

凹凸型マイクロ流路内における交互流の数値解析

西山 真由・平井 貴大^{*}・平野 博之^{*}

岡山理科大学 大学院 工学研究科 修士課程 応用化学専攻

^{*}岡山理科大学 工学部 バイオ・応用化学科

(2018年10月30日受付、2018年12月6日受理)

1. 緒言

代表径が1 mm以下の流路はマイクロ流路とよばれ、とくに化学反応や化学分析などの分野において注目されている。これは、マイクロ流路を用いることで、化学反応を含む化学工業に関わる各種プロセスにおいて、従来のマクロスケールのときよりも効率が向上する場合があるため、たとえば成書¹⁻³⁾において数多く報告がある。マイクロ流路を化学分野で応用したいわゆるマイクロ化学チップでは、電気分野でいうマイクロチップとの対比として、配線の代わりに細い溝、電子の代わりに液体、電源の代わりにポンプ、スイッチの代わりにバルブ、演算の代わりに化学反応というように、それぞれの部品を置き換えて考えることができる。このような特徴を有するマイクロ流路を化学に関わる諸プロセスに応用した多機能のマイクロ化学チップは、化学分野のほかにも、医療、生産、環境、食品などの生活全般に関わる分野でも利用されている。この際、マイクロ化することの利点として、マクロスケールにおける操作に比べて、装置の軽量化、薄化、短縮化、小型化を実現できることが挙げられる。

このようにマイクロ流路は、化学工業をはじめとした広い分野で用いられているが、工学的にいうと、その最大の特徴は、流路を流れている流体については慣性力よりも粘性力の方が大きく、流動様相が層流であるということである。したがって、流体の流れを制御しやすいといえる。流体の伝熱特性についても、流体の体積に対する流路壁面との接触面積の割合として定義される、いわゆる比界面積が大きくなるので、温度制御を容易かつ正確に行えるという利点も有する。また、実際の現場においても、マイクロ化によるスケール効果により重力の影響が小さくなるため、密度に影響されない多様な配管設計や分離が可能であるなど非常に実用的な利点もある。

上述のとおり、さまざまな分野で利用されているマイクロ化学チップの主要なパーツであるマイクロ流路において、流路を流れる流体の流動様相を知ることがプロセスの効率に大きく関わるために非常に重要であるといえる。とくにマイクロ化は界面張力などの面積力の影響の増大をもたらすため、マイクロ特有の流動様相が発現することが知られている。なかでも特徴的な流れが、多相系において観察される交互流とよばれるものである。これは、気体と液体、あるいは相溶性のない複数の種類の液体をマイクロ流路で合流させることで、それぞれの流体の相が細かなセグメントとなって交互に流れるものである。交互流はセグメント流、スラグ流、あるいはプラグ流などともよばれる。交互流においては、セグメント長さが短くなるほど界面積が増大することとなるため、例えば抽出などにおける物質移動が促進される。さらにセグメント生成時あるいは生成後におけるセグメント内部での渦によっても物質移動が促進される。このように、交互流を用いることで得られる、相間の界面積の増大や渦を効果的に利用することで化学工業をはじめとした分野において各種効率の向上が期待できる。

本研究の目的は、マイクロ化学チップの主要な部分であるマイクロ流路を化学工業的に応用するにあたり、流路内の流動様相に関する知見を数値解析的観点から得ることにある。本研究では、上述したマクロスケール特有の流動様相の一つである交互流に着目する。取り上げたのは、水相と有機相という相溶性のない2種類の液体である。交互流の利点としてセグメント長さを短くすることによる界面積の増大と渦生成を挙げたが、ここでは渦について着目する。とくにマイクロ流路の壁面を菱形と楕円型として凹凸をつけ、界面付近に生じる渦について検討した。化学工業的な利用を考える上で、物質移動は非常に重要な要素であるが、とくに相界面における物質移動を考えると、界面近傍で渦が生じることによる対流の効果によって、物質移動の効率が飛躍的に向上すると考えられる。こうしたマイクロ流路内における物質移動を検討するにあたっては、とくに瞬時の濃度変化を実験的に可視化し定量化することは極めて困難である。その点においても、数値解析の果たす役割は大きいといえるが、界面を通しての物質移動のモデル化など課題も多いため、本研究ではまず、流動様相について数値解析を行う。

