

宇宙航空研究開発機構研究開発報告

JAXA Research and Development Report

臨界点近傍流体中の「ピストン効果」素過程の直接観察

吉原 正一, 大西 充, 桜井 誠人, 三浦 裕一, 小林 礼人
竹之内武義, 石川 正道, 河合 潤, 本多 克也, 松本 昌昭

2005年10月

宇宙航空研究開発機構
Japan Aerospace Exploration Agency

宇宙航空研究開発機構研究開発報告
JAXA Research and Development Report

臨界点近傍流体中の「ピストン効果」素過程の直接観察

Direct Observation of the Elementary Processes of the
"Piston effect" in a Fluid near its Critical Point

吉原 正一^A 大西 充^A 桜井 誠人^A 三浦 裕一^B 小林 礼人^C
竹之内武義^D 石川 正道^E 河合 潤^F 本多 克也^F 松本 昌昭^F
Shoichi YOSHIHARA Mitsuru OHNISHI Masato SAKURAI Yuichi MIURA
Hiroto KOBAYASHI Takeyoshi TAKENOUCHI Masamichi ISHIKAWA
Jun KAWAI Katsuya HONDA Masaaki MATSUMOTO

宇宙航空研究開発機構 総合技術研究本部

A

名古屋大学大学院 理学研究科

B

中部大学 工学部 理学教室

C

(株) 高純度化学研究所

D

東京工業大学大学院 総合理工学研究科

E

(株) 三菱総合研究所

F

2005年10月

October 2005

宇宙航空研究開発機構
Japan Aerospace Exploration Agency

臨界点近傍流体中の「ピストン効果」素過程の直接観察*

吉原 正一^A, 大西 充^A, 桜井 誠人^A, 三浦 裕一^B, 小林 礼人^C,
竹之内武義^D, 石川 正道^E, 河合 潤^F, 本多 克也^F, 松本 昌昭^F

Direct Observation of the Elementary Processes of the "Piston effect" in a Fluid near its Critical Point *

Shoichi YOSHIHARA^A, Mitsuru OHNISHI^A, Masato SAKURAI^A, Yuichi MIURA^B,
Hiroto KOBAYASHI^C, Takeyoshi TAKENOUCI^D, Masamichi ISHIKAWA^E,
Jun KAWAI^F, Katsuya HONDA^F, Masaaki MATSUMOTO^F

Abstract

Thermal energy applied to a pure fluid near its critical point immediately induces a strong expansion. This causes an adiabatic compression and a large density difference at the expansion front. The difference in energy is transported as an acoustic wave. This rapid heat transportation is called the "piston effect". In our study, an ultra-sensitive and high-speed density measurement system was developed to conduct a quantitative measurement of the piston effect. Using the system, we made direct observations of the elementary processes of the piston effect. To demonstrate the performance of the system, the sound velocity in a critical fluid was measured. Applying FFT to the experimental results allowed precise evaluation of the sound velocity. The experimental velocity versus temperature profile agreed well with simulation and theoretical prediction, that is, the profile should have scale universality. However, the profile from the experimental results obeys another scale universality if $T - T_c < 0.1\text{K}$. This indicates that our experimental system enables us to quantitatively discuss the critical phenomena.

Key words: Critical point, Piston effect, high-speed density measurement system

概 要

臨界点近傍で流体に熱を加えると、熱膨張率の発散のため流体は大きく膨張する。これは、膨張の前面で断熱的な圧縮が起き、そこに大きな密度差が生じる事を意味する。この断熱圧縮により生じた平均より高温・高密度の領域が音速で流体中を伝播し、流体温度が高速に上昇する。この高速な熱輸送は、「ピストン効果」と呼ばれている。我々はピストン効果を定量的に計測するシステムとして高速高精度密度変化観測装置を開発した。この装置を用いて「ピストン効果」の素過程の直接観察に成功した。装置の性能を実証するため、臨界点近傍において流体中で密度波の移動速度計測を行った。実験結果は数値シミュレーションの結果と良い一致を示した。音速を正確に求めるため、音波のエコー間隔をFFT解析により求め、音の行路長、即ち試料流体高から計算で求める手法を用いた。実験結果から求めた速度と温度の関係は、シミュレーション結果、および理論予想と良い一致を示した。しかし、臨界点により近づくと実験結果とシミュレーション結果には乖離が見られた。これらの結果から、我々の開発した実験装置、および数値シミュレーションを用いて臨界点近傍で初めて起こる新たな現象を探索し、定量的に解明できることを示している。

* 平成 17 年 8 月 9 日受付 (received 9 August, 2005)

A 宇宙航空研究開発機構 総合技術研究本部 (Japan Aerospace Exploration Agency, Institute of Aerospace Technology)

B 名古屋大学大学院 理学研究科 (Nagoya University, Graduate School of Science, Department of Physics)

C 中部大学 工学部 理学教室 (Chubu University, Department of Natural Science and Mathematics)

D (株) 高純度化学研究所 (Kojundo Chemical Lab. Co., Ltd)

E 東京工業大学大学院 総合理工学研究科 (Tokyo Institute of Technology, Interdisciplinary Graduate School of Science and Engineering)

F (株) 三菱総合研究所 (Mitsubishi Research Institute, Inc.)

1. はじめに

気液臨界点に関する古典論から、定圧比熱や等温圧縮率が発散することが理論的に導かれる。図1に気液臨界点を中心としたP-V線図を示す。これは実在流体に適用されるファンデルワールス状態方程式から作成したものである。T, P, Vはそれぞれ流体の温度, 圧力, 体積で, T_c , P_c , V_c はそれぞれ臨界温度, 臨界圧力, 臨界体積である。T > T_c では流体は気体 ($V > V_c$) あるいは超臨界状態 ($V < V_c$) であるが, T < T_c では圧力あるいは体積によって①すべて気体の状態, ②気体と液体の共存, ③すべて液体の状態, に変化する。T = T_c の等温線に注目すると $P = P_c$, $V = V_c$ となる臨界点は変曲点になり, この点ではVが微小変化してもPは変化しないこと, 即ち臨界点では等温圧縮率が発散することが示される。この発散から等圧比熱の発散が導かれ, 等圧比熱を分母に含む熱拡散係数がゼロに近づくことになる。そのため, 流体中の熱拡散過程による熱輸送は臨界点近傍では大変低速であると従来は考えられていた。ただし, 当時の地上実験では拡散過程から期待される程の熱輸送速度の低下が観察されなかった。この原因として考えられる点は, 先ず, 臨界点の近傍では等温圧縮率の発散のため非常に重力に敏感となり, 静水圧により強い密度分布が形成され, 結果として臨界密度から逸脱するため臨界発散が抑制される。さらに, 重力が自然対流を発生させるため熱輸送が促進されることが挙げられる。しかし, 無重力下では熱拡散の理論に従うはずだと考えられていた。しかし, 近年になって種々の微小重力実験手段が開発され, 小型ロケットの弾道飛行を用いた臨界点現象実験が実施されたが, 拡散過程では説明できない高速熱伝播が観測¹⁾されて, 研究者を困惑させていた。その後, この高速熱輸送現象に対し京都大学の小貫教授により理論的な説明²⁾がなされ, 「ピストン効果」と命名された。これは, 上で述べた臨界点近傍での物理量, 膨張率の発散に由来する。臨界点近傍では熱エネルギーが加熱面近傍の熱拡散層の内部エネルギーの増加に全てが消費されず, 一部が効率よく体積変化に変換される。その機構は,

- 1) 臨界点近傍では熱膨張率も発散しているため, 流体は印加された熱によって大きく膨張する。
- 2) 膨張の前面では, 逆にバルク側の流体が圧縮され, バルク流体に相対的に高温, 高圧, 高密度の領域が形成される。
- 3) この領域が圧力波として音速でバルク中を伝播するため, 流体温度が高速で上昇する。

