



Langevin動力学法によるエアロゾルの円管内通過率の評価

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 化学工学会 公開日: 2019-07-01 キーワード (Ja): エアロゾル, ブラウン運動, 通過率, ランジュバン動力学, Péclet数 キーワード (En): Aerosol, Brownian Motion, Penetration, Langevin Dynamics Method, Péclet Number 作成者: 藤本, 敏行, 山中, 真也, 空閑, 良壽 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10258/00009942

Langevin 動力学法によるエアロゾルの円管内通過率の評価[†]

藤本敏行^{1†}・山中真也¹・空閑良壽²

¹ 室蘭工業大学大学院工学研究科 暮らし環境系領域, 050-8585 北海道室蘭市水元町 27-1

² 室蘭工業大学, 050-8585 北海道室蘭市水元町 27-1

キーワード: エアロゾル, ブラウン運動, 通過率, ランジュバン動力学, Péclet 数

円管内を層流で流れるエアロゾル粒子の通過率を評価するため, 粒子のブラウン運動を再現できるランジュバン動力学方程式によって粒子の軌跡を計算した. 通過率の計算では, 粒子の侵入距離として円管入口から入射した粒子が壁面に到達するまでに移動した軸方向最大距離(z_{MTD})と, 粒子が壁面に沈着した点の入口からの軸方向距離(z_{DD})の二つの基準を設けた. これにより, 古典的な研究と同様に, ある円管断面における粒子の全流束と円管入口での全流束の比として定義されている粒子の通過率と, 粒子の壁面への沈着流束の分布の両方の評価が可能となった. Péclet 数が 1000 より高い条件では, z_{MTD} と z_{DD} の差はほとんどなく, z_{MTD} の分布から求めた通過率は, 流れの方向の粒子の拡散を無視して移流—拡散方程式を解析的に解くことで得られた従来の通過率とよい一致を示した. Péclet 数が 1000 より低い条件では, 粒子の等方的なブラウン運動の性質が顕著になり, z_{MTD} が z_{DD} より大きくなる粒子の割合が増加した. z_{MTD} の分布から得られた通過率は, 流れの方向の粒子の拡散を考慮した移流—拡散方程式より得られた通過率と非常に良い一致を示したが, z_{DD} の分布より得られた粒子の沈着流束の分布と, 通過率の傾きから得られた沈着流束の分布は一致しなかった. そのため, 低 Péclet 数での粒子の輸送と沈着現象を評価するには, 粒子の軌跡を直接計算する手法が有用であると考えられる.

緒 言

気体中に粒子が浮遊した分散系はエアロゾルと呼ばれ, 近年は PM2.5 の問題と関連して健康影響などが心配されているが, 気象や気候変動に与える影響も大きく, 工業的にも微粒子の製造, クリーンルームなどでの空気清浄化, 排気ガスの集塵など, 多くの分野で重要である.

エアロゾルの計測装置や反応装置の設計にはエアロゾルの挙動を予測することが必要となる. エアロゾル中の粒子(以下, 単に粒子と称する)は非常に希薄であるため, 粒子の運動が周囲の気体の流動に与える影響は一般に無視できる. そのため, まず流れ場を解き, その中での粒子の挙動を評価する手法が広く用いられている. 粒子のブラウン運動が無視できるような大きな粒子の運動は, 基本的には粒子に作用する流体抵抗と外力を考慮した Newton の運動方程式を解くことで評価できる. この手法は, インパクターによる粒子の捕集効率を予測する場合(Marple and Chien, 1980)などに用いられており, 粒子の重力沈降速度も定常状態を仮定して粒子の運動方程式から得られている.

しかし粒子のサイズが小さくなると, ガス分子の不規則な衝突により粒子はランダムなブラウン運動をするため, 運動方程式を解くことが困難であった. そこで, ブラウン運動の程度を気体分子と同様な拡散係数で表し, 濃度分布を記述する移流—拡散方

式を解くことでエアロゾルの挙動は取り扱われてきた(Gormley and Kennedy, 1949; Tan and Hsu, 1971; Fujimoto *et al.*, 1999 など). このような場合, エアロゾル粒子の付着力は重力や気流から受ける力と比較して十分大きく, 壁面に到達した粒子は壁面に付着すると仮定した境界条件(壁面でのエアロゾル濃度は 0)が適用される. ところが近年のコンピュータの高性能化と計算コストの低下によって, 気体分子のランダムな衝突による粒子の加速を取り入れた Langevin 動力学方程式(Chandrasekhar, 1943)を解くことで, 粒子のブラウン運動を解くことが可能になってきた. この手法では粒子に作用する外力や慣性力による運動とブラウン運動を同時に解くことが可能となり, 様々な現象の解析に適用されている(Song *et al.*, 2006, Buesser *et al.*, 2009 等). 疑似乱数を用いてそのランダム力を表現し粒子の軌跡を計算する方法を, ここでは LD 法(Langevin Dynamics Method)と称する. この方法では Monte Carlo シミュレーションと同様に多くの試行を行って粒子の平均的な挙動を評価する必要がある, 多大な計算コストを要する.

その中で, 我々はエアロゾルの基礎的な挙動を LD 法で再現し, 従来の拡散方程式による記述が妥当なものであるか検討してきた. 前報(Fujimoto *et al.*, 2014)では二枚の平行平板間でのエアロゾルの拡散沈着の問題を取り扱い, 粒子の平均自由行程が長く, 平行平板の間隔が狭い場合には, 拡散方程式による記述が不適切であることを報告した.

本研究では, 円管内を層流で流れるエアロゾルの拡散沈着に着目した. この現象は, 拡散バッテリー(Rodebush *et al.*, 1943)としてエアロゾルのサイズ選別に応用されるほか, エアロゾルのハンドリングでしばしば問題となる配管内での拡散沈着による損失に直

[†] 第 33 回エアロゾル科学・技術研究討論会(堺市, 2016 年 9 月)にて一部発表

^{††} fjmt@mmm.muroran-it.ac.jp

70 接関連するため、多くの理論的な検討がなされてきた。詳細は「1.
71 移流—拡散方程式による評価」で述べるが、Gormley and Kennedy
72 (1949)は粒子の軸方向の拡散を無視し、エアロゾルの移流—拡散
73 方程式を解析的に解き、円管入口からの距離 z の断面での粒子の
74 全流束と、円管入口部でのその比として粒子の通過率
75 (Penetration), P を導いた。

76 粒子の沈着により下流側では濃度が低下し、軸方向にも負の濃
77 度勾配が形成される。Tan and Hsu (1971)はその影響を考慮し、
78 Gormley and Kennedy (1949)と同じ境界条件で移流—拡散方程式を
79 数値的に解いた。その結果、Péclet 数が低い条件($Pe < 100$)では、
80 Gormley and Kennedy (1949)の通過率よりも通過率が高くなること
81 を示した。

82 これらの移流—拡散方程式を解いた研究では、エアロゾルの半
83 径方向の濃度分布が得られていないため、管壁近傍の濃度勾配か
84 ら得られる粒子の沈着流束 J の分布に関する議論はなされていな
85 い。しかし、連続の式と粒子の通過率の分布から、入り口濃度 C_0
86 と円管半径 R 、粒子の拡散係数 D で無次元化した粒子の沈着流束
87 の分布 $2RJ/C_0D$ は、粒子の沈着率($1-P$)を α で微分することで間接
88 的に得られる。そこで本研究では、LD 法によって粒子の運動を計
89 算し、粒子の通過率を算出すると同時に、粒子が壁面に沈着した
90 点の入口からの軸方向距離の分布から直接的に沈着流束の分布を
91 求め、従来の研究結果から間接的に得られるそれと比較した。

