

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：24403

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17976

研究課題名(和文)水中の不純物の影響を考慮した接近する界面間に形成される液膜の動的挙動の解析

研究課題名(英文)Effect of impurities in water on the dynamic behavior of a thin liquid film formed between approaching surfaces

研究代表者

小笠原 紀行(Ogasawara, Toshiyuki)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：00552184

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：気泡とガラス平板間に形成される薄い液膜の排水・破断過程を実験的に調査し、特に液相に含まれる電解質の影響を考察した。その結果、液膜変形の過程には電解質の影響はない一方、液膜破断のタイミングが大きく異なり、気泡合体防止効果の高い電解質溶液中では、薄い液膜が長い間存在しうることが示された。また、AFMを用いた気泡に働く力の計測システムを構築した。

斜め平板下を上昇する球形気泡群の実験では、気泡の空間分布、二気泡間相対速度、気泡クラスタ速度等を定量的に評価した。気泡表面の境界条件により、定性的な気泡クラスタ形成には影響がないものの、定量的な気泡間相互作用には変化が生じることがわかった。

研究成果の概要(英文)：The drainage of the thin liquid film between a glass plate and a bubble in the presence of impurities in water has been investigated. There is no influence of the electrolytes on the dimple shape formation until the rupture occurs, however the timing of the rupture strongly depends on the type of electrolyte. To measure directly the force acting on the bubble, the force measurement system using atomic force microscopy with a bubble attached cantilever have been achieved.

Another experiment for the spherical bubbles rising along the flat plate have also conducted while taking the effect of boundary condition on the bubble surface into consideration. The results shows that the bubble pair configuration of next to each other frequently appears; a horizontally-oriented (side-by-side) configuration is stable compared to a vertically-oriented (tandem) one. A qualitative tendency of the clustering motion is similarly in both boundary conditions, quantitative differences occurs.

研究分野：流体力学, 気泡力学

キーワード：気泡 薄膜 界面活性剤 電解質 気泡合体 気泡クラスター

1. 研究開始当初の背景

(1) 固体・気体・液体の混在する流れである混相流の中でも気体が小胞体として液体中に存在する流れを気泡流というが、自然界から工業応用技術まで多岐に渡る分野において見受けられる。気泡流の流動現象は、分子スケールのミクロな現象から、流れ場全体のマクロな構造に至るまで、ミクロ・メゾ・マクロの様々なスケールの現象が複雑に干渉し合いながら流動構造が決定される。特に、気液界面近傍における界面活性剤や電解質の存在は、気泡の合体や分裂、個々の気泡運動等に多大な影響を及ぼし、その大域的な流動構造に変化をきたすことが知られている。従って、気泡流の解析においては、液中に含まれる不純物の影響を考慮した上で、マクロな流動構造決定のメカニズムを理解する必要がある。

(2) 気泡流の大域的な流動構造の決定因子の中でも、気泡同士の反発・合体等の気泡間相互作用や気泡壁面間相互作用では接近した複数の界面の存在がその特徴となる。したがって、これらの相互作用においては異相界面間に形成される液膜の挙動が重要な役割を担っている。また、界面活性剤や電解質が含まれる水中においては気泡同士が合体し難くなることが知られている。気泡合体の阻止のメカニズムは不明な点が多く、その動力学的詳細を明らかにすることは、気泡間相互作用や、ひいては気泡流の流動構造のより深い理解につながる。

(3) 気泡流中においては、一定の条件下において気泡群が選択的に集中し、気泡クラスターを形成する現象が知られている。この気泡群のクラスター化は、その形成メカニズムも然ることながら、気泡流中において局所的な浮力の集中をもたらすことでその流動構造に大きな影響を及ぼすため、非常に興味深い現象である。申請者はこれまでに、静止した水中における斜め平板下で、純粋な気泡間相互作用のみによって気泡クラスターが形成されることを実証し、気泡運動に対する二次元的な拘束条件が因子であることを示した。さらなるメカニズムの解明には、近接する気泡間相互作用を正確に反映した気泡運動のモデリングが不可欠であるため、気泡表面の境界条件や気泡レイノルズ数といった各種条件に対する依存性を調査し、気泡間相互作用に対するより詳細な定量的評価が必要となる。

