

令和 3 年 6 月 18 日現在

機関番号：13903

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K14886

研究課題名（和文）近赤外カメラとDPD法による水凍結過程における微小氷粒子の運動メカニズムの解明

研究課題名（英文）Clarification of small ice particles motion during water freezing using Near Infrared camera and dissipative particle dynamics simulations

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） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）： 微小氷粒子運動メカニズムおよびその熱輸送への影響の解明を目的として、実験では、マイクロ流路内で発生する1次元凍結現象における凍結界面の同定、および流路内の微小氷粒子挙動の画像解析を実施し、数値計算では、散逸粒子動力学（DPD）法の信頼性向上のため、物性値に関する諸量の誤差評価を実施した。

実験では、マイクロ流路内凍結における凍結進行、および凍結によって生じる微小氷粒子の挙動解析を非接触測定する手法を提案し、定量的な計測を実現した。数値計算では、流体の粘性係数の算出のために使用されるせん断応力の誤差の時間刻み幅に対する変化は、DPD計算の誤差評価でよく用いられる温度と異なる傾向を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水の凍結は様々な工業製品（例えば航空機、熱交換器）の性能を劣化させる要因となる。これを抑制するため、近年では、微細表面加工技術の発展による過冷却促進壁面、すなわち不凍面製造技術の開発が注目があつまっている。これらの技術を後押しするために学術的視点からの基礎研究は不可欠である。本研究では、過冷却水の凍結現象と従来の凍結の違いは何か、という学術的な視点から考察するため、微小な空間における非接触測定技術を提案し、この実用性を確認することから開始し、本研究を通して本技術の実用性を示した。本技術により、本現象の基礎研究のさらなる進歩および上述の機器の性能向上が見込まれる。

研究成果の概要（英文）： This study implemented both experiments and numerical simulations, aiming at clarifying the motion of small ice particles during water freezing at microscales and their effects on the phenomenon. In the experiments, the identification of water-ice interface and the image analysis of the particle behavior were performed for one dimensional freezing in a microchannel. In the simulation, the evaluation of quantities related to physical properties in dissipative particle dynamics was performed to improve its reliability.

First, two techniques were proposed which make it possible to identify the interface and to analyze the particle behavior in a non-contact manner. These techniques were used to quantitatively analyze the freezing phenomenon. Second, the numerical error of shear stress for different time steps were investigated, and the results showed that the tendency was different from that of temperature which was usually used for the error estimation in DPD simulations.

研究分野：流体工学 伝熱工学

キーワード：水 凍結 近赤外線 水の近赤外吸光特性 数値計算 散逸粒子動力学法 計算誤差 画像解析

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

微細表面加工技術の発展による過冷却促進壁面、すなわち不凍面 (anti-freezing or ice-phobic surface) 製造技術の開発、また本技術の工業製品 (例えば燃料電池, 熱交換器, 航空機, 風力発電機など) への応用に近年注目が集まり, 水の過冷却現象に関する研究が盛んに行われるようになった. 過冷却水の凍結の過程で, マイクロメートルオーダーの微小氷粒子を内包するみぞれ状の懸濁液 (以下, Slush) が生成されることはすでに知られているが, 粒子の対流が凍結に及ぼす影響を考慮した熱輸送解析は見当たらず, 同凍結現象に関する仮定に対して統一見解がなかった. そこで本研究では, 微小氷粒子運動メカニズムおよびその熱輸送への影響の解明を目的として, 実験および数値計算による研究を開始した.

本研究は研究開始当初, 実験では水の近赤外線吸光度の相状態依存性を利用した可視化技術 (以下, NIR 可視化技術) を用いて, 凍結進行中における Slush 内微小氷粒子を可視化観察することに注目していた. しかし, 実験を進めていく過程で過冷却の程度 (以下, 過冷却度) により凍結速度が明らかに異なることがわかり, 過冷却水の凍結が従来の熱輸送解析により表現される凍結がどのように違うかを明らかにする必要がある, という着想を得た.

