

表面活性剤が気泡流乱流のマルチスケール構造に与える影響 Surfactant Effect on the Multiscale Structure of Bubbly Flow Turbulence

東京大学 大学院工学系研究科 高木 周

Shu TAKAGI,

Graduate School of Engineering,

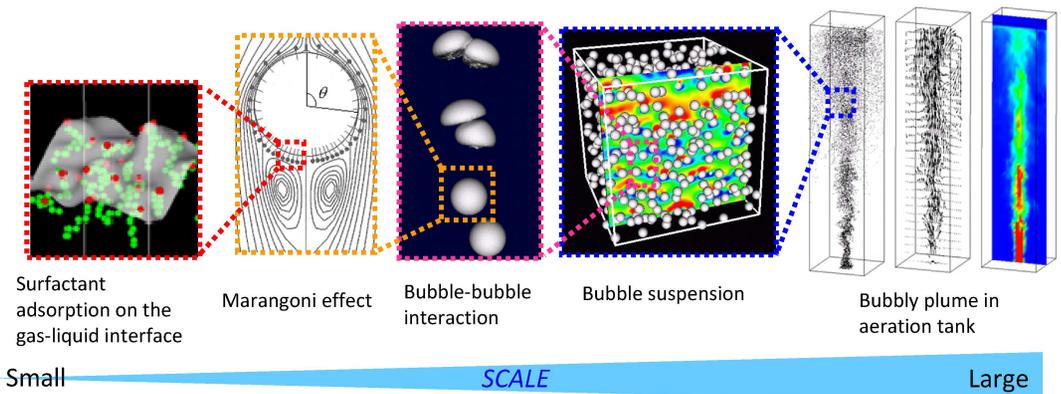
The University of Tokyo

1. はじめに

気相・液相・固相など異なる相が複雑に干渉し合いながら流動構造が決定される流れを混相流と呼ぶ。混相流では、層流の状態においても様々な時空間スケールの構造が流れの中に存在し、マイクロ・メゾ・マクロといった異なるスケール間の干渉が流動構造にとって重要となるマルチスケール構造をなす。様々なタイプの混相流の中でも、液体中に多数の気泡や液滴・粒子などの分散相を含む流れは分散系混相流と呼ばれ、マルチスケール性が特に重要となる。分散系混相流は、流体機械を始め、化学反応器、熱交換器、エンジンの燃料噴射部、水処理のための曝気槽など、工学上重要となる様々な装置で見受けられる。本稿では、水処理の曝気槽や船舶の抵抗低減技術などとも関連して、水中に存在する微細な気泡が乱流構造に与える影響について、著者らのこれまで行ってきた研究について概説する。

多数の微細な気泡を含む流れにおいては、図1に示すように、個々の気泡の表面における表面活性剤の存在など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到るまで、マイクロ・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ている。例えば、微量の表面活性剤を含む水中では、直径1mm以下の小さな気泡に働く抵抗は、球形気泡の値よりも剛体球の値にほぼ等しくなり、上昇速度が半分以下となる大幅な低下が起きることが知られている。この現象は、気泡表面に吸着する表面活性剤分子により引き起こされるマランゴニ効果により説明できる。すなわち、気泡表面に吸着した表面活性剤が、気泡の上昇運動にともない、気泡表面の上方部から下方に向かい掃き流されることにより、気泡表面に沿って表面活性剤の濃度分布が生じる。表面活性剤の濃度が高くなる下方部では、表面張力が小さくなるため、表面張力の大きい上方に向かってせん断応力が発生することにより抗力が増加し、上昇速度の減少がもたらされる。この表面活性剤の濃度差により表面張力の空間分布が生じ、流れが誘起される効果は、濃度マランゴニ効果あるいは化学マランゴニ効果と呼ばれる。また、表面活性剤の存在する水中では気泡同士の合体が非常に起こりづらくなることも知られている。表面活性剤が気泡の合体を阻害する効果については、上記のマランゴニ効果の影響により気液界面がノンスリップ化し、接近した界面間に潤滑力 (lubrication force) による反発力が働く効果と、さらに界面が接近し、表面活性剤分子の分子スケールの影響が出始めた際に現れる静電気的な反発力の両