その結果, 熱拡散係数を大きく超える高速の熱輸送が発

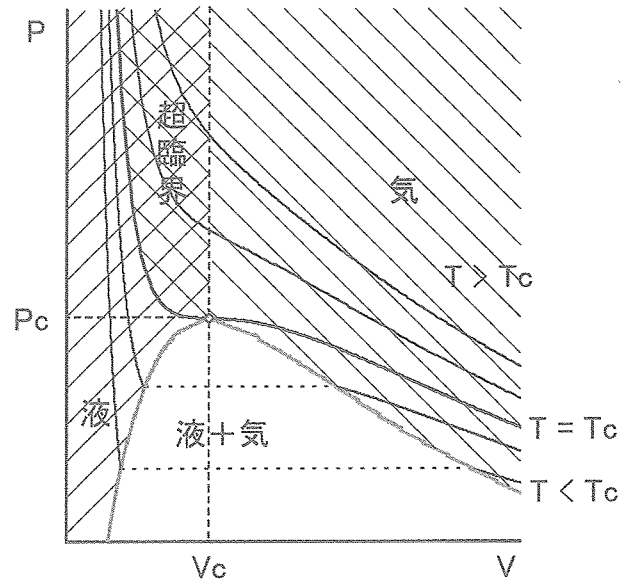


図1 実在流体のP-V線図

現する。

この効果を検証するために, 今までに多くの実験や解析³⁻⁸⁾が実施されてきた。臨界点は温度, 圧力, 密度が1点で決まるため, 臨界点の実現には高品位の環境条件制御が必要だと考えられている。先にも述べた様に地上実験では静水圧分布による密度勾配形成がある上, 熱実験に必須の温度分布形成には自然対流による擾乱が付きまとうため, この実験には微小重力環境が有効だと早くから考えられていた。一方で高品位の温度条件には温度緩和時間が長い環境が必要である。よって, 高精度の臨界点実験には長時間の微小重力環境, すなわちスペースシャトルなどを用いた宇宙実験が必然だと考えられていた。しかし, この様な機会は極めて限られており, 現実の実験結果は地上実験及び小型ロケット等を用い, 精度を犠牲にした実験のものが主体となっている。ちなみに1993年のD-2と呼ばれるドイツ主体のスペースシャトル実験では, 高精度長時間の臨界点実験が実施され, 定圧比熱の発散が実証⁹⁾されている。

一方, 数値解析は理想的な条件を設定できるが, 熱拡散係数が減速しているため, 非常に薄い熱拡散層が容易に形成され, さらに現象の緩和時間が異常に長くなるため, 重力などの影響を含む実際の実験条件に整合させるのは困難であった。よって従来の研究では実験と数値解析が相補せず, 定性的な検証に終始し, それのみで「ピストン効果」が存在すると結論していた。また興味深い現象, 例えば密度パルスが形成されることやステップ状の温度上昇が数値シミュレーションにより予測^{7,8)}されており, また, 体積粘性の温度依存性が臨界点近傍で変化¹⁰⁾し, それにより音速の温度依存性も変化すること¹¹⁾

表1 研究チームメンバーと分担（平成16年度末時点）

| 分担 | 研究者 | 所属 |
|--------------------------|-----------|------------------------------|
| チームリーダー，実験技術 | 三浦 裕一（招聘） | 宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究本部 / 名古屋大学 |
| プロジェクト調整 | 石川 正道（招聘） | 宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究本部 / 東京工業大学 |
| | 竹之内武義 | 宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究本部 |
| | 小林 礼人 | 宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究本部 |
| 理論および数値シミュレーション 実験系設計 | 河合 潤 | 三菱総合研究所 |
| | 本多 克也 | |
| | 松本 昌昭 | |
| 実験系構築，実験実施，データ解析 | 大西 充 | 宇宙航空研究開発機構・総合技術研究本部 |
| | 吉原 正一 | |
| | 桜井 誠人 | |

が理論解析により予測されている。しかし、それらの予測には従来の実験装置では達成することが不可能な精度と時間分解能を要求されていた。

以上の背景のもと、微小重力環境が有効な基礎科学分野の一つとして臨界点近傍流体研究を定量的かつ精緻な議論によって進め、新しい領域を拓くことが宇宙開発事業団（当時）を中心に検討された。その後、平成14年より名古屋大学、航空宇宙技術研究所（当時）、三菱総合研究所を含めた研究チームが構成され、平成15年の宇宙3機関統合により宇宙航空研究開発機構・宇宙科学研究本部が中心となって研究を進め、平成16年度末まで研究を実施した。表1に平成16年度末時点でのチーム構成を示す。このチームは宇宙実験をより有効に実施するため、まず地上実験での限界を見極めることに着手した。そこで高精度臨界点近傍流体計測システムを構築し、この精度を検証するためにパルス加熱実験を行い、「ピストン効果」素過程の直接検出に成功^{12,13)}した。この成果を受け、本研究チームは、まず小型ロケット実験によって臨界点にさらに近づくことに挑戦するため、実験装置を小型化すると共に、臨界点に近づくにつれ増大する迷光を克服できる赤外線レーザー干渉計を製作し、定量的な計測に

成功している。これらの研究チームによる成果はISS科学プロジェクト室研究報告書¹⁴⁾として報告される予定である。この研究チーム中で総合技術研究本部は高速度高精度実験系を構築、実験を実施し、高精度のデータを取得することを担当し、その責任を果たしてきたが、この背景には旧航空宇宙技術研究所時代より宇宙環境を念頭に置いた臨界点研究に関し、我が国の先駆的な役割を果たし、多大な技術蓄積を有していることがある。本報告書では、旧航空宇宙技術研究所時代を含め、総合技術研究本部がピストン効果素過程の直接観察の成功に至った過程とその具体的成果として精密音速測定の結果について報告する。

2. 背景

2-1. 平面DC加熱実験

「ピストン効果」を定性的ではあるが顕著に示す従来の研究として、地上環境で旧航空宇宙技術研究所時代に実施した平面DC加熱実験について述べる。試料流体としては臨界温度 304.13K (30.98℃)、臨界圧力 7.39Mpa (72.9atm) と比較的取り扱いが容易な二酸化炭素を用いた。図2左部に実験に用いた平面DC加熱用セル構造概

