

超臨界流体におけるパルス加熱による熱拡散層の高速振動

三浦裕一¹、大西 充²、吉原正一²、石川正道³

¹名大 院理、²宇宙機構、³東工大 総理工、

Vibration of the thermal boundary layer generated by the pulse heating in a supercritical fluid

Yuichi Miura¹, Mitsuru Ohnishi², Shoichi Yoshihara², Masamichi Ishikawa³

¹ Department of Physics, Nagoya University, Chikusa-ku, Nagoya, Japan,

² Japan Aerospace Exploration Agency, Chofu, Tokyo, Japan,

³ Interdisciplinary Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology, Yokohama, Japan,

E-Mail: j46079a@cc.nagoya-u.ac.jp

Abstract: A fast heat transport phenomenon occurring in supercritical fluids, known as the "piston effect", has been studied in relation to the sound wave generation in CO₂. A periodic sound wave following the pulse sound wave generated by the piston effect, has been found. The amplitude of the periodic sound was very small, and the frequency was determined by the adiabatic compressibility.

Key words; Phase Transition, Piston Effect, Heat transfer,

1. 序論

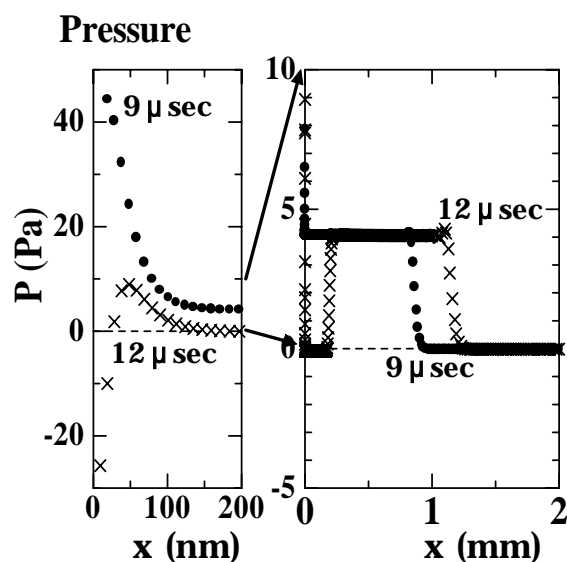
単一成分流体の気相液相臨界点近傍では熱拡散係数が大きく減少(臨界減速)するため、熱拡散の速度は大幅に低下する。しかし、微小重力に於ける実験により、全く逆の、通常の流体よりも桁違いに速い熱輸送現象が発見された¹⁾。この結果は、通常の熱拡散過程よりも、桁違いに速い熱輸送の機構が存在することを示している。

「ピストン効果」のモデル^{2,3)}によると、臨界点近傍の流体は、熱膨張係数が発散しているため、加熱面近傍の臨界流体が瞬時に膨張してバルク流体を圧縮し、音波が発信される。この音波が熱エネルギーを高速で輸送すると考えられる。

臨界現象は個々の物質によらない、一般的な現象である。そこで初めて起こる、遅い拡散過程と、音速で進展する速い現象の共存は、極めてユニークな現象である。CO₂を試料として、我々は装置開発を行い、技術的に極めて困難な超臨界流体の特異な熱輸送の詳細な機構の解明を進めている。

2. 熱拡散層の急速膨張

1図の左図は、ヒーター近傍の熱拡散層の圧力分布の数値計算の結果を示す。臨界点から10mK高温の臨界圧力からの圧力変化を示す。加熱幅10 μ secの場合の計算であり、9 μ secは加熱中の圧力分布である。約4 Paだけ高圧の領域がヒーター面からバルク方向へ成長を続けている。



1 図 加熱幅 10 μ sec の場合の熱拡散層と、発信された音波の相対的な圧力変化の数値計算結果(三菱総研、松本による); 臨界点から 10mK 高温の結果であり、9 μ sec は加熱中の圧力分布であり、約 4 Pa だけ高圧のパルスがヒーター面から成長を続けている。12 μ sec は加熱終了の直後の圧力分布である。バルク流体側へ幅が約 1 mm のパルス音波が発信され、伝播していることが分かる。

