

# 液膜排水に伴う気液界面上の濃度マランゴニ効果に関する数値計算

## Numerical simulation of concentration marangoni effect on gas-liquid interface due to the liquid film drainage

- 小山 幹, 阪大, 大阪府豊中市待兼山町 1-3, motoki.koyama@flow.me.es.osaka-u.ac.jp
- 杉山和靖, 阪大, 理研, 大阪府豊中市待兼山町 1-3, kazuyasu.sugiyama@me.es.osaka-u.ac.jp
- 渡村友昭, 阪大, 大阪府豊中市待兼山町 1-3, tomoaki.watamura@me.es.osaka-u.ac.jp
- 高木 周, 東大, 東京都文京区本郷 7-3-1, takagi@mech.t.u-tokyo.ac.jp
- Motoki KOYAMA, Osaka University, 1-3 Machikaneyama, Toyonaka, Osaka, JPN
- Kazuyasu SUGIYAMA, Osaka University, RIKEN, 1-3 Machikaneyama, Toyonaka, Osaka, JPN
- Tomoaki WATAMURA, Osaka University, 1-3 Machikaneyama, Toyonaka, Osaka, JPN
- Shu TAKAGI, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo, Tokyo, JPN

The concentration Marangoni effect on the drainage suppression of a liquid film and the wall repulsive force for a bubble approaching a flat plate is numerically studied. We conduct direct numerical simulation using a boundary-fitted grid conforming to the interfacial deformation. The simulated results reveal that the repulsive force on the wall increases with increasing the Marangoni number, indicating the suppression of the bubble-wall coalescence owing to the surfactant-driven Marangoni effect. For the sufficiently high Marangoni number, the repulsive force no longer increases. This saturation of the force is attributed to an excessive adsorption of the surfactant, making the gas-liquid interface no-slip. From the time evolution of the Marangoni effect and the height of gas-liquid interface, we conclude that Marangoni stress enhances dimple formation resulted from pressure increase at the top of the bubble.

### 1. 緒言

気泡流の流動では気泡表面における相変化や物質付着などのミクロの物理から気泡が誘起する浮力対流や疑似乱流など流れ場全体のマクロな物理まで、マルチスケールの物理が複雑に重畳する。例えば、水中を浮上する気泡表面に微量の界面活性剤が吸着すると、界面上で活性剤濃度勾配による表面張力勾配が生じ濃度マランゴニ効果が発現する。さらにマランゴニ効果が顕在化すると、気泡同士の合体が抑制され、それが活性剤無添加時の気泡流の乱流構造および気泡群分布に大きく影響を与えることが報告されている<sup>(1)</sup>。一連の現象に関する根幹の理解には、気泡径以下の寸法で特徴づけられる物理である気泡の壁面付着や、気泡同士の合体などの界面移動を伴う気液の動力学の理解が欠かせない。

壁面-気液界面間の流れとそれに伴う力については潤滑理論に基づく数値計算<sup>(2)</sup>により見積りが可能とされている。しかし、潤滑理論では流れ場と圧力場は準定常状態が仮定されており、マランゴニ効果及び液膜排水の時空間発達は未解明である。また、実験では光の干渉から液膜厚さを求める試みがなされているが<sup>(3)</sup>、液膜内部及び界面上の活性剤輸送は不明である。本研究では平板とそれに接近する単一気泡間に形成される液膜を対象とし、厳密な活性剤輸送と界面変形を考慮した直接数値計算を行い、マランゴニ効果による気泡-平板間の合体抑制を壁面反発力により定量的に評価した。また、気液界面の動力的挙動に対するマランゴニ効果の時間発達を調査した。

### 2. 解析領域・計算手法

計算対象の概略図及び座標系を図 1 に示す。固定された平板と、それに一定速度  $V$  ( $= 5 \text{ mm/s}$ ) で垂直に接近する単一気泡の間に形成される液膜、及び気液界面を計算対象とする。計算対象は軸対称系とする。半径方向を  $r$ 、高さ方向を  $z$  と定義し、原点は対称軸と出口境界の気液界面高さの交点とする。図は、初期液膜高さ  $H_0$  に対し  $\kappa = 1 / 10H_0$  の曲率を与えた場合の初期格子形状であるが、本計算では液膜をほぼ長方形と見なせるような、 $\kappa = 1 / 1000H_0$  の曲率に設定した。支配方程式は、非圧縮性の連続の式、

Navier-Stokes 方程式、および以下に示す液相部ならびに、界面上の界面活性剤濃度の輸送式である。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{u}C) = D\nabla^2 C, \quad (1)$$

$$\frac{\partial \Gamma}{\partial t} + \nabla_s \cdot (\mathbf{u}_s \Gamma) = D_s \nabla_s^2 \Gamma - D\nabla C_s \cdot \mathbf{e}_\eta, \quad (2)$$