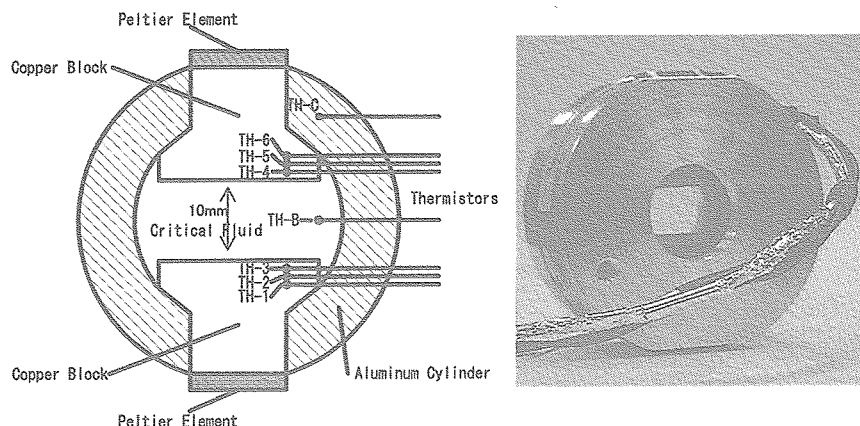


図2 平面DC加熱用実験セル外観

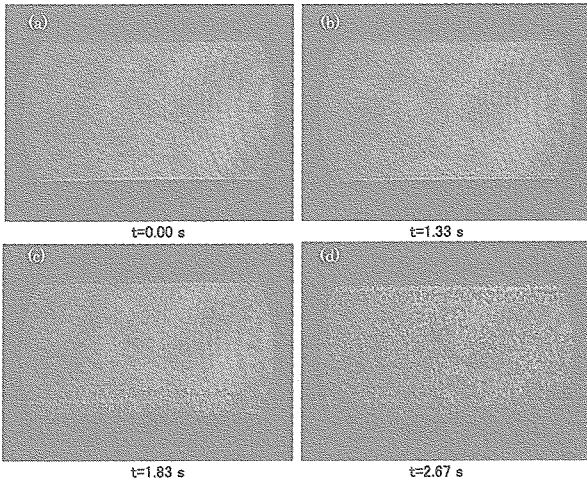
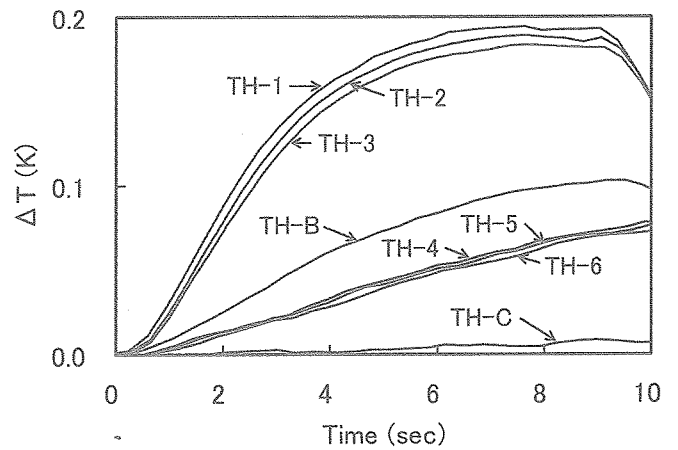


図3 平面DC加熱による自然対流観測結果

略、図2右部にセル外観写真を示す。内径27mm、厚さ16.5mmのアルミ製円筒容器内に、流体に温度を付加するための銅製ブロックが上下に配置された。銅製ブロックの面は幅20mm、奥行き5mmであり、試料流体が充填されるブロック間の距離は10mmである。それぞれのブロックにはペルチェ素子が設置され、面的な冷却および加熱を可能としている。流体封入部分は光学観測のため、厚さ10mmの円形合成石英ガラスで挟まれている。観察窓の直径は25mmである。実験セル全体はヒータが巻かれたアルミ製円筒容器内に設置され、全体が温度制御された。この実験系は落下施設実験用に構築されたものであるが、通常重力環境下での予備実験でも臨界点近傍の流体に特有の現象が見られた。上下銅ブロックの間にはほぼ臨界密度の二酸化炭素が充填され、臨界値より50mK高く維持された温度のもと、下部銅ブロックにより平面的に9秒間加熱した。上部銅ブロックは制御されていない。図3にセル内をシャドウグラフ法によって観測した結果を示す。まず1.33秒後の図が示す様に下面に自然対流の発生が見られる。しかし1.83秒後には下面対流が成長するとともに上面からも対流が発生し、2.67秒後には上面対流が成長してはつきり観察できる。上面からの下降対流の発生は、臨界温度から遠ざかるに従い遅れる。遅れ時間は臨界温度からの差のべき乗に従っている¹⁵⁾。図4に加熱開始直前の温度を基準にした上下銅ブロック内部 (TH-1~TH-6) と試料流体 (TH-B) の温度履歴を示す。このグラフから試料流体の温度が銅ブロック加熱開始後すみやかに上昇を始めていることがわかり、図3との対比から、この温度上昇は対流がもたらしたものではないことがわかる。通常流体の場合、この条件では単純に下面から自然対流が発生するだけであるが、臨界点近傍流体では流体の様相が大きく異なっていることがわかる。これは「ピストン効果」が原因であると考え

図4 平面DC加熱時の温度履歴 ($T - T_c \sim 50\text{mK}$)

られている。なお図3は対流が細かな構造を持っていることを示しており、これも臨界点特有の現象として実験的、解析的研究^{8,15)}が進められている。

2-2. 一次元数値シミュレーション

この実験を模擬するため、研究チームが作成した数値シミュレーションコードにより一次元数値シミュレーションを行った。ただし簡略化のため、無重力環境下での解析とした。用いた基礎式を質量保存、運動量保存、エネルギー保存の順に示す。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial \rho u}{\partial x} = 0 \quad (1)$$

$$\rho \left(\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} \right) = - \frac{\partial P}{\partial x} + \frac{4}{3} \frac{\partial}{\partial x} \left(\mu \frac{\partial u}{\partial x} \right) + \rho g \quad (2)$$

$$\rho C_v \left(\frac{\partial T}{\partial t} + u \frac{\partial T}{\partial x} \right) = - \frac{T\beta}{k_T} \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial x} \right) \quad (3)$$

ここで ρ , t , u , x , P , μ , g , C_v , T , β , k_T , λ はそれぞれ、密度、時間、速度、座標、圧力、動粘性係数、重力、定積比熱、温度、体積膨張率、定温圧縮率、熱伝導率を示す。臨界点近傍流体に最も重要な状態方程式には、修正 Patel-Teja 方程式¹⁶⁾を用いた。

$$P = \frac{RT}{V-b} - \frac{a}{V(V+b)+c(V-b)} \quad (4)$$

ここで R , V は、ガス定数、体積であり a , b , c は温度の関数となるパラメータである。実在気体用の最も単純な状態方程式はファンデルワールズ方程式であるが、修正 Patel-Teja 方程式にはファンデルワールズ方程式と同等の計算速度でありながら、より高い精度が望める。ただし、修正 Patel-Teja 方程式は研究チームの検討¹⁴⁾により、臨界密度から外れた状況を正しく評価できないこと

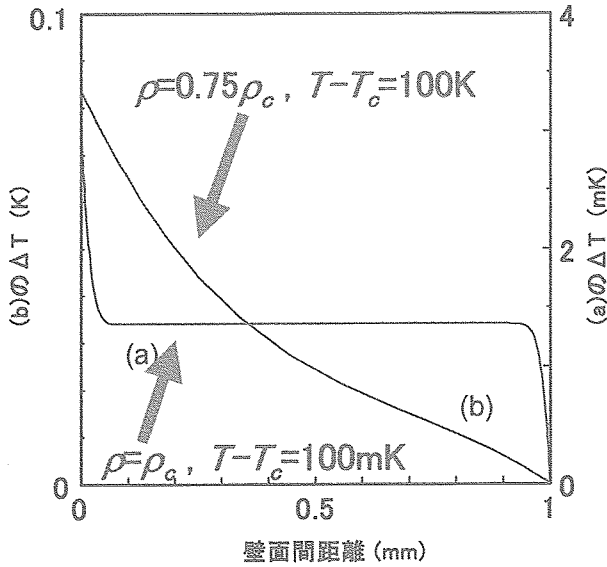


図5 DC加熱1秒後の試料流体内温度分布の数値シミュレーション結果
(a) 臨界点近傍状態, (b) 臨界点から離れた状態

が判明しているが、高速に解けるため、定性的な情報による予備的検討には有用である。図5に数値シミュレーションの結果を、(a)は臨界点に近い、すなわち密度は臨界値と同じ、温度は臨界値より100mK上の場合、(b)は臨界点から遠い、すなわち密度は75%、温度は100K上の場合の流体内温度分布について示す。近臨界点(a)と遠臨界点(b)では温度目盛りが大きく異なることに注意されたい。「ピストン効果による高速熱輸送」といっても近臨界点での熱拡散に比較しての話であって、遠臨界点での熱輸送に比較し遙かに微量である。また、計算速度を速めるため、試料流体充填部の高さ(以下試料流体高)は1mmとしている。図の左がヒータのある実験セル下面、右が上面に相当する。(b)は見慣れた温度プロファイルであるのに対し、(a)はバルク流体中の温度分布がほぼ平坦になっている。このため上部(図5右部)にも急峻な温度勾配が形成され、自然対流を引き起こすと考えられる。この平坦部分は、図左から右へ高速に熱が輸送されているため発生すると考えられる。上下に発生する急峻な温度勾配は熱拡散係数自身は極めて微小であることを示している。