2. 研究の目的

(1) 気泡同士の合体やそれに対する水中の不純物(電解質、界面活性剤)の影響に関する知見を得るため、固体平板と一定速度で接近する気泡を模擬した曲率を有する気液界面との間に形成される液膜の排水過程および破断に対する電解質の影響を解析することを目的とする。実験においては、光干渉法と高速度撮影の併用による干渉画像の取得

から、サブマイクロメートルオーダーで薄い液膜の膜厚分布を計測し、その時間変化を解析する。また、液膜破断に注目し、不純物による液膜の安定化に関する知見を得る。

(2) 静止流体中における角度可変の斜め平板下での単一の気泡径分布を有する球形気泡群の運動を観察し、二次元的に拘束された気泡群のクラスター化現象を解析する。特に、気泡分布の動径分布関数、二気泡間相対速度統計量、クラスター速度等の算出から、気泡間相互作用の定量的な評価を行う。また、ごく少数の気泡による実験も行い、より単純な二気泡間相互作用に関する知見を実験的に取得する。

3. 研究の方法

(1) 固体平面と曲率を有する気液界面間に形成される液膜の排水過程と破断に対する水中の不純物の影響の解析を目的とした実験装置の概略図を図1に示す。上面中央部にガラス平板(BK7)が取り付けられたアクリル製の容器内に、先端内径3mmのステンレス細管が設置されている。細管は容器外部の直動ステージに固定されており、ガラス面に垂直な方向に動かすことができる。容器は溶液で満たされており、外部の大気開放された断面積の広い別の容器と接続することで、実験中の容器内の静圧の変動を極力防いでいる。気相には空気を用いており、シリンジポンプによりステンレス細管の先端で曲率半径が1.5mmの気液界面が静止した状態になるよう調整している。この状態で直動ステージを稼動することで、速度一定で接近する気泡と固体平板との干渉が模擬される。実験には超純水、0.05Mの硫酸マグネシウム水溶液、0.05Mの酢酸ナトリウム水溶液、0.05MのTriton X-100水溶液を用いた。またステージ稼動による気液界面の接近速度 V_t は100 $\mu\text{m/s}$ から2000 $\mu\text{m/s}$ 程度とした。

光干渉法による計測系は、落射型の顕微鏡とビデオカメラ(高速度カメラ:単色時、一眼レフカメラ:二色時)より構築されている。光源には赤色(波長645nm)と青色(波長465nm)のLEDを用いており、単色もしくは二色の光源として使用可能である。対物レンズには、実験条件に応じて10倍と20倍のものを用い、観測領域を定めた。以上により、気液界面および下側のガラス平板面での反射光による干渉画像が観測され、気液界面と固体平板間に形成される液膜の膜厚分布が計測される。単色光源のみを利用した干渉縞の観測からは、相対的な膜厚分布しか得られず、何らかの仮定なしには絶対膜厚は算出されない。一方、波長の異なる二色の光源を用いた二つの干渉画像の同時計測から、より確からしい絶対膜厚の推定が可能となる。各明暗線上における絶対膜厚は各波長の整数倍の不確定性を持つことから、赤青各々の干渉画像に対応して最適な縞次数を推定し、液

膜の絶対膜厚分布とした。

また、光干渉による膜厚分布の測定では、液膜の幾何形状のみしか把握できず、動力学的解析としては不十分となる。したがって、気泡に働く力を直接的に解析するため、AFM（原子間力顕微鏡）のカンチレバーの先端に直径 100 μm の気泡を修飾し、その気泡と固体表面との干渉時の相互作用力の計測が可能となるシステムを構築する。

