マルチスケール混相流体方程式に基づく
気泡間相互作用の2次元検証解析*米本 幸弘^{*1}, 功刀 資彰^{*2}Trial 2D Simulation of Microbubble Interaction Based
on Multi-Scale Multiphase Flow EquationYukihiro YONEMOTO^{*3} and Tomoaki KUNUGI^{*3} Faculty of Industrial Science and Technology, Department of Applied Electronics, Tokyo University of Science,
2641 Yamasaki, Noda-shi, Chiba, 278-8510 Japan

A modeling of gas-liquid interface is one of key issues of the numerical research on multiphase flows. Especially, a mechanism of bubble coalescence/repulsion is unresolved and there are no valid numerical models. The phenomenon may be related to thermodynamics, electromagnetics, hydrodynamics, and heat and mass transfer. In the experimental studies, it is revealed that a concentration of electrolyte solved in water and ion-pair specificity affect the bubble coalescence. Therefore, it is necessary to take such effects on bubble coalescence into consideration in a gas-liquid interfacial model. In the previous our study, having assumed that the interface has a finite thickness, we have developed a new gas-liquid interfacial model based on thermodynamic and mathematical approach. In that study, we have derived a new governing equation with free energy including the effect of the electric double layer caused by a contamination at the interface. In this paper, we applied the new interfacial model to 2-dimensional numerical simulation. Finally, we evaluated the new governing equation qualitatively by simulating a behavior of a single square microbubble and an interaction between two microbubbles including the electrical force.

Key Words: Interfacial Phenomena, Multi-Phase Flow, Bubble Coalescence, Micro-Bubble

1. 結 言

気相と液相の境界である界面は、巨視的な観点では物性値の不連続性を特徴としてモデル化されるが、原子・分子レベルの微視的な観点では両相は連続している。このような気液界面の持つ多重スケール構造性をいかにモデル化するかは混相流数値解析的研究における長年の課題である。特に、気泡の合一・反発挙動に関しては、界面において、熱力学、流体力学、電磁気学や物理・化学現象等が複雑に関連しており、その取り扱いが容易ではない。

現在、界面モデルとして、Brackbill 等による CSF モデル⁽¹⁾が広く用いられており、浮力で上昇する2つの

気泡間の相互作用等^(2,3)、ある程度大きな直径を持つ気泡に関して数値解析的研究が行われている。こうした気泡間相互作用では、気泡周囲の流体運動が支配的となる現象を対象としているため、実験結果との整合性も良く、一定の成果を挙げている。しかしながら、CSF モデルでは、界面を厚みのない Gibbs 面として捉え、力学的釣り合いからモデル化しているため、界面における詳細な物理・化学現象の議論、すなわち、界面における熱・物質移動や電気的な効果を考慮することができない。特に、気泡間相互作用では界面に付着した汚れ物質による電荷の影響等は考慮すべきであろう。実際、気泡の合一・反発挙動に関する実験的研究では^(4,5)、液体に溶かした電解質の濃度、溶存イオンの種類や組み合わせ等によって、その挙動が変わることがわかっている。

Yonemoto と Kunugi は、材料組織の2元合金の相転移に関する研究で用いられている van der Waals 理論⁽⁹⁾や Cahn-Hilliard による Phase Field 理論⁽¹⁰⁾を基礎として、界面の汚れ物質により生じる電荷の影響を考慮し

* 原稿受付 2008年7月17日。

^{*1} 正員、東京理科大学基礎工学部電子応用工学科(〒278-8510 野田市山崎2641)。^{*2} 正員、京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻(〒606-8501 京都市左京区吉田本町)。

E-mail: yonemoto@te.noda.tus.ac.jp

たマイクロおよびマクロスケールに亘る界面モデルを構築した⁽¹¹⁾。このとき、界面は有限の厚みを持つと仮定し、界面における電荷の効果を考慮した自由エネルギー式を定義した。そして、その自由エネルギー式を、数学的手法を援用することにより Navier-Stokes 方程式へ導入し、新たなマルチスケール混相流体方程式を導出した。Phase Field 理論等のように熱力学的に界面を捉えることは、従来モデル化できなかった界面における様々な物理を考慮できることを意味しており重要である。

そこで、本研究では、Yonemoto らが構築した新たな界面モデルを数値解析へ適用し、気泡挙動及び気泡間相互作用を対象とした定性的な検証計算を実行することにより、マルチスケール混相流体方程式の気泡合一・反発挙動解析への将来的な実現可能性を評価・検討した。

