

金属の急冷過程における沸騰の微細構造の高時空間分解可視化による解析

研究代表者 京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻 講師 河原全作

1. 緒言

沸騰現象は、対象とする体系の圧力での液体の飽和温度よりも高い温度に加熱された固体表面上で液体が気体に相変化し、気泡が生じる現象のことを指す。この沸騰現象は日常身近に経験する古くから知られた伝熱形式ではあるが、非常に優れた除熱性能を得ることが知られているため、これまでに様々な分野で幅広く応用されてきた。しかしながら、その現象は、微視的な領域において、熱伝導、対流、蒸発、凝縮、輻射など伝熱の様々な形式が複雑に絡み合ったものであり、そのスケールは、空間的にも時間的にも極めて小さく、多くの研究がなされてきた現在においても沸騰現象に関する知見は十分ではない。

高温固体への液体の接触で沸騰現象は起きるが、低温状態からの加熱による準定常的なケースと非常に高温状態にある物体が液体に接触することにより急冷する過程における過渡的なケース、双方において、いずれにおいても伝熱量を支配するのは沸騰現象である。高温の金属の冷却過程において、冷却速度（単位時間あたりの温度低下）が変わると金属の材料的特性が変わることが知られており、工学的にも様々なアプローチがなされている。古来より行われてきた刀の焼き入れなどもその観点から行われている。高温鋼材の急速冷却には、スプレー冷却やラミネー冷却などの水冷が行われるが、その際に鋼材表面に見られる伝熱過程は過渡的な沸騰現象である。

一般的な高温からの冷却時に見られる過渡沸騰現象は、膜沸騰領域、遷移沸騰領域、核沸騰領域を経る。通常、非常に高温になっている固体が水などの液体に浸漬された場合、固体と液体の間に蒸気膜が形成されてその蒸気膜を通して、蒸気の対流熱伝達と輻射熱伝達によってのみ熱が輸送される膜沸騰モードになる。(Fig.1)

膜沸騰は、気泡が連続的に発生して蒸発潜熱により多量の除熱を行う核沸騰に比べて、熱伝達率が非常に小さい。膜沸騰における蒸気膜は固体表面に近接する液体表面が輻射熱により蒸発することにより維持されており、非常に高温の場合には不安定流動により液体が固体に接近しても固体に接触する前に蒸発する（膜沸騰領域）。しかし、固体温度が低下すると液体が固体に到達するようになり固液接触が起きようになる。この段階では、固体表面は十分に高温であるため固液接触が起きると非常に短い時間で接触液体は蒸発するため、固液接触は間欠的である。さらに、固体温度が低下すると、固液接触の時間的空間的な割合は増大し、固体温度は急速に低下し始める。そして、ある温度まで低下すると、もはや接触液体の蒸発による局所的にも膜沸騰が維持できなくなり、液体が全面的に固体と接触する核沸騰モードに移行し、急激に固体表面の温度が低下する。膜沸騰から核沸騰への移行時は、いわゆる遷移沸騰状態になるが、この沸騰モードは非常に不安定で制御することが困難である。

このような膜沸騰から遷移沸騰を経て核沸騰への移行する金属の急冷過程を把握し制御するためには、各伝熱モードにおける現象の詳細な知見が必要であるが、どのモードにおいても制御という観点では、実験及び理論解析の両面で不十分である。沸騰現象は高温であることと時間スケール

が非常に小さいことにより、実験的知見のみでは限界があり、理論や近年進展が著しい数値シミュレーションによる基礎現象からの把握に期待が寄せられているが、信頼に足る数値解析手法を構築するための基礎となる実験的知見が不足しているというのが現状である。金属急冷過程についても、今までに非常に多くの実験的研究がなされてきているが、そのほとんどは固体内の温度履歴測定と巨視的な沸騰モードの観察に基づいており、固液表面における微視的な現象に関する情報は非常に少ない。現実には、このような体系でのミクロスケールでの実験的情報を得ることは、従来実験技術的に非常に困難であったことも確かであり、そのため、膜沸騰においてどのような伝熱過程が起きているのか、遷移沸騰での固体壁と液体との接触がどのような時空間スケールで起きているのか、サブクールの核沸騰状態において気泡まわりでの微視的な速度場・温度場がどのようなになっているのかなどに関する定量的な知見は、極めて限定されており、それに伴い理論的な研究の進展も滞っている。

