

平成 21 年 5 月 22 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2006～2008

課題番号：18560157

研究課題名 (和文) 非弾性衝突モデルの構築と解離・再結合を伴う希薄気体の輸送係数特性の解明

研究課題名 (英文) Study on Inelastic Molecular Collision Model and Transport Coefficients for the Dissociation and Recombination Process.

研究代表者 松本 裕昭 (MATSUMOTO HIROAKI)

横浜国立大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：10251753

研究成果の概要: 希薄気体流れの有効な解析技法の一つである Direct Simulation Monte Carlo (DSMC) 法のための、二原子分子の非弾性衝突モデルを構築し、窒素気体についてモデルの最適化を行った。回転モードを表現するモデルでは、窒素の輸送係数特性と回転緩和時間を適切に表現できることが確認され、また実験による垂直衝撃波内の構造も良好に再現することが確認された。振動モードを表現するモデルでは、窒素気体の振動緩和時間を適切に表現することが確認された。解離・再結合を表現するモデルでは、非平衡状態から平衡状態への緩和過程ならびに平衡状態における分子と原子の割合を適切に表現することも確認出来た。しかし、解離・再結合が生じている際に、理論的に指摘されている熱伝導係数の特性については、十分再現することができず、モデルの問題点と今後の課題を明らかにした。なお、本研究における非弾性衝突モデルの構築過程で、その基礎となる弾性衝突モデルについて、低温領域における量子散乱効果を適切に再現することを明らかにし、弾性衝突モデルが量子散乱領域にも適用できることを示す事に成功した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006 年度	2,200,000	0	2,200,000
2007 年度	600,000	180,000	780,000
2008 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	360,000	3,760,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：分子流体力学，希薄気体

1. 研究開始当初の背景

機能材料の開発・製造，宇宙工学などの真空環境下や，ミクروسケール技術を用いる分野では，系の代表長さが分子の平均自由行程と同程度のオーダーとなり，流れを連続体とし

て扱うことが困難になることが知られている。この領域の流れは希薄気体流れと呼ばれ，Navier-Stokes 方程式の適用が困難となり，Boltzmann 方程式を基礎とした分子レベルからの解析が必要となることが知られてい

る。現在, Boltzmann 方程式を解析する技法として, 工学的な諸問題への柔軟な対応性と計算精度の見地から, 直接シミュレーション・モンテカルロ (DSMC) 法が最も有力である。DSMC 法において実在気体の挙動を現実的に効率良く解析するためには, 高精度かつ高効率な分子間衝突モデルの開発が重要な課題となっている。分子間衝突モデルが満たすべき重要な性質は, 単原子気体については,

- (1) 平衡状態における詳細釣り合いの原理 (principle of micro reversibility) を満足する,
 - (2) 非平衡状態から平衡状態への遷移過程を再現する,
 - (3) 気体の輸送係数を適切に再現する,
- 等である。二原子・多原子分子気体では, 更に
- (4) 非弾性衝突の緩和時間を再現する,
 - (5) 並進エネルギーと内部エネルギーの授受機構を適切に再現する,
 - (6) 平衡状態におけるエネルギー等分配則を再現する。

等を満たさなければならない。また解離・再結合等の化学変化を表現するためには,

- (7) 反応定数を適切に再現する,
- が加わる。単原子分子では, 衝突機構が単純なために, 上記 (1), (2), (3) を満たす簡易散乱モデルが提案されており, その有効性は十分に検証されている。しかし二原子・多原子分子については, 上記の条件を全て満たすようなモデルが存在していないのが現状である。また, 解離・再結合を十分に表現するモデルも提案されていない。特に解離・再結合が生じている場合, 熱伝導係数は反応が生じていない場合に比べて非常に大きな値になる温度範囲が存在するといった特徴が理論的な解析から予想されている。しかしこの熱伝導係数特性を再現したモデルは存在しない。従ってこれらの現象を表現する簡易な分子間衝突モデルの開発が望まれている。