熱拡散係数が減少(臨界減速)しているため、拡散層の厚みが約 100nm と極めて薄いことが分かる。

12 μsec の分布は加熱終了直後の圧力分布である。右図は縦軸を拡大、横軸を縮小しており、バルク方向へ幅が約 1 mm のパルス音波が発信され、伝播していることが分かる。加熱終了のとき、熱拡散層の圧力分布が急変していることが分かる。

この急激な圧力変動が引き起こす、新たな現象を見出した。

3. 実験

臨界点は温度と密度で定義されており、接近するためには、両方を臨界値に正しく調整する必要がある。実験に使用した試料流体は、界面の温度変化の観測から臨界密度との差が 0.5% 以内に調整できていることが分かった。

臨界点に接近するにつれ、重力による上下方向の密度勾配が生じるが、換算温度 $=(T-T_c)/T_c$ で 10^{-4} まではその効果は小さい。

試料流体を入れたセルは3重の銅製の熱シールドに囲まれ、温度は CO_2 の臨界温度、約 30.4 の近傍で測定の間 1mK 以内に制御されている。対流を避けるため、パルス加熱は容器上方で行い、容器下側に向けて平面波の音波を発信した。

容器は主に熱伝導度の高い銅ブロックで作成され、熱の伝播方向の側面壁の材質は熱伝導度の小さい 1 mm 厚の SUS 板、及び 5 mm 厚の光学ガラスである。

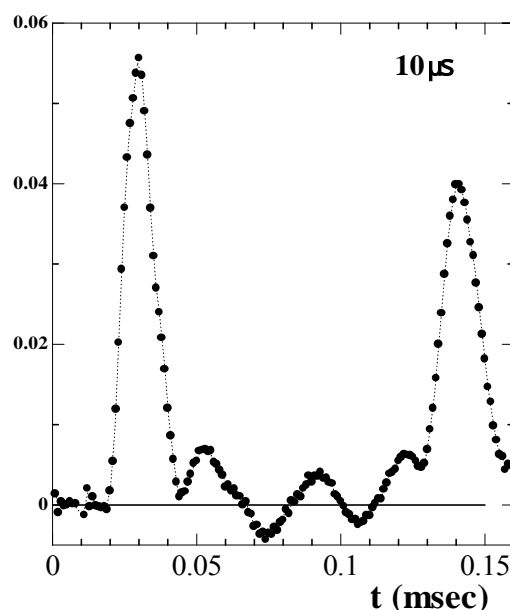
流体の熱伝播に伴う密度変動を He-Ne レーザーを光源とする独自に開発した干渉計で測定した。この時間分解能は 1 μs と高速であり、流体の局所的な相対密度変動を分解能 0.1 ppm と高精度で測定することができた^{4,5)}。

4. 結果と考察

2 図は、 $T_c+100\text{mK}$ 、パルス加熱幅 10 μsec 、加熱量 30 μJ 、のときに発信された音波を容器中央で観測された密度信号を示す。臨界密度との差を光学干渉計で測定した。2 図は、パルス加熱を 5 ms ごとに 418 回繰り返し、信号を積算した結果である。

最初の信号は、直接にヒーターからセル中央部の観測地点に到達した音波信号である。そのパルス音波に追隨して、約 26kHz の周期的音波が発信されていることが分かる。相対密度変動の大きさは、初めのパルスが 10^{-6} に相当し、それに追隨する周期的音波の振幅は、それより一桁小さい。ゼロは臨界密度に相当し、それを中心に正(高密度)・負(低密度)側に振動している。二番目のパルス信号は、容器の底面からの反射波である。

この周期的音波は、加熱幅や、音波の行路長を 5.5mm、10.5mm と変えた測定でも再現性良く観測された。また、流体中の密度の観測位置を変えても、最初のパルス信号に追隨して、遅れることなく到着していることが分かった。もし、平面波の音波が、何らかの原因で乱れて互いに干渉した効果であれば、観測位置に依存した乱れが観測されるはずである。よって、この周期的音波は熱拡散層から、パルス音波の発信の直後に、発信されたものと結論できる。