92 1. 移流—拡散方程式による通過率と沈着流束

93 円管内を層流でエアロゾルが流れる場合、重力を無視すると粒
94 子の濃度分布は軸対称となり、移流—拡散方程式は次の Eq. (1)で
95 表される。

$$96 \quad v_z \frac{\partial C}{\partial z} = D \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right] \quad (1)$$

97 ここで、 z は円管軸方向の距離、 r は円管中心軸からの距離、 C は
98 粒子濃度であり、 v_z は円管軸方向の流れの速度である。Gormley and
99 Kennedy (1949)は $\partial^2 C / \partial z^2$ の項を無視し、 $z=0$ の円管入口におい
100 て $C = C_0$ で一様、 $r=R$ の円管内壁で $C=0$ という境界条件で Eq.
101 (1)を解き、次の Eq. (2)を解析的に導いた。Eq. (2)をこれ以降、GK
102 式と称する。

103 $\alpha < 0.0312$ のとき

$$104 \quad P_{\text{GK}}(\alpha) = 1 - 2.56\alpha^{2/3} + 1.2\alpha + 0.177\alpha^{4/3} \quad (2a)$$

105 $\alpha \geq 0.0312$ のとき

$$106 \quad P_{\text{GK}}(\alpha) = 0.819 \exp(-3.657\alpha) + 0.0976 \exp(-22.3\alpha) + 0.032 \exp(-57\alpha) \quad (2b)$$

107 α は次の Eq. (3)で表され、無次元距離($2z/R$)と Péclet 数($Pe = 2u_{\text{av}}R/D$)
108 の比である。

$$109 \quad \alpha = \frac{Dz}{u_{\text{av}}R^2} \quad (3)$$

110 ここで u_{av} は断面平均速度である。Tan and Hsu (1971)は $\partial^2 C / \partial z^2$
111 の項の影響を考慮し、GK 式と同じ境界条件でエアロゾルの移流
112 —拡散方程式を数値的に解いた。その結果、 $Pe = \infty$ での通過率
113 は GK 式と一致し、Péclet 数が低い条件($Pe < 100$)では、GK 式よ

114 りも通過率が高くなり、特に沈着パラメータ α が小さい場合にそ
115 の影響が大きいことを示した。

116 2. Langevin 動力学法の計算方法

117 2.1 粒子の軌跡の計算

118 外力が作用しない流れ場での球形粒子の運動は、次の Langevin
119 動力学方程式で表される(Chandrasekhar, 1943)。

$$120 \quad m \frac{d\mathbf{v}}{dt} = -\frac{m(\mathbf{v} - \mathbf{u})}{\tau} + \mathbf{X} \quad (4)$$

121 ここで、 m は粒子の質量、 \mathbf{v} は粒子の速度ベクトル、 t は時間、 \mathbf{u}
122 は流れの速度ベクトル、 τ は粒子緩和時間で \mathbf{X} は粒子に作用する
123 ランダム力である。

124 Equation (4)を時間 $t=t$ から $t=t+\Delta t$ まで積分すると、粒子の速
125 度が次の Eq. (5)で、もう一度積分すると粒子の変位が Eq. (6)で表
126 される(Ermak and Buckholz, 1980)。

$$127 \quad \mathbf{v}(t + \Delta t) = \mathbf{v}(t) - \{\mathbf{v}(t) - \mathbf{u}(\mathbf{r}(t))\}(1 - e^{-\Delta t/\tau}) + \mathbf{B}_1 \quad (5)$$

$$128 \quad \mathbf{r}(t + \Delta t) = \mathbf{r}(t) + \tau \{\mathbf{v}(t) + \mathbf{v}(t + \Delta t) - 2\mathbf{u}(\mathbf{r}(t))\} \\ \times \left(\frac{1 - e^{-\Delta t/\tau}}{1 + e^{-\Delta t/\tau}} \right) + \mathbf{u}(\mathbf{r}(t))\Delta t + \mathbf{B}_2 \quad (6)$$

129 ここで $\mathbf{u}(\mathbf{r}(t))$ は時間 t での粒子の位置 $\mathbf{r}(t)$ における流れの速度ベク
130 トルである。 \mathbf{B}_1 と \mathbf{B}_2 はブラウン運動によるランダムな速度と位
131 置の変化を表す項である。本研究では、Mersenne Twister 法
132 (MT19937; Matsumoto and Nishimura, 1998)によって発生させた
133 [0,1]の一樣疑似乱数を Box-Muller 法(Box and Muller, 1958)によつ
134 て標準正規分布にしたがう疑似乱数に変換し、この \mathbf{B}_1 と \mathbf{B}_2 を各
135 タイムステップで計算した。

136 2.2 計算プログラムの検証

137 前報(Fujimoto *et al.*, 2014)でも Langevin 動力学方程式により粒
138 子のブラウン運動の性質が正しく表現できるかを確認したが、こ
139 こではさらに粒子速度の確率分布等の検証も行った。直径 1
140 nm、密度 1000 kg m^{-3} の粒子 10 万個を無限に広い三次元空間に配
141 置し、粒子の初期速度が Maxwell-Boltzmann 分布にしたがうよう
142 に、標準正規分布にしたがう疑似乱数を用いて設定した。粒子緩
143 和時間の 2^{18} 倍(262,144 倍)となる $1.754 \times 10^{-4} \text{ s}$ までの粒子の変位
144 と速度の変化を Eqs. (5)と(6)により計算した。この時、タイムス
145 テップの大きさ Δt は粒子緩和時間の 1 倍、 2^8 倍(256 倍)、 2^{16} 倍
146 (65,536 倍)とした。詳細な結果は省略するが、いずれのタイムス
147 テップの大ききで計算した場合でも、 x 、 y 、 z の各方向での粒子
148 の初期位置からの変位の平均は、その分布の広がりと比較してほ
149 ぼ無視できる大きさ($\langle x(t) \rangle \approx \langle y(t) \rangle \approx \langle z(t) \rangle \approx 0$)で、粒子の変
150 位の二乗平均は時間の経過とともに直線的に増加し、その傾きは
151 拡散係数 D の理論値の 2 倍とほぼ一致した
152 ($\langle x^2(t) \rangle \approx \langle y^2(t) \rangle \approx \langle z^2(t) \rangle \approx 2Dt$)。また、粒子の x 、 y 、 z の各
153 方向での速度の平均値もほぼ無視できる大きさであり、速度分布
154 は Maxwell-Boltzmann 分布とほぼ一致した。粒子の速さの分布も
155 同様に理論的な分布とほぼ一致し、粒子の熱運動速度と称される
156 “平均の速さ”も理論値である $c_p = \sqrt{8kT/\pi m}$ とほぼ一致した。こ
157 こで、 k は Boltzmann 定数、 T は温度である。これらの検証によ
158

り、無限に広い空間中での粒子の軌跡を計算では、タイムステップの大きさを粒子緩和時間よりかなり大きくした場合でもエアロゾルのブラウン運動の性質が正しく再現できることが確認できた。

