多孔質体の内部構造と流れ特性に関する研究*

大 桐 邦 夫^{*1}, 稲 葉 武 彦^{*2}, 山 口 康 隆^{*2}Study on the Inner Structure and the Flow Characteristics
of Porous MediaKunio OGIRI, Takehiko INABA^{*3} and Yasutaka YAMAGUCHI^{*3} Department of Mechanical Engineering, Osaka University,
2-1 Yamadaoka, Suita-shi, Osaka, 565-0871 Japan

When developing tailored porous media, accurate assessment of the flow characteristics is essential. A numerical simulation is an effective method characterizing the properties of porous media, provided it precisely evaluates the effect of the structure of the porous medium. A lattice Boltzmann method (LBM) is expected to be a relevant tool to predict flows through such geometrically complex flow fields. Knowing the structure of the medium obtained from various steps of phase separation process of a binary mixture, it is examined through LBM simulations how the structure affects the bulk properties of porous media which include dead-end flow passages as well. After validating the accuracy of the method by comparing the simulated permeability data with experimental or empirical ones for packed beds of homogeneous spheres, the permeability of inhomogeneous porous media is related mainly to specific surface areas.

Key Words: Porous Media, Lattice Boltzmann Method, Permeability, Specific Surface Area

1. 結 言

多孔質体内の流動は、地中内の流れや、生物組織内の流れなど身の回りで接する現象として古くから関心をもたれ、その流れ特性の解明を試みる多くの研究がなされてきた。このような自然界に存在する多孔質体の場合、一般にその内部構造の詳細が不明であるため、内部流れ特性は Darcy 則で代表される平均化された表現で示されてきた。そして Darcy 則に現れる透水係数の評価に関して多くの研究がなされてきた⁽¹⁾。

一方、いくつかの分野の工業製品において多孔質体の持つ各種の特性を積極的に利用するようになり、流

れ特性についてもより正確な評価が求められるようになっていく。このような目的のためには内部構造に関する正確な情報が必要であり、電子顕微鏡で得た多孔質体サンプル資料の観察画像から 3 次元多孔質体を再構築する研究^{(2),(3)}や残滓濾過における輸送現象を調べるために X 線トモグラフィによる充填層の画像データから 3 次元多孔質体を再構築し格子ボルツマン法により流れシミュレーションを行った研究⁽⁴⁾などもある。

さらに近年、目的に合致するように多孔質体を製作することが提案され、ゾル・ゲル法を用いたティラーメイドの多孔質被膜に関する研究⁽⁵⁾などがある。また、Barton ら⁽⁶⁾は各種の製法法に関するレビューの中で、ティラーメイドの多孔質体の特性化を行うには信頼できる実験法が不可欠であると述べている。そして現在の測定法の問題点の 1 つとして、空孔サイズ分

* 原稿受付 2007 年 8 月 2 日。

^{*1} 正員、元：大阪大学大学院工学研究科 (☎ 565-0871 吹田市山田丘 2-1) [現：(株)IHI (☎ 190-1212 東京都西多摩郡瑞穂町殿ヶ谷 229)]。^{*2} 正員、大阪大学工学研究科。

E-mail: inaba@mech.eng.osaka-u.ac.jp

布を求める際、実際には相互に連結した空孔のネットワーク構造が存在するのを無視して、空孔を交わることのない円筒あるいはスリットとしてモデル化していることを指摘している。

以上のことから多孔質体の内部構造を忠実に反映した特性評価法の確立が必要である。そこで本研究では、混じり合わない2成分溶液の分離過程において、一方の成分を空孔と見なすことにより、構造が既知である複雑な形状をもつ多孔質体サンプルを作成し、格子ボルツマン法によりその内部流れを表し、透水係数と多孔質体の幾何学的複雑さを示す指標との関係を検討し、人工的な多孔質体作成の参考とすることを目的とする。

2. 計算方法

格子ボルツマン法は空間を格子状に離散化し、格子点上に存在する微視的な粒子の運動により連続体の運動を決定する手法であり、複雑な流路形状のものでも容易に計算を行うことができるという特徴をもつ。各粒子はタイムステップが1つ進むと隣の格子点に移動、衝突する。仮想粒子の衝突および並進が繰り返されることで計算が進行する。

本研究では粒子分布について静止および図1に示す14方向に運動する仮想粒子を考慮した非熱流体モデルである3D15V Modelを使用する。衝突則には格子BGK Modelを用いる。分布関数を f 、仮想粒子の速度を c 、単一緩和係数を ϕ 、時間を t 、時間ステップを τ 、位置ベクトルを $\mathbf{r}$ とすると一連の仮想粒子の運動を表す格子ボルツマン方程式は次式ようになる。

$$f_i(t+\tau, \mathbf{r} + c_i\tau) = f_i(t, \mathbf{r}) - \frac{1}{\phi} [f_i(t, \mathbf{r}) - f_i^{(0)}(t, \mathbf{r})] \quad (1)$$

ここで密度 ρ 、速度 u 、粘性係数 μ などの巨視的変数は分布関数を用いて以下のように表現される。

$$\rho = \sum_a f_a \quad (2)$$

$$\rho u = \sum_a f_a c_a \quad (3)$$

Fig.1 Lattice of 3D15V model

$$\mu = \frac{1}{3} \rho c^2 \tau \left(\phi - \frac{1}{2} \right) \quad (4)$$

全ての計算において計算領域の境界条件として、流れ方向に圧力こう配を与え、他の方向には周期境界条件を与える。圧力以外の量については全方向周期境界条件とする。流体と壁面の境界条件については、各格子点において速度が0の局所平衡分布状態にあるものとして設定する。

3. 球による多孔質体の表現

球を面心立方格子状および体心立方格子状に配置したものを多孔質体モデルとして用い、その透水係数 k を求めた。空隙率は球の直径を変化させることで調整を行っている。透水係数 k は h をヘッド、 u を流速として

$$\nabla h = -\frac{u}{k} \quad (5)$$

として定義されている。計算に先立ち格子数が計算結果に与える影響を調べた。図2は図3の体心立方格子状に球を配置したケースについて、計算領域の分割数を $10^3 \sim 150^3$ に変えて実施した計算結果から求めた透水係数である。格子数の増加に従い透水係数が減少しているが、格子数が50を超えると計算結果に余り大きな変化が見られなくなる。計算負荷も考慮し、以下では格子数を50として計算を行う。

Fig.2 The effect of the number of grids

次に、神野ら⁽⁷⁾がガラスビーズを用いて作成した多孔質体で行った実験結果との比較を図4に示す。この場合の計算条件を表1に、神野らの実験結果を表2に示す。実験では各粒径について同一粒径のガラスビーズを用いているが、それぞれ個別に作成した多孔質体を用いている。そのため幾何学的に完全に相似な同じ形状の流路とはならず、表2に示すように空隙率などの値がばらついている。一方、シミュレーションにお

Fig.3 Simulation model of periodically aligned spheres as a sample structure of porous media

いては球を面心立方格子状および体心立方格子状に配置して、同じ形状の流路について透水係数を求めるので、空隙率は0.375で一定であるとして計算を行っている。

Table 1 Simulation condition

Minimum velocity c	1
Time step τ	1
Kinematic viscosity ν	0.1
Porosity	0.375
Number of grids	$50 \times 50 \times 50$

Table 2 Experimental data⁽⁷⁾

Dia. of glass beads (mm)	Permeability (cm/s)	Porosity (%)
0.1	8.92×10^{-3}	37.9
0.15	1.84×10^{-2}	37.6
0.2	2.98×10^{-2}	37.6
0.4	8.57×10^{-2}	37.3
0.6	2.16×10^{-1}	37.3
0.8	3.58×10^{-1}	37.3

透水係数 k と代表直径 d の関係を図4に示す。球を体心立方格子状に配置したもの、面心立方格子状に配置したものともに実験値と比較的良く一致していることが分かる。またこれらは経験式である Kozeny-Carman の式の K から得られた値を挟む結果となっている。

$$K = \frac{d^2 \theta^3}{180(1 - \theta)^2}, \quad k = \frac{g}{\nu} K \quad (6)$$

ただし、 θ は空隙率、 ν は流体の動粘性係数、 g は重力加速度である。

当然ではあるが、球の配置が体心立方格子状と面心立方格子状と異なることにより透水係数に影響があることが分かる。したがって、内部形状を考慮することで平均化量のみで表される経験式では表現しきれない性質も表現することができると考えられる。

Fig.4 Permeability vs. representative grain diameter

4. 不規則な形状からなる多孔質体

不規則な多孔質体を表現するため、一定の体積割合で均質に分布した非混合二相溶液を初期値とし、これらの相分離過程におけるいくつかの中間段階を抽出し、一相を空隙部とすることで擬似的に同空隙率で形状の異なる多孔質体を作成した。このようにして得られた多孔質体の複雑さを表現する指標を導入し、その指標と多孔質体の透水係数との関係を調べる。

二相分離の計算は稲室らの方法⁽⁸⁾を踏襲した。計

Table 3 Simulation condition

Minimum velocity c	0.8	
Time step τ	1.25	
Porosity	0.375, 0.50, 0.625	
Kinematic viscosity ν	0.1	
Lattice size	$50 \times 50 \times 50$	
Sampling step	50, 100, 150, 300	
Phase separation parameter	k_f	0.8
	k_g	0.8
	a	9/49
	b	2/21
	T	0.55

Fig.5 Porous media with different complexity obtained as intermediate states during the phase separation($\theta = 0.625$)

算条件を表3に示す。表中、 k_f は界面の厚さを決めるパラメータ、 k_g は界面張力を決めるパラメータ、 a, b, T は二相分離するための関数(van der Waalsの状態方程式に類似の式)において界面を識別する指標関数の最大および最小値を決める任意の定数で、本計算においては表の値を用いた。緩和過程の中間段階の例を図5に示す。緩和が進行するにつれ、多孔質体の構造が単純な形状になることが分かる。各空隙率についてそれぞれ8種の緩和計算を用いることで、96種類の不規則な形状からなる多孔質体を作成した。

5. 多孔質体の複雑さ

5.1 フラクタル次元 多孔質体の複雑さを表現する指標としてフラクタル次元を考える。フラクタル次元が高いほど複雑な構造ということになる。フラクタル次元はボックスカウンティング法により測定する。得られた結果を図6に示す。なお図6の透水係数 k' は次式のように無次元化している。

$$k' = \frac{k}{\nu} d \quad (7)$$

Fig.6 Permeability vs. fractal dimension

フラクタル次元が小さくなるにつれ、すなわち多孔質が単純な形状になるにつれ、透水係数が大きくなる傾向が得られている。しかし、データのばらつきが大きく、フラクタル次元のみで多孔質体の透水係数を整理することができず、フラクタル次元以外の要因も透水係数に影響を与えていると考えられる。

5.2 比表面積 次に多孔質体の複雑さを表現する指標として空隙の比表面積について考える。ここで用いる空隙の比表面積 S_v は多孔質体の表面積を空隙の体積で除したものであり、通常用いられている固体部分の表面積と体積の比で定義される比表面積 S とは $S = (\theta/1 - \theta)S_v$ の関係がある。また多孔質体流路の等価直径 d とは $d = 4\theta/S(1 - \theta) = 4/S_v$ の関係がある。この S_v が大きな値をもつほど多孔質体が複雑な形状であると考えられる。図7に透水係数 k' を縦軸に、無次元比表面積 $S_v' (= S_v d)$ を横軸にとりて整理した結果を示す。図中の近似曲線で示されるように、多孔質体の透水係数は全体として空隙の比表面積の自乗の逆数、すなわち等価直径の自乗に比例していることが分かる。この結果はKozeny-Carmanの式(6)のような、

Fig.7 Permeability vs. specific surface area

Fig.8 Histograms of residence time

従来から知られている結果と同じ形である。結局、このように複雑な流路形状をもつ多孔質体においても、透水係数のような全体的な性能は毛管モデルや球形粒子を想定した抗力モデルのような簡単なモデルによりかなりの程度まで予測できることが分かる。

一方、空隙率ごとに見てみると、空隙率の大きい範囲では比較的良く比表面積の自乗の逆数と比例するデータが得られているが、空隙率 0.375 のデータについては、ずれが比較的大きい。そこで空隙率 0.375 のものについて、緩和過程から得られる多孔質体に注目する。

6. 滞留時間分布

図 8 に滞留時間分布として、同時に流入したトレーサが流出するまでの時間と、その流出する割合を示した。ここで図 7 の近似曲線から大きくずれている場合の緩和過程について調べるため、比較的良好に比表面積の自乗の逆数と比例するもの (case 1)、最も緩和させた多孔質体については比表面積の自乗の逆数に比例していないもの (case 2)、どの緩和ステップで抜き出しても比表面積の自乗の逆数と比例していないもの (case 3) について滞留時間分布を求めた。図中の数値 50, 100, 150, 300 は多孔質体を作成する際の緩和ステップ数である。

比表面積の自乗の逆数と透水係数が強く比例している関係にある多孔質体についてはどの緩和時間で中断したものでも、滞留時間分布の形状が鋭いピークを一つもつ形状であることが分かる。また同一の緩和過程において緩和が進行するにつれ、ピークが短時間側に移動し、ピーク時に多くの割合の粒子が流出している。一方、透水係数が近似曲線から離れた値をとる多孔質体においては、滞留時間分布は複数のピークをもつ形状になっている。滞留時間分布においてピークが複数存在することは、流体が停留する領域が存在することを示しており、流体が停留するため透水係数が近似曲線

から離れた値をとると推察できる。

そこで図 9 に示した一連の緩和過程から得られた多孔質体について見てみる。非混合二相流体の緩和過程を用いて多孔質体を作成しているため、緩和ステップの大きいものほど相ごとの流体の結合が進み、一相を取り除いたときに残る多孔質体は簡単な形状になる。一般に多孔質体が簡単な形状であるほど流体が流れやすいと考えられるが、この緩和過程において得られた多孔質体では、緩和ステップが 300 のものは 150 のものに比べ小さな透水係数値をとっている。左端あるいは中央の図から多孔質体の内部形状は簡単な構造となっていることが分かる。全体の流れは図の左から右に向かうものであるが、速度分布を比較すると、最も流体の流れている部分において緩和ステップが 150 のものでも 300 のものでも速度の大きさにはあまり違いがない。しかし緩和ステップが 150 の時には複数の流路が存在し、その部分にも流体が流れているが、緩和ステップが 300 のものでは 150 のときに存在していた流路が遮断され、流路がひとつになっている (右端の図参照)。そのため緩和が進み多孔質体はより単純な形状になるにもかかわらず、貫流流路になる部分が少なくなるため緩和ステップが小さなものに比べ、透水係数が小さな値をとると結論づけられる。

7. 内部の状態による補正

多孔質体の内部形状の影響を考慮し、与えた圧力勾配の向きに流体が正の速度をもたない領域は流路として働いていない領域であると考え、その領域は流路でないものとみなし、比表面積および透水係数を整理し直す。図 7 の場合と同じ多孔質体について整理を行ない、計算し直したものを図 10 に示す。多孔質体の形状の影響が最も大きいと考えられる空隙率 0.375 の緩和過程から得られた多孔質体についてデータのばらつきが小さくなっていることが分かる。

Fig.9 Porous media, flow passages and flow patterns($\theta = 0.375$)

Fig.10 Effective permeability vs. modified specific surface area

8. 結言

多孔質体をデザインする際の事前評価手段として用いることを目的に、格子ボルツマン法を適用して複雑な流路をもつ多孔質体内の内部流動のシミュレーションを行った。不規則な複雑構造をもつ多孔質体についても簡単なモデルから導かれている従前の指標で透水係数が比較的良好に整理できることが分かった。しかし、本論文で空隙率が小さくなった場合に生じた行き止まり流路の存在のように、局所的な不規則性が大きくなると、透水係数にも内部形状の影響が強く現れ、精度の高い見積もりを行うには全体的な指標だけでは不十分

で、内部の詳細情報が不可欠である。

9. 参考文献

- (1) SCHEIDEGGER, A.E., *THE PHYSICS OF FLOW THROUGH POROUS MEDIA*, (1957), pp.89-122, UNIVERSITY OF TORONTO PRESS.
- (2) Berryman, J.G. and Blair, S.C., Use of digital image analysis to estimate fluid permeability of porous materials: Application of two-point correlation functions, *Journal of Applied Physics*, Vol.60, No.6(1986), pp.1930-1938.
- (3) Yao, J. et al., High-Order Moments of the Phase Function for Real and Reconstructed Model Porous Media: A Comparison, *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol.156(1993), pp.478-490.
- (4) Lin, C.L. and Miller, J.D., Pore structure analysis of particle beds for fluid transport simulation during filtration, *International Journal of Mineral Processing*, Vol.73(2004), pp.281-294.
- (5) Agrafiotis, C. and Tsetsekou, A., Deposition of mesoporous γ -alumina coatings on ceramic honeycombs by sol-gel methods, *Journal of the European Ceramic Society*, Vol.22(2002), pp.423-434.
- (6) Barton, T.J. et al., Tailored Porous Materials, *Chemistry of Materials*, Vol.11(1999), pp.2633-2656.
- (7) Kamino, K. et al., Study on the hydraulics and mass transport in heterogeneous porous media(III)–1998 annual report on pre-existent basic engineering fields(in Japanese)–, *JNC TY8400 99-005*, (1999), p.24.
- (8) Inamuro, T., et al., Lattice Boltzmann Simulation of Drop Deformation and Breakup in Shear Flows(in Japanese), *Proceedings of the 15th Symposium on Computational Fluid Dynamics*, B14-5(2001), 6p.