

氏 名	つか だ たか お 塚 田 隆 夫
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	昭和 59 年 3 月 27 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 1 項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 化学工学専攻
学 位 論 文 題 目	界面変形を伴う輸送現象の研究
指 導 教 官	東北大学教授 藤縄 勝彦
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 藤縄 勝彦 東北大学教授 只木 植力 東北大学教授 斎藤正三郎 東北大学教授 鈴木 睦

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 序 論

化学工業装置内では、気相、液相および固相が界面を介して接触しており、熱や物質がこの界面を通して移動する場合が多い。また、接触する 2 相が流体である場合、2 相界面の形状は単純ではなく、周囲流体が運動している場合は特に複雑となる。従って、実装置を設計する際、この 2 相界面の形状、界面近傍の流動状態およびこれらに影響を及ぼす諸因子を正確に把握する必要がある。

従来から、2 流体界面変形現象に関して多くの実験的研究が行なわれ、これに伴い理論的研究も試みられてきた。しかし、以下に示す理由のために一般的解析は困難であり、従って限られた領域に対する理論解析が行なわれているにすぎなかった。

- (1) 2 流体界面形状が複雑であるため、界面における境界条件の設定が困難である。
- (2) 周囲流体の流動様式に加えて界面形状も未知数である。

最近、この種の問題の解決法として有限要素法が開発され、傾斜板上の滴形状あるいはコーティングにおける液膜の挙動などに関する理論解析が行なわれるようになった。しかし、その殆どは気液系に関するものであり、自由運動中の液滴の変形などの液々系における諸現象あるいは固体面での滴生成現象に及ぼす固液間のぬれ特性の影響などの複雑な現象については殆ど研究が行なわれていないのが現状である。

そこで、本研究ではこれらの未解決な界面変形を伴う輸送現象を実験的に解明するとともに、有

限要素法を用いて現象を理論的に解明することを目的とした。

第2章 既往の研究

界面変形を伴う諸現象に関して、既往の研究を第3～6章の各項目に応じて実験、理論両面から概説し、本研究の立場を明確にした。

第3章 固体板上における静的な滴生成現象に関する研究

本章では、固体板（水平あるいは傾斜板）上の小孔から液滴が空気中に静的に生成する時の液滴生成サイクルおよびこれに及ぼすぬれの影響を実験的、理論的に検討した。

即ち、液体として水、グリセリン、ケロシン、流動パラフィン、また固体としてテフロン、アクリル樹脂、銅、ガラスを用い、液滴の成長過程および離脱または滑落条件に及ぼす物性、面傾斜角の影響を実験的に検討した。

理論的解析においては、液滴の総ポテンシャルエネルギーを表面エネルギーと重力エネルギーの和として評価し、液滴平衡形状はポテンシャルエネルギーを極値ならしめる解として求めた。また液滴形状の安定性についてはポテンシャルエネルギーの第2変分の符号を調べることにより論じた。なお、以上の数値解析には有限要素法を採用した。

本章では、実験ならびに計算結果を固液間のぬれの状態に応じて次の3つの場合に分類した。Case 1, 3相の境界で定義される接触線が固体板上に固定されている場合。Case 2, 液滴の成長につれて接触線が移動する場合。Case 3, 液体が固体を完全にぬらす場合（但し、水平板の場合に限る）。

Case 1: 液滴生成過程はポテンシャルエネルギー理論により十分説明できた。また、固体板に懸垂可能な最大滴体積 V_{max} と B_0 数との実験的關係は安定性の解析結果と良く一致し、残留滴体積 V_{min} についても以下の実験式から推測できることが判明した。

$$Y = C_1 + C_2 X + C_3 X^2$$

$$Y = \log(V_{min}), X = \log(-B_0)$$

$$C_1 = -0.66 - 7.21 \times 10^{-3} \beta, C_2 = -0.43,$$

$$C_3 = -0.26$$

Case 2: 水平板と傾斜板では滴生成過程が若干異なる。水平板上の滴生成過程は接触角が系の前進接触角を保ちつつ拡張すると仮定したポテンシャルエネルギー理論によって十分説明でき、 V_{max} も安定性の解析から推測できることが判明した。一方、固体板が傾斜すると滴が固体板上を滑り落ちる場合も生ずる。従って、滴生成過程は前進接触角

