

臨界流体の“ピストン効果”直接観察

Direct Observation of “Piston Effect” in a Critical Fluid

宇宙先進技術研究グループ(Advanced Space Technology Research Group)

大西 充、吉原 正一、桜井誠人

Mitsuru Ohnishi, Shoichi Yoshihara and Masato Sakurai

Abstract

Thermal energy applied to a pure material near its critical point immediately makes a strong expansion. This causes an adiabatic compression in the front of the expansion and a large density difference is formed there. The difference with adiabatic energy is transported as an acoustic wave. This rapid heat transportation is called “Piston Effect.” In our study, an ultra-sensitive and high-speed density measurement system was developed to observe the elementary process of “Piston Effect.” To demonstrate the performance of the system, the measurement of sound velocity in a critical fluid was conducted. Numerical simulations were also made to confirm the experimental results. Using the FFT method to both of the experiment and the simulation, the sound velocity could be precisely evaluated. The velocity profile versus temperature from the experimental results shows a good agreement with the simulation results and theoretical prediction, that is, the velocity rapidly decreases as the fluid approaches its critical point. This indicates that our experiments and simulations complementally enable us to quantitatively discuss the critical phenomena.

1. はじめに

臨界点では、定圧比熱や膨張率が発散し熱拡散係数がゼロになると理論的に導かれていたため、臨界点近傍流体中の熱輸送は大変低速であると従来は考えられていた。ただ、当時の地上実験では、そのような現象は観察されず、これは重力による密度勾配や熱対流の存在が熱輸送を促進するため、無重力下では理論に従うはずだと考えられていた。しかし、近年になって実施が可能となった微小重力実験でも、やはり高速熱伝播が観測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。この仕組みを簡単に紹介すると、

- 1) 臨界点近傍では等温膨張率も発散しているため、流体は印可された熱によって大きく膨張する。
- 2) 膨張の前面では、逆に流体が圧縮され、バルク流体に対して相対的に高温、高圧、高密度の層が形成される。
- 3) この層が圧力波として音速でバルクを伝播するため、流体温度が高速に上昇する。

以上が起これ、熱伝導率の値に係わらない熱輸送が発現する。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), 4), 5), 6), 7)}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、臨界点実現には高品位の温度条件を要する。地上の加熱実験には自然対流による擾乱がつきまとうため、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。しかし高品位の温度条件には温度緩和時間が長いシステムが必要である。このため、高精度の臨界点実験には長時間の微小重力環境、すなわち宇宙実験が必然だと考えられていた。一方、解析は理想的な条件で実施できるが、逆に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。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、現在に至っている。当初は三菱総合研究所経由の宇宙開発事業団からの受託研究として行ってきたが、平成15年度下期の宇宙3機関統合により、宇宙基幹システム本部からの社内発注として宇

Table 1 Members of the Research Team

分担	研究者	所属
チームリーダー、実験技術	三浦 裕一	名古屋大学、JAXA 招聘研究員
プロジェクト調整	石川 正道 竹之内 武義 小林 礼人	東京工業大学、JAXA 招聘研究員 JAXA/ISAS
理論及び数値解析、実験系設計	河合 潤 本多 克也 松本 昌昭 俣徠 正夫	三菱総合研究所(委託研究)
実験系構築、データ解析	大西 充 吉原 正一 桜井 誠人	JAXA/ISTA

宙科学研究本部と共に研究が進められている。

Table 1 にチーム構成を示す。

このチームにより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”直接検出に挑戦した。本報告では、その具体的成果として臨界点近傍流体の精密音速測定の結果⁸⁾を紹介する。

2. 背景—DC加熱実験—

ここでは、“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、地上での平面DC加熱実験を紹介する。Fig. 1 に実験に用いたDC加熱用セルの構造を示す。上下銅ブロックの間にはほぼ臨界点密度のCO₂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数秒間加熱された。Fig. 2 にその結果を示す。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っきり観察できる。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り、臨界点近傍流体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られている。