また数値計算に関しては, 研究代表者の先行研究において, 本研究で使用する DPD 法の大幅な誤差低減を達成した. しかし, この研究で実施された誤差解析は系の温度 (運動エネルギー) にのみ着目しており, 流体の物性値についての誤差は詳細に調査されなかった. また過去の研究においても, 物性値の誤差に注目した研究は見当たらない. 一方で, 研究を進めるに従い, DPD 法による凍結現象の数値計算実現のため物性値の誤差の信頼性を確保する必要があることがわかり, 本研究で詳細に調査する, という着想を得た.

### 2. 研究の目的

上述の背景から, 実験においてはマイクロ流路内で発生する 1 次元凍結現象の可視化実験を行い, 「凍結界面の同定, 界面進行速度の画像解析による算出, ならびに流路内の微小氷粒子挙動の画像解析」を実施すること, 数値計算においては「温度以外の, 特に物性値の誤差低減」を検討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) 吸光特性における相状態依存性を利用した, 以下の研究を実施した.

- マイクロ流路内における 1 次元凍結現象の NIR 可視化観察実験を実施し, 凍結界面の同定および進行速度の算出を画像解析により行う.
- 同凍結現象において見られた微小氷粒子の挙動の解析手法を, 粒子画像速度計測 (PIV) 法を参考に提案し, また同手法により粒子の挙動解析を行う.

また数値計算では, DPD 法ではこれまで着目されてこなかった, 温度以外の計算誤差の信頼性向上に着目し, 以下の研究を遂行した.

- 動径分布関数および自己相関関数の誤差の時間進行法による影響の調査.
- 時間刻み幅が系の応力の誤差に与える影響の調査.

#### (1) 実験方法

本研究では, 図 1 (概略図) に示す実験装置を使用した. 本実験装置は, 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), 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ている. また, 同流路チップと銅板の間に熱電対を挿入し, 流路冷却部分の温度を測定した. 実験中, 実験装置全体をビニールシートで覆い, 装置周辺の湿度を湿度制御装置を用いて 10% 程度まで低下させ, 霜の発生を抑制した.

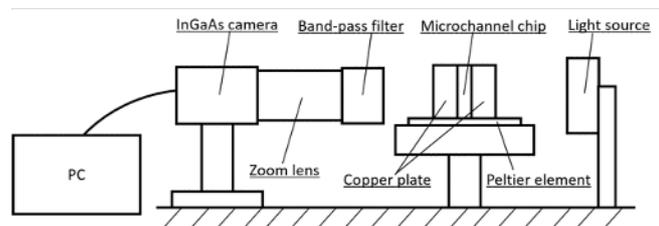


図1: 水凍結現象可視化装置概略図.

#### (2) 数値計算手法

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 ( $\mathbf{p}_i = \mathbf{v}_i / m_i$ ,  $\mathbf{v}_i$ : 粒子  $i$  の速度) を表す.

また、 $F^C_i$ 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、 $F^D_i$ は運動量交換による散逸力、 $F^R_i$ 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囲境界条件とした。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。

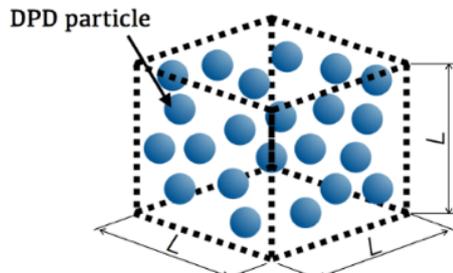


図2: 計算領域概略図。

本研究では、DPD法における時間進行への適応について、研究代表者がその信頼性を確認していた Partitioned Runge-Kutta (PRK)法を用いたDPD計算を実施し、動径分布関数、速度自己相関関数の誤差評価も行った。温度の信頼性は、以下に示す状態温度の理論値 ( $k_B T=1.0$ ) との誤差によりすでに確認している。同温度の誤差は以下で与えられる。

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

また、DPD法の誤差評価についてあまり注目されていないが、流体力学上重要な物性値である粘度の数値誤差についても着目し、その計算に必要な系の応力の誤差評価を行った。

#### 4. 研究成果:

##### (1) 実験による成果

本研究で実施されたNIRカメラを用いた可視化実験装置を用いて得られた、マイクロ流路内の1次元凍結現象の様子を映した画像を図3に示す。同図より、冷却面側から進行する凍結界面をはっきりととらえていることが見て取れる。また、液相部分では、先行研究で既に確認されている、大きな過冷却からの凍結で生じる微小氷粒子と水の懸濁液(Slush)(例えば引用文献1)が確認できた。

