

令和元年6月7日現在

機関番号：13903

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K18014

研究課題名(和文)リアルタイム観察とDPD法による、凍結を伴うマイクロ流路内水流動メカニズムの解明

研究課題名(英文) Experimental observation and DPD simulation of water flows in a microchannel under freezing conditions

研究代表者

山田 格 (Yamada, Toru)

名古屋工業大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：40772067

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、実験において、水の近赤外吸光特性を利用した近赤外(NIR)可視化観察実験装置を作製し、本実験装置を用いたマイクロ流路内における凍結を伴う水流動現象のNIR可視化観察実験を実施した。また、数値計算において、同現象の数値計算の信頼性向上を目的とした、散逸粒子動力学(DPD)法の計算誤差の信頼性を、時間進行法の観点から検討した。

本研究の成果として、実験では、水の近赤外吸光特性を利用することで水の相状態および温度の同時計測が非接触で可能なことを示した。数値計算では、時間進行法に高次のシンプレクティック保存型時間進行法を適応することで、DPDの計算誤差の信頼性が向上することを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水の凍結は我々に身近な工業製品(例えば航空機、熱交換器)の性能を著しく劣化させる要因となる。近年では、マイクロメートルオーダーの構造を有する壁面や多孔質では凍結が抑制されることが確認されているが、本現象に関する基礎研究は少ない。したがって、本現象の解明は学術的・社会的に大きな意義がある。本現象の解明には、凍結の進行とそれに伴う温度の変化がどのように関係するかを詳細に調査する必要があり、本研究で提案した温度・相状態同時非接触計測法は本現象のより詳細な理解に貢献できると考えられる。また、DPD法の信頼性が向上したことで、実験と数値計算の比較による本現象のさらなる理解が期待できる。

研究成果の概要(英文)：In this study, a Near-infrared imaging experiment system utilizing the NIR absorbance characteristics of water was established followed by investigating the water flows in a microchannel under freezing condition using the system. In addition, in the part of numerical simulation, the improvement of the numerical reliability of dissipative particle dynamics (DPD) was investigated in terms of modifying its time integration method in order to attain higher reliability of the simulation of microscopic freezing phenomenon using DPD.

It was found in the experimental part that the temperature measurement and state identification of water can be simultaneously conducted by using the NIR absorbance characteristics of water. Also, in the numerical part, the DPD reliability was improved by means of high order symplectic time integration schemes.

研究分野：流体工学 伝熱工学

キーワード：凍結 散逸粒子動力学法

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

水の凍結は温度の変化によって水が氷に変化する、我々に身近な物理現象のひとつである。しかしながら、水の凍結は航空機、熱交換器などの工業製品の性能を著しく劣化させる要因になっており、その制御は工学・工業上重要である。近年では、微細表面加工技術で加工された、ナノ・マイクロ構造を有する固体壁面は、過冷却を促進する性質を有すること、また、固体高分子形燃料電池（PEMFC）内で発生する水がその内部（マイクロメートルスケールの多孔質内）で不凍現象を生ずるなど、マイクロスケールにおける水の凍結現象の特異性が確認されている。しかしながら、上述のようなマイクロスケール構造を有することで発生する特異な凍結現象の詳細は十分に解明されていない。

研究代表者はこれまで、散逸粒子動力学（DPD）法を用いたナノ・マイクロメートルオーダーの微小スケールにおける流体の流動および伝熱挙動のモデリングに関する研究を行い、ナノ流体、固体薄膜、燃料電池などにおける輸送現象のモデリングを実施し、またそれらを用いて微小スケールにおける伝熱現象の調査を行ってきた。その中で、研究代表者は凍結を伴う水の輸送現象の DPD モデルを提案し、さらに同モデルを用いて平行平板内の同現象における表面ぬれ性の影響を調査した。しかしながら、これらの先行研究では実験による裏付けが伴っておらず、本現象を総合的に評価することが難しかった。そこで、マイクロ流路内における凍結を伴う水流動現象について、実験および数値計算による同現象についての基礎研究を実施するという着想を得た。