この実験を模擬するための数値計算が、三菱総合研究所で一次元数値解析が行われた。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。

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

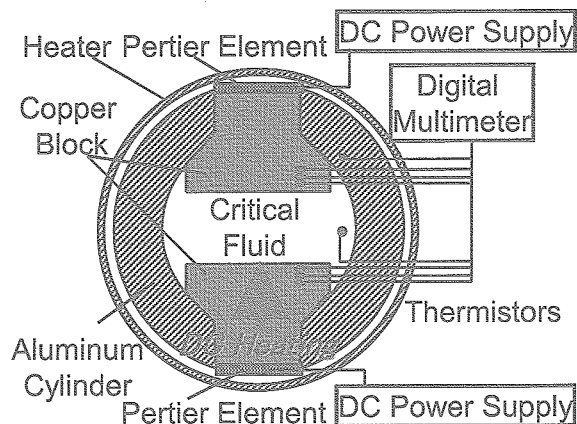


Fig. 1 Schematic of the experimental cell for DC heating.

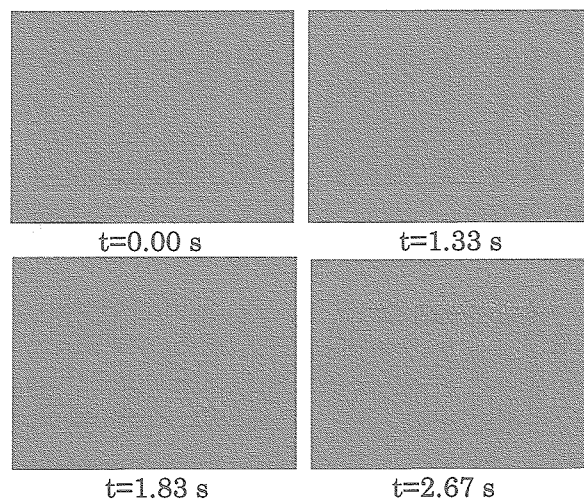


Fig. 2 Experimental results of natural convection development for DC heating.

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

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

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、一定の精度と高速な計算が望める、修正 Patel-Teja 方程式⁹⁾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。Fig. 3 に数値解析の結果を、(a) 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 上の場合と (b) 臨界点から遠い、すなわち密度は 75%、温度は 100K 上の場合の流体内部温度分布について示す。近臨界点 (a) と遠臨界点 (b) では温度目盛りが異なることに注意されたい。図の左がヒータがある実験セル下面、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フラットになっている。このため上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。このフラット部分は、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。

Fig. 2 及び Fig. 3 はマクロにピストン効果の存在を示しているが、なぜフラット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解析を行なった。密度は臨界値、温度は臨界値より 100mK 高い場合の結果を Fig. 4 に示す。ヒータ面から温度ステップが発生し、上面で反射し、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フラットに上昇していく様子がわかり、フラット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。数値解析から、ステップ前面の形状は、反射、あるいは行程長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隠されていると考えられ、この部分だけ切り出した実験が考案された。

3. パルス加熱実験

事前検討によれば、臨界点近傍では流体は容易に圧縮されるため、流体高さが 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。このため実験セル高を 5mm に設定した。ステップ前面を切り出すには、熱パルスを用いればよいが、臨界点近傍 CO₂ の音速が 100m/s 程度であることと

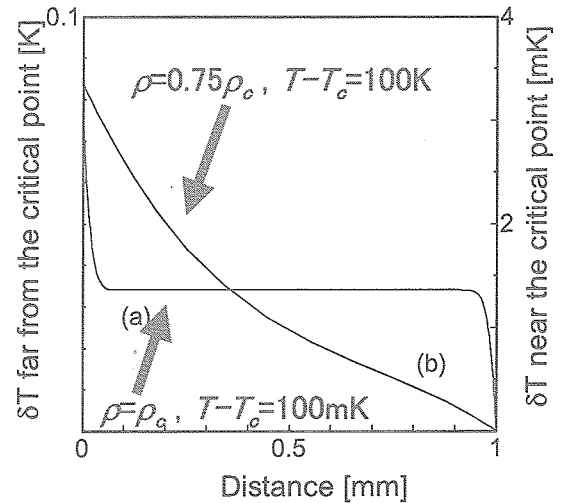


Fig. 3 Temperature profile at $t=1.0$ sec from the simulation results in the case near the critical point (a) and the case far from the critical point (b) for DC heating.

