

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：23201

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2021

課題番号：18K03987

研究課題名（和文）薄膜・ナノ粒子形成のための高真空条件における浮遊液滴の減圧沸騰

研究課題名（英文）The Floating Droplet Flash boiling in High Vacuum condition for Film and Nano-Particle Formation

研究代表者

大嶋 元啓 (Oshima, Motohiro)

富山県立大学・工学部・講師

研究者番号：40511803

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）：本研究テーマは高真空雰囲気気圧における液滴の減圧沸騰に至る過程を実験および数値計算により明らかにすることを目的としている。本研究では超音波により液滴を浮遊させ、これを急減圧させることにより液滴内部の核生成による液滴の減圧沸騰現象を実験的に観察した。また、同時に過去の研究で報告されている減圧沸騰に関する知見を基にシミュレーションコードを改良し、減圧場の液滴および噴霧のシミュレーションを行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は減圧沸騰噴霧により薄膜、微粒子生成する手法における液滴の蒸発からガス形成に至る過程を解明するために非常に重要である。真空中で蒸発を伴う分野、薄膜形成、微粒子生成に関連する工業技術分野においては、本研究により溶液供給などの最適なパラメータを予測可能にすることが期待される。本研究では減圧場における液滴の減圧沸騰による蒸発現象を満足する十分な成果を得られてはいないが、減圧場における溶液噴射後の液滴の減圧沸騰挙動を考察するための基礎的な知見を得ることができた。その点では学術的意義がある。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is that the flash boiling mechanism in the high vacuum condition was investigated with experiment and numerical simulation. In this study, the flash boiling phenomena with the nucleation inside the droplet was tried to investigate by using the floating droplet apparatus with ultras sonic levitator. And, the droplet and spray at the vacuum condition with the simulation code which is improved by the previous studies related to the flash boiling phenomena.

研究分野：熱工学

キーワード：減圧沸騰 液滴 真空 蒸発 数値計算

### 1. 研究開始当初の背景

減圧沸騰噴霧はその飽和蒸気圧よりも低い圧力場に溶液を噴射したときに液内部から生じる激しい沸騰現象である。これまで、内燃機関を対象としてガソリン成分の炭化水素燃料単体に対する減圧沸騰噴霧の微粒化、蒸発過程の解明とその制御による排出ガス低減についての研究成果が多数、報告<sup>(1)</sup>されている。本研究では、内燃機関で使用されている減圧沸騰噴霧の制御技術を薄膜形成、ナノ粒子形成に応用する研究を進めている。これまで減圧沸騰噴霧により原料を蒸発させ、SiO<sub>2</sub>膜、HfO<sub>2</sub>膜の成膜、SiO<sub>2</sub>ナノ粒子、TiO<sub>2</sub>ナノ粒子の形成に成功した<sup>(2)(3)(4)(5)</sup>。本手法では減圧沸騰噴霧による溶液の蒸発は薄膜、ナノ粒子の特性に大きく影響を及ぼす。特に雰囲気圧力は内燃機関で対象となる雰囲気圧と比較して低い10<sup>-2</sup>~数Paの真空条件であり、大きな減圧度における減圧沸騰噴霧特性を把握し制御する必要がある。本研究者は大きな減圧度における減圧沸騰噴霧の特性を実験、計算から明らかにしてきた。図1は過去に行ったTEOS/n-

