

音場浮遊液滴における内外流動と 物質輸送の相互関係の解析

13320271 坂本 欣士郎
Kinshiro Sakamoto

**Analysis of Interrelationship between Internal and External Flow Structure and
Substance Transport in Acoustic Levitated Droplet**

Abstract

Levitated droplet technique is expected to solve difficulty in measuring properties of high-temperature molten material as a container-less processing. Furthermore, it can prevent a very small amount of sample from being contaminated and adsorbed owing to container walls. Previous studies suggest that an acoustic streaming is generated around the levitated droplet when the droplet is levitated acoustically. The streaming generate an internal/external flow around the interface of a droplet and the flow field influence transport phenomenon such as evaporation or condensation each other. The purpose of present study is to investigate the influence by numerical analysis. The external flow field structure was obtained by a level-set method code. Furthermore, a solver of diffusion equation was coupled with it, and the influence between the flow field and evaporation was investigated. From the result, it turns out that spouting velocity from the interface of a droplet accelerates the external flow, but it doesn't change the structure.

Key Words : Acoustic Levitated Droplet, Level-Set Method, Flow Structure

目次

第 1 章 諸言	2
1.1 背景	2
1.2 音場浮遊法の概要	3
1.3 先行研究及び本研究の目的	7
第 2 章 解析手法	11
2.1 解析条件	11
2.2 計算環境	11
2.3 液滴内外流動解析コード	11
2.3.1 基礎方程式並びに解法	11
2.3.2 境界条件及び音響流再現方法	16
2.3.3 格子依存性	17
2.3.4 時間依存性	22
2.4 濃度拡散現象解析コード	25
2.4.1 基礎方程式並びに解法	25
2.4.2 解析解との比較	27
2.5 カップリング	29
第 3 章 液滴外部流動における結果と考察	30
3.1 液滴内外流動解析コード単体による解析	30
3.2 カップリングコードによる解析	35
第 4 章 液滴内部流動における結果と考察	41
4.1 液滴内外流動解析コード単体による解析	41
4.1.1 実験との比較及び液滴物性値の影響	41
4.1.2 独立した流れ場としての解析	44
4.2 カップリングコードによる解析	47
第 5 章 結言	51
文献目録	51

第1章 諸言

1.1 背景

現在、液体を浮遊させる液滴浮遊技術の利用に対して、従来には無かった新しい測定技術や材料製造技術への展開が期待されている。液滴浮遊技術とは、地上重力環境下において何らかの保持力によって重力を打消し目的の位置に液滴を浮遊させ、留めておく技術である。これまでに様々な保持力を利用した浮遊法が考案されている。超音波の放射圧を利用した音場浮遊法や電磁力を利用した電磁浮遊法、クーロン力を利用した静電浮遊法、磁性を利用した磁場浮遊法、高速のガスを利用したガスジェット法などがあり、以上の浮遊法を組み合わせたようなハイブリッド浮遊法もある。それぞれで浮遊可能な液体の種類や、質量、位置制御の簡便さなどが異なる。以下に液滴浮遊技術の応用例を 2 つ述べる。

粘性・表面張力測定法

低粘性の液滴に対しては液滴界面の振動に起因する液滴径の時間変化に FFT 解析を行うことで n 次の振動モードでの共振角周波数を算出し、また減衰係数を測定して以下の式(1), (2)を用いることで粘性係数及び表面張力を算出する液滴振動法が適用されている。

$$\mu = \frac{\rho r_0^2}{(n-1)(2n+1)\tau_n} \quad (1)$$

$$\sigma = \frac{1}{n(n-1)(n-2)} \omega_n^2 r_0^3 \quad (2)$$

ここで μ は粘性係数、 ρ は密度、 r_0 は振動前の液滴半径、 n は振動モードの次数、 τ_n は n 次の振動モードでの減衰係数、 σ は表面張力、 ω_n は n 次の振動モードでの共振角速度である。

また、振動を誘起させることが困難な高粘性の液滴の粘性係数測定には液滴を回転させ、fig. 1-1 のように変化した液滴の形状の緩和時間を測定し、式(3)から表面張力が既知な液体の粘性係数を算出する方法が考案されている。

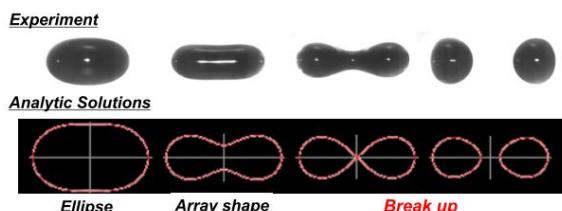


fig. 1-1 A rotating droplet [1]

ref.; Y. Abe, S. Matumoto, T. Watanabe et al., "Nonlinear Dynamics of Levitated Droplet," *Int. J. Microgravity Sci. Appl.*, vol. 30, pp. 46, Fig.13, (2013).

$$\mu = \frac{\sigma}{-(dD_{mid}/dt)} \quad (3)$$

ここで μ は粘性係数, σ は表面張力, D_{mid} は液滴中央部の直径を表す. 高粘性の液滴に対しても以上のような計測方法が提案されているものの, 0.1~100 Pa·sの試料に対する計測方法は未だ確立されていない.

このような試料と非接触での物性値の測定法を用いることで, 計測器及び保持する容器からのコンタミネーションや, 容器が先に溶融してしまうといった理由から困難とされてきた重力環境下での融点が 2000°Cを超えるような高温融体の熱物性値測定が可能となる. 表面張力や粘性係数などの正確な熱物性値の計測により, 原子炉事故によってメルトダウンが引き起こされ発生する溶融炉心などの高温融体の, より正確な流動解析が可能となる [1, 2, 3].

無容器プロセッシングによる材料製造

材料製造において無容器プロセッシングを利用する大きなメリットとして, 容器壁面からの不純物混入の回避及び容器壁面を優先サイトとする不均一核生成の抑制による材料の高純度化及び均質化が挙げられる. 融液から凝固核が生成される過程は容器壁面や融液中の不純物などの異物質による触媒作用に大きく依存する. 従来の地上重力環境下における容器を用いた材料製造の場合, 核生成により容器壁面から先行して凝固していくことで材料内部に不均質な結晶構造を生じてしまう. 浮遊法による容器壁面に非接触である無容器プロセッシングを利用した場合, 核生成が発生しないため凝固点以下となっても融液の凝固が開始しない過冷却現象が発生する. 過冷却状態にある融液は何らかのきっかけによって凝固が始まると通常の凝固現象よりも急速に進行する. これによって不均質な結晶構造を有しない従来よりも均質で高品質な材料を製造することが可能となる [2, 4].

また, 極微小量の試料を扱う際の容器壁面への吸収・吸着を回避する方法としても浮遊液滴技術は期待されている. 分析化学において必要とされる試料の量は ml, μl 程度の極微少量である. 試料を分析器にかける前には適当な状態にするための濃縮・分離・抽出・誘導体化といった前処理が必要となる. こういった処理過程において極微量の試料を扱う場合に試料の容器壁面への吸収・吸着が問題となる. 従来では試料を大容量としたり, 特殊な容器を用いたりすることでこれらの問題を回避してきたが, 液滴浮遊技術による無容器プロセッシングを用いることで大容量処理に比べ処理時間を短縮し, 特殊な容器を用いるよりもコストを削減することが可能となる [1, 5].

1.2 音場浮遊法の概要

前述した様々な浮遊方法の内, 本研究の対象である音場浮遊法の概要について述べる. 音場浮遊法とは fig. 1-2 のように試験部間に音響定在波を発生させ音響放射圧によって地上において物体にかかる重力をキャンセルし, 固体や液体などを空間上の希望する位置に保持・制御する方法である. 上下どちらか片側に設置した振動子から入射した超音波をもう片方の反射板によって反射することでテスト部間に音響定在波を発生させ, 定在波中に液滴を注入すると液滴の重力と音響放射圧の釣り合う定在波の節付近に液滴が保持される. 他の浮遊法と比較した場合の長所として以下のようものが挙げられる.

- 保持力として作用する音響定在波が容易に作成できる.
- 浮遊させる液体の種類に依存しない. 静電浮遊では液体が帶電物質である必要

があり、磁力浮遊法では磁性流体である必要がある。

- 大きな粒径の液滴も浮遊させることが可能である。
 - 定在波の節近くに存在する安定点からずれると音圧により復元力が働き、元の安定点または隣の節近くの安定点に移動するために液滴の制御が容易である。
- 短所としては以下のようないふしが挙げられる。
- 次節で説明する音響流による外乱が存在する。
 - 媒質に大きな温度変化があった場合、音速が変化するため安定点の位置がずれるなどして制御上の不安定化がある。
 - 液滴の形が音響放射圧によって若干扁平に変形してしまう。

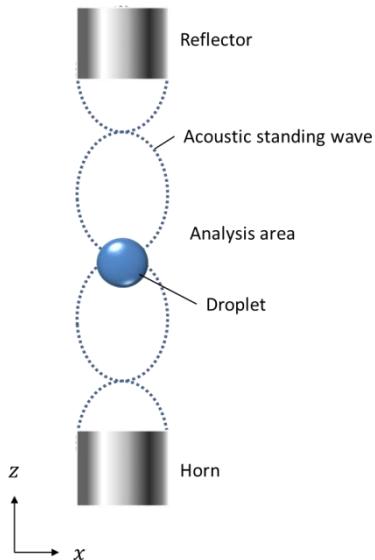


fig. 1-2 A schema of the acoustic standing wave and a levitated droplet

音場浮遊法を用いた場合、超音波によって液滴内外部に音響流が形成されることが知られている。音響流とは、音波の 2 次の非線形効果によって生じる流れの総称である。ここでの音波は線形波動方程式に従う線形音波を指す。音波には時間に関する 0 次のフーリエ成分つまり直流成分が含まれないため、線形音波はエネルギーを輸送しても物質は微小振幅を繰り返すのみで輸送しないと思われる。実際、音波の振幅が微小な範囲では物質輸送は働くかない。しかし、音波の振幅が増大すると 2 次高調波とともに直流成分が微小ながらも無視できないほど増大し、質量輸送という形での非線形効果、つまり流れが観測される。この非線形効果による流れを音響流と呼ぶ。通常、音響流の速度は個々の流体粒子の速度を音波の 1 周期間の時間で平均化して定義される。以下に本研究に関する 2 種類の音響流を示す。

Schlichting の音響流

物体と流体間または二層流体の界面に存在する、粘性が支配的な領域である極めて薄い振動境界層（ストークス層とも呼ばれる）内で発生する流れである。境界層内では、音波の横波成分は急激に減衰するため駆動力が発生するが、縦波成分は減衰距離が小さく駆動力への寄与は無視できる程度のものとなる。音場内に円柱や剛球、気泡、液滴を挿入した

際の周囲に観測される。特に気泡が音波と共振する際には振動速度が大きくなり、気泡の外部だけでなく内部にも流れが発生することが知られている [2, 6].

Rayleigh の音響流

fig. 1-3 のように二枚の平行な平板間を流体が満たしており、平板に沿う方向に x 軸、速度の x 軸方向成分を u としたとき、

$$\begin{aligned} u &= -U \sin(\omega x/c_0) \cos \omega t \\ p &= p_0 c_0 U \cos(\omega x/c_0) \sin \omega t \end{aligned} \quad (4)$$

で表せるような定在波が平板間に存在するとする。図中で p は基準圧力 p_0 からの変動分を、 c_0 は音速、 ω は角速度を表す。振動境界層内部の領域と外部の領域に分割する接続漸近展開法を導入すると、境界層外部の定常な速度成分 $\lim_{y/\delta \rightarrow \infty} \bar{u}$ は、

$$\lim_{y/\delta \rightarrow \infty} \bar{u} = -\frac{U^2}{c_0} \sin 2(\omega x/c_0) \times \left\{ \frac{3}{8} + \frac{(\gamma - 1)\sqrt{Pr}}{4(Pr + 1)} \right\} \quad (5)$$

となる。ここで δ は振動境界層の厚さ、 γ は理想気体の比熱比、 Pr はプラントル数である。Rayleigh の音響流は式(5)で表される速度で振動境界層外部に誘起される渦状の流れであり、音波の波長程度の大きさである。Rayleigh の音響流は振動境界層内部の Schlichting の音響流に引きずられて発生すると考えられている [2, 6]. fig. 1-4 で Rayleigh の音響流が outer steady streaming として、Schlichting の音響流が inner steady streaming として模式的に描かれている。fig. 1-5 に振動させた円柱周りに発生した Rayleigh の音響流が撮影された画像を示す。

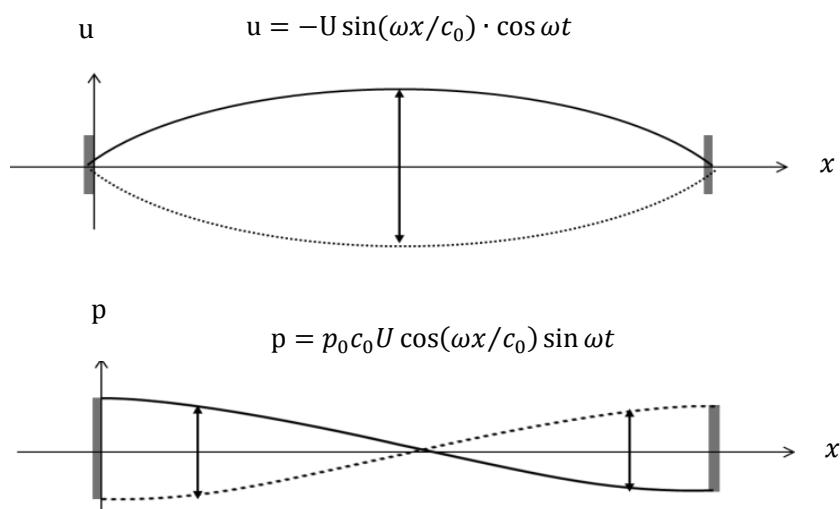


fig. 1-3 Field of axial velocity and pressure between two parallel plates

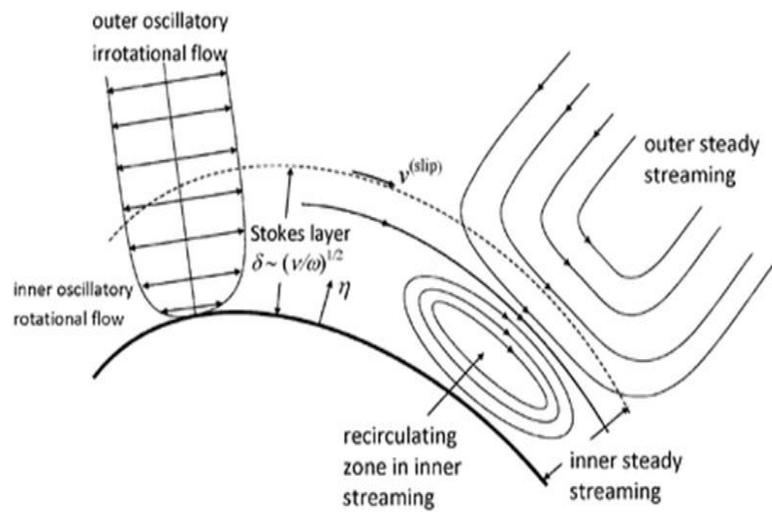


fig. 1-4 A schema of Rayleigh's sound stream and Schlichting's sound stream [19]

ref. ; S. S. Sadhal, "Analisis of acoustic streaming by perturbation methods," *The Royal Society of Chemistry*, vol. 12, p.2293, fig1, 2012.

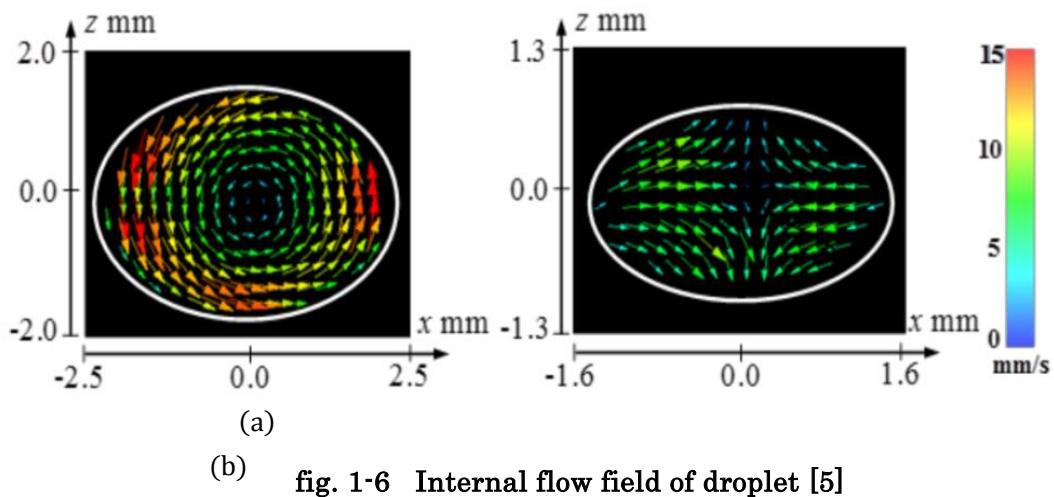


fig. 1-5 A photograph of Rayleigh's sound stream [19]

ref. ; S. S. Sadhal, "Analisis of acoustic streaming by perturbation methods," *The Royal Society of Chemistry*, vol. 12, p.2295, fig3, 2012.

1.3 先行研究及び本研究の目的

前述の音響流が形成されると、液滴界面において試料の微小な蒸発・凝縮が生じることによる物質輸送が液滴内部・外部流動構造と相互に影響を及ぼしあうことが JAXA 宇宙環境利用科学委員会研究班ワーキンググループ「浮遊液滴非線形ダイナミクス」の実験グループである筑波大学 阿部豊教授らによる先行研究群 [5, 7]によって示唆されている。これらの研究では蒸気圧の異なる水やエタノール、ヘキサン、及びそれらの混合液を浮遊させ、液滴の内部及び外部を PIV 計測することによって流動構造を観測している。この観測結果によると蒸気圧の違いによって液滴の内外流動構造が異なることが示唆されている。fig. 1-6, fig. 1-7 にそれぞれ内部流、外部流の計測結果を示す。内部流においては、水液滴では液滴中心を淀み点とする一つの反時計回りの循環渦が、エタノール液滴では側面から中心へと流れ、中心から上部及び下部へと流れていることが確認できる [5]。外部流ではエタノール混合割合 30%以下の飽和蒸気圧を有する液滴の場合は液滴から上部及び下部へ噴出するような方向への流れが見られ、エタノール混合割合 50%以上の飽和蒸気圧を有する液滴の場合には上部及び下部から液滴に流入する方向への流れに加え、液滴界面近傍に循環流が見られる。また、飽和蒸気圧が大きくなるにつれて循環渦のサイズが小さく、薄くなることが確認されている [7]。以上のような蒸気圧の違いによる流動構造の変化から、液滴内外流動が蒸発挙動に影響を及ぼし、且つ蒸発による液滴周りの試料濃度勾配の変化が流動構造に影響を与えることによって流動構造に違いが見られると推測されているものの、明確な理由は解明されていない [5, 7, 8]。



(a :water droplet, b :ethanol droplet)

ref. ; H. Ishii, "Internal and External Flow Structure and Mass Transport Phenomena of an Acoustically Levitated Droplet," *Transactions of the JSME (Part B)*, vol. 78, no. 794, p. 32, fig.10, (2012).

