

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 25 日現在

機関番号：24403

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760140

研究課題名(和文) 不純物を含む多相系における近接界面間相互作用に関する実験的解析

研究課題名(英文) Experimental analysis of the interactions between approaching surfaces in a multiphase system with impurities

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) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：気泡流の流動構造を支配する気泡間や気泡壁面間の相互作用として重要な現象である、異種界面間に形成される液膜の排水及び破断、二次元的な拘束をつけて運動する球形気泡群のクラスター化挙動を実験的解析した。等速で接近する気泡表面と剛体壁面間に形成される液膜の挙動においては、水中に含まれる界面活性剤や電解質の影響により排水や破断が妨げられる様子を確認し、その膜厚分布の時間発展を定量的に評価した。一方、斜め平板下を上昇する気泡群のクラスター化挙動に関しては、気泡表面の境界条件の差異に依らず似通った気泡クラスターが形成されることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：The drainage process and the rupture of a thin liquid film formed between interfaces and the clustering behavior of spherical bubbles with the constraint of motions in two-dimensional plain, which govern the fluid structure of bubbly flows through bubble-bubble and bubble-wall interactions, have been investigated experimentally. On the behavior of the thin liquid film formed between a rigid surface and an approaching bubble surface with a constant speed, the impurities such as surfactants and electrolytes in water greatly affect and avoid the drainage and rupture of the film, and the quantitative evaluation of their time evolutional thickness distributions has been done. On the other hand, similar phenomena for the clustering behaviors of the spherical bubbles rising under an inclined flat plate have been clarified regardless of no-slip and free-slip boundary conditions of the bubble surface.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：液膜 気泡 気泡クラスター 界面活性剤 電解質 気泡の合体

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) 大域的な気泡流の流動構造の決定因子としては、気泡同士の反発運動や合体等の気泡間相互作用や、気泡壁面間相互作用が挙げられる。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。また、クラスター化現象は、気泡群が二次元的な運動をするよう幾何学的な拘束条件を付加されることが第一の要因であると考えられるが、詳細な形成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。

2. 研究の目的

(1) 液膜の排水及び破断に対する不純物の影響を評価するため、近接界面間の薄膜厚さの分布を高時間解像度で計測するシステムを構築する。これにより、近接界面を速度一定の条件下で接近した場合の薄膜厚さ分布の時間変化を精度よく計測する。特に、実験には超純水を用い、種々の界面活性剤や電解質の影響を定量的に評価する。

(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、界面活性剤の添加の有無により気泡表面の境界条件を変化させることで、気泡間相互作

用やクラスター化挙動への影響を調べる。

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。容器内を満たす液体は、超純水、濃度 0.05 M の Triton X-100 水溶液、濃度 0.05 M の硫酸マグネシウム ( $MgSO_4$ ) 水溶液の3種類をそれぞれ使用する。これらの溶液中で、ステンレスパイプ (内径 3 mm) の先端に静止させた気泡を容器の上部に設置されたガラス平板 (BK7) に並進速度  $V_i$  ( $1 \mu m/s \sim 5000 \mu m/s$ ) で接近させ、その間に形成される液膜を光干渉計により計測する。