2. 研究の目的

本研究では, 二原子分子について

- (1) 回転モード, 振動モードを表現するモデルの構築。
- (2) 解離・再結合を表現するモデルの構築。を行う。(1)については, 拡散係数, 粘性係数, 熱伝導係数, 体積粘性率や回転・振動に関する緩和時間を広い温度範囲にわたり, 実験結果並びに理論値を再現するモデルを構築する。構築したモデルを, 衝撃波の内部構造解析に適用し, 衝撃波の構造, 内部エネルギー分布を実験結果と詳細に比較・検討することでモデルの性能を評価し改良を行う。(2)については既存の理論を基礎としたモデルを構築し, 解離・再結合の反応定数を実験結果と詳細に比較・検討することで, モデルの最適化を行っ

た後, 解離・再結合が生じている際の熱伝導係数の特性の再現・解明を行うことを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 回転モード

Wang-Chang-Uhlenbeck (WCU) 理論を用いて二原子分子の運動を Classical trajectory 解析することで回転モードに関する衝突断面積のモデル化を行い, 弾性衝突モデルと組み合わせることにより回転モードを表現する非弾性衝突モデルを構築する。WCU 理論を用いてモデルの輸送係数特性, 回転緩和時間特性を解析し, 実験結果と比較しその性能を評価する。更に垂直衝撃波の内部構造解析に適用し, 密度分布, 温度分布, 回転エネルギー分布を実験結果と詳細に比較検討する。

(2) 振動モード

振動モードはそのエネルギー分布が連続的ではないため, 量子力学をベースにしたモデル化が重要であり, 特に並進運動と振動エネルギー間のエネルギー遷移 (TV), 振動エネルギー間のエネルギー遷移 (VV) のモデル化が重要とされている。一方, 回転エネルギーと振動エネルギー間のエネルギー遷移は, 非常に小さな確率で生じるため, 振動モードの緩和過程にはほとんど影響を及ぼさない事が知られている。本研究では既存の理論を基に, 振動準位に関する遷移確率から平衡状態における詳細釣り合いの原理を満たすように, TV 遷移と VV 遷移についてその遷移断面積を構築する。使用する理論は, 二原子分子を調和振動子と仮定し, 二原子分子同士の衝突を半古典的に扱って解析することで, 衝突によるエネルギー準位の遷移確率を与える EITFITS 理論を用いる。WCU 理論によりモデルの輸送係数特性, 振動緩和時間特性を解析し実験結果と詳細に比較検討する。

(3) 解離・再結合

解離・再結合の物理現象は非常に複雑であり, 特に再結合では, 分子間の3体衝突をモデル化する必要がある。また, 分子と原子に関する衝突断面を規定する必要もある。本研究では従来の理論を基礎として解離断面積を構築する。また再結合については, Two Step Binary Collision (TSBC) 理論を適用した断面積を構築する。構築したモデルを平行平板間内の流れ, 熱伝導の問題に適用し解離・再結合が生じている状態における輸送係数特性を詳細に検討する。

4. 研究成果

(1) 回転モード

二原子分子の回転モードを表現するモデルのモデルパラメータ及び散乱則の最適化を窒素気体について行い, 輸送係数特性, 回転

緩和時間特性, 垂直衝撃波内部の構造解析を行うことで, 性能を検討した. その結果, 本モデルの輸送係数, 回転緩和時間特性は, 広い温度領域において拡散係数, 粘性係数, 回転緩和時間の実験値, 理論値を良好に再現することを確認した. また熱伝導係数は, 振動励起の影響が小さい温度領域 ($T < 1000$ K) において実験値を良好に再現することを確認した. 垂直衝撃波の内部構造の解析に適用した結果では, 衝撃波内部の密度分布, 回転温度分布等のマクロな物理量の構造をはじめ衝撃波内部の回転エネルギー分布といったミクロな構造についても実験結果をほぼ再現することが確認され, モデルの有効性を示すことが出来た. 例として図 1, 2 に上流マッハ数 $M=12.9$, 上流総温度 $T=9.15$ K に対する衝撃波内の密度分布と回転温度分布に関する実験との比較, 回転エネルギー分布の比較をそれぞれ示す.