図3および図5はマクロに「ピストン効果」の存在を示しているが、なぜ平坦になるかは説明されていない。このため、現象をより詳細に観察するための一次元数値シミュレーションを行なった。密度は臨界値、温度は臨界値より100mK高い場合で加熱開始後30 μ 秒、75 μ 秒、120 μ 秒および165 μ 秒後の温度プロファイルを図6に示す。試料流体高は5mmとしている。左側(充填部上面側)のヒータ面から温度ステップが発生し、図の右側(容器

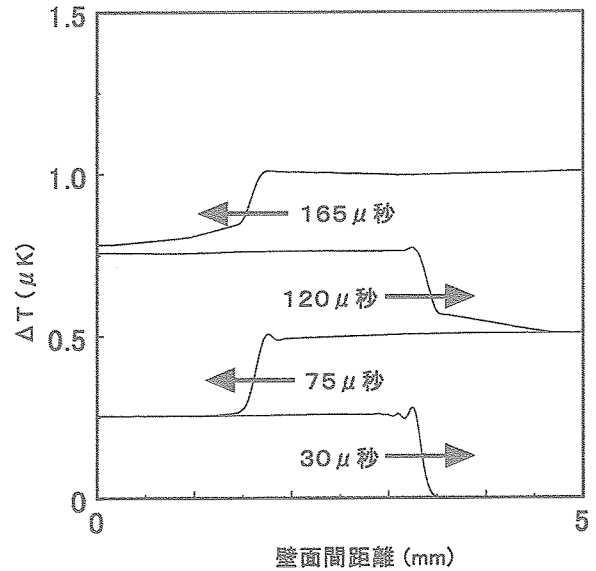


図6 DC加熱時の温度上昇シミュレーション結果, 30 μ 秒, 75 μ 秒, 120 μ 秒, および165 μ 秒後の温度プロファイル, 矢印は温度ステップ波面の進行方向

の下面)で反射し、ヒータ面からの温度ステップに積み重なる。これを繰り返してバルク温度が平坦に上昇していく様子がわかり、平坦な温度プロファイルは幾重にも重なった温度ステップ層で構成されていること、よって温度ステップが真の「ピストン効果」と言えることがわかる。ここで、「温度ステップが積み重なる」という表現を使ったが、計算結果を詳細に検討すると、図6の最初のステップ進行波面左側、すなわちヒータ面が有る側は、僅かではあるが常に図右側への流れがあり、進行波面右側の流体はほぼ静止している。最初のステップはひたすら波面が進行するだけであるが、一旦波面が右側に到達すると、左からの流れが強制的に静止させられ、急峻な圧力勾配が右側に形成される。この圧力勾配により左側の流れが次々と静止させられ、急峻な圧力勾配部分は左側に進行する。よって「積み重なる」と言うよりは「乗り上げる」という表現の方が実際の現象に近い。この「乗り上げる」時に断熱圧縮により運動エネルギーから熱エネルギーへの変換が発生する。温度が臨界値より100mK高く厳密な臨界点では無いため、等圧比熱が発散しきれず試料流体の温度が僅かに上昇する。勾配進行後の右側部分は速度ゼロで安定するため、ここには平坦部分が形成され、圧力勾配を持たなくなる。波面の進行は音速を超えることが出来ないため、一定の力で押す限り、この場合は熱流束が一定で有る限り、ステップ高は一定の値に保たれる。また、「乗り上げていく」ステップ高はそれぞれステップでほぼ等しいため、運動エネルギー-温度エネルギー変換が極めて効率良く行われていることがわかる。数値シミュレーションから、ステップ前面の形状

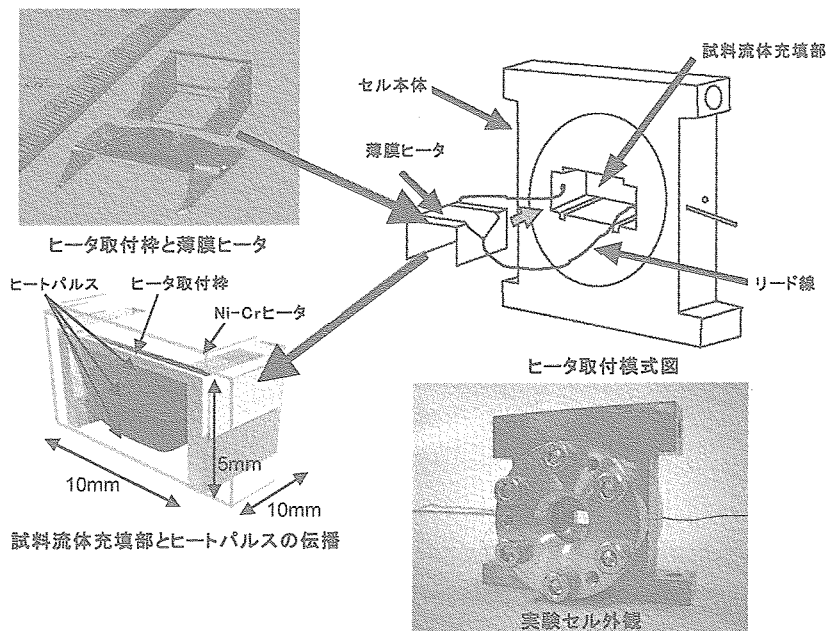


図7 パルス加熱セル構成概略

は、反射，あるいは行程長が長くなるに従って崩れていくことがわかる。このステップの伝播および緩和現象には熱力学に関する種々の情報が含まれていると考えられ、この部分だけ切り出した実験，すなわちピストン効果の基本的な構成要素，素過程を観察する実験を検討した。しかし、従来の研究結果を考慮すると、計測値が極めて微弱になること（例えば図6ではステップ高は $1\mu\text{K}$ 程度）が考えられ、何らかの信号強調策が必要だと考えられた。このため、一定周期で熱流束を与え、共鳴を発生させることを目指した。

3. 高速度高精度実験

3-1. 高速度高精度加熱実験装置

標的とする現象は高速であるため、熱的な計測手法は適用出来ない。幸い、臨界点近傍では熱の印加によって容易に密度変化が発生する。この密度変化を干渉計を用いて光学観測することとした。臨界点近傍では流体は容易に圧縮されるため、その影響をファデルワールス理論による物性値の解析¹⁷⁾から見積もったところ試料流体高が10mm程度を超えると静水圧の影響が無視できないことがわかった。このため試料流体高が3mm, 5mm, 10mmの実験セルを用意した。共鳴を起こすためには、熱パルスを定期的が発射すれば良いが、熱は音速で伝わるため音が試料流体内を往復する時間より充分短い熱流束制御が必要である。臨界点近傍二酸化炭素の音速が100m/s程度であること、試料流体高が10mm以下であることを考えるとパルス幅は $50\mu\text{s}$ より十分に短い必要がある。このためヒータには図7左上部に示す極薄のニクロム箔(3

μm)をステンレス製の0.5mm角のヒータ枠に張り渡して用いた。このヒータの緩和時間は約 $1\mu\text{s}$ と見積もられ、実験には十分な速さが得られている。このヒータに通電することで流体中に平面波の熱パルスを形成し、図7左下部に示す様に下面に向けて伝播させた。既述の様に二酸化炭素の臨界点は 30.98°C , 72.9atm であり、この値を高精度で設定、維持する必要があるため、極めて高い温度均一性とかなりの耐圧性が要求される。よって実験セルは、主構造には熱伝導率が極めて良い銅を用いることし、銅製の試料充填部を光学ガラスで挟み、それらを真鍮製フランジで押さえる構成になっており、図7右下部の実験セル外観図が示す様に頑丈な作りになっている。光学窓はガラス表面での光の乱れを抑えるために、 $\lambda/10$ の表面精度のあるものを用いた。本実験では温度安定性を高めるため、温度制御の特性時間が長くなっており、通常は1日に1設定温度の実験しか実施出来ない。このため、70atm以上で数ヶ月間試料流体の密度を維持