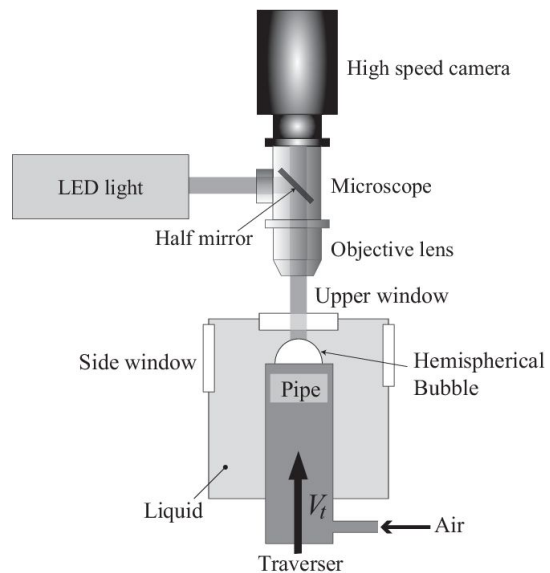


図1：光干渉計による膜厚分布計測の実験装置

気泡とガラス平板間に形成された液膜は、実験装置上部から赤色 LED 光源 (波長  $\lambda = 645 \text{ nm}$ ) を入射することで、気泡側のガラス表面と気泡表面の間の位相差で生じる干渉縞を観測し、膜厚分布の計測を行う。撮影は、10 倍の対物レンズを装着した高速度ビデオカメラで行う。干渉縞の暗線間の高さの差  $\Delta h$  は、屈折率  $n$  を用いて  $\Delta h = \lambda/2n$  と表される。実験では水 ( $n = 1.33$ ) を使用しているため、隣り合う暗線間の高さの差は約  $0.24 \mu m$  となる。以上の実験では時系列の相対的な膜厚分布が得られるが、他に絶対膜厚分布を推定するため、赤色と青色の二色の LED 光源を併用した実験を行う。ただ、カラー撮影に用いたカメラは高速度撮影に対応していないため、一枚の画像から瞬時の絶対膜厚分布の推定を行った。

図2の上部に撮影した干渉縞の一例、下部に撮影画像中央の直線部分における膜厚分布を示す。グラフの横軸は、干渉縞の中心からの相対的な距離を表し、干渉縞の中心から右側を正にとる。縦軸は、ガラス壁面と気泡表面が最接近した位置での膜厚を 0 とした。

液膜はガラス平板と気泡の間に形成されるが、本実験ではガラス平板はフラットな面と仮定しているため、膜厚分布は気泡の表面形状に相当する。

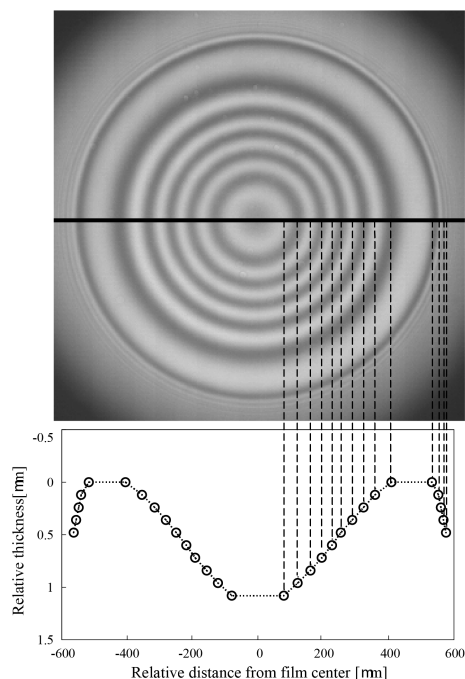


図2：干渉画像の一例と対応する相対的な膜厚分布

(2) 二次元的に運動を拘束された気泡の群挙動に関する実験に用いる、傾斜チャンネルを用いた斜め平板下における上昇気泡群の実験装置の概略図を図3に示す。斜めチャンネルは、高さ980 mm、横幅300 mm、奥行き40 mmあり、下部に40本のステンレス細管(内径100  $\mu\text{m}$ )が5 mm間隔で一列に配置された気泡発生部を備える。気相には空気を用いており、その流量を50 ml/minから150 ml/minの範囲で設定する。液相には蒸留水を用いるが、気泡合体を防止する目的で0.05 Mの硫酸マグネシウム( $\text{MgSO}_4$ )、もしくは2 ppmのTritonX-100を混入している。これにより、直径が約1.5 mm程度の単分散の気泡径分布を有する気泡群が得られる。また、TritonX-100を加えた場合、気泡合体が防止されると同時にマランゴニ効果により気泡表面が滑りなしの条件になる。装置は任意の角度に傾けられるようになっており、実験条件としてチャンネル壁面と水平軸のなす傾斜角 $\theta$ を90度(垂直)から30度まで10度刻みで設定した。なお、傾斜角 $\theta$ を变化することで壁面に沿う方向の気泡の上昇速度が変化するため、気泡レイノルズ数を実験条件のパラメータとして捉えることができる。観察領域は気泡発生部より490 mm上流とし、90 mm角の範囲を撮影することで、気泡群のクラスター化挙動を観察する。

