水平に並んで上昇する 2 気泡の合体と反発*

Bouncing and Coalescence of a Pair of Bubbles Rising Side by Side

真田 俊之** 杉原 慶治*** 城田 農** 渡部 正夫** 深野 徹
 SANADA Toshiyuki SUGIHARA Keiji SHIROTA Minori WATANABE Masao FUKANO Tohru

Abstract Experimental study on bouncing and coalescence of a pair of bubbles rising side by side in a quiescent liquid has been performed. A novel bubble generator has been developed to generate pairs of bubbles precisely. High-speed imaging technique has been employed to investigate the trajectory and shape of bubbles in detail. We observed that the trajectory of rising bubble varies with Reynolds number. When the Reynolds number is over the critical region, a pair of bubbles approaches each other and then collides. After the collision, two types of motion are observed: coalescence and bouncing. We investigate the critical Reynolds number and Weber number, based on the rising velocity, over which bubbles bounce. As a result, we clarify that the critical Weber number is around 2 regardless of Morton number. The critical Reynolds number decreases with increasing Morton number. In addition, we have found that the bouncing of a pair of bubbles differs from that of single bubbles at a wall; the two bubbles perform attracting and bouncing motion continuously with a rising velocity being kept almost constant, and the amplitude of bouncing motion of bubbles is seven to eight times larger than that of a single bubble at a wall.

Keywords: Bubble, Coalescence, Bouncing, Approach velocity, Rising velocity

1. 緒言

気泡流は、液体中に気体を吹き込むだけの簡単な操作で実現できるため、化学プラントやバイオリアクターなど、幅広い工業装置において使用されている。特に、気泡塔などの大型工業装置（数 10 メートルの規模）では、実機での最適制御値を求めるための実験は、そのスケールのため困難となる。そのため、産業界からの気泡流の数値予測に対する要望は非常に高い[1]。しかし設計に利用できるような精緻な数値予測法は未だ確立されていない。

気液反応装置の設計においてもっとも重要なのは、気液接触面積を推定することである。すなわちどの程度の径の気泡がいくつ存在するか（数密度分布）を予測することである。装置内の気泡

は生成後、相互干渉により接触し、さらには合体・分裂を繰り返しながら上昇する。ここで、同じ径の気泡が合体すれば、気泡の表面積は約 20% 減少する。合体を数回繰り返せば、表面積は約半分にもなりえる。そのため気液接触面積の推定においては、気泡の合体条件を把握する必要がある。しかし、現在の数値予測では、ほとんどの計算コードで気泡の合体・分裂は考慮していない。そこで本研究では、気泡の合体条件を明らかにする第一歩として、静止液体中を上昇しながら合体もしくは反発する 2 気泡の挙動を明らかにする。

気泡の合体に関して、Kirkpatrick ら[2]は自由界面に気泡を衝突させ、自由界面への接近速度が大きい場合には気泡は反発し、また接近速度が小さい場合には合体することを明らかにした。また

* 2005.11.15 受付

** 九州大学大学院工学研究院 〒819-0395 福岡県福岡市西区元岡 744 番地
 TEL (092)802-3104 FAX (092)802-0001 E-mail: sanada@mech.kyushu-u.ac.jp

*** 九州大学大学院工学府

† 久留米工業大学

Chesters ら[3]は、接近した 2 気泡間の液膜のみを考慮して数値解析を行い、接近速度が大きな場合、液膜内の圧力が非常に高くなり dimple を形成し、気泡が反発することを数値的に示した。さらに Duineveld[4]は、超純水中で合体・反発する気泡の挙動を観察し、2 気泡の接近速度を基にしたウェーバー数で合体と反発の境界を整理できることを示した。すなわちこれまでの研究で、気泡の接近速度が高い場合に、2 気泡間の液膜の圧力が高くなるため反発し、低い場合には合体するという物理モデルが提案されている。

一方 Sanada ら[5]は、自由界面での気泡反発において、気泡間液膜だけでなく、気泡後流が反発を決定する支配的な因子であることを数値解析(DNS)により示した。