2. 主な記号

A	: ハマカー定数 [J]
a	: 微視的変数 [J/m ³]
b	: 微視的変数 [J/m ³]
c	: 微視的変数 [1/m ³]
d	: 微視的変数 [J/m]
e	: 素電荷 [C]
F_{AB}	: 相 A,B の体積分率 [-]
F_e	: 電気力 [N/m ³]
f_s	: 熱力学的圧力 [N/m ³]
f_e	: 電気的エネルギー [J/m ³]
f_0	: 均一場における自由エネルギー [J/m ³]
g	: 重力加速度 [m/s ²]
n	: 界面の法線方向座標 [-]
$\mathbf{n}$	: 単位法線ベクトル [-]
P	: 機械的圧力 [N/m ²]
r_{ij}	: 分子半径 [m]
h_{ij}	: 分子間距離 [m]
T	: 応力テンソル [N/m ²]
$t^{(0),(1)}$	: 時間 [s]
U_{ij}	: 分子間相互作用エネルギー [J]
$\mathbf{u}, \mathbf{u}'$	: 速度ベクトル [-]
V_{e0}	: 気泡表面セルでの電位 [-]
V_e	: 任意位置 $\mathbf{x}$ での電位 [-]
$\mathbf{x}$	: 任意位置 [m]
$\mathbf{x}_{surf}$	: 気泡表面セルの位置 [m]
z_i	: 価数 [-]
δ_0	: 界面厚さ [m]

ε	: 微小パラメーター [-]
ρ	: 密度 [kg/m ³]
σ	: 表面張力係数 [J/m ²]
τ	: せん断力 [N/m ²]
ψ	: 秩序変数 [-]
$\psi_{0,e}$	: 秩序変数 [-]

3. 数値解析

3・1 支配方程式 マクロスケールの界面は、一般に界面は厚みがなく曲率により特徴付けられ、不連続面として取り扱われる。一方で、分子運動のようなミクロスケールでは、様々な物理量は気相から液相間で連続的に変化する。こうした特異性を持った界面を、ミクロ及びマクロスケール両方の特徴を加味しつつモデル化することは非常に困難である。特に、マルチスケールに亘る気液界面のモデル化は、気泡の合一・反発挙動との関連も深く、混相流分野における長年の課題の一つである。

Yonemoto らは、気泡の合一・反発挙動を見据え、数学的・熱力学的観点に基づき、ミクロからマクロスケールに亘る気液界面モデルの構築を行った⁽¹¹⁾。このとき、Phase Field 理論を基に、界面を厚みのある流体膜と仮定し（メゾスケール概念の構築）、統計熱力学的操作を用いることで、ミクロからメゾスケールに亘り自由エネルギーの議論を行った。そして、その導出した自由エネルギー式を Navier-Stokes(NS)方程式へ時間・空間スケールを区別することにより導入している。その際、ある種の流体膜と仮定した界面における流動様式は、拡散及び流体運動により特徴づけられると仮定し、Chapman-Enskog 展開⁽¹²⁾を NS 方程式に援用することで数学的に定式化を試みている。以下が Yonemoto らが導出したマルチスケール混相流体方程式である⁽¹¹⁾。

$$\rho \frac{D\mathbf{u}}{Dt^{(0)}} + \varepsilon \rho \frac{D\mathbf{u}'}{Dt^{(1)}} = -\nabla^{(0)} \cdot \mathbf{T} + \nabla^{(1)} \cdot (f_0(\psi)\mathbf{I}) - \varepsilon d \nabla^{(1)} \psi (\nabla^{(1)} \cdot \nabla^{(1)} \psi) + \rho \mathbf{g}, \quad (1)$$

$$\mathbf{T} = P\mathbf{I} - \boldsymbol{\tau}. \quad (2)$$

式(1)中の右辺第 1,2,3 及び 4 項目はそれぞれ、応力テンソル、均一場での自由エネルギー、熱力学的圧力そして重力に関係する項である。特に、第 3 項目は表面張力の効果に相当する。本論文で行う検証計算では、厳密な定量的評価が目的ではなく、Yonemoto らによって導出されたマルチスケール混相流体方程式に基づいた、界面挙動及び気泡間相互作用解析の将来的な実現

