Free-energy 型格子ボルツマン法を用いた 固体表面のぬれシミュレーション

山本 知世, 三野 泰志*, 中曾 浩一, 後藤 邦彰

Numerical Simulation of Wetting Phenomena on Solid Surface Using Free-energy Lattice Boltzmann Method

Tomoyo Yamamoto, Yasushi Mino*, Koichi Nakaso and Kuniaki Gotoh

Received 29 March 2019; Accepted 29 May 2019

Powder wettability is one of the important characteristics in various industrial powder processes. Understanding and modeling the liquid penetration into the powder layer are essential to evaluate the powder wettability. For this purpose, the numerical simulation is a promising approach. However, it has been challenging to effectively simulate the wetting phenomena on complex solid surface such as powder layer. In this paper, as a first step of modeling the wetting of powder layer, a numerical simulation model for the liquid penetration phenomena was developed using the lattice Boltzmann method (LBM) with the free-energy model. Our model was validated by two simple numerical problems. The simulation model was then applied to the system where the meniscus formed at the liquid-liquid interface in circular and square channels. Here, the square channel can be considered as a simplest model for the flow path inside the powder layer. Finally, the liquid penetration phenomena in the two channels were demonstrated.

Keywords: Powder wettability, Liquid penetration, Washburn equation, Numerical simulation, Lattice Boltzmann method (LBM).

1. 緒 言

粉体のぬれ性は湿式生産プロセスや品質管理などに関連する重要な粉体特性のひとつである。たとえば、湿式生産プロセスでは粉体の液中分散性能やスラリーの流動性、乾燥工程における粉体成形体の性質などに、品質管理では顔料や医薬材などの製品性能、錠剤の溶解速度、粉洗剤や粉末食品の固化などに関与する。粉体のぬれ性は接触角によって定量的に表わされることが多く、接触角が大きいとぬれにくく、小さいとぬれやすいと評価される。

接触角の測定方法としてよく用いられる手法の一つに浸透速度法[1–3]がある。本手法では、対象粉体を円筒型容器に充填し、液体がその粉体層内を浸透した高さを経時的に測定する。測定結果に対して、次の Washburn 式を適用することで接触角 θ が算出される。

$$h^2 = \frac{r_h \gamma \cos \theta}{2\eta} t \quad (1)$$

ここで、 h は浸透高さ、 r_h は粉体層の毛細管半径、 γ は液体の表面張力、 η は液体の粘度、 t は浸透時間である。一般に r_h を実測することは困難であるため、次式で示される粉体充填層流路の水力相当半径が用いられる。

$$r_h = \frac{2\varepsilon}{(1-\varepsilon)S_v} \quad (2)$$

なお、 S_v は比表面積、 ε は空隙率である。つまり、ここでは粒子間隙からなる微細かつ複雑な流路が半径 r_h の円筒状の毛細管によってモデル化されている。

浸透速度法で得られる粉体の接触角は、一般に、粒子を構成する物質が示す接触角よりも大きくなる。この原因として、実在する粉体層流路はその断面が非円形であり、不均一に屈曲したネットワーク構造であるにもかかわらず、それを摩擦損失が等価な円筒状の毛細管によってモデル化し、円管を前提とする Washburn 式を適用していることが考えられる。したがって、実在系における粒子形状の影響や充填構造の不均一さを反映したモデル化が必要であり、そのためにはまず粉体層内への液浸透現象を理解しなければならない。

本研究では数値シミュレーションを用いたアプローチ

粉体工学会 2018 年度秋期研究発表会, 2018 年 11 月 27 日, 東京ビッグサイト, BP 賞受賞

岡山大学大学院 自然科学研究科 応用化学専攻
(〒 700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1)

Division of Applied Chemistry, Graduate School of Natural Science and Technology, Okayama University
(3-1-1 Tsushima-naka, Kita-ku, Okayama 700-8530, Japan)

* Corresponding Author ymino@okayama-u.ac.jp

を採用する。流体シミュレーション手法として格子ボルツマン法 (Lattice Boltzmann method, LBM) [4-6]を用いる。LBM では、流体を有限個の速度を持つ多数の仮想粒子の集合体 (格子気体モデル) で近似する。仮想粒子の衝突と並進を表す速度分布関数の時間発展方程式を逐次計算することで、巨視的な流れ場 (流速や圧力など) が求められる。本手法では、圧力の Poisson 方程式を解く必要がないために、並列計算に適しており、計算速度が比較的速いことから3次元計算にも有効である。これにより、界面の影響を正確に記述するために必要な3次元かつ十分な解像度での計算が可能となる。