しかし、最近になって、この研究の突破口を開くことが可能な状況になってきた。筆者の所属する研究室では、原子炉に関する熱流動現象が主要な研究対象のひとつになっており、高温固体の過渡沸騰熱伝達についても、冷却材喪失事故において注入される緊急冷却水が高温になった燃料棒をどのように冷却するかという観点から、実験・理論の両面から研究が行われてきたが、機能を大幅に向上させた高速ビデオカメラと長距離顕微鏡として利用できるカセグレン光学系が研究室に導入され、高温の微小領域を離れたところから観察することが可能になった。また、数値解析の面でも、沸騰に関する研究が進展し、過渡沸騰時における伝熱面でのサブクール沸騰気泡に関する直接数値シミュレーションが徐々にではあるが可能になってきている。

本研究は、このような背景から、高速ビデオによる高時空間分解可視化技術を用いて、金属急冷過程における膜沸騰状態および核沸騰状態の微視的な挙動の直接観察を行うとともに、核沸騰状態における基礎現象を把握するためにサブクール沸騰気泡に関する基礎実験を行い、サブクール沸騰気泡の特性についての知見を得たので報告する。

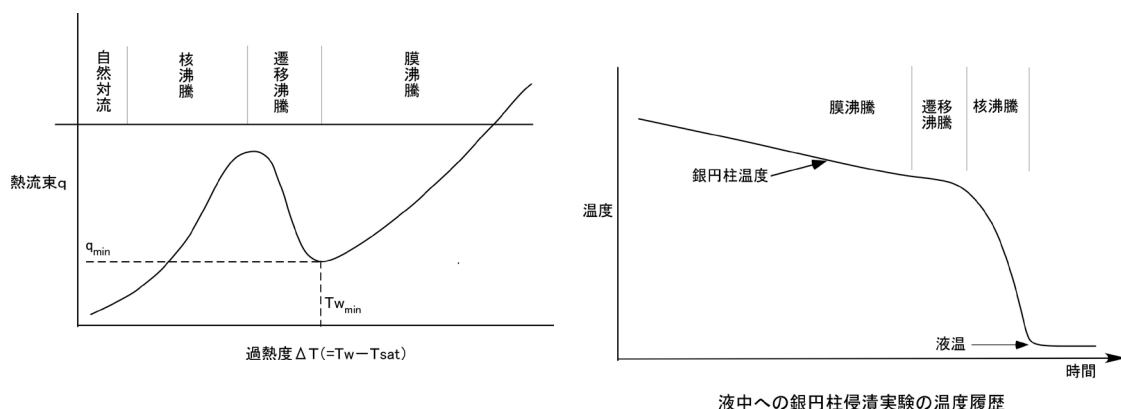


Fig.1 沸騰曲線の模式図

2. 実験

実験は、高温金属冷却の過渡沸騰の直接観察のための高温銀円柱の水プールへの浸漬実験、およびサブクール沸騰現象の微細構造の可視化のための白金線加熱によるプール沸騰実験の2つの体系で行った。ともに、カセグレン光学系と毎秒1万コマを超える高速ビデオカメラから構成される高時空間分解可視化解析システムを用いている。以下に、実験装置、及び計測システムの概要について述べる。

2.1 高温銀円柱の水プールへの浸漬実験

Fig. 2 に、実験装置および試験部の概要を示す。試験部は、直径 20mm、長さ 70mm の表面を鏡面に磨いた銀円柱であり、その両端は角の影響を軽減するために半球状に加工している。銀円柱中心部には、クロメルアルメル熱電対を挿入してあり、冷却中の温度がモニターできるようになっている。銀円柱試験部は、直径約 5mm のサポートに結合しており、図のように水プールの上方に設置された電気炉で加熱される。実験は、銀円柱が 600℃以上になったところで開始される。サポートはワイヤーで固定されており、それをは