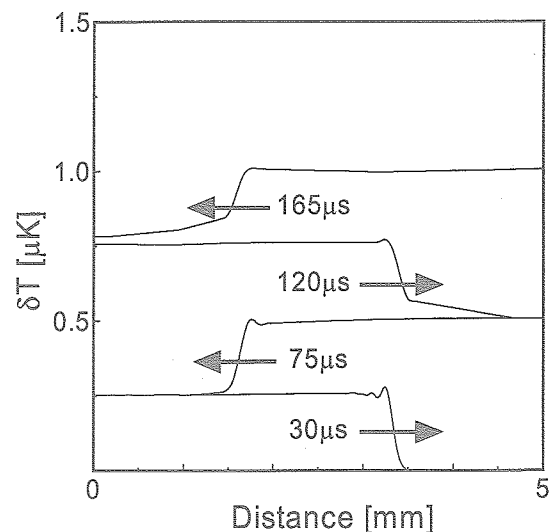


Fig. 4 Microscopic view of traveling heat step from the simulation result of DC heating.

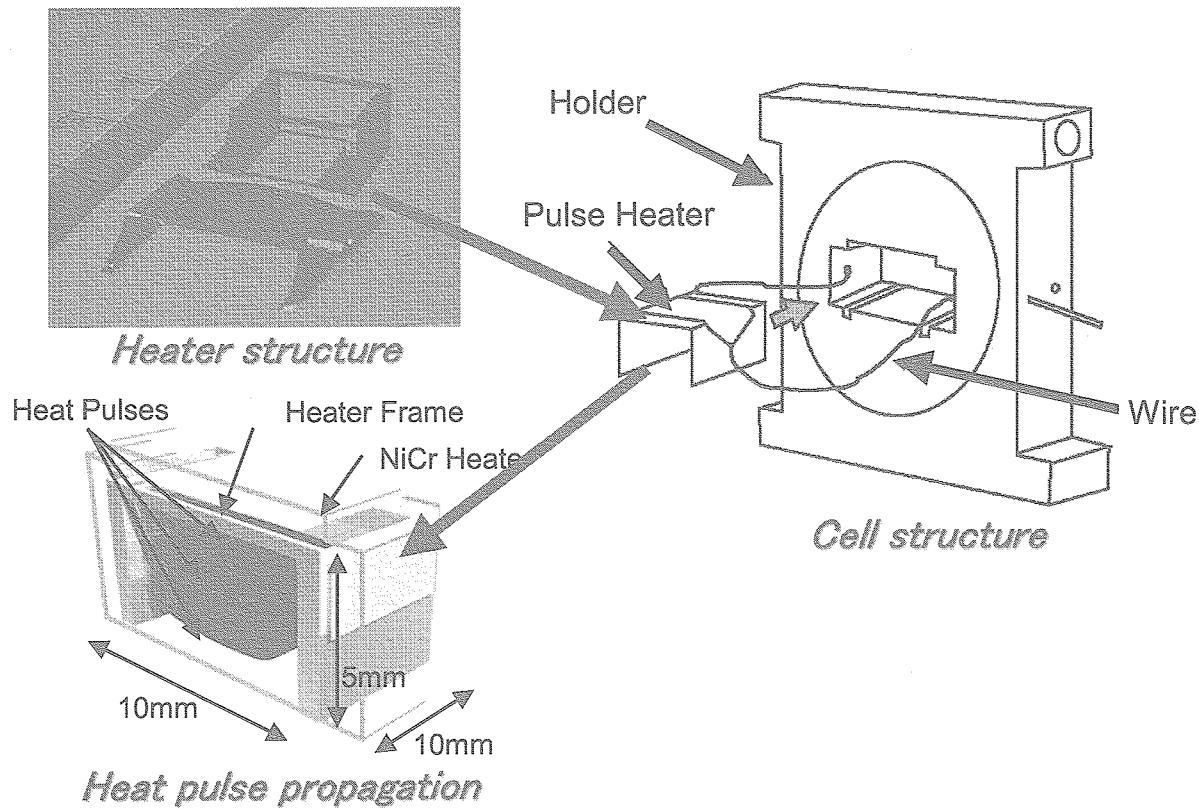


Fig. 5 Schematic of the pulse-heating cell.

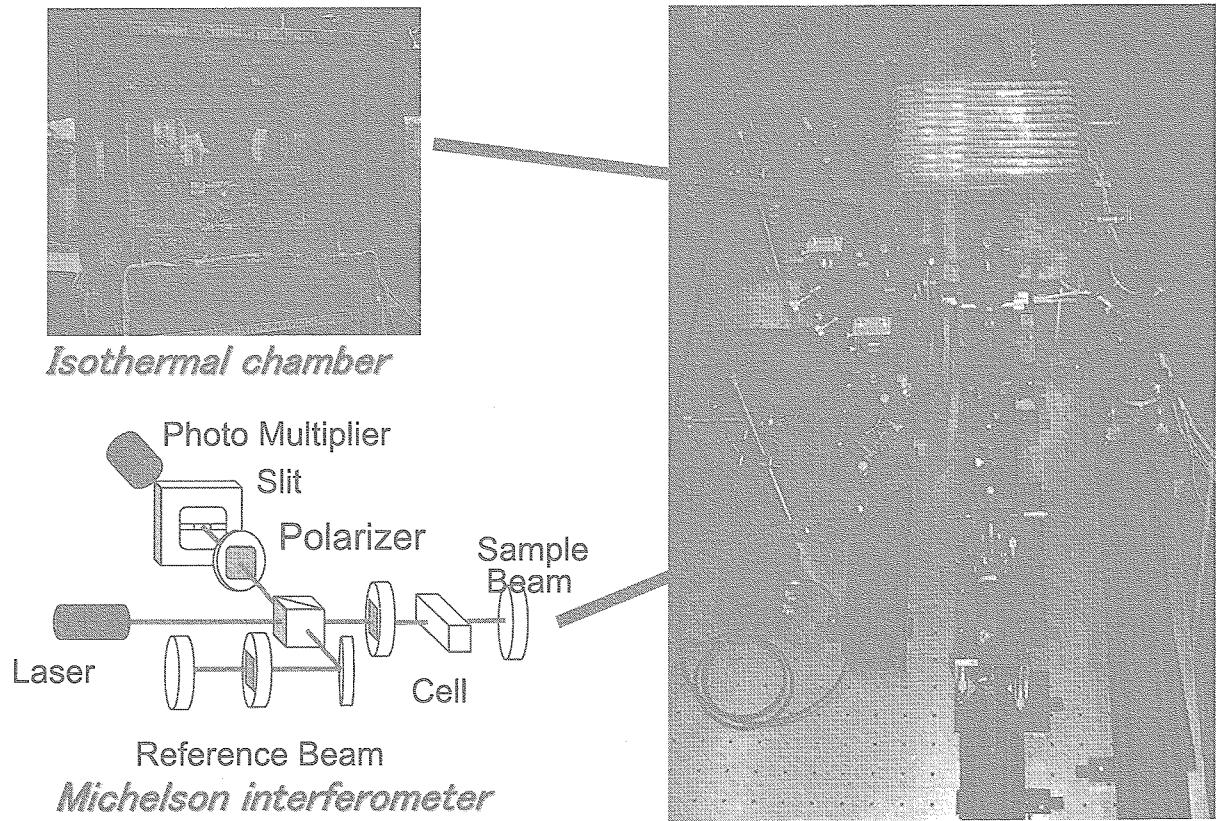


Fig. 6 Experimental Setup.