方の効果があるが、これらの効果の詳細については未知な点が多い。いずれにしても、微量の表面活性剤が上昇速度を大幅に減少させたり、気泡同士の合体を妨げたりすることにより、気泡流全体の挙動が大きく変わってくる。すなわち、個々の分散相の表面近傍における表面活性剤や電解質の存在など分子スケールのマイクロな現象が、個々の気泡の挙動を大きく変化させ、結果として、マクロな流動構造である乱流構造全体にも大きな影響を与え、流動特性を大きく変化させることになる。このように時空間スケールが多岐に亘る複雑な系では、統一的に解析するための実験も難しく、ましてや気泡表面に吸着する表面活性剤分子一つ一つの振る舞いから気泡流全体の振る舞いまでを数値計算により解析するのは現状では不可能である。このような系に対して、現象をより詳細に理解するためには、実験と数値計算を相補的に用いながら統合的な解析を行うことがより重要となる。



2. 表面活性剤が気泡の上昇運動に与える影響

表面活性剤による気泡の上昇速度低下のメカニズムを、濃度マランゴニ効果により最初に説明したのは、Frumkin & Levich[1]である。その後、多くの理論解析や数値解析が行なわれてきた[2]が、その多くが、表面活性剤の濃度分布や液相内の速度分布をあらかじめ仮定して行なわれたものである。これに対し、Cuenot ら[3]は、気泡表面および液体中における活性剤の輸送方程式を運動方程式と連成させ、無次元数とマランゴニ効果および上昇速度の関係について、詳細に調べた。さらに Liao & McLaughlin[4]は、水中を变形しながら上昇していく気泡について数値計算を行い、界面での物質吸着の時間変化を詳細に調べている。

超純水を用いて気泡の挙動を詳細にしらべた研究としては、Duinveld らの一連の研究[5], [6]がよく知られている。また、Zhang & Finch[7]は、実験的に終端速度に到達するまでの上昇距離について調べ、微量な表面活性剤を含む系では、界面への活性剤の吸着・脱離現象が非常にゆっくりしたプロセスで起きるため、気泡発生部から静かに脱離した気泡が終端速度に到達するまで

数メートルの距離を要する場合もあることを示している。ここでは、これらを背景に、表面活性剤として吸着・脱離の物性が異なる、ペンタノール(分子量小)と、TritonX-100 (分子量大)を含む水中を上昇する気泡に関して、著者らが行った実験および数値計算について説明する[8]。

実際に気泡表面でのマランゴニ効果を実験的に計測するのは困難を極める。そこで、精緻な実験と数値計算の両方を実施することにより、実験、数値計算の結果の定量的な一致から、実験では計測が困難な気泡界面で起きている現象に対して、数値計算側の結果を利用して知見を得る。実験方法、数値計算手法の詳細については文献[8]を参照されたい。

実験には、表面活性剤として吸着・脱離の物性が異なる、ペンタノール(分子量小)と、TritonX-100 (分子量大)を含む水溶液を用いた。1-ペンタノール、Triton X-100 の物性値を表 1 に示す。

表 1 1-ペンタノールと Triton X-100 の物性値

	吸着定数 k_a [$\text{m}^3/(\text{mol}\cdot\text{s})$]	脱離定数 β [mol/m^3]	表面飽和濃度 Γ_{max} [mol/m^2]
1-pentanol	5.08	21.7	5.9×10^{-6}
Triton X-100	50	6.6×10^{-4}	2.9×10^{-6}

1-ペンタノール溶液中を上昇する気泡に関して、3種類の濃度に対して抗力係数を測定する実験を行い、数値計算と比較した結果を図 2 に示す。気泡径の違いにより、同じ濃度でも異なるレイノルズ数になっている。数値計算の条件は、実験より見積もられた気泡径、終端速度および表面活性剤濃度を用いて与えている。各点は、実験値(凡例: □, ○, △)と、計算結果(凡例: *, ×, +)である。実験結果の誤差は抗力係数について約±5%、レイノルズ数について約±3%である。比較のため、球形のクリーンバブルのときの Me_i の抗力係数式[9]と、剛体球に対する Me_i の抗力係数式[10]をそれぞれ実線と破線で示した。不純物中の気泡は、通常、表面ですべり速度なしの境界条件が課される剛体球と、ほぼ同じ抗力係数を持つことが知られているが、本実験ではクリーンバブルから剛体球への遷移域が精度良く計測されている。このようなクリーンバブルと剛体球の抗力の間領域においても実験結果と計算結果が良い一致を示しているのは非常に興味深い。これは、本研究で用いた吸着・脱離モデルおよび物性値が妥当であったためであると考えられる。