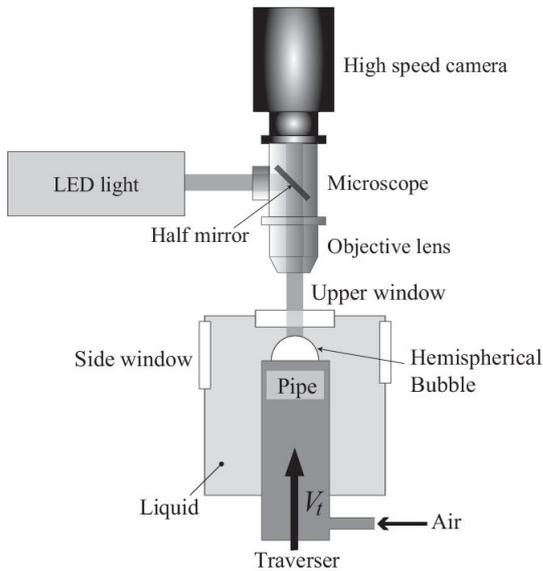


図 1：光干渉計による膜厚分布計測の実験装置

(2) 斜め平板下を上昇する気泡群の実験装置の概略図を図 2 に示す。実験装置は、高さ 980 mm、横幅 300 mm、奥行き 40 mm の透明のアクリル製のチャンネルであり、下部に 40 本のステンレス細管（内径 100 μm ）を 5 mm 間隔で一列に配置した気泡発生部からなる。気泡の平均径は 1.3 mm となり、単分散径の気泡群が生成される。チャンネルは任意の角度に傾斜可能であり、チャンネル壁面と水平軸のなす傾斜角 θ を 90° から 15° までの範囲で設定する。傾斜角を変化することで平板を沿って上昇する気泡速度を制御でき、本研究では気泡レイノルズ数が 100 程度になるように傾斜角を設定した。気相は空気であり、液相には電解質溶液である 0.1 M 硫酸マグネシウム水溶液と界面活性剤溶液である 10 ppm Triton X-100 水溶液を用いる。0.1 M 硫酸マグネシウム水溶液中では気泡表面がフリースリップに保たれる一方で、10 ppm Triton X-100 水溶液中ではマランゴニ効果によりノースリップとなる。また、これらの溶液中では気泡合体が防止され、初期気泡径分が維持しれたまま気泡群は上昇する。気相流量 Q_g は、25, 50, 100 ml/min の三条件とする。気泡群挙動の発達性を調べるため、気泡発生部よりそれぞれ $L = 150, 350, 550$ mm 上方を観察領域とし、高速度カメラとバックライト照明により 90 mm 角の範囲における気泡群の影絵の時系列画像を撮影する。画像解析では、

ハフ変換による気泡中心の検出し、気泡中心を追跡することで各気泡の速度を算出する。

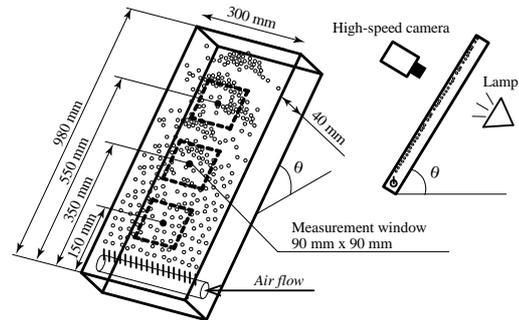


図 2：斜め平板下における気泡群挙動の実験装置

4. 研究成果

(1) 少量の電解質溶液では、粘性や表面張力のマクロな物性はごく僅かしか変化しない。一方で、気泡合体に関する電解質の影響に関しては、電解質の種類によってその防止効果に大きな違いがあることが知られている。本研究では、気泡合体防止効果の高い電解質溶液として 0.05 M の硫酸マグネシウム水溶液を、反対に気泡合体防止効果の低い電解質溶液として 0.05 M の酢酸ナトリウム水溶液を選定し、まずは膜厚分布の時間変化への影響を調べた。図 3 に接近速度 V_f が 250 $\mu\text{m/s}$ の場合の膜厚分布の時間変化を示す。横軸は液膜の中心からの距離であり、縦軸が最薄部を 0 とした相対膜厚分布である。上から (i) 超純水、(ii) 0.05 M 硫酸マグネシウム水溶液、(iii) 0.05 M 酢酸ナトリウム水溶液の場合の結果である。初期に pimple 形状をしている気液界面は、固体壁面への接近に伴い、中心部が平らになるように変形する。続いて、中心部の薄膜化が鈍化し、その周囲の膜厚がより薄くなることで気液界面は dimple 形状へと変化する。その後、dimple 形状の中心部に残された液相は外側へと排水されることなく、リム部の極薄い領域が外側へと進展する。硫酸マグネシウム水溶液においても、酢酸ナトリウム水溶液においても、これらの傾向は定性的、定量的に一致している。つまり、薄膜の排水過程においては、超純水の場合に破断が生じるような膜厚分布に至るまで電解質の影響はないことがわかる。一方、この後に生じる破断に関しては違いが生じた。液膜の破断は液膜形状に対して決定論的には生じず、実験の試行によりばらつきがあるものの、定性的には以下の様な傾向がある。図 4 は硫酸マグネシウム水溶液と酢酸ナトリウム水溶液のそれぞれの場合において、液膜破断時の特徴的な干渉画像である。気泡合体防止効果の高い硫酸マグネシウム水溶液では薄膜が大きく広がった状態になった後に破断に至るのに対し、気泡合体防止効果の高い硫酸マグネシウム水溶液では液膜は dimple 形状へと変形した後、比較的