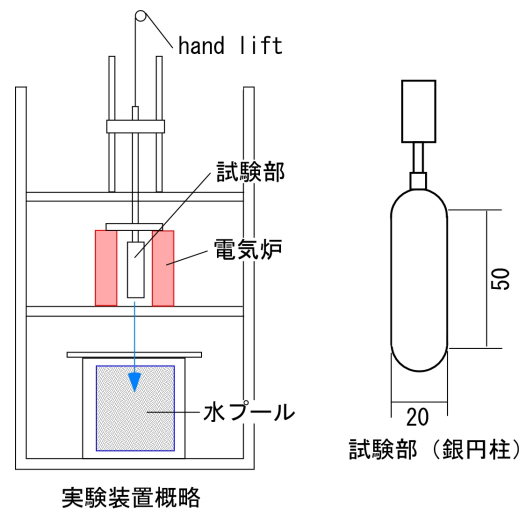


Fig.2 過渡沸騰熱伝達実験装置および試験部概略

ずして、hand lift により静かに水プールに浸漬させることにより、冷却を開始する。実験は大気圧下で行われたので、重要なパラメータであるサブクール度は、大気圧下での飽和温度と水プールの液温の差となる。サブクール度が大きい場合には冷却速度が極めて速く直接観察が極めて困難になるので、本研究では、サブクール度は現象変化の速度も考慮し、0-30K の範囲で実験を行った。本研究の条件範囲では、浸漬のあと準定常的な膜沸騰が実現できているので、hand lift というばらつきのある手法ではあるが浸漬速度は現象に影響していない。水プール容器側壁はポリカーボネイト製であり、外部からの可視化が可能である。可視化システムについては、後述する。

2.2 白金線加熱によるサブクールプール核沸騰実験

核沸騰は、伝熱面を液体が覆っている状態において気泡が連続的に発生する状態であり、前述のような高温物体の浸漬実験において詳細に現象を観察することは実験的に容易ではない。そこで、この領域に関しては、白金線を用いた制御された沸騰実験を行うことにより、より精緻な知見を得る研究方針にした。Fig. 3 は、その実験装置の概要である。白金線は直径 100 ミクロン、長さは約 50mm であり、ポリカーボネイト製の平板上に固定設置することにより、局所的な発熱を行っている面を模擬している。白金線は、直流通電により加熱される。伝熱面温度は、白金線抵抗の温度依存性を測定することにより評価される。あえて白金線を用いたのは、

可視化光学系の焦点深度が極めて浅く、実験上気泡発生位置を固定する必要があるためである。プールには十分に脱気された純水を用いている。

2.3 計測システム

Fig.4 は、今回用いた高時空間分解可視化システムの写真である。本システムは、高性能高速度ビデオカメラ（Vision Research 社製 Phantom7.1）及びカセグレン光学系（西華産業製 Cassegrain System）による長距離高倍率レンズ系から構成される。ビデオカメラのフレームレートは 4800~67000fps、露出時間は最小の $2\mu\text{s}$ に設定した。ビデオ画像は、モノクロ 12bit の輝度深さを有している。カセグレン光学系の基本 working distance は 60mm であるが、注目する現象のスケールに合わせてクローズアップレンズおよびリレーレンズ等で適宜拡大を行った。主なケースでの空間解像度は、最終画像での画素あたりで $6\sim7\mu\text{m}/\text{px}$ である。

可視化の場合、照明が非常に重要になるが、今回の測定は流れの可視化では露光時間が短い撮影のため、各条件において最も鮮明な画像が得られるような配置に調整した。銀円柱の実験では、ビデオカメラと同方向からの照明のために反射光の影響が強く出るので、蒸気膜と液との界面における反射光を避けると同時に蒸気膜界面の変化が可視化できる配置（カメラと照明の角度 $30\sim45$ 度）に設定した。一方、白金線の実験では、気泡の輪郭を正確に抽出し気泡径等の定量的測定をするために、ビデオカメラの 180 度方向、すなわち直線的透過光を用いて撮影した。この配置での撮影は、白金線から離脱した気泡の後流に引きずられた温度境界層がシャドウグラフにより可視化され、速度場のみならず温度場に関する多くの情報を与えてくれる。ビデオカメラに記録された画像は、PC に転送後 HDD に記録し、Image Pro 等の画像処理ソフトウェアにより解析を行った。