表2 二酸化炭素の規格

| 項目 | 規格 |
|---|------------|
| 純度 vol. % | 99.9990 以上 |
| 水分 vol. % | 0.0010 以下 |
| 全硫黄分 wt. ppm | 0.03 以下 |
| 異味異臭試験 | 合格 |
| 炭化水素 vol. ppm | 1 以下 |
| (H_2 , N_2 , O_2 , Ar) vol. % | 0.0010 以下 |
| 充填量 | 5.0kg |

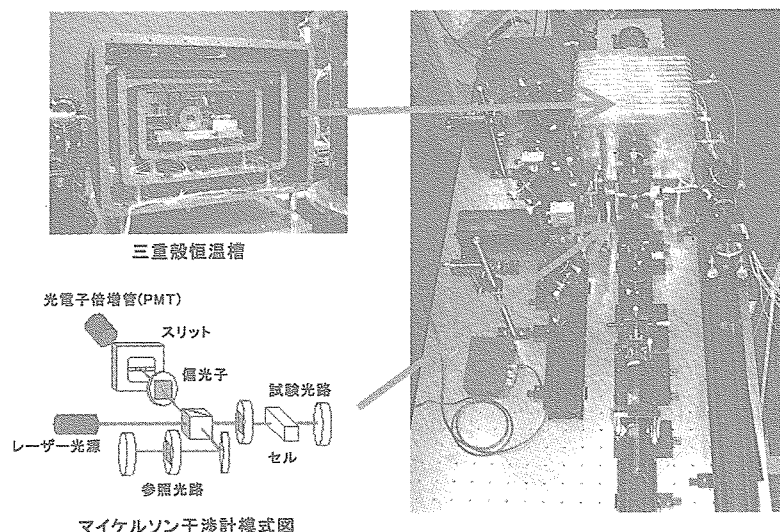


図8 三重殻恒温槽および干渉計概観

する必要があり、実験セルには極めて高い気密性が必要である。よって固定可能な部分はエポキシ樹脂で封鎖し、取り外す必要があるホルダーガラス間の隙間などは高い気密性を有するIn製Oリングを用いて封鎖した。試料流体として用いた二酸化炭素の規格を表2に示す。

臨界点近傍の物性は換算温度 ($\epsilon = (T - T_c) / T_c$) でスケールされる。臨界点特有の現象を確認するためには、 ϵ で10ppmオーダーまで臨界点に近づく必要があり、これは二酸化炭素の場合、臨界点 $\pm 10\text{mK}$ 程度となる。よって、要求される温度制御機能は $\pm 1\text{mK}$ と非常に高いものとなった。本実験の温度制御における特徴は、制御温度が室温に非常に近いことである。実験セルの温度と室温が十分に離れている場合には、精度を維持して実験セルから外界への熱流出を制御することが可能で、比較的良好な温度制御が実現できる。ところが室温近傍での温度制御では、外界との温度差が小さいために熱の流出が少なくなり制御に精密さが必要となる。そこで本実験では絶対温度制御と相対温度制御を組み合わせた複合制御によって温度制御を実現した。通常の温度制御では、設定した温度になるように系の温度を制御するが、しかし本実験では $\pm 1\text{mK}$ 程度の温度制御を行う必要があり、そのため制御に用いる温度測定はさらに高い精度を必要とする。また広い領域で均一な温度を得ようとすると、多点を個別に制御することになり、制御系が複雑になる上、制御が発散するなどの問題が生じる。一方、断熱制御では試料セルを多重の熱シールドで囲い、熱シールド間の温度差をなくすように温度制御を行う。熱シールド間の温度差がゼロになるということは、そこでの熱流入出がないという状態（断熱状態）であり、その内側にある試料セル全体も熱移動がない状態となる。この方法は非常に精度の高い温度維持方法であり、試料セル全

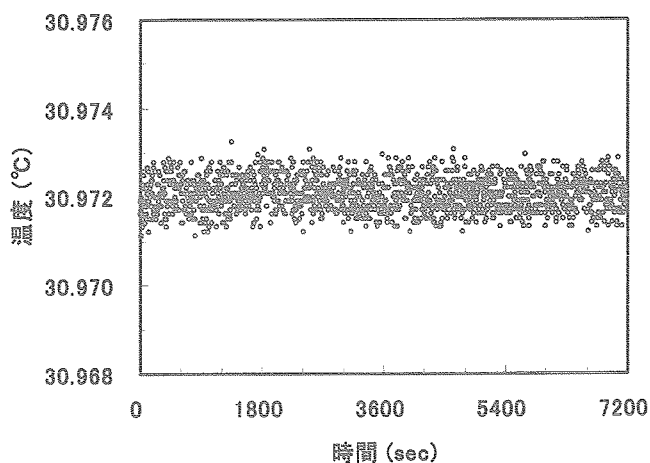


図9 実験セル温度履歴

体を均一な温度にすることができる。本実験ではこの両者を複合した方式で温度制御を行った。すなわち、熱シールドの温度を絶対温度で制御し、その周囲にさらに熱シールドを配置して内側の熱シールドへの熱の出入りを小さくし、その熱シールドをさらに水冷ジャケットで覆った。これによって絶対制御における外界の温度の擾乱を低減するとともに、実験セルの均熱性を確保することとした。この三重殻恒温槽を図8左上部に示す。図9に恒温槽内に取り付け、温度制御途中の実験セルの温度履歴を示す。温度はITS-90で定義された定点で較正された白金抵抗温度計を用い、4端子交流ダブルブリッジ法で測定した。上記構造の実験セル、恒温槽および温度制御方法を用いたことで、 $\pm 1\text{mK}$ の温度制御分解能を達成していることが図9に示されている。よって 10mK 程度の温度設定精度を達成することが出来たと考えられる。

一方、上述の温度安定性を維持するには、ヒータ熱の

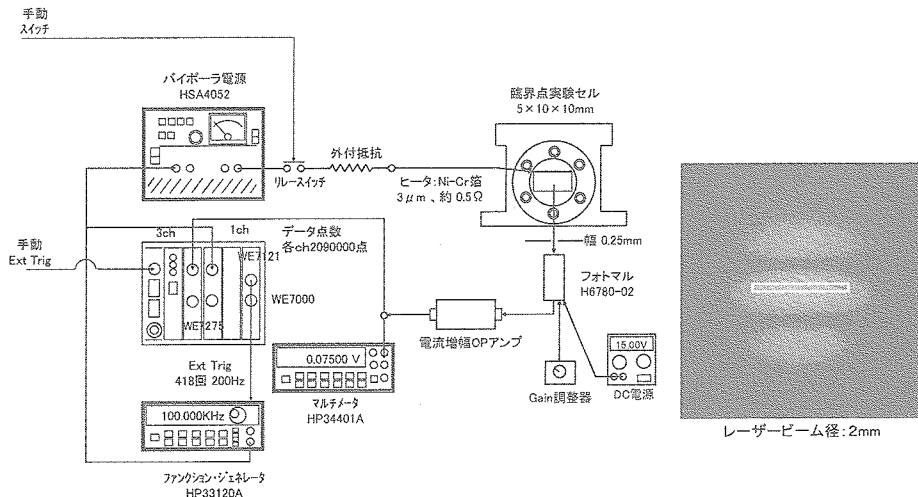


図10 パルス発生系，データ収録系および光学計測系構成と干渉縞 CCD 画像とスリット範囲

印加は最小限に留める必要があり，これによって発生する密度変化は 1ppm 程度が見積もられた。この密度変化を図8左下部に示す，比較的高感度のマイケルソン干渉計および高感度光電子増倍管（フォトマル）で検出・計測した。干渉計と恒温槽を含んだ実験装置群の全景を図8右部に示す。その他，短時間の熱パルスに追従するため，1 μ 秒の特性時間を目安とした計測系を構築した。図10にパルス発生系，データ収録系および光学計測系構成と観測された干渉縞CCD画像とスリット範囲を示す。共鳴を発生させるには熱パルスの波形が重要である可能性があるため，図10に示すファンクション・ジェネレータHP33120Aによって波形を設定し，それを計測制御ボックスWE7000内のファンクション・ジェネレータWE7121によって定期的に指定回数駆動することとした。計測データはWE7000内のデジタイザWE7275に収集される。サンプリング周波数は1MHz，サンプル数は209万点である。計測データは実験終了後，ネットワーク経由でPCに移し，積算等の後処理を行った。共鳴現象を扱うため，計測データは周期的に積算し，データを高精度にすると共にノイズ低減を図ることとした。50Hzおよびその高調波として発生する電源ノイズは，計測周期（kHzのオー