2. 計算方法

数値解析には、オープンソースコードとして広く知られているOpenFOAM (Open Source Field Operation and Manipulation)^{4,5)}を用いた。OpenFOAMは、本研究でも取り上げる流体の数値計算をはじめとした偏微分方程式の解法に用いられるC++言語で記述されたツールボックスである。具体的には、偏微分方程式において現れる各種の演算子などを定義しているサブルーチン群である。そして対象とする系について、たとえば流体解析であれば、偏微分方程式で表された支配方程式を考え、そこに含まれる演算子に相当するサブルーチンを組み合わせ、問題としている系の初期条件、境界条件、物性値、格子刻みや時間刻みなどの計算条件、離散化に関わる現象のモデル化において必要となる定数などとともに解を求めることとなる。

本研究において取り上げるのは、凹凸型の壁面を有するマイクロ流路であるが、凹凸形状としてまず菱形を取り上げた。具体的な計算に用いた菱形流路の概要と、計算格子を図1に示した。凹凸の形状としては、すでに可視化実験などで、交互流におけるセグメントが継続的に形状を変えることで各種効率の向上が期待できる形(特許第5504526号)とし、これを図1(a)に示した。この形状をもとにして、格子サイズの目安を0.05mmとし、計算格子を作成し図1(b)に示した。いずれにおいても、奥行き方向(厚み)は0.3mmである。これに加え、図1をもとに楕円形流路についても計算格子を作成し、合わせて2種類の計算格子を用いて交互流の計算を行った。

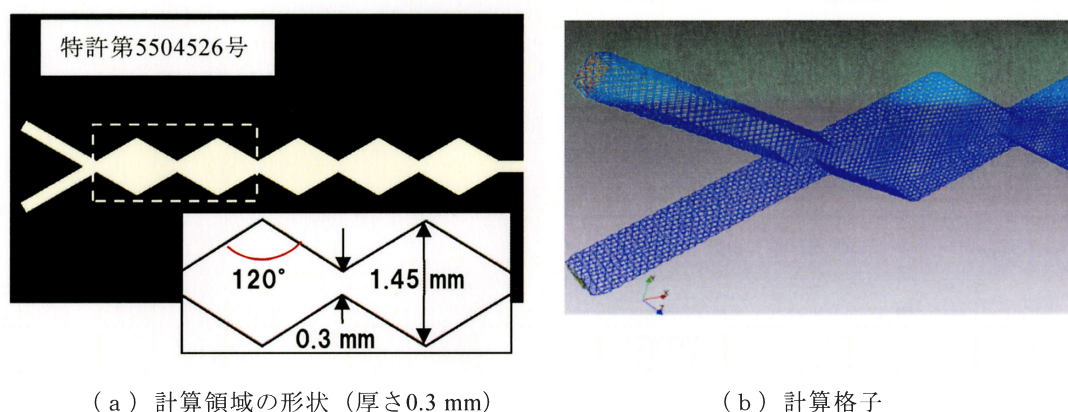


図1 計算領域と計算格子(菱形流路)

計算にあたってはある程度現実的な系を想定した。本研究では2種類の相溶性のない液体として水とシクロヘキサンを取り上げ、これらの物性値を与えた。ここで用いた物性値を表1に示した⁶⁾。なお、流路壁面と流体との接触角の値として、流路壁面に疎水性を想定した計算を行った。実際の実験においては、接触角は用いる流体と流路壁面の化学的性質の組み合わせによって決まる。これら物性値以外で計算に必要な条件のうち重要な計算時間間隔は、OpenFOAMにある設定のひとつであるクーラン数 (Courant Number) Co を0.05から0.5とし、この値をもとにして自動的にプログラムで求まる値を用いた。流体の速度としては、流入口で0.01 mL/minにて両液体の体積流量を等しい値とした。これらをもとに、OpenFOAMにあるmultiphaseInterFoamを用いて交互流の解析を行った。