ペンタン混合溶液の減圧沸騰噴霧のシミュレーション結果と実験結果を比較したものである<sup>(6)</sup>。本シミュレーション結果は千田らが提案した減圧沸騰モデル<sup>(7)</sup>を減圧場に適用して計算したものである。シミュレーション結果は実験結果を再現しているとは言い難く、安定的に計算できるのは雰囲気圧2kPaにとどまる。この結果は現在提案されている減圧沸騰モデルを10<sup>-2</sup>~数Paの減圧度の大きな条件に適用すると、実験結果のような噴霧形状を再現することは難しく、安定的な減圧沸騰噴霧の計算を行うことができないことを示している。これはモデルに気泡核の急激な成長を考慮していないためである。減圧沸騰モデルはノズル内部と液滴内の気泡核生成・成長および気泡の崩壊に伴う液滴の分裂を考慮し、計算を行う。減圧沸騰モデルでは液滴内で初生する気泡の気泡核数と初期気泡径を設定する。ここで、気泡核数は減圧度に依存し、初期気泡径は20μmと文献から得た値としている。このモデルを用いて高真空条件での計算を行うと、ノズル内部で気泡が大量に生成、成長し、実験では見られないガスのみが噴出されてしまう計算結果となる。これを回避するため、しばしば計算する雰囲気圧条件においては気泡核数を制限する。また、溶存空気から気泡が初生すると考えると初期気泡径の20μmという仮定は減圧沸騰を考慮するには大きな値といえる。このように現状では気泡核数、初期気泡核は減圧場に対応した値を設定せずに計算を実行しているため、減圧沸騰現象を再現できておらず、これらを減圧場に対応したものに修正する必要がある。なお、気泡核数、初期気泡径に関する気泡核生成についてはレビュー記事、教科書が多数出版されている<sup>(8)</sup>が、気泡の核生成数、初期気泡径については未だに解明されていない。

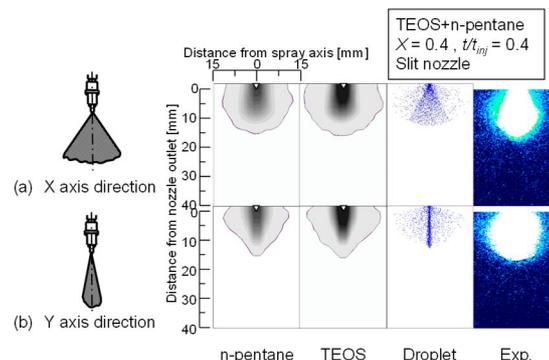


図1 減圧沸騰噴霧の数値計算結果の例<sup>(6)</sup>

減圧沸騰モデルはノズル内部と液滴内の気泡核生成・成長および気泡の崩壊に伴う液滴の分裂を考慮し、計算を行う。減圧沸騰モデルでは液滴内で初生する気泡の気泡核数と初期気泡径を設定する。ここで、気泡核数は減圧度に依存し、初期気泡径は20μmと文献から得た値としている。このモデルを用いて高真空条件での計算を行うと、ノズル内部で気泡が大量に生成、成長し、実験では見られないガスのみが噴出されてしまう計算結果となる。これを回避するため、しばしば計算する雰囲気圧条件においては気泡核数を制限する。また、溶存空気から気泡が初生すると考えると初期気泡径の20μmという仮定は減圧沸騰を考慮するには大きな値といえる。このように現状では気泡核数、初期気泡核は減圧場に対応した値を設定せずに計算を実行しているため、減圧沸騰現象を再現できておらず、これらを減圧場に対応したものに修正する必要がある。なお、気泡核数、初期気泡径に関する気泡核生成についてはレビュー記事、教科書が多数出版されている<sup>(8)</sup>が、気泡の核生成数、初期気泡径については未だに解明されていない。

### 2. 研究の目的

本研究では減圧沸騰における液滴内の気泡核の生成、成長、崩壊を明らかにすることを目的としている。気泡は壁面などから気泡核が形成される均一核生成と溶存気体から気泡核が形成される不均一核生成に分けられる。本研究期間においては発生頻度の多い不均一核生成に注目し、不均一核生成による液滴の減圧沸騰現象を明らかにすることを目標としている。

### 3. 研究の方法

本研究では均一核生成を起こさないためには単一液滴を浮遊させ、これを減圧沸騰により微粒化させる実験装置を構築し、減圧沸騰による微粒化、気化を評価する。またシミュレーションにより、液滴および噴霧の減圧沸騰過程における現象を解明する。具体的な研究方法については以下に示す。

