

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02068

研究課題名（和文）水中に常在する気泡核のサイズ分布則に潜む核形成原理の探求

研究課題名（英文）Exploration of the Nucleation Principle Underlying the Size Distribution Law of Bubble Nuclei Always Present in Water

研究代表者

津田 伸一（Tsuda, Shinichi）

九州大学・工学研究院・准教授

研究者番号：00466244

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 12,300,000円

研究成果の概要（和文）：流れる水の中に含まれている肉眼では見えない微小な気泡（気泡核と呼ばれる）の大きさの分布は、水質の詳細な違いによらず、概ねある特定の分布に近い傾向を示すことが実験的に知られている。本研究では、気泡核の大きさが特定の分布に近づく傾向をどの程度強く示し得るのかについて、分子動力学法と呼ばれるコンピュータを用いた模擬実験により調査した。その結果、気泡核サイズの最初の状態に大きく依存することなく、ある特定のサイズ分布に近づく傾向を強く示し得ることがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水中に含まれる気泡核の大きさの分布が、少なくとも分子のスケールと同程度の大きさの気泡核の状態にはほとんど依存することなく、ある特定の分布に近づいていく傾向があることを、コンピュータを用いた模擬実験によって、世界的に初めて示した点が学術的な意義である。一方で、この模擬実験によって得られるサイズの分布は、実験的に計測されている分布とは一致しておらず、分子のスケールよりも大きな空間スケールにおける研究の必要性を新たな学術的課題として示した点も、本研究成果の一つの意義となっている。

研究成果の概要（英文）：The size distributions of tiny invisible bubbles called as bubble nuclei in flowing water have a tendency to show a specific size distribution independent of the detailed difference of the qualities of water or experimental environments. In this study, a set of computer simulations called as molecular dynamics method was conducted to investigate how universally each bubble nucleus has a tendency to show such a specific distribution. As a result, it was strongly indicated that each nucleus essentially shows a tendency to form a specific distribution independent of the initial size distributions.

研究分野：流体工学

キーワード：水 気泡核 分子動力学 光学計測

1. 研究開始当初の背景

液体の流れにおいて、局所的な低圧場から気泡が発生するキャビテーション現象については、これまでに多くの研究が展開されてきており、管内や翼周り、あるいはポンプをはじめとする流体機械内部における複雑なキャビテーションの挙動についても、一定の知見が蓄積されてきている。一方で、未解明の問題も多数残されており、その一つがキャビテーション気泡の発生、すなわち「初生」である。最も簡単なキャビテーション初生の予測は、流れ場の最低圧力点が飽和蒸気圧以下になれば初生に至るとみなすものであるが、実際の初生位置はこのような簡易な予測とは大きく異なることが実験的に知られている。また、キャビテーションの初生条件や初生位置を数値流体解析などにより正確に予測するのは依然として困難な状況であり、これは流体工学上の未解決問題の一つとしても位置づけられる。

ここで、過去の関連研究を俯瞰すると、まずキャビテーションの初生条件が対象形状やレイノルズ数に対して示す依存性については、多くの計測結果に基づいて1990年代までには一定の整理がなされるとともに、初生条件に対する経験的な予測式の提案も行われてきている。しかしながら、これらの予測式に含まれているパラメータの決定方法には任意性があり、普遍的に適用できる手法ではない。一方で、より普遍的かつ本質的に初生条件を予測するために重要となるのは、流れ場中に存在している気泡核(1~100 μm オーダの微小な気泡)のサイズ分布である。このサイズ分布については、水質や実験環境の詳細によらず、多くの場合にべき乗則に従う傾向を示すことが実験的に知られている。また、気泡核のサイズ分布がべき乗則に従う傾向をモデル化したうえで、キャビテーションの初生を模擬する数値流体解析なども行われてきている。しかし、このようなモデル化は代表的な気泡核の計測データをべき乗の関数で表し直したものにすぎず、ありとあらゆる水質の水に適用できるものではない。すなわち、キャビテーションの初生を正確に予測するうえでは、水中における気泡核のサイズ分布の形成過程の理解が本質的に望まれる。しかしながら、そもそもなぜ気泡核のサイズ分布がべき乗則に従う傾向を示すのかという原理については、全然わかっていないどころか、研究自体がほとんど行われてきていないのが実情である。これは、対象が液体中の微細な気泡核であるために、計測データのばらつきが大きく定量的に正確な知見を得にくいこと、また微細な気泡核の構造や物性がよくわかっていないことにも原因がある。