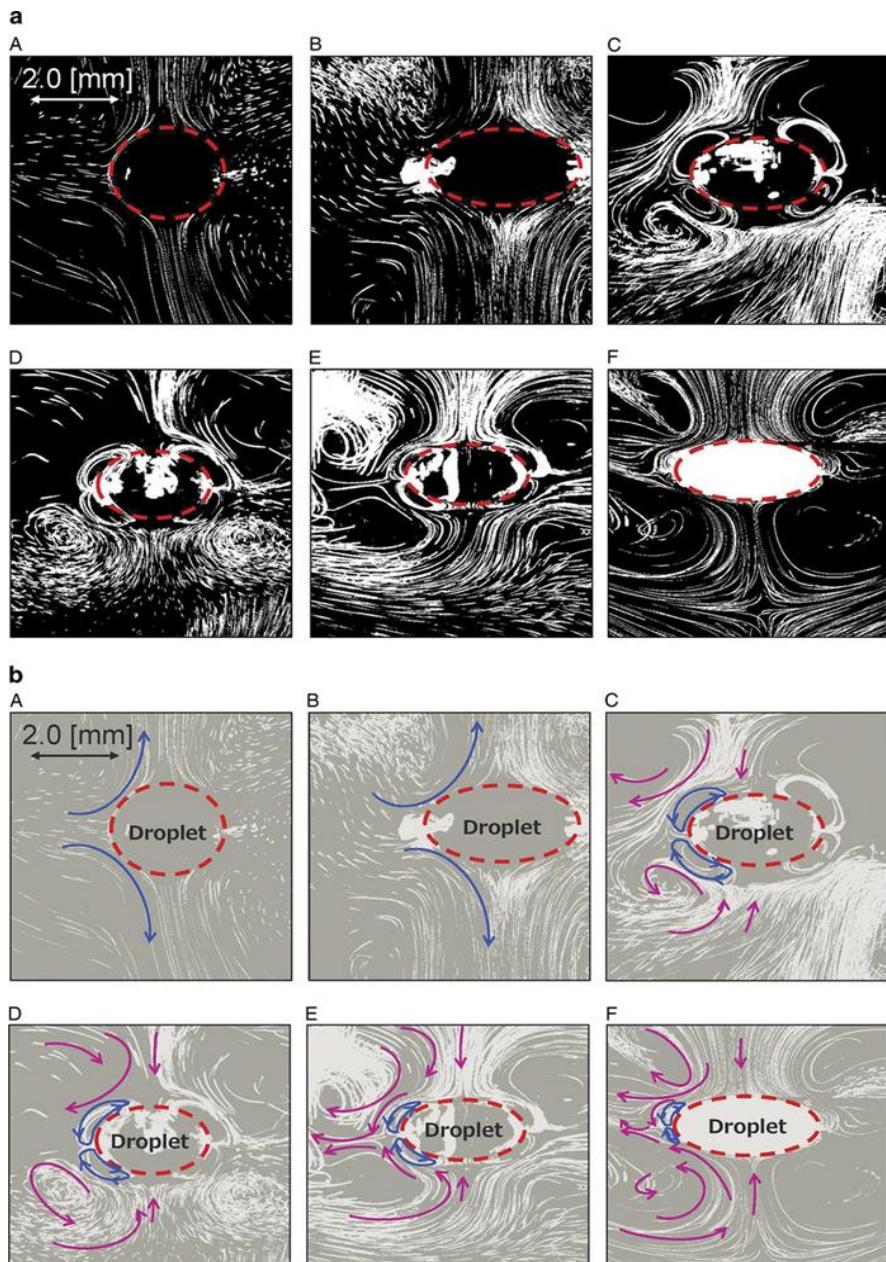


fig. 1-7 External flow field of droplet [8]

a; Flow field in the vicinity of the droplet interface

b; The flow direction

(A)water, (B)~(D)ethanol solution(B: 25 wt%,C: 50 wt%, and D:75 wt% ethanol)

(E) ethanol, and (F)hexane

ref. ; K. Hasegawa, Y. Abe and A. Goda, "Microlayered flow structure around an acoustically levitated droplet under a phase-change process," *npj / Microgravity* (*Published online*), vol. 2, p 2, fig1, 10 March (2016).

また、実験グループは無次元化した液滴径の時間変化を計測して式(6)と比較した。式(6)は d^2 則と呼ばれる、強制対流により蒸発が促進されている場合の液滴の径変化を理論的に導出した式である [9]。

$$\left(\frac{d}{d_0}\right)^2 = 1 - \frac{8DM}{\rho R} \left(\frac{p_s}{T_s} - \frac{p_\infty}{T_\infty}\right) \frac{Sh}{2} \frac{t}{d_0^2} \quad (6)$$

$$Sh = 2 + 0.6Re^{1/2}Sc^{1/3} \quad (7)$$

$$Re = \frac{Ud}{\nu}, \quad Sc = \frac{\nu}{D} \quad (8)$$

ここで、 d, d_0 はそれぞれ時々刻々の液滴径、初期液滴径、 D は拡散係数、 M は分子量、 ρ は液滴密度、 R は気体定数、 p は蒸気圧、 T は温度、 U は代表速度、 ν は動粘性係数を表し、下付き添え字の s は液滴表面、 ∞ は周囲気体を示す。シャーウッド数 Sh は式(7)によって、レイノルズ数 Re 、シュミット数 Sc は式(8)によって定義される。実験グループは式(8)中の代表速度 U に液滴周りの流動または液滴界面近傍の循環渦の速度を代入して求めた理論値と実験値を比較した。比較結果を fig. 1-8 に示す。左図が水液滴、右図がエタノール液滴の結果である。曲線 (Eq.(2)) は対流を考慮していない結果であり、破線は液滴周りの流動速度を代入した結果、一点鎖線は界面近傍の循環渦速度を代入した結果、プロットは実験結果を表す。水液滴は理論と定量的に一致している。エタノール液滴は約 300s 付近までは近い値を取っているため、液滴界面の循環渦が蒸発を促進していることが示唆されていると結論付けられた。しかし、300s 付近以降は理論と一致しておらず、理論構築において考慮すべき現象を把握できていないことが示唆されている。

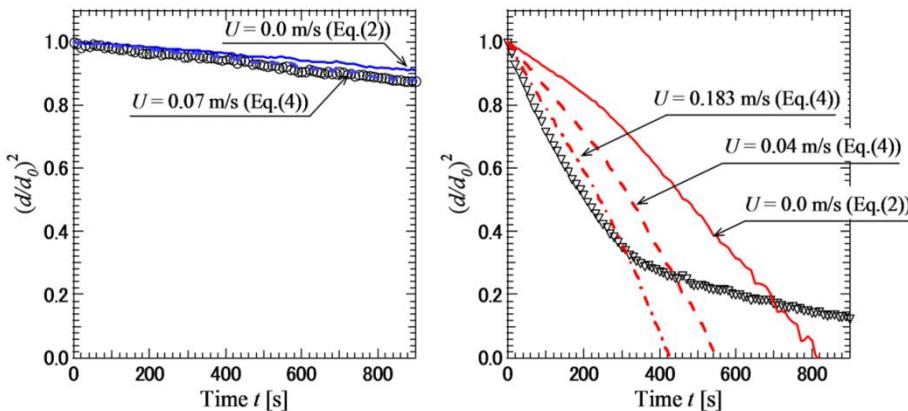


fig. 1-8 Effect of external flow on mass transfer rate of the levitated droplet [5]

(left :water droplet, right :ethanol droplet)

ref. ; H. Ishii, "Internal and External Flow Structure and Mass Transport Phenomena of an Acoustically Levitated Droplet," *Transactions of the JSME (Part B)*, vol. 78, no. 794, p. 35, fig.16, (2012).

以上に述べたような音場浮遊液滴に見られる非線形な挙動のため、実現象を完全に捉えた理論は未だ確立されていない。1.1 節で述べたような液滴浮遊を応用した技術を確立するにはこのような非線形挙動を流体力学的知見から明らかにし、理論を構築することが求められている [1]。本研究では、まず初めにレベルセット法を用いた音場浮遊液滴解析コードを用いて液滴内外流動場を 2 次元で解析し、実験と比較することでコードの妥当性の検討を行う。次に液滴からの物質輸送による濃度勾配の非定常変化を解析するコードをカップリングして 2 次元で解析を行う。以上の解析により、液滴内外流動場や、蒸発挙動が外部流動場に及ぼす影響を検討し、理論構築の基盤となるような知見を明らかにすることで応用技術の確立に貢献することを目的とする。

本稿の構成は第 2 章で使用した解析コードの計算手法や条件を説明し、解析結果及び考察を液滴外部流に対するものと内部流に対するものとに分割してそれぞれ第 3 章、第 4 章にて示し第 1 章で立てた本研究の目的に対する成果や今後の課題を述べる。第 5 章では本研究によって得た知見を端的にまとめて述べる。

第2章 解析手法

2.1 解析条件

本研究では水蒸気を含む大気圧下における室温(本研究では 25°C)の湿り空気中に水液滴またはエタノール液滴を音場によって浮遊させているものとした. Table 1に本研究に関わる化学便覧から参照した物性値をまとめたものを示す.

Table 1 Physical property values of droplet and ambient air

	Water	Ethanol	Ambient air
Viscosity coefficient μ [Pa·s]	1.004×10^{-3}	1.200×10^{-3}	1.822×10^{-5}
Density ρ [kg/m ³]	998.3	789.0	1.205
Temperature T [°C]	25	25	25
Surface tension σ [N/m]	0.0726	0.0224	—
Saturated vapor pressure e_s [hPa]	31.98	43.42	—
Molar mass M [g/mol]	18.0	46.1	—
Relative humidity rh [%]	—	—	50

2.2 計算環境

Table 2 に本研究で使用した計算環境を示す.

Table 2 Computing environment

CPU	Intel Xeon E5-2699v3
OS	CentOS6.7 64bit 2.3GHz ×18
Memory	128GB
Programming language	fortran90
Compiler	Intel Fortran
Parallel library	Intel MPI

2.3 液滴内外流動解析コード

2.3.1 基礎方程式並びに解法

液滴内外流動を解析するコードは以下の基礎方程式によって構成されている.
非圧縮性流体の連続の式

$$\nabla \cdot u = 0 \quad (9)$$

非圧縮性ナビエストークス方程式

$$\rho \frac{Du}{Dt} = -\nabla p + \nabla \cdot \mu(\nabla u + u\nabla) - \sigma\kappa\delta_{(\emptyset)}\mathbf{n} \quad (10)$$

音速を表す式(疑似圧縮性の導入)

$$d\rho = dp/a^2 \quad (11)$$

レベルセット関数の移流式

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + u \cdot \nabla \phi = 0 \quad (12)$$

ただし, u は速度, ρ は密度, p は圧力, μ は粘性係数, ϕ は空間上の実数値関数を表す. $-\sigma\kappa\delta_{(\emptyset)}\mathbf{n}$ は表面張力項を表し, σ , κ , $\delta_{(\emptyset)}$, \mathbf{n} はそれぞれ表面張力係数, 曲率, ディラックのデルタ関数, 界面の単位法線ベクトルである. また, a は音速を表す. ϕ は二相流体解析において利用されるレベルセット法に用いられる関数であり, ここでは $\phi=0$ で液滴界面, $\phi>0$ で気相, $\phi<0$ で液相と定義する. また, $|\phi|$ は液滴界面からの距離を表す. ϕ を用いることで液滴の界面形状及び表面張力を考慮することが可能となる [10, 11]. また, ディラックのデルタ関数 $\delta_{(\emptyset)}$ は, 式(13)で表されるヘヴィサイド関数 $H(\phi)$ の ϕ 方向の微分と定義される.

$$H(\phi) = \begin{cases} 0 & (\phi < 0) \\ 1 & (\phi > 0) \end{cases} \quad (13)$$

$$\delta(\phi) = \frac{\partial H(\phi)}{\partial \phi} \quad (14)$$

しかし, このままでは $\phi=0$ で不連続となり, 数値計算上不安定となる. そこで, 式(15)のように微小な値 ε をとってスムージングされたヘヴィサイド関数 $H_\varepsilon(\phi)$ を用いる. スムージングされたディラックのデルタ関数 $\delta_\varepsilon(\phi)$ を式(16)に示す.

$$H_\varepsilon(\phi) = \begin{cases} \frac{1}{2} \left\{ 1 + \frac{\phi}{\varepsilon} + \frac{1}{\pi} \sin\left(\frac{\pi\phi}{\varepsilon}\right) \right\} & (\phi < -\varepsilon) \\ 1 & (-\varepsilon \leq \phi \leq \varepsilon) \\ \frac{1}{2} \left\{ 1 + \cos\left(\frac{\pi\phi}{\varepsilon}\right) \right\} & (\varepsilon < \phi) \end{cases} \quad (15)$$

$$\delta_\varepsilon(\phi) = \frac{\partial H_\varepsilon(\phi)}{\partial \phi} = \begin{cases} \frac{1}{2} \left\{ 1 + \cos\left(\frac{\pi\phi}{\varepsilon}\right) \right\} & (-\varepsilon \leq \phi \leq \varepsilon) \\ 0 & (otherwise) \end{cases} \quad (16)$$

以上のスムージングによって本来厚みを持たない界面は 2ϵ の厚みを持つものとして扱われる。以上のスムージングの概念図を fig. 2-1 に示す。

また、密度 ρ 、粘性係数 μ についても液滴界面で不連続となるので数値計算上の不安定を防ぐために、スムージングされたヘヴィサイド関数を用いて式(17), (18)のように定義する。

$$\rho(\emptyset) = \rho_l + H_\epsilon(\emptyset)(\rho_g - \rho_l) \quad (17)$$

$$\mu(\emptyset) = \mu_l + H_\epsilon(\emptyset)(\mu_g - \mu_l) \quad (18)$$

ここで下付き添え字の g, l はそれぞれ気相、液相での値であることを示す。 ϵ はスムージングを行う微小範囲であり、本コードでは $\epsilon = 0.00025$ としている。fig. 2-2 にスムージングした物性値の概念図を示す。

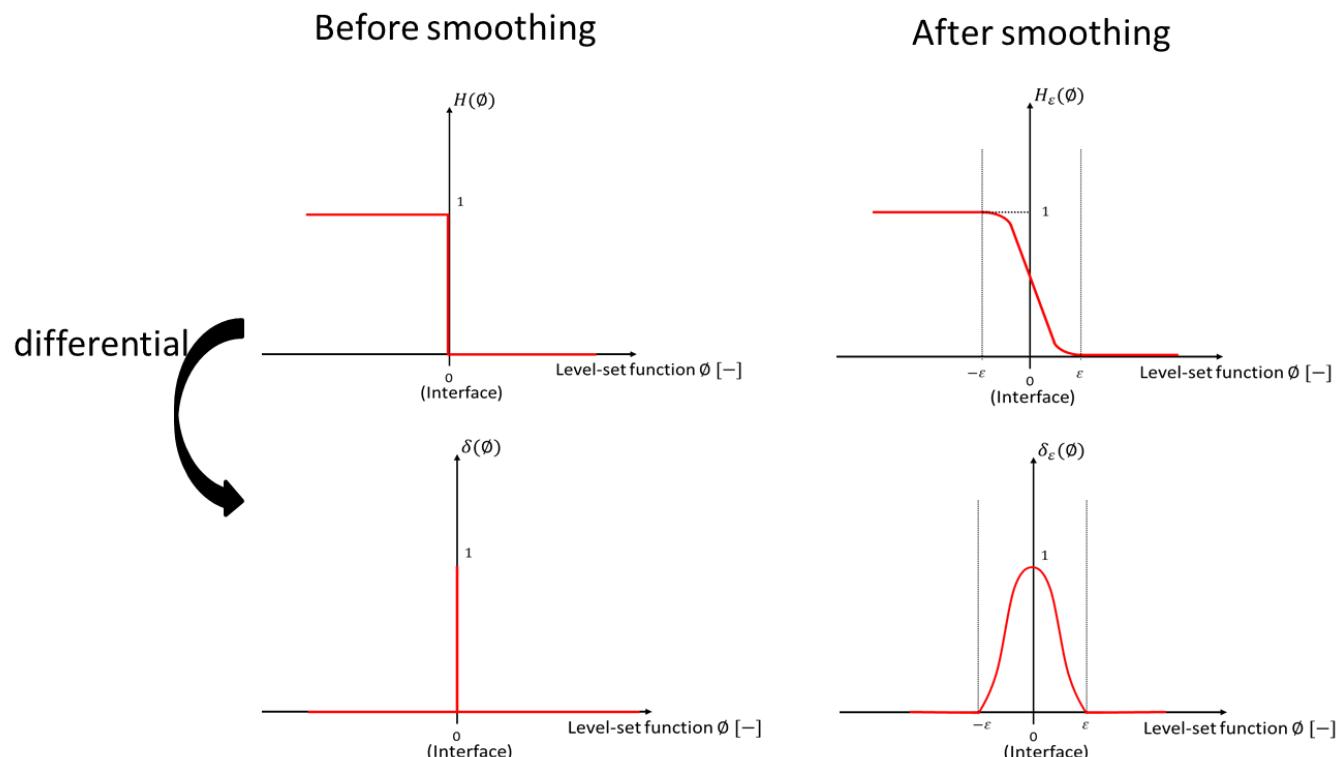


fig. 2-1 A schema of the smoothed heaviside function and dirac delta function

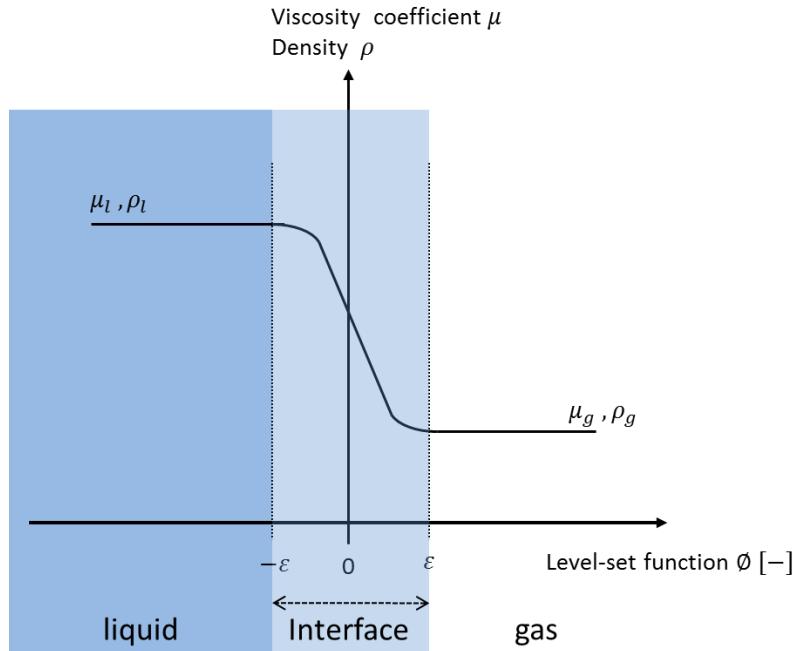


fig. 2-2 A schema of smoothing parameters

以下に SMAC 法 [12]を利用した計算アルゴリズムを記述する。ただし、上付き添え字の $n, n+1$ でそれぞれ任意のタイムステップと次のタイムステップを表す。

- step1 タイムステップ n での変数を取得
- step2 式(10)より流速の時間変化率 $\partial u / \partial t$ を計算
- step3 速度予測子より u^n の予測値 \tilde{u} を計算
- step4 圧力修正子より非圧縮の仮定を満たすように圧力補正值 p^{n+1} を計算
- step5 疑似圧縮性を導入するため式(11)より密度補正值 ρ^{n+1} を計算
- step6 速度予測値 \tilde{u} , 圧力補正值 p^{n+1} , 密度補正值 ρ^{n+1} , 及び速度修正子から速度補正值 u^{n+1} を計算
- step7 式(12)によって ϕ を計算し、移流された関数 $\tilde{\phi}$ を求める
- step8 式(19)によって $\tilde{\phi}$ が正しく界面からの距離を表せるように再定義し、 ϕ を求める

step8 に対して補足を述べる。step7 によって移流されたレベルセット関数 $\tilde{\phi}$ は界面の位置は正しく示しているものの、グラディエントが 1 でなくなり、界面からの距離を表す機能を失っている。そこで、界面の位置 ($\tilde{\phi} = 0$) を保ったまま、 $\tilde{\phi} < 0$ ならば $\phi = -1$, $\tilde{\phi} > 0$ ならば $\phi = 1$ を与えるような関数 $sign(\tilde{\phi})$ を導入した式(19)によって再定義する。擬時間緩和法を使用し、 s は擬時間である。

$$\frac{\partial \phi}{\partial s} = sign(\tilde{\phi})(1 - |\nabla \phi(s)|) \quad (19)$$

ただし、上述のような役割を果たすような $sign(\tilde{\phi})$ は数値計算上の不安定性を含むので、密度や粘性係数に対して行ったように微小域 ε をとって、式(20)のように $-1 \sim 1$ 間をスムージングした形にする [10].

$$sign(\tilde{\phi}) = \frac{\tilde{\phi}}{\sqrt{\tilde{\phi}^2 + \varepsilon^2}} \quad (20)$$

支配方程式中の対流項に対しては 2 次の風上差分法を、その他の項に対しては中心差分法を用いて離散化を行った。時間積分に対しては 2 次のアダムスバッシュフォース法を用いた。また、格子には fig. 2-3 に示されるような、 p, ρ, μ, ϕ などのスカラー値に対して x, z それぞれの方向に半格子分ずれた位置に速度成分 u_x, u_z を配置するスタガード格子を用いる。スタガード格子では一つの格子単位毎に連続の式が評価でき、ある方向の圧力差がその方向の速度を決定するため NS 方程式の構造を自然に表現できる。よって、圧力と速度が強くカップリングされることで収束性が改善し、圧力と速度場の振動が避けられる [13, 14].