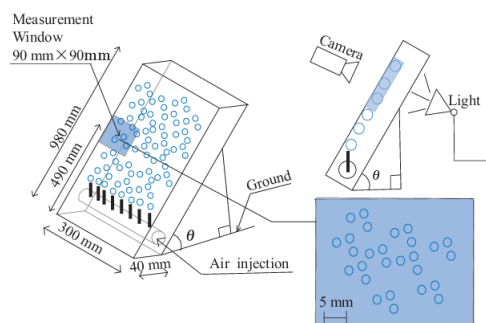


図3：斜め平板下における気泡群挙動の実験装置

#### 4. 研究成果

(1) 並進速度 $V_t$ の違いにより膜厚分布の時間履歴にいくつかの相違点を確認された。液膜の実験では、溶液に依らず、並進速度の変化による定性的な特徴は共通しているため、以下では超純水(10.0)を使用した場合の結果により説明する。 $V_t = 200 \mu\text{m/s}$ のときの膜厚分布の時間履歴を図4に示す。このとき、気泡の表面形状はpimpleのままガラス平板に接近していき、 $t = 3/100 \text{ s}$ の一点鎖線から $1/500 \text{ s}$ の内に破断する。図内の点線は、曲率半径1.5 mmの形状をプロットしたものである。気泡は初期半径3 mmをほぼ保ったままガラス平板に接近していくことがわかる。一方、 $V_t = 500 \mu\text{m/s}$ 以上の場合、気泡表面はpimple形状からdimple形状へと変形することが確認された。 $(V_t = 2000 \mu\text{m/s})$ の場合の膜厚分布の時間履歴を図5に示す。また、気泡の表面形状で最も壁に近いリムの部分からdimpleの最も窪んだ位置までの垂直距離をdimple深さと定義し、図6に各 $V_t$ によるdimple深さの時間履歴を示す。 $V_t$ の増加に伴い、dimple形成はより速くより深くなることから、並進速度が速い場合には、気泡表面の顕著な変形がガラス壁面からより遠い段階から開始していることが示唆される。

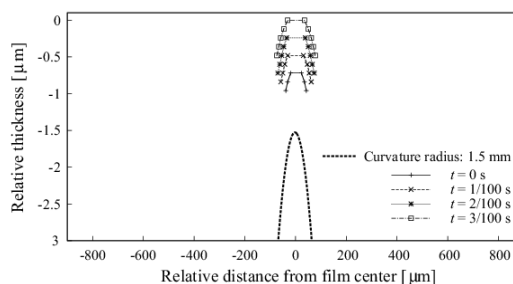


図4：膜厚分布の時間履歴(超純水,  $V_t = 200 \mu\text{m/s}$ )

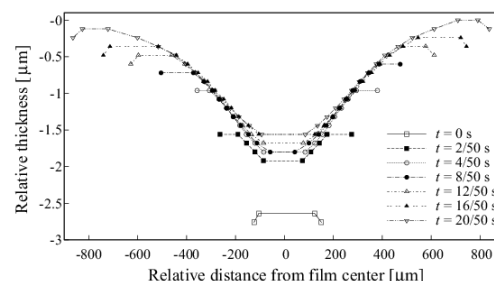


図5：膜厚分布の時間履歴(超純水,  $V_t = 2000 \mu\text{m/s}$ )



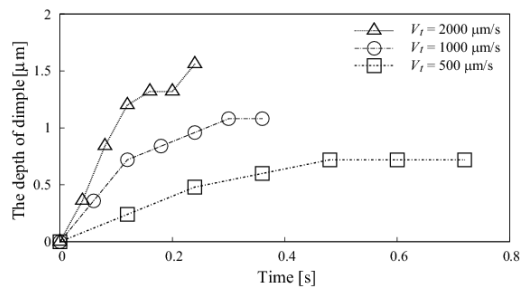


図 6 : dimple 深さの時間履歴 (超純水)

図 7 に,  $V_t = 200 \mu\text{m/s}$  のときの  $\text{MgSO}_4$  水溶液 (水温  $10.5$ ) の膜厚分布の時間履歴を示す. 超純水の場合 (図 4) と比較すると, 超純水では気泡の表面形状は pimple のままガラス平板に接近しているが, 硫酸マグネシウム水溶液の場合は気泡がガラス平板に接近するにつれて気泡形状が pimple から dimple へと変形している. また, 超純水と比較して,  $\text{MgSO}_4$  水溶液では液膜の破断が起こるタイミングが遅くなる傾向にある. また,  $V_t = 2000 \mu\text{m/s}$  まで速くなると,  $\text{MgSO}_4$  水溶液の膜厚分布の時間履歴は, 超純水におけるもの (図 5) とほぼ一致しており, 電解質による影響はみられなかった. ここで, pimple から dimple へと形状が遷移する段階における液膜の厚みは並進速度が速い方が厚い状態であると推測されることから, 電解質は, 液膜が薄くなり気泡がガラス平板のごく近傍まで接近している際のみ, 液膜の破断を妨げる影響を与えていると考えられる.