ダーと予想）より低周波数であるため積算では除去出来ない。よって最小二乗法によって検出し，計測データから減算することで除去することとした。手順は3-2で詳述するが，データ処理による精度向上によって最終的に計測系は1ppmの密度差検出が可能となっている。これらをまとめたものを表3に示す。

3-2. 予備実験

パルス発生系，データ収録系，光学計測系およびPCの後処理系が正常に機能することを確認するための実験を実施した。共鳴を起こさない十分な時間間隔として5msec（即ち200Hz）を選定し，周期的パルス加熱実験を行った。計測は以下の手順で行われた。

- ①熱パルスにより，ヒータ近傍の流体が加熱され膨張し，膨張域前面に密度パルスを形成する。これが音速で試料流体充填部下方に伝播する。
- ②密度の揺らぎが干渉計によって明暗の変化（光量変化）に変換される。
- ③光量変化は，フォトマルによって検出され，その信号は電流増幅OPアンプによって増幅（1万倍）される。

表3 実験装置の性能および手法

| | 性能 | 手法 |
|-------|---------------------|--|
| 温度制御 | ± 1mK | ・ 三重殻恒温槽 |
| パルス加熱 | 1 μ 秒（緩和時間） | ・ 3 μ m厚 Ni-Cr 箔ヒータ ・ 高速バイポーラ電源 ・ ファンクションジェネレータ |
| 密度計測 | 10 ⁻⁶ 未満 | ・ マイケルソン干渉計 ・ フォトマル（PMT） ・ 高速データ収集（1MHz，2Mサンプル） ・ ノイズ除去（418回積算処理） |

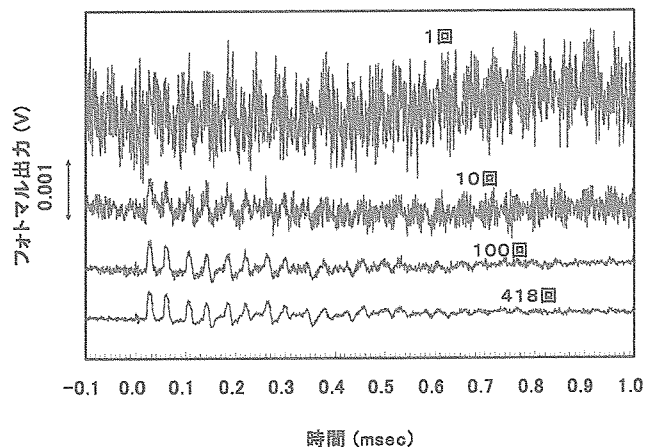


図11 積算によるノイズ除去結果と発現したパルス状信号

- ④増幅された信号は、デジタイザWE7275によって、与えられたサンプリング周波数(1MHz)で与えられたサンプル数(209万個、約2秒間)計測される。
- ⑤デジタイザに蓄積されたデータは、デジタイザを制御するPCに自動的に転送される。1回の計測で約70MBのデータが発生する。転送には1分程度を要する。
- ⑥実験室雰囲気温度の変動などによるフォトマルからの信号の大きくかつゆっくりした変化は、マルチメータHP34401Aによって読みとられる。まず、干渉計光量の明信号(光量最大)と暗信号(光量最低)の計測を行い、長周期変動の振幅を求める。次に、マルチメータ出力が明信号と暗信号間の中央付近になった時に熱パルスを発生する。これにより、熱パルス発生時の位相をほぼ一定にするとともに、干渉計の感度が最も良いところを利用できる。臨界点に近づくと、臨界タンパク光現象によって、試料流体充填部の透明度が劣化する。しかし、この明信号、暗信号により信号を正規化することにより、種々の温度依存性を定量的に比較することが可能である。

図11にその結果を示す。図11最上部に計測の生データを示す。元々の信号が微弱であり、それに比較してノイズレベルがかなり大きいためノイズ除去の処理を以下の手順で行った。

- ①参照信号データ中に200Hzで存在するパルス信号(パルス高1Vまたは2V)を基準として用い、参照信号が与えられたレベル(0.1V)を越えたときから、時間的前方500個、後方4500個のデータを抽出して5000要素のデータ列を作る。
- ②このデータ列を積算する。通常1回の測定(209万サンプル)で418回の積算が行われる。図11に生データから10回、100回、418回の積算で得られたデータを上から順に示す。418回の積算で原理的には400Hz以上の周波数成分によるノイズレベルは約20分の1になる。

- ③与えられた周波数(50Hz, 100Hz, 150Hz, 200Hz)で構成された波で、積算データに最も近いものを最小二乗法を用いて計算する。50Hzおよびその高調波として発生する電源ノイズは、計測周期(200Hz)より低周波数であるため積算では除去出来ない。
- ④計算された波を積算データから除去する。

図11から積算を経るに従いノイズが低減し、複数のパルスが計測されていることがわかる。計測されたパルスは約20kHzという比較的高周波数の信号であり、当初は熱パルスに伴って発生するノイズだと判断した。しかし、

- 1) 図10の右側に示す干渉縞画像で、明暗の位相を180度変化させた場合は、計測データが負側に反転する。
- 2) スリット位置を変更するとパルス間隔が異なってくる。
- 3) 熱パルスの幅を変更すると計測パルスの幅も変化する。

ことから、実際の現象を観察していると考えた方が適切であると判断した。とすると熱パルス(正確には密度パルス)が試料流体充填部の上下面を往復している現象を捉えたこと、熱パルス、すなわちピストン効果の素過程そのものを観察したことになる。過去に例のない、世界初のデータであったため本物が否かを慎重に判断したが、3-3章で示す試料流体高によるパルス間隔の異なり(図12)や温度依存性のデータ(図13)などから熱パルスを

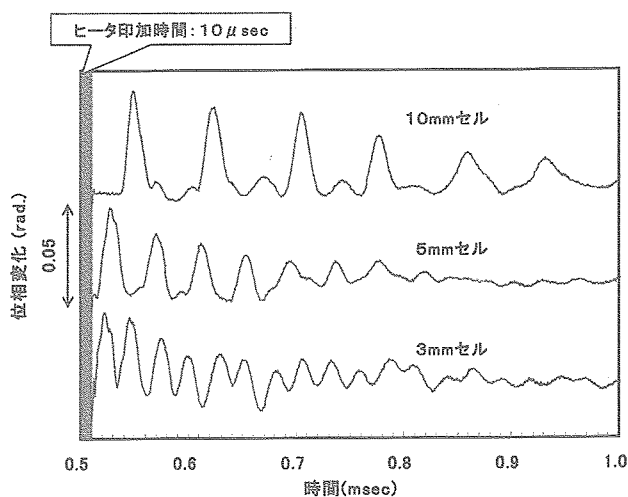


図12 試料流体高の違いによる密度波の観測結果
($T - T_c = 100\text{mK}$, ヒータ加熱エネルギー = $33\mu\text{J}$)