本研究は研究開始当初、マイクロ流路内における水の凍結を伴う水流動現象の観察実験装置の製作および同現象の観察実験を実施し、同流路内で生じる凍結現象がマクロスケールで生ずる凍結現象とどのような差異があるかを確認すること、および、研究代表者の提案した凍結モデルを用いて実験条件を再現した DPD 計算を実施し実験結果と比較することを実験および数値計算それぞれにおける目的と想定していた。しかしながら、実験においては、当初予定していた光学顕微鏡を用いた実験装置では同現象の観察が困難であることが予備実験でわかり、また数値計算では、計算結果の信頼性を確保するため、計算誤差についてより詳細な考察が必要となった。

### 2. 研究目的

上述の背景から、実験においては「水の液相および固相を判別でき、かつ撮影領域内の非接触温度測定が可能な実験装置を製作し、本装置を用いたマイクロ流路における水凍結可視化実験を実施すること」を、数値計算においては「DPD 法の計算誤差の信頼性をに調査し、より誤差を低減できる計算方法を提案すること」を本研究の目的とした。

### 3. 研究の方法

上記の目的を達成するため、まず実験では、水の近赤外線（NIR）吸光特性における温度依存性および相状態依存性の 2 つの依存性に着目し、以下の研究を遂行した。

- 水の近赤外吸光特性を利用した NIR 可視化観察実験装置の製作。
- 本実験装置を用いたマイクロ流路内における凍結を伴う水流動現象の NIR 可視化観察実験の実施。

また数値計算では、DPD 法ではこれまであまりみられなかった時間進行法による計算誤差の信頼性向上に着目し、以下の研究を遂行した。

- DPD 法における誤差の信頼性の評価およびその向上の検討。
- 上述の検討をもとにした、改良型時間進行法の提案。

#### (1) 実験方法

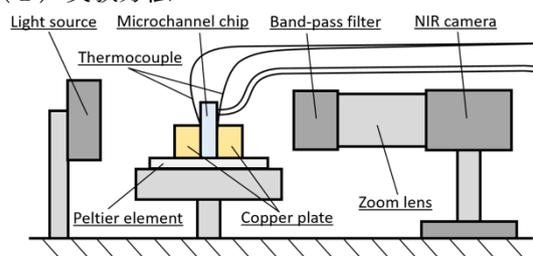


図1 実験装置の概略図

本研究では、上述の NIR 可視化観察実験を実現するため、図1（概略図）に示す実験装置を製作した。実験装置は、近赤外 LED 光源（ピーク波長 1450 nm）、ペルチェ式冷却器、バンドパスフィルタ（中心波長 1450 nm、バンド幅 25 nm）、ズームレンズ（縦：横＝256：324 pix、1 pix＝9.31 μm）、および近赤外カメラで構成されており、これらが同一光軸上に配置され、ペルチェ冷却器上に設置したマイクロ流路チップ（流

路深さ 0.5 mm）内の純水を近赤外カメラで撮影できる構造となっている。マイクロ流路は 2 枚の銅板で挟み込むことによりペルチェ冷却器との熱伝導性を向上させた。また、同流路チップと銅板の間に熱電対を挿入した。実験中は、実験装置全体はアクリルケースで覆われており、ケース中の湿度を除湿剤によって低下させ、霜の発生を抑制した。

## (2) 数値計算手法

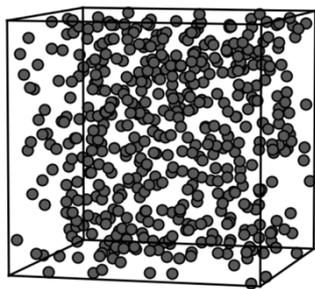


図2 計算領域概略図

DPD 法では、粒子はその cut-off 半径( $r_c$ )の範囲内にある他の粒子と干渉し合い、その運動量を交換する。粒子  $i$  に着目した運動方程式は以下で表される。

$$d \begin{bmatrix} \mathbf{q}_i \\ \mathbf{p}_i \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{p}_i/m_i \\ \mathbf{F}_i^C + \mathbf{F}_i^D + \mathbf{F}_i^R \end{bmatrix} dt$$