本研究ではまず、凍結界面の同定を、水の近赤外吸光特性の相状態依存性を用いて行った。図3かわかるように、氷相と液相の間で近赤外吸光量の大きな変化が生じる。この部分を界面と判断し、凍結中の界面を追跡したところ、図4の結果を得た。同図は、異なる凍結開始温度(図では同温度と氷点との差、 $\Delta T$ , を示している)における、凍結界面が撮影画面上に現れてからの時間( $t$ )と凍結界面の位置( $y$ )の関係を表している。また曲線は、モデル関数を相変化を伴う伝熱問題の解析解と同様の  $y = at^{1/2}$  ( $a$ : 定数)として、各実験データから得られた近似曲線を示す。同図より、凍結開始温度に関わらず、実験データと近似曲線の一致が良いことから、凍結進行は時間の平方根に比例することがわかる。また、凍結開始温度が低い(過冷却が大きい)ほど進行速度が速いこともわかった。また、水の近赤外吸光特性の温度依存性を用い、1次元凍結における液相の空間的な温度変化を可視化し、この影響は無視できるものと確認した。以上の研究成果をジャーナル論文に投稿し、現在審査中である(引用文献2)。

次に、凍結中の液相部分における氷粒子の挙動に着目し、これを流体力学の実験研究でよく用いられる粒子画像速度計測(PIV)法を参考にした画像解析により実現した。図5に、本画像解析により得られた、凍結中の液相における速度分布(ベクトル表示)を示す。本画像解析により、凍結中の液相の様子が定量的に考察できるようになった。一方で、現在の画像解析は計算負荷が高く、本画像解析は低解像度画像を用いて行っている。より詳細な考察のため、同計算の並列化を現在進めている。これにより、より詳細な考察が可能になると期待している。

以上より、本研究により微小スケールの凍結現象

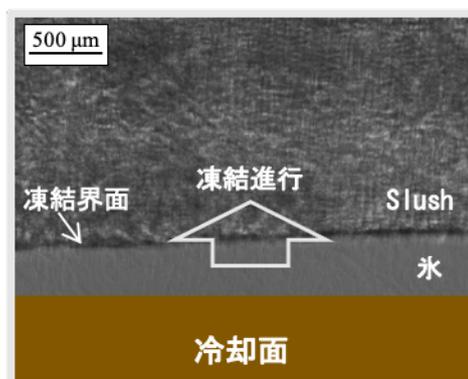


図3: 1次元過冷却水凍結現象の可視化結果: 近赤外カメラにより凍結界面を追跡し、懸濁液内の同現象への影響を調査。右上図は氷懸濁液(Slush)の概念図。

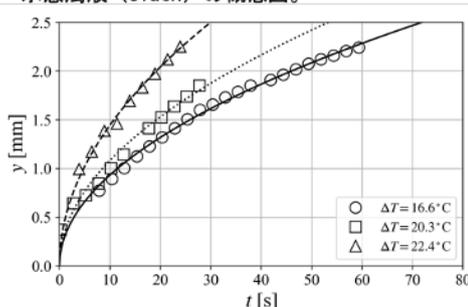


図4: 次元凍結における、凍結界面位置( $y$ )の推移 ( $t$ : 凍結開始からの経過時間)。 (1) 凍結温度に関わらず界面進行は時間の平方根 ( $t^{1/2}$ ) に比例し、 (2) 凍結温度が低いほど凍結進行速度が大きいことがわかる。

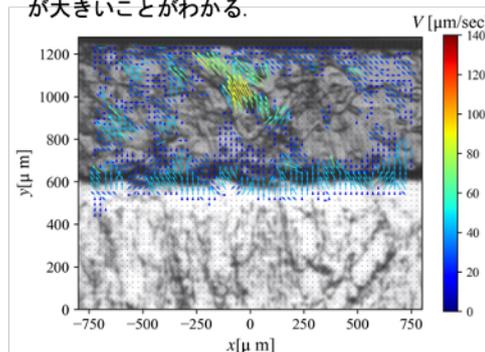


図5: 凍結中における液相の速度分布。画面中央上部で比較的大きな流れを確認。全体的に画面左斜め上方向の流れが存在。

について、比較的単純な実験装置を使い、凍結進行を非接触で定量的に測定する手法を提案した。また、凍結進行解析に用いる画像と同じものを用いて、懸濁液 (Slush) 内の微小氷粒子の挙動解析も実施した。本解析手法には未だ課題が残されているものの、マイクロスケールにおける凍結現象の解明の一助になることが期待される。