表1 計算に用いた物性値

	水 water	シクロヘキサン cyclohexane
密度 kg/m ³	1000	779
粘度 Pa s	0.001	0.00102
接触角 degree	120	60
界面張力 N/m	0.0478	

3. 支配方程式

本研究では多相流を扱うが、現象の基礎となる支配方程式はそれぞれの相における連続の式と運動方程式である。実際の数値解析においては、水相あるいは有機相かによって、これらの支配方程式に含まれる物性値を変えて与える。これに関連して相の区別は、片相の質量分率がゼロか1かに応じて、それぞれの相を識別する。通常は、質量分率のかわりに、ゼロか1のいずれかの値をとるような便宜的な変数としてのカラー関数 C を用いることが多く、これに関する保存式を加えて支配方程式とする。この保存式は、移動現象論的に行くと、2成分系における対流拡散方程式（Fickの拡散第2法則）において、拡散係数をゼロとして拡散項を無視したものと等価であると考えることができる。

3-1 有次元で表された支配方程式

本研究において必要となる支配方程式を有次元の2次元系で表すと以下のようになる⁷⁾。

・カラー関数

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial(uC)}{\partial x} + \frac{\partial(vC)}{\partial y} = 0 \quad (1)$$

・連続の式

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \quad (2)$$

・運動方程式

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\mu}{\rho} \left(\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right) + \frac{1}{\rho} f_{vx} \quad (3)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial y} + \frac{\mu}{\rho} \left(\frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \right) + \frac{1}{\rho} f_{vy} \quad (4)$$

・物性値

$$\rho = \rho_o + C(\rho_w - \rho_o) \quad (5)$$

$$\mu = \mu_o + C(\mu_w - \mu_o) \quad (6)$$

カラー関数 C を用いることで、物性値は式(5)、(6)のように表すことができ、これらを加えた式(1)-(6)までを支配方程式として考える。ここで取り上げるモデルに関しては、すでにWang *et al.*⁸⁾が無次元化を行っている。

さらにここでは、 $C=1$ はwater phaseを、 $C=0$ はorganic phaseを、それぞれ表すものとする。 $\vec{f}_v = (f_{vx}, f_{vy})$ は、界面張力の効果を表す項であり、取り扱いやすいように単位体積あたりに働く力として定義されたものである。しかしながら、このままでは具体的な解析には不十分であるため、 $\vec{f}_v = (f_{vx}, f_{vy})$ をさらに変形する必要がある。ここでは、界面張力を考慮した解析に広く用いられるCSF(Continuum Surface Force)モデル⁹⁾を用いて、具体的に無次元化を行う。CSFモデルでは、 $\vec{f}_v = (f_{vx}, f_{vy})$ を以下のように表す。

$$\vec{f}_v = \sigma \kappa \frac{\rho}{(\rho_w + \rho_o)/2} \nabla C \quad (7)$$

$$\kappa = -\nabla \cdot \hat{n} \quad (8)$$

$$\hat{n} = \nabla C \quad (9)$$

$$\hat{n} = \frac{\nabla C}{|\nabla C|} \quad (10)$$

$$\kappa = -\nabla \cdot \hat{n} = -\left\{ \frac{\partial}{\partial x} \left[\frac{\frac{\partial C}{\partial x}}{\sqrt{\left(\frac{\partial C}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial C}{\partial y}\right)^2}} \right] + \frac{\partial}{\partial y} \left[\frac{\frac{\partial C}{\partial y}}{\sqrt{\left(\frac{\partial C}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial C}{\partial y}\right)^2}} \right] \right\} \quad (11)$$

