

令和 4 年 5 月 17 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05122

研究課題名(和文) 気液液固四相流の数値解析を用いた液架橋による乾燥粒子薄膜のクラック抑制機構の解明

研究課題名(英文) Numerical Analysis of Gas-Liquid-Liquid-Solid Four-Phase Flow to Elucidate the Mechanism of Crack Suppression of Dry Particulate Thin Film by Liquid Bridge

研究代表者

石神 徹 (Ishigami, Toru)

広島大学・先進理工系科学研究科(工)・准教授

研究者番号：70595850

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：数値解析技術の発展により、二相系に留まらず、近年では固気液などの三相系の解析も可能である。一方、より複雑な四相流の現象が実験的に確認されている。非混和流体を添加すると、乾燥薄膜のクラックを抑制する現象がある。これは気相、粒子、連続相、架橋流体の四相系の現象である。本研究では固気液液四相流れの数値シミュレーションモデルを開発した。従来の固気液三相流の研究で報告の多い自由界面への粒子の衝突過程の数値解析を行った。三相流の場合と比較したところ、四相流では自由界面の数が多いため、自由界面運動が運動し複雑化すること、さらにそれに伴い、粒子に作用する毛管力が影響を受け粒子運動も複雑化することが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで全く報告例が無かった、固体粒子、気体、混和しない2種類からなる四相系の流れを予測・解析可能な数値シミュレーション手法を開発し、この手法を用いて、四相系の流れの特徴や機構を理解することに成功した。本研究で扱った乾燥薄膜や粒子の衝突現象だけでなく、産業プロセスにおける多くの混相流現象に応用可能である。

研究成果の概要(英文)：With the development of numerical analysis technology, it is possible to analyze not only two-phase systems but also three-phase systems such as solid-gas-liquid. On the other hand, more complex four-phase flow phenomena have been experimentally confirmed. The addition of an immiscible fluid suppresses cracking of dry thin films. This is a phenomenon of a four-phase system of gas phase, particles, continuous phase, and bridging fluid. In this study, a numerical simulation model of solid-gas-liquid-liquid four-phase flow was developed.

Numerical analysis of the particle collision process on the free interface, which is often reported in previous studies of solid-gas-liquid three-phase flows, is performed. Compared with the three-phase flow, the four-phase flow shows that the number of free interfaces in the four-phase flow case is large, and the particle motion becomes more complicated due to the interaction of the free interface motion and the capillary force acting on the particles.

研究分野：移動現象論

キーワード：四相流 数値シミュレーション 粒子 自由界面

1. 研究開始当初の背景

化学プロセスでは様々な混相流現象がありミュレーション手法の大幅な発展により、固液、固気などの二相系に留まらず、より複雑な固気液などの三相系のシミュレーションも可能になってきた。一方近年では、三相流よりも複雑な固気液液四相流の現象が実験的に報告されている。例えば、粒子分散液に非混和流体を添加すると、乾燥薄膜のクラックを抑制する現象がある[1]。これは気相と粒子ならびに連続相と架橋する液体の四相で構成される現象である。この原因として粒子に添加流体が液架橋を形成しているためと考えられているが、詳細は明らかではない。これらの現象の解明や装置の最適化にはシミュレーションの手法が有効だと考えられるが、これまで固気液液四相流れの数値シミュレーション手法の開発は行われていない。

2. 研究の目的

本研究では、現在報告されている四相流の現象の解明、最適化を行うために、固気液液四相流れの数値シミュレーションモデルの開発を行った。次に、開発した数値シミュレーションモデルの検証のために、これまでに研究が多く行われている三相流の系と比較しやすいように、固体粒子の流体界面衝突の計算をおこなった。

3. 研究の方法

本研究では固気液液四相のための粒子-流体-界面運動の連成モデルを構築した。流体運動は連続の式と Navier-Stokes 方程式を連立し解き、速度場と圧力場を計算した。以下に式を示す。

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \frac{1}{\rho} \nabla \cdot \eta \nabla \mathbf{u} + \mathbf{g} + \sum_{i=1}^3 \gamma_i \kappa(C_i) \nabla C_i + \mathbf{f} \quad (2)$$