2.3 Langevin 動力学法による円管の通過率の計算

ここでは LD 法によるエアロゾルの円管の通過率の計算方法を示す。Figure 1 (a)に示すように、三次元直交座標系の中に水平に配置された半径 R の円管を考える。Gormley and Kennedy (以降 GK) や Tan and Hsu (以降 TH) は粒子の重力沈降を無視して通過率を求めており、本研究でも同様に重力の影響を無視した。円管内のエアロゾルの流れは完全に発達した層流で、Hagen-Poiseuille 流れであると仮定する。円管内の流れは軸対称であるので、軸方向の速度成分のみが存在する。

粒子の位置を原点からの位置ベクトル $\mathbf{r}(t) = (x(t), y(t), z(t))$ で表すと、円管中心軸からの距離は $r(t) = \sqrt{x^2(t) + y^2(t)}$ と表される。この点での軸方向の速度成分は Eq. (7) で与えられる。

$$u_z(r(t)) = \frac{2Q}{\pi R^4} [R^2 - r(t)^2] \quad (7)$$

ここで、 Q はエアロゾルの体積流量であり、この速度成分が Eqs. (5) と (6) の流れの速度となる。

円管の通過率の計算では、Figure 1 (a) 中に斜線で示したエアロゾル入口部から粒子を入射させ、円管の内壁に衝突するまで粒子の速度 $\mathbf{v}(t)$ と位置 $\mathbf{r}(t)$ の変化をそれぞれ Eqs. (5) と (6) により計算する。ここで、移流-拡散方程式の入口での境界条件を再現するため、次の方法で粒子の入射位置を決定した。

粒子が内径 r 、外径 $r+dr$ の環形部から入射する確率は、環形部の流量と全体積流量 Q との比で表され、円管内の軸方向の速度成分 Eq. (7) から次の式で表される。

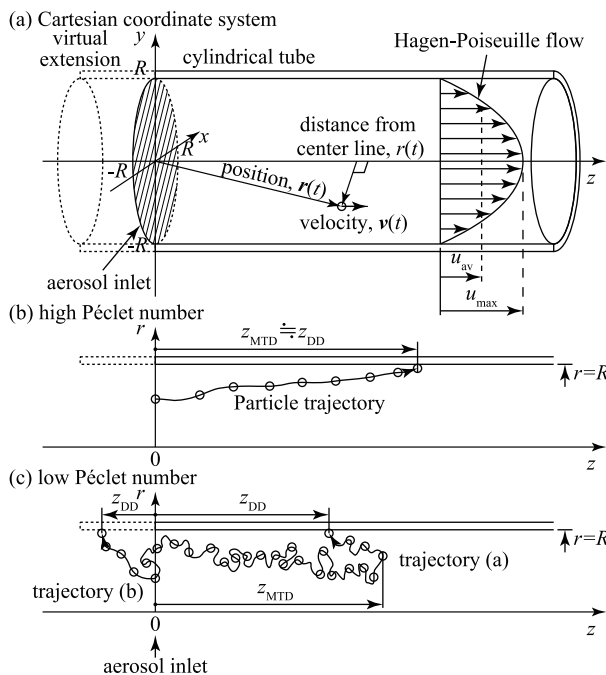


Fig. 1 Schematic illustration of (a) Cartesian coordinate system. Imaginable trajectories of particles at low and high Péclet number conditions are plotted in (b) and (c), respectively

187

$$f(r/R) = \frac{4}{R} \left\{ \frac{r}{R} - \left(\frac{r}{R} \right)^3 \right\} \quad (8)$$

この Eq. (8) を $r/R = 0$ から r/R まで積分すると、累積の確率分布 $F(r/R)$ が次の Eq. (9) のように表される。

190

$$F(r/R) = 2 \left(\frac{r}{R} \right)^2 - \left(\frac{r}{R} \right)^4 \quad (9)$$

この累積確率分布は $r/R = 0$ のときに 0、 $r/R = 1$ のときに 1 となるので、 $[0, 1]$ の一様疑似乱数を用いると Eq. (9) の逆関数によりランダムな r/R が得られる。次に、粒子の直交座標系における x 方向と y 方向の入射位置は、もう一つの一様疑似乱数を用いて決定できる。粒子の初期速度は軸方向の流れの速度と、ランダムに決定した Maxwell-Boltzmann 分布にしたがう三次元的な粒子の熱運動速度の和とした。

Péclet 数が高い場合と低い場合に想像される粒子の軌跡をそれぞれ Figures 1 (b) と (c) に示す。ここでは粒子が円管内壁へ沈着するまでの軌跡を位置入口部からの軸方向距離 z と円管中心軸からの距離 r で示す。Péclet 数が高い場合は Figure 1 (b) に示すように粒子のブラウン運動の影響が小さく、その速度は流体による移流に起因する軸方向の速度成分が支配的で、半径方向のブラウン運動の寄与は小さいと考えられる。このような状況では、粒子はなめらかな軌跡を描いて壁面に衝突すると予想される。しかし、Péclet 数が低い場合は、流体による移流に起因する軸方向の速度成分が小さく、粒子のブラウン運動に起因する等方的な速度成分の寄与が大きくなる。この場合、Figure 1 (c) に示すように、粒子は複雑な軌跡をたどる。エアロゾル粒子は激しいブラウン運動により、trajectory (a) のようにいったんある程度下流まで移動したのち、そこから遡って沈着する場合や、trajectory (b) のように入射時に負の軸方向速度を持ち、円管入口部より下流へ移動しない場合も考えられる。そこで、 $z < 0$ の範囲にも円管を仮想的に延長し、二種の入口部からの侵入距離を考えた。粒子が壁面に沈着するまでに到達した最大軸方向移動距離を z_{MTD} (最大移動距離; maximum traveling distance)、粒子が壁面に衝突した点の入口部からの軸方向距離を z_{DD} (沈着距離; deposition distance) とし、前者の分布から算出した通過率を $P_{MTD}(\alpha)$ とし、後者からは無次元化された沈着流束の分布を求めた。

円管の $z < 0$ への仮想的な延長が通過率や沈着流束の分布に与える影響を調べるために、粒子の入り口からの流出を許さない計算も行った。この時、粒子の入口部での濃度分布と粒子の初期速度の分布に影響を与えないように、円管入口での入射位置と初期速度を変更せず、再度計算を行った。

LD 法によるエアロゾルの通過率の計算の手順は、以下のよう

1. 上述した方法で i 番目の粒子の入射位置と初期速度をランダムに決定し、それらを記録する。粒子の最大移動距離 ($z_{MTD,i}$) を暫定的に 0 とする。
2. Equation (7) で表される流れ場中での粒子の速度と位置の時間変化を Eqs. (5) と (6) を用いて計算する。粒子の軸方向の位置が、暫定的な最大移動距離より大きくなったときは、最大移動距離を更新する。粒子の入り口からの流出を許さない計算では $z(t) < 0$ になった場合は記録しておいた入射位置と初期速度に戻す。

3. 円管中心軸と粒子中心間の距離が $R-D_p/2$ 以上になったとき
 $(\sqrt{x_i^2(t)+y_i^2(t)} \geq R-D_p/2)$ 粒子が円管内壁に沈着したと判定し、
 粒子の軸方向の距離を粒子の沈着距離($z_{DD,i}$)とし、次のステップ
 4に進む。粒子が円管内壁に衝突していない場合は、時間を
 1タイムステップ進め、ステップ2に戻る。
 4. 試行回数が設定された回数に到達した場合、計算を終了し、
 そうでない場合はステップ1に戻り、次の粒子($i=i+1$)の計算
 を開始する。