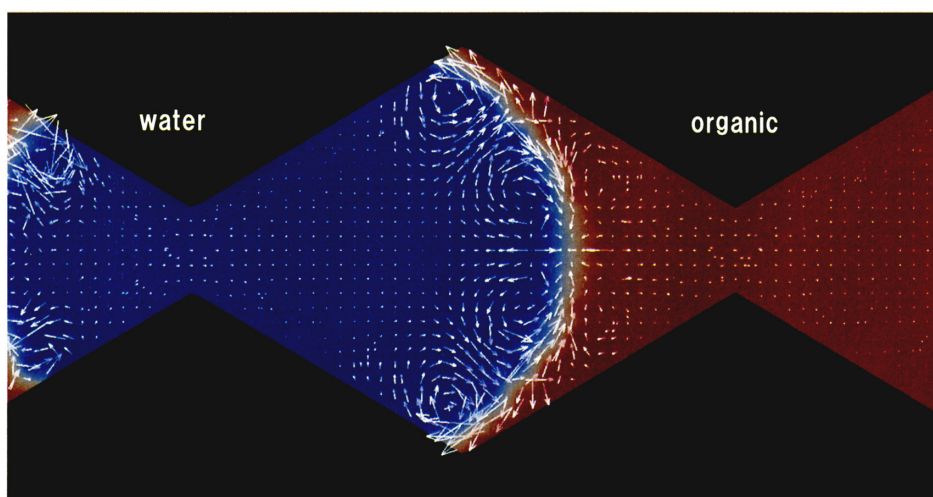
ここに、 σ は界面張力[N m⁻¹]、 κ は局所平均曲率[m⁻¹]、 \hat{n} は界面における法線単位ベクトルを表す。これにより、 $\vec{f}_v = (f_{vx}, f_{vy})$ は、界面張力とカラー関数を用いて具体的に以下のように表すことができる。

$$\vec{f}_v = -\sigma \frac{\rho}{(\rho_w + \rho_o)/2} \left\{ \frac{\partial}{\partial x} \left[\frac{\frac{\partial C}{\partial x}}{\sqrt{\left(\frac{\partial C}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial C}{\partial y}\right)^2}} \right] + \frac{\partial}{\partial y} \left[\frac{\frac{\partial C}{\partial y}}{\sqrt{\left(\frac{\partial C}{\partial x}\right)^2 + \left(\frac{\partial C}{\partial y}\right)^2}} \right] \right\} \nabla C \quad (12)$$