ここで、 u は速度、 t は時間、 ρ は密度、 η は粘度、 f は固体-流体間相互作用、 γ_i は界面張力係数、 C_i は Phase-field 変数、 κ は曲率、 g は重力加速度、 p は圧力を表す。添字 i ($= 1 \sim 3$) は流体種を表す。本研究で用いた Navier-Stokes 方程式には、界面張力項と速度強制項を加えている。本界面張力項では、三流体(気相、水相、油相)間の三種類の相界面に働く界面張力の合力を記述した。速度強制項の固体流体間相互作用は Immersed boundary 法で計算した[2]。自由界面運動は Cahn-Hilliard 方程式を解く、Phase-field model を用いた。Cahn-Hilliard 方程式ならびにそのダブルウェルポテンシャルは、今回三流体用に拡張した[3]。

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \mathbf{u} \cdot \nabla C_i = \nabla \cdot [M \nabla (f(C_i) - \epsilon^2 \Delta C_i)] \quad (3)$$

$$f(C_i) = C_i^3 - 1.5C_i^2 + 0.5C_i - C_1C_2C_3 \quad (4)$$

M はモビリティであり、界面の再構築に影響を与える正の定数である。 ϵ は拡散界面の幅に関する正の定数である。粒子運動はニュートン第二法則により計算を行った。粒子表面における流体 j 中での流体 i の接触角 θ_{ij} は設定値を満足するように、セル内流体体積率を粒子表面で修正して与えた。

$$\frac{\partial C_i}{\partial \tau} = \frac{|\bar{\mathbf{r}}|}{a} (|\nabla C_i| \cos \theta_i - \mathbf{n}_p \cdot \nabla C_i) \quad (5)$$

$$\sin \varphi_2 \cos \theta_{31} - \sin \varphi_3 \cos \theta_{12} - \sin \varphi_1 \cos \theta_{23} = 0 \quad (6)$$

\mathbf{n}_p は粒子表面に対する単位法線ベクトルである。式(5)は、接触線において、粒子表面の法線ベクトルと流体界面の法線ベクトルの内積を満足するように、セル内の phase-field 変数を修正することを示している。式(6)は界面張力のバランスを記述しており、本研究では θ_{12} と θ_{23} をパラメータとして設定し、 θ_{31} はこの関係式を満たすように設定した。各流体において接触角が二種類存在するため、当該セルを占める二種類の流体の phase-field 変数の値に応じて、接触角を識別した[4]。

4. 研究成果

従来の固気液三相流の研究で報告例の多い自由界面への自由落下粒子の衝突過程のシミュレーション

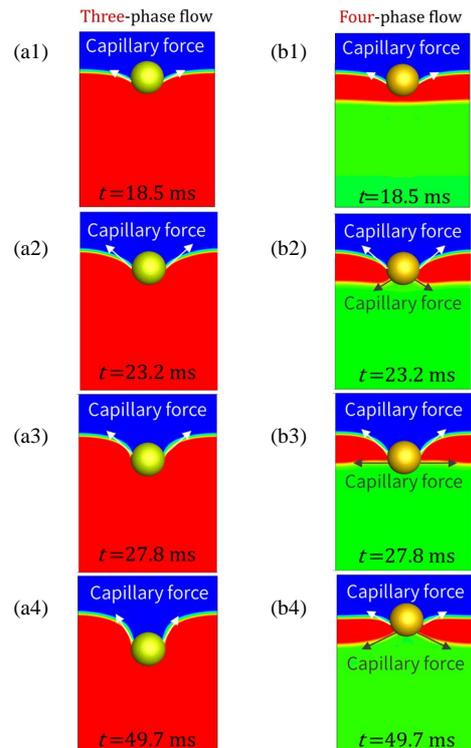


Fig.1 Snapshots of particle impact on interfaces: (a) three-phase flow and (b) four-phase flow.

を行った。容器内に下から順に水相, 油相, 気相を充填し, 上方から直径 2.0 mm の固体粒子を落下させた。固気液三相流の場合 (水相なし) の場合と比較することにより, 固気液液四相流の粒子運動と自由界面運動の特徴を調べた。油相中の水相の接触角 θ_{12} と気相中の油相の接触角 θ_{23} はそれぞれ 105, 135°とした。Fig. 1 に三相流と四相流を比較したスナップショットを示す。いずれの場合も粒子は下方に移動し, 気油界面に接触する (Fig. 1(a1), (b1))。三相流の場合, その後粒子は下方に移動するが, 粒子の後方に気油界面の大きなくぼみが形成される (Fig. 1(a2)-(a4))。四相流の場合は, その後粒子は油水界面に接触し (Fig. 1(b2)), さらに下方に移動するが (Fig. 1(b3)), 粒子速度は低下し上方に移動した (Fig. 1(b4))。