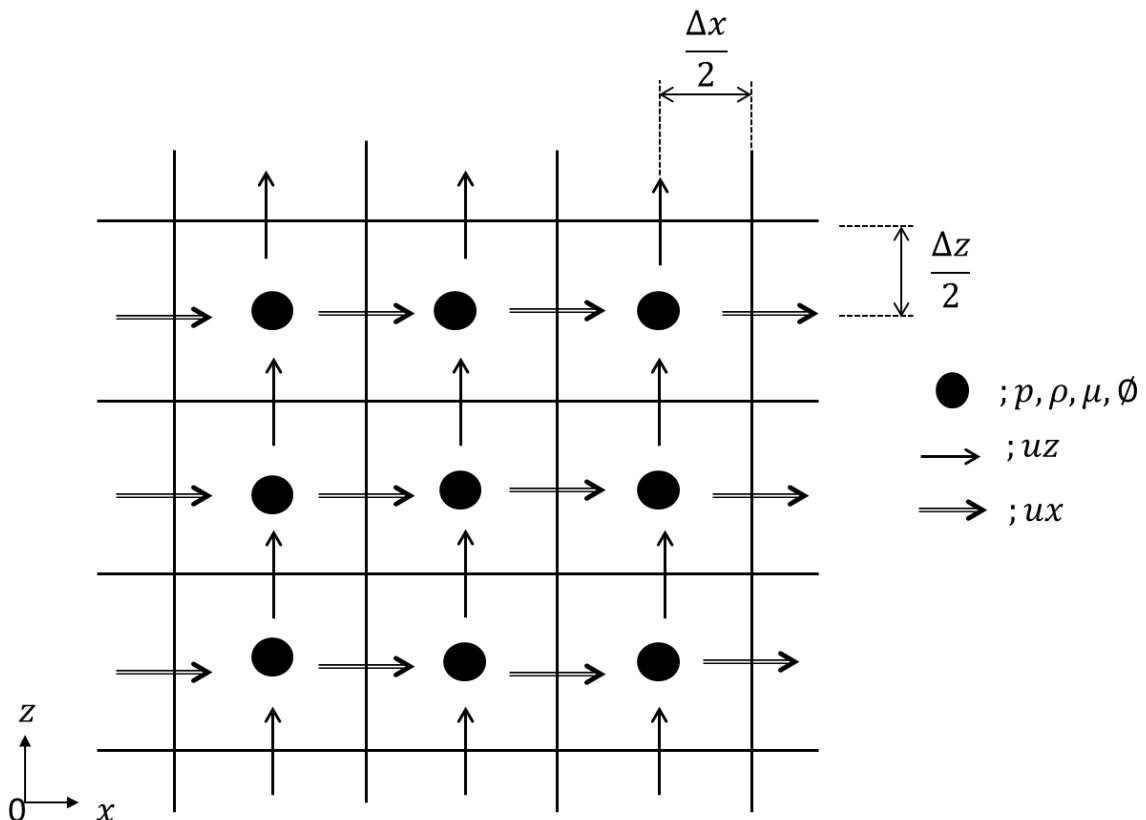


fig. 2-3 A schema of Staggered grid

2.3.2 境界条件及び音響流再現方法

fig. 2-4 のように液滴が存在する節に隣合う腹の間を解析領域とし, 定在波を微小な振動と捉えてメッシュ上に z 方向に周期的に変動する速度 g_{uz} を与える.

$$g_{uz} = A \cos\left(2\pi f t + \frac{\pi}{2}\right) \quad (21)$$

A は振幅, f は周波数, t は時間を表す. このような周期変動境界速度 g_{uz} を与えることで周期的に変化する音響放射圧及び定在波を再現し, fig. 2-5 のように g_{uz} が 1 周期する毎に速度場を平均化したものを速度場としてベクトル図によって出力することで音響流を再現し, 観察する. なお, コンターは速度の大きさを表す. 設定した入射音波に関するパラメタを Table 3 に示す. 振幅は数値計算が安定に実行される程度の値とし, 周波数は実験で使われる最小の値とした. 波長は音速と周波数の値から決定される. また, x 方向の両端での境界条件は速度勾配が 0 となるスリップ条件とした.

Table 3 Parameter values of acoustic standing wave

Amplitude A	0.2 mm
Frequency f	20 kHz
Wavelength λ	17mm

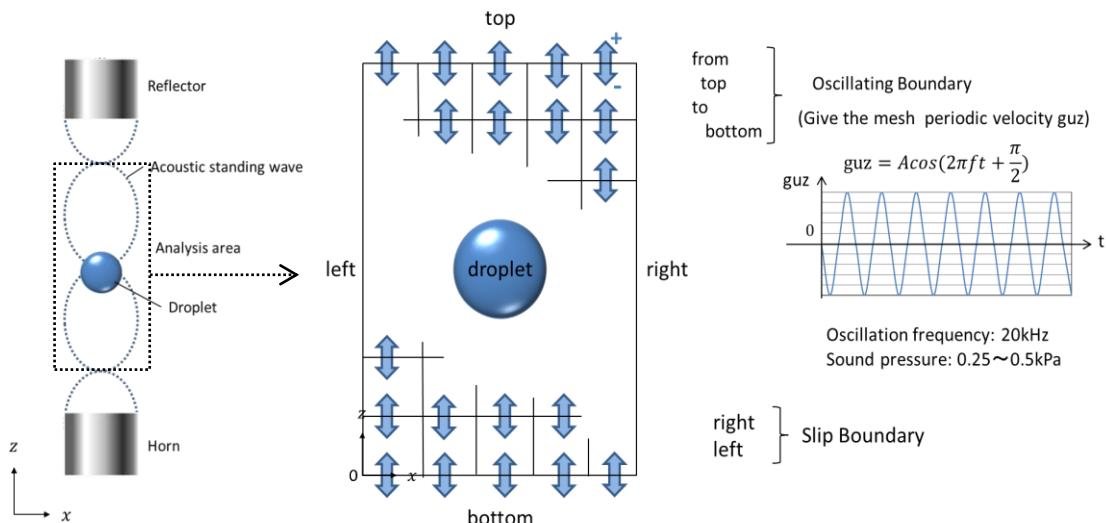


fig. 2-4 A schema of analysis area and boundary conditions

left: Instantaneous velocity field (Acoustic standing wave)
right: Instantaneous acoustic pressure field

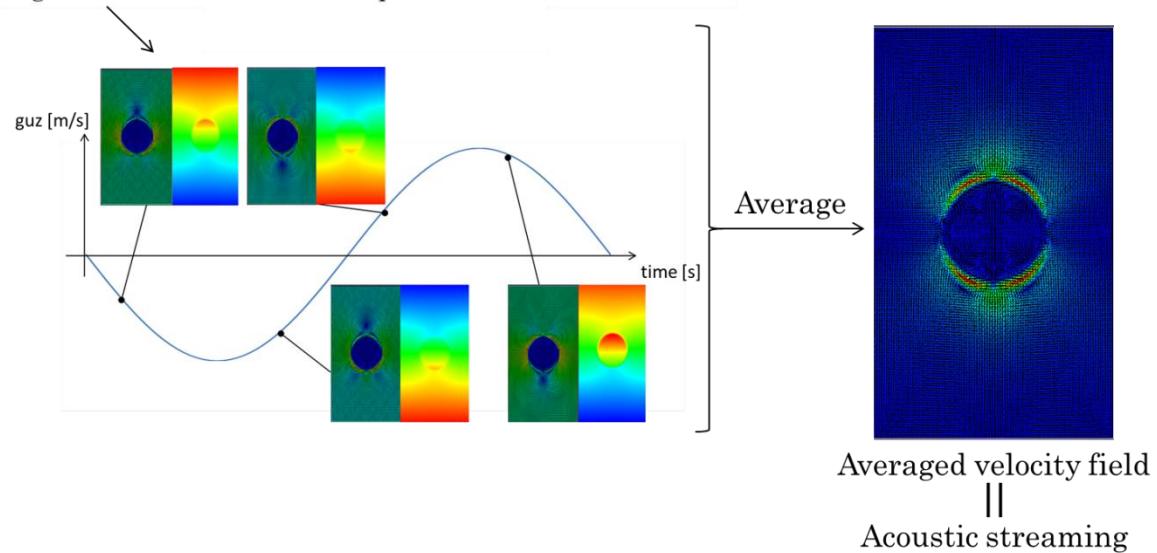


fig. 2-5 A schema of how to calculation acoustic streaming

2.3.3 格子依存性

2.3.3.1 格子領域

この項では設定した格子領域が計算結果に影響を与えていないか調べるため、格子領域を変化させて解析した結果を示す。まず初めに設定した格子領域が本解析において適切であるかどうかを調べる。ただし、 z 方向のメッシュ領域は fig. 2-4 のように液滴の存在する定在波の節と隣合う上下の節の間隔、つまり定在波の 1 波長分を領域にとっているので、Table 3 に示されている波長の長さを領域に取って固定するものとする。格子領域を(x 方向のメッシュ数)×(z 方向のメッシュ数)と表した時、 149×169 とした解析結果を fig. 2-6 に、 199×169 とした解析結果を fig. 2-7 に、 99×169 とした解析結果を p32 fig. 3-1 に示す。液滴中心を解析領域の真ん中に配置させるためにメッシュ数を奇数としている。

図より、領域の大きさによって形成される渦の大きさが変化するため、速度の大きさや定常的な流れに至るまでの時間は異なるが、定性的に同様の流動場を形成したことが確認できる。よって、依存性は定性的な議論においては x 方向への解析領域に対する無いものと判断し、液滴のサイズ及び時間的コストを考慮して本研究では格子領域を 99×169 とした。

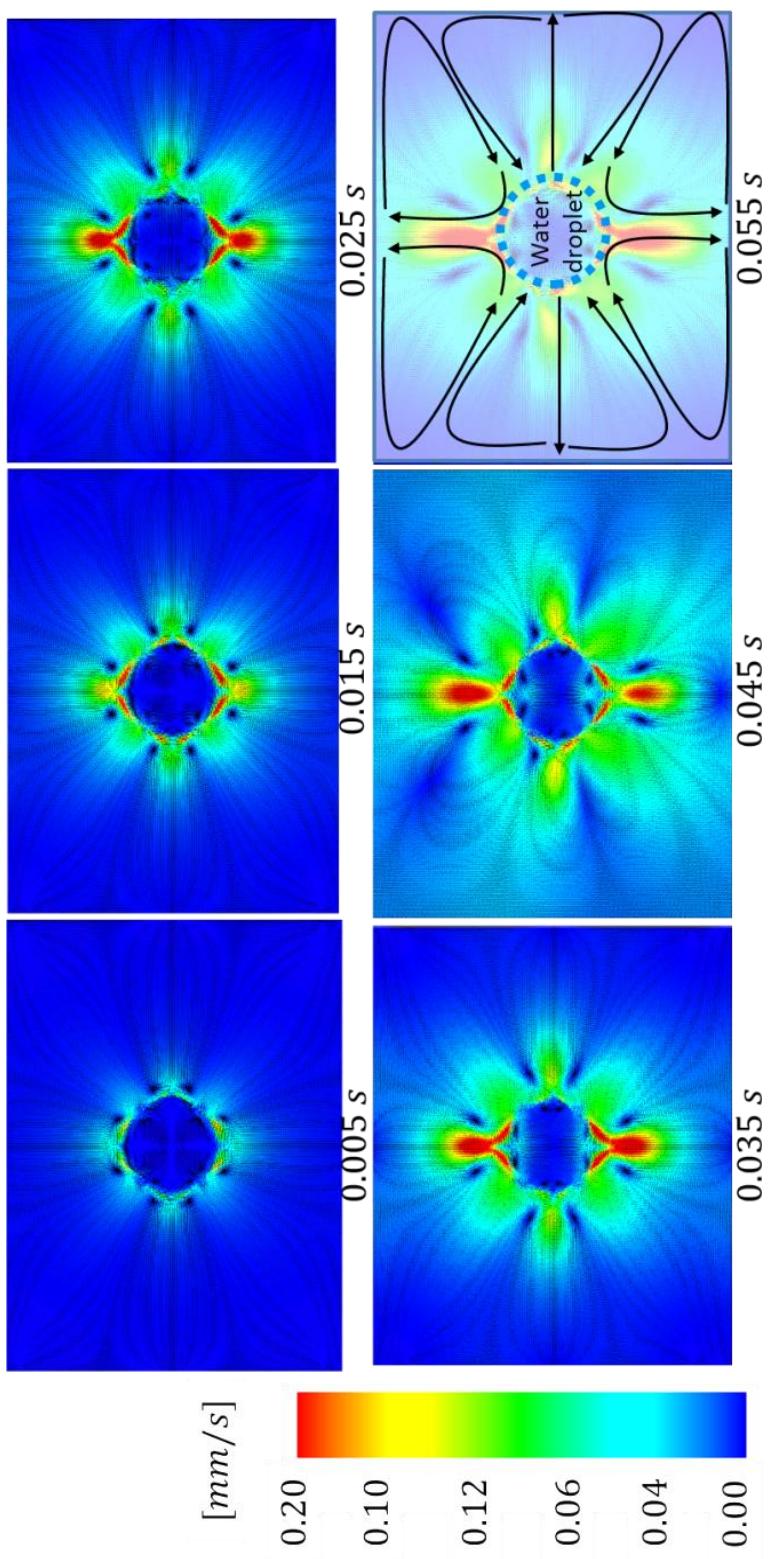


fig. 2-6 External flow field of water droplet

analysis region($x \times z$): 149×169

Max velocity [mm/s]

0.005s: 0.185, 0.015s: 0.246, 0.025s: 0.276, 0.035s: 0.264, 0.045s: 0.299, 0.055s: 0.277

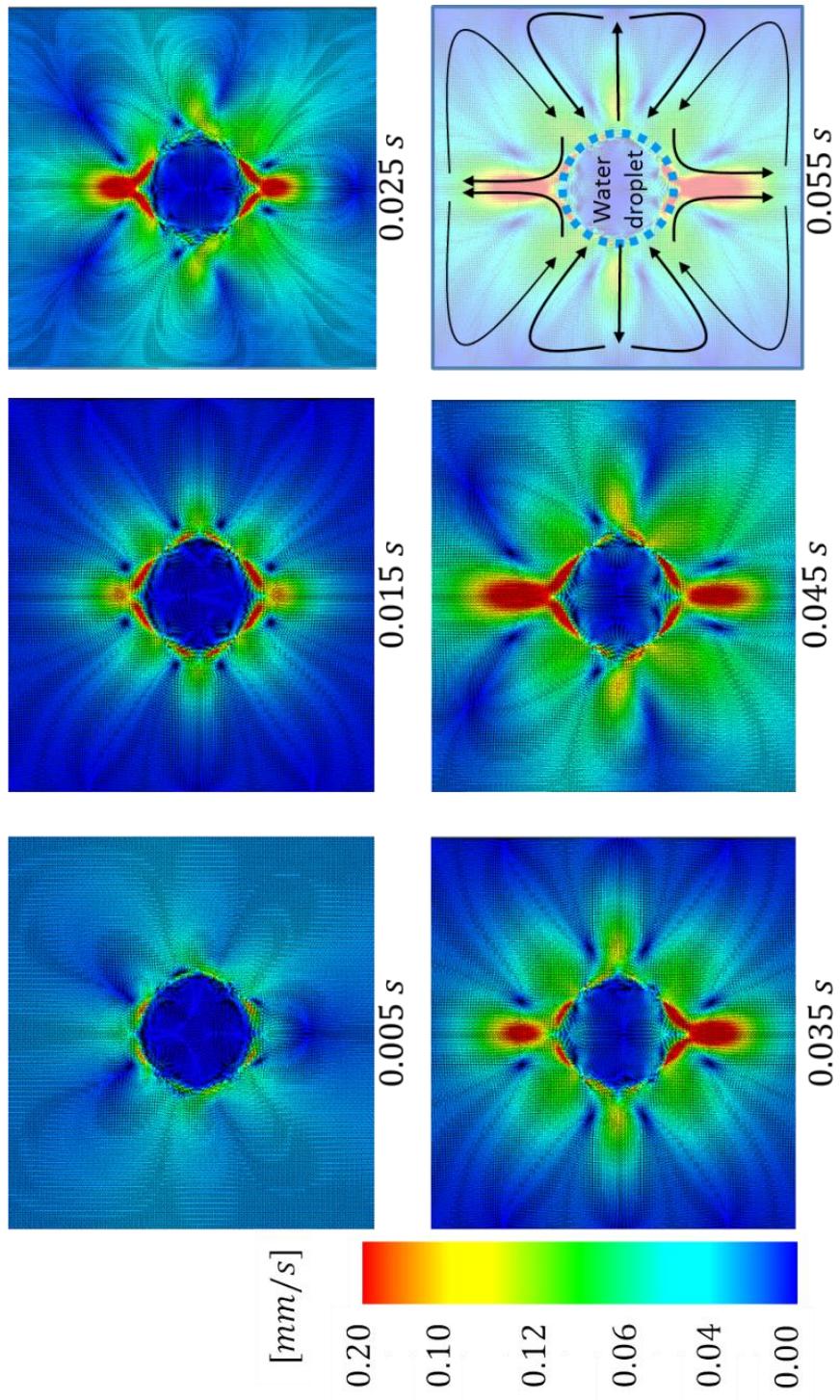


fig. 2-7 External flow field of water droplet
analysis region($x \times z$): 199×169

Max velocity [mm/s]
0.005s: 0.178, 0.015s: 0.244, 0.025s: 0.275, 0.035s: 0.278, 0.045s: 0.248, 0.055s: 0.301

2.3.3.2 格子幅

解析コードの格子幅への依存性を調べるために格子幅 $\Delta x, \Delta z$ を 0.2 mm~0.05 mm に変化させ 0.055 s まで解析し、比較した。格子幅を 0.2mm とした解析結果を fig. 2-8 に、0.1mm とした解析結果を p32 fig. 3-1 に、0.05mm とした解析結果を fig. 2-9 に示す。格子幅の大きさによって最大速度の大きさや定常的な流動構造が形成されるまでの時間は異なるものの、定性的な議論をする上では格子幅に対する依存性は無いものと判断した。よって、本研究では時間コスト及び視認性の兼ね合いから $\Delta x, \Delta z$ の値は 0.1 mm とした。

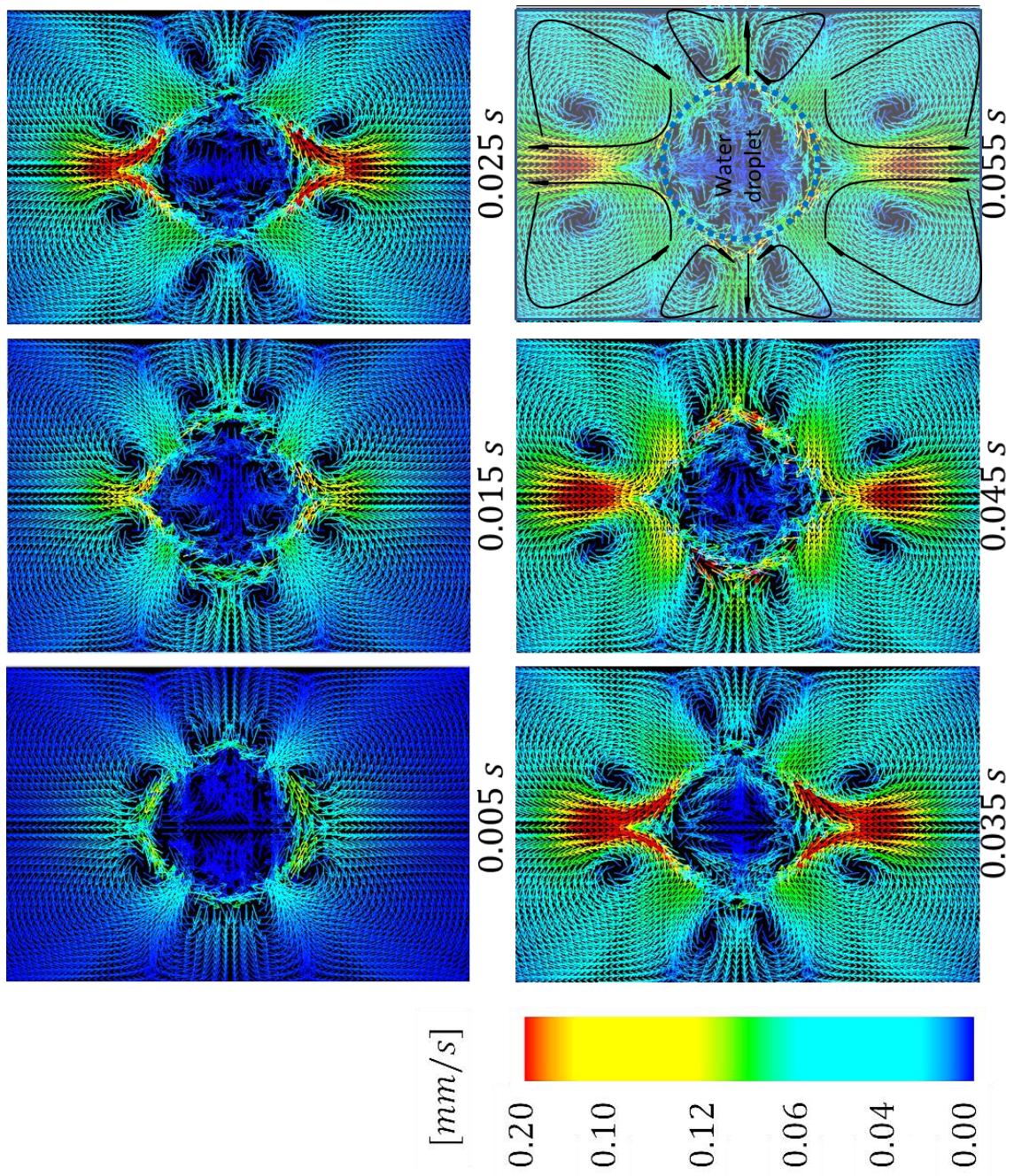


fig. 2-8 External flow field of water droplet

(grid size $\Delta x, \Delta z = 0.2\text{mm}$)