2 図 加熱幅 10 μsec の場合に、発信された音波を容器中央で観測した密度信号。臨界密度との差を干渉計で測定した。パルス音波に追隨する、約 26kHz の周期的音波が観測された。二つ目のパルス信号は、容器の底面からの反射波である。

次に、パルス発信の結果と比較するため、音波が試料容器を一往復する時間より少しだけ長く加熱した場合、200 μsec 加熱、の結果を 3 図に示す。

通常の流体では見られない、超臨界流体に極めて特徴的な、階段状の密度変化が観測された。各ステップの高さは、相対密度変動で約 2×10^{-7} である。

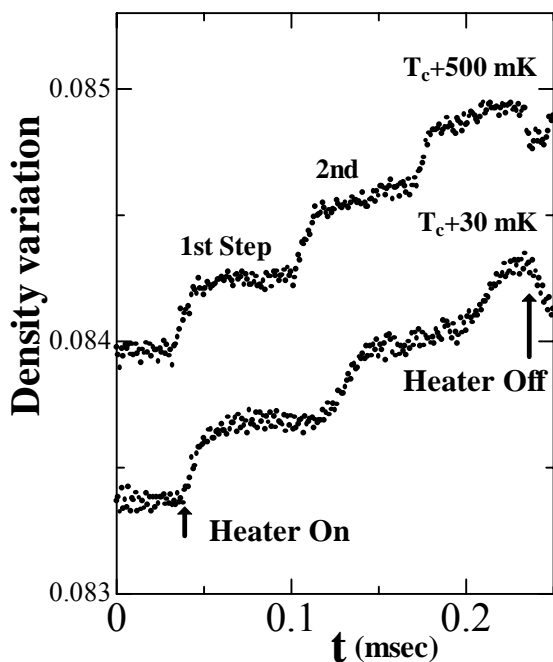
まず、時刻ゼロで加熱を開始したが、伝播に時間がかかるため、最初の矢印の時刻で音波が容器中央の観測地点に到達し、一段目のステップが開始する。その反射波が到達する時刻に、二段目のステップが開始する。音波が一往復して、三段目のステップができた直後に、二番目の矢印の時刻で加熱を終了した。

そのため、三段目のステップは完成されずに、熱

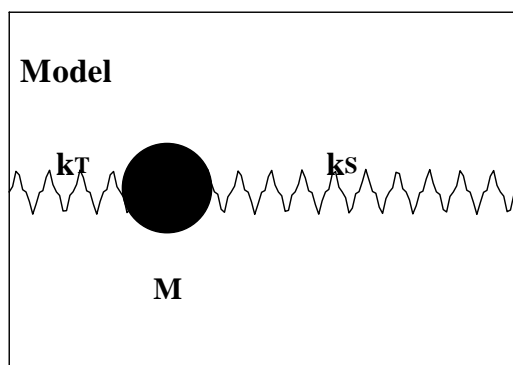
拡散層から離脱し、パルス音波となって伝播していることが分かる。つまり、二段目のステップの上を、2図と同じように、パルス音波が伝播していることになる。

3図から、少なくとも加熱が続いている間はステップは平坦であり、周期的な密度変動は観測されないことが分かる。

次に、この周期的音波の発信機構を考察する。



3図. 音波が10.5mmの試料容器を一往復する時間より長く加熱した場合(200 μsec)に観測された階段状の密度変化。加熱が続いている間は、周期的な密度変動は観測されないことが分かる。



4図. 周期的音波の発信の模式図。バネ定数としては、熱拡散層では等温圧縮率の逆数が、バルク領域では断熱圧縮率の逆数が支配的と考えられる。Mは音波発信面の有効質量である。

1図のように、極めて薄い熱拡散層と、バルク領域が

接している。加熱が続いている間は、高圧の領域がヒーター面からバルク流体の方向へ成長を続けている。そして、加熱が終了した時点でパルス音波が離脱し、急激に熱拡散層の圧力分布が変動する。この圧力変動が駆動力となって熱拡散層を振動させ、周期的音波を発信させると考えられる。