図 3 は、3種類の表面活性剤(1-, 3-ペンタノール, Triton X-100)について、それぞれ2種類の濃度で気泡の上昇速度を測定し、抗力係数とレイノルズ数の関係を調べたものである。ペンタノールの場合、 $10^{-2} \text{ mol}/\text{m}^3$ 程度では、上昇速度の減少はほとんど見られないが、Triton X-100 の場合には、 $10^{-3} \text{ mol}/\text{m}^3$ 程度の濃度で既に、活性剤の影響により剛体球の抗力状態に達している。これはペンタノールと TritonX-100 の吸着・脱離の特性の違いによる。Triton X-100 は、1-ペンタノールに比べ吸着係数 k_a は約 10 倍大きい、脱離係数 β は約 1/30000 と非常に小さな値をとる。すなわち、Triton X-100 の方が、吸着しやすく脱離しにくい特性をもち、気泡前面で吸着したもの

が、気泡後部で脱離しにくいいため、気泡表面にそって大きな濃度分布を持つことになる。そのため、バルク濃度の低い状態においても、Triton X-100 の場合には気泡の上昇速度を大幅に下げる効果をもつ。

図4は、図3のグラフ中、矢印で示した3つの条件①,②,③のもとで数値計算を行った結果である。図より、Triton X-100は、わずか $1.47 \times 10^{-3} \text{ mol/m}^3$ の濃度でも、界面が滑り速度なしの剛体球と同じような状態になっており、1-ペンタノールとは界面の速度分布が大きく異なっているのがわかる。この図より、図3において①の条件で抗力係数が剛体球と等しくなっているのが理解できる。1-ペンタノールに関しては、濃度の濃い②の条件の方が界面での滑り速度が減少しており、それに対応して抗力係数も、より剛体球寄りの値をとっており、数値計算結果が界面で起きている現象を再現していると考えられる。表面での速度分布を実験的に計測するのは著しく困難なため、このように上昇速度に関して実験と数値計算で良好な一致を確認した後に、界面の速度分布、濃度分布など界面で起きている現象について数値計算結果を用いて調べるのは、数値計算結果の大変有効な利用法であり、まさしく実験と計算の統合的解析が有効となっている事例である。

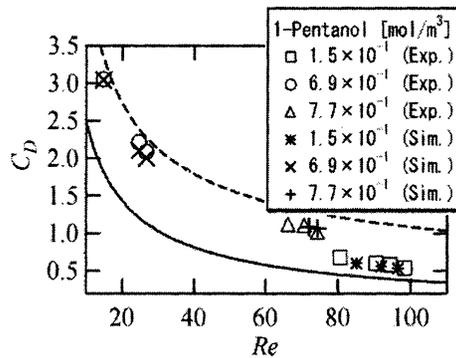


図2 1-pentanolの実験と数値計算の比較 (抗力係数: $C_D = \frac{F_{drag}}{\frac{1}{2} \rho U^2 \pi a^2}$)

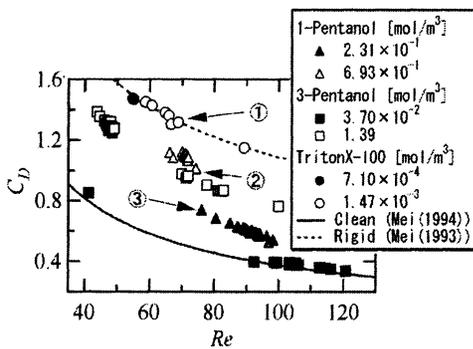


図3 異なる種類・濃度の活性剤に対する抗力係数の比較

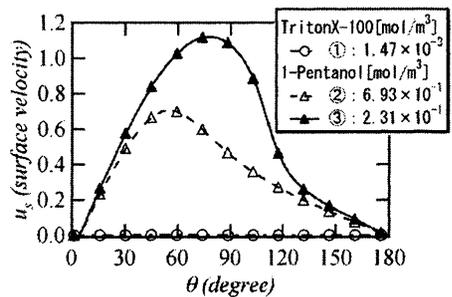


図4 気泡表面の速度分布
(①, ②, ③は図3の条件に対応)

3. 表面活性剤が気泡流の巨視的流動構造に与える影響

次に、微量の表面活性剤が気泡流の巨視的流動構造に与える影響について調べた研究について紹介する。(詳細は、文献[11], [12]参照。) 図5に実験装置の概略図を示す。実験に用いた気泡流チャンネルは高さが2m, 断面が40mm (2H)×400mm (アスペクト比10)の垂直矩形管であり、チャンネル下方に取り付けられた気泡吹き出し部から径1mmで揃った気泡が生成され、吹き出し部から高さ1600mmの位置で気泡流の観測を行っている。観測された気泡流の様子を図6に示す。流量から推定した平均ボイド率は約0.6%, 気泡吹き出しの無い状態でバルクレイノルズ数8200の乱流状態の上昇流である。図6(a)は表面活性剤を添加していない気泡流の画像である。このときの気泡径は1mmから4mmとばらつきが大きく、径の大きな気泡は変形を伴いながらジグザク運動や螺旋運動をしている様子がわかる。(b)(c)は表面活性剤として3-Pentanolをそれぞれ42ppm, 168ppm加えたとき、(d)はTriton X-100を2ppm加えたときの様子である。表面活性剤溶液中ではいずれの場合も気泡同士の合体が抑制され、発生時の気泡径が保たれている。そのため、測定領域において平均気泡径が1mm程度の単分散の微小気泡群が観察される。ここで注目すべき点は、3-Pentanol 42ppmを添加した際には正面から見ると((b) front view), 集積した気泡群が三日月型のクラスターを形成しているのに対して、168ppm溶液中では壁面近傍における気泡群のクラスター化現象が現れない((c) front view)。すなわち、気泡径分布がほぼ同じなのに、観測される大域的乱流構造が大きく異なる流れとなっている。また、(d)はTriton X-100をわずか2ppm (チャンネル全体に対し、耳かきひとさじ程度) 入っただけであるが、(c)とよく似た流動場となり、ほんの微量の表面活性剤の添加により気泡流の巨視的挙動に対して劇的な変化が現れる。

さらに興味深いことに、気泡クラスターが出たり消えたりと、気泡分布が変わるだけでなく、周りの液相の流れである乱流場が大きな変調を受ける。気泡クラスターが生成される条件(図6(b)では、レイノルズ応力が激減する結果がLDV計測より得られている[13]。この様子を実際に可視化するために、文献[14]にならい、明治大・榊原氏の協力を得て、図8に示すような、スキニングステレオPIV(SSPIV)のシステムを構築し、乱流の大規模渦構造の抽出を行った。

ここで示す実験データは、SSPIVによりチャンネル中央部分で主流方向30mm, 流路幅方向42mm, スパン方向20mmの計測領域を設定している。光学系で形成した厚さ1mmのレーザーシートを光源として粒子画像をステレオカメラで撮影することで1平面内3成分速度場を取得し、ガルバノミラーによりスパン方向に1mm毎にスキニングすることで擬似的な3次元速度場を約31Hzで最大5秒間取得する。図9に示す実験データでは、気泡クラスターの有無による流れへの影響を評価するため、気泡は片側壁面からのみ射出されている。

乱流の変調を評価するためには、乱流構造を支配する大規模な渦を可視化しその変化を観察する方法が有効である。渦の抽出法については様々な検討がなされているが、本研究で

は中山ら[15]が考案した，渦回転面における回転強度を基準とした渦定義を用い，SSPIV 計測により算出した三次元速度ベクトル場から渦構造を抽出した．渦構造の抽出には回転強度の等値面を使用した．図 8 に気泡クラスター通過前後における検査領域内の瞬時の渦構造を示す．この図においては，右手前側が気泡が流れている壁面，左側奥が気泡の流れていない壁面となっている．クラスター通過前後で比較すると，気泡クラスターが通過した側の渦構造が大きく変化し，大規模渦が消失している様子がわかる．

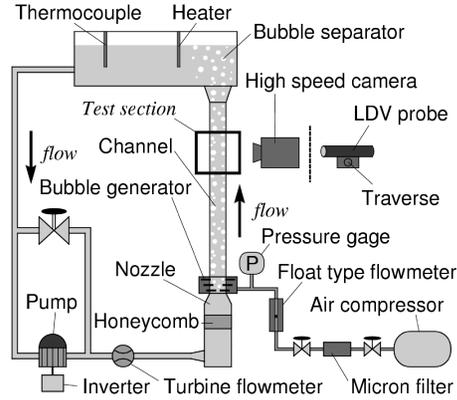


図 5 実験装置

では，表面活性剤が添加されることと，気泡クラスターの有無はどのように関係しているであろうか．このことを解明するためには，個々の気泡運動に対する表面活性剤の影響をきちっと把握することが重要となる．吸着した表面活性剤の影響による気泡の複雑な振る舞いは，実験結果のみだとその因子を判別しにくい，ここでも数値計算による結果を利用することにより，気泡クラスターの形成に対するより深い理解を得ることが可能となる．

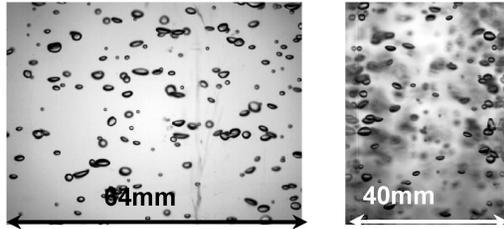
前述の静止流体中を上昇する単一気泡の実験より，本チャンネル内気泡流で用いている直径 1mm 程度の気泡は，42ppm 3-pentanol の条件では，気泡表面にマランゴニ効果がでるものの上昇速度の低下は小さく，気泡表面が完全にノースリップになってはおらず，ハーフスリップの条件であることがわかる．一方，168ppm 3-Pentanol および 2ppm Triton X-100 の条件では，気泡表面に強いマランゴニ効果が現れ，気泡表面がノースリップ化して，剛体球的に振る舞っていると見なすことができ，実際にこのときの上昇速度から見積もられる抗力係数は剛体球のものと一致している．では，この現象が壁面方向への移動に対してどのような影響を与えるのか．これに対しては，平均せん断により気泡に与えられる揚力により説明できる．球体が一樣せん断場から受ける揚力についての過去の数値計算[17][26][27]から，クリーンバブル(free-slip 気泡)と剛体粒子(no-slip 気泡)とでは大きな違いがあることが示されている．本実験での条件と一致する気泡レイノルズ数 Re_b が 100-250 程度のとき，クリーンバブルに働

く揚力は剛体粒子のそれよりも 10 倍以上大きくなる。場合によっては揚力の符号が変わりうることも示されている。したがって、本実験の場合、3-Pentanol 溶液(42ppm)中の気泡と Triton X-100 溶液(2ppm)中の気泡では、前者の方が周囲のせん断から大きな揚力を受けており、その結果として壁面への集積傾向が顕著に現れていると考えることができる。実際に、図 6 の side view をみると、気泡クラスターが形成される 42ppm 3-Pentanol 溶液中では、気泡が揚力の影響により壁面近傍に集積しているのが観察され、この壁面への集積がクラスターを形成しているのがわかる。

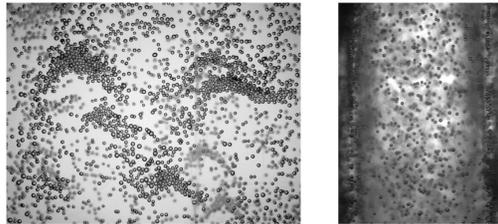
ここで示した例では、表面活性剤はまず気泡同士の合体を抑制し、単分散の気泡径を持つ気泡流を作り出す。さらに表面活性剤の濃度と種類に依存して、マランゴニ効果により気泡表面の速度分布に違いが現れ、それにより気泡の壁面への集積挙動に大きな違いが現れる。結果として、壁面近傍の大規模な乱流構造が、表面活性剤の濃度と種類に依存して大きく異なるものとなる。これに関連して、図 9 に示すような境界適合格子を用いて、せん断流中に存在する単一気泡に関して、表面活性剤の脱離・吸着プロセスと表面張力の変化によるマランゴニ効果を取り入れた詳細な計算を行った結果を図 11 に示す。ここでは、表面活性剤の脱離しやすさを表す無次元数であるラングミュア数 ($La = C_w / \beta$, (C_w : 遠方での濃度, β : 脱離定数)) を横軸にとり、せん断流中の気泡に働く抗力 ((a)抗力係数) と揚力 ((b)揚力係数) について整理している。ラングミュア数が低いときは、表面活性剤が脱離しやすいすなわちクリーンバブルに近い条件、一方、ラングミュア数が高いときは表面活性剤が脱離しにくく、マランゴニ効果の影響が大きくなる条件、すなわちノースリップ気泡になる条件に対応している。

さて、一般に物体に働く力は、物体表面に働く圧力と粘性応力の寄与に分けることができる。図 11 においては、抗力係数に対する圧力の寄与分を C_{DP} 、粘性応力の寄与分を C_{DV} と表している。また、揚力に対する圧力、粘性応力の寄与分をそれぞれ、 C_{LP} 、 C_{LV} と表している。図(a)より抗力係数は、ラングミュア数の増加に伴い、クリーンバブルの値から剛体球の値へと単調に増加しながら変化しているのがわかる。また、ラングミュア数によらず、抗力に対する圧力と粘性応力の寄与はほぼ同程度であることがわかる。一方、図(b)より揚力係数では、ラングミュア数の増加に伴い、揚力係数の単調な減少がみられるが、興味深いのは揚力に対する圧力と粘性応力の寄与である。抗力に対しては、圧力と粘性応力の寄与が同程度であったのに対し、揚力に対しては、圧力による寄与分が支配的となり粘性応力の寄与は小さい。すなわち、抗力に対しては大きな貢献がある粘性応力は、気泡に働く横方向の力である揚力に対しては相殺し、寄与がほとんどなくなる。ただし、ラングミュア数の大きい条件、すなわちノースリップ気泡に対しては、負の揚力が発生し、この負の揚力に対しては圧力による貢献分はほぼ 0 となり、粘性応力の寄与が支配的となる。このように、抗力・揚力に対する圧力と粘性応力の異なる寄与の仕方など、流体力学的にも興味深い内容を含んでおり、

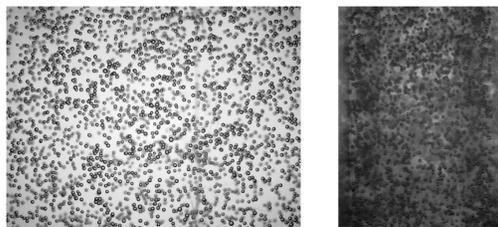
数値計算による詳細な解析と実験による観測事実を介して、さまざまな知見が得られているのは特筆すべき点である。せん断流中の気泡に働く力に対する表面活性剤に関するさらに詳細な解析については文献[22]を参照されたい。



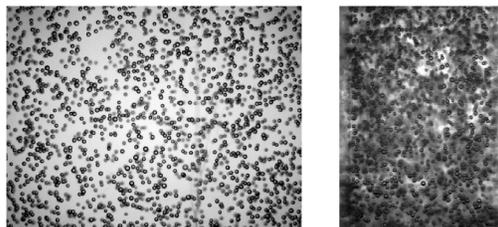
(a) 0ppm 3-Pentanol (水道水)



(b) 42ppm 3-Pentanol 水溶液



(c) 168ppm 3-Pentanol 水溶液



(d) 2 ppm Triton X-100 水溶液

図 6 気泡流のクラスター構造に対する 3-Pentanol 濃度の影響
(バルクレイノルズ数 8200, 左図; front view, 右図; side view)