Max velocity [mm/s]

0.005s: 0.142, 0.015s: 0.184, 0.025s: 0.256, 0.035s: 0.271, 0.045s: 0.275, 0.055s: 0.197

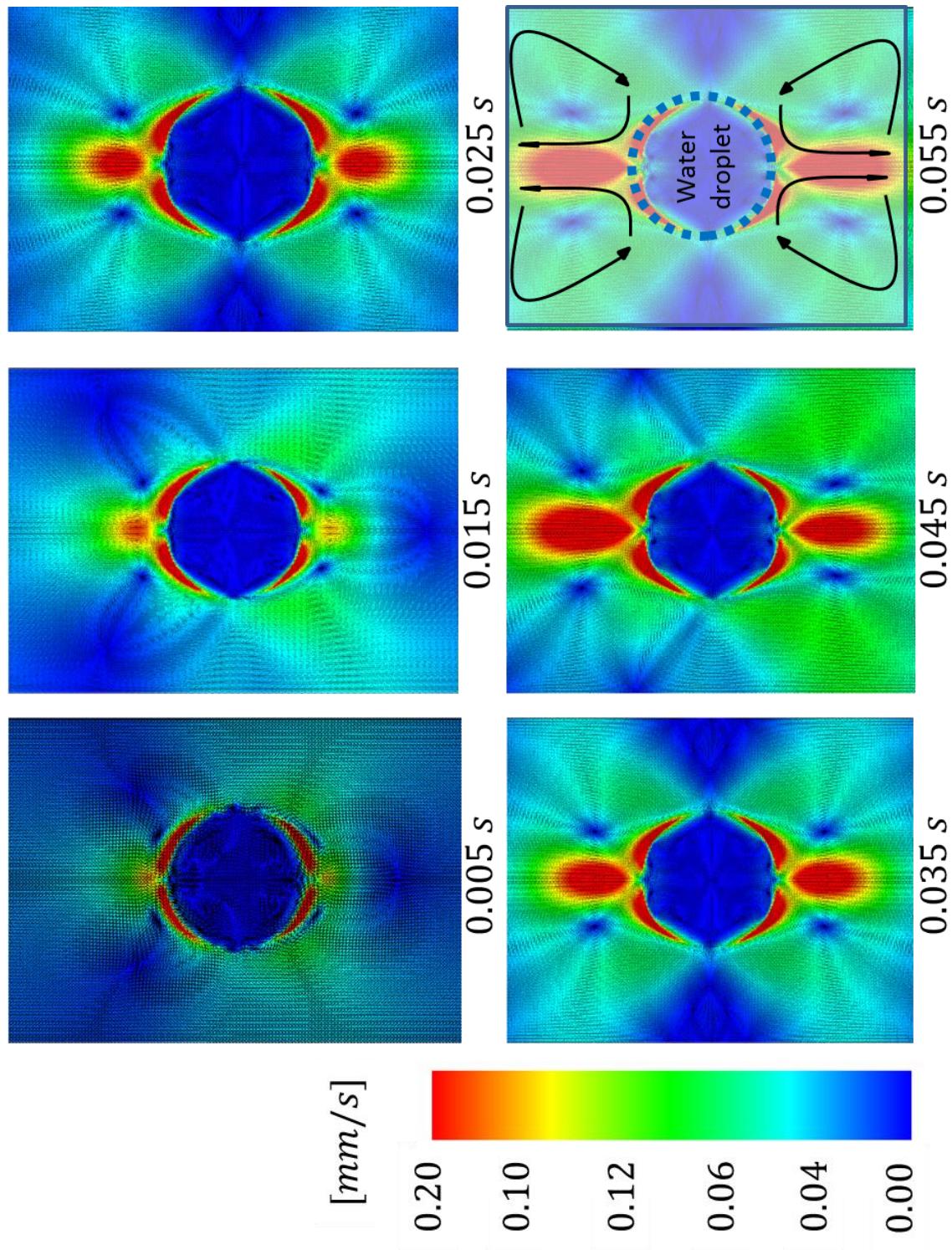


fig. 2-9 External flow field of water droplet
(grid size $\Delta x, \Delta z = 0.05\text{mm}$)

Max velocity [mm/s]

0.005s: 0.362, 0.015s: 0.359, 0.025s: 0.348, 0.035s: 0.344, 0.045s: 0.334, 0.055s: 0.354

2.3.4 時間依存性

解析コードのタイムステップ Δt への依存性を調べるために fig. 2-10, fig. 2-11 に示すように 0.05 づつ値を変化させた 5 種のタイムステップ dt によって 0.03s まで解析を行い x, z 方向の速度 u_x, u_z をそれぞれ比較した。 $dt=0.25\times10^{-6}$ s に対するそれぞれのタイムステップによる最大の相対的な差異を Table 4 に示す。 u_z に比べて u_x の差異が大きいのは速度の大きさが小さく、微小桁に含まれる数値計算上の誤差の割合が大きくなるためと考えられる。以上のようにタイムステップの大きさによって結果に変化が現れるものの、定性的な時間推移は u_x, u_z どちらもほぼ同じような傾向が確認されるため、定性的な議論の上では時間コスト、精度及び数値計算上の安定性を考慮して本研究での解析はタイムステップは 1.0×10^{-6} s で行うものとする。

Table 4 Maximum relative difference

dt [s]	difference of u_x [%]	difference of u_z [%]
1.5×10^{-6}	39.3	3.34
1.25×10^{-6}	17.3	1.56
1.0×10^{-6}	9.64	1.46
0.5×10^{-6}	2.14	1.85

2.2.3 及び 2.2.4 項の結果を受けて、第 3 章及び第 4 章に示した解析結果は共通して Table 5 のように設定して解析を実行した。

Table 5 Analysis conditions

Spatial increment $\Delta x, \Delta z$ [mm]	0.1, 0.1
Number of nodes ($x \times z$)	99×169
Time increment Δt [s]	0.1×10^{-5}
Radius of droplet [mm]	2

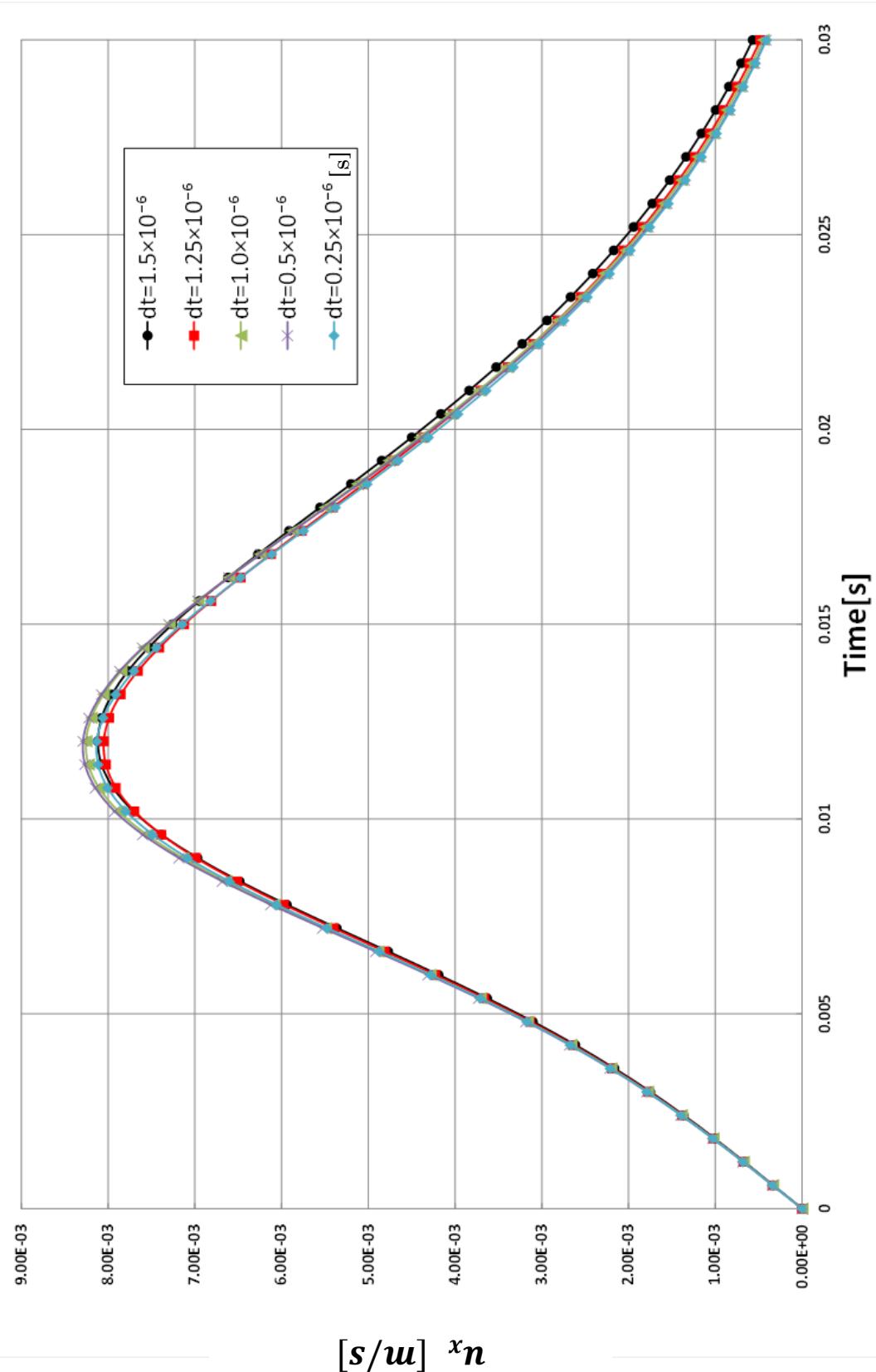


fig. 2-10 Comparison of u_x due to the difference in size of dt

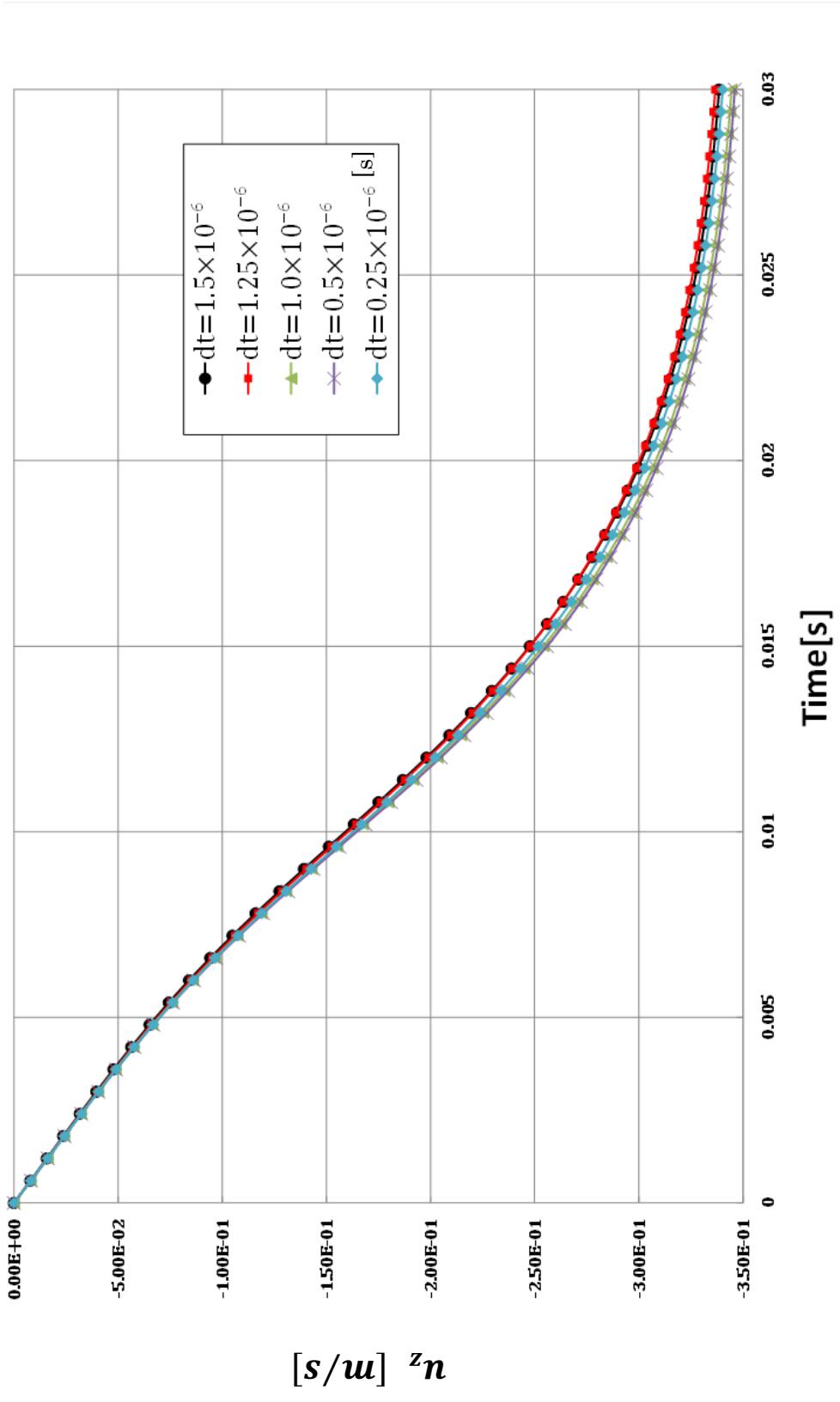


fig. 2.11 Comparison of u_z due to the difference in size of dt

2.4 濃度拡散現象解析コード

2.4.1 基礎方程式並びに解法

濃度拡散現象を再現する基礎方程式として、以下の二次元拡散方程式(22)を使用した。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right) \quad (22)$$

ここで $D[\text{m}^2/\text{s}]$ は拡散係数、 $C[\text{g}/\text{m}^3]$ は質量濃度である。

式(23)に離散化式を記述する。離散化手法としてクランク・ニコルソン法 [14]により、時間微分に対して前進差分、空間微分に対しては 1 タイムステップ前、つまり n での中心差分と $n+1$ における中心差分の平均をとった。

$$\frac{C_{i,j}^{n+1} - C_{i,j}^n}{\Delta t} = \frac{D}{2} \left\{ \left(\frac{C_{i+1,j}^{n+1} - 2C_{i,j}^{n+1} + C_{i-1,j}^{n+1}}{\Delta x^2} + \frac{C_{i+1,j}^n - 2C_{i,j}^n + C_{i-1,j}^n}{\Delta x^2} \right) \right. \\ \left. + \left(\frac{C_{i,j+1}^{n+1} - 2C_{i,j}^{n+1} + C_{i,j-1}^{n+1}}{\Delta z^2} + \frac{C_{i,j+1}^n - 2C_{i,j}^n + C_{i,j-1}^n}{\Delta z^2} \right) \right\} \quad (23)$$

ここで、上付き添え字の n は時間刻みの番号を表し、 $n+1$ は n に対して 1 ステップ後の計算時刻における値となる。下付き添え字の i,j はそれぞれ x,z 座標に対する空間刻みの番号を表し、 i の位置に対して $i+1$ は $+\Delta x$ を、 $i-1$ は $-\Delta x$ の位置における値となる。 j も z に対して i と同様に扱う。式(23)により得た離散化式を反復計算であるガウス・ザイデル法 [15]によって時々刻々の濃度分布を計算した。反復式を式(24)に示す。

$$C_{i,j}^{n+1,v+1} = \frac{D \Delta t}{2 \Delta x^2} (C_{i+1,j}^{n+1,v} - 2C_{i,j}^{n+1,v} + C_{i-1,j}^{n+1,v}) \\ + \frac{D \Delta t}{2 \Delta z^2} (C_{i,j+1}^{n+1,v} - 2C_{i,j}^{n+1,v} + C_{i,j-1}^{n+1,v}) \\ + \frac{D \Delta t}{2 \Delta x^2} (C_{i+1,j}^n - 2C_{i,j}^n + C_{i-1,j}^n) \\ + \frac{D \Delta t}{2 \Delta z^2} (C_{i,j+1}^n - 2C_{i,j}^n + C_{i,j-1}^n) + C_{i,j}^n \quad (24)$$

ここで、上付き添え字の v は計算回数を表す。

次に初期条件を決定する。大気圧下における理想気体のモル濃度 c は式(25)より、

$$c = p_0 / RT = 1.013 \times 10^5 / \{8.314 \times (273 + 25)\} \cong 40.9 \text{ mol } / \text{m}^3 \quad (25)$$

となる。ここで、 p_0 は大気圧で $1.013 \times 10^5 \text{ Pa}$ 、 R は理想気体定数で 8.314 J/(K mol) 、 T は温

度で 25°Cとした。これを用いると、飽和蒸気の質量濃度 C_s は式(26)で算出できる。

$$C_s = \frac{e_s}{p_0} \times c \times M \quad (26)$$

ここで、 e_s は飽和蒸気圧、 M はモル質量を表し、液滴界面では常に飽和しているものとして扱う。飽和蒸気圧は水では Sonntag の式(27)より 31.98 hPa、エタノールは化学便覧の値より 43.42 hPa とした。また、飽和状態がない水蒸気圧 e は相対湿度 rh の定義式(28)により求まる。

$$\begin{aligned} \ln(e_s) = & -6096.9385T^{-1} + 21.2409642 - 2.711193 \times 10^{-2} \times T \\ & + 1.673952 \times 10^{-5} \times T^2 + 2.433502 \ln(T) \end{aligned} \quad (27)$$

$$e = \frac{rh \times e_s}{100} \quad (28)$$

e を式(26)の e_s へ代入することで相対湿度 rh [%]の湿り空気中の水蒸気量 C が求まる。液滴界面では常に飽和状態であるとして、また液滴周囲空気では相対湿度 50%であるとして、Table 1 の値を用いてそれぞれの質量濃度を計算すると、初期条件は Table 6 のようになる。ただし、液滴周囲空気では最初はエタノールは含まれないものとした。

Table 6 Initial conditions

	Water	Ethanol
Interface of the droplet	$C_s \cong 23.0 \text{ g/m}^3$	$C_s \cong 80.5 \text{ g/m}^3$
Otherwise	$C \cong 11.6 \text{ g/m}^3$	$C \cong 0.0 \text{ g/m}^3$

次に境界条件を設定する。液滴存在範囲は常に飽和しているものとした。また、メッシュ領域の端は蒸発の影響がない程液滴から十分に離れているとして、濃度勾配を 0 とした。以上から境界条件を Table 7 に示す。液滴存在範囲や液滴界面はレベルセット関数 ϕ の値によって判定しており、ここでは $-0.00005 \leq \phi \leq 0.00005$ に該当するセルを界面としている。

Table 7 Boundary conditions

	Water	Ethanol
Interface of the droplet	$C_s \cong 23.0 \text{ g/m}^3$	$C_s \cong 80.5 \text{ g/m}^3$
top, bottom, side	$C \cong 11.6 \text{ g/m}^3, \quad \frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial C}{\partial z} = 0$	$C \cong 0.0 \text{ g/m}^3, \quad \frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial C}{\partial z} = 0$

2.4.2 解析解との比較

2.2.1 に記述した通り、式(22)は線形であり、クランク・ニコルソン法によって差分化され、陰的なスキームであるため、CFL 条件を常に満たし、タイムステップ幅及び格子幅に関係なく無条件安定である [14]が、確認のため解析解との比較を行い、誤差を算出し、コードの妥当性の検討を行う。簡単のため、一次元拡散方程式を数値的及び解析的に解いて比較を行った。式(29)に解析解を記述する。境界条件から、半無限個体における質量濃度一定（第一種境界条件）問題として解いた。[16]

$$C = C_i + (C_0 - C_i) \left\{ 1 - \operatorname{erf} \left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}} \right) \right\} \quad (29)$$

ここで、 $\operatorname{erf}(\varphi)$ は式(30)で表される誤差関数である [16]。

$$\operatorname{erf}(\varphi) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\varphi} e^{-y^2} dy \quad (30)$$

解析条件を Table 8 に示す。収束判定は一つ前のタイムステップで求められた質量濃度との相対誤差によって判定している。界面から 0.0006m 離れた位置での質量濃度の時間遷移を比較した。

Table 8 Analysis conditions

Spatial increment $\Delta x, \Delta z$	0.1mm, 0.1mm
Time increment Δt	0.0001s
Elapsed time	3s
Convergence determination value	0.001

解析解と数値解を比較した結果を fig. 2-12 に示す。一部で若干解析解とのずれがあるものの最大の相対誤差で約 0.28% であり、その後は解析解に収束しており、定性的な議論をする範疇においては十分な精度を持つものと判断した。