また、高時空間分解の可視化と連動して温度場の詳細な測定を行うため、ミクロンオーダーの超極細熱電対の開発もスタートさせた。一般的に応答性が要求される温度測定では極細線の熱電対が用いられるが、入手できる最も細いものでも素線径 12.5 ミクロン、感温部（接合部）は直径 40 ミクロンであり、サブクール沸騰を対象とする場合には十分ではない。現時点で接合部が 10 ミクロン程度の熱電対製作の目途はたっているが、最終的には 1 ミクロン程度を目標として開発中であり、現時点では沸騰実験に使用するに至っていない。

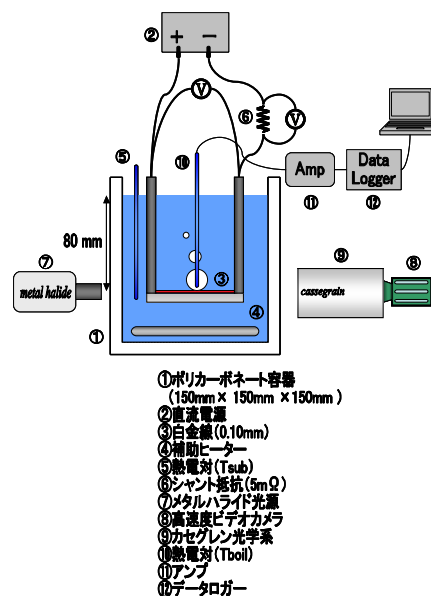


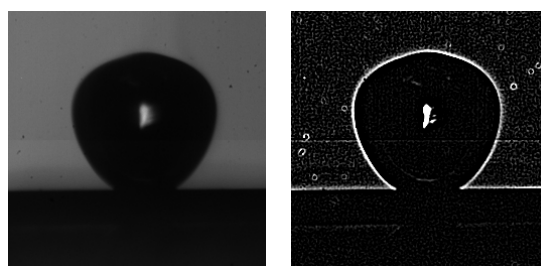
Fig.3 サブクール核沸騰実験装置概略



Fig.4 可視化システム

2.4 サブクール気泡観察における定量化

銀円柱による過渡沸騰は空間的に複雑な構造であるため、直接観察による定性的な現象把握を行ったが、白金線を用いた実験では、極めて再現性の良い気泡発生実験を行うことができた。本研究では、得られた時系列の画像データに対して、次の手順を用いた画像解析を行い、気泡体積やその気泡形状（水平及び垂直方向の長さの比）等の時系列定量的データを取得した。



(a) 原画像

(b) 輪郭抽出

Fig.5 画像処理による気泡輪郭抽出

- (1) 気泡界面位置を特定するため、画像データの輝度値に対して、Laplacian フィルタ（縦横 5x5 ピクセル）を作用させ、界面位置（輪郭）を抽出した画像に変換。
- (2) 変換後の画像データから、回転楕円体または円錐台を仮定して座標値を計測し、各形状値を算出。

ここで、手順(1)について、Fig. 5 に画像変換前 (a) と変換後の画像データ (b) を示す。この図より、変換前 (a) では気泡界面が不明瞭であり、界面位置の特定が難しいが、Laplacian フィルタを作用させた画像変換後 (b) では、気泡界面の輪郭をかなり鮮明に捉えることができています。ここで、気泡界面位置は、白線で示された内側の輪郭を仮定した。

3. 結果と考察

3.1 高温銀円柱の水プールへの浸漬実験

600℃を超える温度に加熱した銀円柱を水プールに浸漬すると、Fig. 1 に示すような温度履歴（銀円柱の温度は中心部に埋め込んだ熱電対で測定し、その温度変化から熱流束、表面温度を評価することにより沸騰曲線が得られる。）を経て冷却される。その時の膜沸騰、遷移沸騰、核沸騰の境界は、既存の報告にあるように、サブクール度に強く依存する。その特徴は、

- (1) プールの水温が低いほど銀円柱の温度が高いところで遷移沸騰に移行し短時間で冷却される。
- (2) 膜沸騰領域では銀円柱は蒸気膜に覆われるが、サブクール度が大きいほど蒸気膜は薄く、乱れ（波打）は小さい。
- (3) 膜沸騰から温度が低下すると、間欠的に全面で微細な気泡発生する現象が起きるが、これは薄い蒸気膜が局所的に破れ、サブクール水と高温金属面が接触するために起きるもので、固液接触と呼ばれる現象である。