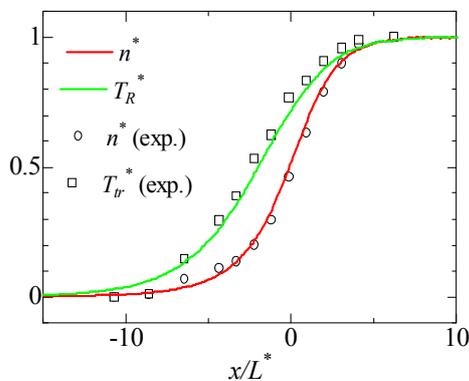


Fig.1 Comparison of shockwave structure between LJ-SICS and experimental data for upstream Mach number of $M_1=12.9$ and upstream temperature of $T=9.15$ K

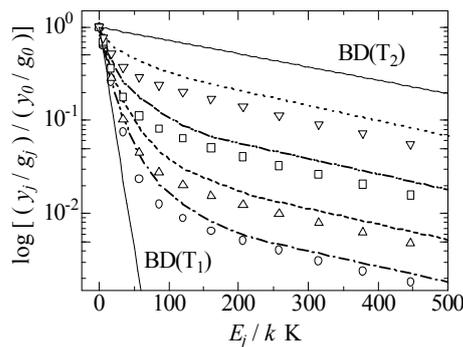


Fig.2 Comparison of rotational energy distribution between LJ-SICS(symbol) and measured data (lines) across a nitrogen shock wave for upstream Mach number $M_1=12.9$ and upstream temperature of $T=9.15$ K

図 1 に示すように, モデルの衝撃波内の回転

温度は実験結果よりも多少低い傾向が見られるが, 良好に再現できている他, 密度分布については実験結果を非常に良く再現していることがわかる. また, 図 2 に示すように回転エネルギー分布は実験に比べ, 基底状態に対するエネルギーの割合が多少小さくなっているが, 非平衡状態を表す bimodal な分布を良く再現できていることがわかる.

(2) 振動モード

(1) で示した回転モードを表現するモデルに振動モードを表現するモデルを追加して, Inelastic Collision Cross Section (ICCS) モデルを構築した. ICCS モデルを窒素気体に適用し, 輸送係と振動緩和時間特性を検討した. 図 3 に粘性係数について, 実験結果と Chapman-Enskog (CE) 理論との比較を示す.

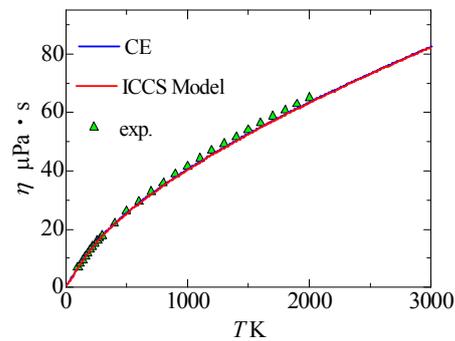


Fig.3 Comparison of viscosity coefficient among ICCS model, CE theory, and experimental data.

図より, ICCS モデルは, $T > 1000$ K の高温領域で実験値より多少小さな値を取るが, その差異は, 2%未満と小さく, また CE 理論を良く再現していることが確認できる.

図 4 に, 熱伝導係数について実験値との比較を示す.

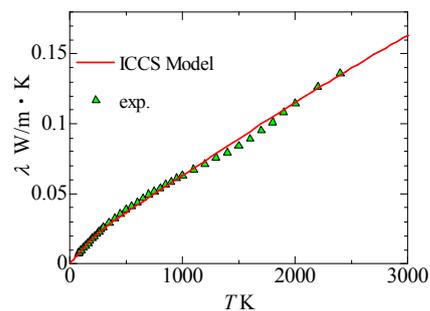


Fig.4 Comparison of thermal conductivity coefficient between ICCS model and experimental data

図に示すように, ICCS モデルの熱伝導係数は, 振動励起の影響が小さな約 1100K 以下の温度

領域で実験結果を良好に再現していることがわかる。また、振動励起の影響が顕著となる 1100K~2000K で、実験よりもやや大きな値となる傾向が見られるが、2000K 以上の領域では実験値を良好に再現していることが確認できる。