本研究では、水平に並んで上昇する 2 気泡の挙動を実験的に調査した。特にその合体と反発挙動について着目し、気泡の合体と反発の境界について、Duineveld[4]の接近速度を基にした境界や、Sanada ら[5]が示した気泡後流を決定付ける因子の一つである「上昇速度」を用いた境界について

検討を行った。さらに 2 気泡の反発と、壁面での単一気泡の反発とを比較した。

2. 実験装置および方法

2.1 実験装置

Fig.1 に実験装置の概要を示す。実験では、プール中に水平に設置された二つのノズルから 2 気泡を同時に制御し発生させた。発生制御にはオーディオスピーカによる気体側圧力変動を利用した。発生制御部の詳細は真田ら[6]にある。プール中の気泡の挙動を観測するため、透明なアクリル樹脂で容器を製作した。ノズルとして先端を封じたナイロン製チューブ(外径 6mm、内径 4mm)の側面に $200\mu\text{m}$ の穴を二つあけたものを用いた。なお気泡に窒素、液体に精製水およびシリコンオイルを用いた。

撮影は、バックライトを用いて高速度ビデオカメラで行い、必要に応じてトラバース装置を用い、カメラを気泡の上昇に追従させた。

2.2 実験方法および範囲

実験は初期気泡間距離 s が 2.2~5.0mm、気泡半径 r が 0.41~0.95mm の範囲で行った。使用した精

Fig. 1 Schematic of experimental apparatus.

Table 1 Properties of liquid

	K0-1	K0-2	K0-3	K0.65	K1-1	K1-2	K1-3	K1-4	K1.5	K2	K5	K10
ρ kg/m ³	999	996	998	758	817	820	818	818	849	871	911	938
ν cSt	1.06	0.85	0.99	0.63	1.03	1.06	1.00	1.02	1.42	1.97	4.63	10.33
σ mN/m	73.0	71.6	72.7	15.9	16.9	16.9	16.9	16.9	17.7	18.3	19.7	20.1
Mo	3.14	1.36	2.47	1.65	1.24	1.39	1.1	1.23	4.41	1.59	4.46	1.14
	$\times 10^{-11}$	$\times 10^{-11}$	$\times 10^{-11}$	$\times 10^{-10}$	$\times 10^{-9}$	$\times 10^{-9}$	$\times 10^{-9}$	$\times 10^{-9}$	$\times 10^{-9}$	$\times 10^{-8}$	$\times 10^{-7}$	$\times 10^{-5}$

製水(K0-1~3)およびシリコンオイル(K0.65~10)の物性値を Table 1 に示す。

結果は、接近前の上昇速度 w を代表速度とした Re 数(式(1))および We 数(式(2)), また Duineveld[4] との比較のため、接近速度 u を代表速度とした W 数(式(3))で整理した。また Mo 数は式(4)で定義される。

$$Re = \frac{2rw}{\nu} \quad (1)$$

$$We = \frac{2\rho rw^2}{\sigma} \quad (2)$$

$$W = \frac{\rho ru^2}{\sigma} \quad (3)$$

$$Mo = \frac{g\nu^4 \rho^3}{\sigma^3} \quad (4)$$

2.3 画像処理

撮影された画像に対し画像処理を行い、気泡の重心位置、気泡形状、気泡径の測定を行った。まず、取得画像から背景画像を除去し、気泡のみの画像を抽出した。次に、メディアンフィルタを用いてノイズ除去を行った。二値化には判別分析法[7]を用い、自動的に閾値を決定した。その後、気泡中心部のスポットを除去し、ラベリング処理を施した。さらに、精度向上のために気泡の輪郭を、気泡の重心からの距離 r 、角度 θ の極座標で表し、式(5)の離散フーリエ級数で形状を再構築した。Fig.2 に再構築した気泡形状を示す。撮影した気泡の輪郭を□で、フーリエ記述子を用いて再構築した輪郭を実線で表す。

$$r(\theta) = A_0 + \sum_{n=2}^N (A_n \cos n\theta + B_n \sin n\theta) \quad (5)$$

Fig. 2 Reconstruction of bubble shape.