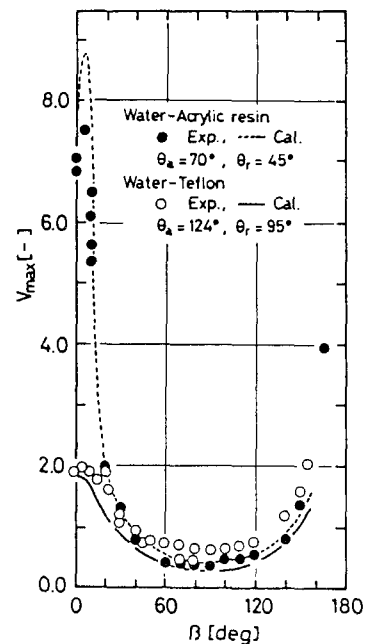


Fig.1 Effect of β on V_{max} in Case 2

θ_a と後退接触角 θ_r の双方に影響され、Fig.1のように V_{max} はある傾斜角 β において最大値をとることがわかった。また、この場合の滴生成過程は接触線を円形と仮定することによりほぼシミュレートすることができた。

Case 3 : 液滴生成過程は系に依らず相似であることがわかった。

第4章 自由運動中の単一気泡および液滴の界面変形に関する研究

本章では、無限静止液中を運動する単一気泡および液滴の変形と運動速度を有限要素法を用いて数値解析し、既往の実験結果と比較することにより解析法の妥当性を検討した。

即ち、気泡あるいは液滴とその周囲流体に関する連続式、運動方程式をガラキーン有限要素法を用いて数値解析し界面近傍の流れ場を求める。また、界面形状は界面における法線方向応力バランスを示す式から得る。この両操作を繰り返すことにより気泡および液滴の形状および周囲の流動状態を求めた。なお、数値解析においては三角形要素を用い、速度については双2次、圧力については双1次の試行関数を、また2流体界面形状は Hermite の3次試行関数を用いて離散化した。

気泡の場合、有限要素法による数値解析結果は只木らの変形度あるいは抵抗係数に関する実験結果を良く説明できた。

また、液滴の場合も Wellek らの界面変形度に関する実験結果と本計算結果は良く一致した。

第5章 液々界面を介しての物質移動に関する研究

本章では、液々界面を通して物質移動が起こる場合、特にこれに伴い自然対流が発生する場合の界面近傍の流動ならびに物質移動機構を解明するために水に可溶性有機液滴から周囲を流れる水への物質移動速度を実験的に求め、有限要素法を用いて現象の理論的解析を試みた。

即ち、実験では2本の円筒にはさまれた液滴の周囲に連続相として水を流し、この時の溶解速度を求めた。ここでは、有機液体としてアニリン、フルフラールを用いた。

Fig.2 は、アニリン滴が水に溶解する時の連続相流速と物質移動速度との関係を Re 数と Sh 数の関係で整理した図である。ところで、アニリン水溶液は濃度の増加とともに密度が増加するから下向き自然対流が生ずる。図から物質移動速度は、この自然対流と強制対流の相互干渉の結果として連続相流れ方向に著しく影響され、特に upward flow (連続相を下から上に流した場合) では、ある Re 数で Sh 数が最小値をとることが

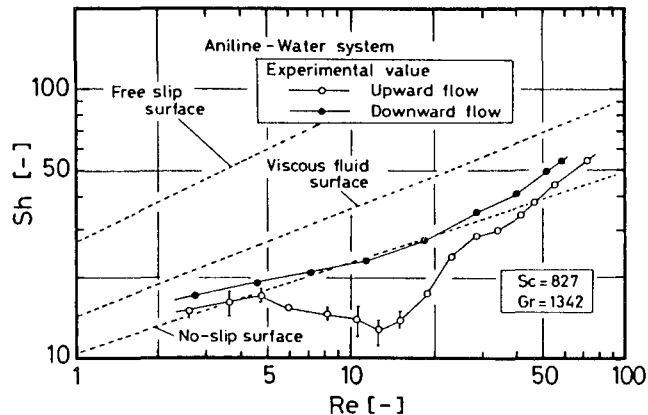


Fig.2 Sh vs. Re in aniline-water system

わかった。

さらに、本章では連続相、分散相に関する連続式、運動方程式、拡散方程式をガラキン有限要素法を用いて数値解析し、現象の理論的シミュレートを試みた。ここで、要素には8節点四角形要素を用い、速度、濃度は2次、圧力は1次の試行関数により近似した。

本章では、計算時間の都合上一部のパラメータを変更して解析を行った。計算結果は定性的ではあるがFig. 2の実験結果の傾向を理論的に説明することができた。

(Fig. 3)