- (1) 単一液滴の浮遊方法には超音波定在波によるものとした。まず、超音波定在波により液滴を浮遊させる装置を構築した。浮遊液滴は連続光源および拡大光学系を用いた高速度ビデオカメラを用いた。そして、これを減圧できるように装置を改良し、その様子を観察した。
- (2) 千田らが提案したモデルを基に真空場対応の減圧沸騰の0次元計算プログラムを構築し、単一液滴の減圧沸騰による蒸発計算を行った。気泡成長理論はRayleigh-Plessetの式により、計算する事ができる。この方程式は減圧沸騰モデルではRunge-Kutta法を用いて計算されている。本研究ではまず、この計算精度を厳密解と比較することにより検証し、タイムステップを最適化した。そして、最適化したタイムステップにより気泡の成長計算を行った。

- (3) 熱流体汎用シミュレーションソフトウェアの OpenFOAM を用いて、噴霧の減圧沸騰シミュレーションを試みた。まず、計算プログラムの検証のために OpenFOAM で使用されている微粒化モデルである LISA モデルの検討のため、実験結果と比較した。そして、減圧沸騰シミュレーションができるように新たに減圧沸騰モデルを構築、組み込み計算を試みた。

#### 4. 研究成果

- (1) まず、構築している液滴浮遊装置の安定的な液滴の浮遊条件の最適化を行った。その結果、反射板の形状を最適化することにより、直径 0.5 mm の水液滴の安定的な浮遊に成功した。図 2 は反射板の半径が 40 mm の時の液滴重心の位置の軌跡を示したものである。なお、初期位置は 800 枚撮影した位置の重心を示している。浮遊した液滴は超音波の照射方向および重力の影響により、縦長形状となる。液滴は鉛直方向に 40  $\mu\text{m}$ 、水平方向に 15  $\mu\text{m}$  運動することが分かった。本成果は第 30 回微粒化シンポジウムにおいて発表した。そして、本浮遊装置を急減圧できる実験装置を構築し、実験に取り掛かったが、急減圧を達成できたものの、要求性能を満足できなかった。引き続き、実験装置の改良を進めている最中である

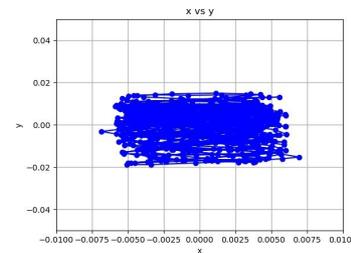
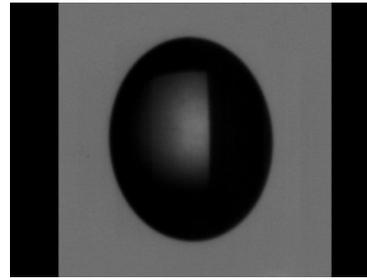


図 2 液滴の水平方向に超音波を照射した際における液滴重心の軌跡

- (2) 減圧沸騰モデルで用いられている方程式の解を厳密解と比較したところ、タイムステップは 10 ns 以下で収束することを確認した。そのタイムステップにより気泡半径の時系列変化を計算したものが図 3 である。初期気泡径は 10  $\mu\text{m}$ 、雰囲気温度は 293 K で初期雰囲気気圧力は 101.3 kPa である。タイムステップの最適化により雰囲気気圧力 100 Pa までの気泡核計算を達成することができた。この結果より、これまで薄膜、微粒形成の雰囲気における計算が不安定となっていた原因は過去の研究においてタイムステップを詳細に検討していなかったことが一因であるといえる。また、この図で、各雰囲気気圧力における気泡半径を比較したところ、数 100 ns の範囲では気泡径はほぼ同等となる。これは気泡壁の流体圧力は飽和蒸気圧力および気泡の成長に伴う表面張力、粘性係数などより計算されるが、気泡の成長の初期では飽和蒸気圧力による影響が大きいためである。