特に、(3)の固液接触は、沸騰の遷移を決定づける要因であり、その現象を把握することは極めて重要である。このような観点から、本研究では、固液接触が起きている領域の可視化観察を中心に行った。ただし、実験装置の体系上、プール水の温度境界層を通しての観察となるので、映像の揺らぎは避けられず、今回は定性的な現象把握に留まっている。

Fig. 6 は、銀円柱の表面近傍を正面から拡大観察したときの画像の一例である。サブクール度は 28K であり、膜沸騰から遷移沸騰に移行していく途上の画像である。この時間領域では、伝熱面が蒸気膜に完全に覆われた膜沸騰状態 (a) と固液接触が発生して局所的にサブクール核沸騰が起きるモード (c) が混在する。固液接触時間および領域面積はばらつくが、Fig. 6 の画像を得た可視化動画では、およそ 8ms 継続する固液接触を観察している。

また、筆者の知る限り過去に報告されていないが、Fig. 6 (b) に示すように、蒸気膜の内部を液滴が移動している可能性がある。撮影領域近傍において固液接触が起きた場合、乱された蒸気液膜の波面が現れると同時に、場合によっては数 10～数百ミクロン径の気泡が観察される。これは、沸騰気泡ではなく固液接触におけるサブクール沸騰で発生した溶存空気気泡であると推察する。静止画では判じづらいが、動画にはこの気泡以外に細かな陰影が映っており、蒸気界面に小さな波面が発生することが見受けられ、蒸気膜中に液滴が浮遊している可能性を示唆している。この液滴はおそらく固液接触による沸騰での破裂で形成されたものであると推察されるが、従来の膜沸騰理論モデルでは、蒸気膜流はガス単相流であり、微小液滴を含む噴霧流の場合があるとする、その時の熱伝達は理論予想よりも大きくなる可能性が高い。今後、より詳細な研究が望まれる。

3.2 白金線加熱によるサブクールプール核沸騰実験

本実験体系では、発生するサブクール沸騰気泡は極めて時空間的再現性が高く、定量的な知見を得ることに適している系である。本研究では、気泡生長に伴う気泡体積、気泡形状（アスペクト比）等を定量化した。

Fig. 7 は、画像解析によって得られた各サブクール度に対する単一気泡体積の時間変化を示す。下図は時刻 1ms までの範囲を拡大した結果である。この可視化実験で観察された一連の気

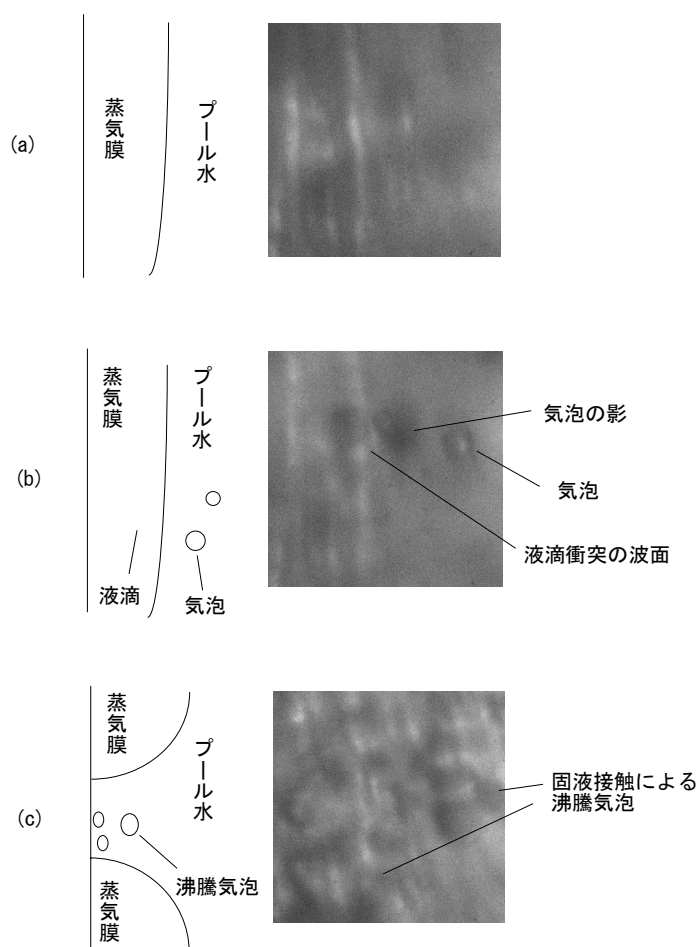


Fig.6 過渡沸騰時の銀円柱表面の可視化例
(サブクール度 28K)

泡成長サイクルは非常に再現性が高く、1 サイクルの時間間隔（寿命）もほぼ一定であった。横軸は気泡発生からの時刻、縦軸は画像解析によって算出した気泡体積を示す。図中、白抜きシンボルは気泡発生から離脱直前まで、黒抜きシンボルは伝熱面から離脱した後の結果を示す。図より、 $\Delta T_{sub}=0.1\text{ K}$ の飽和沸騰の場合には、気泡は沸騰開始から急激に成長した後、その体積は最大値を示すまで単調に増加し、気泡は時刻 3ms 近傍で伝熱面から離脱した。この気泡の成長段階は、飽和沸騰を仮定した気泡成長理論とも定性的に一致している。次いで、 $\Delta T_{sub}=5.1\text{ K}$ の場合では、気泡が急激に成長した時刻 0.3ms 以降、サブクール液の影響で気泡の成長は抑制され、ほぼ一定の気泡体積を保ちながら気泡は伝熱面より離脱した。これは、気泡成長段階における気液界面での蒸発量と凝縮量とがほぼバランスした状態であることを示していると考えられ、気泡が離脱した後も一定期間、その体積は保持される傾向にあった。一方、 $\Delta T_{sub}=10.3\text{ K}$ の場合になると、時刻 0.3ms 程度で気泡の成長が最大を示した後、これまでよりもサブクール度の影響が大きいために、気液界面での蒸発量よりも凝縮量が増すことで気泡体積は徐々に減少していき、気泡が伝熱面より離脱した後も、サブクール液中で気泡はある一定の凝縮速度で収縮した。サブクール度が大きくなるにつれて、最大時の気泡体積及びその到達時刻は減少し、また、気泡体積が最大値となった気泡形状から、サブクール度の増加に伴い、気泡の成長が伝熱面近傍に抑制される傾向にあることが確認できる。これは、伝熱面近傍に形成されている過熱液層がサブクール度に依存して薄くなっている影響であると考えられる。

気泡形状の時間的な変化を定量的に評価するため可視化像の画像解析により得られた各サブクール度に対する気泡の水平方向の最大幅と垂直方向の最大長さの比であるアスペクト比