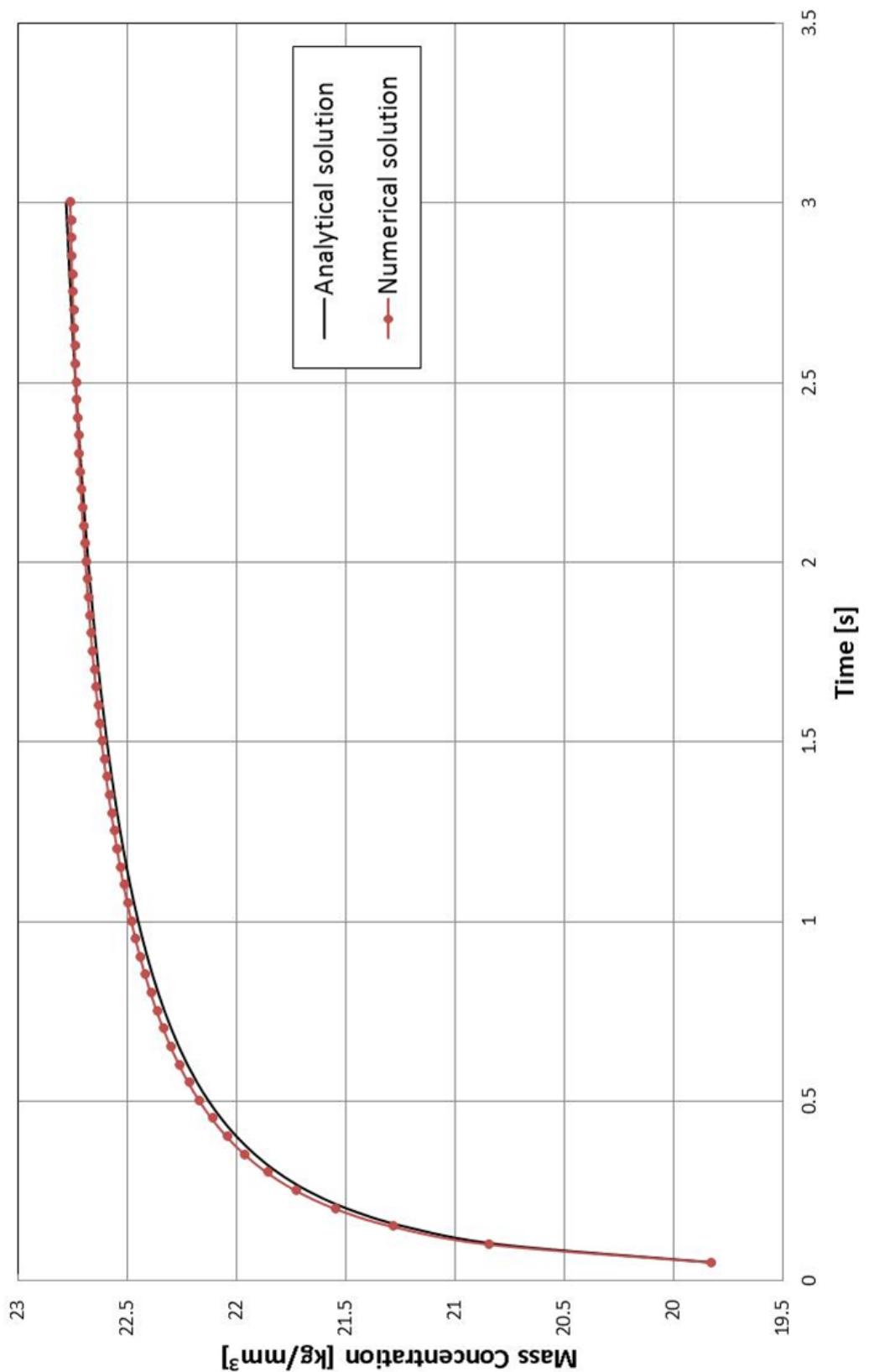


fig. 2-12 Comparison between numerical solution and analytical solution

2.5 カップリング

移動現象論によると拡散現象は等モル相互拡散と一方拡散に分別されるが本研究では蒸気圧の差より、気相から液滴への凝縮は無いものとし、一方拡散として扱う。一方拡散の場合の流束を表す式は

$$N_{AB} = \frac{D(C_{A0}-C_{AL})}{Lx_{Blm}} \quad (31)$$

となる。上式は成分 B 中への成分 A の拡散流束を表し、 L は質量濃度 C_{A0}, C_{AL} の位置の距離を表す。本研究においては A が蒸発した気相、 B が空気となる。ここで、 x_{Blm} は成分 B の質量分率 x_{B0}, x_{BL} の対数平均であるが、成分 A の質量分率 $x_{A0}, x_{AL} \ll 1$ の場合には $x_{Blm} \approx 1$ と近似できる [17]。25°Cにおいて飽和状態にあったとして空気全体に対する最大の質量分率 C_s を空気の密度で除して求めても、水蒸気で 0.02 程度、エタノールでも 0.07 であるため、この近似を用いると、

$$N = \frac{D(C_{A0}-C_{AL})}{L} = \frac{D(C_s - C)}{L} \quad (32)$$

となる。拡散する物質の速度及び密度を v_s, ρ とすると、

$$v_s = N/\rho \quad (33)$$

である [17]ので、濃度拡散現象解析コードにより得た濃度分布と式(32)によって質量流束 N [kg/(m²s)]を算出し、式(33)において 25°Cでの飽和蒸気密度 $\rho (= C_s)$ で除することで蒸発する気相の噴出速度 v_s を計算し、fig. 2-13 のように液滴界面から気相に向けて法線方向に速度を与えるという形でカップリングを行う。ただし、2.2.1 項にて述べたように液滴内外流解析コードでは速度成分とスカラー値が半格子分ずれたスタガード格子を用いており、2.3.1 項で述べたように質量濃度分布もスカラー値の一つであるレベルセット関数 ϕ に合わせて配置しているため式(33)で求められる噴出速度もスカラー値の位置に配置される。よって、fig. 2-14 のように隣り合うセルで求められた x 方向に分解された噴出速度の平均値を速度成分の位置に与えるものとする。図中の v_{s1}, v_{s2} が式(33)で求まる v_s にあたる。fig. 2-14 は第一象限における x 方向の噴出速度の与え方を示しているが、第 2~4 象限においても必要に応じて $i+1$ の代わりに $i-1$ を用いることで求められ、 z 方向に対しても i を k に置き換えて同様に考える。また、カップリングの際にはアルゴリズム上の簡単のため、2.2.1 項にて述べた step1~step8 のアルゴリズムの内、step7 及び step8 は実行せず、界面の移流はないものとした上で液滴界面からの噴出速度の影響を検討した。

$$\begin{aligned} v_{sx} &= \frac{1}{2}(v_{sx1} + v_{sx2}) \\ v_{sx1} &= v_{s1} \cos \theta_1 \\ v_{sx2} &= v_{s2} \cos \theta_2 \end{aligned} \quad (34)$$

$$\theta_1 = \tan^{-1} \left(\frac{k_1 - k_c}{i_1 - i_c} \right)$$

$$\theta_2 = \tan^{-1} \left(\frac{k_2 - k_c}{i_2 - i_c} \right)$$

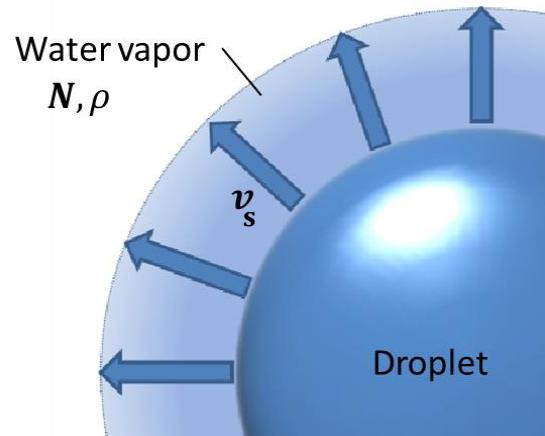


fig. 2-13 A schema of the squirt velocity from interface of the droplet

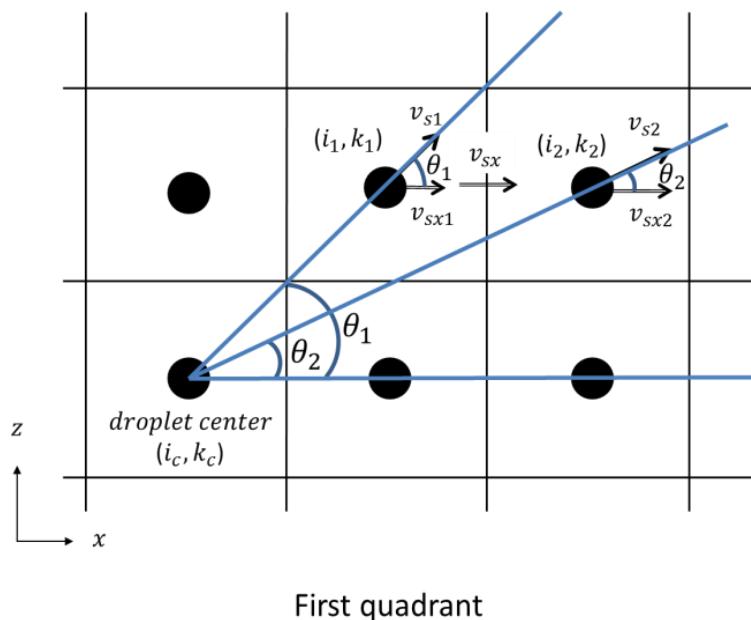


fig. 2-14 A schema of how to devide the souting velocity

第3章 液滴外部流動における結果と考察

3.1 液滴内外流動解析コード単体による解析

カップリング前の液滴内外流動解析コードによって液滴内外の流動を解析し、実験との

比較を行い、結果に対して考察する。解析は液滴の物性値（密度、粘性、及び表面張力）を水及びエタノールとして二通り行った。それぞれの物性値は Table 1 に示したもの用いる。

fig. 3-1, fig. 3-2 にそれぞれ $t=0.055\text{s}$ までの水液滴及びエタノール液滴の解析結果を示す。また、 0.055s 時点では流動方向を矢印で模式的に重ねて示した。

水液滴では $0.025\sim0.035\text{s}$ 付近より、液滴から外気に向かって上下に流れ、上下の境界に達したところで液滴側面に戻り循環する流れが液滴の上下に確認できる。この流動構造は不揮発性液滴における実験で得られた fig. 1-7A,B に見られる構造と同様である。

エタノール液滴では実験で得られた fig. 1-7C~F に見られるようなエタノール溶液やヘキサンなどの揮発性液滴における液滴外部の流れ方向の逆転や液滴界面付近の循環渦などは確認できず、水液滴と同様の流動構造が $0.045\sim0.055\text{s}$ 付近から確認された。

また、以上で述べた流れに加え、fig. 3-1 及び fig. 3-2 共に、実験では確認されていない x 軸方向に液滴から気相へ向かう微小な流れ（図中で赤色の矢印で示された流れ）が見られる。この流れは level-set 法において気液相の速度場が連続しているために液滴界面から液滴中心向きに働く表面張力が気相にも影響を及ぼし発達した、数値計算上の物理的な意味を持たない流れである。表面張力の影響による流れのみを観察するため、2.3.2 項で述べた音響流再現のために与えた周期変動速度を止めた場合の速度場を解析した結果を fig. 3-3 に示す。fig. 3-3 より、液滴から放射状に流れが発達していることが確認できる。また、fig. 3-1, fig. 3-2 を比較すると、エタノール液滴は水液滴よりも上下の循環渦の形成が遅いことが分かる。また、エタノール液滴の最大速度は水液滴の最大速度の半分程度にしか至らなかつたことが確認された。

以上の解析結果より本解析コードでは液滴の物性値である密度、粘性、及び表面張力の変化によって、実験で見られるような流動構造の変化を再現するにはコード構築にあたって考えられていない要素（例えば蒸発による周囲気相の部分的な物性値変化や、蒸発潜熱によって液滴の温度が低下することでの液滴物性値の時間変化など）が残されていると考えられる。もしくは流動構造の変化の原因が境界層内の微小領域に存在しており、現在のメッシュサイズでは微小領域の変化を捉えられていないことなどが考えられる。

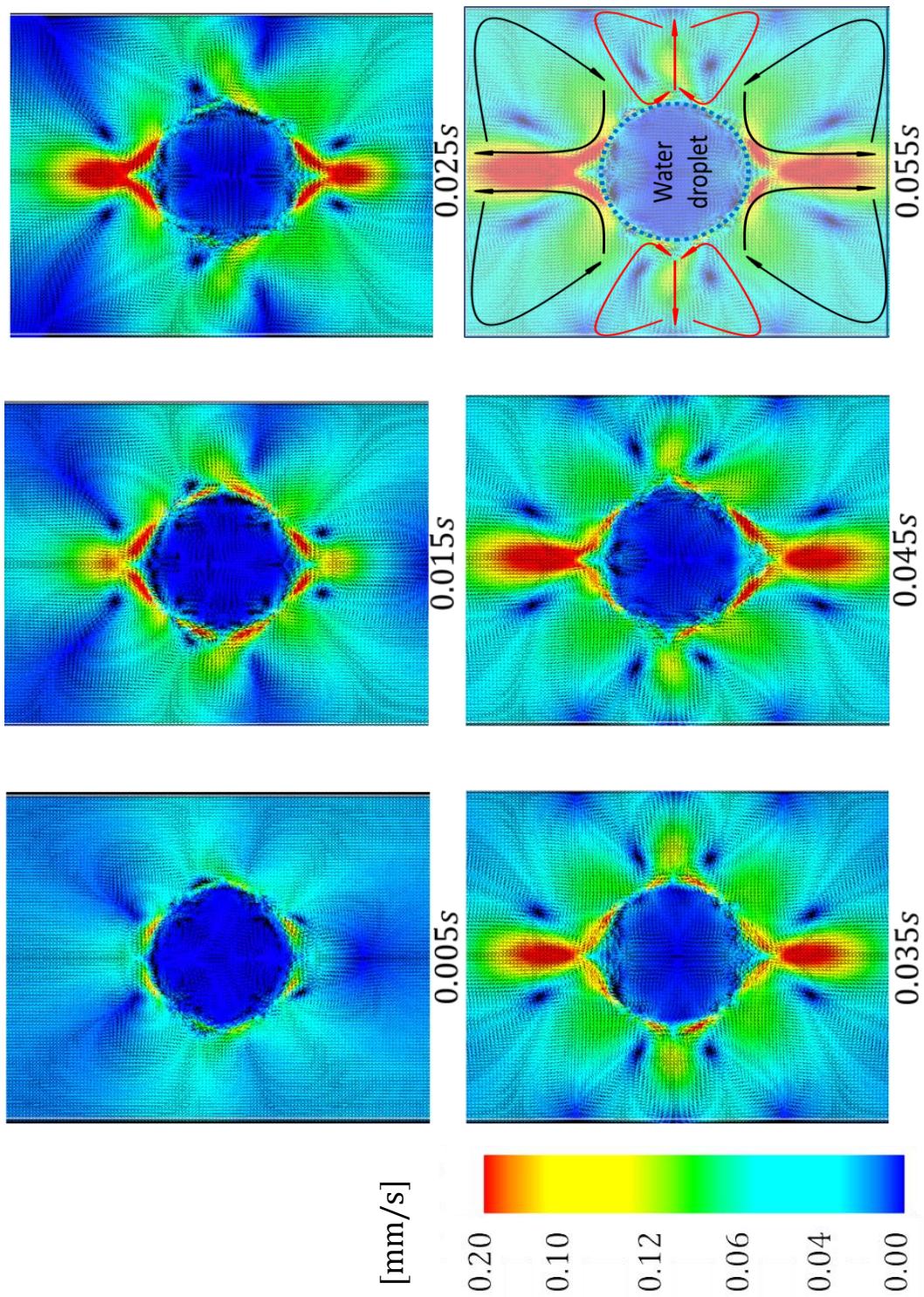


fig. 3-1 External flow field of water droplet

grid size, $\Delta x, \Delta z = 0.1\text{mm}$, analysis region($x \times z$): 99×16
 Max velocity [mm/s]

0.005s: 0.192, 0.015s: 0.262, 0.025s: 0.290, 0.035s: 0.240, 0.045s: 0.276, 0.055s: 0.294

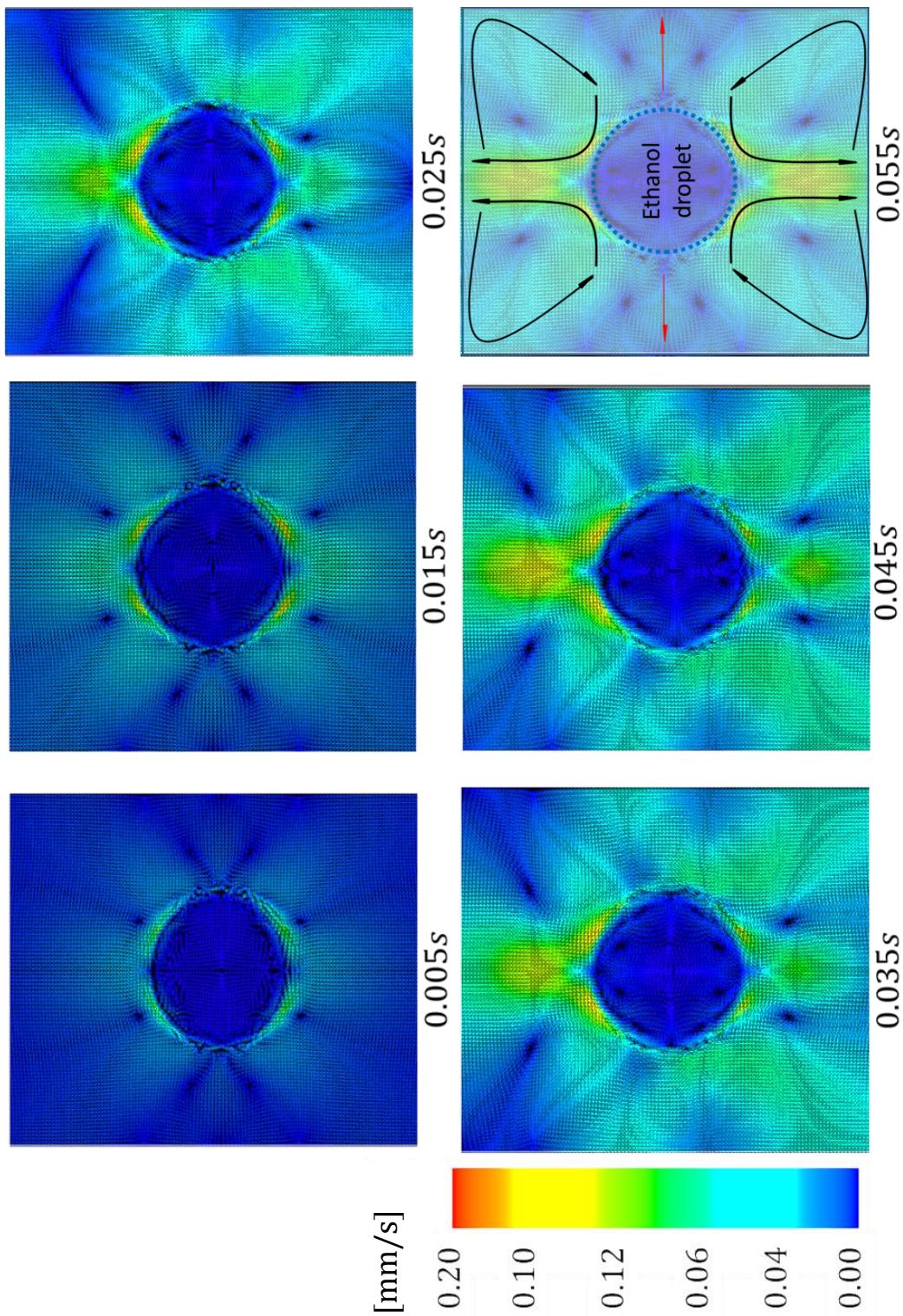


fig. 3-2 External flow field of ethanol droplet

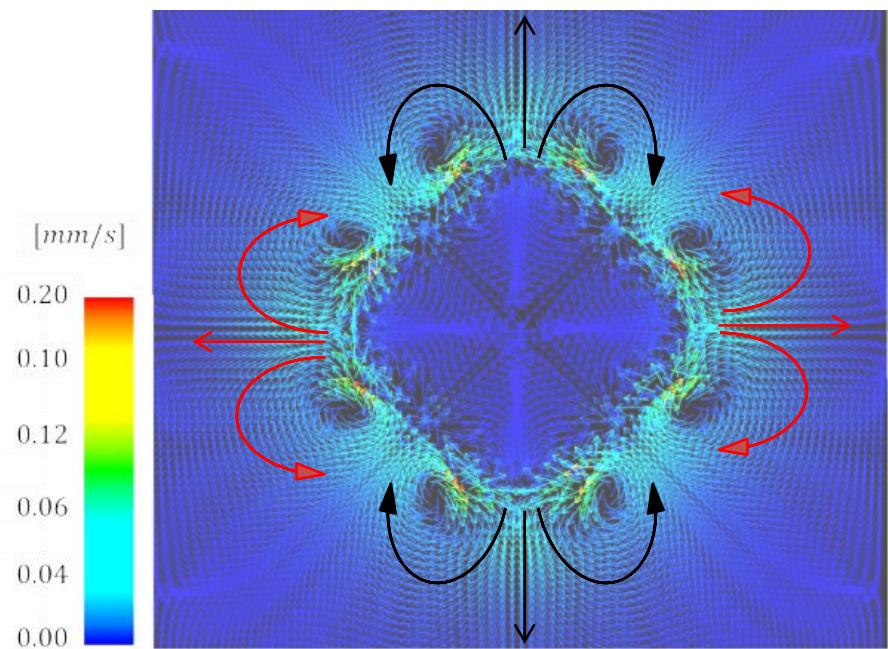


fig. 3-3 External flow due to surface tension

3.2 カップリングコードによる解析

1.3 節で述べたように液滴の蒸気圧の違いに伴って流動構造が変わることから先行研究では液滴の蒸発が揮発性液滴の流動場を構成する主な要因であることが示唆されている。しかし、既存の液滴内外流動解析コードは蒸発挙動を考慮したものではない。よって、本節において濃度拡散現象解析コードをカップリングすることにより、蒸発挙動の内、試料が液滴界面から気化する際に外部流に与える噴出速度の影響を取り入れて解析を行い、考察を述べる。