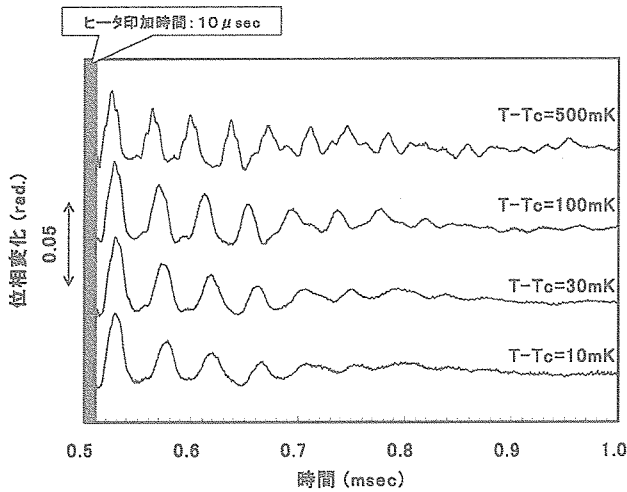


図13 臨界点からの温度の違いによる密度波の観測結果
(試料流体高5mm, ヒータ加熱エネルギー=33μJ)

直接観察していることは確実である。結果的に本研究で構築した実験装置は研究チームの予想を超え、「ピストン効果」素過程の直接観察を可能とする高速度かつ高精度を実証した。パルス加熱を追跡したこの測定は、共鳴現象を利用した測定よりも直接的であり、情報量が豊富である。よって、パルス加熱による音波の発信と伝播という直接の現象を観測することとした。

3-3. パルス加熱実験結果

3mm, 5mm, 10mmセルの密度波の観測結果の一例を図12に示す。それぞれの試料流体の密度はほぼ臨界値、温度は臨界温度より100mK高いと見積もられている。ヒータ加熱で形成された熱パルスが試料流体内を何度も往復するため、複数のピークが観察されている。また、時間の経過と共に熱パルスが減衰している。さらに、ベースラインの乱れも試料流体高が小さいほど乱れているのが見られる。これは、試料流体充填部形状が理想的な形状ではないため、2次元、3次元効果によって試料流体内に種々の反射波を生じ、流体を攪乱していることによると考えられる。ただし、音速を求める上で最も重要な熱パルス間隔はよく計測されている。5mmセルについて臨界点からの温度を変えて行った密度波観測結果を図13に示す。流体温度が臨界温度に近づくに従いピーク間隔が広がっていることが確認できる。また、臨界温度に近づくに従い密度波の減衰が早くなっているのが確認できる。以上の計測データから精密な物性値を求めることを検討した。複数回のパルスが計測されているため、平均的なパルス間隔には精度を望むことが出来る。パルスは音速で往復していると考えられ、音速は複数の熱力学的な物性値により構成されており、物性値の温度依存性等を類推するものとして適切であることから、平均的なパ

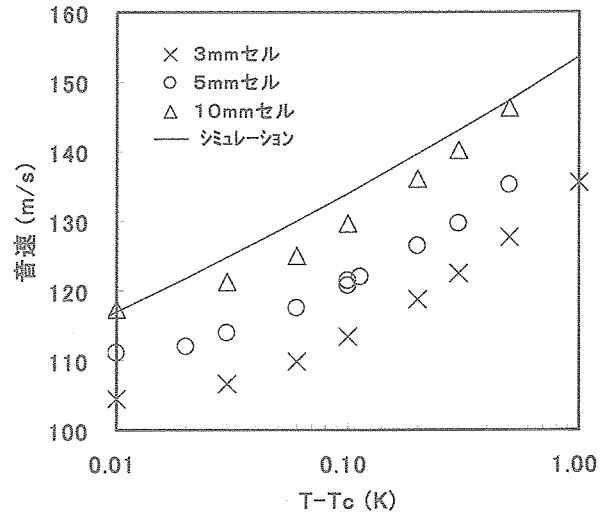


図14 音速の温度依存性

ルス間隔と試料流体高から音速を求めることとした。平均的なパルス間隔は計測データにFFTを適用することで求めた。

図14に音速の温度依存性と試料流体高の関係を示す。研究チームで数値シミュレーションにより計算された音速¹⁴⁾も示す。理論的には、臨界点近傍では物性値は $(T-T_c)^\gamma$ に比例すること(べき乗則)が予測されている。ここで γ は臨界指数と呼ばれている。よって音速もべき乗則に従っていると考えられ、シミュレーション結果を含め、実験結果はべき乗則に従っており、臨界指数はほぼ一致していると言える。しかし絶対値に10%程度の誤差があり、また、実験結果は音速が試料流体高に依存していることを示しており不可解である。図15に試料流体高5mmでパルス幅を変えた場合を示す。パルス幅が狭くなるとパルス上部が二つに分かれる。実験セル内で薄膜ヒータと上面壁には熱的・電気的な絶縁を取るための

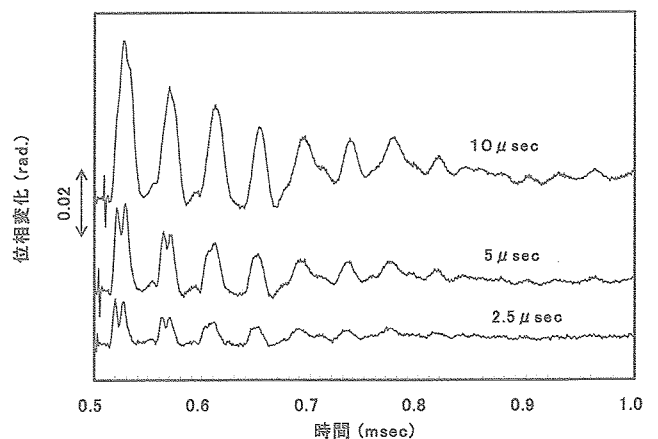


図15 加熱時間の違いによる密度波履歴
(試料流体高5mm, $T-T_c=100\text{mK}$)

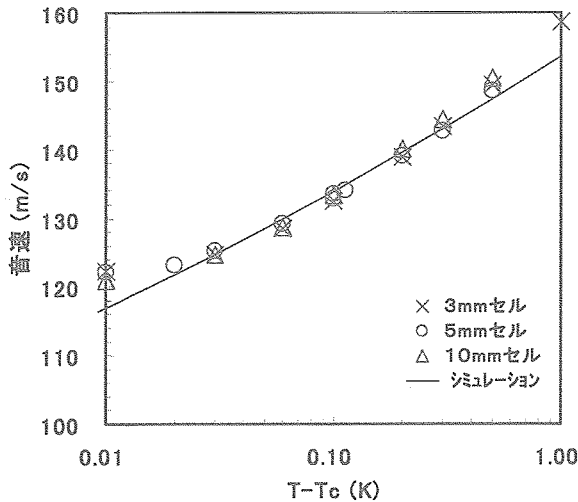


図16 音速の温度依存性
(ヒータ裏側空間を試料流体高に含めた場合)

0.5mmの隙間がある。ここにも流体が充填されており、薄膜ヒータからこの隙間にも実際には熱パルスが発射されている。これが上面壁に反射した後、薄膜ヒータをすり抜けると考えると、0.5mmを往復する時間よりパルス幅が短い場合は、パルス上部が2つ観察されることが説明出来る。ただ薄膜とはいえ、ヒータを熱パルスがすり抜けるのは奇妙な現象であり、現在のところ未検証の仮説である。しかし、この空間を試料流体高に加えると試料流体高が異なる実験結果およびシミュレーション結果は、お互いに極めて良く一致する。図16にその結果を示す。実験結果からは、図14では不確かであったが、100mK程度を境に音速の温度依存性が異なっていることが明確に見て取れる。この理由として通常ならば重力効果が最も説得力があるが、それならば試料流体高依存性も見えはらずである。研究チームの検討¹⁴⁾によれば、現在最も有力なのは体積粘性の温度依存性が臨界点近傍で変化¹⁰⁾し、それにより音速の温度依存性も変化する¹¹⁾との理論的予測である。これが正しければ世界でも初めての実験データとなる。一方、シミュレーションには体積粘性温度依存性の変化が含まれていないため、当然のことながら単純なべき乗則に従っている。

3-4. 準DC加熱実験

図6でDC加熱により温度がステップ状に上昇することを数値シミュレーションで示した。これは通常経験する熱現象からかけ離れており、パルスの往復以上に常識的には信じがたいものである。しかし、パルスという「ピストン効果」素過程の直接観察が可能ならば、膨大なパルスで構成されていると考えることができる温度ステップも観察が可能はずである。図17に200 μ 秒という、試