3. 実験結果および考察

3.1 水平に並んで上昇する2気泡の挙動

本節では、液体中を上昇する2気泡がどのような条件で接近・接触するかを明らかにするため、水平に並んで上昇する2気泡の挙動について述べる。

Legendre ら[8]は、球形の2気泡が水平に並んで上昇する際の気泡挙動に関する DNS を行い、 $30 < Re < 100$ を遷移領域として気泡に働く揚力の向きが変わることを示した。その領域より Re 数が大きい場合、気泡周りの境界層は十分に薄いいため気泡には接近力が働く。また、その領域より Re 数が小さい場合には、気泡周囲の渦度が支配的となり、反発力が働くことを示した。

Fig.3 に2気泡の挙動の一例を示す。Fig.3 (a)~(e)はシリコンオイル中、(f)および(g)は精製水中での結果である。なお Fig.3 (a)~(f)は2気泡、(g)は単一気泡の結果である。

Fig.3 (a)は $Re=16$ の場合で、気泡は発生後離れながら上昇した。これは Legendre ら[8]が数値解析で示したように、気泡周りに発達する渦度の非対称性から反発力が生じたためと考えられる。

Fig.3 (b)は $Re=47$ の場合で、2気泡はほぼまっすぐ上昇した。この場合の気泡径は $d=1.35$ mm であり $s/d=3.3$ となる。Legendre ら[8]の数値解析結果によると、 $Re=50$ で $s/d=3$ の2気泡に働く揚力はほぼゼロである。本実験結果においても、2気泡に揚力が作用しないためまっすぐ上昇したと考えられる。

Fig.3 (c)~(e)いずれの場合も、気泡は発生後接近・衝突した。衝突した2気泡は、 $Re=209$ の Fig.3 (c)の場合には合体し、 $Re=221$ の(d)の場合には反発した。また Fig.3 (d)の場合、気泡は反発後初期気泡間距離以上に離れ、その後接近せずまっすぐ上昇した。Fig.3 (c)および(d)より気泡径が大きな $Re=361$ の(e)の場合、気泡は接近・反発を繰り返しながら上昇した。

また、Fig.3(a)~(e)よりも初期気泡間隔を広くし、高レイノルズ数 ($Re=511$) の Fig.3(f)では、気泡は初め接近するがその後接触せずに、それぞれの気泡が大きく反対方向へと移動した。

以上の結果より高レイノルズ数で上昇する2気泡は発生後接近することが確認された。次節この領域の気泡について、合体と反発に関して検討を行う。

Fig. 3 (a~f) Trajectory of a pair of bubbles rising in a quiescent liquid, and (g) that of single bubble having almost the same Reynolds number as (f).

3.2 水平に並んで上昇する 2 気泡の合体と反発の境界

本節では、Fig. 3 (c)および(d)に見られる、水平に並んで上昇する高 Re 数の 2 気泡に関して、合体と反発の境界について調査した。

3.2.1 接近速度を用いた境界

本項では、合体と反発の境界について接近速度 u を用いた Duineveld[4]の手法について考察を行う。Duineveld[4]は、超純水中で水平に並んで上昇し衝突する 2 気泡の合体と反発の境界を調査し、接近速度 u を代表速度とする W 数(式(3))を用いて、 $W=0.18\pm0.03$ を境に、 W が小さいと合体、大きいと反発することを報告している。

Duineveld[4]が合体と反発の境界に用いた W 数(式(3))は、接近速度 u の 2 乗に比例するため、接近速度 u の決定が W 数に大きく影響を及ぼす。Fig. 4 に、発生後の 2 気泡間の重心間水平距離 Δx と接近速度 u の時間変化を示す。ここで u は Δx の時間変化で定義される。発生後、2 気泡が接近するにつれて u は増加し、特に、接触する直前には u は急激に増加する。しかし、この実験を行った撮影条件 (7812fps) では画像処理上この時刻以降の速度は測定できないため、接近速度は一意に定まらない。

Duineveld[4]は、このような加速度運動する代表速度 u として、2 気泡が接触する直前の画像を除き、それより前 2 枚の画像から決定した。しかしながら Fig. 5 に示すように 2 気泡が接触し反発

Fig. 4 Separate distance and approach velocity of a pair of bubbles.

Fig. 5 Images at the collision of bubbles ($\Delta t=2.5$ ms).

Fig. 6 Approach velocity before encounter.