2.4 LD 法により求めた通過率の不確かさの検討

2.3 節で説明した方法では、エアロゾルの通過率 $P_{MTD}(\alpha)$ は、無次元化された最大移動距離 α_{MTD} が α より大きい粒子の数と全試行回数 N の比で得られる。すなわち、試行回数を増やすと通過率はある値に漸近していくが、試行を追加するたびに通過率は変化し、有限の試行回数で一定の値を得ることはできない。よって、LD 法によって得られた通過率を定量的に考察するためには、その不確かさを明らかにしておく必要がある。そこで、テストケースとして粒子径 10 nm、密度 1,000 kg m⁻³、円管半径 $R=2.5$ mm、エアロゾル流量 $Q=1$ L/min、試行回数 $N=10^5$ 、タイムステップの大きさ $\Delta t=2^{14}\tau (=16384\tau)$ とした先行計算を10回行い、不確かさの検討を行った。

Figures 2 (a)–(c)には、それぞれ最初の試行回数 $N=10^5$ までの計算で得られた $\alpha=0.001$, 0.01, 0.1 での通過率 P_{MTD} の変化を太線で示し、10 回の試行回数 $N=10^5$ の計算で得られた通過率の平均値 $P_{MTD,N=10^6}$ ($N=10^6$ 回の試行に相当する)を破線で示す。さらに、Monte Carlo 法による不確かさの推定において、 N 回の試行で得られた確率 p の不確かさは、 $\delta \leq 3\sqrt{p(1-p)/N}$ と推定されており (Buslenko *et al.*, 1966)、この式から得られた不確かさを $P_{MTD} \pm \delta_{MTD}$ として図中に細い実線でプロットした。 $N=10^6$ 回の試行で得られた通過率は、Monte Carlo 法において推定された不確かさの範囲にあることがわかり、2 から 10 回目の試行回数 $N=10^5$ の計算でも同様の結果が得られた。

3. 結果と考察

3.1 タイムステップの大きさの検討

2.2 節では、Langevin 動力学方程式により、粒子のブラウン運動の性質が正しく再現できていることを確かめたが、その計算では無限に広い空間を想定して、粒子の衝突の判定は行っていない。本研究で行った通過率の計算では、時間がタイムステップの整数倍の瞬間のみで粒子と壁面の衝突を判定しているため、タイムステップの大きさが不適切に大きい場合は粒子の衝突判定が適切に行われない可能性がある。そこで、適切なタイムステップの大きさを見積もるため、タイムステップの大きさを粒子緩和時間 τ の 2^2 倍から $1/4$ 倍ずつ変化させ、通過率の変化を調べた。広い Péclet 数の範囲をカバーできるように、粒子径を 1, 10, 100 nm、管半径を 2.5, 5.0, 10 mm、 u_{av} を 0.0531, 0.2122, 0.849 m s⁻¹ の条件とし、 $3 \times 3 \times 3$ の 27 条件で計算をおこなった。この時の Péclet 数の範囲は 5.04×10^1 から 2.46×10^7 である。円管半径 R は粒子の平均自由行程(粒子径が 1 nm の場合でも約 95 nm)より十分大きく、拡散方程式で粒子の輸送が記述できる条件である。

$\alpha=0.001$, 0.01, 0.1 における通過率 $P_{MTD}(\alpha)$ の変化を Figures 3 (a)–(d)に示す。横軸はタイムステップの大きさを粒子の拡散係

数 D と円管半径 R で無次元化した無次元タイムステップ $D\Delta t/R^2$ [-] で、プロットの色は Péclet 数を表している。白抜きの三角は $Pe < 100$ での結果、白抜きの四角は $100 < Pe < 1000$ での結果、白抜きの三角は $1000 < Pe$ での結果で、黒い破線は GK 式で求めた通過率である。タイムステップが小さくなると通過率が低下し、GK 式の通過率に漸近していく傾向がある。沈着パラメータ α が 1 の場合 (Figure 3 (d))は、計算を行ったすべての Péclet 数の条件において通過率は同様に低下しているが、Figures 3 (a)–(c)に示すように α が小さい場合は、白抜きの三角および四角で表される Péclet 数が 1000 より小さい条件では GK 式の通過率より高くなる傾向が見ら

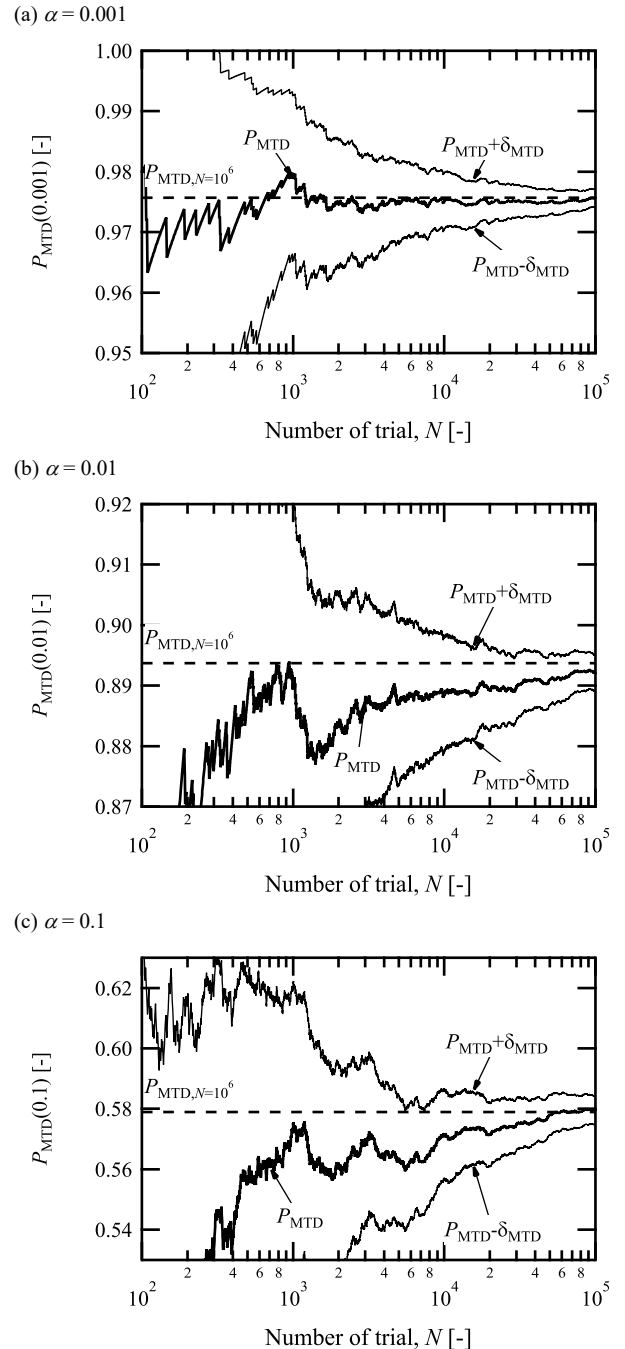


Fig. 2 Changes in the penetration by the number of trials. The penetrations at $\alpha=0.001$, 0.01 and 0.1 are plotted in (a), (b) and (c), respectively. Dashed line indicates the penetration obtained by 10^6 trials. The range of uncertainty is plotted by thin lines