図 5 に、振動緩和時間について Millikan White(MW)の実験式との比較を示す。

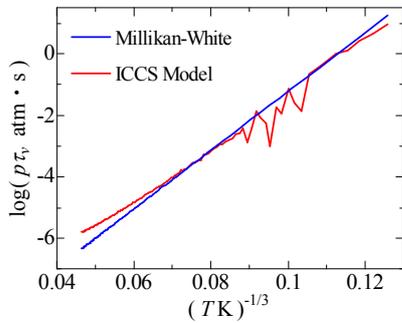


Fig. 5 Comparison of vibrational relaxation time between ICCS and MW

1500 K 以下 ($T^{1/3} \geq 0.087$) では、振動の衝突確率が小さく、サンプル数が少ないために生じる大きな統計誤差が見られるが、MW の実験式を良好に再現していることがわかる。良く知られているように、3000K 以上 ($T^{1/3} \leq 0.07$) で MW よりも高い値となることも確認できる。以上より、ICCS モデルは、窒素の粘性係数、熱伝導係数、振動緩和時間等の温度特性を広い温度範囲において良好に再現することが確認された。

(3) 解離・再結合を表現するモデル

平衡状態における窒素分子に対する解離定数の実験値を再現するようにモデル定数を決定し、気体分子または原子が一様に分布した空間における解離と再結合過程の解析を行った。図 6 は、初期に窒素原子が 1m^3 中に 1×10^{25} 個に相当する分子または原子を配置し、解離・再結合により分子と原子の質量比が変化して行く過程を示している

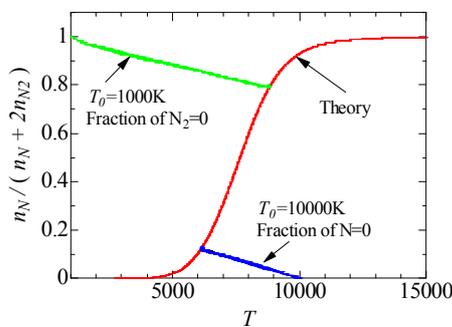


Fig. 6 Dissociation and recombination process and equilibrium degree of dissociation in nitrogen.

図中、青線は初期温度 $T_0=1000\text{K}$ の空間に窒素分子だけを配置した際の、主に解離が生じる過程を示し、緑線は初期温度 $T_0=100\text{K}$ の空間に窒素原子だけを配置した際の、主に再結合が生じる過程を示している。また赤線は、平衡状態における理論値を示している。解離、再結合のいずれの過程も平衡状態に緩和されていることが表現されており、緩和過程は良好に表現出来ていることが予想される。なお、本研究により、解離と再結合の緩和過程を適切に表現するためには、模擬分子の数を、最低でも 10^3 個用いる必要があることを明らかにした。

図 7 に、平行平板間の熱移動問題 (Fourier problem) から求めた、平板間の熱伝導係数 λ を示す。図中、 y は片側の平板からの距離、 H は平板間の間隔を示す。図より、本モデルの熱伝導係数は、解離・再結合が生じていない場合の値よりも多少大きくなっているが、理論により予想されているような、大きな値にはならなかった。この原因については、計算の境界条件や計算に用いた分子数の影響などが考えられ、今後更に詳細に検討が必要であると思われる。

以上より、モデルの問題点、今後の課題などが示された。

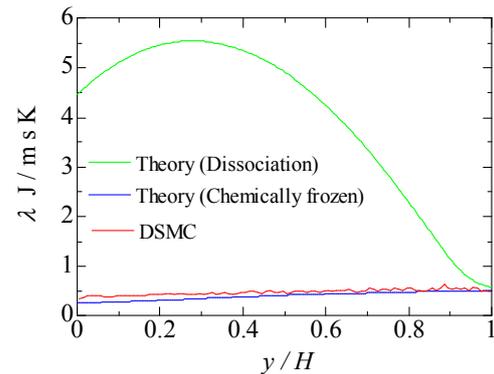


Fig.7 Comparison of thermal conductivity coefficient for nitrogen gas between DSMC and theory.

(4) 弾性衝突モデルの低温領域への拡張

ヘリウム気体などの質量の小さな希ガスは、低温領域において波としての性質が顕著になることが知られており、分子間衝突による散乱現象は量子力学を適用して波動方程式を解析しなければならない。しかし波動方程式の解析は計算負荷が非常に大きく、工学的な応用面からすると現実的ではない。一方非弾性衝突モデルの基礎として重要な役割を果たす VHS, VSS, VS モデル等の簡易弾性衝突モデルは、古典力学領域に対して開発されたものであり、量子散乱領域での適用の可能性については不明であった。本研究では、これらのモデルの基本的なアイデアを量子散