可能性に関する定性的評価に重点を置いている。したがって、本来ならばマルチスケール展開を施した理論的背景に基づき、 $\nabla^{(0)}, \nabla^{(1)}$ を区別したマルチグリッドを適用する必要があるが、今回は簡単のため蒸発・凝縮による相変化や化学変化等のスケール間相互作用は考慮せず、気泡周囲近傍のメゾスケールを想定した寸法として、 $\nabla^{(1)}$ のみに基準をあわせた解析を行う。また、これに伴い、式(1)の左辺に現れる速度 u, u' 及び時間 $t^{(0)}, t^{(1)}$ は特に区別せずに実質微分に関する項を DU/Dt とまとめて置く。これにより、数値解析で用いた支配方程式は、以下の運動方程式及び連続式になる。

$$\rho \frac{DU}{Dt} = -\nabla^{(1)} \cdot T + \varepsilon \nabla^{(1)} \cdot (f_0(\psi)I) - \varepsilon d \nabla^{(1)} \psi (\nabla^{(1)} \cdot \nabla^{(1)} \psi) + \rho g, \quad (3)$$

$$\nabla^{(1)} \cdot U = 0. \quad (4)$$

本研究では、気相・液相の両領域の連続式及び運動方程式を Fractional step 法の一種である2段階 Projection 法⁽¹³⁾で解いている。界面輸送法には、PLIC(Piecewise linear interface calculation)⁽¹⁴⁾の特徴である界面勾配を考慮し、かつ質量・体積保存性の良い MARS 法(Multi-interface advection and reconstruction solver)⁽¹⁵⁾を援用した。

3・2 秩序変数の取り扱い マルチスケール混相流体方程式は、熱力学的観点に基づき導出されている。その際、表面張力に相当する効果は自由エネルギー式を用いて熱力学的圧力として、Navier-Stokes 方程式に導入している。以下はその自由エネルギー式である⁽¹¹⁾。

$$F = \int_V \left[f_0(\psi) + \frac{d}{2} (\nabla \psi)^2 \right] dV, \quad (5)$$

$$f_0(\psi) = -\frac{a}{2} \psi^2 + \frac{b}{4} \psi^4 - cz_1 e V_c \psi. \quad (6)$$

上式(5),(6)は格子気体モデルを基礎として導出されているため、式中には分子間相互作用等の微視的效果を含む定数 a, b, c, d が現れる。 ψ は注目している系を特徴付ける秩序変数と呼ばれ、濃度/密度に関連付けられる連続関数である。この秩序変数に関しては、界面内部の濃度/密度の分布が前もって関数としてわかっているため、その関数を用いて秩序変数を表現すればよい。しかしながら、本論文では Euler 的な手法に基づいているため、計算負荷が大きく効率的ではないと考え、界面内部の分布関数を界面輸送と共に輸送することは

行っていない。ここで、Yonemoto らの界面モデルでは、式(5)を格子気体モデルに基づき導出しており、空間内をランダムに運動する分子を、立方格子の格子点に定義した変数の値により模擬しているため、秩序変数 ψ は、各相の体積分率により表現することが可能となっている。本数値解析で用いた MARS 法は、界面を流体の VOF 率(Volume of Fluid:体積分率)を輸送することで高精度な界面輸送を実現しているため、上述の秩序変数 ψ の特徴を生かしマクロスケールでの界面輸送法として採用した。

メゾスケールでの界面捕獲はマルチスケール混相流体方程式(3)中の、右辺の微視的スケールに関する項で考慮し、そこで現れる秩序変数に関しては以下のように取り扱った。

まず、秩序変数 ψ に関しては、式(5)の自由エネルギー式を最小化することにより、以下のキンク解が導かれる。

$$\psi_0(n) = \psi_e \tanh\left(\frac{n}{\delta_0}\right) : \delta_0 = \sqrt{\frac{2d}{a}}, \psi_e = \sqrt{\frac{a}{b}} \quad (7)$$