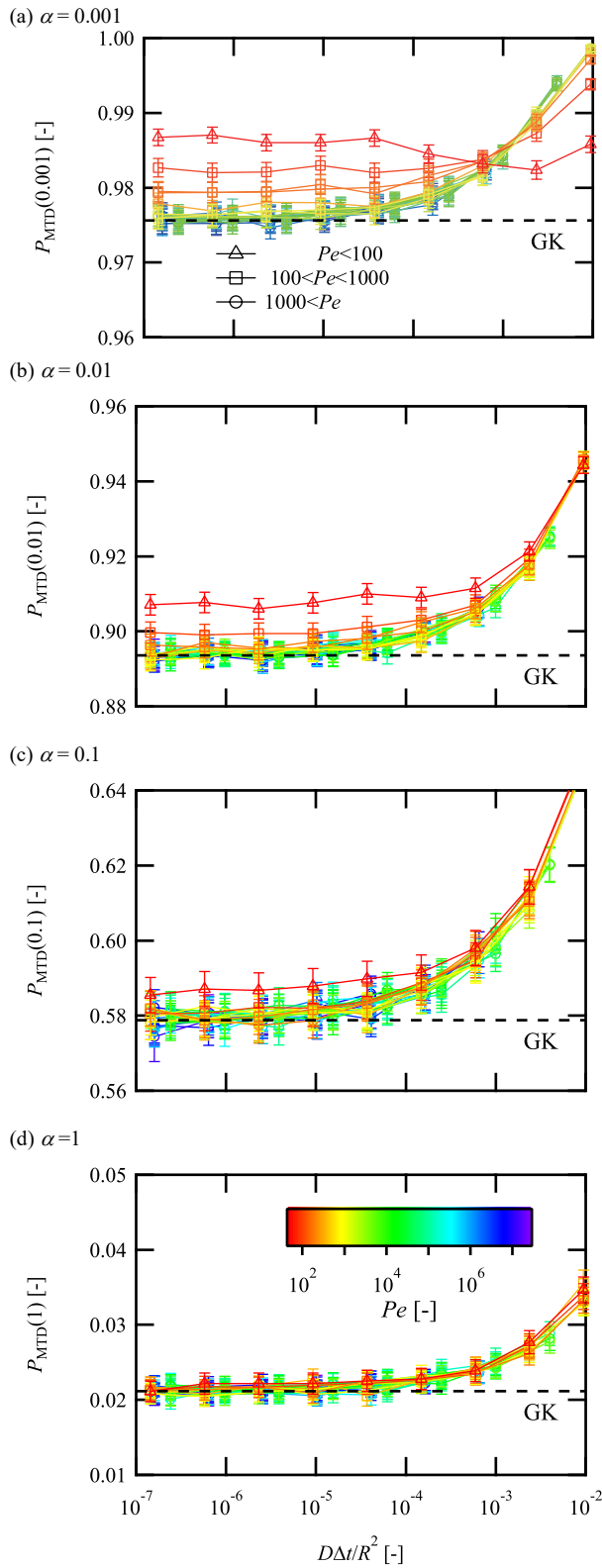


Fig. 3 Change in penetration by reducing the size of time step. The penetrations at $\alpha=0.001$, 0.01 and 0.1 are plotted in (a), (b) and (c), respectively. Dashed line indicates the penetration predicted by GK equation

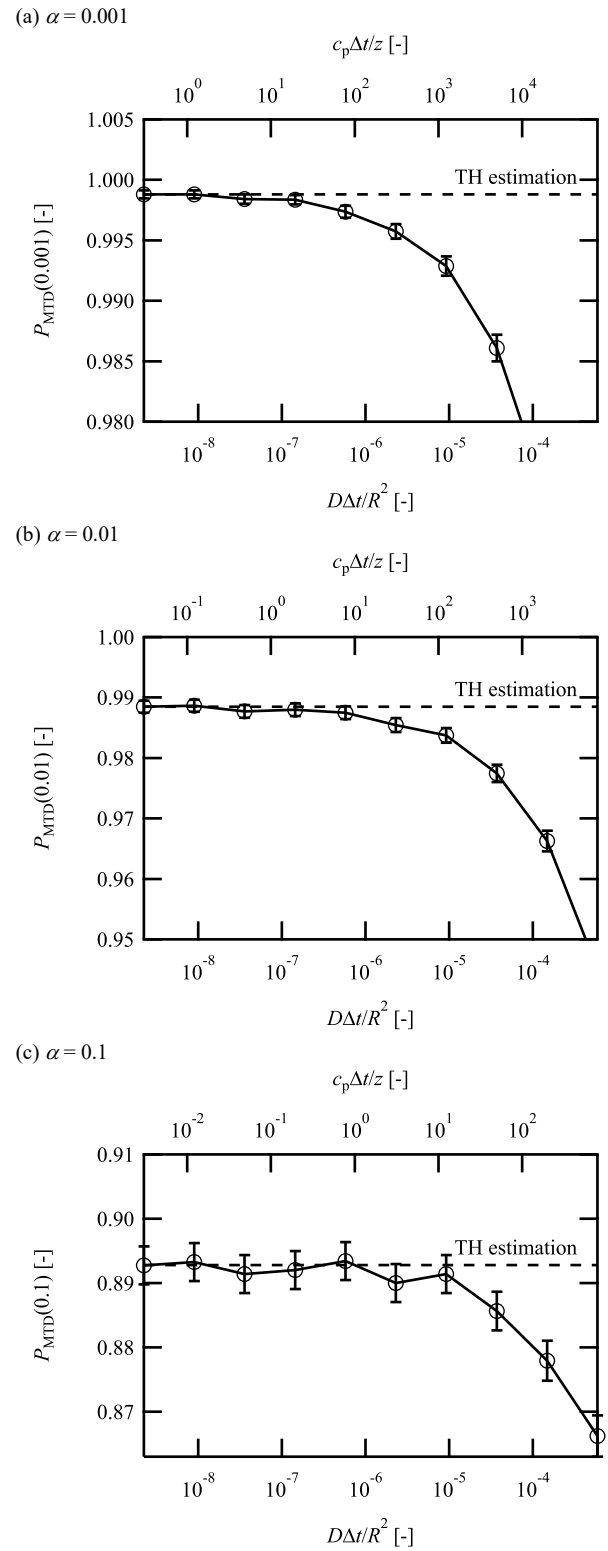


Fig. 4 Change in penetration by reducing the size of time step. The penetrations at $\alpha=0.001$, 0.01 and 0.1 are plotted in (a), (b) and (c), respectively. Dashed line indicates the penetration obtained by Tan and Hsu (1971)

296 れた。この傾向は、Tan and Hsu (1971)が指摘するように粒子の軸
297 方向の拡散が影響していると考えられるため、ここでは Péclet 数
298 が十分大きい $Pe > 1000$ での傾向に着目すると、 $D\Delta t/R^2 < 10^{-5}$ から
299 10^{-6} で LD 法によって得られた通過率がタイムステップの大きさ
300 の変化に対してほぼ一定となっている。 $Pe > 1000$ の条件では Figure

301 1 (b)に描いたように、粒子の軸方向のブラウン運動の速度成分は
302 移流による速度と比較して非常に小さく、ブラウン拡散の寄与は
303 円管の軸に直交な方向のみで支配的となる。そのため、
304 1 タイムステップでエアロゾルが拡散によって半径方向に広がる
305 面積 $D\Delta t$ と円管の断面積 πR^2 の比により、適切なタイムステップの
306 大きさが決まると考えられる。また、Figures 3 (a)–(d)は $\alpha=0.001$,

0.01, 0.1, 1 での通過率のみ示しているが, $Pe > 1000$ の条件では $D\Delta t/R^2 < 10^{-6}$ の条件を満たすタイムステップを用いて計算した通過率は, α にかかわらず GK 式とよく一致した. これにより, 本研究で採用した粒子の入射方法は移流-拡散方程式の境界条件を正しく再現していることがわかる.