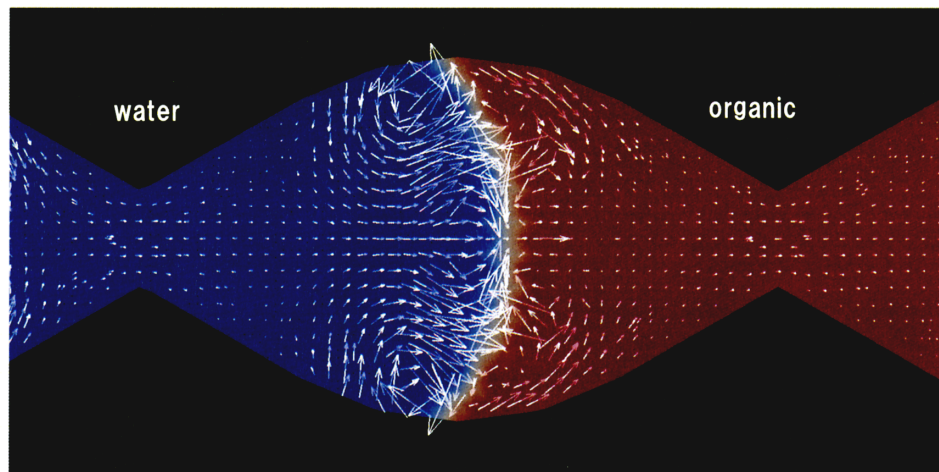
4. 結果および考察

本研究は、数値解析的な内容であるが、これに対応した実験を行った結果、水相と有機相のうち、界面形状に丸みを帯びる相（接触角が大きくなる相）は、実験条件によりいずれの場合もあった。ここでは水相の接触角を 120° とし、流入口における両流体の体積流量を 0.01 mL/min としたときの計算を行った。計算結果を図2に示した。図2 (a) は菱形流路のとき、図2 (b) は楕円形流路のときである。いずれの場合も、両相の界面付近において複数の渦を確認できる。図2 (a) においては水相側に4つを、図2 (b) においても同様に4つ確認できる。時間が進行するにしたがって界面積も変化しセグメントの長さにもよるが、壁面に凹凸を設けることで、ここで取り上げた菱形および楕円型流路を用いる限りは、常に複数の渦がセグメントの形を変えつつ生成される。図2 (c) には流路壁面に凹凸を設けた場合の結果の比較として、一辺が 0.3 mm の正方形断面を有する直線型流路内で生じる交互流の計算結果を示した。これより界面で生じている渦の個数は、それぞれの相において2つであることがわかる。またこの場合、一旦交互流が生成すると、その後はセグメントの形状が変化することはない。

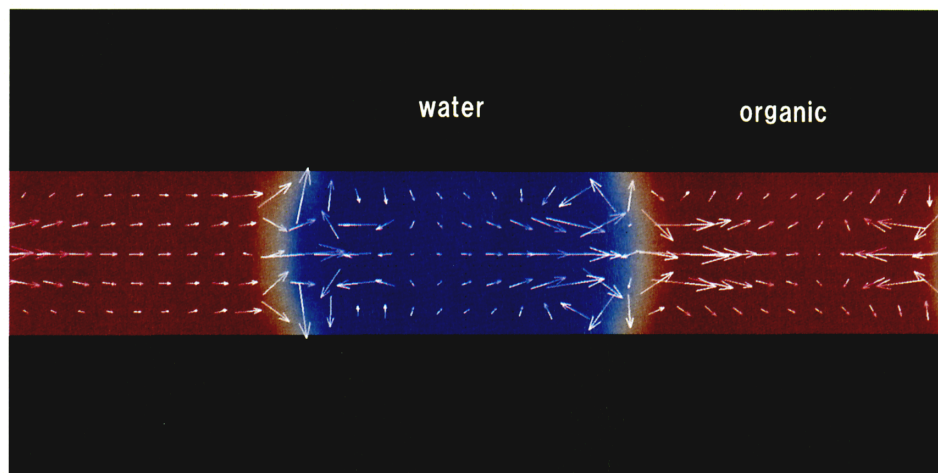
壁面に凹凸をつけず、直線型の流路にした計算結果については、すでに報告¹⁰⁾もあり、交互流形成後は界面の形状は常に同じで変わらないため、渦の個数は各相において常に2つしかない。これに対して、本研究で取り上げたように壁面に凹凸を設けると、界面積が常に変化するため渦の生成が促進されることで複数の渦が生成すると考えられる。したがって、流路壁面に凹凸を設けることの最大の利点は、各相において渦を複数生成させることができること、界面積が常に変化することの2点であるといえる。こうした渦の生成は、分子の衝突などをもたらすため化学反応の高効率化が、また分子輸送も活発となるため化学工学における諸プロセスとりわけ抽出などの高効率化が期待できる。



(a) 菱形流路内における交互流



(b) 楕円型流路内における交互流



(c) 直線流路内における交互流

図2 壁面に凹凸を設けた場合の交互流の数値解析結果

5. 結言

相溶性のない水相と有機相 (cyclohexane)の2種類の液体から成る液-液二相系について、それぞれをマイクロ流路内において合流させて生じる交互流をOpenFOAMを用いて数値解析を行った。流路として、流路壁面に凹凸を設けた菱形と楕円形流路を用い解析を行った結果、各々の相のセグメントは常に形を変えらるとともに、二相の界面積も変化することで界面付近には常に複数の渦が生成することがわかった。したがって、壁面に凹凸を有する流路を用いることで、化学工業などの各種プロセスにおける各種効率の向上が期待できると考えられる。