する際には、2気泡はお互いが引き付け合って伸びたような形状に変形しており、一般に接触した瞬間を画像から選定することが困難である。

接触時刻の選定が、接近速度の算出に与える影響を、Duineveld[4]の撮影条件である 500fps を用いて検討した。Fig.6 は 500fps の場合と、7812fps の場合で接近速度の見積もりがどのように変わるかを示した図である。Fig.6 の A 点は 7812fps の場合に、接触が確認された直前の接近速度である。500fps の場合、接近直前での u の値は $u=77\text{mm/s}$ 、 $u=85\text{mm/s}$ 、 $u=95\text{mm/s}$ 、 $u=110\text{mm/s}$ と大きく変化しており、接触画像の選定が u の決定に大きな影響を与えることがわかる。さらに Duineveld[4]が合体と反発の境界に用いた W 数は、 u の 2 乗に関係するため、500fps の場合、 $u=80\text{mm/s}$ のとき $W=0.07$ 、 $u=110\text{mm/s}$ のとき $W=0.14$ となり、 W 数の値が 2 倍も異なる。つまり 500fps では u の算出に非常に大きな誤差を含んでいる。

以上のように、2気泡が接触する直前に接近速度 u が急激に上昇するため、再現性ある接近速度の決定は困難である。

また、Fig.3(f)に示したように、初期気泡間距離 s が比較的大きな場合の 2気泡は、初め少し接近するがその後接触せずに、それぞれの気泡が大きく反対方向へと移動した。つまり接近速度が非常に低くても反発した。着目すべき点は、2気泡が接触せずに反発したことである。なお、ほぼ同じ条件での単一気泡の結果の Fig.3 (g)では $z=55\text{mm}$ 程度で気泡が曲がっているため、Fig.3(f)の反発は 2気泡間の流体力学的相互干渉によって行われたと考えられる。

Duineveld[4]が提案した反発のモデル「2気泡間に存在する液膜内の圧力上昇により気泡は反

発する」が正しければ、2気泡は接近速度が高い場合のみ反発するはずである。しかし Fig.3 (f)の接近速度は上昇速度に比べ無視できるほど低い。それにかかわらず反発現象が観察されており、すなわち、気泡が Duineveld[4]の反発モデルとは異なる、他のメカニズムにより反発する可能性があることを示唆している。

以上の議論より、気泡の反発現象は接近速度よりも気泡後流などの液相速度が重要ではないかと予想する。そこで次項では、気泡後流を決定づける因子の一つである気泡の上昇速度 w を用いた Re 数や We 数での議論を行う。

Fig. 7 Separate distance and rising velocity of a pair of bubbles.

3.2.2 上昇速度を用いた境界

本項では、気泡後流を決定する因子の一つである上昇速度 w を用いた Re 数、 We 数を用いて、合体と反発の境界について考察する。

まず、上昇速度 w の決定について述べる。Fig.7 に、発生後の 2気泡間の重心距離 Δx と上昇速度 w の時間変化を示す。発生後 2気泡の上昇速度 w は徐々に大きくなり、 $t=0.05\text{s}$ で $w=320\text{mm/s}$ となり、ほぼ一定速度に達している。その後 2気泡が衝突する $t=0.068\text{s}$ まで、2気泡間距離 Δx が狭くなっても上昇速度 w はほぼ変化しない。

前項で述べたように接近速度 u は気泡間距離 Δx が狭くなるほど値が大きくなり(Fig. 4)、接触直前の u を特定することが難しい(Fig. 6)。それに対し上昇速度 w は、いったん終端速度に達すると 2気泡間距離 Δx に関係なく一定速度を保ちながら上昇する。このため、速度を決定する際の誤差が小さい。そこで以下では、上昇速度 w の終端速度を代表速度とした Re 数、 We 数を用いて合体と反発の境界について考察する。