同様に低 Péclet 数での適切なタイムステップの大きさも検討するため, 粒子の拡散の影響が大きく移流の影響が小さくなるように, 粒子径 $D_p = 1$ nm, 円管半径 $R = 2.5$ mm とし, 流量 Q を 0.1240 L min⁻¹ ($Pe = 100$), 0.01240 L min⁻¹ ($Pe = 10$), 0.001240 L min⁻¹ ($Pe = 1$) に設定して同様の計算を行った. これ以降は低 Péclet 数での計算はこれらの条件で行うものとする. **Figures 4** は $Pe = 1$ の条件での計算結果を示す. 上下の横軸に, それぞれ無次元化したタイムステップの大きさ $c_p\Delta t/z$ と $D\Delta t/R^2$ を示している. タイムステップの大きさを小さくすると, 通過率は上昇し, 破線で示す TH の計算結果に漸近する傾向を見せたが, α が小さい場合には $D\Delta t/R^2 < 10^{-6}$ の場合でも一定の値に収束しなかった. さらにタイムステップを小さくして計算を行った結果, 低 Péclet 数での LD 法による計算では, 上の軸に示す粒子の熱運動の平均の速さ c_p と円管入口からの距離 z で無次元化したタイムステップの大きさ ($c_p\Delta t/z$) が 1 程度より小さい場合に TH の計算結果と一致することがわかった. これは低 Péclet 数の条件では, **Figure 1 (c)** に示したように, 等方的な粒子の熱運動が粒子の運動を支配しているため, 1 タイムステップで粒子が移動する平均距離 $c_p\Delta t$ と円管内の空間の大きさの比がある程度小さくなる条件で計算する必要があることを意味する. ここで, Péclet 数が小さく, α が小さいときの通過率を計算する場合には, $z \ll R$ となるため, 代表長さとして z を用いる必要があると考えられる.

3.2 粒子の最大移動距離と沈着距離の差

2.3 節に示したように, 本研究で行った円管通過率の計算では, 粒子の最大移動距離 z_{MTD} と沈着距離 z_{DD} の二種の侵入距離を計算している. ここではそれらを比較するため, 沈着パラメータと同様に無次元化したものをそれぞれ α_{MTD} および α_{DD} とし, 両者の比較を行った. 3.1 節で行った Péclet 数がそれほど小さくない $Pe > 1000$ での計算では α_{DD} と α_{MTD} の差はごくわずかであり, 円管入口部より上流の仮想的な延長部に沈着する粒子の割合も非常に小さかった. したがって, 粒子の最大移動距離から算出した通過率 P_{MTD} を α で微分して求めた無次元化された沈着流束の分布と沈着距離の分布から直接求めたそれは一致することがわかる.

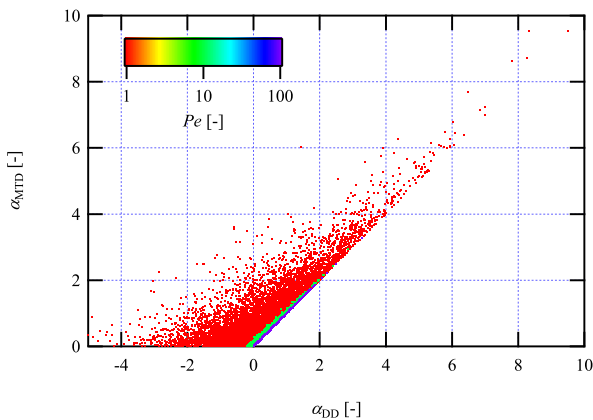


Fig. 5 Comparison of α_{MTD} and α_{DD} at low Péclet number conditions

Figure 5 に低 Péclet 数での計算による α_{MTD} と α_{DD} の分布を示す. 点の色は Péclet 数を表している. 対角線より上に位置する $\alpha_{MTD} > \alpha_{DD}$ となったプロットが多く存在し, $\alpha_{DD} < 0$ となるプロットも見られる. これは, **Figure 1 (c)** に示したように, 低 Péclet 数では粒子のブラウン運動が激しく, 熱運動速度が移流速度を大きく上回り, z_{MTD} と z_{DD} に差が生じること, 低 Péclet 数では円管入口部より上流の仮想的な延長部へ粒子が沈着することを示している.

3.3 低 Péclet 数における粒子の通過率

Péclet 数が低い場合に LD 法で得られた通過率を検討するため, GK 式, TH の数値解との比較を **Figures 6 (a)–(c)** に示す. 下の横軸には沈着パラメータ α , 上の横軸には z を示す. 白抜き丸が TH による移流-拡散方程式の数値解で, 破線は GK 式である. $Pe = 100$ の場合は TH の数値解と GK 式の差は小さいが, Péclet 数が小さくなると両者の差は大きくなり, 軸方向の拡散を考慮した TH の数値解は通過率が高くなることを示している. 白抜き丸の四角と三角は, それぞれ円管入口から上流の仮想的な延長部を設定した場合と設定しない場合に得られた z_{MTD} の分布から計算した通過率 P_{MTD} である. この延長部を設定した場合の通過率は TH の数値解とよく一致しているが, 設定していない場合にはより高くなっている. これは, 延長部を設定した場合の計算では, 円管入口部での境界条件が移流-拡散方程式を解く際のそれと一致しており, TH の通過率は延長部を設定して LD 法によって求めた粒子の最大移動距離の分布と対応していることを表している. 延長部を設定しなかった場合により通過率が高くなるのは, $z < 0$ となる試行がすべてキャンセルされ, 粒子の侵入距離が大きな試行のみが採用されているためである.

低 Péclet 数では粒子の最大移動距離 z_{MTD} と沈着距離 z_{DD} に差が生じることから, LD 法で得られた沈着距離の分布を GK 式と TH の結果から変換された無次元化された沈着流束の分布と比較した. 連続の式から, その分布は GK 式からは解析的に $-dP_{GK}/d\alpha$ を求め, TH の数値解からも数値微分により $-dP_{TH}/d\alpha$ を求めた. LD 法では無次元化した沈着距離 α_{DD} が $\alpha < \alpha_{DD} < \alpha + \Delta\alpha$ となった試行の回数 ΔN_{DD} を全試行回数 N と $\Delta\alpha$ の積で除すことで得られ, $\Delta N_{DD}/(N\Delta\alpha)$ と表される. これらの 3 種の無次元化された沈着流束の分布を **Figures 7 (a)–(b)** に示す. 破線の曲線, 階段状の実線, 階段状の点線はそれぞれ GK 式, TH の通過率, LD 法による沈着流束の分布を示し, LD 法では仮想的な延長部を設定して求めた結果から求めたものをプロットしている. **Figure 7 (a)** に示す $Pe = 100$ の場合は, LD 法による計算で $z_{DD} < 0$ となった粒子の割合が小さいので三種の沈着流束の分布にはあまり差が見られない. **Figure 7 (b)** に示す $Pe = 1$ の場合は, $\alpha < 0.4$ 程度では $-dP_{TH}/d\alpha$ の分布は $-dP_{GK}/d\alpha$ より小さくなり, $0.4 < \alpha$ では逆転している. これは, TH の計算では, 軸方向の拡散により, GK 式により予想されるよりも下流まで粒子が到達していることを意味するが, LD 法によって直接求めた沈着流束の分布では, およそ 4 割の粒子が $\alpha < 0$ となる円管入口部よりも上流に沈着するため, $\alpha > 0$ での沈着流束の分布は小さくなっているが, 下流向きの大きなブラウン運動の速度を得た粒子が下流方向に遠くまで移動して沈着するため, α がおよそ 0.6 より大きい領域では沈着流束の分布は GK 式から予想される分布より大きくなっている.