上式は、 $n = -\infty$ で、 $\psi = -\psi_e$ をとり、 $n = +\infty$ で、 $\psi = +\psi_e$ をとる関数である。これにより本論文では、MARS 法で用いられている VOF 率を基に、式(7)で得られるキンク解の特徴を考慮した以下の秩序変数を用いる。

$$\psi = \psi_e (F_A - F_B) \text{ or } \psi_e (F_B - F_A). \quad (8)$$

式中、 F_A, F_B は各相 A, B を代表する体積分率であり、 $0 \leq F_A \leq 1, 0 \leq F_B \leq 1, F_A + F_B = 1$ の関係を満たす。厳密には式(5)が最小化されときの秩序変数を、エネルギー保存等を考慮して数値解析的に直接求める必要があるが、今回は式(7)を基に定義した式(8)により自由エネルギーが最小化されると仮定し解析を行った。

3・3 微視的変数の取り扱い 式(5)及び式(6)中の微視的変数 a, d には、格子幅 l 及び相互作用ポテンシャルエネルギー U_{ij} が含まれる⁽¹¹⁾。本研究では液体として水を想定しているが、水分子の特異性等の細かい議論は無視し、以下の式により大略の U_{ij} を評価する^(16,17)。

$$U_{ij} = -\frac{A}{6h_{ij}} \left(\frac{r_i r_j}{r_i + r_j} \right). \quad (9)$$

ここで、 A はハマカー定数、 r_i, r_j は水分子の半径を表し、 h_{ij} は水分子間の距離である。格子気体モデルにおける格子幅 l は $2r_i + h_{ij}$ と表せる。

3・4 熱力学的圧力の取り扱い 式(3)の右辺第2項目に関しては、今回は蒸発・凝縮等の相変化を考慮していないため、界面汚れ物質の電荷による電気的な効果に関係した項が残り、結局以下の式に帰着する。

$$\rho \frac{DU}{Dt} = -\nabla^{(1)} \cdot T - \varepsilon \nabla^{(1)} f_e(\psi) - \varepsilon d \nabla^{(1)} \psi (\nabla^{(1)} \cdot \nabla^{(1)} \psi) + \rho g. \quad (10)$$

このとき、 $f_e = cz_e V_e \psi$ と置いている。上式の右辺第2項の電気的な項の取り扱いは3.6節で議論する。

式(10)の右辺第3項目を f_s と置くと、

$$f_s = -\varepsilon d \nabla^{(1)} \psi (\nabla^{(1)} \cdot \nabla^{(1)} \psi), \quad (11)$$

となる。本研究では、理論的に導出した流体方程式に現れる $\nabla^{(1)} \cdot \nabla^{(1)} \psi$ に関して、数値解析へ適用するために、以下のように線形化し、界面領域で働く熱力学的圧力を模擬した⁽¹⁸⁾。

$$f_s \approx -\varepsilon d \nabla^{(1)} \psi \left| \nabla^{(1)} \psi \right| (\nabla^{(1)} \cdot \mathbf{n}). \quad (12)$$

ここで、 $\mathbf{n}$ は単位法線ベクトル、 $\left| \nabla^{(1)} \psi \right|$ は着目している計算セルで定義された $\left| \nabla^{(1)} \psi \right|$ の平均値を表す。具体的には、着目セルで定義された値と、着目セル周囲に定義された値との平均値である。2次元であれば (i, j) , $(i+1, j)$, $(i-1, j)$, $(i, j+1)$, $(i, j-1)$ の5つの値、3次元であれば (i, j, k) , $(i+1, j, k)$, $(i-1, j, k)$, $(i, j+1, k)$, $(i, j, k+1)$, $(i, j, k-1)$ の7つの値を単純平均した値を用いる。

3・5 表面張力係数との関連付け 前節で議論した熱力学的圧力は、表面張力に相当する項であり、その大きさは微視的変数 d と関係している。本研究では、微視的な分子間相互作用等の効果を式(9)のように大略的に評価し、微視的変数 d と実験的に測定される表面張力係数 σ との関連付けを以下の式に基づき行った。

$$\sigma = \int_{-\infty}^{+\infty} d \left(\frac{\partial \psi_0}{\partial n} \right)^2 dn \approx \int_{-\delta_0/2}^{+\delta_0/2} d \left(\frac{\partial \psi_0}{\partial n} \right)^2 dn. \quad (13)$$

上式は、界面内密度関数の勾配に関係した不均一場での自由エネルギーを、van der Waals 理論⁽⁹⁾に基づき界面の法線方向に積分することにより巨視的変数としての表面張力係数として定義したものである。具体的な関連付けは、式(13)に式(7)の関数を代入し積分することにより行う。