Table 2 Specifications of the Measurement System

	性能	手法
温度制御	$\pm 1\text{mK}$	・ 三重殻恒温槽
パルス加熱	$1\mu\text{S}$ (緩和時間)	・ $3\mu\text{m}$ 厚 NiCr 箔ヒータ ・ 高速バイポーラ電源
密度計測	10^{-6} 未満	・ マイケルソン干渉計 ・ 高速データ収集(1Mhz、2M サンプル) ・ ノイズ除去(418 回積算処理)

セル高が 5mm 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 Fig. 5 左上部に示す極薄のニクロム箔($3\mu\text{m}$) が用いられ、このヒータに数 μs 通電することで熱パルスを形成し、Fig. 5 左下部に示す様に下面に伝播させた。温度擾乱を低減させるため、Fig. 5 右部に示す銅製ホルダーを光学ガラスで挟んだものを実験セルとして用いた。実験セルは Fig. 6 左上部に示す三重殻恒温槽内に設置された。それぞれの殻が温度制御されており、この実験セルおよび恒温槽を用いたことで、 $\pm 1\text{mK}$ の制御分解能を達成し、 10mK の温度設定精度を達成することが出来た。ヒータ通電でセル内に発生した熱パルスは、密度変化を伴っており、これを Fig. 6 左下部に示すマイケルソン干渉計および高感度光電子増倍管で検出・計測した。実験装置群の全景を Fig. 6 右部に示す。その他、短時間の熱パルスに追従するため、 $1\mu\text{s}$ の特性時間を目安とした計測系を構築した。計測データには積算処理などを施し、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 Table 2 に示す。

実験結果の一例を Fig. 7 上部に示す。密度はほぼ臨界値、温度は 100mK 高いと見積もられている。ヒータで形成された熱パルスが実験セル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。確認のため無重力下での一次元数値解析を行った結果を Fig. 7 下部に示す。実験の方が減衰が早くベースラインの乱れが見られる。これは、実験セル形状が一次元の仮定に理想的ではないため、2次元、3次元効果によりセル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ている。ただし、最も重要なパルス間隔はよく一致している。Fig. 8 にパルス間隔から見積もった音速の温度依存性を示す。臨界点からやや遠い温度域では実験と数値解析がよい一致を見せており、音速で伝播する熱パルスの捕獲に成功したことを相補的に示している。先に述べた“ピストン効果”そのものと言って良い温度ステップは、このパルスが連なって構成されておいると考えることもできる。よってこの実験により、“ピストン効果”の

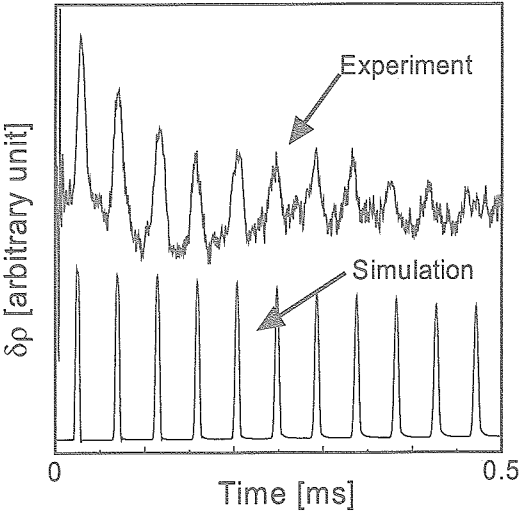


Fig. 7 Results from the experiment and the simulation at $\rho = \rho_c$ and $T - T_c = 100\text{mK}$.