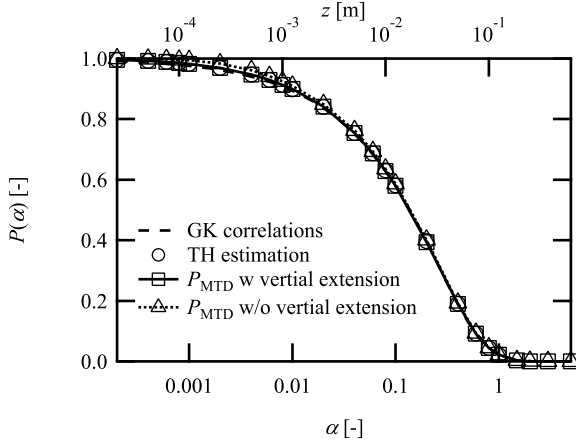
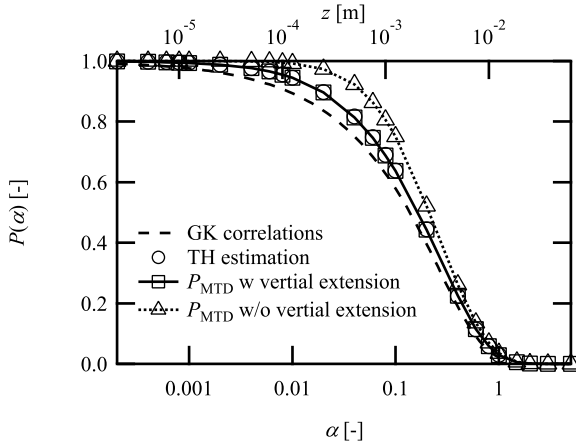
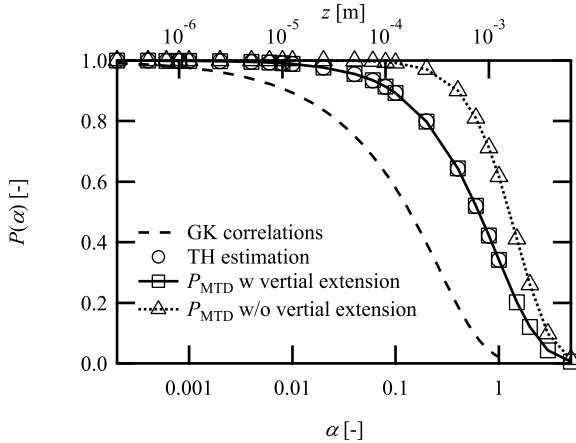
(a) $Pe = 100$ (b) $Pe = 10$ (c) $Pe = 1$ 

Fig. 6 Distribution of penetration along dimensionless parameter α at Péclet number of 100, 10, and 1 are plotted in (a), (b) and (c), respectively

396 本研究では $Pe = 0$ での計算は行っていないが、 $Pe \rightarrow 0$ の状況で
 397 は LD 法によって直接求めた沈着流束の分布は $\alpha=0$ を中心とした
 398 対称形になると考えられ、LD 法ではそれに近い結果が得られて
 399 いる。しかし、TH の通過率では境界条件が設定されている円管入
 400 口より上流への輸送を考慮していないため、円管入口部より下流
 401 のみに沈着流束が分布しており、Péclet 数が非常に小さい条件で
 402 は移流—拡散方程式によって予測された沈着流束の分布は合理的
 403 な分布を表していないといえる。

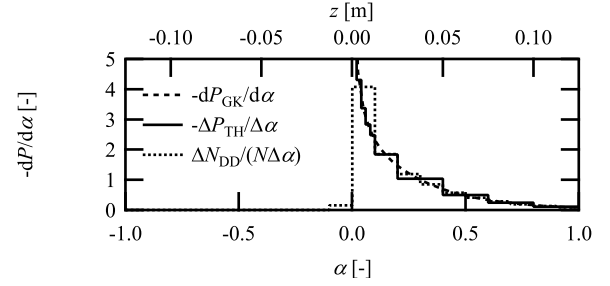
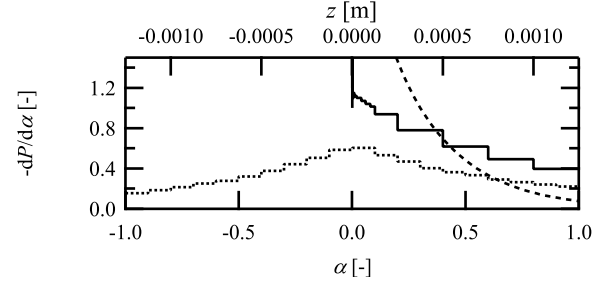
(a) $Pe = 100$ (b) $Pe = 1$ 

Fig. 7 Distribution of deposition flux at (a) $Pe=100$ and (b) $Pe=1$

結 言

404

405 本研究では従来のアプローチとは異なる、粒子のランダム運動
 406 を直接計算する LD 法によって粒子の通過率と沈着流束の分布を
 407 計算し、広く用いられている GK 式および軸方向のエアロゾルの
 408 拡散を考慮した TH の結果と比較検討した。その計算に先立って、
 409 LD 法により粒子の軌跡を計算するプログラムの検証を行うとと
 410 もに、LD 法で計算された確率の不確かさは従来の Monte Carlo 法
 411 と同様に評価できることを確認した。また、適切な結果を得るに
 412 は、Péclet 数が比較的高い場合 ($Pe > 1000$) では粒子の拡散係数と
 413 円管の半径によって無次元化したタイムステップの大きさ $D\Delta t/R^2$
 414 を 10^{-6} 程度以下にする必要があり、Péclet 数が低い場合 ($Pe < 1000$)
 415 では、円管入口からの距離 z と粒子の平均熱運動速度 c_p によって
 416 無次元化したタイムステップの大きさを $c_p \Delta t/z$ が 1 程度以下にする
 417 必要があることがわかった。

418 $Pe > 1000$ の条件では、本研究の LD 法による通過率の計算に採
 419 用した粒子の入射位置の決定法により、移流—拡散方程式の境界
 420 条件が満足されていることがわかった。また、最大移動距離 z_{MTD}
 421 と沈着距離 z_{DD} の差は非常に小さく、粒子の軸方向のブラウン運
 422 動が無視できることが確かめられた。