2.5 節で述べたようにアルゴリズム上の簡単のため、カップリングの際には界面の移流を無視する。そこで比較のため、まず初めにカップリング前のコードで界面の移流を無視した解析を実行した。fig. 3-4, fig. 3-5 にそれぞれ水液滴及びエタノール液滴の結果を示す。また、fig. 3-6 に 0.05 s での流動方向を模式的に矢印で示す。図より、前節と同様、液滴の上下に循環流が形成されていることが分かる。また、fig. 3-1, fig. 3-2 と比較して前項で説明した数値計算上の表面張力の影響による x 軸方向の液滴から気相へ向かう微小な流れが見られなくなっていることが確認できる。また、液滴上下に見られる循環流が形成されるまでの時間が早まり、各時刻で比較した時の最大速度の大きさも増大している。これらは界面の移流が無視されたことで曲率の変化が無くなり、表面張力の影響が弱まり音響流の形成が阻害されなくなったためであると考えられる。曲率は式(10)から分かるように表面張力項に係数として含まれている。

次に濃度拡散現象解析コードをカップリングして解析を実行した結果を fig. 3-7, fig. 3-8 に示す。水液滴、エタノール液滴共に速度場が加速されているものの、流動構造に変化は見られず、fig. 3-6 で示した流れと同様の構造を示した。この結果から、蒸発によって界面から気化した試料が与える噴出速度は外部流動を加速させる要因とはなるものの、実験で見られた揮発性液滴の特徴的な外部流動構造を構成する要因とはならない可能性が示唆された。

先行研究では蒸発によって振動境界層内の物性値が変化するなどして、外部流動を駆動しているとされる振動境界層内の Schlichting の音響流の構造が変化することで揮発性液滴に見られるような外部流動構造の変化が発生していると考えている [7]。振動境界層の厚さは本解析条件において理論計算式(35) [18]によると約 $16\mu\text{m}$ である。式(35)で δ は振動境界層の厚さ、 μ, ρ はそれぞれ気相の粘性係数及び密度、 ω は入射音波の角周波数を表す。

$$\delta = \sqrt{\frac{2\mu}{\rho\omega}} = \sqrt{\frac{\mu}{\pi\rho f}} = \sqrt{\frac{1.822 \times 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{s}}{\pi \times 1.205 \text{ kg/m}^3 \times 20 \times 10^3 \text{ Hz}}} \cong 16 \text{ }\mu\text{m} \quad (35)$$

しかし、本コードのメッシュサイズは $0.1 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm}$ であるため振動境界層内部の音響流は考慮されていない。今後は液滴界面に焦点を当て、境界層内部の流動を再現できるようなコードを作成した上で蒸発挙動の影響を解析することが課題となる。さらに、本研究における濃度拡散解析コードは対流項を含まない拡散方程式を用いており、噴出速度は界面において一様なものとして扱っている。しかし、実際には外部流動の対流効果によって液滴周りの濃度勾配及び質量流束が変化し、噴出速度は位置によって変化するため、実現象との比較には対流項の導入を必要とする。さらにエタノールなどは水溶解度が混和性を示

し、周囲空気に含まれる水蒸気を吸収することが考えられるため、拡散現象の取り扱いが一方拡散ではなく相互拡散とすることが必要となる。

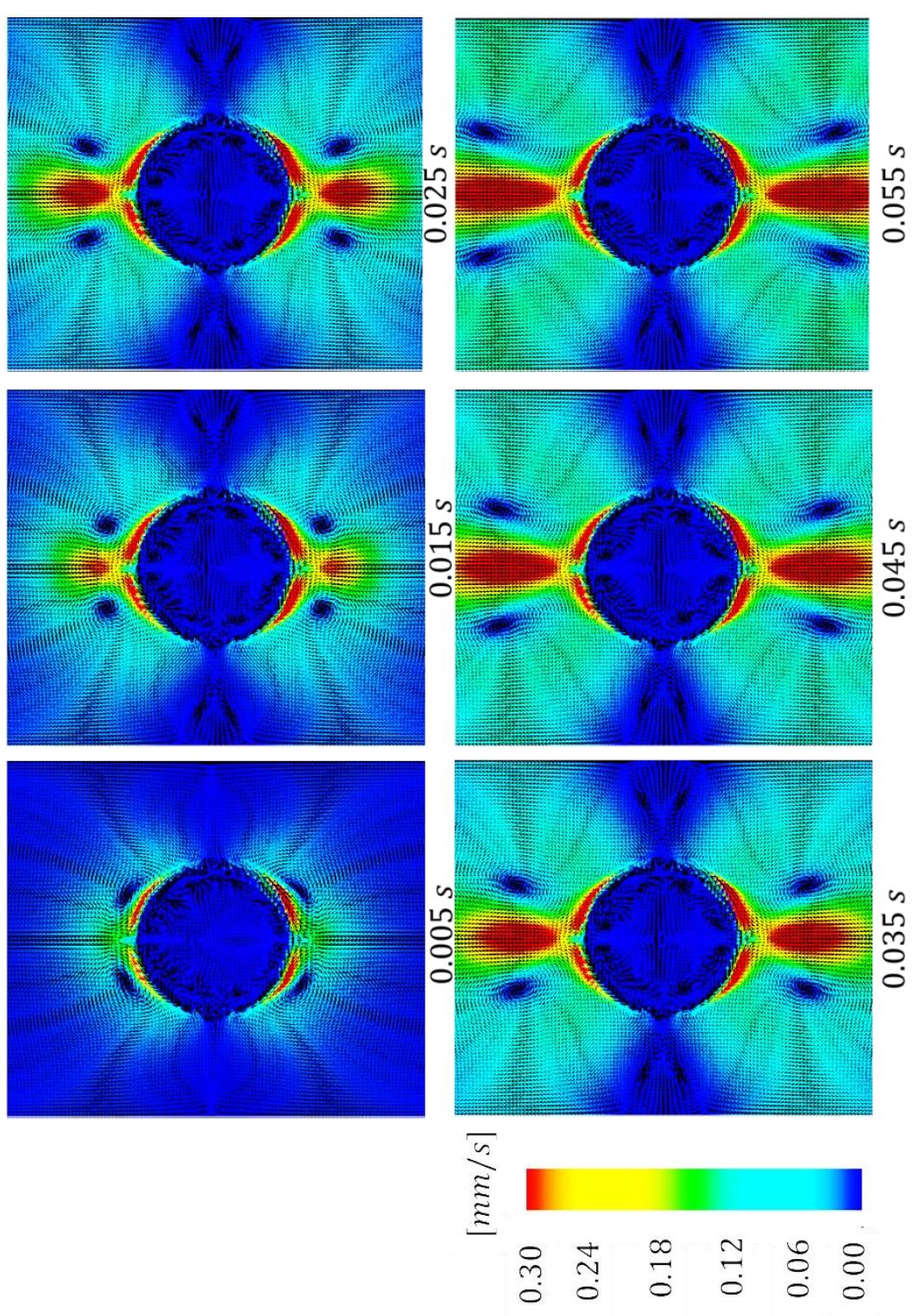


fig. 3-4 External flow field of the water droplet without advection of interface (Before Coupling)

Max velocity [mm/s]

0.005s: 0.344, 0.015s: 0.391, 0.025s: 0.390, 0.035s: 0.392, 0.045s: 0.390, 0.055s: 0.389

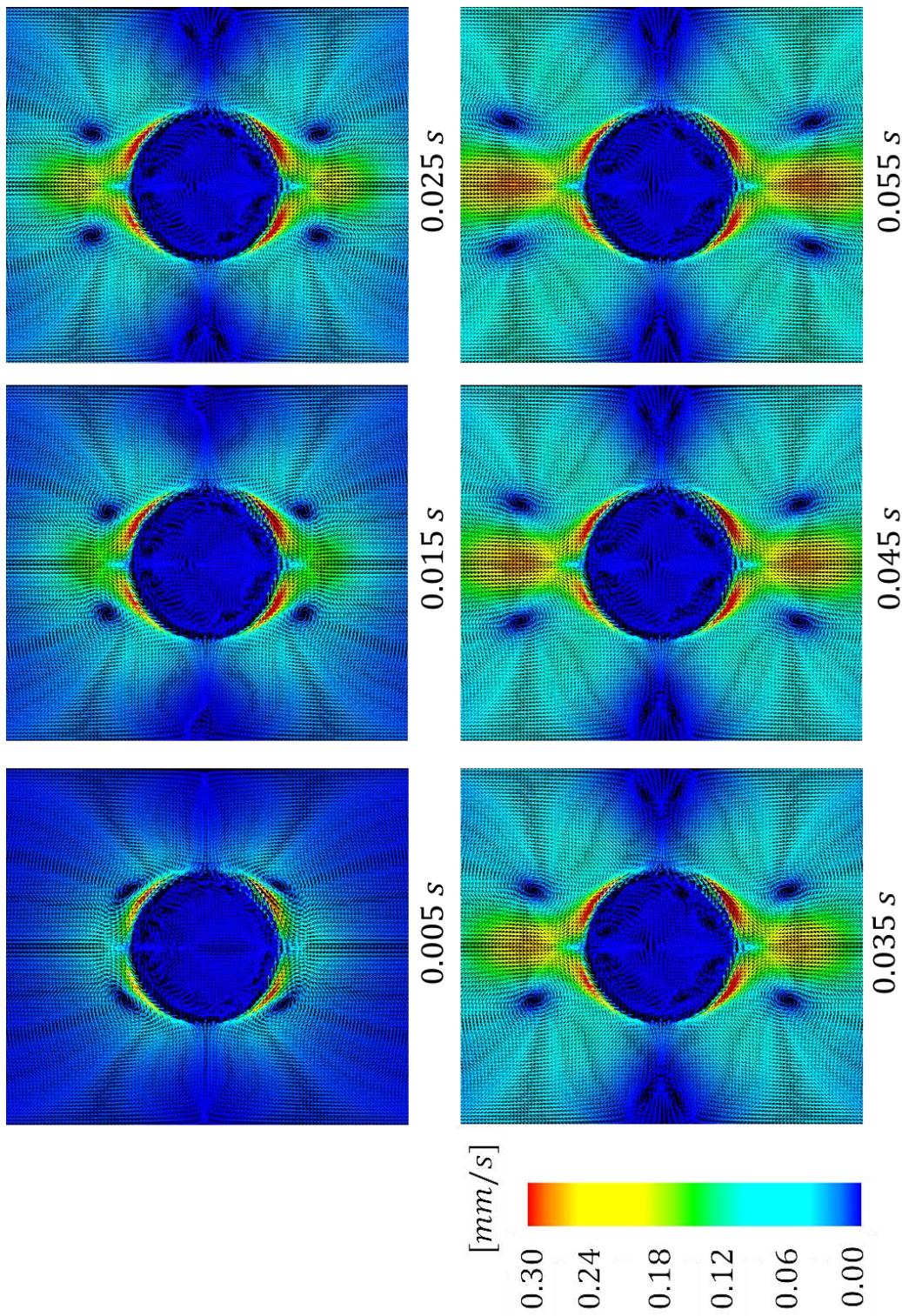


fig. 3-5 External flow field of the ethanol droplet without advection of interface (Before Coupling)

Max velocity [mm/s]

0.005s: 0.296, 0.015s: 0.347, 0.025s: 0.351, 0.035s: 0.351, 0.045s: 0.350, 0.055s: 0.350

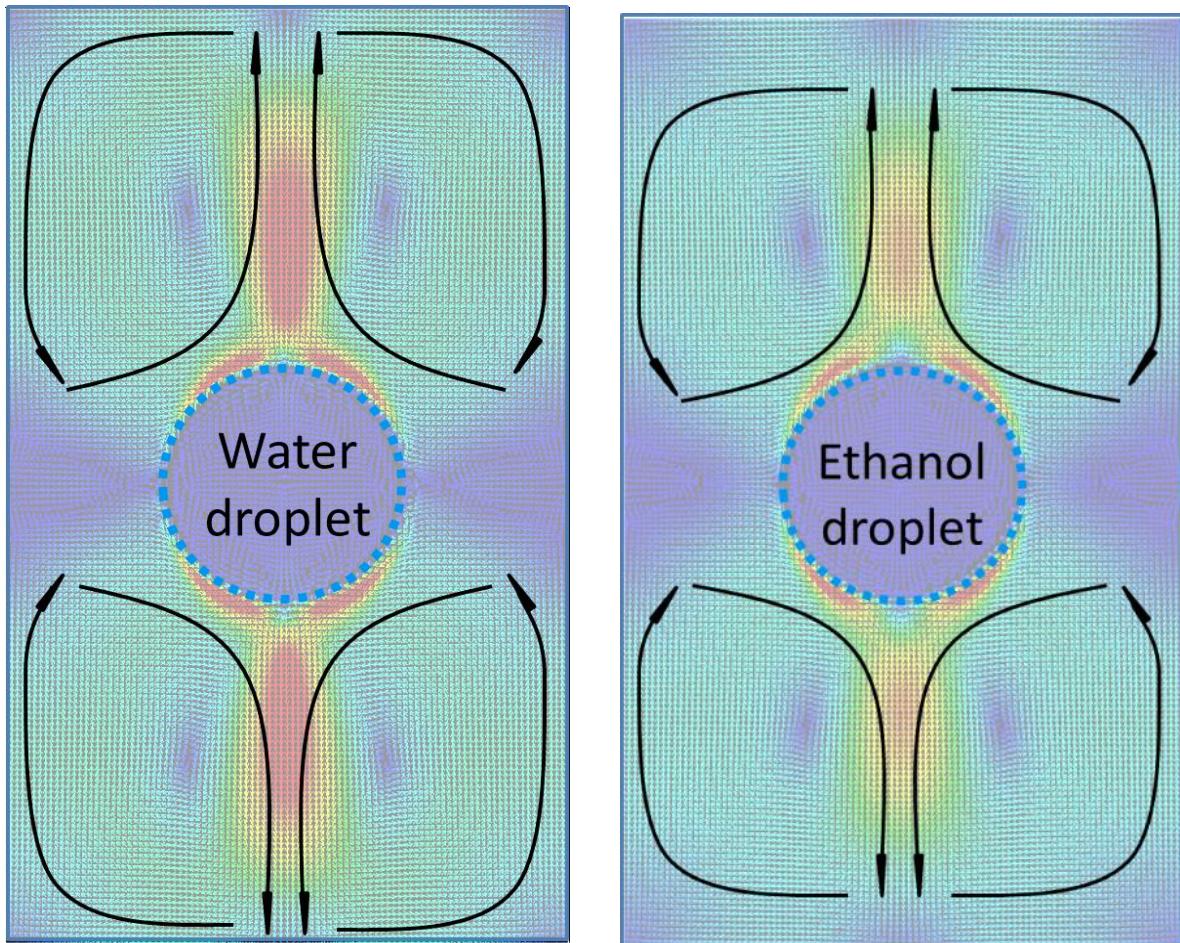


fig. 3-6 A schema of the flow direction of fig. 3-4, fig. 3-5 at 0.055 s

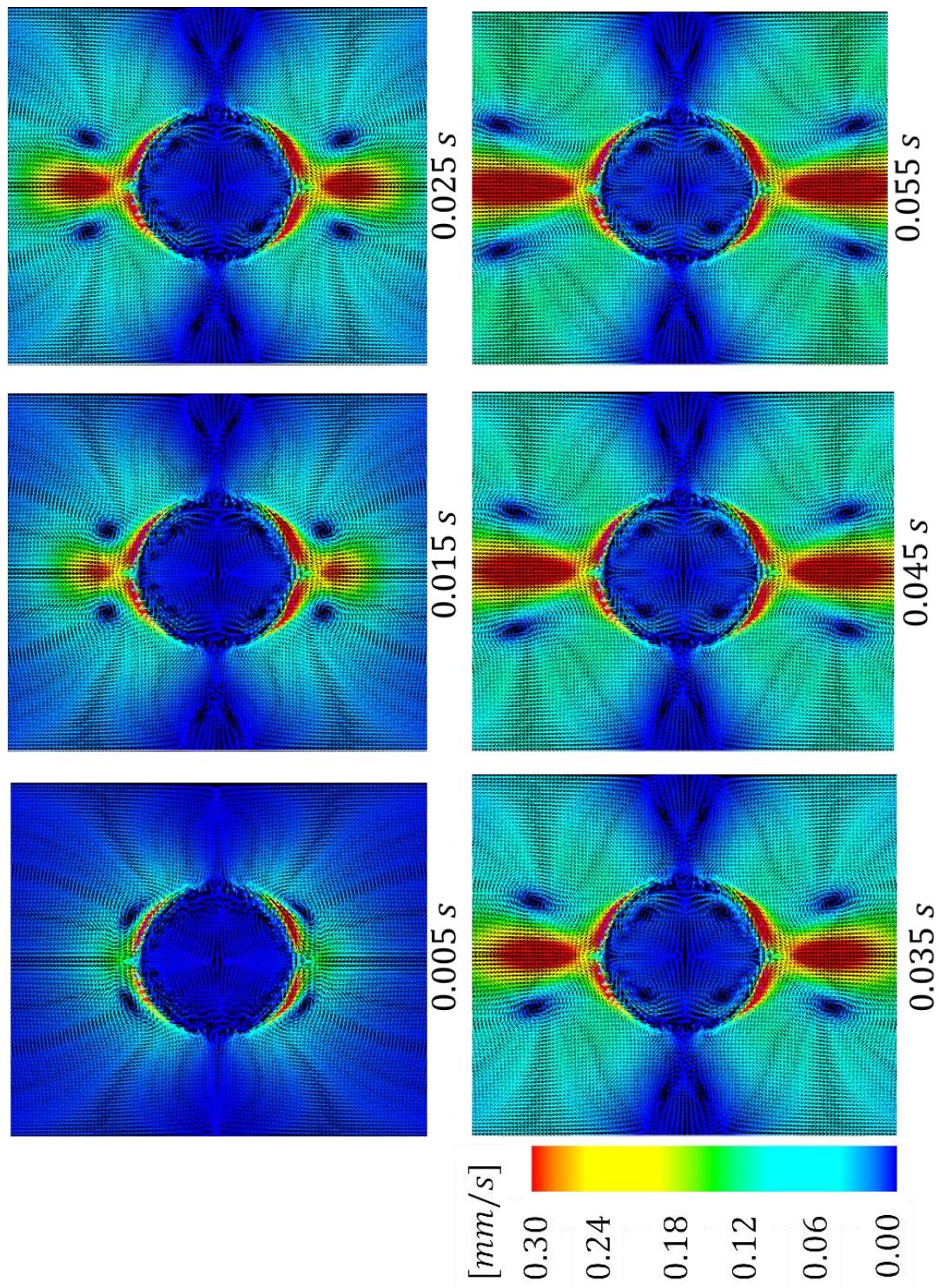


fig. 3-7 External flow field of the water droplet without advection of interface (After Coupling)

Max velocity [mm/s]

0.005s: 0.347, 0.015s: 0.397, 0.025s: 0.399, 0.035s: 0.398, 0.045s: 0.397, 0.055s: 0.397