Fig. 2 に粒子位置と粒子に作用する鉛直方向の力の経時変化を示す。粒子位置は 20 ms 付近までは両者に違いはない。これは粒子が気油界面のみに接触しているためだと考えられる。23 ms 付近では, 四相流の場合の方が三相流の場合よりも粒子は下方に位置することがわかる。これは三相流では上向きの毛管力のみを受けているが (Fig. 1(a2)) 四相流の場合では粒子は下の界面からも下向きの毛管力を受けるためだと考えられる (Fig. 1(b2))。33 ms 付近では, 三相流では粒子がさらに下方に移動しているのに対して, 四相流の場合では粒子が振動の谷に位置していることが分かる。これは四相流の場合では, 下の界面が壁のように働き粒子下方の流れを滞留させており, 三相流の場合より粒子に働く上向きの力が大きくなったと考えられる。それ以降, 三相流の場合では粒子は下向きに移動するが, 四相流の場合では上向きに移動する。これは三相流の場合では粒子は下向きの毛管力しか受けないのに対して, 四相流の場合では Fig. 1(b4) のように気油界面から上向きに力を受けるためだと考えられる。

次に四相流の場合において, 油相の厚み 1.0, 1.5, 2.0mm の 3 段階に変化させて比較を行った。Fig. 3 に粒子位置の経時変化を示す。いずれの場合も粒子位置は時間とともに下降と上昇を繰り返しており, 振動していることがわかる。また, 油相の厚みが大きくなるほど粒子は下側で振動した。ここで, 初めて粒子が振動の谷と山に位置したときの位置の差を振幅として定義した。各場合について振幅を求めたところ油相の厚みが 1.5 mm のとき, 最も大きかった。

まとめ

固気液液四相流の流体-自由界面-粒子運動の連成シミュレーションモデルを世界で初めて開発した。開発したシミュレーションモデルを用いて, 落下粒子の流体界面衝突挙動を解析した。粒子の濡れ性が低い場合, 粒子は 2 つの界面に捕捉され, 上下に振動する様子が確認された。三相流の場合と比較すると, 複数界面からの毛管力の影響を受けるため, 粒子挙動がより複雑化した。流体 2 厚みを変化させると, 上側の界面から粒子に働く毛管力が変化し, 粒子運動の振幅が変わることが分かった。

引用文献

1. Schneider et al., ACS Appl Mater. Interfaces (2017) 29, 11095-11105.
2. T. Kajishima et al., JSME Int J. Ser. B, (2001) 44, 526-535.
3. J. Kim, J. Comput. Phys. (2007) 196, 4779-4788.
4. C. Zhang et al., J. Comput. Phys. (2016) 309, 37-51.

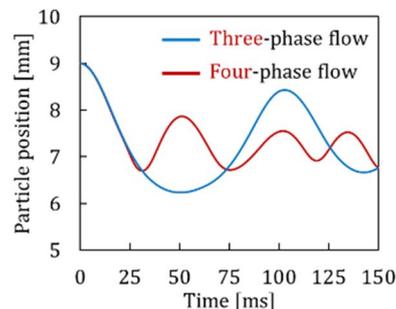


Fig. 2 Time variation of particle position for four-phase and three-phase flows.

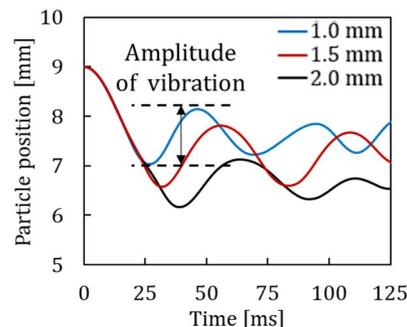


Fig. 3 Time variation of particle position for four-phase flow with different oil-phase thickness.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

