

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 29 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14202

研究課題名(和文)メゾスケール空間内移動速度論創成のための挑戦的研究

研究課題名(英文) A Challenging Study for Development of Theory of Transport Phenomena in Mesoscale Space

研究代表者

岡野 泰則 (Yasunori, Okano)

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：90204007

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：分子動力学法(MD)とマクロな連続体力学による数値流体力学(CFD)によるシミュレーションを行い、Marangoni対流に対する空間スケールの影響を調査した。どちらの結果においても表面張力の大きい流体へ向かってMarangoni対流が発生し、気液界面に沿って溶質が広がった。一方で、同時刻での結果をMDとCFDで比較すると、CFDの方が液面変形は遅くなり、対流に比べ拡散の影響が大きくなった。こんもようにMDとCFDでは定性的には合うものの、定量的には一致しなかった。そこで、これらの手法間の差を埋め合わせる数値モデルとしてS-CLSVOF法に揺動、Langevin方程式を加えたモデルを作成した。

研究成果の概要(英文)：Effect of space scale on Marangoni convection was numerically investigated by using both of Molecular Dynamics (MD) and Computational Fluid Dynamics (CFD). Both the CFD and MD simulations show that four vortices were developed after deformation of the liquid film. Solutes were transferred along the liquid-gas interfaces by solutal Marangoni convection. The results of the CFD simulations qualitatively agree with that of the MD simulations. However, there are quantitative differences in terms of the maximum velocity in the liquid film and deformation rate and width of the liquid film. Numerical model by using S-CLSVOF method and considering Langevin equation was developed to expand CFD to nano-scale calculation.

研究分野：化学工学

キーワード：移動現象 数値解析 メゾスケール

1. 研究開始当初の背景

(1) マイクロマシンの開発によるマイクロ・ナノスケールにおける流動現象や、各種観測技術の発展に伴う神経系シナプス間やミトコンドリアといった細胞空間における物質移動現象に注目が集まるとともに、10~100nm オーダーのメゾ空間内における移動現象の特異性が示唆されてきている。しかしながら空間が極微小であるため *in vivo* における解明は困難である。加えてこの微小空間スケールにおいては、従来の連続体を前提とした Navier-Stokes 式では解析が不適であるとともに、従来の分子動力学計算では計算負荷が大きすぎ現実的ではない。

(2) これに対し、申請代表者は Landau-Lifshitz Navier-Stokes (LLNS) 式を用いることで極微小空間内における分子揺らぎを考慮した解析に成功し、空間が極小化するに伴う流体中の熱揺動の効果を評価する新しい無次元数の提案を行った。また分担者の清水は、生体組織を単に吸引変形させるだけで血中投与した化合物(核酸など)の細胞内移動が促進されることを見出した。これは組織変形により細胞間隔が数 10 ナノオーダーで広がるためではないかとの仮説を立てたが確信を得るには至っていなかった。

(3) 現在微小空間内の移動現象の解析には燃料電池内酸素拡散を目指した格子ボルツマン法を用いた解析などがあるが、実験との直接比較に成功した例は無く、本研究は 10~100nm オーダーにおける移動現象を実際の実験を対象にした数値解析を行う世界で初めての研究であった。

2. 研究の目的

10~100nm オーダーのメゾスケール空間内移動現象を解析しうる数値シミュレーターを開発し、現在未知な部分が多いナノ・マイクロスケールでの移動現象の特異性を実験と数値解析の両面により明らかにすることである。そのために申請者が現在開発を開始した (1) Landau-Lifshitz Navier-Stokes 式に基づく数値シミュレーターを完成し、その結果を (2) 分子動力学計算と比較、検討を行い検証する。これにより 10~100nm オーダーのメゾスケール空間内における拡散係数、粘度などの物性値の特異性や通常の流体内における流動性、物質移動との相違点を明らかにする。特に極微小空間におけるマランゴニ効果などの界面の特異性の有無の解明に力を入れる。

3. 研究の方法

1) Landau-Lifshitz Navier-Stokes (LLNS) 式による数値解析、2) 高速分子動力学計算、を行い、それぞれの結果を随時比較検討することにより、従来の手法では解析不能であった極微小空間領域における新しい移動現象