まず Re 数について考察する。Fig. 8 に、水平に並んで上昇する 2 気泡が接触する際に、合体するかもしれない反発するかについて、縦軸に Re 数、横軸に $\log(Mo)$ をとったグラフを示す。精製水を用いた Fig. 8(a) において、 $Re=590$ 、 $Re=540$ 付近で合体と反発の境界が見られた。また、シリコンオイルを用いた Fig. 8(b)~(e) に関して、 $K0.65$ を用いた Fig. 8(b) では $Re=240$ 付近、Fig. 8(c) では、 $Re=220$ 、 $Re=200$ 付近、Fig. 8(d) では $Re=160$ 付近、Fig. 8(e) では $Re=110$ 付近が境界の値となり使用液体の Mo 数が高いほど、より低い Re 数が境界となった。なお Mo 数で整理することによって、表面張力係数の影響も考慮できる。Fig. 8(a) と (c) を比較すると、同一粘度であっても表面張力係数が高い方が境界の Re 数は高くなることがわかる。

次に We 数について考察する。Fig. 8 と同様の

実験結果を、縦軸に We 数、横軸に $\log(Mo)$ をとり Fig. 9 に示す。精製水を用いた Fig. 9(a) において、 $We=1.8$ 、 $We=2.1$ 付近で合体と反発の境界が見られた。また、シリコンオイルを用いた Fig. 9(b)~(e) に関して、Fig. 9(b) では $We=2.1$ 付近、Fig. 9(c) では $We=2.0$ 付近、Fig. 9(d) では 2.1 付近、Fig. 9(e) では 1.9 付近が境界となっている。

上昇速度 w を代表速度にした We 数では、 Mo 数の違いに関わらず、いずれの場合も $We=2$ 付近が合体と反発の境界であった。

以上の結果より、合体と反発の境界を整理するのに重要なパラメータは、上昇速度 w を用いた Re 数や We 数であることがわかる。

2 気泡の反発現象は、壁面での単一気泡反発のモデルとして頻繁に用いられる。次節、壁面で反発する気泡と 2 気泡の反発現象について、比較・検討を行う。

Fig. 8 Criteria of coalescence or bouncing of Re .

Fig. 9 Criteria of coalescence or bouncing of We .

3.3 壁面で反発する気泡との比較

本節では、水平に並んで上昇する2気泡と、鉛直な壁面で反発する単一気泡について比較、検討する。

de Vries[9]は壁面と衝突する単一気泡について、壁面と衝突後、壁面にそって上昇する気泡 (sliding bubble) と、反発する気泡の境界について、超純水を用いて調査を行った。境界を整理するのに、鏡像気泡との接近速度を代表速度にした We_{dc} 数(式(6))を用い、 $We_{dc}=0.165$ より大きければ反発することを示した。

$$We_{dc} = \frac{2\rho r u^2}{\sigma} \quad (6)$$

またこの値は、水平に並んで上昇する2気泡の合体と反発の境界を示した Duineveld[4]の W 数(式(3))の値、 $W=0.18$ とほぼ一致しているため、壁面で反発する単一気泡と、2気泡が反発するメカニズムが同一であると報告している。また de Vries ら[9]は、後流を可視化することにより、壁面と気泡が衝突する際に、気泡後流部で渦が放出されることを観察した。渦放出により最大で97%上昇速度(運動エネルギー)が低下し、それが壁面と逆方向への横方向速度となって表れ、気泡は壁面と反発するモデルを提案している。

Fig.10において、水平に並んで上昇する2気泡が反発する際の2種類の挙動 (Fig.3 (d)と(e))の上昇速度の時間変化を示す。Fig.3 (d)のように、一回のみ反発する場合には、de Vries ら[9]が示したように大きな速度低下が見られる。一方反発を繰り返す場合には、少しの速度低下はあるものの、顕著な速度変化は観察されない。

さらに、de Vries ら[9]が境界を表すのに用いた We_{dc} 数(式(6))は Duineveld[5]が用いた W 数(式(3))より2倍大きくなる。すなわち de Vries ら[9]の結果のみでは、2気泡の反発メカニズムは壁面で反発する気泡のそれと同一とは言えない。

また Takemura ら[10]は de Vries ら[9]と同様の実験を 1cSt のシリコンオイルで行い、 $We=0.41$ が境界となり、de Vries ら[9]の値と3倍も異なることを示した。そのため Takemura ら[10]は、履歴力などの粘性の効も重要であることを示した。

Takemura ら[10]が示した壁面と反発を繰り返す単一気泡と本実験結果の挙動を Fig. 11 に示す。Fig. 11 縦軸は2気泡中心からの距離、もしくは

Fig. 10 Rising velocity of bouncing bubbles.

Fig. 11 Bouncing motion of a pair of bubbles, and that of a bubble at a wall.

壁面から重心までの距離 l を気泡径 r で割った無次元数 l/r を表し、横軸は時間 t である。壁面での単一気泡反発と2気泡の反発を比べると、周期はほぼ同じである。しかしその振幅は、2気泡反発の方が7~8倍大きくなる。

以上の結果より、2気泡の反発には、壁面での単一気泡反発モデルでは予測できない現象が観測された。すなわち、上昇速度の急激な速度変化は無く、反発が繰り返される。また反発振幅は、壁面での単一気泡反発と比べ著しく大きい。今後詳細な実験・計算を行い、これら2気泡反発特有の現象を定量的に予測可能なモデルを構築する予定である。

4. 結 言

本研究では、精製水およびシリコンオイル中で水平に並んで上昇する2気泡について実験的に調査し、以下の結論を得た。

(1)水平に並んで上昇する2気泡間には、 Re 数

が小さければ反発力が、 Re 数が大きければ引力が働く。

(2) 高レイノルズ数で接近する 2 気泡の接近速度の決定は困難である。

(3) 2 気泡の合体と反発の境界は、 $We=2$ 付近である。このとき、 Mo 数が高いほど低 Re 数が境界となる。

(4) 反発を繰り返す 2 気泡の上昇速度の急激な変化は見られない。またその際の反発振幅は、壁面での単一気泡反発と比べ 7 ～ 8 倍大きい。

Nomenclature

d	: bubble diameter	[mm]
g	: gravity	[mm/s ²]
Mo	: Morton number	[-]
r	: bubble radius	[mm]
Re	: Reynolds number	[-]
s	: initial separation of a pair of bubbles	[mm]
t	: time	[s]
u	: approaching velocity	[mm/s]
w	: rising velocity	[mm/s]
We	: Weber number (equation (2))	[-]
W	: Weber number (equation (3))	[-]
We_{de}	: Weber number (equation (6))	[-]
Δx	: separation of a pair of bubbles	[mm]

(Greek letters)

ν	: coefficient of kinematic viscosity	[mm ² /s]
ρ	: density	[kg/m ³]
σ	: surface tension coefficient	[mN/m]

参考文献

- [1] 小島博光, 小嶋英一, 前澤昭礼, 気泡塔の工業的実施状況, 化学工学, 62, 202-204 (1998).
- [2] Kirkpatrick, R. D. and Lockett, M. J., The influence of approach velocity on bubble coalescence, *Chem. Eng. Sci.*, 29, 2363-2373 (1974).
- [3] Chesters, A. K. and Hofman, G., Bubble coalescence in pure liquid, *Appl. Sci. Res.*, 38, 353-361 (1982).
- [4] Duineveld, P. C., Bouncing and coalescence of two bubbles in water. Ph.D. thesis, Twente University, (1994).
- [5] Sanada, T., Watanabe, M., Fukano, T., Effects of viscosity on coalescence of a bubble upon impact with a free surface, *Chem. Eng. Sci.*, 60, 5372-5384 (2005).
- [6] 真田俊之, 渡部正夫, 仮屋崎侃, 深野徹, ノズルから発生する単一気泡列の挙動に及ぼす発生頻度および気泡径の影響, 機論 B, 69(678), 307-314 (2003).
- [7] 大津展之, 判別および最小 2 乗規準に基づく自動しきい値選定法, 電子通信学会論文誌, D, J63-D4, 349-356 (1980).
- [8] Legendre, D., Magnaudet, J. and Mougin, G., Hydrodynamic interactions between two spherical bubbles rising side by side in a viscous liquid, *J. Fluid Mech.*, 497, 133-166 (2003).
- [9] de Vries, A. W. G., Biesheuvel, A. and van Wijngaarden L., Note on the path and wake of a gas bubble rising in pure water. *Int. J. Multiphase Flow*, 28, 1823-1835 (2002).
- [10] Takemura, F. and Magnaudet, J., The transverse force on clean and contaminated bubbles rising near a vertical wall at moderate Reynolds number, *J. Fluid Mech.*, 495, 235-253 (2003).