ここで、 $\mathbf{u}$  は速度ベクトル、 $D$  は拡散係数、 $C$  は液相部の界面活性剤濃度、 $\Gamma$  は界面付着した界面活性剤濃度である。添え字の  $s$  は界面上を、 $\mathbf{e}_\eta$  は界面法線方向単位ベクトルを意味する。速度の境界条件として、壁面に滑りなし条件、初期の清浄な気液界面に自由滑り条件を課す。気液界面は自由変形界面とし、界面法線方向のラプラス則、界面接線方向のマランゴニ応力により界面形状が決定され、時間進行とともに速度場・圧力場・濃度場及び界面形状が変化する。

支配方程式は 2 次元直交曲線座標系<sup>(4)</sup>で離散化され、流れ場及び圧力場は陰解法 (SIMPLER 法)、濃度場はオイラー陽解法を用いて求め、これらを連立させる。また、気液界面と壁面に格子を寄せた境界適合格子を用いることで、界面と界面近傍との間における活性剤の吸着脱離過程、及び表面張力勾配がもたらすマランゴニ効果を高い解像度で扱う。格子点数は半径方向、高さ方向それぞれ 62, 32 点とした。界面活性剤の物性値は 1-Pentanol を基に

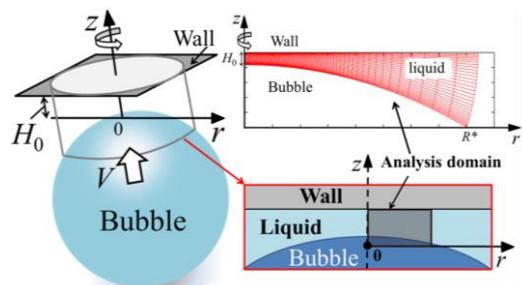


Fig. 1 Analysis domain and initial shape of boundary fitted grid.

したが、計算コストの考慮から前述の格子点数でも濃度境界層を捕捉できるように拡散係数を 100 倍に設定している。時間進行とともに出口境界の排水量を一定に保ち、境界条件を満たすように界面を移動させ、格子を再生成している。

### 3. 気泡と平板の合体抑制について

活性剤添加による気泡-平板間の合体抑制効果を考察するために、マランゴニ数  $Ma$  を  $3 \times 10^3 \sim 3 \times 10^7$  で変化させ、壁面での反発力について調査した。マランゴニ数は以下のように定義される。

$$Ma = \frac{R_G T \Gamma_{\max}}{\mu V}, \quad (3)$$

ここで、 $R_G$  は気体定数、 $T$  は絶対温度、 $\Gamma_{\max}$  は界面に付着する活性剤飽和濃度、 $\mu$  は粘性係数、 $V$  は界面の平均接近速度である。壁面反発力  $F^*$  は、出口境界 ( $r^* = R^*$ ) での壁面圧力を差し引いた相対的な圧力  $P_w - P_w|_{r^*=R^*}$  を用いた以下の式で評価した。

$$F^* = \frac{1}{\rho V^2} \int_0^{R^*} 2\pi (P_w - P_w|_{r^*=4}) r^* dr^*. \quad (4)$$

図 2 は  $t^* = 0.10, 0.15$  における界面活性剤無添加の場合に対する無次元壁面反発力増加率  $\phi$  ( $= (F_{ws}^* - F_{wos}^*) / F_{wos}^*$ ) とマランゴニ数の関係を表す。添え字の ws は界面活性剤を添加した場合、wos は添加しない場合を表す。マランゴニ数が  $O(10^3) \sim O(10^5)$  では  $\phi \sim Ma^n$  を意味するべき乗指数  $n = 0.9$  に従って無次元壁面反発力が増加することがわかった。これは活性剤の気液界面への吸着飽和濃度増加に伴う気泡-平板間の合体抑制効果を意味する。マランゴニ数が  $O(10^6)$  以上では無次元壁面反発力が  $t^* = 0.10, 0.15$  ともに一定値に収束していることが分かる。以上より活性剤濃度が過剰吸着し、界面上での活性剤濃度勾配、つまりは粘性力に対するマランゴニ応力の寄与がある値より大きくなると、気液界面はいずれの場所でも一様に no-slip 化<sup>(5)</sup>することが考えられる。

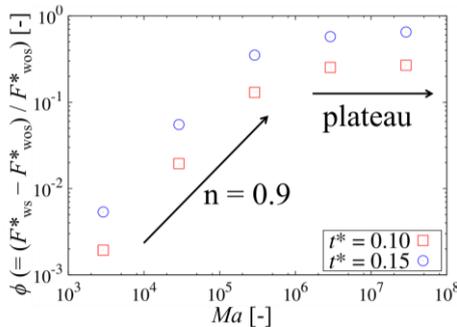


Fig. 2 Non-dimensional wall repulsive force increase rate vs. Marangoni number.

