

# メソスケール気液固混相流シミュレーションのための自由表面埋め込み法 Immersed Free Surface Method for Simulation of Mesoscale Gas-liquid-solid Multiphase Flows

- 藤田昌大, 東大, 東京都文京区本郷 7-3-1, E-mail: masahiro@chemsys.t.u-tokyo.ac.jp  
小池修, 東大, 東京都文京区本郷 7-3-1, E-mail: osamu\_koike@sogo.t.u-tokyo.ac.jp  
山口由岐夫, 東大, 東京都文京区本郷 7-3-1, E-mail: yuki-yama@chemsys.t.u-tokyo.ac.jp  
Masahiro Fujita, The University of Tokyo, Hongo 7-3-1, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656  
Osamu Koike, The University of Tokyo, Hongo 7-3-1, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656  
Yukio Yamaguchi, The University of Tokyo, Hongo 7-3-1, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656

An immersed free surface model for a simulation of mesoscale gas-liquid-solid multiphase flows is presented. Using the model, a contact angle boundary condition on particles at a free surface is implicitly satisfied, so that one can calculate efficiently menisci and capillary forces among the many particles. A three-way coupling among particle motion, fluid motion and free surface motion is accomplished using the immersed free surface model in conjunction with a level set method and an immersed boundary method. An accuracy of the present method is validated through the comparisons with analytical solutions of the capillary forces exerted on spherical particles at a free surface.

## 1. はじめに

さまざまな機能性粒子膜が微粒子分散液の基板上塗布乾燥プロセスによって作製される。この場合、微粒子、流体、気液界面の運動を解いて微粒子系の構造形成過程を解析するためには、メソスケール気液固混相流シミュレーションが必要となる。ここでは流体の連続体近似が成立する下限に近い1 $\mu\text{m}$ 以下のスケールをメソスケールと定義するが、このとき微粒子は流体分子の熱揺動によってブラウン運動をするとともに、微粒子に働く分子間力や静電気力を考慮しなければならない。さらに重要なのは、気液界面に存在する微粒子が表面張力を受け、粒子間の毛管相互作用によって運動することである。メソスケールではボンド数とウェーバール数がともに小さいため、微粒子の運動は主に毛管力と粘性力に支配される。

著者らはこれまでに、自由表面を持たないメソスケール流体-固体二相流に対するシミュレーションモデルを開発した<sup>(1)</sup>。ここでは immersed boundary method (IBM)<sup>(2)</sup>を用いて固体表面の滑りなし境界条件を陰的に与えることにより、多数の固体粒子の効率的なシミュレーションを行った。一方、気液固混相流の場合、気液界面の固体粒子には圧力と粘性力という表面力の他に、表面張力という線分力が三相接触線に働く。したがって圧力や粘性力と同様、表面張力の境界条件を陰的に取り扱うためには、三相接触線に働く線分力である表面張力を体積力に変換する工夫が必要である。本研究で提案する自由表面埋め込みモデルは、固体粒子内部に仮想気液界面を構成することによって、三相接触線に働く表面張力を仮想気液界面に働く表面張力に変換し、さらに continuum surface force (CSF)モデル<sup>(3)</sup>を用いて体積力に変換する方法である。この方法によって粒子運動と界面運動が双方向に連成され、流体運動を合わせた三連成シミュレーションが可能になる。以下では本研究で用いられる支配方程式と数値計算法を記述した後、今回提案する計算法が気液界面の微粒子に働く毛管力を正確に計算できることを示す。

## 2. 支配方程式と数値計算法

まず気液二相流を密度分布のある非圧縮性流体と考え、質量保存則として Eq. (1)の連続の式を用いる。

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

メソスケール流体の運動方程式として非圧縮 Landau-Lifshitz Navier-Stokes (LLNS)方程式<sup>(4)</sup>を採用する。LLNS 方程式は NS 方程式の右辺に流体分子の熱揺動による確率的揺動応力テンソル  $\mathbf{S}$  =