(2) 数値計算による成果：

先行研究 (科研費・若手研究(B):16K18014) において、研究代表者は DPD 法の数値誤差低減を目的とした時間進行法の改良を試みた。その結果、分離型ルンゲクッタ (Partitioned Runge-Kutta, PRK) 法を導入し、これが誤差低減に非常に有用であることを示した。本研究では、PRK 法の DPD 計算に対する効果の詳細を調査することから開始した。

まず、従来より行ってきた系の温度に着目した誤差評価に、系の状態 (configurational) 量、および動的 (kinetic) な量の誤差評価を行った。状態量として分子動力学法を始めとする粒子計算法で重要な動径分布関数を、動的な量として、物性値の計算に直接関与する、速度自己相関関数を選定した。これらを実験した結果、PRK 法を用いた DPD 計算では、大きな時間刻み幅の計算に対して、従来の時間進行法を用いた計算と比較すると、これらの状態量および動的な量の誤差は小さいことがわかった。さらに、計算効率についても調査したところ、PRK 法は従来の時間進行法と比較しておよそ 2.5 倍高効率に計算できることがわかった。以上の結果を、国際ジャーナル論文に発表した (引用文献 3)。

DPD 法の誤差評価では運動エネルギーから算出される系の温度 ( $k_B T$ ) がよく用いられる。これは、温度が入力される設定値であるからである。一方で、流体力学的には流体の物性値の誤差評価は重要であるが、先行研究でこれを評価したものはあまり見当たらない。しかしながら、本研究の最終目的である、DPD 計算を用いた微小スケールにおける水凍結現象の再現を精度良く行うために、物性値の計算誤差の評価および低減は不可欠である。そこで本研究では、流体力学において最も重要な物性値の一つである粘度に着目した。DPD 法をはじめとした粒子法では、粘度を以下の式を用いて算出される。

$$\eta = \frac{V}{k_B T} \int_0^{\infty} dt \langle \tau(t) \tau(0) \rangle$$

ここで  $V$  は系の計算領域の体積、 $\tau$  は系に作用するせん断応力の瞬時値である。上式より、粘度の計算誤差は系のせん断応力のそれに直接依存することがみてとれる。本研究では、外力が作用しない系においてせん断応力の平均値は 0 となるため、時間刻み幅がせん断応力の分散 (以下、 $\delta\tau$ ) に与える影響を調査した。図 6 (a) に  $\delta\tau$  の誤差  $\varepsilon_{\delta\tau}$  と時間刻み幅の関係を示す。 $\varepsilon_{\delta\tau}$  は次式で算出された。

$$\varepsilon_{\delta\tau} = \frac{|\delta\tau - \delta\tau_{approx.}|}{\delta\tau_{approx.}}$$

せん断応力およびその分散は設定できない値のため、計算結果から近似的に時間刻み幅  $dt=0$  における値 ( $\delta\tau_{approx.}$ ) を求め、この値からの差を誤差と定義した。参考のため、DPD 法で一般的に使われている M-Verlet 法 (引用文献 4) を用いた場合の、温度の誤差と時間刻み幅の関係を図 6 (b) に示す。同図より、M-Verlet 法を時間進行に用いると、温度の誤差は時間刻み幅に対し 2 次精度となる。一方、 $\varepsilon_{\delta\tau}$  は、概ね 1 次精度であることがわかった (主な成果一覽 4)。このことは、他の数値計算手法と同様に、DPD 計算でも温度の誤差と物性値のそれは 1 対 1 の対応にならないことを示唆しており、よって輸送現象に重要な他の物性値、例えば、拡散係数、熱伝導率についても、本研究と同様の調査をすることが望まれ、本研究ではこれを継続して行う予定である。