すぐにそのリム部において破断が生じる。つまり、気泡合体防止効果の高い硫酸マグネシウム水溶液の場合に、薄い液膜はより安定的に存在し、その効果は液膜薄さが光源波長の半分以下である 100 nm オーダーになった領域においてのみ顕著となる。

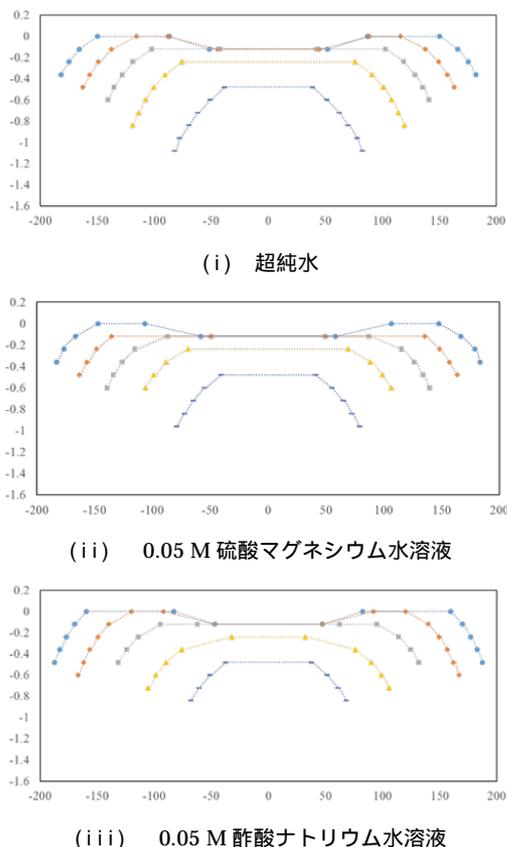
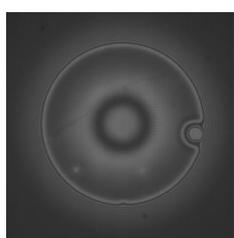
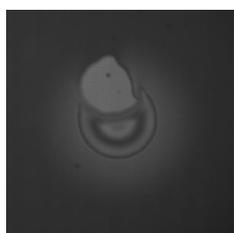


図3：膜厚分布の時間履歴 ($V_t = 250 \mu\text{m/s}$, 縦軸：相対膜厚[μm], 横軸：膜厚中心からの距離[μm])



(i) 0.05 M 硫酸マグネシウム水溶液



(ii) 0.05 M 酢酸ナトリウム水溶液

図4：液膜破断時の特徴的な干渉画像 ($V_t = 100 \mu\text{m/s}$)

次に、気泡と固体壁面との相互作用力の直

接計測に関する実験システムの構築について記す。図5にその概念図を示す。本研究では AFM (MFP-3D-SA, ASYLUM RESEARCH) を使用して計測を行う。バブリングして過飽和状態である超純水をガラスボトムディッシュに満たし、超音波洗浄機を用いて攪拌して気泡を発生させる。ガラスボトムディッシュは OTS 処理により疎水化し、発生した気泡がガラス表面上に付着しやすくしてある。ディッシュ内の適当な気泡径 ($50 \mu\text{m} \sim 100 \mu\text{m}$) をもつ気泡を選択し、より強く疎水化したカンチレバーの先端に付着させる。使用したカンチレバーの公称ばね定数は 0.020 N/m 、厚みは $0.8 \mu\text{m}$ であり、形状は図5右に示す通りである。カンチレバーに付着した気泡をガラス平板に対して一定の速度で接近させた後遠ざけ、カンチレバーのたわみ量とばね定数からカンチレバーに働く力、すなわち気泡に働く力を計測する。