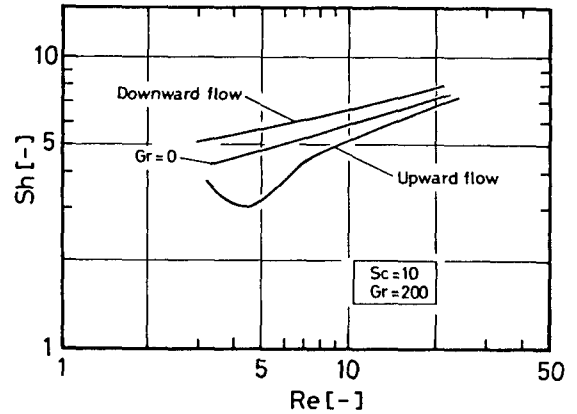


Fig.3 Calculated relations between Sh and Re

第6章 懸垂液滴の振動現象に関する研究

本章では、自由運動中の気泡、液滴の振動現象あるいは固体板上での非定常滴生成現象を理論的に解明するための試行的研究として固体面から懸垂する液滴の振動現象を有限要素法を用いて非定常解析を行なった。

即ち、空気中の懸垂滴に関してその初期値を球形状とした時、液滴が平衡形状に達するまでに如何なる運動を行なうかを理論的にシミュレートした。数値解法にはガラキン有限要素法を適用し、要素には4節点四角形要素を用いた。また、現象が非定常であるため流れおよび液滴形状が時間とともに変化するのでLagrange-Euler混合法を用いて液滴表面の変形に従い要素を移動させた。

解析結果から本解析法により懸垂液滴の振動挙動を十分シミュレートでき、これに及ぼす諸因子の影響を明確にできることがわかった。即ち、液滴の振動数は滴付着半径(滴体積)の減少とともに、表面張力の増加とともに増加することがわかった。

また、この解析法は運動中の気泡、液滴の振動現象あるいは非定常滴生成現象に関する理論的解明の手がかりを与えるものと思われる。

第7章 総括

本章では、本研究をまとめ、今後のこの方面の研究指針について考察した。

以上、本研究によりこれまで理論的解析が困難とされていた固体面でのぬれを伴う3次元滴生成現象、運動中の液滴や気泡の界面変形現象あるいは液々界面を通しての物質移動現象等が有限要素法を用いた解析法によりかなり広範囲まで解明できることが判明した。

しかし、高Sc数、Re数の系では薄い境界層領域を要素分割するために解析において生ずるマトリックス方程式が巨大化し、現在の大型計算機能力では限界があり現時点では解析が困難であった。今後マトリックス方程式の解法の改良あるいは計算機能力の向上が待たれる。

審査結果の要旨

化学工業装置内では二流体界面を通して熱や物質が移動する 경우가多く、装置の合理的設計のためには、二流体界面の形状、界面近傍の流動状態や、これらに及ぼす諸因子の影響を十分に把握しておく必要がある。しかし、二流体界面の変形に関する理論的取り扱いが難しく、従来はごく限られた場合についてしか行われていなかった。本論文は、このような背景のもとに今まで未解決であった界面変形を伴う輸送現象を有限要素法を用いて理論的に解析し、さらにその妥当性を実験的に検討することを目的としたもので、全編7章よりなる。

第1章は序論であり本研究の意義と目的を、また第2章は本論文に関係する既往の研究をそれぞれ述べたものである。

第3章は固体板上の小孔から空気中に液滴が静的に生成するときの液滴生成サイクルおよびこれに及ぼすぬれの影響を実験的、理論的に検討したものである。すなわち滴の平衡形状を系のポテンシャルエネルギーを最小にする変分問題として有限要素法を用いて解析し、種々の固液系における実験結果との比較からこの解析の妥当性を確かめている。

第4章は無限媒体中を運動する液滴あるいは気泡の変形と運動速度を有限要素法により数値解析し、既往の実験結果と比較した結果を述べたもので、この結果から本解析法が変形を伴う自由運動中の液滴、気泡の流動特性の解析に適していることを示している。

第5章は液液界面を介して自然対流を伴う物質移動が起こる場合の界面近傍の流動状態ならびに物質移動機構を実験的、理論的に解明したものである。すなわち、自然対流は物質移動特性に大きな影響を与え、特に自然対流と強制対流の方向が逆である場合にそれが著しいことを実験的に明らかにした。また、現象を有限要素法を用いて数値解析することにより実験結果を説明している。

第6章は自由運動中の液滴の振動現象あるいは非定常滴生成現象の理論的解明の試行として、懸垂する液滴が空気中で振動する現象に及ぼす滴の大きさおよび物性の影響を有限要素法を用いて理論的に明らかにしている。

第7章は総括である。

以上要するに、本論文は従来未解決であった界面変形を伴う輸送現象について理論的解明の道を開いたものであり、二流体界面を含む実装置の設計上多くの基礎資料を与えるもので、化学工業ならびに化学工学に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。