乱領域に拡張し、その性能を検証した。図8～10に、球状に膨張するヘリウム気体の解析における密度分布、速度分布、流れと平行(膨張方向)の温度とそれと垂直な方向の温度分布を示す。図より、密度分布、速度分布、温

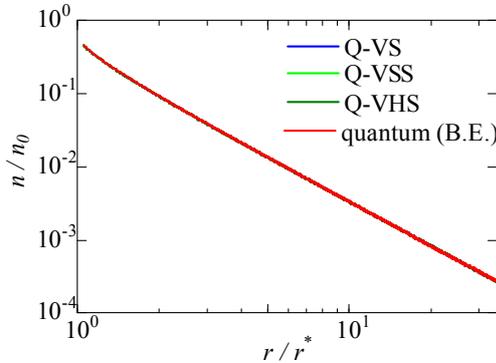


Fig.8 Comparison of non-dimensional number density profiles of spherical expansion obtained using direct calculation of quantum mechanical scattering and simple scattering models for $p_0 r^* = 35.8$ Torr-mm and $T_0 = 296$ K.

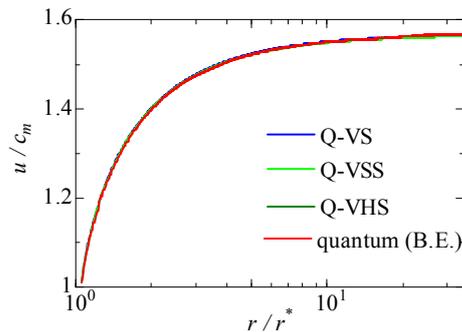


Fig.9 Same as Fig.8 for non-dimensional macroscopic velocity profiles

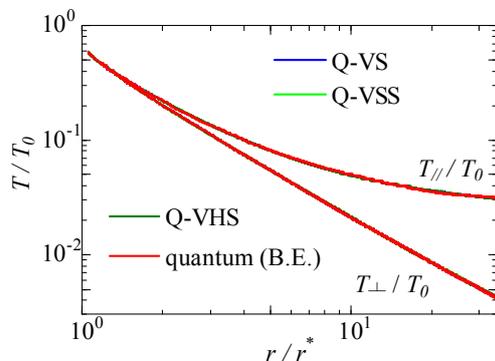


Fig.10 Same as Fig.8 for non-dimensional parallel and perpendicular temperature profiles

度分布のいずれも、波動方程式を直接解析した結果と、簡易散乱モデルの結果は統計誤差内で完全に一致していることがわかる。波動方程式の解析の負荷が大きいため、計算例が限られており、今後更に検証が必要ではあるが、VHS,VSS,VSモデル等の簡易弾性衝突モデルの基本的なアイデアは量子力学にも有効であることが示されたと考えられる。

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 7件)

① 松本裕昭, 二原子分子の衝突断面積モデルを用いた流れと平行に置かれた円柱周りの超音速希薄気体流れのモンテカルロシミュレーション, 日本機械学会誌 B 編, 75 巻, 印刷中, (2009), 査読有

② Hiroaki Matsumoto, Elastic Molecular Collision Models for Quantum Mechanical Scattering in the Monte Carlo Simulation of Rarefied Gas Flow at Low Temperatures, Physics of Fluids, Vol.20, 097103,1-5,(2008),査読有

③ 松本裕昭, 窒素分子の回転衝突数と非弾性衝突モデルの衝突断面積, 日本機械学会誌 B 編, 73 巻, 2183-2192, (2008), 査読有

[学会発表] (計 4件)

① 松本裕昭, 軸対象物体周りの超音速希薄気体流れのモンテカルロ解析, 日本流体力学会年会, 2008年9月4日, 神戸大学.

② Hiroaki Matsumoto, Simple Scattering Models for Quantum Mechanical Scattering in the Monte Carlo Simulation of Rarefied Gas Flow, 26th International Symposium on Rarefied Gas Dynamics, 2008/7/22, University of Kyoto, Japan.

③ 松本裕昭, 希薄気体流れのモンテカルロ解析における分子間衝突モデル, 日本機械学会流体工学部門講演会, 2007年11月17日, 広島大学.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松本 裕昭 (MATSUMOTO HIROAKI)
横浜国立大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号: 10251753

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし