

Hele-Shaw セル中を浮上する気泡のダイナミクスの実験

三重大学・工学部・分子素材工学科 川口正美 (Masami Kawaguchi)
Department of Chemistry for Materials, Faculty of Engineering,
Mie University

1. はじめに

一つの泡である気泡が液中を浮力でもって上昇する様子は、かのレオナルド・ダ・ビンチも興味を持ったと伝えられる。気泡の不規則かつ複雑な挙動のために、気泡の振る舞いは、十分に理解されていない。ところが、気泡を利用した食品、薬品、化粧品、工業製品などは、我々の生活に欠かせないものになっている。また、気泡を利用して液体の表面張力測定、気体の密度測定、素粒子の秘跡の可視化解析(泡箱)などの科学技術が基礎科学の発展に大いに役立っていることも確かである。¹⁾

ここでは、Hele-Shaw(ヘレ-ショウ)セル²⁾と呼ばれる擬似二次元空間を水、アルコール水溶液、あるいは高分子水溶液で満たし、その中を浮力で上昇する気泡のサイズを変化させて実験を行い、気泡の軌跡、速度、形状変化などのダイナミクスを、泡-液体界面の表面張力や高分子溶液の場合には界面への高分子の吸着などの界面化学的性質に関連付けて検討する。

2. 実験

実験装置(図1)は、光源、ヘレ-ショウセル、気泡を送り込むシリンジポンプ、高感度 CCD カメラ、パソコンからなっている。セルとカメラは1本の光学レールの上に置いてあり、光源には、周波数 40kHz の高周波ランプを用いた。セルは、厚さ 1.5cm、幅 5cm、高さ 25cm のアクリル製の板 2 枚を張り合わせたもので、セルギャップは 0.1cm である。気泡のサイズを制御し、気泡をセル中に送り込むためにシリンジポンプは、セルの底面部にある 0.1cm の孔と連結している。

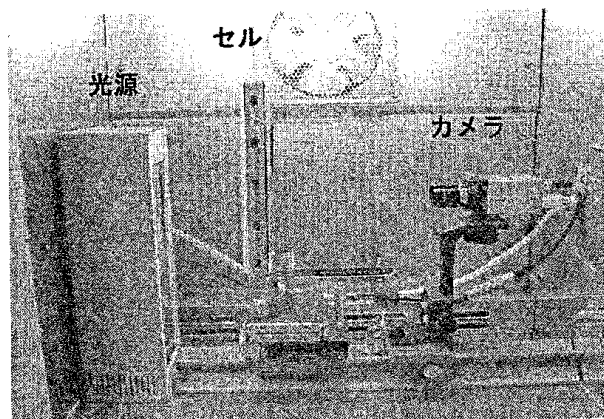


図1. 実験装置の写真

セルに入れる液体として、脱イオン水、脱イオン水にイソプロピルアルコール (IPA)、水溶液高分子である分子量 1.01×10^6 のヒドロキシプロピルメチルセルロース (HPMC) を、それぞれ溶解した IPA 濃度が 1.0、3.0、5.0 vol% の IPA 水溶液および 0.0001 から 0.01g/100 mL の HPMC 水溶液を用いた。以後、脱イオン水および IPA 水溶液は単純液体、HPMC 水溶液は複雑液体とそれぞれ呼ぶこととする。IPA および HPMC 水溶液共、界面活性を示し、それら水溶液の表面張力は低下する。特に、HPMC 水溶液の表面張力は時間変化し、³⁾ 動的表面張力として観察された。これら表面張力は、吊板法にて測定した。それぞれの液体の粘度は、毛細管粘度計あるいは回転レオメータにて評価した。

セル中の気泡が浮上する様子はカメラを介してパソコンに取り込み、画像解析ソフトのコモスにて解析した。画像処理により、気泡の面積 S 、気泡の周囲長 L 、および気泡の重心座標 (気泡の浮上する方向を y 軸とし、その垂直方向を x 軸として、重心位置をそれぞれの軸に対して Y 、 X とする) を求めた。気泡のサイズとして、その面積 S を用い、その値は 0.02 から 2.45 cm^2 である。

3. 結果と考察

3-1. 気泡の軌跡とその形状変化に対するサイズの影響

気泡が浮上する際の気泡サイズ S の変化を追跡したところ、 S の値は気泡の浮上に伴い減少するが、しばらくして定常値に達することが分かった。 S の値が定常値に達する距離は、セルの底面部から 10cm 程度のところであった。ここでは、断らない限り、 S の値が定常値にある気泡についてのみ述べる。

3-1-1. 単純液体

IPA 水溶液の表面張力には時間依存性は観察されず、表面張力は IPA 濃度の増加と共に 65.1、56.0、および 48.0 mN/m へとの変化した。図 2-a および 2-b にそれぞれ、脱イオン水と 5.0 vol% の IPA 水溶液中を浮上する気泡の様子を 1/30 秒間隔で示す。 S の値は左から

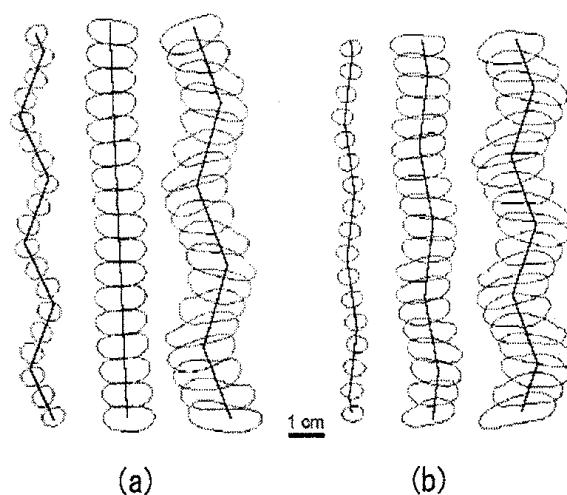


図 2. (a) 脱イオン水および (b) 5.0 vol% IPA 水溶液中を上昇する気泡の様子。

右へと順に 0.09、0.3、および 0.6 cm² である。サイズの増加と共に、気泡の形状はより扁平楕円体になり、その外形の歪むことが分かる。また、図中の実線で示したのは気泡の重心の移動であり、S の増加に伴い気泡が振動上昇から直線上昇を経て再び振動上昇に変化していることが分かる。

そこで、気泡の重心座標を上昇時間に対してプロットして、その軌跡を定量的に評価することにした。気泡の重心座標 Y は時間と共にほぼ直線的に増加するので、その勾配から気泡の浮上する速度 U を求めた。一方、直線上昇する以外の気泡の重心の座標 X は気泡のサイズに関係なく振動上昇するので、(後述するように、複雑液体の場合には減衰振動上昇する軌跡が観察されたので、その場合にも適用できるように) 次式を用いてフィティングした。

$$X(t) = Ae^{(-\lambda t)} \sin(2\pi ft + \alpha) \quad (1)$$

ここで、t は時間、A は振幅、 λ は減衰定数、f は周波数、および α は初期位相である。

気泡の外形が歪むのを評価するために、気泡の周囲長 L を上昇時間に対してプロットしたところ、最初の振動上昇と直線上昇する気泡の L は、時間に無関係にほぼ一定であった。一方、再び振動上昇する気泡の L は、重心 X の振動数のほぼ 2 倍で振動し、L の値が最小になるのは気泡の長軸が x 軸と平行の位置にあり、L の最大値を示すのは、気泡の長軸と x 軸の成す角が最大になった場合である。従って、L の振動数が重心 X の振動数の 2 倍になることは納得がいく。これは、気泡の形状の不安定性が生じたことを示唆しており、不安定性の起こる気泡のサイズは IPA 濃度が高い程低くなった。

図 3 に脱イオン水と IPA 水溶液中を浮上する気泡の形状が液体の表面張力と気泡サイズ S の値の相図として纏めてある。図中の破線は泡の形状が変化する S の値を結んだものである。また、表面張力の減少に伴い、泡の形状変化が S の値の小さいところで起こることが分かる。さらに、S の値が大きくなると気泡はクラゲに似た形となり、その軌跡は殆ど振動せずに浮上し、浮上速度が大きくなることが分かった。