二相流体を扱う LBM はこれまでに数多く提案されており、二相の表現のしかたによって Color-gradient モデル [7], Pseudo-potential モデル [8], Free-energy モデル (Phase-field モデル) [9] の3種類に分類される。これらの中から本研究では Free-energy モデルを採用する。Free-energy モデルは、界面の動きが非平衡熱力学に基づいて表現されるモデルであり、系全体の自由エネルギーが最小となるように界面の位置が自然に更新される。さらに、固液境界を効率よく計算することのできる Smoothed profile 法 (SPM) と連成することで、複雑な固液界面を含む二相流れを簡便に計算することができる [10,11]。ぬれを伴う液液二相流れに対する本モデルの有効性は、2次元系に対しては Mino らによって示されているが [12], 3次元系へのモデルの拡張とその有効性の検討はいまだなされていない。

本論文では、粉体層内への液浸透現象を解明するための第一段階として、Free-energy 型 LBM と SPM の連成に基づいた3次元液液二相流体シミュレーションモデルを構築した。液中に静止した単一液滴および固体表面上の単一液滴を計算することで二相流体モデルの妥当性を検証した。さらに、毛細管内における液液界面形状および液浸透挙動について検討を行った。毛細管には円管と四角管 (流路断面が正方形) を用いた。ここでは、粉体層内に存在する複雑な流路の特長の一つとして角のある流路断面に着目し、断面が角を有するシンプルなモデル流路として四角管を選択した。実際の粉体層内流路に比べて単純化された系ではあるが、本検討では角が存在する流路における液浸透現象を再現する点が重要であり、得られる知見は粉体層内への液浸透現象の理解へつながるものと期待できる。

2. シミュレーション手法

以降で使用する物理量はすべて、代表長さ $\hat{L}$, 仮想粒子の代表速さ $\hat{c}$, 時間スケール $\hat{t}_0 = \hat{L}/\hat{U}$ ($\hat{U}$: 流れの代表速さ), 液液界面を識別する秩序変数の基準値 $\hat{\phi}_0$, および基準密度 $\hat{\rho}_0$ で無次元化したものである [6]。

$$\begin{aligned} c_i &= \hat{c}_i / \hat{c}, & x &= \hat{x} / \hat{L}, & t &= \hat{t} / \hat{t}_0, \\ \phi &= \hat{\phi} / \hat{\phi}_0, & \rho &= \hat{\rho} / \hat{\rho}_0, & u &= \hat{u} / \hat{c}, \\ p &= \hat{p} / (\hat{\rho}_0 \hat{c}^2), & \nu &= \hat{\nu} / (\hat{\rho}_0 \hat{c} \hat{L}), & \sigma &= \hat{\sigma} / (\hat{\rho}_0 \hat{c}^2 \hat{L}) \end{aligned} \quad (3)$$

ここで、 $\hat{}$ は有次元を示す。

2.1 液液二相系 LBM

Free-energy 型二相系 LBM では、各液相は組成の秩序変数 ϕ によって区別され (相 A: ϕ_A , 相 B: ϕ_B), 系全体の自由エネルギーが最小になるように界面位置が決定される (Fig. 1)。非平衡熱力学に基づいて界面の位置が更新されていくことから、複雑な界面形状およびその変化を簡便に計算することが可能となる。

本研究では、Inamuro らによって開発された等密度の液液二相系モデル [13] を採用した。格子気体モデルは3次元 15 速度 (D3Q15) モデル (Fig. 2) を用いた。D3Q15 モデルでは、計算空間を立方体格子で分割し、各格子点上の仮想粒子の速度 c_i ($i = 1, 2, \dots, 15$) を以下のように与える:

$$\begin{aligned} &[c_1, c_2, c_3, c_4, c_5, c_6, c_7, c_8, c_9, c_{10}, c_{11}, c_{12}, c_{13}, c_{14}, c_{15}] \\ &= \begin{bmatrix} 0 & 1 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & -1 & 1 & -1 & 1 & -1 & 1 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & -1 & 0 & 0 & 1 & -1 & 1 & -1 & -1 & 1 & -1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & -1 & 1 & -1 & -1 & 1 & 1 & -1 & -1 & 1 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (4)$$