ここで、 $\mathbf{q}_i$ 、 $m_i$ 、 $\mathbf{p}_i$ は粒子  $i$  の位置、質量、および運動量 ( $\mathbf{p}_i = m_i \mathbf{v}_i$ 、 $\mathbf{v}_i$ : 粒子  $i$  の速度)を表す。また、 $\mathbf{F}_i^C$ は他の粒子(粒子  $j$ )間に作用するポテンシャルによる保存力、 $\mathbf{F}_i^D$ は運動量交換による散逸力、 $\mathbf{F}_i^R$ は粒子の分布に基づいた熱運動を引き起こさせるランダム力を表現する。

本研究で設定した計算領域は、一辺の長さを  $L=10$  の3次元立方体である(図2)。初期設定として領域内総粒子数

$N=4000$  を与え、粒子の数密度を DPD 法で一般的に用いられる 4 とした。また、全方向に対し境界条件を周期境界条件とした。粒子の初期速度は、領域温度の平均が  $k_B T = 1.0$  となるよう確率的に与えた。

本研究はまず、DPD 法の従来手法である Shardlow 法について、それらの計算誤差の信頼性(以下、信頼性)を確認した後、本研究の成果である修正(Modified) Shardlow (M-Shardlow) 法および Partitioned Runge-Kutta (PRK) 法の信頼性と比較した。信頼性は、以下に示す状態温度の理論値 ( $k_B T = 1.0$ ) との誤差により確認した。