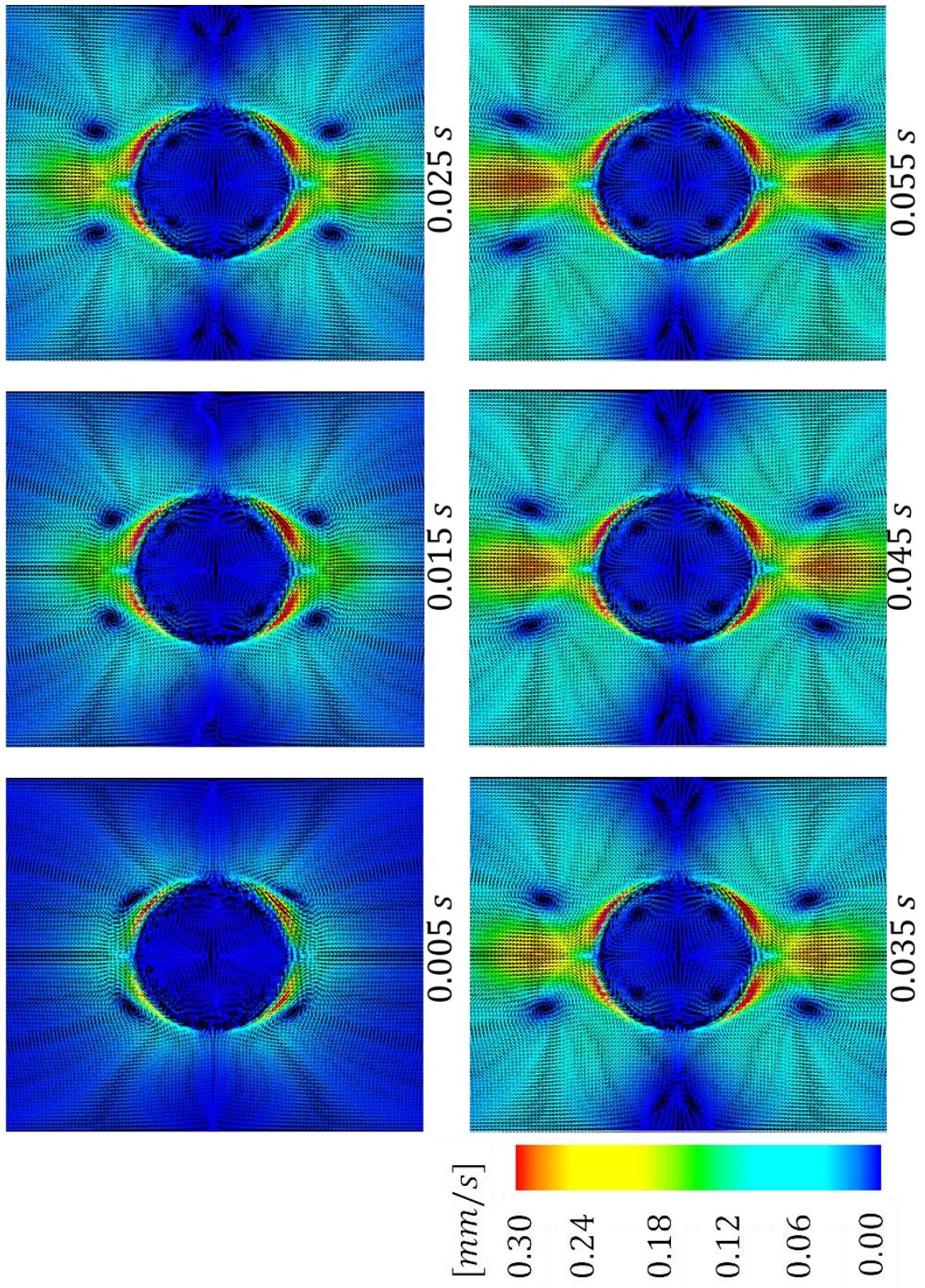


fig. 3-8 External flow field of the ethanol droplet without advection of interface (After Coupling)

Max velocity [mm/s]

0.005s: 0.298, 0.015s: 0.352, 0.025s: 0.355, 0.035s: 0.355, 0.045s: 0.355, 0.055s: 0.355

第4章 液滴内部流動における結果と考察

4.1 液滴内外流動解析コード単体による解析

4.1.1 実験との比較及び液滴物性値の影響

液滴内外流動解析コード単体によって水液滴及びエタノール液滴に対して内部流動を解析した結果をそれぞれ fig. 4-1, fig. 4-2 に示す。液滴部分は液相であり気相に比べて密度が 10^3 倍程度であるため、外部流よりも速度の大きさが小さく現れていることが確認できる。

水液滴では 0.15s~0.20s 付近で、実験で得られた揮発性液滴の内部流動構造 fig. 1-6 に似た側面から中心へと流れ、中心から上部及び下部へと流れる構造が見られるものの、0.25s 以降流動構造は変化していき、解析を行った時間範囲では定常的な流れが見られることはなかった。また、エタノール液滴においても 0.15s~0.20s 付近で水液滴と同様に揮発性液滴に見られる流動構造とよく似た流れ場が見られたものの、0.35s あたりより側面から中心に向かっていた流れが逆転し、その流れに引きずられるように中心から上部及び下部への流れも逆転した。

以上のように水液滴及びエタノール液滴のどちらも一時的に揮発性液滴の実験で見られたような流動構造に近い構造が確認されたものの、解析した範囲で定常的な流れは確認されなかった。また、水液滴の実験で得られた液滴中心を淀み点とした反時計回りの循環渦のような流動構造も確認されなかった。このような結果となった原因を図中の黄色の矢印で示したように外部流速度場が内部流速度場に対して数値計算上の影響を与えていたためであると推測した。この推測の詳細とそれを防ぐために行った解析の結果について次項で述べる。

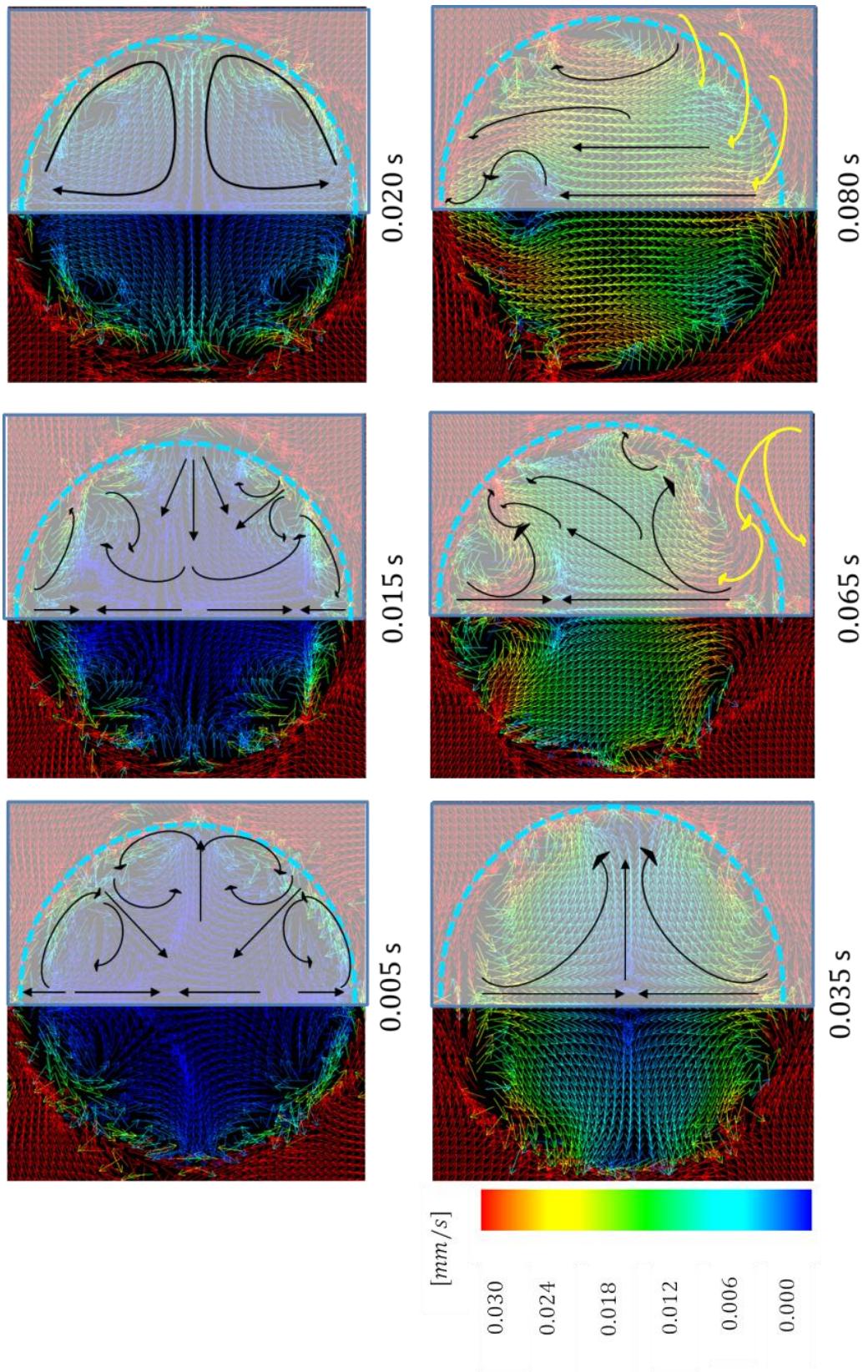


fig. 4-1 Internal flow field of the water droplet (Before coupling)

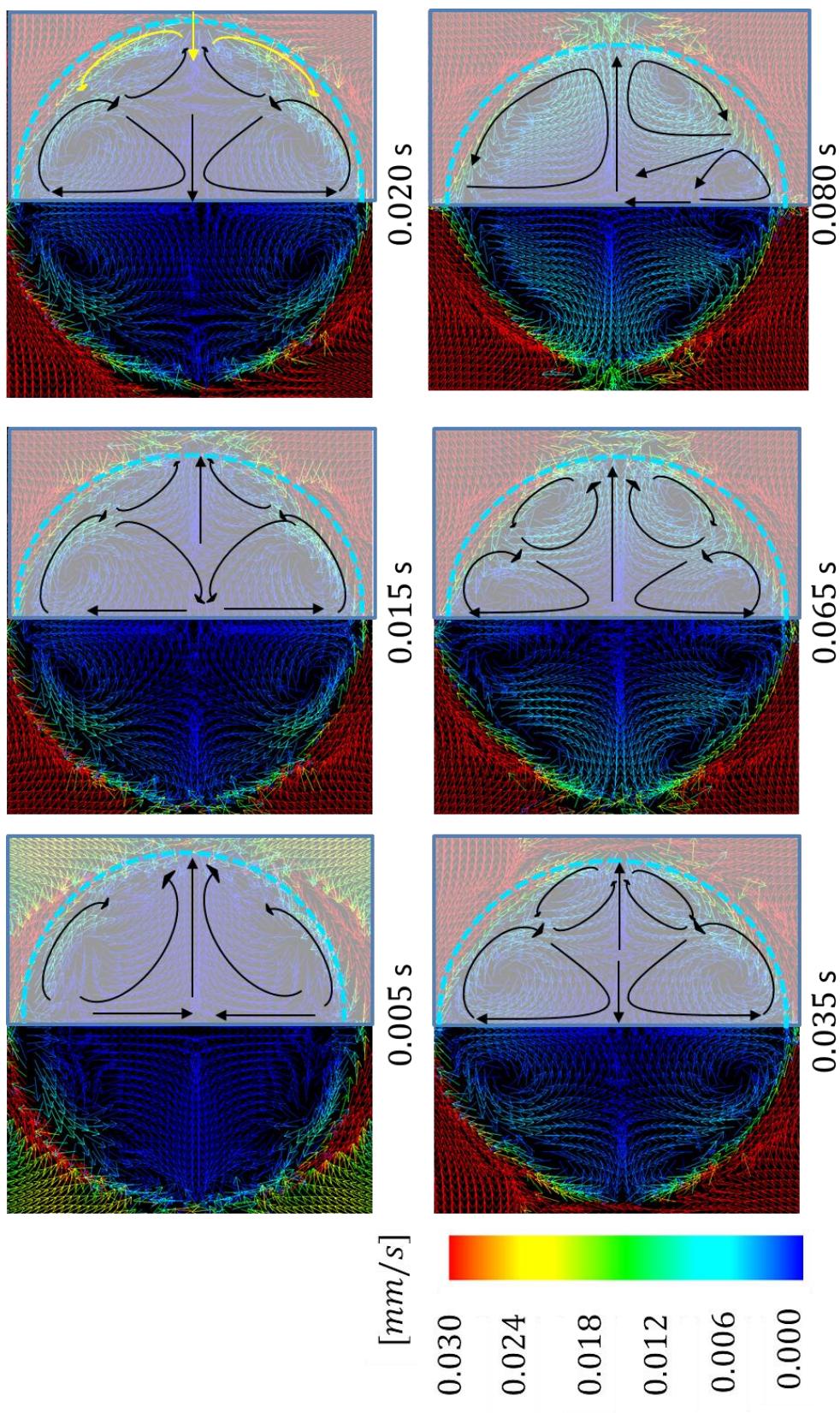


fig. 4-2 Internal flow field of the ethanol droplet (Before coupling)

4.1.2 独立した流れ場としての解析

以下の二つの理由から前項で得られた fig. 4-1, fig. 4-2 は内部流動場が外部流動場から強く数値計算上の影響を受けており実際の物理現象の再現性が低いと考えた。

1. Level-set 法は気相・液相をレベルセット関数 ϕ によって区別し、それぞれに適した物性値を与えることで気液相領域を連続した速度場として同時に解いている。
2. 本解析において液相は気相に対して密度が 10^3 倍程度であるため、液相である液滴内流速度の大きさは気相である外部流に対して小さなものとなる。実験グループの計測 [1] 及び、Yarin らが理論的に導いた液滴の内外流速比を求める理論式(36) [19] によると内部流速は外部流速に比べ約1/5倍である。式(36)で v, d, μ, ρ, ω はそれぞれ速度、液滴の体積等価直径、粘性係数、密度、入射音波の角振動数を表し、下付き添え字の l, g はそれぞれ液相、気相を表す。

$$\frac{v_l}{v_g} = \frac{\sqrt{2}}{50} \left(\frac{d}{\mu_l} \sqrt{\rho_g \mu_g \omega} \right) \quad (36)$$

そこで、外部流動が内部流動に与える数値計算上の影響を取り除いた解析を実行しようとした。このため、液滴界面の速度を常に 0 となるよう置き換え、内部流動場を外部流動場から簡易的に独立した状態となるようにした。この際、 $-0.00005 \leq \phi \leq 0.00005$ に該当するセルを液滴界面として速度を常に 0 となるよう置き換えた。ただし、本解析においてもアルゴリズム上の簡単のため、界面の移流は無視している。

解析結果を fig. 4-3, fig. 4-4 に示す。水液滴及びエタノール液滴共に実験における揮発性液滴の内部流動構造に似た、液滴側面から上下に流れる流動構造を有していることが確認できる。この結果から上述の考察通り、前項の結果は外部流から数値計算上の影響を強く受けたものである可能性が示唆された。ただし、前項で実行した解析から界面での速度を 0 にするのと同時に界面の移流を無視しているため、前項の結果が界面振動に影響を受けた流れである可能性もある。また、実際の物理現象では液滴内外流動は界面を介して連続しており、界面上の速度は 0 であるとは限らない。よって、本解析における界面の速度を 0 にする仮定は実現象とは異なる。以上より、更なる検証には界面の移流を有効にした上で、液滴界面での速度を考慮したまま外部流から内部流への数値計算上の影響を除外できるようなコードの開発が必要となる。

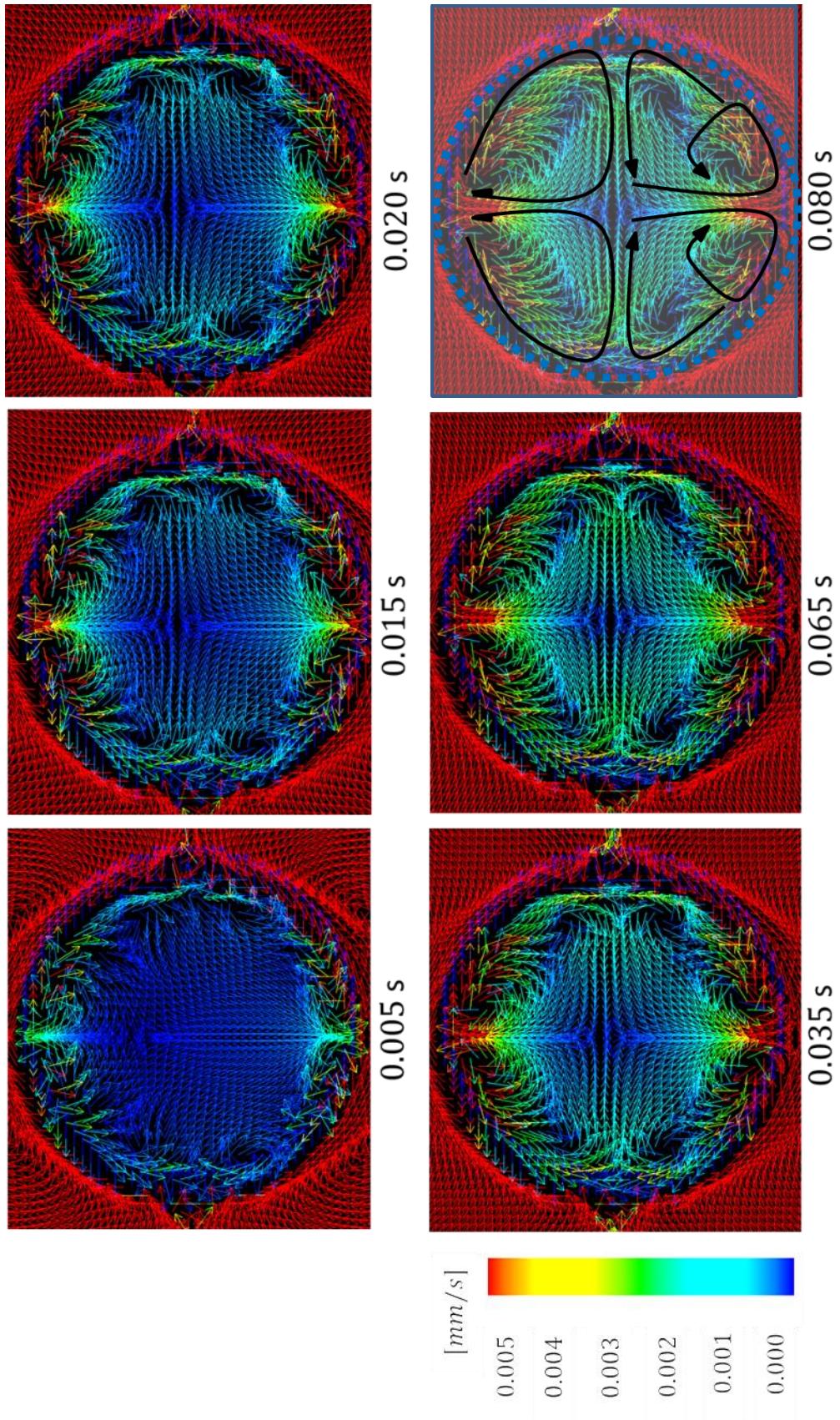


fig. 4-3 Internal flow field of the water droplet without advection of ϕ (Before coupling)