3・6 電気的効果 本節では、式(10)中の右辺第2項目の電気的効果に関する項の取り扱い方法を説明する。

Yonemoto らは、自由エネルギー式を A, B 分子を想定した格子気体モデルに基づき導出した⁽¹¹⁾。このとき、界面近傍に付着した汚れ物質の電荷の影響は、A 分子もしくは B 分子の存在により代表させている⁽¹⁸⁾。つまり、A 分子相における電荷の影響は、 $F_A=1$ のとき有効となる。B 分子相に関しては、 $F_B=1$ のとき有効となり、最終的に、数値解析で用いる具体的な式は、式(10)で用いた f_e を基にして、以下のようなになる。

$$f_e = cz_e V_e \left| \psi_e \right|. \quad (14)$$

上式において、 $F=AB$ であり、 $cz_e V_e \left| \psi_e \right|$ は相互作用させたい相 (A 相もしくは B 相) で独立に区別すればよいことになる。特に、本研究では、気相側の電気的相互作用は無視し、液相における電位のみを考慮している。

式(14)を式(10)の右辺第2項目に代入すると、以下の電気的な力 F_e を得る。

$$F_e = -\varepsilon cz_e \psi_e \nabla^{(1)} \left(\left| \psi_e \right| \right). \quad (15)$$

このとき、 z_e は気泡表面に付着した汚れ物質の電荷である。この電荷は界面上で定義される物理量であるが、本研究では、気泡の表面セルをあらかじめ決めておき、その表面セルで定義する。気泡表面セルの決定には、画像処理で用いられるラベリング法を用いる⁽¹⁹⁾。 $\left| \psi_e \right|$ は相手側界面が形成する電位である。気泡表面セルから周囲液相内に形成する等電位面は以下の指数関数により模擬した。

$$V_e(\mathbf{x}) = V_{e0} \exp \left(-\frac{\left| \mathbf{x} - \mathbf{x}_{surf} \right|^2}{C_e^2} \right). \quad (16)$$

上式において、 $\mathbf{x}$ は計算体系内の任意の位置を表しており、 $\mathbf{x}_{surf}$ はラベリング法により特定した、気泡表面セルの位置である。 C_e は電位の影響範囲 (Debye 長さに相当) を決める任意変数である。電位関数に関して、指数関数を用いる理由は、今回の論文では表面電荷と電位に関する関係等を考慮していないためである。

3・7 解析条件 本論文では、3.1節でも述べたとおり、気泡間相互作用の定性的評価に重点を置いている。しかし、3.4節で議論した熱力学的圧力が、表面張力に相当する効果を持ち合わせているかを確認する必要がある。そこで、まず、簡単な検証計算として、正方形気泡を対象とし、気泡内部の運動エネルギー及び表面圧力の変化を考察した。図1がその計算体系である。用いた物性値は水、空気である。解析は 451×451 の2次元体系で行った。境界条件は $X-, X+, Y-, Y+$ 面いずれも圧力自由流入出 (大気圧開放) としている。気泡は 100×100 とした。このとき、 $\Delta t = 0.5 \times 10^{-7}$ [s], $\Delta x = \Delta y = 1.0 \times 10^{-8}$ [m] である。重力は考慮

していない。次いで、気泡間の相互作用の検証計算を行った。物性値は正方形気泡の検証解析と同様である。図2はその計算体系である。解析は 301×301 の2次元体系で行った。境界条件は、 X^- , X^+ に関して圧力自由流入出とし、 Y^- , Y^+ に関しては、それぞれ、 $(U_x^{Y^-}, U_y^{Y^-}) = (0, +2.0 \times 10^{-3})$, $(U_x^{Y^+}, U_y^{Y^+}) = (0, -2.0 \times 10^{-3})$ の速度 U [m/s] 一定とした。また、気泡の半径 $r = 1.5 \times 10^{-6}$ [m], $\Delta t = 0.5 \times 10^{-5}$ [s], $\Delta x = \Delta y = 1.0 \times 10^{-7}$ [m]としている。解析は2つの条件で行い、Case1 では電位 $V_e = 0$ [V], Case2 では $V_e = -1.0 \times 10^{-5}$ [V]とした。

Fig.1 Computational domain of square bubble (2D)

Fig.2 Computational domain of bubble interaction (2D)