$$\varepsilon_{(k_B T)_{Config.}} = \frac{|k_B T - (k_B T)_{Config.}|}{k_B T}$$

## 4. 研究成果

### (1) 実験結果

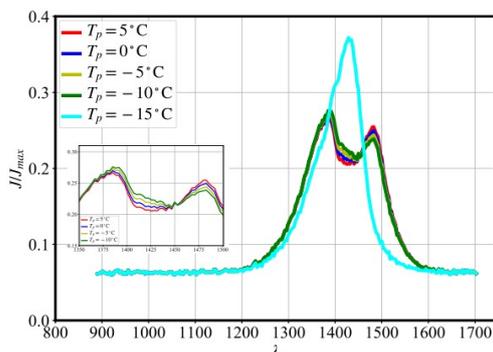


図3 異なる温度における水の透過光の輝度値と波長の関係。

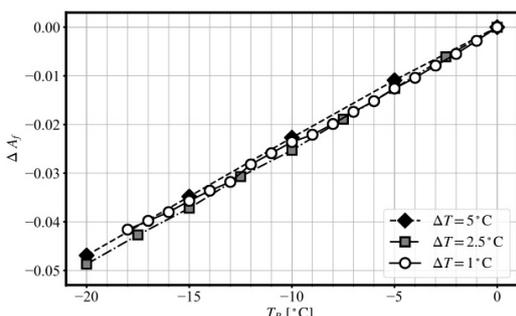


図4 吸光度差と  $T_p$  の関係。

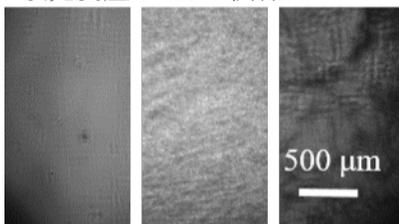


図5 NIR カメラで撮影した液相(水, 左), Slush(中央), および固相(氷, 右)。

同図より、液相、Slush および固相でそれぞれ異なる画像が撮影された。以上のことは、水の近赤外線吸収特性を利用した可視化観察をすることで、先述

凍結環境下における水の NIR 吸光度・相状態依存性：まず、マイクロ流路内における水の NIR 吸光度の温度および相状態依存性を調査するため、実験装置(図1参照)のズームレンズおよび NIR カメラを分光器に替え、スペクトル計測を実施した。本実験では、ペルチェ冷却器設定温度( $T_p$ )が  $-15^\circ\text{C}$  で凍結が開始されたことが目視で確認できた。図3に、異なる  $T_p$  におけるスペクトル計測結果を示す(同図、 $J$ : 輝度値、 $J_{max}$ : 輝度値の最大値、 $\lambda$ : 光の波長)。同図より、特に  $1400\text{ nm}$  付近では、温度の低下に伴い輝度値が上昇していることがみてとれる。この傾向は、先行研究(Kakuta, et al., *Int. J. Heat Mass Trans.*, 2009)と定性的に一致している。また、凍結後は凍結前に比べ輝度値が大きく上昇したことが確認できる。これは水の近赤外線吸光度の相状態依存性によるものである。

凍結環境下における水の NIR 吸光度と温度の関係：次に、本実験系における水の透過光輝度値と温度の関係を調査した。図4に、以下に示す吸光度差( $\Delta A_f$ )と  $T_p$  との関係を示す。

$$\Delta A_f = -\log(J/J_{0^\circ\text{C}})$$

ここで  $J_{0^\circ\text{C}}$  は  $T_p = 0^\circ\text{C}$  における透過光輝度値である。同図より、 $\Delta A_f$  は温度に対し線形に反応していることがわかる。よってこの性質を利用することで、過冷却水の非接触温度測定が可能である。

マイクロ流路内における水の凍結現象の観察：本実験における  $-15^\circ\text{C}$  以下で凍結したときの、近赤外カメラで撮影した流路内の水の凍結の様子を図5に示す。凍結は、まず液相(同図左)から瞬間的に温度上昇とともに Slush と呼ばれる氷懸濁液が発生(同図中央)し、その後再冷却の後凍結が完了(同図右)した。同図より、液相、Slush および固相でそれぞれ異なる画像が撮影された。以上のことは、水の近赤外線吸収特性を利用した可視化観察をすることで、先述

の3つの状態が識別でき、それと同時に温度分布を非接触で行える可能性があることを示唆している。また、シリンジポンプによりマイクロ流路内に送液し、水の流動がある状態で同様の凍結実験を実施したが、水が静止している状態での結果と大きな違いはみられなかった。

