会, 岡山大学 (岡山県・岡山市), 2013 年 9 月 16 日~18 日.
- ⑨ Vu, T. V., Takakura, H., Wells, J. C., Homma, S., Tryggvason, G., Formation of a Laminar Compound Jet and Its Breakup into Compound Droplets (招待講演), 化学工学会第 78 年会, 大阪大学 (大阪府・豊中市), 2013 年 3 月 17 日~19 日.
- ⑩ 本間俊司, 森口公太, キムテソン, 古閑二郎, 複合液滴の生成シミュレーション, 化学工学会第 44 回秋季大会, 東北大学 (宮城県・仙台市), 2012 年 9 月 19 日~21 日.
- ⑪ Kim, T., Homma, S., Koga, J., Computations of Compound Drop Formation: The Effect of

a Slit on the Size of Resulting Compound Droplets, International Workshop on Process Intensification in Fluid and Particle Engineering, (IWPI2012), Seoul (Korea), 2012 年 11 月 8 日~9 日.

- ⑫ Vu, T. V., Wells, J. C., Takakura, H., Homma, S., Tryggvason, G., Numerical Simulations of Dripping – Jetting Transition of Laminar Capillary Compound Jets in a Co-flowing Outer Fluid, The 8th KSME-JSME Thermal and Fluids Engineering Conference, Incheon (Korea), 2012 年 3 月 18 日~21 日.
- ⑬ Vu, T. V., Wells, J. C., Takakura, H., Homma, S., Tryggvason, G., Computations of Compound Capillary Jets, International Conference on Advances in Computational Mechanics (ACOME - 2012), Ho Chi Minh City (Vietnam), 2012 年 8 月 14 日~16 日.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

○取得状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
取得年月日:
国内外の別:

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

本間 俊司 (HOMMA, Shunji)

埼玉大学大学院・理工学研究科・准教授

研究者番号: 9 0 2 1 9 2 4 6