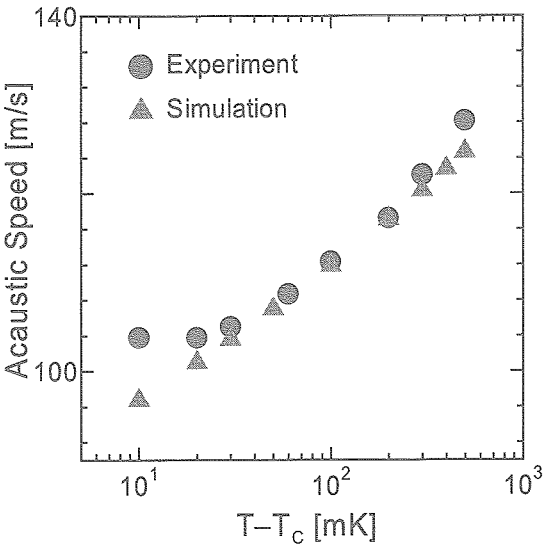


Fig. 8 Acoustic speeds versus temperature.

素過程を観察できた、すなわち“ピストン効果”の直接観察に成功したとすることができる。

一方で Fig. 8 は臨界点にかなり近い温度域で実験、解析の結果が乖離することも示している。臨界点現象は温度差のべき乗に従うことが理論的に知られており、これは解析結果側と一致している。よって現段階では実験側に誤差が含まれていると考えており、これは重力の影響によるもので、地上実験の限界を示していると考えている。

4. おわりに

まず地上実験によって“ピストン効果”直接観察に挑み、音速を精密に測定し、数値解析とよく一致する結果を得た。このことは我々が臨界点近傍現象に対する高精度測定が可能な実験系を手に入れたことを示している。また重力の影響等を明確にすることに成功し、地上実験の限界を検討するため有効な知見を得た。観察されたパルスは“ピストン効果”の素過程そのものであり、臨界点近傍流体の特異性が凝縮していると考えられる。今後は2次元数値解析によって多次元効果が実際に発生していることを検証するとともに当効果抑制のために実験セルの改修などをおこなって実験精度の向上に務め、この過程で新たな発見があると期待している。また、DC加熱実験による温度ステップ形成という量子的な振る舞いの検出にも挑戦している。本研究は最終的には宇宙実験を目指しているため、現在装置の小型化にも取り組んでおり、実験の限界はもとより、理論限界に迫りたいと考えている。

なお、この原稿は日本マイクログラビティ応用学会誌に投稿された解説記事(Vol.21, No.2, p. 165-169, 2004)とほぼ同一の内容のものである。

参考文献

- [1] K. Nitsche and J. Straub: Proc. 6th European Symposium on Material Sciences under Microgravity Conditions, Vol. SP-256, p. 109, 1987.
- [2] A. Onuki, H. Hao and R. A. Ferrell: Phys. Rev. A, Vol. 41, p. 2256, 1990.
- [3] B. Zappoli, D. Bailly, Y. Garrabos, B. Neindre, P. Guenoun and D. Beysens: Phys. Rev. A, Vol. 41, p. 2264, 1990.
- [4] J. Straub, L. Eicher and A. Haupt: Phys. Rev. E, Vol. 51, p. 5556, 1995.
- [5] K. Ishii, T. Maekawa, H. Azuma, S. Yoshihara and M. Ohnishi: Applied Phys. Letters, Vol. 72, p. 16, 1998.
- [6] Y. Masuda, T. Aizawa, M. Kanakubo, N. Saito and Y. Ikushima: Int. J. Heat and Mass Transfer, Vol. 45, p. 3673, 2002.
- [7] T. Maekawa, K. Ishii, M. Ohnishi and S. Yoshihara: Adv. Space Res. Vol. 29, p. 589, 2002.
- [8] M. Ohnishi, S. Yoshihara, M. Sakurai, Y. Miura, H. Kobayashi, M. Ishikawa, J. Kawai, K. Honda and M. Matsumoto: 54th IAC, IC-03-J_1_05, 2003
- [9] N. C. Patel and A. S. Teja: Chemical Engineering Science, Vol. 37, p. 463, 1982.