(2) 計算結果

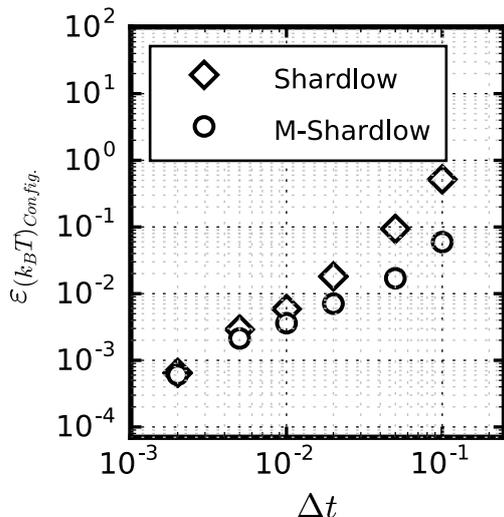


図6 Shardlow法およびM-Shardlow法を用いた場合の計算誤差の比較。

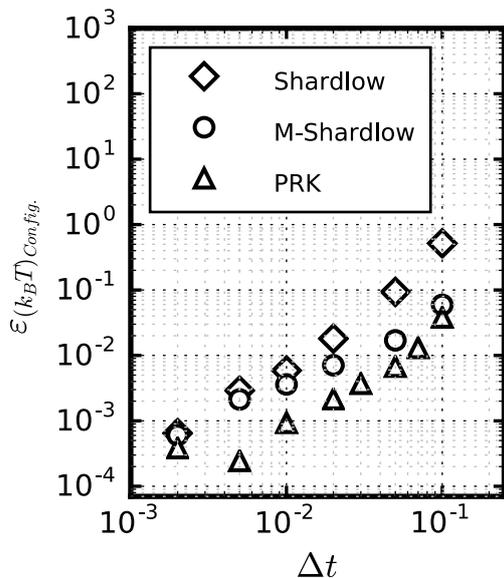


図7 Shardlow法、M-Shardlow法、およびPRK法を用いた場合の計算誤差の比較。

性はM-Shardlow法のそれよりも高くなった。また、Shardlow法と比較すると、 $0.02 \leq \Delta t \leq 0.05$ でおよそ100%の誤差の改善が見られ、従来のDPD計算よりも、より信頼性の高い計算結果が得られることがわかった。さらに、PRK法はスプリッティング法を仕様していないため、1ステップあたりの力の計算回数をShardlow法およびM-Shardlow法よりも少ない。したがって、PRK法は従来の時間進行法と比較して計算精度を向上させるだけでなく、計算負荷も軽減できる。よって今後DPD法にPRK法を適用することで高効率なDPD法の計算に繋がることが期待できる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

1. Toru Yamada, Shugo Itoh, Yohei Morinishi, and Shinji Tamano, Improving computational accuracy in dissipative particle dynamics via a high order symplectic method, The Journal of Chemical Physics, Vol.148, p.224101 (2018). (査読有り)

**Shardlow法の修正**: Shardlow法(T. Shardlow, *SIAM J. Sci. Comput.*, 2003)は、保存力および粒子位置の時間進行とそれ以外の進行とを分離し、それぞれの時間進行の精度を向上する手法をとる。前者の時間進行は、分子動力学(MD)のハミルトニアン系におけるそれに対応しており、Shardlow法ではMDでよく用いられるvelocity-Verlet法を用いている。本研究では、本部分の精度をシンプレクティック保存型高次時間進行法に置き換えることにより、DPD計算における誤差の信頼性の向上を試みた(修正Shardlow(M-Shardlow)法)。

図6に、Shardlow法およびM-Shardlow法を用いて計算したときの状態温度の誤差( $\epsilon_{(k_B T)_{config.}}$ )と時間刻み幅( $\Delta t$ )の関係を示す。Shardlow法とM-Shardlow法の結果を比較すると、 $\Delta t \geq 0.02$ の領域において、M-Shardlow法による計算の誤差が大きく低減した。また、計算は $\Delta t > 0.12$ で発散したが、これは従来の手法と同様の結果となった。 $\Delta t \leq 0.01$ では両手法の誤差に変化はなく、本結果より、DPDでよく使用される時間刻みが比較的大きな領域においては、誤差の信頼性に対しては保存力の影響が大きいことがわかった。

**PRK法の導入**: DPD法の時間進行法では、Shardlow法のようにDPD粒子に働く力をスプリッティング法により分離した先行研究はあるが、Runge-Kutta(RK)法系統の時間進行法を用いた計算は実施されていない。また、先述のように、DPD法でよく使用される時間刻み幅域では、シンプレクティック保存型高次時間進行法を適用しことから系内のシンプレクティック性を満足することが計算精度向上に繋がると考え、シンプレクティック保存の条件を満たしたRunge-Kutta法である、PRK法をDPDに適用し、その信頼性を調査した。

図7に、Shardlow法、M-Shardlow法、およびPRK法を用いて計算したときの状態温度の誤差と時間刻み幅の関係を示す。同図から明らかのように、PRK法による計算の誤差の信頼性はM-Shardlow法のそれよりも高くなった。