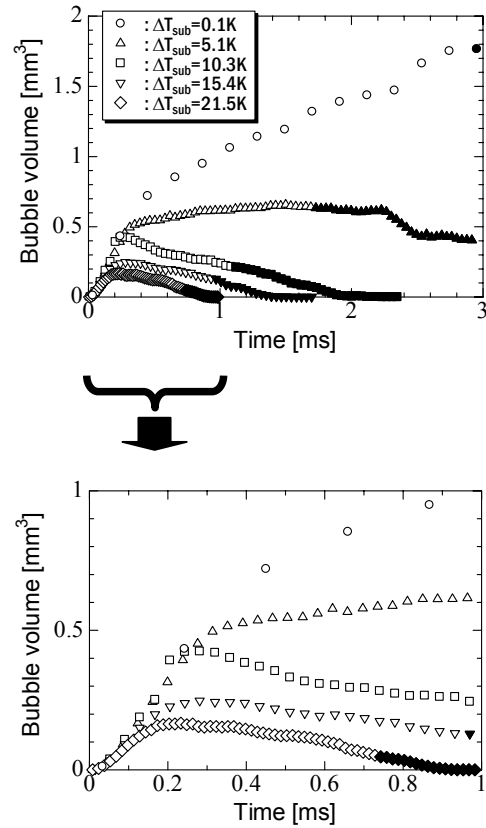


Fig.7 気泡体積の時間変化

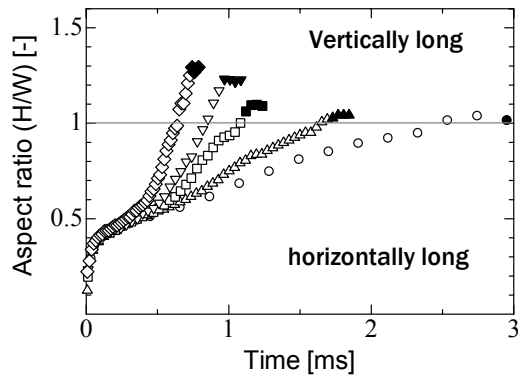


Fig.8 気泡のアスペクト比の変化

の時間変化を Fig. 8 に示す。サブクール度が大きくなるにつれて、水平方向への気泡成長は抑制されると同時に凝縮の影響のために、水平方向の気泡幅は減少する。一方、垂直方向の気泡長さは、気泡幅と比較してサブクール度には大きく依存せず、初期の急激な気泡成長から気泡が伝熱面より離脱するまでの間、垂直方向に向かって単調に増加する。そのため、サブクール度が大きくなるにつれて、気泡は縦長に強く伸長してから離脱する傾向にあることが分かる。すなわち、サブクール液中での気泡はまず水平方向に扁平になりながら成長し、その後、表面張力による復元力で垂直方向へと気泡は伸長し始め、その際の慣性力によって気泡は伝熱面より離脱するものと考えられる。また、サブクール度が増加すると、気泡の成長が抑制されることによって気泡径は小さく（曲率半径が大きく）なり、それにより表面張力が大きく作用することで、より縦長へと変形が起ると推測される。結果的にこれらの作用が大きく起因して、気泡はサブクール度が増加するほど、短時間に伝熱面から離脱する傾向にあるといえる。

4. 結言

長距離顕微鏡と高性能高速ビデオカメラを用いた高時空間分解可視化解析により、金属冷却過程における沸騰現象の微細構造を明らかにすることを目指して、実験的研究を行った。沸騰現象は、古来から身近に存在する現象であるが、本格的な研究は 1930 年代に東北大学の抜山教授の研究を端緒としている。それから 80 年近くになり膨大な数の研究が行われ、知見が蓄積されてきているが、より高い熱伝達効率と制御性を目指すという立場からは、未だ十分な基礎的知見が得られていないというのが現状である。本研究での知見と研究手法を、今後さらに発展させていくべく努力していきたい。

謝辞

本研究は、(財) J F E 2 1 世紀財団の 2 0 0 7 年度技術研究助成の支援により行われたものであり、ここに深く感謝いたします。なお、本研究の一部は京都大学大学院生小瀬裕男君の博士後期課程での研究課題において行われたものです。

引用文献

1. The Japan Society of Mechanical Engineers ed., JSME Textbook Series Heat Transfer, 123-124, Maruzen, Tokyo (2005).
2. Kawara, Z., Okoba, T., and Kunugi, T., Visualization of Behavior of Subcooled Boiling Bubble with High Time and Space Resolutions, The 6th Pacific Symposium on Flow Visualization and Image Processing (PSFVIP-6), 424-428 (2007).
3. Ose, Y., Kawara, Z. and Kunugi, T., Numerical Simulation on Subcooled Boiling Bubble Behavior, Progress in Multiphase Flow Research Vol. 4, 29-36 (2009).
4. Kandlikar, S.G., Shoji, M. and Dhir, V.K., Handbook of Phase Change: Boiling and Condensation, 158-161, Taylor & Francis, Washington, DC (1999).
5. Situ, R., Mi, Y., Ishii, M. and Mori, M., Photographic Study of Bubble Behaviors in Forced Convection Subcooled Boiling, Int. J. Heat and Mass Transfer, Vol. 47, 3659-3667 (2004).
6. Carry, V. P., Liquid Vapor Phase-Change Phenomena: An Introduction to the Thermophysics of Vaporization and Condensation Process in Heat Transfer Equipment, 192-197, Taylor & Francis, Washington, DC (1992).