自由エネルギー式に現れる定数は、 $a = 4.57 \times 10^8$ [J/m³], $b = 5.74 \times 10^8$ [J/m³], $c = 1.33 \times 10^{28}$ [1/m³], $d = 4.98 \times 10^{11}$ [J/m]である。また、マルチスケール展開で現れた微小パラメータ ε は、界面の代表長さ δ と渦の代表長さ λ を用い、 $\varepsilon = 0.055$ [J]としている¹⁸⁾。現段階では、この ε に関しては方程式の中で定数として取り扱う。

4. 計算結果及び考察

図3は、正方形気泡の形状に関する時系列変化を表している。図中(a)から(f)へと時間が進むにつれて正方形気泡は変形し、円形に近づいていることがわかる。

Fig.3 Snapshots of square bubble

図4は、図3の気泡変形時における、物理量の時系列変化を表している。図4(a)は気泡内の運動エネルギーの時系列変化を表しており、図中の記号(a)-(f)は図3の記号と対応している。図4(a)において、気泡内部の運動エネルギーは状態(b)の時に極大値、状態(c)の時に極小値を取り、次第に減衰している様子が見える。この極小値のときの気泡形状は、図3中(c)に対応し、ひし形になっていることがわかる。最終的に運動エネルギーは0へと漸近しており、最も安定な円形状に落ち着こうとする気泡の挙動が再現できていることがわかる。このことから、Yonemotoらの構築した界面モデルは表面張力としての機能を有していると考えられる。このときの気泡の振動数は、図4(a)から約 2.08×10^4 [Hz]と見

積れる。気泡の振動数に関する理論解は、調和関数に基づき以下の式で与えられる²⁰⁾

$$\omega^2 = \frac{\sigma l(l-1)(l+2)}{\rho R^3} \quad (17)$$

上式において、 ω は振動数、 l はレジャンドル陪関数の次数を表し、本解析では最小振動数を表す $l=2$ としている。また、 ρ 、 σ 、 R はそれぞれ密度、表面張力係数、滴の半径である。本研究では、密度 ρ に関しては水と空気の平均値を用い、表面張力係数 σ には水-空気値を用いる。半径 R は図3の気泡形状から見積った。式(17)から得られる気泡の振動数は 28.8×10^6 [Hz] となり、今回の数値解析の結果より約1000倍大きな値となる。図4-(b)は気泡内部の平均圧力と周囲液体の平均圧力との差である表面圧力の時系列変化である。このグラフから、圧力と気泡形状変化の対応を比較することは困難であるが、気泡内圧力は周囲液相の圧力より高いことがわかる。ただし、その絶対量に関しては Young-Laplace の式から求められる 1.3×10^5 [N/m²] に比べてかなり小さい。ここで、この違いを先の気泡の振動数を用いて考察する。数値解析で得られた表面圧力は、図4-(b)から約 0.06 [N/m²] と見積れる。気泡の振動を近似的に単振動と想定した場合、その運動方程式が振動数の2乗に比例することを考慮すると、Young-Laplace の式から得られる圧力と本解析結果の圧力の比から互いの振動数の比が得られる。これにより、Young-Laplace の式に基づき得られる振動数は、本解析結果で得られた圧力に基づく振動数よりも約1000倍程度大きくなり、図4-(a)と理論解の振動数の違いは表面張力項の大きさの違いに起因していることが推察できる。この事実は、微小パラメーター ε の影響だけでなく、界面において何らかの物理モデルが不足している可能性があると考えられる。しかしながら、視点を変えると、界面に有限厚さを想定する本モデルとは異なり、Young-Laplace の式のように界面を曲率で特徴づけて(界面厚みが0という数学的界面) 気泡内部の圧力を決定する方法が、微小スケールでも成立するのかという疑問が生じる。いずれにせよ、この圧力に関する議論は今後の課題であると考えられる。

図5は、気泡間相互作用の解析を行った結果である。図5-(a)は、Case1の界面電位 $V_e = 0$ [V] における解析結果であり、図5-(b)は、Case2の界面電位 $V_e = -1.0 \times 10^{-5}$ [V] における解析結果である。界面電位を考慮しない図5-(a)では、2つの気泡は $Y+$ 、 $Y-$ 方向から吹き付ける流体力の影響により、次第に近づきそのまま合一していることがわかる。一方、界面電位を考慮した図5-(b)の数値解析結果では、 $Y+$ 、 $Y-$ 方向から吹き付ける流体力の影響により、2つの気泡は互いに相互作用しているものの、電気的反発力のため、最終的に合一せずに流れていることがわかる。