〔学会発表〕（計 12 件）

1. Toru Yamada, Kimihiko Kawamura, Shinji Tamano, and Yohei Morinishi, Experimental study on the visualization of water freezing in a microchannel for different cooling speed using near infrared absorption imaging technique, *Micro Nano Flows* 2018, Atlanta, GA, USA (2018).
2. Toru Yamada, Shugo Itoh, Shinji Tamano and Yohei Morinishi, Effect of total particle number in the size of solution domain on system temperature error for Shardlow-type time integration schemes in dissipative particle dynamics, 27<sup>th</sup> International Conference on Discrete Simulation of Fluid Dynamics, Worcester, MA, USA (2018).
3. 伊藤秀悟, 山田格, 玉野真司, 森西洋平, 分離型 RK 法を用いた時間進行法の導入による DPD 方の計算精度向上の検討, 第 16 回日本流体力学会中部支部講演会, 静岡大学 浜松キャンパス (2018).
4. 河村君彦, 山田格, 玉野真司, 森西洋平, 近赤外カメラを用いたマイクロ流路内における水の過冷却解除現象の可視化に関する研究, 第 34 回近赤外フォーラム, 北海道大学 学術交流会館 (2018).
5. 山田格, 河村君彦, 玉野真司, 森西洋平, マイクロチャネル中での氷点下の水の近赤外吸光度御衣依存性に関する研究, 第 46 回可視化情報シンポジウム, 明治大学駿河台キャンパス リバティタワー (2018).
6. 山田格, 河村君彦, 玉野真司, 森西洋平, 近赤外カメラを用いたマイクロ流路内における水の凍結現象の観察, 第 55 回日本伝熱シンポジウム, 札幌コンベンションセンター (2018).
7. Toru Yamada, Shinji Tamano and Yohei Morinishi, Improving computational accuracy by applying higher order symplectic scheme in dissipative particle dynamics, 26<sup>th</sup> International Conference on Discrete Simulation of Fluid Dynamics, Erlangen, Germany (2017).
8. 山田格, 伊藤秀悟, 小川新登, 玉野真司, 森西洋平, 時間進行法の改良による散逸粒子動力学法の計算精度向上の検討, 第 31 回数値流体力学シンポジウム, 京都工芸繊維大学 (2017).
9. Toru Yamada, Shinji Tamano and Yohei Morinishi, Effect of time marching method on data accuracy in dissipative particle dynamics, International Symposium on Micro-Nano Science and Technology 2016, *Tokyo, Japan* (2016).
10. Toru Yamada, Shinji Tamano and Yohei Morinishi, Simulations of microscale water flows in a squared liquid cavity under freezing conditions using energy conserving dissipative particle dynamics, 5<sup>th</sup> Micro and Nano Flows Conference, Milan, Italy (2016).
11. 山田格. 散逸粒子動力学 (DPD) 法を用いたマイクロ伝熱現象への応用およびその精度向上に関する研究, 化学工学会熱工学部会・同 関西支部 CFD 研究会, 大阪大学基礎工学部豊中キャンパス (2016). (招待講演)
12. 山田 格, Erik Johansson, 玉野真司, Bengt Sundén, 森西洋平, DPD 法を用いた凍結を伴うマイクロ正方キャビティ流れに及ぼす壁面温度境界条件の影響に関する研究, 第 53 回日本伝熱シンポジウム 大阪府国際会議場 (2016).

〔その他〕

ホームページ

<http://flow-design-lab.web.nitech.ac.jp>

## 6. 研究組織

(1) 研究分担者

なし

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：森西 洋平

ローマ字氏名：Morinishi, Yohei

研究協力者氏名：玉野 真司

ローマ字氏名：Tamano, Shinji

研究協力者氏名：Johansson, Erik

ローマ字氏名：Johansson, Erik

研究協力者氏名：Sunden, Bengt

ローマ字氏名：Sunden, Bengt

研究協力者氏名：河村 君彦

ローマ字氏名：Kawamura, Kimihiko

研究協力者氏名：伊藤 秀悟

ローマ字氏名：Itoh, Shugo

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。