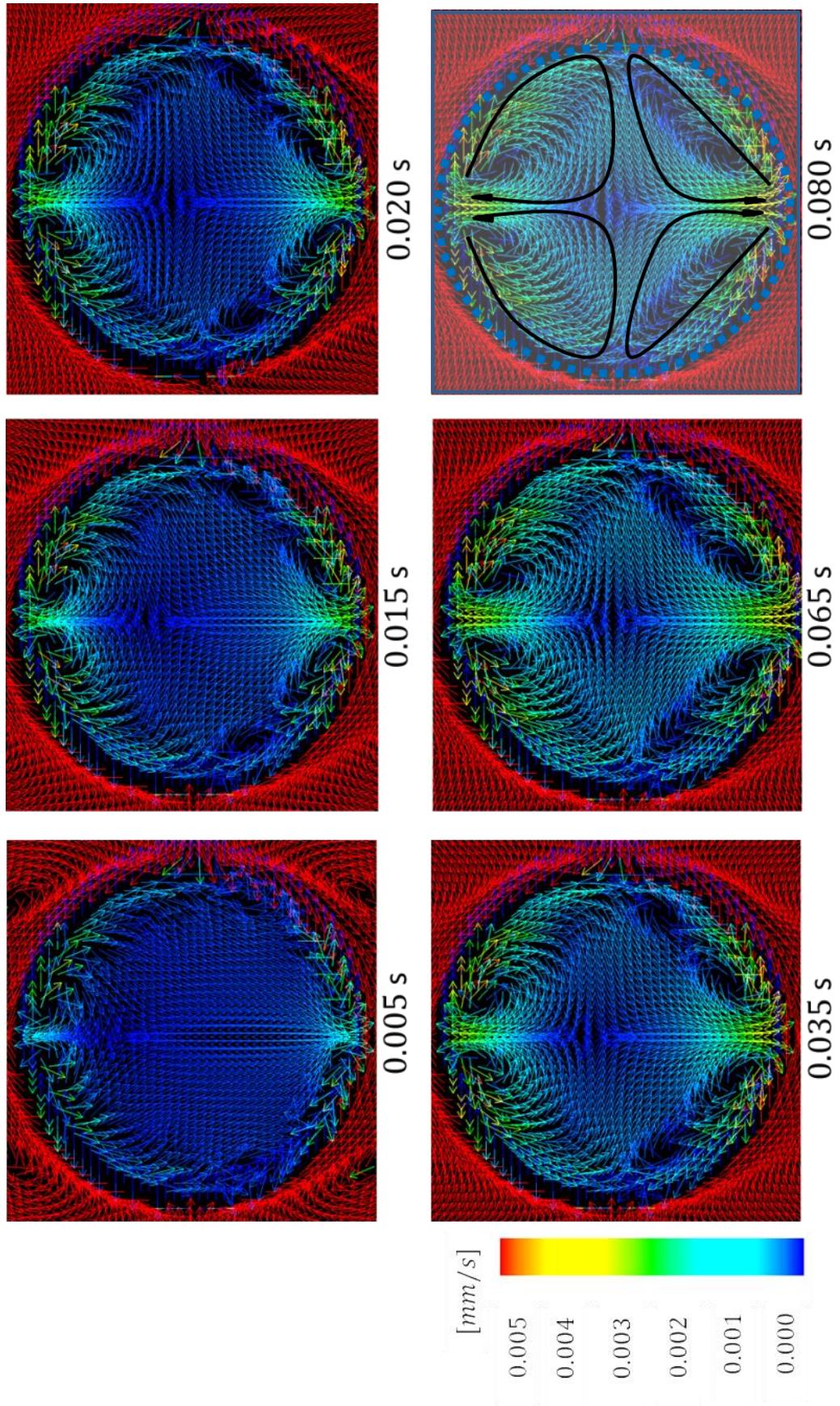


fig. 4-4 Internal flow field of the ethanol droplet without advection of ϕ (Before coupling)

4.2 カップリングコードによる解析

濃度拡散現象解析コードをカップリングして解析した結果を fig. 4-5, fig. 4-6 に示す。

エタノール液滴では fig. 4-6 から分かるように, fig. 1-6(b)に示される実験における揮発性液滴と同じく, 液滴側面から上下に流れる流動構造を有した。ただし, 前項で得られた結果も実験における揮発性液滴に近い流動構造であったことを加味すると, 本解析で得られた流動構造は蒸発による気化試料が与える噴出速度の影響によって作られたというよりも, 噴出速度を入力することで前項において界面と判定されなかったセルから内部流に与えられていた外部流の影響が打ち消されることで内部流動場がより強く外部流動場から独立し, 液滴内部領域に対する入射音波の影響のみを再現できることによると考えられる。

水液滴においても fig. 4-5 のように実験における水液滴の内部流動構造とは異なり, 挥発性液滴と同様の流動構造となった。

以上の結果から, 入射音波の影響を受けた液滴内部の流れは液滴の物性値に関わらず, fig. 1-6(b)に見られるような液滴側面から上下へ向かうような流動構造になると考えられる。しかし, 実験においてそのような流動構造を有したのはエタノール液滴のみで水液滴では fig. 1-6(a)に示されるような液滴中心を淀み点とした反時計回りの循環流が見られた。よって, 水液滴では入射音波の影響を受けずに液滴内部に音響流が形成されておらず, 他の要因によって流れが形成されている, もしくはそのような他の要因及び音響流との複合的な作用によって流れが形成されている可能性が考えられる。音響流以外の他の要因として, 液体表面に働く表面張力が不均等になることにより駆動される対流が挙げられる。液滴界面が微小に変形することによって局所的に曲率が変化し, それに伴って界面上に働く表面張力の大きさが増大・減少して不均一になり対流が発生することで, 水液滴の内部流に見られるような流れ場が形成されている可能性が考えられる。

以上のような推測は実験グループによる考察とも矛盾しない。fig. 4-7 は実験で得られた水及びエタノール液滴における内外流動構造を模式的に表した図である。実験グループはエタノール液滴の界面近傍に存在する循環流と液滴内部流の流動方向の逆転について, 振動境界層内部に存在すると理論的に示唆されている Schlichting の音響流が fig. 4-8 に示すようにして流動方向の逆転を引き起こしていると推測している。また, 水液滴では液滴内外流動方向の逆転が見られないことから Schlichting の音響流の液滴内部流に対するせん断力の連続性が弱い, または絶たれている状態にある可能性があると推測している [5]。

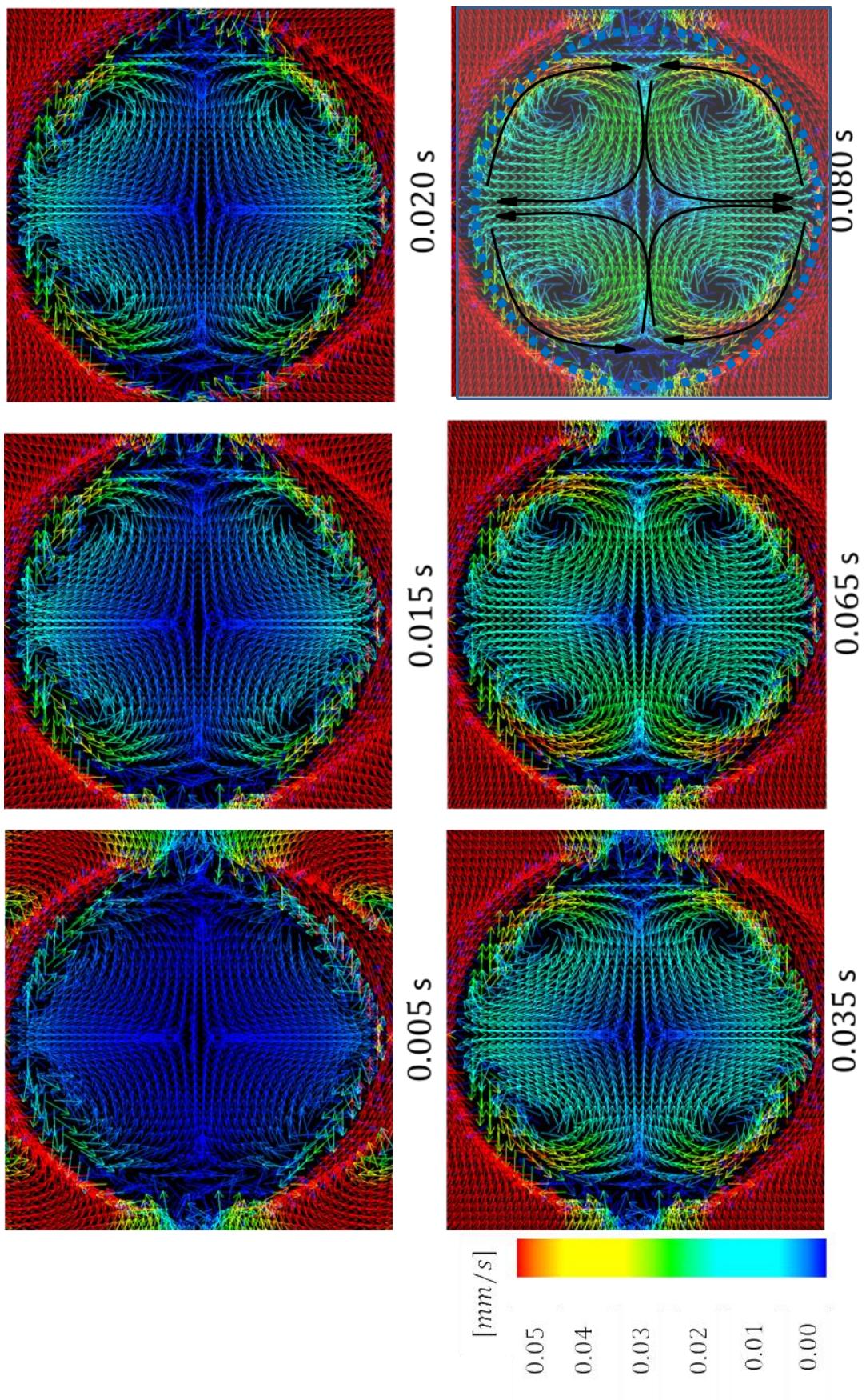


fig. 4-5 Internal flow field of the water droplet without advection of \varnothing (After coupling)

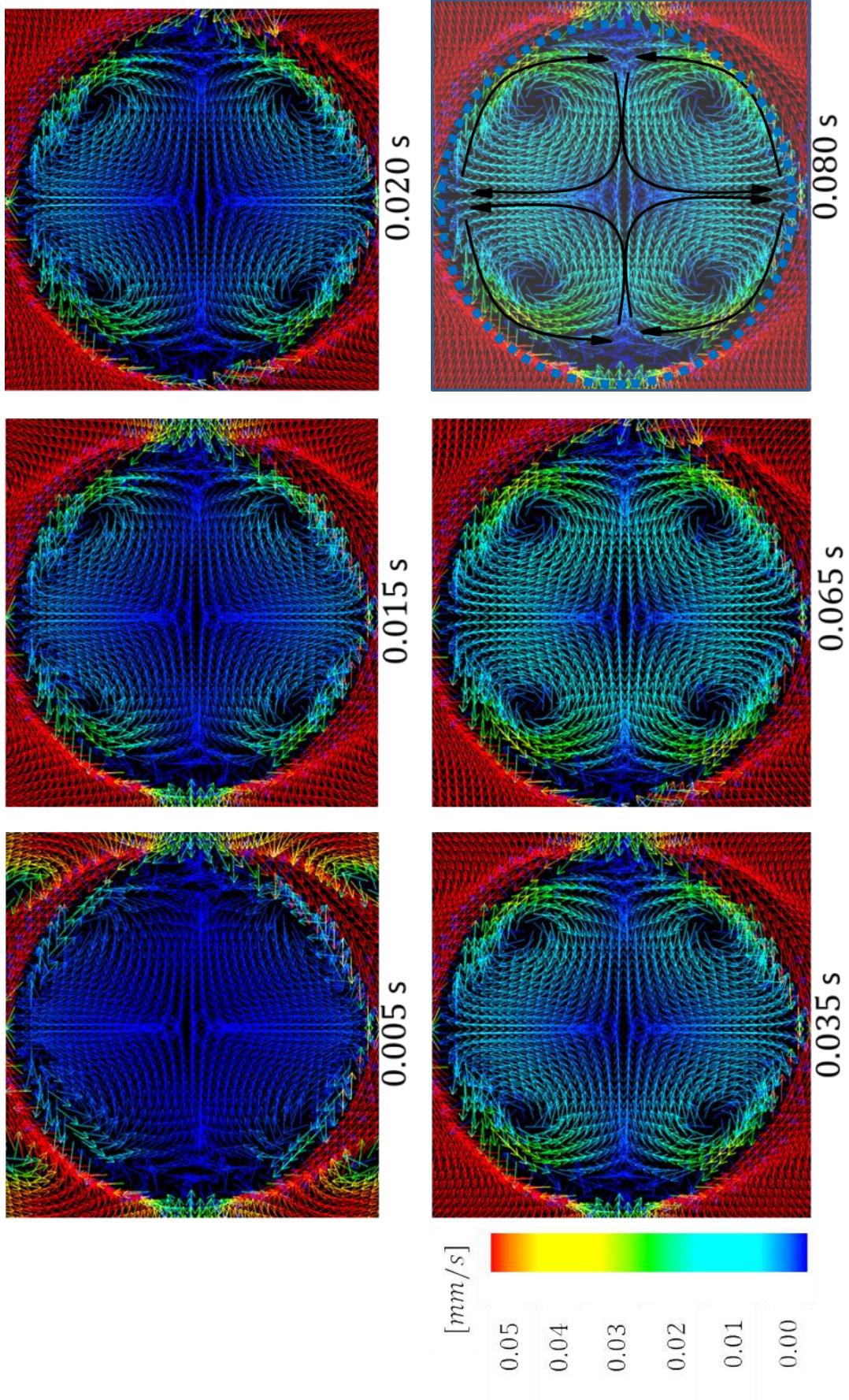
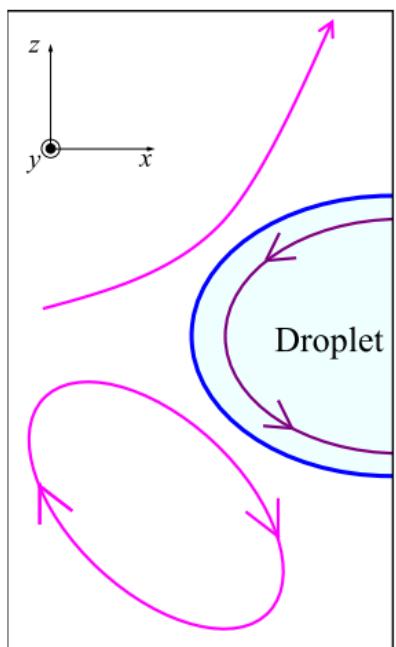
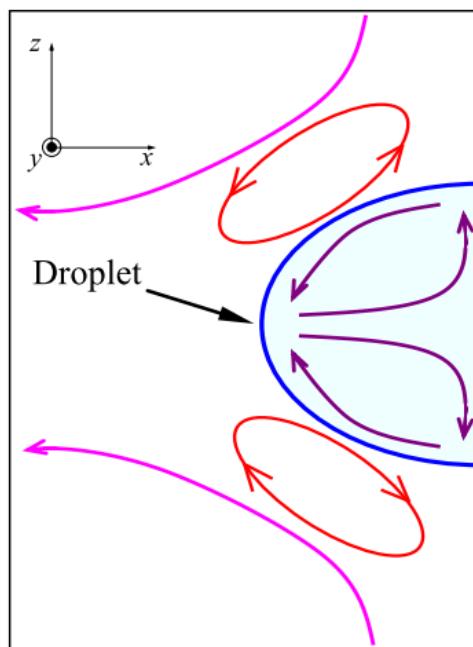


fig. 4-6 Internal flow field of the ethanol droplet without advection of ϕ (After coupling)



(a) Water Droplet



(b) Ethanol Droplet

fig. 4-7 A schema of the external and internal flow field

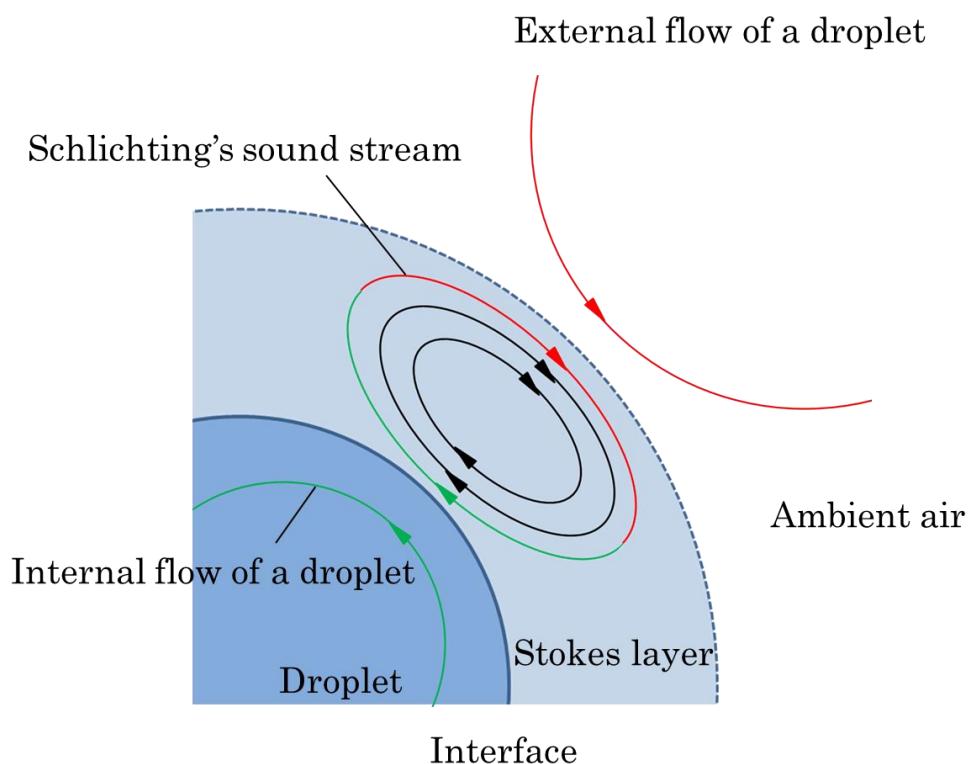


fig. 4-8 A schema of the reversal between external and internal flow direction

第5章 結言

本研究では音場浮遊液滴の内外流動を解析するコードによって数値解析を行い、実験と比較することでコードの妥当性を確認した。さらに、蒸発によって界面から気化した試料が流動場に与える速度を考慮できるようにカップリングを行い、速度場への影響を考察した。以下に本研究で得た知見を示す。

外部流

- Level-set 法を用いて空気中の液滴を表現し、格子上に周期変動速度を与えることで音場浮遊不揮発性液滴の外部流動構造は定性的に再現できるが、本研究に用いたコード・条件では揮発性液滴の流動場に対しては不十分であることを確認した。
- 本研究に用いたコードによると、蒸発の際の液滴から気相へ向かって気化試料が与える微小な速度は外部流速度の大きさを加速させることが確認された。

内部流

- Level-set 法では流れ場が液滴内外で連続であり、密度のオーダーの違いから外部流動が内部流動に対して強く影響を与えるため、界面の移流の影響を考慮した上で外部流動場が内部流動場に与える数値計算上の影響を回避できるようなコードの開発が必要である可能性を示唆した。

文献目録

- [1] 阿部豊、松本聰、渡辺正、西成活裕、北畠裕介、金子暁子、長谷川浩司、田中類比、下西国治、佐々木聰, "浮遊液滴の非線形ダイナミクス," *Int. J. Microgravity Sci. Appl.*, vol. 30, pp. 42-49, (2013).
- [2] 青木一義, "超音波の音響定在波中の浮遊物体挙動に関する研究," (2011).
- [3] H. Lamb, "On the Oscillation of a Viscous Spheroid," *Proc. of Lon. Math. Soc.*, vol. 13, pp. 51-63, (1881).
- [4] 栗林一彦, "試料浮遊溶融技術と無容器材料生成プロセス," *J. Plasma Fusion Res.*, vol. 83, no. 2, pp. 139-143, (2007).
- [5] 石井光、長谷川浩司、金子暁子、阿部豊, "音場浮遊液滴の内外部流動構造と物質輸送現象," 日本機械学会論文集 (B編) , vol. 78, no. 794, pp. 26-39, (2012).
- [6] 矢野猛, "共鳴管内の音響流," ながれ, vol. 24, pp. 371-380, (2005).
- [7] 合田篤、長谷川浩司、金子暁子、金川哲也、阿部豊, "音場浮遊液滴の周囲流動と界面輸送現象," 混相流, pp. 539-546, (2015).
- [8] K. Hasegawa, Y. Abe and A. Goda, "Microlayered flow structure around an acoustically levitated droplet under a phase-change process," *npj / Microgravity (Published online)*, vol. 2, pp. 1-5, 10 March (2016).
- [9] A. Frohn and N. Roth, *Dynamics of Droplets*, Springer, (2000), pp. 200-204.
- [10] M. Sussman, S. Osher and P. Smereka, "A Level Set Approach for Computing

Solutions to Incompressible Two-Phase Flow," *J Comp Phys*, vol. 114, pp. 146-159, (1994).

- [11] M. Sussman and P. Smereka, "Axisymmetric free boundary problems," *J Comp Phys*, vol. 341, pp. 269-294, (1997).
- [12] A. A. Amsden and F. H. Harlow, "A simplified MAC technique for incompressible fluid flow calculations," *J Comp Phys*, vol. 6, pp. 322-325, (1970).
- [13] J. H. ファーツィガー and M. ペリッチ, コンピュータによる流体力学, 丸善出版株式会社, 2003, pp. 161-162.
- [14] 数値流体力学編集委員会, 1 非圧縮性流体解析, 東京大学出版会, (1995).
- [15] 河村哲也, 数値計算入門, サイエンス社, (2006).
- [16] 日本機械学会, JSME テキストシリーズ 伝熱工学, 丸善出版, (2005).
- [17] 平田雄志、幸田清一郎, 基礎からの化学工学, 東京化学同人, (2014).
- [18] H. Schlichting and K. Gersten, *Boundary-Layer Theory*, Springer, 1979.
- [19] A. L. Yarin, G. Brenn, O. Kastner, D. Rensink and C. Tropea, "Evaporation of acoustically levitated droplets," *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 399, pp. 151-204, 1999.
- [20] 日本工業標準調査会, 日本工業規格 *JIS Z 8806:2001*, (2001).
- [21] S. S. Sadhal, "Analisis of acoustic streaming by perturbation methods," *The Royal Society of Chemistry*, vol. 12, pp. 2292-2300, 2012.