以上において、キャビテーションの初生を正確に予測するうえで最も本質的な未解明点の一つは、水中の気泡核が示すべき乗則(特にべき乗則の指数)に潜む物理的機構である。一般に、べき乗則に従う現象には、その背後に現象を決定づける物理因子が存在し、かつ、べき乗則が成立する時空間スケールにおいては、自己相似性を伴う非線形構造があると考えられる。すなわち、水中の気泡核のサイズ分布が示すべき乗則には、キャビテーションの初生を予測するうえで重要となる気泡核の形成原理を支配する何らかの物理因子が反映されていると考えられる。この物理因子の理解が進めば、キャビテーションの初生予測はもちろんのこと、初生の新たな制御指針の発見にも繋がる可能性がある。しかしながら、過去の研究においては、べき乗則に従う気泡核分布を前提として、気泡の初生条件や初生後の気泡群の挙動を議論する研究がほとんどであり、気泡核の分布則を決定づける物理因子に迫る研究はなされてきてはいなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、水中の気泡核を対象として、そのサイズ分布則の形成原理を、微視的な時空間スケールを起点として数値的に解き明かすことである。具体的には、十分に減圧された水中における気泡核のサイズ分布の時間発展が、考え得る様々な初期条件に対してどのような依存性を示すのかについて、大規模な分子動力学(MD)シミュレーションにより精査する。ここで、もし初期条件に依存することなく、気泡核のサイズ分布がある一つの関数形に漸近するのであれば、水質や環境の詳細によらず、過去に計測されている気泡核のサイズ分布がべき乗則に従うことを説明できる可能性がある。以上の試行的な数値実験を通して、気泡核のサイズ分布の形成原理とその普遍性の程度を微視的な観点から明らかにするのが本研究の目的である。

3. 研究の方法

気泡核のサイズ分布の時間発展を議論する前段階として、最初に気泡核の熱力学安定性について確かめておく必要がある。そこで、まずは不純物の混入がまったく無い純水中において、分子の熱運動によって生じる熱ゆらぎ、および隣接する気泡核どうしの力学的な干渉が、分子数個~20個分程度の大きさの気泡核の安定性に及ぼす影響をMDにより検討することとした。この段階のシミュレーションにおいては、水分子の相互作用モデルとしてTIP3Pモデルを採用し、分子数は1万個のオーダとすることにした。

そのうえで、気泡核のサイズ分布の時間発展を議論するためのMDシミュレーションを行う。ただし、実際の水には溶存空気が一定の割合で混入しており、これが気泡核のサイズ分布に影響

を及ぼす可能性があるため、空気の主成分である窒素分子が溶存した状態の水分子集団を模擬することとする。また、気泡核のサイズ分布に関する情報を得やすくするため、比較的大規模な計算系として、この段階の MD では約 1 億個の水分子および窒素分子からなる空間（約 150nm の立方体）を計算領域とした。ただし、TIP3P モデルを用いると計算負荷が過大になるため、ここでは Lennard-Jones ポテンシャルと呼ばれる単純な単原子分子モデルを用いて水分子および窒素分子を模擬した。ただし、水分子と窒素分子の相互作用については、空気の水中溶解度の実験データを参照して合わせこみを行うことで、現実の系を模擬できるようにした。なお、約 1 万個の計算系も含め、いずれの MD においても周期境界条件を課すこととする。

また、約 1 億個の MD においては、様々な気泡核分布を初期サイズ分布として与えたうえで、MD シミュレーションを実施した。具体的には、べき乗分布、正規分布、ボルツマン分布の 3 つのケースを初期分布として与えた。ここで気泡核サイズの増加に対して、は右下がりの分布、は中央にピークを有する分布、は右上がりの分布となっており、定性的にも大きく異なる分布となっている。ただし、実際の計算に際しては、これらの各分布を 5 つの階層にヒストグラム化したものを与えることとした。一方、このようなヒストグラム化した分布の時間発展の追跡自体は可能であるが、これを数理的に考察するのは困難である。理由は、本計算領域の空間スケールは一般的な MD シミュレーションに比べると十分大きいものの、サイズ分布を直接追跡には小さく、統計精度が十分確保できないためである。そこで、本研究では気泡核のサイズ分布に対して、各気泡核半径の重みづけ積分を行った量（モーメント積分量）として、気泡核数密度、気泡核半径密度、気泡核表面積密度、気泡核体積密度の 4 つの量を算出するとともに、これらの比により定義される代表長さの時間変化を解析した。これらの量は、いずれもサイズ分布の情報を有しているが、その時間変化がべき乗則に従うとすれば、その指数はサイズ分布の時間発展則を端的に反映する重要な物理情報を有していることになる。本研究では、これらの指数値の初期サイズ分布への依存性を特に注視することとした。