$S_{ij}$ を加えたもので、これによって流体中の微粒子のブラウン運動を再現することができる。CSF モデルの体積力ベクトル  $\mathbf{F}_s$ 、IBM の強制力ベクトル  $\mathbf{F}_p$ 、そして重力項を合わせて、LLNS 方程式は Eq. (2)で表される。

$$\rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} = -\rho \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} - \nabla p + \nabla \cdot \mu (\nabla \mathbf{v} + \nabla \mathbf{v}^T) + \rho \mathbf{g} + \nabla \cdot \mathbf{S} + \mathbf{F}_s + \mathbf{F}_p \quad (2)$$

ここで、

$$\mathbf{F}_p = \Phi \rho (\mathbf{v}_p - \mathbf{v}) / \Delta t \quad (3)$$

ただし  $\Phi$  は粒子内部で 1、それ以外で 0 となる固相関数、 $\mathbf{v}_p$  は粒子内部の格子点の速度ベクトルであり、Eq. (4)で与えられる。

$$\mathbf{v}_p = \mathbf{V} + \boldsymbol{\Omega} \times \mathbf{r}_p \quad (4)$$

ここで  $\mathbf{V}$  は粒子の並進速度ベクトル、 $\boldsymbol{\Omega}$  は粒子の角速度ベクトル、 $\mathbf{r}_p$  は粒子中心からの相対ベクトルである。 $S_{ij}$  の平均は 0 であり、共分散は Eq. (5)で与えられる。

$$\langle S_{ij}(\mathbf{r}_1, t_1) S_{kl}(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle = 2k_B T \mu \left( \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk} \right) \times \delta(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2) \delta(t_1 - t_2) \quad (5)$$

ただし  $k_B$  はボルツマン定数、 $\delta$  はクロネッカーのデルタ、 $\delta(\cdot)$  はデルタ関数である。また level set 法<sup>(5)</sup>に従い、粒子内部を含めた全計算領域における気液界面の移流方程式は Eq. (6)で表される。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \phi = 0 \quad (6)$$

一方、粒子の並進および回転運動は Eq. (7)で表される。

$$m \frac{d\mathbf{V}}{dt} = \mathbf{F}_c + \mathbf{F}_h + \mathbf{F}_v + \mathbf{F}_e \quad (7a)$$

$$I \frac{d\boldsymbol{\Omega}}{dt} = \mathbf{T}_c + \mathbf{T}_h \quad (7b)$$

ただし  $\mathbf{F}_c$  と  $\mathbf{T}_c$  はそれぞれ接触力ベクトルと接触トルクベクトル、 $\mathbf{F}_h$  と  $\mathbf{T}_h$  はそれぞれ流体力ベクトルと流体トルクベクトル、 $\mathbf{F}_v$  と  $\mathbf{F}_e$  はそれぞれ van der Waals 力と静電気力である。ここで、

$$\mathbf{F}_h = - \int_V \{ \mathbf{F}_p - \Phi(\rho_p - \rho) \} dV \quad (8a)$$

$$\mathbf{T}_h = - \int_V (\mathbf{r}_p \times \mathbf{F}_p) dV \quad (8b)$$

ただし $\rho_p$ は粒子密度、 $V$ は粒子領域を示す。また $\mathbf{F}_c$ と $\mathbf{T}_c$ は discrete element method (DEM)<sup>(6)</sup>で用いられる粘弾性力として、 $\mathbf{F}_v$ と $\mathbf{F}_e$ は Derjaguin-Landau-Verwey-Overbeek (DLVO)理論<sup>(7)</sup>に基づく2体間ポテンシャル力として与えられる。

各時間ステップの数値計算法を以下に示す。まず全計算領域で Eq. (6)を解いてレベルセット関数を移流させる。次に粒子内部のレベルセット関数を修正して仮想気液界面を構成する<sup>(8)</sup>。仮想気液界面は粒子表面で接触角条件を満たし、粒子内部に作られる曲面であれば、任意の形状で良い。その後、全計算領域でレベルセット関数を再初期化し、最後に液相体積が保存するようレベルセット関数を修正する。以上のレベルセット関数の移流については、空間差分を5次精度 weighted essentially non-oscillatory (WENO)スキーム<sup>(9)</sup>で、時間積分を3次精度 total variation diminishing (TVD) Runge-Kutta 法<sup>(10)</sup>を用いて解く。このようにして粒子表面の接触角条件を満たすレベルセット関数の分布が得られたら、近似 Heaviside 関数を用いて粒子内部を含む全領域で液相体積率を計算し、液相体積率から流体の密度と粘性係数の分布を求める。なお、 $\Phi$ の分布を求める際にもレベルセット関数と近似 Heaviside 関数を用いる。その後 simplified marker and cell (SMAC)法<sup>(11)</sup>を用いて Eq. (1)と Eq. (2)を解いて速度場と圧力場を得るとともに、Eq. (7)を Euler explicit 法で解いて粒子速度を求める。以上の手順によって、仮想気液界面に働く表面張力が Eq. (3)と Eq. (8)を通して Eq. (7)に導入されるため、粒子に働く毛管力が自然に計算される。なお、計算領域は直方体とし、一辺の長さが粒径の1/10の立方体計算セルで領域を分割する。このとき気液界面に平行な方向には周期境界条件を課す。

### 3. シミュレーション結果

まず本研究で提案する自由表面埋め込みモデルによって、気液界面が粒子表面の接触角に応じて運動することを示す。Fig. 1に示すのは、密度比100の気液界面を液相側から気相側に粒径 $d=1\mu\text{m}$ 、接触角 $\alpha=30^\circ$ の球形粒子が貫通するシミュレーションである。ここでは粒子の運動方程式は解かず、粒子に1m/sの上向き一定速度を与えている。図中の青い半透明の面は $\phi=0$ の等値面であり、気液界面を表す。Fig. 1(b)に示すように、気液界面から粒子が突き出ると、粒子表面の接触角条件を満たすように界面は変形する。その後 Fig. 1(c)に示すように、粒子の移動につれて界面は引き延ばされるが、ついには Fig. 1(d)に示すように、引き延ばされた界面が分裂する。界面が分裂した後は Fig. 1(e)に示すように、気液界面はもとの平面形状に戻る。このように粒子表面の接触角条件を通じて、粒子運動が気液界面運動に影響を及ぼすことが確かめられた。

一方、気液界面運動は粒子に働く毛管力を通じて粒子運動に影響を及ぼす。このため次に、粒子が界面を通過する際に界面に垂直な方向に粒子に働く縦毛管力を計算する。Fig. 2に示すように、静止した球形粒子の水平大円に三相接触線がほぼ一致するとき、様々な接触角 $\alpha$ に対する上向き縦毛管力を示したグラフがFig. 3である。このとき縦毛管力の解析解はEq. (9)で表される。