2図において周期的音波の発信時刻を求めると、パルス加熱の終了時刻と一致した。さらに、振幅は負、つまり低密度状態から開始していることが分かった。このことから、パルス音波を打ち出した反作用で熱拡散層が厚み方向への振動を開始したと考えられる。

4図に周期的音波の発信の模式図を示す。バネ定数としては、最も単純に分けた場合、熱拡散層では等温圧縮率の逆数 k_T が、バルク領域では断熱圧縮率の逆数 k_S が連結していると考えられる。Mは音波の発信面の有効質量である。

臨界点の近傍では、等温圧縮率が断熱圧縮率よりはるかに大きく発散している。よって、

$$k_T \ll k_S$$

である。つまり、100nm程度の極めて薄い熱拡散層が非常に柔らかいことになる。よって、音波の周期 T は堅い k_S 側で決まることになる。 k_T 側は柔らかいので、ちょうど自由端の境界条件のようにふるまう。

周期的音波の周期は臨界点に接近するにつれ増加した。しかし、その温度依存性は、音速と同じ程度で弱いことが分かった。これは、弱い発散をする k_S によって周期が決まるならば、理解できる。もし、 k_T によって決まるならば、周期は強く発散的に増大する筈である。

周期的音波の周期は、 $T=2 \sqrt{M/k_S}$ 、35 μsecであったので、断熱圧縮率を用いて振動面の有効質量を見積もった結果、振動に参与する流体の厚みが1mmを越えることが分かった。熱拡散層の厚みより、はるかに大きい。これは、二つのバネに分けたモデルが単純過ぎて、実際は振動面に働く有効なバネ定数が k_S より低下している可能性もあり、今後検討を要する。

次に、この周期的音波がどの程度のエネルギーを輸送しているか求める。

パルス音波は、加熱量の12%を音速で輸送していることが我々の実験から分かり⁵⁾、理論値13%とほぼ一致している。それに加えて、この周期的音波も、エネルギーを音速 c で輸送している。1cm²当たりの輸送エネルギー I は、

$$I = P^2 / (c) = 1.5 \times 10^{-9} \text{ W}$$

ここで、 P は圧力の実効値振幅、 ρ は密度である。このように、加熱量 $30 \mu\text{J}$ に比べると、極めて小さい比率しか輸送していない。しかし微小ではあるが、この機構は、熱拡散層に蓄積されたエネルギーが流体全体に輸送されて熱平衡になる過程に寄与していることになる。

5. 結論

我々が開発した高速高精度の干渉計により、超臨界流体にパルス加熱を行い、音波の発信と伝播、エコーをリアルタイムで測定した。その結果、従来のピストン効果に付随する、新たな熱拡散層の振動による、音速による熱輸送の現象を見出した。

この機構は、パルス音波の発信機構に伴うもので、加熱が続いている間には起こらないことが分かった。この音波の周期は、温度依存性から断熱圧縮率によって決まっていると考えられるが、有効な圧縮率の絶対値については、今後検討を要する。

この周期的音波によるエネルギーの輸送効率は、加熱量の 10ppm のオーダーに過ぎず、パルス音波が

輸送できる 12% の効率に比べ、極めて小さいことが分かった。

参考文献

- 1) See, for example, Nitsche, K. and Straub, J.; Proc. 6th Euro. Sympo. Materi. Sci. under Microgravity Condition. SP-256, 109 (1987), Zappoli, B. et al.; Phys. Rev. **A41**, 2264 (1990).
- 2) Onuki, A. et al.; Phys. Rev. **A 41**, 2255 (1990).
- 3) Onuki, A. and Ferrell, R. A.; Physica **A 164**, 245 (1990).
- 4) Ohnishi, M. et al.; Proc. 54th Inter. Astro. Congress, J.1.5, (2003).
Ohnishi, M. et al.; Proc. ISPS/Spacebound 2004, (2005).
- 5) Y. Miura, M. Ohnishi, S. Yoshihara, K. Honda, M. Matsumoto, J. Kawai, M. Ishikawa, H. Kobayashi, and A. Onuki, Phys. Rev. **E 74** (2006) 010101.