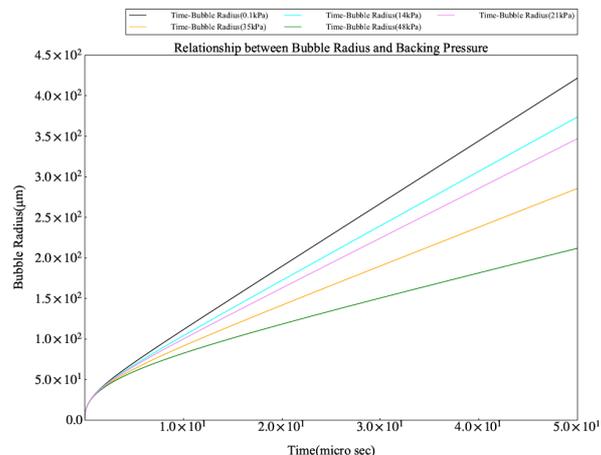


図 3 気泡半径の時系列変化

- (3) 減圧沸騰モデルは微粒化モデルと密接に関係しており、微粒化モデルの LISA モデルと減圧沸騰モデルの検証が必要となる。減圧沸騰モデルには OpenFOAM にあらかじめ用意されている沸騰モデルを改良して用いた。また、微粒化モデルの LISA モデルも減圧沸騰噴霧を計算できるように改良した。図 4 は溶液に n-ヘプタンを用いて構築した減圧沸騰モデルにより計算したものである。なお、左の図は大気

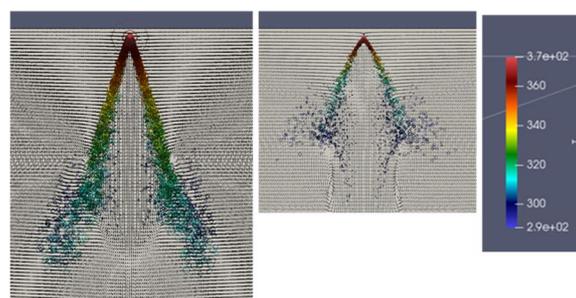


図 4 構築した減圧沸騰モデルにより計算した噴霧液滴の様子（左図：大気圧中に噴射したとき、右図：過熱度が 30 K のときの減圧沸騰噴霧）

圧に噴射したときの非減圧沸騰条件であり，右図は減圧沸騰条件として過熱度を 30 K に設定したときの噴霧の画像である．本結果は減圧場の雰囲気中で計算したものではないため，厳密には減圧場の噴霧の計算に成功したとは言えないが，減圧場における噴霧シミュレーション達成までの大きな成果といえる．

#### 参考文献

- (1) 例えば G. Zhang, *Exp. Fluids*, Vol.55, (2014), 1804, DOI 10.1007/s00348-014-1804-7.
- (2) M. Oshima, et al., *ICLASS 2015*, Tainan, Taiwan, Aug. 23-27, 2015.
- (3) 米田ら，*微粒化*，Vol. 23, No. 79, (2014), pp. 61-67 .
- (4) 大嶋ら，*電気学会論文誌 A*， Vol.6, No.128, (2008), pp.456-457 .
- (5) 大嶋ら，*機論 (B 編)* Vol. 74, No. 742, (2008), pp.1403-1410 .
- (6) 大嶋ら，*第 16 回微粒化シンポ*，(2007) .
- (7) 川野ら，*機論 (B 編)* Vol.71, No.170, (2005), pp.2545-2551 .
- (8) 例えば西尾，*沸騰熱伝達の基本構造と冷却制御工学への応用*，東京大学生産技術研究所セミナー資料，(1990).

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 1件）

1. 発表者名 大嶋元啓, 小島進太郎, 坂村芳孝
2. 発表標題 定在波音場中における浮遊液滴の運動
3. 学会等名 第30回微粒化シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大嶋元啓, 中山勝之, 坂村芳孝
2. 発表標題 OpenFOAMの粒子追跡ソルバsprayFoamにおける蒸発モデルの検討
3. 学会等名 オープンCAE・FrontISTR合同シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大嶋元啓, 上野健太, 坂村芳孝
2. 発表標題 音場浮遊液滴の可視化
3. 学会等名 北陸流体工学研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Motohiro OSHIMA, Kenta UWANO, Yoshitaka SAKAMURA
2. 発表標題 Dancing Droplet Family
3. 学会等名 ILASS-Asia 2019 Atomization Photo Contest (国際学会)
4. 発表年 2019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
---------	---------