$$F_v = \pi \sigma d \cos \alpha \quad (9)$$

ただし $\sigma$ は表面張力である。グラフに示すように、接触角の広い範囲にわたって、粒子に働く縦毛管力の計算値は解析解とたいへん良く一致している。

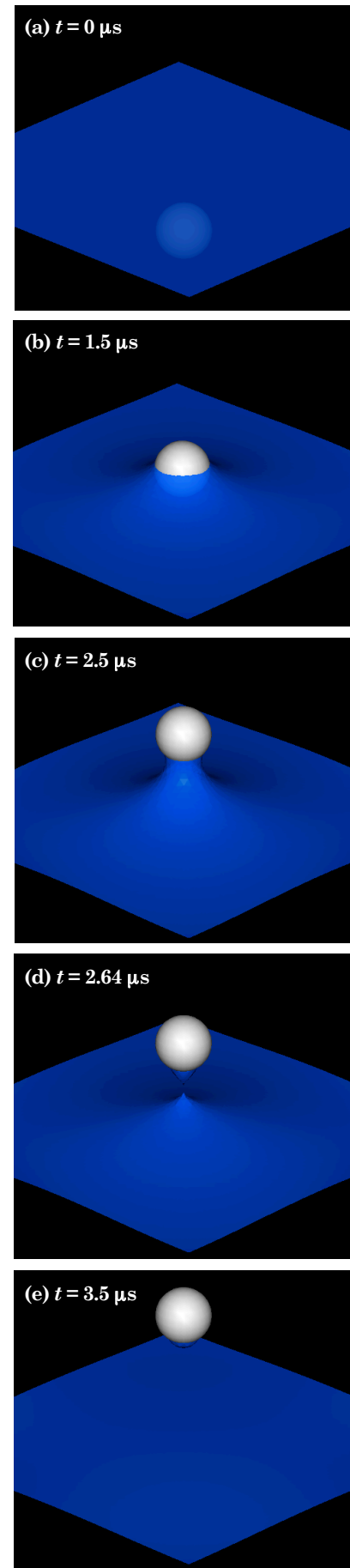


Fig. 1 Free surface deformation caused by a penetrating sphere.

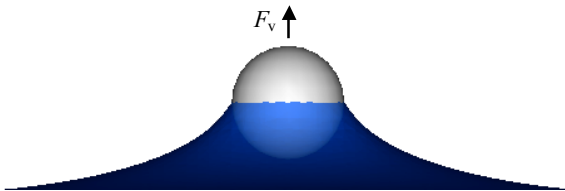


Fig. 2 Free surface deformation caused by a protruded sphere.

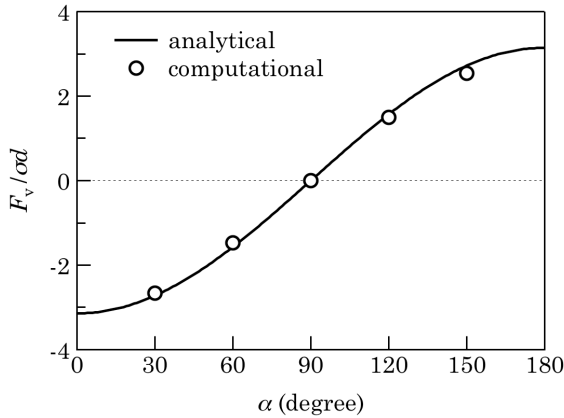


Fig. 3 Vertical capillary force exerted on a protruded sphere.

粒子表面の接触角条件によって粒子まわりの気液界面が変形するため、複数の粒子が存在する場合には変形した気液界面が重なり合い、各粒子まわりの気液界面形状が非対称となる。この非対称性によって同種粒子の場合には横毛管引力が働き、界面上で粒子の自己集合現象が発生する。Fig. 4 に示すように、静止した球形粒子の水平大円に接触角  $\alpha = 60^\circ$  の三相接触線が一致するとき、粒子中心間距離  $L$  に対する横毛管引力の大きさを示したグラフが Fig. 5 である。ここで  $d/2 \ll L$  のとき、横毛管引力の近似解析解は Eq. (10) で与えられる<sup>(12)</sup>。

$$F_1 = 0.5\pi\sigma d^2 \cos^2 \alpha / L \quad (10)$$

グラフに示すように、 $L$  が小さい場合を除いて、粒子に働く横毛管力の計算値は解析解とよく一致している。 $L$  が小さい場合の不一致は近似解析解が正確でなくなるためと考えられる。

#### 4. まとめ

前章で示したように、自由表面埋め込みモデルを用いた計算法により、気液界面の粒子に働く毛管力が正確に計算できることが確認された。したがって毛管力を含む粒子の運動方程式を解くことによって、粒子運動、流体運動および界面運動の三連成シミュレーションが正確に実現できると考えられる。ここではそのシミュレーション結果を示していないが、講演当日に界面上の微粒子の毛管力による自己集合シミュレーションを紹介する予定である。

なお、本研究は (財) 総合研究奨励会が運営するメソシミュレーション・コンソーシアム 2011 の研究開発の一部として行われている。コンソーシアムの活動内容についてはホームページ (<http://nanotech.t.u-tokyo.ac.jp/>) を参照されたい。

#### 参考文献

(1) Fujita, M. and Yamaguchi, Y. "Simulation Model of Concentrated Colloidal Nanoparticulate Flows," *Physical Review E*, 77 (2008), 026706.