Fig.4 Time series results of square bubble

図6は界面電位 $V_e = -1.0 \times 10^{-4}$ [V] における、ある時刻での気泡間相互作用である。図6-(a)から、相互作用時に気泡界面間に液膜が形成されていることがわかる。その際、圧力分布は図6-(b)のようになり、液膜間の圧力は周囲圧力よりも低くなっている。この結果から、気泡間で生じた電気的反発力の影響により界面同士が作用する際に、連続式を満たすように界面間に流体が流れ込んでいることが推察される。図7は、図6における気泡周囲の流線の分布を表している。流線は気泡に乗った座標系を基準とした速度ベクトルを用いている。気泡自体は図5からわかるように、図の右側へ流れているため、図7の流線は左右対称ではない。この図7と図2の計算条件から、上部気泡は下方へ、下部気泡は上方へ流体により押されている様子がわかる。この気泡同士を押す流体力と気泡を離そうとする電気力の兼ね合いにより液膜が形成されるものと推察される。実際、図7の液膜間には渦が存在しており、気泡表面に沿った流れが気泡界面間へ流れ込む様子が描かれている。したがって、気泡の合一の解析的議論で、一般的に良く用いられる、流体力学的な観点にのみ基づいた潤滑理論から導かれる Reynolds 方程式では、液膜の前提が説明できないと考えられる。

Fig.5 Comparison of bubble interaction
(Case 1: $V_e = 0$ [V], Case 2: $V_e = -1.0 \times 10^{-5}$ [V])

(b) Pressure distribution in Area 1
Fig. 6 Liquid film between two bubbles
(Electric potential $V_e = -1.0 \times 10^{-4}$ [V])

Fig. 7 Streamline around the two bubbles

5. 結論

本論文では, Yonemoto らにより導出されたマルチスケール混相流体方程式を数値解析へ適用し, その流体方程式の界面挙動及び気泡間相互作用解析への将来的な実現可能性に関する定性的評価を行った. 具体的には, 正方形気泡の挙動及び界面に電氣的効果を考慮した気泡間相互作用の2次元検証解析を行った. これにより以下の結論を得た.

- 1: 正方形気泡の解析では, 気泡内部の運動エネルギーが極大・極小を取りながら安定な状態に落ち着こうとする結果が得られ, マルチスケール混相流体方程式は界面挙動を再現できる可能性がある. このとき, 解析結果から得られる気泡の振動数と理論解との比較では, 理論解から得られる振動数は本解析から得られる値より約 1000 倍大きくなることがわかった. ただし, 本解析から得られる気泡の表面圧力は Young-Laplace の式から得られる値に比べるとかなり小さい結果となった. この点を, 気泡の振動を単振動と想定し, 理論及び解析結果による圧力の比を用いて振動数の比を見積もると, Young-Laplace の式から得られる振動数は本解析結果の値より約 1000 程度大きくなり, 理論と解析の振動数の違いは表面張力項の大きさの違いに起因することが推察される. この点に関しては, 界面に有限厚さを想定する本モデルとは異なり, Young-Laplace の式のように界面を曲率により特徴づけ (界面厚みは常に 0) 気泡内部の圧力を決定する方法が, 微小スケールでも成立するののかという疑問が生じ, 今後議論する必要があると考えられる.
- 2: 気泡間相互作用の解析では, 界面に電氣的効果を考慮しない Case1 と, 電氣的効果を考慮した Case2 の2つの条件で行った. その結果, Case1 では, 気泡に

吹き付ける流体力の影響により、互いに相互作用した2つの気泡はそのまま合一する結果となった。一方、Case2では、2つの気泡は、界面間で作用する電気的力の効果により、界面から液相へ形成された等電位面の範囲内である一定の距離を保ちつつそのまま合一せず流れた。

3: 電気的効果を考慮した気泡間相互作用では、界面間に液膜が形成され、この液膜間の圧力は周囲圧力よりも低くなる結果となった。このことから、気泡間で生じた電気的反発力の影響により界面同士が作用する際に、連続式を満たすように界面間に流体が流れ込んでいることが推察される。また、気泡同士を押す流体力と気泡を離そうとする電気力の兼ね合いにより、液膜は形成されたものと推察される。実際、気泡周囲の流線の分布はこのことを裏付ける結果となっている。したがって、気泡合一の解析的議論で、一般的に良く用いられる、流体力学的な観点にのみ基づいた潤滑理論から導かれる Reynolds 方程式では、液膜の前提は説明できないと考えられる。