本手法では、液液界面を識別する秩序変数 ϕ を求める速度分布関数 f_i と流体の速度および圧力を求める速度分布

Fig. 1 Concept of the free-energy model to describe a fluid-fluid binary system

Fig. 2 Three-dimensional 15-velocity (D3Q15) model

関数 g_i の2種類を用いる[13]。座標 $\mathbf{x}$ 、時刻 t において速度 $\mathbf{c}_i$ をもつ仮想粒子の速度分布関数 $f_i(\mathbf{x}, t)$ および $g_i(\mathbf{x}, t)$ の時間発展方程式は以下のように表される。

$$f_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta x, t + \Delta t) = f_i(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_f} [f_i(\mathbf{x}, t) - f_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t)] \quad (5)$$

$$g_i(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta x, t + \Delta t) = g_i(\mathbf{x}, t) - \frac{1}{\tau_g} [g_i(\mathbf{x}, t) - g_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t)] \quad (6)$$

ここで、 $f_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t)$ 、 $g_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t)$ は局所平衡分布関数、 Δx は立方格子の間隔、 Δt は仮想粒子が格子点間を移動するのに要する時間、 τ_f, τ_g はそれぞれ f_i, g_i の緩和時間である。

流体の巨視的変数である秩序変数 ϕ 、圧力 p および流速 $\mathbf{u}$ は、分布関数 f_i および g_i を用いて以下のように求められる。

$$\phi(\mathbf{x}, t) = \sum_{i=1}^{15} f_i(\mathbf{x}, t) \quad (7)$$

$$p(\mathbf{x}, t) = \frac{1}{3} \sum_{i=1}^{15} g_i(\mathbf{x}, t) \quad (8)$$

$$\mathbf{u}(\mathbf{x}, t) = \sum_{i=1}^{15} \mathbf{c}_i g_i(\mathbf{x}, t) \quad (9)$$

また、液体の動粘性係数 ν は緩和時間 τ_g を用いて次式で表される。

$$\nu = \frac{1}{3} \left(\tau_g - \frac{1}{2} \right) \Delta x \quad (10)$$

等密度の液液二相系モデルにおいて局所平衡分布関数 f_i^{eq} 、 g_i^{eq} は次式で与えられる。

$$f_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t) = H_i \phi + F_i \left[p_0 - \kappa_f \phi \nabla^2 \phi - \frac{\kappa_f}{6} |\nabla \phi|^2 \right] + 3E_i \phi c_{i\alpha} u_\alpha + E_i \kappa_f G_{\alpha\beta}^\phi c_{i\alpha} c_{i\beta} \quad (11)$$

$$g_i^{\text{eq}}(\mathbf{x}, t) = E_i \left[3p + 3c_{i\alpha} u_\alpha - \frac{3}{2} u_\alpha u_\alpha + \frac{9}{2} c_{i\alpha} c_{i\beta} u_\alpha u_\beta \right] + E_i \kappa_g G_{\alpha\beta}^\phi c_{i\alpha} c_{i\beta} \quad (12)$$

ここで、式中の定数は以下の式で与えられる。

$$E_1 = \frac{2}{9}, E_2 = \dots = E_7 = \frac{1}{9}, E_8 = \dots = E_{15} = \frac{1}{72} \quad (13)$$

$$H_1 = 1, H_2 = \dots = H_{15} = 0 \quad (14)$$

$$F_1 = -\frac{7}{3}, F_i = 3E_i (i = 2, \dots, 15) \quad (15)$$

また、 $G_{\alpha\beta}^\phi$ は次のように示される。

$$G_{\alpha\beta}^\phi = \frac{9}{2} \frac{\partial \phi}{\partial x_\alpha} \frac{\partial \phi}{\partial x_\beta} - \frac{3}{2} \frac{\partial \phi}{\partial x_\gamma} \frac{\partial \phi}{\partial x_\gamma} \delta_{\alpha\beta} \quad (16)$$

上式において、 $\alpha, \beta, \gamma = x, y, z$ は総和規約に従い、 $\delta_{\alpha\beta}$ は Kronecker のデルタである。

Eq. (11) 中の p_0 はバルクがもつ自由エネルギー $\mu(T, \phi)$ を用いて次式で与えられる。

$$p_0 = \phi \frac{\partial \mu(T, \phi)}{\partial \phi} - \mu(T, \phi) \quad (17)$$

Inamuro らのモデルではファン・デル・ワールス流体についての自由エネルギー

$$\mu(T, \phi) = \phi T \ln \left(\frac{\phi}{1 - b\phi} \right) - a\phi^2 \quad (18)$$

が用いられる。なお、 a, b, T は自由エネルギーの関数形を決める任意の定数であり、これらによって秩序変数 ϕ の最大値および最小値が決まる。 κ_f は界面の幅を決める定数である。本モデルにおいて、界面の幅に分子レベルでの物理的な意味はなく、界面の曲率を十分な精度で計算できるように κ_f を設定する必要がある。Eq. (12) 中の κ_g は界面張力の大きさを決める定数であり、界面張力 σ は以下の式で与えられる。

$$\sigma = \kappa_g \int_{-\infty}^{\infty} \left(\frac{\partial \phi}{\partial \xi} \right)^2 d\xi \quad (19)$$

ここで、 ξ は界面に垂直な座標を示す。Eqs. (11), (12) および (16) における微分の計算には以下の差分近似を用いた。

$$\frac{\partial \phi}{\partial x_\alpha} \approx \frac{1}{10 \Delta x} \sum_{i=2}^{15} c_{i\alpha} \phi(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t) \quad (20)$$

$$\nabla^2 \phi \approx \frac{1}{5(\Delta x)^2} \left[\sum_{i=2}^{15} c_{i\alpha} \phi(\mathbf{x} + \mathbf{c}_i \Delta t) - 14\phi(\mathbf{x}) \right] \quad (21)$$

本研究では、液液界面を識別する秩序変数 ϕ に関するパラメータを $a = 1.0, b = 1.0, T = 0.293$ とし、 ϕ の最大値および最小値はそれぞれ $\phi_{\text{max}} = 0.405 (= \phi_A)$ 、 $\phi_{\text{min}} = 0.265 (= \phi_B)$ とした。二流体は等密度かつ等粘度とし、緩和時間 $\tau_f = 0.56, \tau_g = 0.56$ 、界面張力に関するパラメータ $\kappa_f = 0.03(\Delta x)^2, \kappa_g = 0.1(\Delta x)^2$ の条件で計算を行った。このとき、液液界面に働く界面張力は $\sigma = 3.78 \times 10^{-4} \Delta x$ であった。

2.2 固体表面のぬれ性

固体表面に対して滑りなし条件を課すために、SPM [14,15]を用いた。本手法では、固体領域および流体領域でそれぞれ $\psi = 1, \psi = 0$ をとり、その間の境界領域で値が連続的に変化するような Smoothed profile 関数 $\psi(\mathbf{x}, t)$ を導入する。速度などの場の量を流体領域だけでなく固体領域も含めた計算領域全体について定義し、境界領域中で固体から流体へと物理量を滑らかに変化させる。これにより、円管のような曲面をもつ固液境界を LBM の直交座標に従った階段形状ではなく、滑らかな界面として表現することが可能である。SPM は粒子分散液流れのような移動を伴う固液境界を扱うために用いられる手法であるが、本研究では静止した固液界面に対して適用した。SPM と LBM との連成については文献[16,17]に示されている。

固体表面のぬれ性を表現するために、 ψ によって区別された固体内部の秩序変数 ϕ によって接触角 θ を設定する手法を用いた[10]。固体領域における秩序変数 ϕ_s を次のように定義する。

$$\phi_s = \frac{1+\chi}{2}\phi_A + \frac{1-\chi}{2}\phi_B \quad (-1 \leq \chi \leq 1) \quad (22)$$

ここで、 χ は固体表面と流体の親和度、 ϕ_A および ϕ_B はそれぞれ流体 A および B の秩序変数である。 $\chi = 1$ の場合には $\phi_s = \phi_A$ となり、固体が流体 A と同じ成分であることを意味しており、流体 A は固体表面に対して接触角 0° (流体 B は接触角 180°) を示す。一方、 $\chi = -1$ では $\phi_s = \phi_B$ となり、流体 B が固体表面に対して接触角 0° を示す。すなわち、親和度 χ ($-1 \leq \chi \leq 1$) に応じて接触角 θ は $0^\circ \leq \theta \leq 180^\circ$ の値をとる。親和度 χ と固体平面上における接触角 θ との関係は次式によって表わされる[10]。