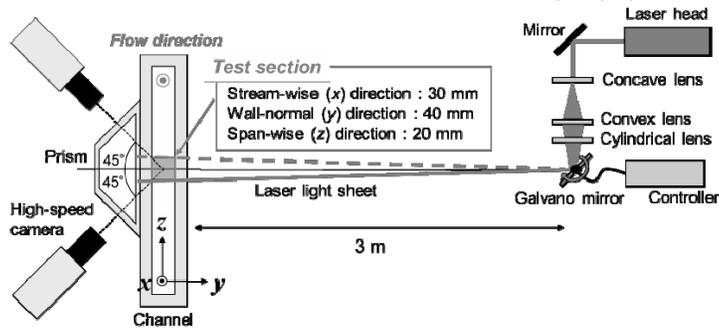


図7 SSPIV計測システムの概略図

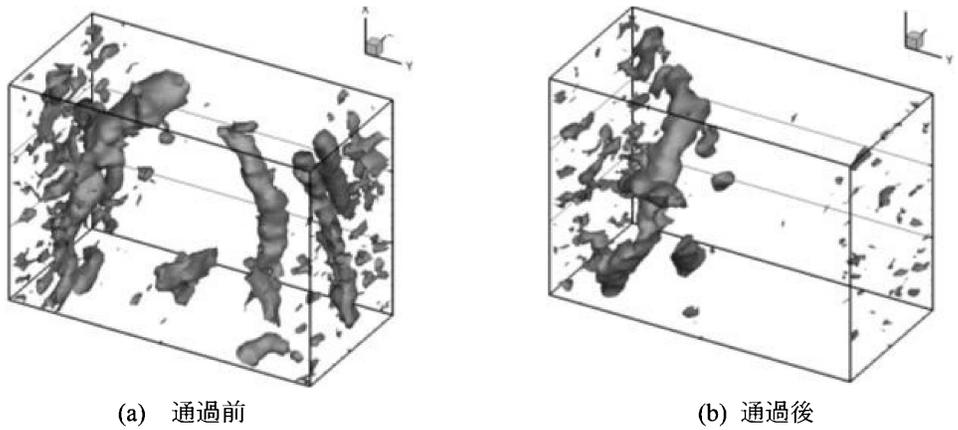


図8 気泡クラスター通過後の大規模渦構造消失の様子 (右手前壁面にクラスター通過)

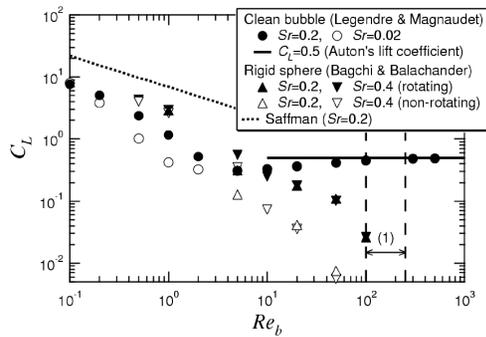


図9 揚力係数(C_L)の気泡レイノルズ数(Re_b)依存性 (揚力係数: $C_L \equiv \frac{F_{Lift}}{\frac{4}{3}\pi a^3 \rho |\mathbf{U} \times \boldsymbol{\Omega}|}$)

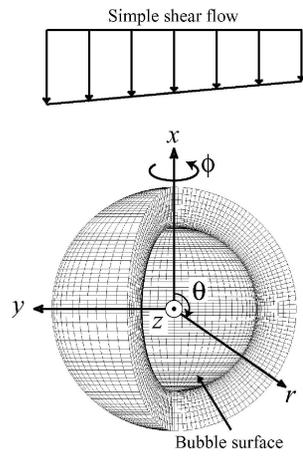
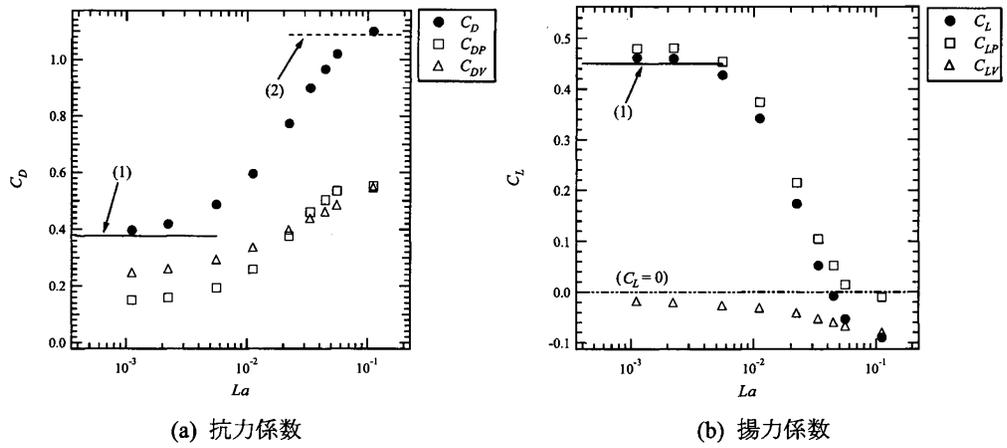