### 4. マランゴニ応力と気液界面の動力学

図 3 (a) に界面活性剤無添加時における気液界面形状を、(b) にマランゴニ数を変化させた場合の、対称軸上での気液界面高さの活性剤無添加に対する差異  $H_{ws} - H_{wos}$  の時間変化を、(c) にマランゴニ応力  $\tau$  により界面上に作用する力  $F_{Ma}^*$  の時間変化を示す。ここで  $H$  は  $z$  軸上の界面位置を表す。 $F_{Ma}^*$  は以下の式で定義した。

$$F_{Ma}^* = \int_0^{R^*} 2\pi \tau r^* dr^*, \quad (4)$$

ここで  $\tau$  は液膜排水によるせん断応力を  $\rho V^2$  で無次元化したマランゴニ応力を表し、いずれの点でも半径方向内向きに働くことは予め確認している。図 3 (b), (c) から、マランゴニ数の増加及び時間進行に伴い、軸上界面高さの差異及び、マランゴニ応力

より界面上に作用する力は共に増加することが分かる。このことから、気液界面形状及びマランゴニ効果は非定常に発達しており、数値計算において非定常性を考慮することが重要であることが示唆される。また、図 3 (b) から  $t^* = 0.6, 0.4, 0.3$  付近から軸上界面高さの活性剤無添加に対する差異が現れ始めている。ここで、マランゴニ応力の発達に対して気液界面高さの差異が現れるまでに時間遅れが生じていることに注目されたい。また、マランゴニ数の減少に伴い、その時間遅れがより大きくなることが分かる。図 3 (a) に示すように、本計算条件では界面活性剤の有無に関わらず  $t^* = 0.3$  付近で気液界面が凹 (dimple) 形状になることが分かっている。そのため、平板接近による気泡先端圧力の上昇に起因する dimple 化を半径方向内側にかかるマランゴニ応力が助長していることが考えられる。

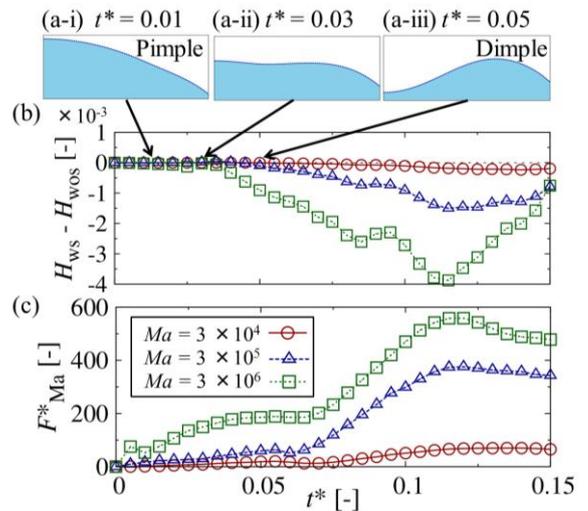


Fig. 3 (a) The shape of gas-liquid interface at (i)  $t^* = 0.01$ , (ii)  $t^* = 0.03$ , (iii)  $t^* = 0.05$ . Time evolution of; (b) the difference between height of gas-liquid interface at central axis, and (c) the force induced by Marangoni stress for various Marangoni numbers.

### 5. 結言

境界適合格子を適用した直接数値計算を用いて、平板とそれに接近する気泡との間に生じる液膜の排水について界面活性剤の影響を調査した。マランゴニ数の増加に伴い、気泡-平板間の合体抑制効果の指標である壁面反発力が増加することを示した。マランゴニ数が  $O(10^6)$  以上では気液界面の no-slip 化による壁面反発力の収束が見られた。マランゴニ効果及び気液界面形状の過渡的変化から非定常計算の重要性が確認された。界面活性剤の有無による気液界面高さの差異とマランゴニ応力の時間発達の比較から、マランゴニ応力が気泡先端圧力の上昇に起因する dimple 化を助長していることが示唆される。

### 謝辞

本稿中の成果の一部は理化学研究所情報基盤センター HOKUSAI GreatWave を用いて得た。

### 参考文献

- (1) Takagi and Matsumoto, *Annu. Rev. Fluid Mech.*, **43**, (2011).
- (2) Manica, Hendrix, Gupta, Klaseboer, Ohl and Chan, *App. Math. Mod.*, **38**, (2014).
- (3) Hendrix, Manica, Klaseboer, Chan and Ohl, *Phys. Rev. Lett.* **108**, (2012).
- (4) Takagi, Matsumoto and Huang, *JSME Int. J., Ser. B*, **40**, (1997).
- (5) Tomiyama, Kataoka and Sakaguchi, *JSME Int. J., Ser. B*, **61**, (1995).