| | |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名 Ueda Masaki, Fukasawa Tomonori, Ishigami Toru, Fukui Kunihiro | 4. 巻 60 |
| 2. 論文標題 Effect of Surface Wettability on Droplet Coalescence and Pressure Drop in a Fibrous Filter: Direct Numerical Simulation Coordinated with X-ray Computed Tomography Images | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Industrial & Engineering Chemistry Research | 6. 最初と最後の頁 4168 ~ 4179 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.iecr.0c06157 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Ueda Masaki, Rozy Mohammad Irwan Fatkhur, Fukasawa Tomonori, Ishigami Toru, Fukui Kunihiro | 4. 巻 36 |
| 2. 論文標題 Phase-Field Simulation of the Coalescence of Droplets Permeating through a Fibrous Filter Obtained from X-ray Computed Tomography Images: Effect of the Filter Microstructure | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Langmuir | 6. 最初と最後の頁 4711 ~ 4720 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.0c00640 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 T. Ishigami, C. Tokishige, T. Fukasawa, K. Fukui, S. Kihara | 4. 巻 21 |
| 2. 論文標題 Semiphenomenological model to predict hardening of solid-liquid-liquid systems by liquid bridges | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Granular Matter | 6. 最初と最後の頁 103 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10035-019-0959-6 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Rozy Mohammad Irwan Fatkhur, Maemoto Yuto, Ueda Masaki, Fukasawa Tomonori, Ishigami Toru, Fukui Kunihiro, Sakai Mikio, Mino Yasushi, Gotoh Kuniaki | 4. 巻 385 |
| 2. 論文標題 Direct numerical simulation of permeation of particles through a realistic fibrous filter obtained from X-ray computed tomography images utilizing signed distance function | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Powder Technology | 6. 最初と最後の頁 131 ~ 143 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.powtec.2021.02.072 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名 Shirzadi Mohammadreza, Ueda Masaki, Hada Kodai, Fukasawa Tomonori, Fukui Kunihiro, Mino Yasushi, Tsuru Toshinori, Ishigami Toru | 4. 巻 38 |
| 2. 論文標題 High-Resolution Numerical Simulation of Microfiltration of Oil-in-Water Emulsion Permeating through a Realistic Membrane Microporous Structure Generated by Focused Ion Beam Scanning Electron Microscopy Images | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Langmuir | 6. 最初と最後の頁 2094 ~ 2108 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.1c03183 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計7件(うち招待講演 0件/うち国際学会 0件)

| |
|---|
| 1. 発表者名 萩原涼, 上田真幹, 深澤智典, 石神徹, 福井国博 |
| 2. 発表標題 Phase-Field Modelを用いた粒子自由落下における固気液液四相流れの数値シミュレーションモデルの開発 |
| 3. 学会等名 粉体工学会2020年度秋期研究発表会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 石神 徹, 萩原 涼, 上田 真幹, 深澤 智典, 福井 国博 |
| 2. 発表標題 フェーズフィールドモデルを用いた固気液液四相流れのシミュレーションモデルの開発 |
| 3. 学会等名 化学工学会第86年会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 石神 徹 |
| 2. 発表標題 固液液三相分散系のレオロジー特性および構造形成過程の解析 |
| 3. 学会等名 粉体工学会 春期研究発表会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 前本 祐利, 石神 徹, 深澤 智典, 福井 国博 |
| 2. 発表標題 液架橋で連結された 2粒子の乾燥過程の数値シミュレーション |
| 3. 学会等名 第36回エアロゾル科学・技術研究討論会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 鳥谷 太晟, 前本 祐利, 深澤 智典, 石神 徹, 福井 国博 |
| 2. 発表標題 DEM-DNS法による微粒子分散液滴の乾燥過程のシミュレーション |
| 3. 学会等名 第22回化学工学会学生発表会(岡山大会) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 萩原 涼, 上田 真幹, 深澤 智典, 石神 徹, 福井 国博 |
| 2. 発表標題 フェーズフィールドモデルに基づく固気液液四相流れの数値シミュレーションモデルの開発 |
| 3. 学会等名 第22回化学工学会学生発表会(岡山大会) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 石神 徹, 萩原 涼, Mohammadreza Shirzadi, 深澤 智典, 福井 国博 |
| 2. 発表標題 固気液液四相流における自由界面運動と粒子運動の 数値シミュレーション |
| 3. 学会等名 化学工学会第87年会 |
| 4. 発表年 2022年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

広島大学大学院先進理工系科学研究科微粒子工学研究室
<https://powder.hiroshima-u.ac.jp/>
広島大学 微粒子工学研究室
<https://home.hiroshima-u.ac.jp/powder/>

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
|--|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|