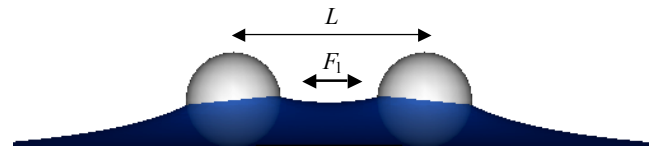


Fig. 4 Free surface deformation caused by two protruded spheres.

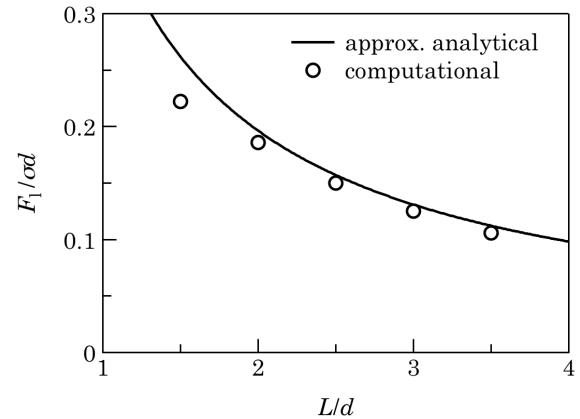


Fig. 5 Lateral capillary force exerted between two protruded spheres.

(2) Kajishima, T., Takiguchi, S., Hamasaki, H. and Miyake, Y., : "Turbulence Structure of Particle-Laden Flow in a Vertical Plane Channel Due to Vortex Shedding", *JSME Int. J. Ser. B*, 44 (2001), pp. 526-535.

(3) Brackbill, J. U., Kothe, D. B. and Zemach, C., "A Continuum Method for Modeling Surface Tension," *Journal of Computational Physics*, 100, (1992), pp. 335-354.

(4) Landau, L. D. and Lifshitz, E. M., "Fluid Mechanics," Pergamon Press, London, (1959).

(5) Chang Y. C., Hou, T. Y., Merriman, B. and Osher, S., "A Level Set Formulation of Eulerian Interface Capturing Methods for Incompressible Fluid Flows," *Journal of Computational Physics*, 124 (1996), pp. 449-464.

(6) Tsuji, Y., Tanaka, T. and Ishida, T., "Lagrangian numerical simulation of plug flow of cohesionless particles in a horizontal pipe," *Powder Technology*, 71 (1992), pp. 239-250.

(7) Israelachvili, J. N., "Intermolecular and Surface Forces," Academic Press, London, (1992).

(8) Fujita, M., Koike, O. and Yamaguchi, Y., "Computation of Capillary Interactions among Many Particles at Free Surface," *Physical Review Letters*, (submitted).

(9) Jiang, G. -S. and Peng, D., "Weighted ENO Schemes for Hamilton Jacobi Equations," *SIAM Journal on Scientific Computing*, 21 (2000), pp. 2126-2143.

(10) Shu, C. -W. and Osher, S., "Efficient Implementation of Essentially Non-oscillatory Shock-Capturing Schemes," *Journal of Computational Physics*, 77 (1988), pp. 439-471.

(11) Amsden, A. A. and Harlow, F. H., "The SMAC Method: A Numerical Technique for Calculating Incompressible Fluid Flows," Los Alamos Scientific Laboratory Report LA-4370 (1970).

(12) Kralchevsky, P. A. and Nagayama, K., "Particles at Fluid Interfaces and Membranes," Elsevier, Amsterdam, (2001).