4. 研究成果

まず、TIP3P モデルを用いた小規模な MD シミュレーションから、熱ゆらぎがもたらすランダム性により、隣接する気泡核のサイズに必ず非一様性が現れることで、気泡核の熱力学的な安定性が決定的に低下することが確認された。これは、隣接する気泡核どうしの干渉がナノバブルの熱力学的安定性を向上させるという近年の研究報告（Hong et al., Fluid Phase Equilibria, 2019）に対して、真逆の知見を提示したものである。すなわち、少なくともバルク液体中の気泡核に対しては静的安定性が成立しないという前提のもとで、気泡核のサイズ変化を議論する必要があることが確認された。

そのうえで、分子約 1 億個を用いた MD により、初期サイズ分布の依存性を調べた。その結果、すべての初期サイズ分布において、相対的に大きな気泡核ほど成長を続けやすく、逆に小さな気泡核ほど早く収縮に転じる様相が観察された。これは、先行研究における類似のシミュレーションにおいても確認されている、「オストワルド成長」と本質的に同じ現象である。一方で、収縮に転じた気泡核が完全には崩壊せずに残存し続ける様相も確認された。これは、水中の溶存空気の濃度が飽和濃度に比べて高い場合に生じる現象であり、溶存空気の影響が顕在化したものであるが、上述のオストワルド成長の様相を大きく変える効果はまず生じていないことが確認された。

続いて、上述した 4 つのモーメント積分量、ならびに代表長さのいずれについても、一定の時間経過後にはべき乗則に従う変化を示すことが確認された。また、これらのスケーリング指数をオストワルド成長に対するマクロな古典理論で推測されている指数値と比較すると、気液界面の「蒸発/凝縮」が現象を律速している場合とよい一致を示した。溶存空気の影響が顕在化した場合には、溶存空気の「拡散/析出」が現象を律速する可能性もあったが、初期サイズ分布によらず、溶存空気の影響が顕在化することはなかった。

以上のように、定性的にも大きく異なる 3 通りの初期サイズ分布を与えた MD シミュレーションを実施したものの、気泡核の成長の様相だけでなく、モーメント積分量や代表長さの指数値についても、「蒸発/凝縮」が律速するオストワルド成長に対するマクロな理論と、概ね整合する結果が得られた。水中のキャビテーション初生においては、固体壁面に付着しているナノバブル（100nm オーダの微小気泡）が水中に離脱するなど、気泡核の計測箇所の上流側で生じる非常に多様な履歴を受けると考えられる。上述の MD による数値実験は、このような履歴に相当する影響を初期サイズ分布に反映させたものであるが、初期分布によらず同様の様相や指数が得られるということは、実験的に計測されている気泡核分布が水質や実験環境の詳細に依存しないという知見と、少なくとも定性的に符合する示唆に富んだ結果である。一方で、試行的にはあるが、二次元縮小拡大大流路内の水流を対象に 10~100 μ m オーダの気泡核サイズを光学的に計測したところ、指数値は先行研究とやや異なるものの、概ねべき乗に従う分布が得られた。また、溶存空気の影響により、サイズ分布が変わり得ることも示唆されている。しかしながら、上述の MD から得られると推定される分布はべき乗に従う関数ではなく、光学計測により得られた気泡核のサイズ分布とは一致しないことも確認された。すなわち、既往の計測で得られているよりマクロな気泡核のサイズ分布を理論的または数値的に説明するためには、分子の時空間よりも大きなスケールにおける研究が必須であることが、強く示唆された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 佐多 勇亮, 津田 伸一, 渡邊 聡
2. 発表標題 気泡核のサイズ分布の時間発展則に及ぼす初期サイズ分布の影響の分子動力学解析
3. 学会等名 第59回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐多 勇亮, 高橋 竜二, 津田 伸一, 渡邊 聡
2. 発表標題 気泡核の成長過程に及ぼす初期サイズ分布の影響の分子動力学解析
3. 学会等名 第35回数値流体力学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐多 勇亮, 高橋 竜二, 津田 伸一, 渡邊 聡
2. 発表標題 バルク水中におけるナノバブルの安定性に気泡間相互作用および熱ゆらぎが及ぼす影響の分子動力学解析
3. 学会等名 日本機械学会2020年度年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐多 勇亮, 高橋 竜二, 津田 伸一, 渡邊 聡
2. 発表標題 気泡間相互作用に注目した水中ナノバブルの寿命の分子動力学解析
3. 学会等名 日本機械学会九州支部九州学生会第51回学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

九州大学 研究者情報
<https://hyoka.ofc.kyushu-u.ac.jp/search/details/K005500/research.html>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	渡邊 聡 (Watanabe Satoshi) (50304738)	九州大学・工学研究院・教授 (17102)	
研究分担者	片山 雄介 (Katayama Yusuke) (20778815)	九州大学・工学研究院・助教 (17102)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------