気泡の上昇軌跡が振動する場合には、気泡の後方、すなわち後流に渦ができることが良く知られている。ここで、渦の存在を確認するために S = 0.13cm² と 0.50cm² の気泡の後流の可視化を試みた結果、それぞれ図 4-a と図 4-b に示すようなカルマン渦が観察された。⁴⁾

3-1-2. 複雑液体

HPMC の吸着による動的表面張力が、HPMC 濃度が 0.001g/100mL 以下の HPMC 水溶液で観察された。一方、HPMC 濃度が 0.005g/100mL 以上になると、HPMC 水溶液は動的表面張力を示さなかった。図 5 に S = 0.15cm² の気泡が種々の濃度の HPMC 水溶液中を浮上する様子を 1/30 秒間隔で示す。HPMC 濃度の増加に伴い、気泡の上昇軌跡は振動上昇、減衰振動上昇、直線上昇する運動へと変化し、気泡の形状は扁平楕円体から円に近い形に近づき、さらに浮上速度は遅くなることが分かる。S の値を変化させても、HPMC 濃度の増加に伴う気泡の浮上の様子はほとんど変わらないことが明らかになった。HPMC 濃度の増加に伴い、気泡の形状が円に近づき、浮上する軌跡が減衰振動上昇から直線上昇へと変化

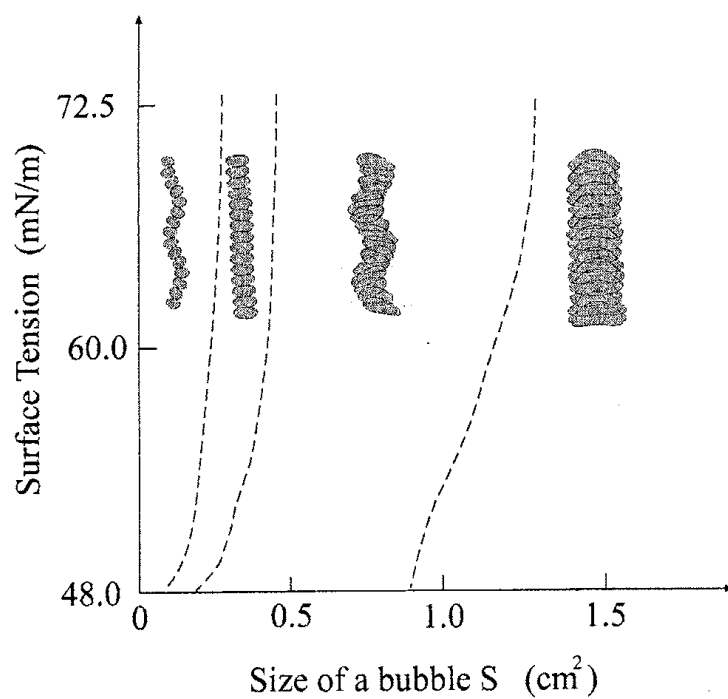


図3. 単純液体中を上昇する気泡の形状の相図。

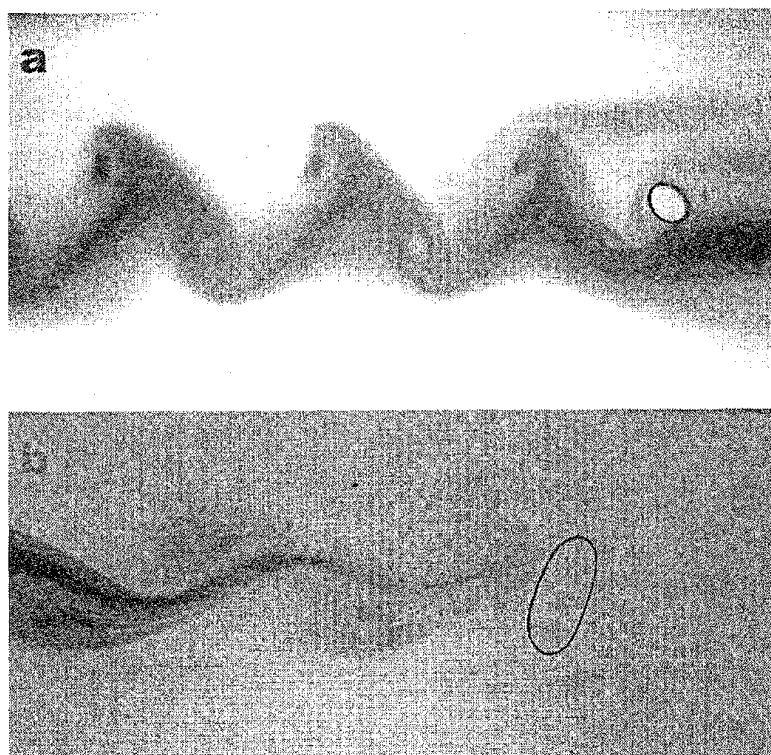


図4. 脱イオン水中を(a) $S = 0.13 \text{ cm}^2$ および (b) $S = 0.50 \text{ cm}^2$ の気泡が上昇する様子の可視化。図中の実線の長さは1cm。

するのは、気泡表面に吸着して形成された HPMC 吸着層の示す粘弾性によって、気泡が固くなり変形し難くなるためであると考えられる。このことは、HPMC 水溶液中を浮上する気泡の重心の X 座標の軌跡を式 1 でフィティングして、得られた減衰係数 λ と S をプロットした図 6 からも支持される。つまり、HPMC 濃度の増加に伴い λ の値が増加していることは、HPMC の吸着が早くなり、振動が素早く減衰することに対応している。また、0.005g/100mL 以上の HPMC 濃度で、動的表面張力が観察されなかったことは、HPMC の泡表面の吸着速度が速く、均一な吸着層が比較的短い時間で形成されていることを示唆している。

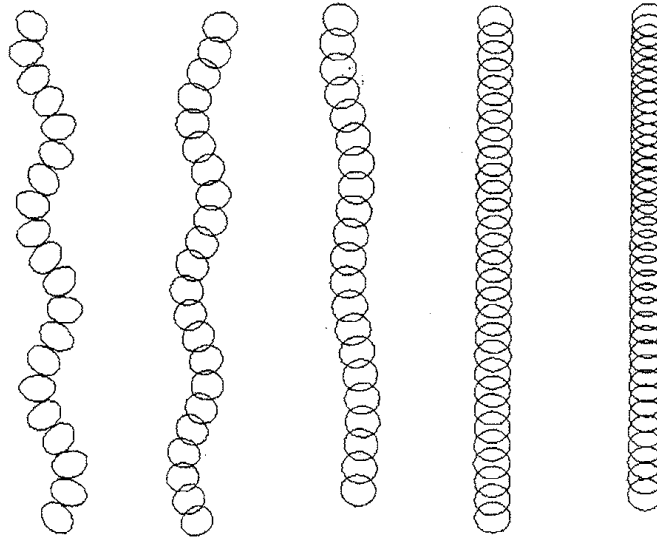


図 5. $S = 0.15\text{cm}^2$ の気泡が種々の濃度の HPMC 水溶液中を浮上する様子。HPMC 濃度は左から右へ 0.0001、0.0005、0.001、0.005、および 0.01g/100mL である。

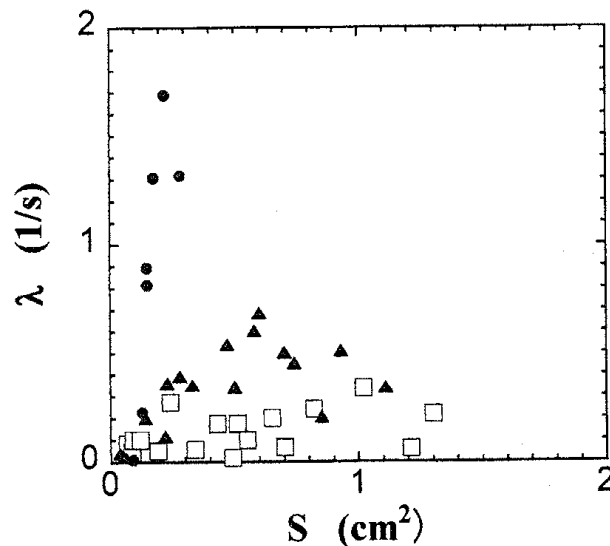


図 6. 減衰係数 λ と S の関係。HPMC 濃度は 0.0001 (□)、0.0005 (▲)、および 0.001g/100mL (●) である。

HPMC 濃度が 0.0001 と 0.0005g/100mL の HPMC 水溶液の場合、S の増加に伴い浮上する軌跡は減衰振動上昇、直線上昇を経て再び減衰振動上昇へと変化した。そこで、再び減衰振動上昇する気泡の周囲長 L と上昇時間のプロットをしたところ、上述した単純液体と同様、L は振動し、その振動数は重心座標 X のそののほぼ 2 倍であることが分かった。

一方、S の増加に伴い浮上する軌跡が減衰振動上昇から直線上昇へと変化する 0.001g/100mL の HPMC 水溶液や、気泡サイズに関係なく浮上する軌跡が直線上昇のみである 0.005g/100mL 以上の HPMC 水溶液においては、L に振動は観察されなかった。

3-2. 気泡の浮上速度とストルーハル数に対するサイズの影響

3-2-1. 気泡の浮上速度

気泡の重心座標 Y と時間のプロットの勾配から得られる浮上速度 U と S の関係を単純液体の場合を図 7-a に、複雑液体の場合を図 7-b にそれぞれ示す。単純液体での U の値は、S の増加に伴い減少し、IPA 濃度が高いほど小さくなるが分かる。IPA 濃度が高くなれば粘度が増加するので、U の値の減少することは納得がいく。また、ヘレ-ショウセル中の流れの速度は式 2 のダルシー則に従うことが知られている。

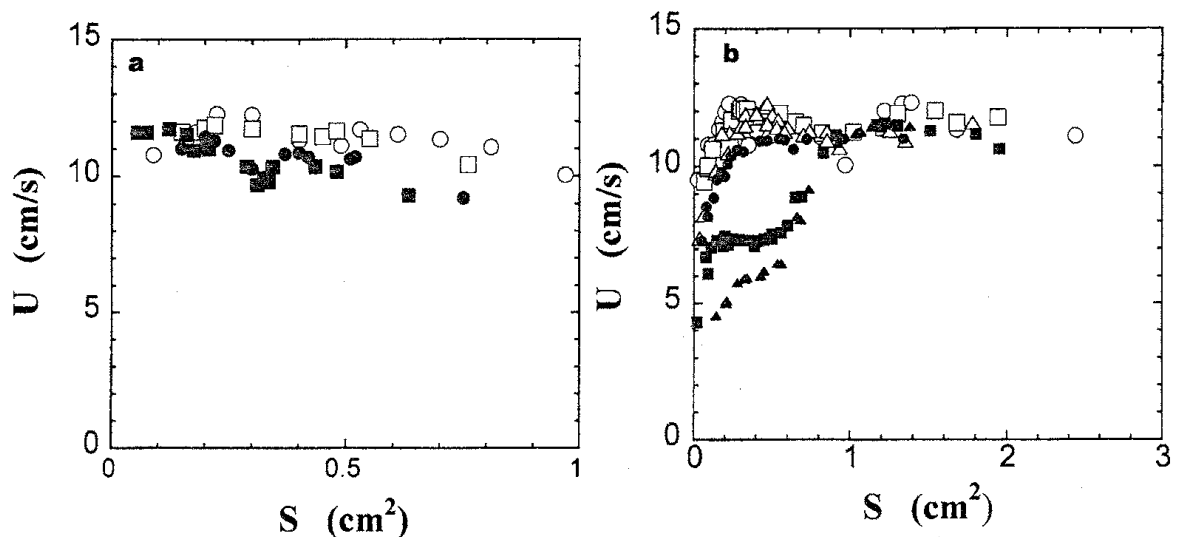


図 7. 浮上速度 U と S の関係。(a) 単純液体: IPA 濃度は 0.0 (○)、1.0 (□)、3.0 (●)、5.0 vol% (■)。(b) 複雑液体: HPMC 濃度は 0.0 (○)、0.0001 (□)、0.0005 (△)、0.001 (●)、0.005 (■)、0.01g/100mL。

$$U = \frac{b^2}{12\eta} \nabla p \quad (2)$$

ここで、b はセルギャップ、 η は液体の粘度、 ∇p は圧力勾配である。気泡の浮上における圧力勾配は浮力 = $\Delta \rho g$ ($\Delta \rho$ は液体と空気の密度差、g は重力加速度) に相当する。式 2 から求められる速度は気泡のサイズに無関係となり、水の場合の U の値は 91.5cm/s で、実験結果に比べて一桁近く大きいことが分かる。式 2 を修正した式は提出されているが、良い一致は得られていない。⁵⁻⁷⁾

複雑液体の U の値は、 S の値が 1.0cm^3 以下の場合、HPMC 濃度が高くなるほど S の依存性が顕著に表れるが、 S の値が 1.0cm^3 以上の場合、 U の値は多少のばらつきは有るが、HPMC 濃度と S の値に対してほぼ無関係となり、 11cm/s である。

3-2-2. ストラーハル数

周波数 f は、流れの非定常性の度合いを表すストラーハル数 (df/U) に変換できる。⁷⁻⁹⁾ ここで、 d は流体中を流れる物体のサイズである。通常の流れの場合、ストラーハル数は 0.2 以下であることが知られている。本研究における気泡のサイズ d を S の等価円直径と見なせば、 $d = (4S/\pi)^{1/2}$ から計算できる。図 8-a と 8-b には単純液体および複雑液体のストラーハル数と S のプロットをそれぞれ示す。単純液体の場合には S の値が 0.3cm^2 を越えると、ストラーハル数は 0.2 より大きくなり、 S の値と共に増加することが分かる。また、これを境に気泡の浮上する軌跡が直線上昇から気泡の形状を変化しながら再び振動上昇へと変化し、周囲長 L が振動し始めることから、ストラーハル数が 0.2 を越える S の値は、浮上する気泡の上昇軌跡の運動様式が変化し、気泡の上昇が不安定化する閾値であると考えられる。 S の閾値は IPA 濃度の増加と共に低くなることが分かった。

一方、複雑液体の場合では、ストラーハル数が 0.2 を超える S の値で、気泡の上昇軌跡が直線上昇から減衰振動上昇へと変化し、上述したように気泡の周囲長 L も振動するので、この S の値が気泡の上昇の不安定性を生む閾値である。 S の閾値は HPMC 濃度の増加と共に大きくなる。しかしながら、 S の閾値が単純液体の場合、表面張力の減少に伴い低くなるが、複雑液体では逆になった。これは、HPMC 濃度の増加と共に表面張力は低下するが、気泡表面には粘弾性を示す HPMC の吸着層が形成され、気泡の変形がし難くなるためである。