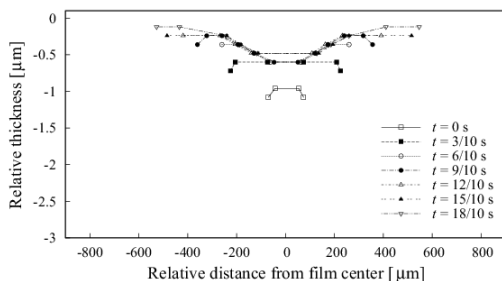


図 7 : 膜厚分布の時間履歴 ( $\text{MgSO}_4$ ,  $V_t = 200 \mu\text{m/s}$ )

図 8 に,  $V_t = 200 \mu\text{m/s}$  のときの界面活性剤水溶液 (水温  $13.0$ ) での膜厚分布の時間履歴を示す. 界面活性剤水溶液の場合は pimple から dimple へと変形しながら気泡がガラス平板に接近する. 気泡が壁面に接近するにつれて, dimple の深さはあまり変わらないが, リムの部分がガラス平板に沿って平たい形状に変形している. また, さらに遅い並進速度である  $V_t = 20 \mu\text{m/s}$  のときでも液膜はすぐには破断せず, 広く均一な厚みの液膜が安定的に存在した. これは, マランゴニ効果により気泡表面の境界条件がすべりなし条件となることで, 液膜の排水が妨げられるためであると推測される.

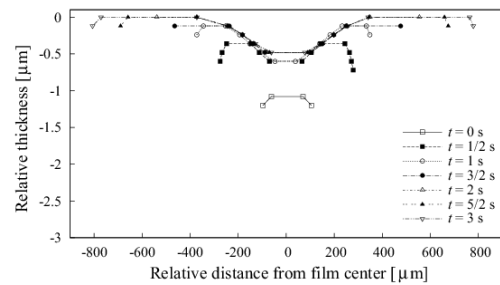


図 8 : 膜厚分布の時間履歴 (TritonX-100,  $V_t = 200 \mu\text{m/s}$ )

波長の異なる二種類の光源 (赤, 青) を用いて同時撮影を行うことで, 液膜の絶対膜厚の推定を試みる. 二色それぞれによる干渉縞を図 9 に示す. 干渉縞の情報からは, 相対的な膜厚分布と明線の位置が与えられる. 明線上での膜厚は,  $\lambda/2n$  の整数倍であるため, 二色それぞれに対する整数により決定される絶対厚分布の両者において, 各点における膜厚の差の最小二乗誤差が最小となるような整数の組を算出し, 絶対膜厚を推定した (図 10). 以上から, 二色光源を用いた干渉縞画像の同時計測が膜厚分布の絶対値の推定に対して有効であることが示された.

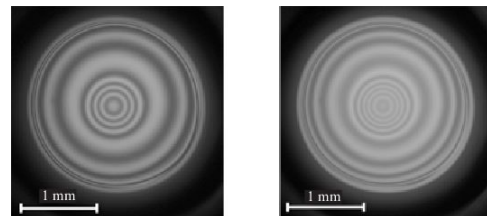


図 9 : 同時撮影による二色の干渉縞 (左: 赤, 右: 青)

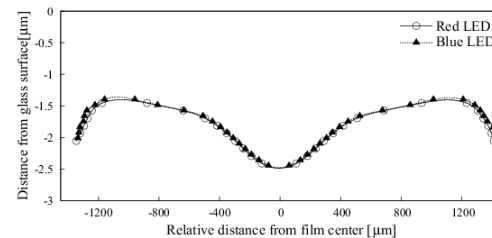


図 10 : 二色光源を用いた絶対膜厚分布の推定結果

超純水, 硫酸マグネシウム水溶液, 界面活性剤水溶液中で気泡を一定速度でガラス平板に接近させ, 気泡とガラス平板間に形成される液膜の膜厚分布を, 干渉計を用いてサブミクロンオーダ精度で計測した. その結果, 並進速度が遅いときには気泡の形状は pimple を保ったまま壁面に接近し, 並進速度が速いときには気泡はガラス平板に接近するにつれて pimple から dimple へと変形することが確認された. また, 電解質は, 気泡とガラス平板の距離が非常に近い場合に液膜の破断を妨げる影響があるが, 液膜の厚みが十分にある際にはその影響は見られず, 膜厚分布の時間履歴も超純水の場合と等しいものとなった. 一方, 界面活性剤の場合は, マランゴニ効果により液膜の排水や破断を妨

げる影響が確認され、気泡の並進速度が 20  $\mu\text{m/s}$  と非常に遅くても、液膜が長時間存在し続けることが明らかになった。

(2) ここでは、気泡合体の防止に  $\text{MgSO}_4$  を用いた場合の実験結果を示す。電解質の場合(界面活性剤を添加しない場合)、気泡表面はフリースリップ条件になっている。図 1-1 に傾斜角が 30 度するとき、気相流量別の気泡群の様子を示す。まず、いずれの気相流量においても、数個の気泡が横方向に並んだ気泡群が多く存在する。この横一列の気泡群は比較的安定して配列を保ちつつ上昇する様子が見られた。一方で、縦方向に並んだ状態を保ったまま安定的に上昇する気泡群は観測されない。気相流量の増加に伴い、より多くの気泡がより長い横方向の列を形成するようになると同時に、横一列一層の気泡群同士が干渉することで多層に並んだ気泡群が形成されやすくなった。さらに、気相流量が 150  $\text{ml/min}$  まで増加すると、ブーメラン型の気泡クラスターに成長する気泡群が頻繁に観測された。図 1-2 に気相流量が 150  $\text{ml/min}$  のとき、傾斜角を 30 度、40 度、50 度と変化させた場合の様子を示す。いずれの場合も、横方向に並んだ気泡群は観察されるが、傾斜角が大きいほど上昇過程において横に並んだ配置が崩れやすくなる様子が見られた。その結果、規模の大きな気泡クラスターは形成されにくくなり、また、一旦気泡クラスターが形成されてもすぐに分散してしまう傾向があった。これは、傾斜角の増加に伴い気泡径の微小な差異に起因する浮力の違いがより大きな上昇速度の差を生じるため、横並びの気泡配置の安定性が低下したことが原因であると考えられる。つまり、個々の気泡レイノルズ数が低くなる傾斜角が小さい条件の方が、安定的な気泡クラスターの形成が促進される。

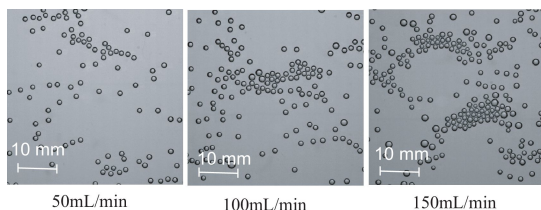


図 1-1 : 気相流量の影響 ( $\theta = 30^\circ$ )

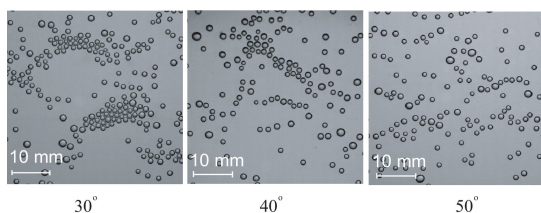


図 1-2 : 平板傾斜角の影響 (150  $\text{ml/min}$ )

気泡合体の防止に界面活性剤 (Trion

X-100) を用いて同様の実験を行った。界面活性剤の混入により、上昇する気泡の表面は、マランゴニ効果が発生することですべりなし条件となる。この影響により上昇速度が低下するため、壁面に沿う上昇速度を比較すると、界面活性剤溶液の場合の傾斜角 70 度の条件は、電解質溶液の場合の傾斜角 30 度の条件と大方一致した。この時、界面活性剤溶液中でも気泡群のクラスター化が生じており、両条件における気泡群の運動は非常に似通ったものであった。

## 5. 主な発表論文等

[学会発表](計4件)

Saori Shimoyama, Toshiyuki Ogasawara, Hiroyuki Takahira, Effects of surfactant and electrolyte on the drainage of the thin liquid film between a glass plate and a bubble approaching at a constant velocity, 66th Annual Meeting of the APS Division of Fluid Dynamics, November 24-26, 2013, Pittsburgh, Pennsylvania, USA

Toshiyuki Ogasawara, Saori Shimoyama, Hiroyuki Takahira, Laser interferometer measurement of a liquid film thickness distribution between bubble and solid surfaces, 8th International Conference on Multiphase Flow, May 26-31, 2013, Jeju, Korea

小笠原 紀行, 下山 沙織, 高比良 裕之, 気液界面と固体壁面間に形成される液膜の膜厚分布計測, 日本機械学会流体工学部門講演会, 2012年11月17-18日, 同志社大学今出川キャンパス寒梅館

下山 沙織, 小笠原 紀行, 高比良 裕之, レーザ干渉計を用いた気泡と固体壁面間に形成される液膜の膜厚分布計測, 日本混相流学会年会講演会 2012 2012年8月9-11日, 東京大学柏キャンパス

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

小笠原 紀行 (OGASAWARA, Toshiyuki)  
大阪府立大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号: 00552184