謝辞

本研究は岡山理科大学プロジェクト研究推進事業 (H30年度) の支援を受けて行われた。記して謝意を表す。

参考文献

- [1] Ehrfeld W., V. Hessel and H. Löwe: *Microreactors -New Technology for Modern Chemistry-*, Wiley-VCH, Weinheim (2000)
- [2] Geschke O., H. Klank and P. Tellemann: *Microsystem Engineering of Lab-on-a-Chip Devices*, Wiley-VCH, Weinheim (2004)
- [3] Hessel V., H. Löwe, A. Müller and G. Kolb: *Chemical Micro Process Engineering -Processing and Plants-*, Wiley-VCH, Weinheim (2005)
- [4] <http://www.openfoam.org>
- [5] <http://wpedia.goo.ne.jp/enwiki/OpenFOAM>
- [6] Matsuno H., H. Hirano, T. Nakagawa, X. Wang and N. Okamoto: Alternating Flow of Immiscible Liquids in Microchannel, *Asia-Pac. J. Chem. Eng.*, 7 (Suppl. 1), S48–S53 (2012)
- [7] 平野博之, 松野弘貴, 中川智博, 岡本直孝, 王 嫻: マイクロ流路内における二相流の無次元化, *岡山理科大学紀要*, 46A, pp.57–65 (2010)
- [8] Wang X., H. Hirano and N. Okamoto: Numerical investigation on the two-phase flow in a Y-shaped micro-channel, *ANZIAM J.*, 48, C963–C976 (2008)
- [9] Brackbill J.U., D. B. Kothe and C. Zemach: A continuum method for modeling surface tension, *J. Comp. Phys.*, 100, 335–354 (1992)
- [10] 松野弘貴, 平野博之, 岡本直孝, 桑木賢也: OpenFOAMを用いたマイクロ流路内における交互流の数値解析, *岡山理科大学紀要*, 48A, pp.41–47 (2013)

Nomenclature

C	: color function	[-]
d	: width of channel	[m]
f_v	: body force	[N/m ³]
H	: height of domain	[m]
\vec{n}	: normal vector on interface	[m]
p	: pressure	[Pa]
t	: time	[s]
$\vec{v} = (u, v)$: velocity vector and its components	[m/s]
W	: width of domain	[m]
(x, y)	: coordinate	[m]
Greek letters		
μ	: viscosity	[Pa s]
σ	: surface tension, interfacial tension	[N/m]
ρ	: density	[kg/m ³]
κ	: curvature	[1/m]
Subscripts		
o	: organic phase	
w	: water, aqueous phase	

Numerical Computation of Alternating Flow in Microchannel with Rugged Wall

Mayu NISHIYAMA, Takahiro HIRAI* and Hiroyuki HIRANO*

Department of Applied Chemistry, Graduate School of Engineering,

** Department of Applied Chemistry and Biotechnology, Faculty of Engineering,*

1-1 Ridai-cho, Kita-ku, Okayama 700-0005, Japan

(Received October 30 2018; accepted December 6, 2018)

This article is on the numerical analysis and its verification of the two-phase alternating flow of the aqueous and organic phases in the microchannel with rugged wall. As for the numerical analysis, OpenFOAM is adopted to solve the equations of continuity, motion and the color function which. This is one of the well-known open source codes and is widely used in the numerical study of the multiphase flow. The CSF (continuum surface force) model is adopted to calculate the interfacial force, and this model is also widely used in the numerical study on the interface between phases. It is concluded that the two-phase alternating flow can be reproduced by the numerical computation, and some vortices were induced around the interface by changing the shape of the segment and the interfacial area. This supports that the microchannel with the rugged wall would be effective for the increase of the efficiencies such as the chemical reaction and other processes in chemical engineering.

Keywords: alternating flow; microchannel; two-phase flow; numerical calculation; OpenFOAM.