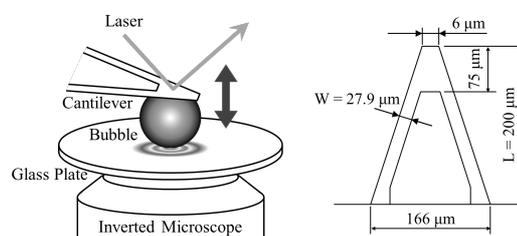


図5：AFMを用いた相互作用力の計測システム

ガラス表面上に発生した気泡径 $100 \mu\text{m}$ 程度の気泡をカンチレバーに付着させたときの様子を 図6 に示す。気泡は安定しており、計測時もカンチレバーから脱落することはなかった。図7 はカンチレバーを一定速度 $10 \mu\text{m/s}$ でガラス平板に接近させた後遠ざけた時のグラフであり、縦軸はカンチレバーに働く力すなわち気泡に働く力を、横軸はカンチレバーを駆動させてからの時間を表す。カンチレバーが接近するにつれて気泡とガラス平板間に斥力が働くが、気泡が平板から離れる際は途中で引力に転じる。これにより、AFM のカンチレバーに気泡を修飾することにより、気泡と固体表面と干渉時に働く力を計測するシステムを構築することができた。

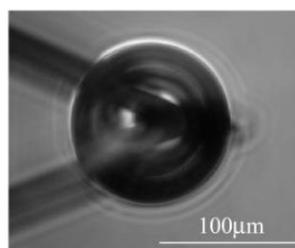


図6：カンチレバーの先端に修飾した気泡

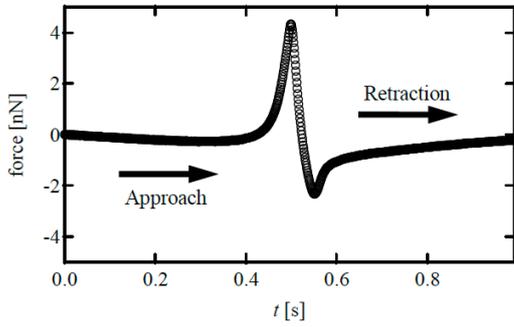
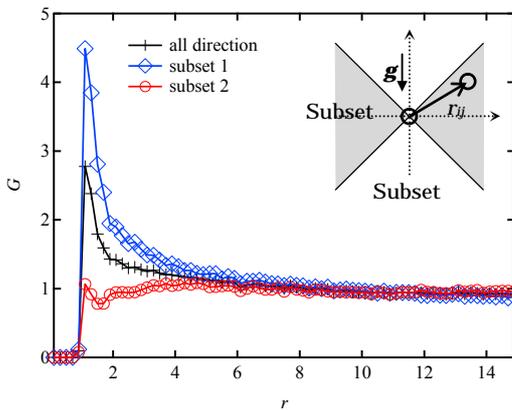
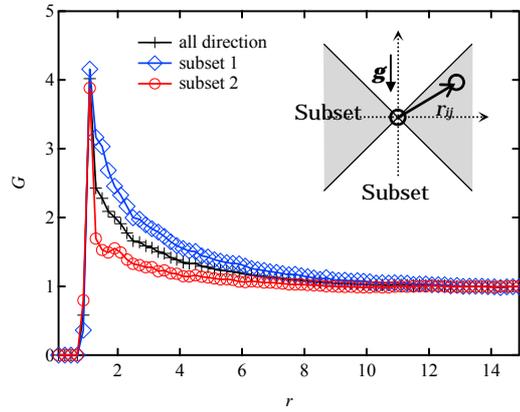