論構築を目指す。両計算結果の比較検討により LLNS 式の高精度化と、分子動力学計算による微小空間における界面張力の算出と LLNS 式への導入を行う。

4. 研究成果

近年は、デバイスの小型化が進み、燃料電池内部などの微小領域での流れ制御が求められている。小型燃料電池のように空間スケールが数百 nm 程度の微小領域では実験的な観測が難しく、数値解析を用いた現象の理解が有用である。しかし、従来の数値流体力学 (CFD) や分子動力学 (MD) は、それぞれ、連続体近似の破綻、莫大な計算負荷の観点から、このスケールでは適用できない。そこで本研究では、この空間スケールにおける流動現象解明の第一段階として、MD と CFD の結果の比較を行った。微小スケールにおいて顕著に現れる濃度差マランゴニ対流について着目し、両者の流れ場を比較し、その差を生み出した一因とされる微小スケールでの界面幅について解析を行った。

水・メタノール・アルゴンを用いた気液界面を有する三相系に対して MD および CFD シミュレーションを行った。計算領域は $12 \times 3 \times 15 \text{ nm}^3$ の直方体とし、メタノールを両端に、水を中央に配置した厚さ 5 nm の液膜で解析を行った。計算の初期条件を Fig. 1 に示す。境界条件は全て周期境界であるとした。

MD 計算では温度制御法として Nose-Hoover 法、境界条件としては三次元周期的境界条件を適用した。運動方程式の積分方法には速度 Verlet 法を使用し、時間刻みは 2 fs と設定した。CFD 計算では Navier-Stokes 式、連続式、拡散方程式を解いた。混相流の解析手法として S-CLSVOF 法を用いた。また、MD 計算後の処理として計算領域を $0.2 \times 3 \times 0.25 \text{ nm}^3$ のセルに分割しそれぞれのセル内で数密度を計算した。計算条件を揃えるために、マクロスケールで用いられる無次元数を用い、それぞれ Reynolds 数 ($Re = \sigma_c d \Delta C / \mu \nu = 0.3105$)、Schmidt 数 ($Sc = \nu D = 218.3$)、Weber 数 ($We = \sigma_c^2 d \Delta C^2 / \mu \nu \sigma = 0.2129$) である。ここで、 σ_c は表面張力の濃度勾配係数、 d は液膜厚み、 ΔC は初期濃度差、 μ は粘度、 ν は動粘度、 D は拡散定数、 σ_0 は代表表面張力である。これらの無次元数には MD から求めた拡散定数とマクロな物性値を使用した。

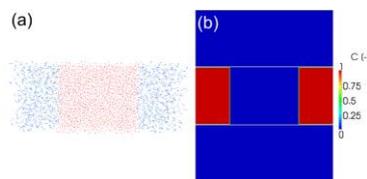


Fig. 1 Initial conditions: for (a) MD and (b) CFD.

MD、CFD の両シミュレーションにおいて液膜の変形が起こり、その後液膜内での渦の発達が確認できた (Fig. 1)。しかし、30 ps 時の流れを比較すると MD シミュレーションでは渦が発達したが、CFD シミュレーションではまだ液膜変形の段階にあることがわかる (Fig. 2)。

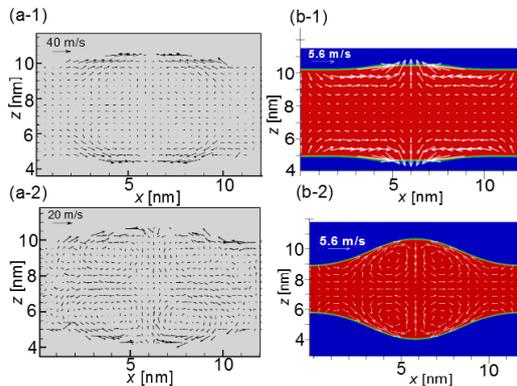


Fig. 2 Velocity distribution in liquid phase calculated by (a) MD and (b) CFD at (1) 30 ps and (2) 180 ps.