$$\cos \theta = \frac{\chi}{2}(3 - \chi^2) \quad (23)$$

本モデルでは、固体領域における ϕ が一定値 ϕ_s となるような自由エネルギー[11]を設定することにより、固体領域および境界領域も含めたすべての計算領域について系の自由エネルギーが最小となるように界面形状が自然に決まる。そのため、一般的なぬれモデルのように、設定した接触角を満たすように、界面の勾配の値を用いて固体内部の秩序変数を強制する必要がなく、複雑な形状をした固体表面におけるぬれ現象を簡便に記述することができる。

3. 結果と考察

3.1 単一液滴

液液二相流体モデルの妥当性を確認するために、無重力条件下における単一液滴の計算を行った。計算領域を $64\Delta x \times 64\Delta x \times 64\Delta x$ と設定し、全面に周期境界条件を適

Fig. 3 (a) Snapshot of a stationary drop of $R = 17\Delta x$ in a simulation box filled with another fluid. (b) Pressure difference ΔP between the inside and the outside of the drop. The calculation results are compared with the theoretical values given by the Laplace's law.

用した。液体 A で満たした領域の中心に半径 $R = 8.5\Delta x, 10.0\Delta x, 11.5\Delta x, 14.5\Delta x, 17.0\Delta x, 20.0\Delta x$ の球形液滴 B を配置し、系が平衡状態に達するまで計算を行った。

計算結果の一例として、半径 $R = 17.0\Delta x$ の条件で平衡状態に達したときのスナップショットを **Fig. 3** (a) に示す。本研究で用いた液液二相流体モデルでは液液界面が幅をもった領域として表されるため、本論文で示すスナップショットでは $\phi = 0.335$ ($= (\phi_A + \phi_B)/2$) に対応する等値面を液液界面として表した。液滴内部と外部の圧力差 ΔP と R^{-1} の関係を **Fig. 3** (b) に示す。図より、圧力差は液滴半径 R が小さいほど大きくなるのがわかった。シミュレーション結果を、Laplace の式から求められる理論圧力差 ΔP_{th} と比較した。

$$\Delta P_{th} = \frac{2\sigma}{R} \quad (24)$$

シミュレーション結果と理論値が良好に一致していることから、液液二相流体モデルの平衡時における妥当性が確認できた。

3.2 固体平面における液滴のぬれ

本研究で採用したぬれモデルの妥当性を調べるために、**Fig. 4** (a) に示すように固体平面における液滴のぬれ挙動の計算を行った。計算領域を $64\Delta x \times 64\Delta x \times 64\Delta x$ と設定し、境界条件として側面に周期境界条件を、上下面に鏡面境界条件を適用した。計算領域の底部 ($z \leq 5\Delta x$) に固体を設置し、その上部を液体 A で満たした。固液境界には 2.2 で述べたぬれモデルを適用した。固体表面に接するように、半径 $R = 10\Delta x$ の液滴を配置した後、平衡状態

Fig. 4 (a) Snapshot of a spread drop on the solid with a flat surface in a simulation box filled with another fluid: The affinity of the solid is $\chi = 0$. (b) Contact angles of a spread/shrunk drop as a function of the affinity χ of the flat surface. The solid line represents the theoretical expectation Eq. (23).

に達するまで計算を行った。固体領域の親和度 χ を変化させて計算を行い、平衡状態における液滴の接触角 θ を測定した。

接触角 θ と親和度 χ の関係を Fig. 4 (b) に示す。また、平らな固液界面と液液界面との間で形成される接触角と親和度 χ との理論的な関係 (Eq. (23)) を同図に示す。シミュレーション結果が理論値と良好な一致を示していることから、本研究で用いたぬれモデルの妥当性が示された。ただし、ここで実施した検証問題は平衡時における妥当性を示すものであるため、今後は非平衡時におけるぬれモデルの精度についてもさらに検証する必要がある。