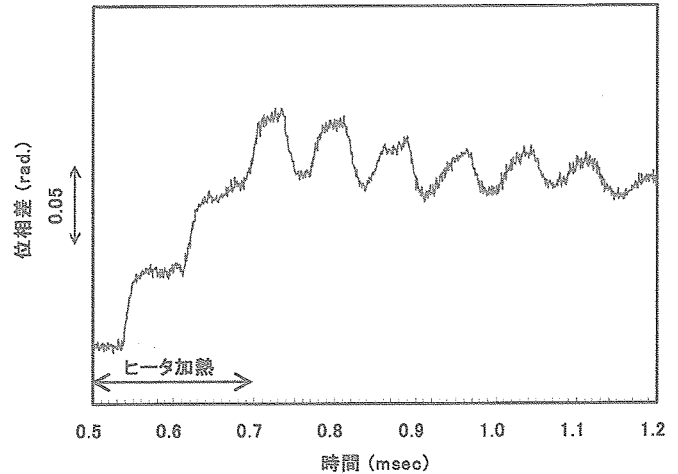


図17 長時間加熱時の密度波履歴
(試料流体高10mm, $T - T_c = 100\text{mK}$)

料流体高(10mm)からすれば準DCに相当する加熱を行った結果を示す。音速が120m/s程度のため、この場合、熱パルスは一往復に少し余る。よって2つのステップが形成された後、パルスの余った部分が試料流体内を往復していることがわかる。2-1章で述べたように温度ステップは「ピストン効果」そのものである。よって「ピストン効果」直接観察に世界で初めて成功したと言える。「ピストン効果」素過程では、パルス前面、後面が相対的に低温のバルク流体に接しているため、進行中も熱拡散を行っている。しかし準DC加熱では、加熱時間を工夫すればパルスが生じない様にすることが可能である。この時はバルク流体中への熱拡散が発生しない。よってパルス加熱と準DC加熱の組み合わせで新しい領域が開拓できる可能性がある。

4. 結論

臨界点近傍流体研究を定量的かつ精緻な議論によって進めることを目的として、研究チームが構成され、まず、地上実験での限界を見極めることとした。研究チームの一員として総合技術研究本部は旧航空宇宙技術研究所時代の研究蓄積を活用し、

- 1) $\pm 1\text{mK}$ の温度制御, μ 秒の熱パルス発生, 1ppmの密度計測分解能を実現する高速度高精度臨界点近傍流体計測システムの構築に成功した。
- 2) 臨界点近傍流体特有の熱輸送現象である「ピストン効果」素過程直接観察に世界で初めて成功した。
- 3) 臨界点近傍流体の音速精密測定に成功し、温度依存性に従来の古典的な理論とは異なる傾向があることを世界で初めて実験的に示した。
- 4) 準DC加熱により「ピストン効果」の直接観察に成

功し、臨界点近傍流体では温度上昇がステップ状に上昇することを世界で初めて実験的に示した。

以上のことから、従来は非常に困難であった臨界点近傍流体の熱的な物性値を精密に測定するための、世界的にもトップの性能を持つツールの構築に成功したと結論することが出来る。

今後は、音速測定さらなる精密化、重力効果の検証、熱伝導率等の物性値の精密測定などの実験限界に挑戦し、さらに準DC加熱実験による新しい領域の開拓にも努めたいと考えている。

参考文献

- 1) K. Nitsche and J. Straub: The critical "Hump" of CV under microgravity results from the D-1 Spacelab experiment "Wärmekapazität," Proc. 6th European Symposium on Material Sciences under Microgravity Conditions, Vol. SP-256(1987), p. 109.
- 2) A. Onuki, H. Hao and R. A. Ferrell: Fast adiabatic equilibration in a single-component fluid near the liquid-vapour critical point, Phys. Rev. A, Vol. 41(1990), p. 2256.
- 3) B. Zappoli, D. Bailly, Y. Garrabos, B. Neindre, P. Guenoun and D. Beysens: Anomalous heat transport by the piston effect in supercritical fluids under zero gravity, Phys. Rev. A, Vol. 41(1990), p. 2264.
- 4) J. Straub, L. Eicher and A. Haupt: Dynamic temperature propagation in a pure fluid near its critical point observed under microgravity during the German Spacelab Mission D-2, Phys. Rev. E, Vol. 51(1995), p. 5556.
- 5) K. Ishii, T. Maekawa, H. Azuma, S. Yoshihara and M. Ohnishi: Effect of gravitational acceleration on temperature wave propagation in a critical fluid, Applied Phys. Letters, Vol. 72(1998), p. 16.
- 6) Y. Masuda, T. Aizawa, M. Kankubo, N. Saito and Y. Ikushima: One dimensional heat transfer on the thermal diffusion and piston effect of supercritical water, Int. J. Heat and Mass Transfer, Vol. 45(2002), p. 3673.
- 7) T. Maekawa, K. Ishii, M. Ohnishi and S. Yoshihara: Convective instabilities induced in a critical fluid, Adv. Space Res. Vol. 29(2002), p. 589.
- 8) T. Maekawa, K. Ishii, Y. Shiroishi, H. Azuma: Onset of buoyancy convection in a horizontal layer of a supercritical fluid heated from below, J. Phys. A: Math, Vol. 37(2004), p. 7955.
- 9) A. Haupt and J. Straub: Evaluation of the isochoric heat capacity measurements at the critical isochore of SF₆ performed during the German Spacelab Mission D-2, Phys. Rev. E., Vol. 59(1999), p. 1795.
- 10) A. Onuki: Dynamic equations and bulk viscosity near the gas-liquid critical point, Phys. Rev. E., Vol. 55(1997), p. 403.
- 11) P. Carles: Effect of bulk viscosity on temperature relaxation near the critical point, Phys. Fluids, Vol. 10(1998), p. 2164.
- 12) M. Ohnishi, S. Yoshihara, M. Sakurai, Y. Miura, H. Kobayashi, M. Ishikawa, J. Kawai, K. Honda and M. Matsumoto: Acoustic speed of CO₂ near its critical point, 54th IAC(2003), IC-03-J_1_05.
- 13) M. Ohnishi, S. Yoshihara, M. Sakurai, Y. Miura, M. Ishikawa, H. Kobayashi, T. Takenouchi, J. Kawai, K. Honda and M. Matsumoto: Ultra-sensitive high-speed density measurement of the "Piston Effect" in a critical fluid, Microgravity Sci. Vol. 16(2005), p. 306.
- 14) 三浦裕一他：臨界近傍における二酸化炭素流体中のピストン効果研究，ISS科学プロジェクト室研究報告書（2005），査読中。
- 15) 石井孝治他：水平平行平板間に満たされた臨界流体中に発生するサーマルブルーム，第38回日本伝熱シンポジウム講演会論文集（2001）。
- 16) N. C. Patel and A. S. Teja: A new cubic equation of state for fluids and fluid mixtures, Chemical Engineering Science, Vol. 37, p. 463, 1982.
- 17) 河野昌仙他：臨界二酸化炭素のピストン効果実験Ⅳ（解析），日本物理学会，第58回年次大会（2003），仙台。

宇宙航空研究開発機構研究開発報告 JAXA-RR-05-006

発行 平成17年10月31日

編集・発行 宇宙航空研究開発機構

〒182-8522 東京都調布市深大寺東町7-44-1

URL: <http://www.jaxa.jp/>

印刷・製本 株式会社 実業公報社

本書及び内容についてのお問い合わせは、下記にお願いいたします。

宇宙航空研究開発機構 情報システム部 研究開発情報センター

〒305-8505 茨城県つくば市千現2-1-1

TEL: 029-868-2079 FAX: 029-868-2956

©2005 宇宙航空研究開発機構

※本書の一部または全部を無断複写・転載・電子媒体等に加工することを禁じます。



宇宙航空研究開発機構
Japan Aerospace Exploration Agency