つまり、MD での液膜変形速度は CFD のものより速いことがわかる。また、液相内最大速度に関しても MD では 40.1 m/s、CFD では 5.6 m/s と 7.2 倍もの差が生じている。これらの差の原因としては、CFD では表現できない微小スケールでのみ見られる離散性、熱揺動、界面幅等が考えられる。Fig. 3 (a) は解析領域の x - z 断面図であり、それぞれの x 座標における z 方向数密度分布を Fig. 3 (b) に示す。水-メタノール界面付近 ($x = 3 - 4$ nm) において数密度分布が上に凸な放物線状になっており、界面幅が他の領域と比較して大きくなっていることが分かった (Fig. 3 (b))。CFD では界面幅が線として表現されるため、MD におけるこのような不均一な界面幅が CFD と MD の流れ場の違いに影響していると考えられる。

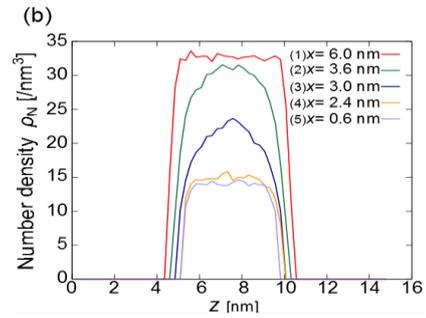
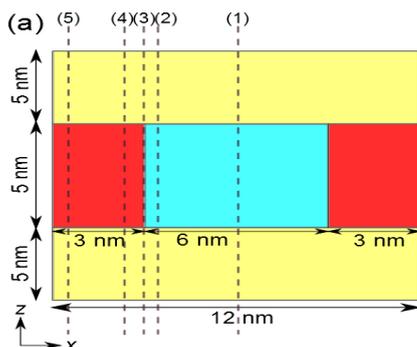


Fig. 3 Concentration and velocity vectors: (a) by MD at $t [-] = 1.44$, (b) CFD at $t [-] = 1.44$ and (c) CFD at $t [-] = 4.16$.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

① T. Yamamoto, Y. Okano and S. Dost, "Development of a numerical model for Marangoni convection in the micro-scale environment", J. Therm. Sci. Tech., 査読有 11 巻, JTST0036 (2016) Paper No. 16-00378.

DOI: 10.1299/jtst.2016jtst0036

② T. Yamamoto, Y. Okano and S. Dost, "Validation of the S-CLSVOF method with density-scaled balanced continuum surface force model in multiphase systems with thermocapillary flows", Int. J. Numer. Meth. Fluids, 83 巻, 223-244 (2017).

DOI: 10.1002/fld.4267

[学会発表] (計 6 件)

① T. Yamamoto and Y. Okano, "Numerical investigation of Marangoni convection in a micro-scale environment", The First Pacific Rim Thermal Engineering Conference (PRTEC), PRTEC-14769, March 13-17 (2016), Waikoloa Beach Marriott Resort & Spa, Hawaii's Big Island, USA.

② 山本卓也、岡野泰則、微小スケールにおける熱物質輸送を伴う気液混相流解析手法の開発、第 53 回日本伝熱シンポジウム、2016. 5. 24-26 (大阪、グランキューブ大阪)。

③ 山本卓也、今井耀介、岡野泰則、佐藤竜馬、重田育照、Marangoni 効果に対する空間スケールの影響に関する数値解析、化学工学会第 48 回秋季大会、2016. 9. 6-8 (徳島、徳島大学)。

④ Y. Imai, T. Yamamoto, Y. Okano, R. Sato and Y. Shigeta, "Molecular dynamics simulation of atomic-scale solutal

Marangoni convection", 23rd Regional Symposium on Chemical Engineering (RSCE2016), Oct. 27-28 (2016), Vung Tau City, Vietnam.

⑤ 今井耀介、山本卓也、岡野泰則、佐藤竜馬、重田直照、ナノスケール濃度差マランゴニ対流の特異性についての数値解析、化学工学会第 82 年会、2017. 3. 6-8 (東京、芝浦工大) .

⑥ Y. Imai, T. Yamamoto, Y. Okano, R. Sato and Y. Shigeta, "Numerical investigation of solutal Marangoni convection in a nano scale and comparison with that in a macro scale", 6th International Symposium on Micro and Nano Technology (ISMNT), March 19-22 (2017), Fukuoka, Japan.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡野 泰則 (OKANO, Yasunori)
大阪大学・大学院基礎工学研究科・教授
研究者番号：90204007

(2) 研究分担者

重田 育照 (SHIGETA, Yasuteru)
筑波大学・数理物質科学研究科・教授
研究者番号：80376483

清水 一憲 (SHIMIZU, Kazunori)
名古屋大学・工学系研究科・准教授
研究者番号：70402500