423 しかし、 $Pe < 1000$ では粒子のブラウン運動の影響が大きいため
 424 $z_{MTD} > z_{DD}$ となる粒子の割合が増えた。 $z < 0$ となった場合に計算
 425 をやり直した場合には TH の結果を再現できず、境界条件として
 426 不適切で、円管入口より上流の仮想的な延長部を設けた計算では、
 427 LD 法により粒子の最大移動距離の分布から求めた通過率 P_{MTD} と
 428 TH の求めた通過率はよく一致した。しかし、粒子の沈着距離の分
 429 布から求めた粒子の沈着流束の分布は TH の通過率から得られた
 430 沈着流束の分布とは一致しなかった。これは粒子が入口部より上
 431 流に遡って沈着するためであり、 $Pe \rightarrow 0$ となる状況を考えると、
 432 LD 法で得られた沈着流束の分布は合理的であり、低 Péclet 数で
 433 の粒子の沈着位置を含めた輸送を評価する場合では LD 法による
 434 計算が有用であると言える。

Nomenclature		
B_1	=Random vector of velocity change	[m/s]
B_2	=Random vector of displacement	[m]
C	=number concentration of aerosol particles	[m ⁻¹]
c_p	=thermal mean speed of aerosol particles	[m ² s ⁻¹]
D	=diffusion coefficient of aerosol particles	[m ² s ⁻¹]
F	=cumulative probability function	[-]
f	= probability function	[m ⁻¹]
i	=number of trial	[-]
J	=deposition flux of particle	[m ⁻² s ⁻¹]
k	= Boltzmann constant	[J K ⁻¹]
m	= mass of particle	[kg]
N	= number of trials	[-]
n	= number concentration of particles	[m ⁻³]
P	=aerosol penetration	[-]
p	=probability	[-]
Pe	=Péclet number	[-]
Q	=volumetric flow rate	[m ³ s ⁻¹]
R	=tube radius	[m]
r	= position vector of particle	[m]
T	= temperature	[K]
t	= time	[s]
u	=velocity of aerosol stream	[m s ⁻¹]
v	= velocity vector of particle	[m s ⁻¹]
X	= random force	[N]
x	=particle position along x axis	[m]
y	=particle position along y axis	[m]
z	= particle position along y axis, distance from inlet	[m]
α	=dimensionless deposition parameter	[-]
Δt	= time step	[s]
δ	= uncertainty of penetration by LD method	[-]
τ	= relaxation time of particle	[s]
<Subscripts>		
0	= at inlet position	
av	= average	
DD	= deposition distance	
GK	= Gormley and Kennedy	

MTD	= maximum traveling distance
TH	= Tan and Hsu

Literature Cited

- Box, G.E.P. and M.E. Muller; "A Note on the Generation of Random Normal Deviates," *Ann. Math. Statist.*, **29**, 610–611 (1958)
- Buesser, B., M.C. Heine, and S.E. Pratsinis; "Coagulation of Highly Concentrated Aerosols," *J. Aerosol Sci.*, **40**, 89-100 (2009)
- Buslenko, N.P., D.I. Golenko, Yu.A. Shreider, I.M. Sobal, and V.G. Sragovich; "The Monte Carlo Method: The Method of Statistical Trials," eds, Shreider, Yu.A., trans. from Russian by Tee, G.J., Pergamon, London, p. 10 (1966)
- Chandrasekhar, S.; "Stochastic Problems in Physics and Astronomy," *Rev. Mod. Phys.*, **15**, 1–89 (1943)
- Ermak, D.L., and H. Buckholz; "Numerical Integration of the Langevin Equation: Monte Carlo Simulation," *J. Comput. Phys.*, **35**, 169–182 (1980)
- Fujimoto, T., K. Okuyama, S. Yamada, and M. Adachi; "Effects of Cluster/Particle Deposition on Atmospheric Pressure Chemical Vapor Deposition of SiO₂ from four Gaseous Organic Si-containing Precursors and Ozone", *J. Appl. Phys.*, **85**, 4196–4206 (1999)
- Fujimoto, T., R. Kano, S. Yamanaka, and Y. Kuga; "Modeling of Brownian Diffusion of Aerosol by Langevin Dynamics" (in Japanese), *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **40**, 286–291 (2014)
- Gormley, P.G., and M. Kennedy; "Diffusion from a Stream Flowing through a Cylindrical Tube," *Proc. R. Iris. Acad.*, **A52**, 163–169 (1949)
- Marple, V.A., and C.M. Chien; "Virtual Impactors: A Theoretical Study," *Environ. Sci. Technol.*, **14**, 976–985 (1980)
- Matsumoto, M., and T. Nishimura; "Mersenne Twister: A 623-dimensionally Equidistributed Uniform Pseudo-random Number Generator," *ACM Trans. Model. Comput. Simul.*, **8**, 3–30 (1998)
- Rodebush, W.H., C.E. Holley Jr., and B.A. Lloyd; "Progress Report on Filter Penetration by Aerosols of Very Small Particle Size." Univ. of Illinois, OSRD 2050 (1943)
- Song, D.K., H.M. Lee, H. Chang, S.S. Kim, M. Shimada, and K. Okuyama; "Performance Evaluation of Long Differential Mobility Analyzer (LDMA) in Measurements of Nanoparticles," *J. Aerosol Sci.*, **37**, 598–615 (2006)
- Tan, C.W., and C.J. Hsu; "Diffusion of Aerosols in Laminar Flow in a Cylindrical Tube," *J. Aerosol Sci.*, **6**, 125–132 (1971)

Evaluation of Aerosol Penetration through a Cylindrical Tube by Langevin Dynamic

Toshiyuki FUJIMOTO¹, Shinya YAMANAKA¹ and Yoshikazu KUGA²

¹ College of Environmental Technology, Muroran Institute of Technology, Mizumoto-cho 27-1, Muroran-shi, Hokkaido 050-8585, Japan

² Muroran Institute of Technology, Mizumoto-cho 27-1, Muroran-shi, Hokkaido 050-8585, Japan

Key Words: Aerosol, Penetration, Brownian Motion, Penetration, Langevin Dynamics Method, Péclet Number

1 In order to evaluate aerosol penetrations through a fully developed laminar flow in a cylindrical tube, the trajectories of aerosol
2 particles were calculated by a Langevin dynamics equation that can represent the Brownian motion of aerosol particles. In our calculations,
3 two criteria of penetration distance were employed: the maximum distance that a particle travels in the axial direction before it is deposited
4 on inner wall of the tube, z_{MTD} ; and the axial distance from the inlet of tube to the point of deposition, z_{DD} . The distributions of these two
5 penetration distances enable us to evaluate respectively the classical penetration, defined as the ratio of total particle flux over a cross section
6 of tube to the total particle flux at tube inlet, and the distribution of deposition flux to the tube wall. At high Péclet numbers of $Pe > 1000$,
7 there is almost no difference between z_{MTD} and z_{DD} . The resulting penetrations calculated from the distribution of z_{MTD} agree well with the
8 conventional analytical solution of convective-diffusion of aerosols in which the diffusion of aerosol particles in the direction of flow is
9 neglected. At low Péclet numbers of $Pe < 1000$, the isotropic nature of Brownian motion of aerosol particles becomes obvious: the ratio of
10 particles of which z_{DD} is smaller than z_{MTD} significantly increases. The distribution of z_{MTD} successfully reproduces the results of aerosol
11 penetration obtained by the numerical solutions of the convective-diffusion equation of aerosols without neglecting the diffusion in the
12 direction of flow, but the deposition flux obtained by the distribution of z_{DD} does not agree with the gradient of particle penetration, which is
13 a numerical solution of convective-diffusion equation of aerosol particles. Consequently, it was concluded that the method of calculating the
14 trajectories of particles directly was advantageous to evaluate the particle behavior at low Péclet numbers.