図 7 : 10 mm/s で壁面に接近させたときに気泡に働く力

(2) $Q_g = 50 \text{ ml/min}$, $L = 350 \text{ mm}$ では, 0.1 M 硫酸マグネシウム水溶液(フリースリップ気泡)の場合には $\theta = 30^\circ$, 10 ppm Triton X-100 水溶液(ノースリップ気泡)の場合には $\theta = 40^\circ$ の条件で気泡レイノルズ数 Re がおよそ 100 となった. 以下では, これらの条件における結果から, 気泡表面の境界条件の影響を示す. 気泡中心の動径分布関数により, 気泡群の空間分布を評価する. 図 8 は, 図中に示すような水平方向と垂直方向に領域を分割した場合の動径分布関数であり, (a) はフリースリップの場合, (b) はノースリップの場合の結果である. 青は横方向の領域 (subset 1), 赤は縦方向の領域 (subset 2), 黒は全方位のサンプリングによる結果を示している. フリースリップの場合 (Fig. 2 (a)), $r/d = 1$ における顕著なピークは二気泡が隣接した気泡配置の頻出を意味するが, 青いプロットが支配的であることから, side-by-side の二気泡配置が頻出していることがわかる. 一方でノースリップの場合 (Fig. 2 (b)), $r/d = 1$ のピークは赤と青が同程度であり, side-by-side と tandem の気泡配置の双方が存在する. しかしながら, (a)(b) のどちらにおいても $r/d > 1$ では青いプロットが大きく, これらは横方向に並んだ気泡配置が優勢であることを意味する. また, $1 < r/d < 8$ の範囲で動径分布関数が 1 以上の値となっていることから, 気泡直径の 8 倍の範囲で気泡群の選択的な集積が生じていると言える.



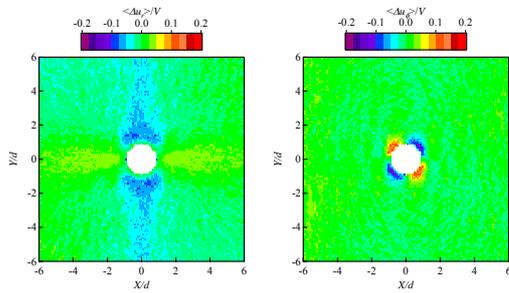
(a) free-slip (0.1 M MgSO_4 aq., $\theta = 30 \text{ deg.}$)



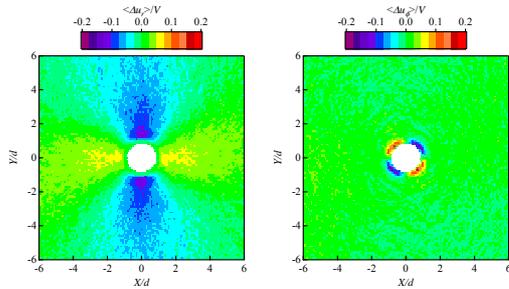
(b) no-slip (10 ppm Triton X-100 aq., $\theta = 40 \text{ deg.}$)

図 8 : 気泡中心の動径分布関数

気泡間相互作用を評価するため, 二気泡間相対速度を算出し, その相対位置毎のアンサンブル平均をとった $\langle \Delta u \rangle$ の分布を示したものが図 9 である. $\langle \Delta u \rangle$ と $\langle \Delta u_\phi \rangle$ はそれぞれ, $\langle \Delta u \rangle$ の動径方向と周方向成分である. (a)(b) はそれぞれフリースリップとノースリップの場合の結果である. 動径方向の相対速度分布 $\langle \Delta u_r \rangle$ においては, 暖色は二気泡が離れる方向の相対速度を意味し, 寒色は二気泡が近づく方向の相対速度を意味する. 二気泡が縦配置の場合, 二気泡が近づく方向の相対速度が誘起されている. 一方で, 二気泡が横配置の場合, 隣接した side-by-side の状態では相対速度がゼロに近い値であるのに対し, 気泡間距離が僅かでも増加した場合には, 両者が離れる方向の相対速度が誘起されていることがわかる. この傾向は, 気泡表面の境界条件がフリースリップの場合(a)でもノースリップの場合(b)でも定性的には同様であるが, ノースリップの場合の方が, 縦方向の近づく相対速度も横方向の離れる相対速度もより大きく, その影響が広域に広がっている. 次に, 周方向の相対速度分布 $\langle \Delta u_\phi \rangle$ においては, 暖色は原点に対して反時計回りの相対速度を, 暖色は時計回りの相対速度をそれぞれ示している. 気泡間距離が長い $r/d > 1.5$ の領域では, どの条件においても周方向の相対速度は誘起されていない. しかしながら, 二気泡が隣接する場合には顕著な相対速度が誘起されている. 第一第三象限では時計回りの, 第二第四象限では反時計回りの相対速度が誘起されている. これは, 二気泡が tandem の配置をとる場合, 周方向の擾乱に対して不安定であり, side-by-side の配置への変化する方向の速度が誘起されていることを意味する. また, side-by-side の配置は周方向の擾乱に対して安定であることもわかる.