引用文献：

1. Jain, A., Miglani, A., Huang, Y., Weibel, J. A., Garimella, S. V. (2019). Ice formation modes during flow freezing in a small cylindrical channel. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 128, 836-848.
2. Yamada, T., Watanabe, K., Morinishi, Y., Tamano, S., (2021). Tracking One Dimensional Water Freezing in a 500- $\mu\text{m}$ -deep Microchannel Chamber using Water NIR-adsorption Characteristics. (UNDER REVIEW)

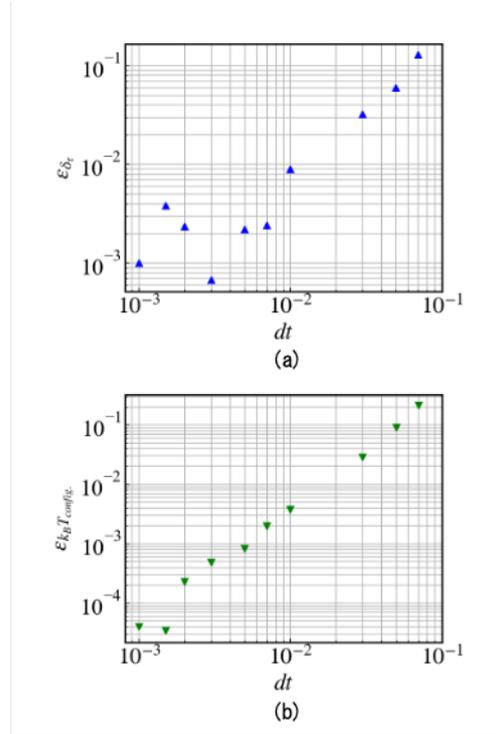


図6: 時間刻み幅  $dt$  が (a)  $\varepsilon_{\delta\tau}$  に、(b)  $\varepsilon_{k_B T_{config}}$  に与える影響。  $\varepsilon_{\delta\tau}$  はおよそ 1 次精度 ( $dt > 0.01$ )、 $\varepsilon_{k_B T_{config}}$  は 2 次精度となっている ( $dt > 0.003$ )

3. Yamada, T., Itoh, S., Morinishi, Y., Tamano, S. (2019). Temperature Error Reduction of DPD Fluid by Using Partitioned Runge-Kutta Time Integration Scheme, *Fluids*, 4, 156.
4. Groot, R. D., Warren, P. B. (1997). Dissipative particle dynamics: Bridging the gap between atomistic and mesoscopic simulation. *The Journal of chemical physics*, 107(11), 4423-4435.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Yamada Toru, Itoh Shugo, Morinishi Yohei, Tamano Shinji	4. 巻 4
2. 論文標題 Temperature Error Reduction of DPD Fluid by Using Partitioned Runge-Kutta Time Integration Scheme	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Fluids	6. 最初と最後の頁 156 ~ 156
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/fluids4030156	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Toru Yamada, Sota Hibi, Shinji Tamano, and Yohei Morinishi
2. 発表標題 Effect of non-conservative forces on computational accuracy in dissipative particle dynamics with using Lennard-Jones potential for different number density
3. 学会等名 ASME-JSME-KSME 2019 Joint Fluids Engineering Conference（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山田格, 渡邊佳月, 玉野真司, 森西洋平
2. 発表標題 マイクロ流路内における1次元氷結現象のNIRイメージング
3. 学会等名 第56回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 渡邊佳月, 山田格, 玉野真司, 森西洋平
2. 発表標題 マイクロ流路内の水の凍結に過冷度が与える影響
3. 学会等名 第17回日本流体力学会中部支部講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山田格, 日比颯汰, 玉野真司, 森西洋平
2. 発表標題 DPD法を用いた対向ポアズイユ流れにおける計算誤差の評価
3. 学会等名 第33回数値流体力学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 日比颯汰, 山田格, 玉野真司, 森西洋平
2. 発表標題 レナード・ジョーンズ系における計算誤差に対するDPD熱欲の影響
3. 学会等名 第33回数値流体力学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 羽佐田瑠真, 山田格, 玉野真司, 森西洋平
2. 発表標題 DPD法における時間刻み幅が応力に与える影響
3. 学会等名 第58回日本伝熱シンポジウム
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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

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
---------	---------