3.3 毛細管内における液液界面形状

毛細管内で等密度の液液二相流体間に形成される界面の静的形状を計算した。毛細管として、基準となる円管と、粉体層内の複雑な流路のもっともシンプルなモデルと見なすことができる四角管 (流路断面が正方形) について検討した。毛細管内の流れを検討するために、計算領域の中心に z 軸方向に伸びる円柱状および四角柱状の流路を配置し、その周りの領域を固体とした。これらの流路の水力相当半径を等しくするために、円柱の半径を $32\Delta x$ に、四角柱の一辺を $64\Delta x$ に設定した。系が面対称であることから、計算は半分の領域に対して行った (Fig. 5 (a) 円管, (b) 四角管)。計算領域を $80\Delta x \times 40\Delta x \times 160\Delta x$ とし、境界条件として上下面に滑りなし境界条件を、対称面を含むすべての側面に鏡面境界条件を適用した。また、固液境界には 2.2 で述べたぬれモデルを適用した。固体表面の接触角は $\theta = 30^\circ$ ($\chi = -0.56$) と設定した。それぞれの管内の上部と下部を液体 A, B で満たし、平衡状態に達するまで計算を行った。

円管内および四角管内で形成された液液界面のスナップショットをそれぞれ Fig. 5 (a), (b) に示す。円管と四角管のどちらの場合においても、界面形状は球面の一部をなすことが確認された。円管および四角管で形成されたメニスカスの上下の圧力差 ΔP を計算した結果、それぞれ $\Delta P = 1.79 \times 10^{-5}$, 1.78×10^{-5} であった。四角管流路の一辺が円管の直径に等しいことから、幾何学的に求められる圧力差の理論値 ΔP_{th} は円管と四角管で等しく、 $\Delta P_{th} = 1.79 \times 10^{-5}$ である。円管および四角管ともに計算結果と理論値が良好に一致していることから、用いたぬれモデル

Fig. 5 Snapshots of the meniscus formed in (a) a circular tube and (b) a square tube

が曲率や角をもつ固体に対しても適用可能であることが示された。

3.4 毛細管への液浸透挙動

密度の等しい液体で満たされた毛細管内への液浸透挙動を計算した。ここでも、毛細管として円管と四角管を用い、系の面対称性より計算は半分の領域に対して行った。計算系を Fig. 6 (z 軸方向に 0.5 倍に縮小した) に示す。計算領域を $40\Delta x \times 20\Delta x \times 800\Delta x$ とし、境界条件として上下面に周期境界条件を、対称面を含むすべての側面に鏡面境界条件を適用した。また、固液境界には 2.2 で述べたぬれモデルを適用した。図に示すように、 $z = 160\Delta x \sim 560\Delta x$ の部分にのみ、円管および四角管を 3.3 と同様に配置した。それぞれの管内の $z = 0 \sim 170\Delta x$, $571\Delta x \sim 800\Delta x$ の領域は液体 A で、残りの $z = 171\Delta x \sim 570\Delta x$ の領域は液体 B で満たした。図のように、固体領域では接触角条件を満たすように液液界面が曲率をもつものに対して、固体が存在しない領域では液液界面が平面となるため、圧力差によって液体 A が上方へ浸透していく。固体壁の接触角 $\theta = 45^\circ$, 60° ($\chi = -0.42$, -0.28) について、管内への浸透速度が一定になるまで計算を行った (Fig. 6 (a), (b))。

浸透速度の経時変化を Fig. 7 に示す。円管と四角管のどちらについても、固体壁のぬれ性が高い場合 ($\theta = 45^\circ$) の方が、浸透速度が速いことがわかる。固体壁のぬれ性が同じ条件で円管と四角管の違いに注目すると、初期においては円管の方が浸透速度が大きいことがわかる。しかし、浸透が進行するにつれて両者の差は小さくなり、やがてほとんど差が見られなくなった。以上の結果より、定常状態における浸透速度は水力相当半径を用いて議論できる可能性が示唆された。一方で、非定常過程については流路断面の形状が浸透挙動に大きな影響をおよぼすことがわかった。この結果は粉体層内への液浸透挙動を理解する上で重要である。なぜなら、粉体層内への液浸透現象を粒子スケールで見た場合、本研究で見られたよ

Fig. 6 Snapshots of the liquid penetration into (a) a circular tube and (b) a square tube: The contact angle of the solid surfaces is $\theta = 45^\circ$

Fig. 7 Time variations of the penetration velocity into a circular tube and a square tube for different contact angles, $\theta = 45^\circ$ and 60°

うな定常状態が現れることは考えにくく、液面形状が常に変化しながら液が浸透していくためである。したがって、今後は円管や四角管などのシンプルな流路における液浸透の非定常過程についてさらに検討を進める必要がある。さらに、本論文で構築したモデルを用いて粉体層内への液浸透シミュレーションを行っていく予定である。

4. 結 言

本研究では、粉体層内への液浸透現象を解明するための第一段階として、Free-energy 型 LBM と SPM の連成に基づいた 3 次元液液二相流体シミュレーションモデルの構築を行った。液中および固体表面上における液滴の挙動の計算を行い、構築したモデルの妥当性を検証した。

本モデルを用いて、毛細管（円管、四角管）内におけるメニスカス形成および液浸透挙動について検討を行った。非円管への液浸透においても、定常状態での浸透速度については水力相当半径を用いて議論できる可能性が示唆された。一方で、非定常過程において流路断面形状が浸透速度によぼす影響が確認された。

[謝辞] 本研究の一部はホソカワ粉体工学振興財団の助成を受けて行われた。

References

- [1] D. Geogiou, E. P. Kalogianni, Height-time and weight-time approach in capillary penetration: Investigation of similarities and differences, *J. Colloid Interf. Sci.* 495 (2017) 149–156.
- [2] S. Kirdponpattara, M. Pfsalappong, B. Z. Newby, Applicability of Washburn capillary rise for determining contact angles of powders/porous materials, *J. Colloid Interf. Sci.* 397 (2013) 169–176.
- [3] N. Fries, M. Dreyer, An analytic solution of capillary rise restrained by gravity, *J. Colloid Interf. Sci.* 320 (2008) 259–263.
- [4] S. Succi, *The Lattice Boltzmann Equation for Fluid Dynamics and Beyond*, Oxford University Press (2001).
- [5] S. Chen, G. D. Doolen, Lattice Boltzmann method for fluid flows, *Annu. Rev. Fluid Mech.* 30 (1998) 329–364.
- [6] T. Inamuro, Lattice Boltzmann method: a novel simulation method for fluid flows, *Bussei Kenkyu* 77 (2001) 197–232.
- [7] A. K. Gunstensen, D. H. Rothman, S. Zaleski, G. Zanetti, Lattice Boltzmann model of immiscible fluids, *Phys. Rev. A* 43 (1991) 4320.
- [8] X. W. Shan, H. D. Chen, Lattice Boltzmann model for simulating flows with multiple phases and components, *Phys. Rev. E* 47 (1993) 1815.
- [9] M. R. Swift, W. R. Osborn, J. M. Yeomans, Lattice Boltzmann simulation of nonideal fluids, *Phys. Rev. Lett.* 75 (1995) 830.
- [10] D. Iwahara, H. Shinto, M. Miyahara, K. Higashitani, Liquid drops on homogeneous and chemically heterogeneous surfaces: A two-dimensional lattice Boltzmann study, *Langmuir* 19 (2003) 9086–9093.
- [11] H. Shinto, Computer simulation of wetting, capillary forces, and particle-stabilized emulsions: From molecular-scale to mesoscale modeling, *Adv. Powder Technol.* 23 (2012) 538–547.
- [12] Y. Mino, A. Hasegawa, H. Shinto, H. Matsuyama, Lattice-Boltzmann flow simulation of an oil-in-water emulsion through a coalescing filter: Effects of filter structure, *Chem. Eng. Sci.* 177 (2018) 210–217.
- [13] T. Inamuro, Lattice Boltzmann methods for moving boundary flows, *Fluid Dyn. Res.* 44 (2012) 024001.
- [14] Y. Nakayama, K. Kim, R. Yamamoto, Simulating (electro) hydrodynamic effects in colloidal dispersions: smoothed profile method, *Eur. Phys. J. E* 26 (2008) 361–368.
- [15] S. Jafari, R. Yamamoto, M. Rahnama, Lattice-Boltzmann method combined with smoothed-profile method for particulate suspensions, *Phys. Rev. E* 83 (2011) 026702.
- [16] Y. Mino, H. Shinto, S. Sakai, H. Matsuyama, Effect of internal mass in the lattice Boltzmann simulation of moving solid bodies by the smoothed-profile method, *Phys. Rev. E* 95 (2017) 043309.
- [17] Y. Mino, Numerical model for moving solid-liquid boundary based on the lattice Boltzmann method and application to particulate flow systems, *J. Soc. Powder Technol., Japan* 55 (2018) 536–541.