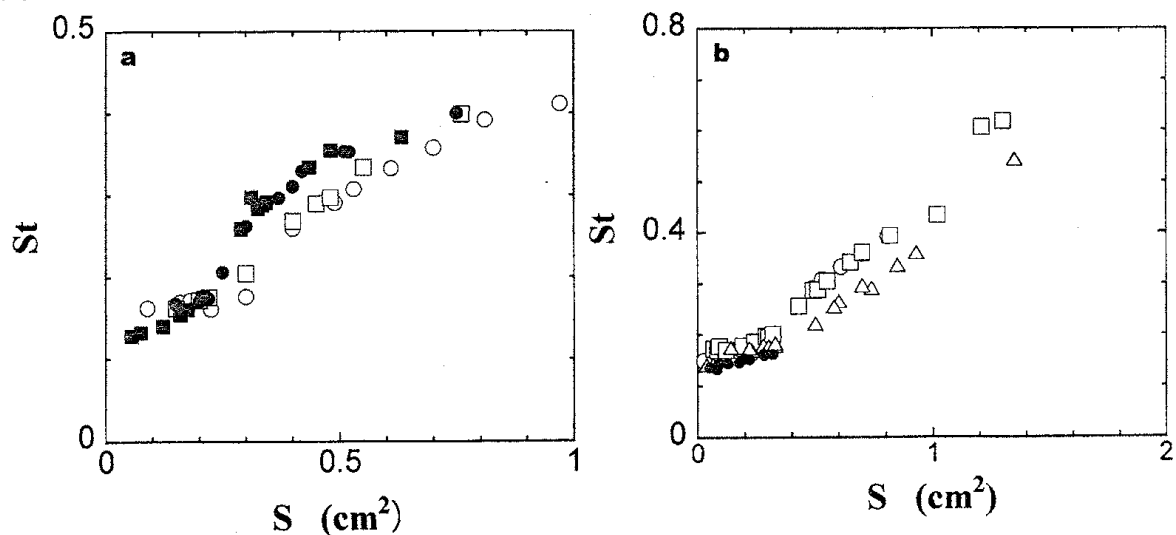


図 8. 単純液体と複雑液体のストラーハル数 St と S の関係。図中の符号は図 7 と同じ。

4. おわりに

擬似二次元空間と考えられるヘレ-ショウセルに満たした単純液体と複雑液体の中を浮力で上昇する気泡のダイナミクスについて、気泡のサイズを変化させて検討した。単純液体並

びに複雑液体の表面張力は、それぞれ溶解したアルコールまたは高分子の吸着によって減少するが、気泡の上昇する様子は異なった。気泡サイズの増加に伴い、単純液体での気泡の上昇軌跡は振動上昇から直線上昇を経て再び振動上昇に変化し、一方、複雑液体の気泡の上昇軌跡は、高分子濃度の低い場合、減衰振動上昇、直線上昇を経て再び減衰振動上昇へと変化し、高分子濃度が高くなると、直線上昇のみであった。しかしながら、単純液体と複雑液体がそれぞれ、再び振動上昇あるいは減衰振動上昇をし始める気泡サイズでのストローハル数は、非定常な流れを起こす目安となる値の 0.2 を超えることが分かった。また、これを境に液体の種類に寄らず、気泡の周囲長が振動することも明らかになった。従って、ストローハル数が 0.2 を超える S の値が、気泡の上昇を不安定化する閾値であることが分かった。最近になって、ここで得られた実験事実を裏付ける理論の構築や計算機シミュレーションによる再現する挑戦が、宮崎大学の矢崎と東京理科大学の牛島によって為されていることは、著者にとって大きな喜びである。また、擬似二次元空間の流れを理解することは、工業製品の成型加工の際に生ずる泡の除去や多孔質材料の製造時の泡の制御において重要であるので、この分野での更なる発展を期待したい。

5. 参考文献

- 1) 大澤敏彦、泡のおもしろ科学、裳華房(1996).
- 2) H. J. S. Hele-Shaw, *Nature*, 58, 34 (1898).
- 3) 仁賀助宏, 三重大学 工学部 修士論文 (2001), 郷伸彰, 三重大学 工学部 修士論文 (2003).
- 4) 三宅一生, 三重大学 工学部 卒業論文 (2003).
- 5) S. Tanveer, *Phys. Fluids* **29**, 3537 (1986).
- 5) S. R. K. Maruvada and C-W. Park, *Phys. Fluids* **8**, 3229 (1996).
- 6) E. Kelley and M. Wu, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1265 (1997).
- 7) S. H. Strogatz, "Nonlinear Dynamics and Chaos", Abbison-Wesley Pub. Co. Reading, MA, (1994).
- 8) D. J. Tritton, "Physical Fluid Dynamics", Oxford Univ. Press, New York, (1988).
- 9) K. M. DeBisschop, M. J. Miksis, and D. Eckmann, *Phys. Fluids* **14**, 93 (2002).