(a) free-slip (0.1 M MgSO_4 aq., $\theta = 30$ deg.)



(b) no-slip (10 ppm Triton X-100 aq., $\theta = 40$ deg.)

図9 : $\langle \Delta u_x \rangle$ と $\langle \Delta u_y \rangle$ の様子

図10は縦軸を y 座標, 横軸を時間として $\theta = 30^\circ$, $L = 350$ mm, $Q_g = 50$ ml/min の時の連続して撮影した画像の気泡数分布を示したものである。黒の領域は横方向に並んで集積した気泡群に対応しており, 個々の気泡速度の算出に頼らずにこの領域の傾きから定量的に速度の算出ができる。気泡クラスターを校正する個々の気泡は, クラスター内外の判別に恣意性が生じるため, 気泡速度のアンサンブル平均として気泡クラスター速度を定義することが困難である。しかしながら, 横方向に集積し易い気泡クラスターの性質から, 上記の方法によりクラスター速度が評価可能であることが確認された。

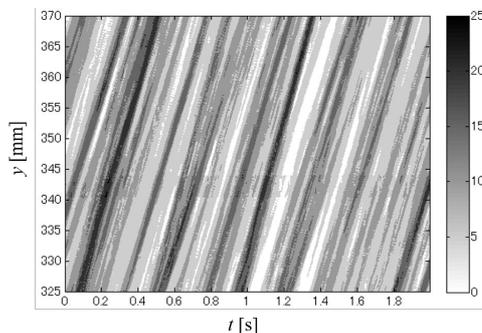


図10 : y 方向の局所気泡数密度の時間変化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

小笠原 紀行, 白井 翔丈, 高比良 裕之,

斜め平板下を上昇する球形気泡群のクラスター化挙動に関する実験的解析, 日本機械学会論文集, 査読有, Vol. 82, No. 837, p. 16-00051, 2016年

〔学会発表〕(計5件)

小笠原 紀行, 高比良 裕之, 斜め平板下を上昇する球形気泡群によるクラスター形成過程の実験的解析, 日本機械学会流体工学部門講演会講演論文集, 2016年11月12-13日, 山口大学宇部キャンパス

Toshiyuki Ogasawara, Shota Shirai, Hiroyuki Takahira, An experimental investigation into the clustering of spherical bubbles rising along an inclined flat plate, 9th International Conference on Multiphase Flow, May 22-27, 2016, Firenze, Italy

松村 朋輝, 小笠原 紀行, 高比良 裕之, 気泡と固体平板間に形成される液膜の排水過程および破断に対する不純物の影響, 日本機械学会流体工学部門講演会講演論文集, 2015年11月7-8日, 東京理科大学葛飾キャンパス

白井 翔丈, 小笠原 紀行, 高比良 裕之, 斜め平板下を上昇する球形気泡群における気泡間相互作用に関する実験的検討, 混相流シンポジウム2015, 2015年8月4-6日, 高知工科大学香美キャンパス

Toshiyuki Ogasawara, Shota Shirai, Hiroyuki Takahira, Effects of electrolyte and surfactant on clustering behavior of spherical bubbles rising along an inclined flat plate, ASME-JSME-KSME Joint Fluids Engineering Conference 2015, July 26-31, 2015, Seoul, Korea

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小笠原 紀行 (OGASAWARA, Toshiyuki)

大阪府立大学・工学研究科・助教

研究者番号 : 00552184