図 10 単純せん断流中の気泡周りの計算格子の様子



(a) 抗力係数 (b) 揚力係数

図 11 抗力係数 C_D ・揚力係数 C_L のラングミュア数 La 依存性。
 (Line(1): clean bubble (Legendre & Magnaudet 1998),
 Line(2): rigid sphere (Mei 1993).)

5. まとめ

ここでは、単一上昇気泡に働く種々の力および表面活性剤がもたらす影響を中心に説明を行った。これらの知識を十分に活用することにより、気泡の壁面への集積傾向などについて、つじつまの合う説明が可能となる。しかし、表面活性剤が合体を抑制するメカニズムや、壁面近傍に集積した気泡群により構成される気泡クラスターの大きさや流れ場への影響などについては未知な点が多い。今後は、現象の多重スケール性にさらに踏み込んだ議論が必要になると考えられる。

参考文献

- [1] A.Frumkin, and V.Levich, *Zhur. Fiz. Khim*, **21** (1947), 1183.
- [2] J.Magnaudet, and I.Eames, *Annual Review of Fluid Mechanics*, **32**(2000), 659.
- [3] B.Cuenot., Magnaudet, J. and Spennato, B., *J. Fluid Mech.*, **339** (1997), 25..
- [4] Y.Liao and J.B.McLaughlin, *J.Colloid Interface Sci.*, **224**(2000), 297.
- [5] P.C. Duineveld, *J. Fluid Mech.*, **292** (1995), 325.
- [6] R.B. Fdhila and P.C.Duineveld, *Phys. Fluids*, **8** (1996), 310.
- [7] Y. Zhang, and J. A. Finch, *J. Fluid Mech.*, **429** (2001), 63.
- [8] 高木周, 宇田東樹, 渡邊祐二, 松本洋一郎, 日本機械学会論文集 B 編, **69-686**(2003), 2192.
- [9] R. Mei, J. F. Klausner, and C. J. Lawrence, *Phys. Fluids*, **6**(1994), 418.
- [10] R. Mei, *Int. J. Multiphase Flow*, **19** (1993), 509.
- [11] Takagi, S., Ogasawara, T. and Matsumoto, Y., *Philos. Trans. R. Soc. London .A*, **366**, pp.2117-2129 (2008).
- [12] Takagi, S and Matsumoto, Y., *Annual Review of Fluid Mechanics.*, **43**, 615-636 (2010).
- [13] So, S., et al., *Experiments in Fluids* **33** (2002): 135-142.
- [14] T. Hori and J. Sakakibara, *Meas. Sci. Technol.* **15**, (2004) pp. 1067-1078.
- [15] Nakayama, K., et al., *Fluid Dyn. Res.*, **46**(2014).
- [16] Saffman, P. G. T., *J. Fluid Mech*, **22** (1965): 385-400.
- [17] T.R. Auton, *J. Fluid Mech.*, **183**(1987), 199.
- [18] R. Kurose and S. Komori, *J. Fluid Mech.*, **384** (1999),183.
- [19] Legendre, D. and Magnaudet, J., *J. Fluid Mech.*, **368** (1998), 81.
- [20] P. Bagchi and S. Balachandar, *Phys. Fluids*, **14**(2002), 2719.
- [21] J. Magnaudet, S. Takagi, and D. Legendre, *J. Fluid Mech.*, **476** (2003), pp.115-157.
- [22] Fukuta, M., Takagi, S. and Matsumoto, Y., *Phys Fluids*, Vol. 20, 040704 (2008).