今回の気泡挙動の検証計算から、2次元解析ではあるものの、Yonemoto らが導出したマルチスケール混相流体方程式を用いることにより、気泡間相互作用を取り扱える可能性が高いことがわかった。特に、2次元気泡間相互作用の検証計算では、界面汚れ物質に伴う電荷の効果の導入により、2つの気泡界面間に液膜が形成されることを確認した。しかし、より実際に即した気泡の合一過程を模擬するには、相互作用開始から合一までの時間遅れ等を実現するさらなる物理モデルが必要と考えられるため、3次元解析を含めて今後議論を行う予定である。

文 献

- (1) Brackbill, J. U., et al., Continuum method for modeling surface tension, *J. Comput. Phys.*, Vol. 100 (1992), pp. 335-354.
- (2) Bonometti, T., Magnaudet, J., An interface-capturing method for incompressible two-phase flows. Validation and application to bubble dynamics, *Int.J. Multiphase Flow*, Vol. 33 (2007), pp. 109-133.
- (3) van Sint Annaland, M., Deen, N. G., Kuipers, J. A. M., Numerical simulation of gas bubbles behaviour using a three-dimensional volume of fluid method, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 60 (2005), pp. 2999-3011.
- (4) Craig, V. S. J., Bubble coalescence and specific-ion effects, *Curr Opin Colloid Interface Sci*, Vol. 9 (2004), pp. 178-184.
- (5) Marčelja, S., Short-range forces in surface and bubble interaction, *Curr Opin Colloid Interface Sci.*, Vol. 9 (2004), pp. 165-167.
- (6) Ribeiro Jr., C. P., Mewes, D., The influence of electrolytes on gas hold-up and regime transition in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 62 (2007), pp. 4501-4509.
- (7) Tsang, Y. H., Koh, Y-H. and Koch, D. L., Bubble-size dependence of the critical electrolyte concentration for inhibition of coalescence, *J. Colloid Interface Sci.*, Vol. 275 (2004), pp. 290-297.
- (8) Lessard, R. R., Zieminski, S. A., Bubble coalescence and gas transfer in aqueous electrolytic solutions, *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, Vol. 10, No.2 (1971), pp. 260-269.
- (9) Rowlinson, J. S. and Widom, B., Molecular theory of capillarity, Oxford University Press (1984).
- (10) Cahn, J. W. and Hilliard, J. E., Free energy of a nonuniform system, I. Interfacial energy, *J. Chem. Phys.*, Vol. 28, No. 2 (1958), pp. 258-267.
- (11) Yonemoto, Y., Kunugi, T., Development of multi-scale multiphase flow equation and thermodynamic modeling of gas-liquid interface, *Therm. Sci. Eng.*, Vol. 16, No. 1 (2008), pp. 11-29.
- (12) Chapman, S. and Cowling, T., The mathematical theory of non-uniform gases, (1970), 3rd Edn. Cambridge University Press.
- (13) Chorin, A. J., Numerical solution of the Navier-Stokes equations, *Math. Of Comput.*, Vol. 22, No. 104 (1968), pp. 745-762.
- (14) Youngs, D. L., Numerical Methods for Fluid Dynamics, Academic Press (1982) pp. 273-468.
- (15) Kunugi, T., MARS for Multiphase Calculation, *Computational. Fluid Dynamics J.*, Vol. 9 (2001), pp. 563-571.
- (16) Israelachvili, J. N., Intermolecular and surface forces, Academic Press (1992).
- (17) Yonemoto, Y., Kunugi, T., Analytical consideration of thermodynamic jump condition, *Progress in Multiphase Flow Research*, Vol. 3 (2008), pp. 27-34.
- (18) Yonemoto, Y., Study on the mathematical modeling of gas-liquid interface (in Japanese), Kyoto Univ., Japan, 2008, Ph. D. Thesis.
- (19) Matsumoto, Y., Fluid-dynamic structure of air-water bubbly flow with micro-bubbles, Proc. of the 4th International Conference on Multiphase Flow, New Orleans LA, USA, May 27-June 1, (2001), CDROM 332.
- (20) Sir Lamb, H., Hydrodynamics (6th ed.), Cambridge Univ. Press (1932), pp. 473-475.