

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月6日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H02315

研究課題名(和文) 超高温における表面酸化と相変化が連成した動的濡れの物理

研究課題名(英文) Wetting dynamics coupling with liquid-vapor phase change and surface oxidation at high temperature

研究代表者

高田 保之 (TAKATA, Yasuyuki)

九州大学・工学研究院・教授

研究者番号：70171444

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,200,000円

研究成果の概要(和文)：噴霧冷却は急速冷却技術の本命であるにもかかわらず、その物理機構は未解明のままである。本研究では、表面酸化の影響を考慮しつつ高温域での固液接触の素過程の解明を目指して、(1)固液接触および動的濡れ観察、(2)非定常熱伝導モデルによる酸化被膜の影響評価を行った。酸化被膜の熱拡散率、比熱および密度のデータを用いて、固液接触時の固液界面温度を非定常熱伝導モデルにより推定したところ、酸化被膜の種類に関わらず約250℃で急冷が開始されることが新たな知見として得られた。この温度は熱力学的過熱限界温度以下であり、見かけ上高温で急冷が開始される場合でも液滴が衝突する際の固液界面温度は約250℃である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液体の相変化を利用した高温面の冷却は鉄鋼業における冷却プロセスなど工学の基盤技術である。これまで水による高温面の冷却過程において急速冷却を開始する、いわゆるクエンチ点における高温面の温度は300～600℃の範囲に分散し、統一的な理解ができなかった。600℃という高温は液体が熱力学的過熱限界温度(約320℃)をはるかに超え、この状態で水が液体で存在できるはずがないというのが学界における否定的な意見であった。本研究で、酸化被膜の影響を考慮した上で非定常熱伝導モデル固液界面温度を推定したところ、その値は約250℃となることが分かった。これはこれまでの論争に決着をつけることができる研究成果である。

研究成果の概要(英文)：The objective of the present study is to make clear a mechanism of solid-liquid direct contact at high temperature for spray cooling process taking the effect of oxide layer of metal surface into account. We mainly conducted (1) observation of solid-liquid contact and dynamic wetting, and (2) evaluation of the effect of oxide layer by making use of transient heat conduction model. We analyzed the experimental data for the temperature at quenching point using thermal diffusivity, specific heat and density of oxide layer and found that the interface temperature at quenching point is 250C in all experiments with different oxide layers.

研究分野：熱工学

キーワード：伝熱機器 液滴 酸化被膜 熱物性 熱伝達 噴霧冷却 濡れ性

1. 研究開始当初の背景

液体の相変化(沸騰・蒸発)を利用した高温面の冷却は工学の基盤技術であり、鉄鋼業における冷却プロセス、原子炉事故時の緊急冷却、電子機器の高発熱密度化などの要求に対応してその高性能化が望まれ続けている。高温面を液体で冷却する過程は、定性的には図1のような曲線を描く。すなわち、膜沸騰領域から冷却が開始され、徐々に温度が低下するとC点で核沸騰に遷移し、それ以後は急速に冷却される。C点は急冷開始点またはクエンチ点と呼ばれる。被冷却面が親水面や粗面の場合には、通常面よりも短い時間でC点(C'、C''点)に至り急冷を開始するが、この過程には2つの冷却パターン(図1のA,B)が存在する。タイプAのように、C点が高温側に移動する場合と、タイプBのようにC点発生の温度は変わらないものの膜沸騰域で冷却が加速され場合である。いずれも点線で示すように、より短い時間で冷却を完了することができる。一般には、表面の状態に応じてタイプA、Bが混在したような急速冷却が生じる。

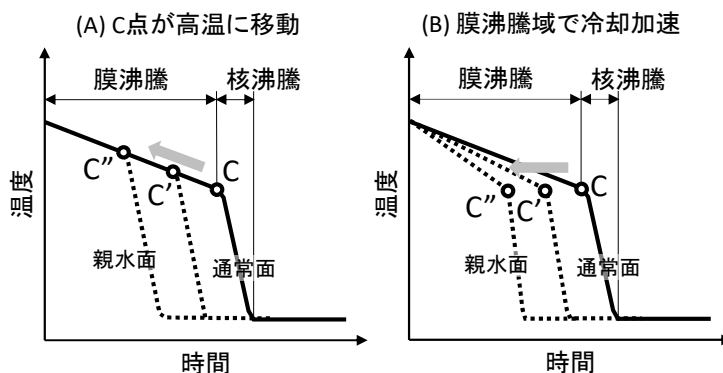


図1 高温面の冷却曲線
(急速冷却に至る2つのパターン)

鉄鋼の冷却プロセスを例にとると、表面の酸化層の影響で濡れ性や熱物性が変化することによりC点は200K以上も変動するため、きめ細かな冷却制御が困難となる。特に固液界面の温度が熱力学的過熱限界温度(流体が過熱液体状態で存在しうる上限の温度)以上の超高温で実際に固液接触が起こりえるのか、という根本的な疑問がある。しかしながら、プール沸騰と異なり、噴霧系での固液接触の有無を判定するのは非常に困難である。また超高温の場合は、表面に酸化膜が成長し、これが表面の濡れ性や熱物性を変化させるため、さらに現象が複雑となる。これらの未解決の問題を実験的に明らかにすることが、図1のC点発生のメカニズムの科学的解明への道筋であり、冷却技術の向上に大きく寄与するはずである。

2. 研究の目的

本研究では、図1の急冷開始点(C点)に至るまでの液滴と高温面の相互作用に焦点を当てて、固液界面における物理現象を調べて、C点がどのようにして決定されるのかを明らかにする。この目的を達成するために、主に以下の2項目について研究を実施する。

(1) 単一衝突液滴の伝熱機構解明

高速度赤外カメラおよび高速度カメラによる超高感度の微小液滴蒸発測定システムを、C点を超える高温域まで拡張し、蒸発液滴がもたらす高温面の温度変化、熱流束分布、液滴蒸発速度を同時測定することで液滴衝突時の熱伝達を空間的に理解し評価する。

(2) 表面酸化層の影響評価

高温状態で金属表面に成長する酸化皮膜により濡れ性や熱物性が変化し、それが原因でC点が大きく変化する。この影響の定量的な評価を可能にするために、酸化皮膜の熱物性を正確に測定する必要がある。ただし、酸化皮膜の成長状態は環境雰囲気依存するので、それが高度に制御された状態を作り出すための雰囲気制御型高温固体面噴霧冷却試験装置を作成し、酸化皮膜に起因するC点の移動と冷却速度の変化を評価しながら、高温固体面と液滴との熱的相互作用の解明を目指す。

3. 研究の方法

研究目的で記した2つの研究項目それぞれに対する実験系を構築した。

(1) 単一液滴衝突過程観察装置

高温面に衝突する単一液滴の挙動を観察するために、マイクロジェットディスペンサーを利用して図2のような実験系を構築した。これを用いて、液滴が高温面に衝突する際の液滴の最大広がり直径(最大広がり径)および衝突時間の2つの情報を高速度カメラの画像から取得し、温

度との関係調べた。

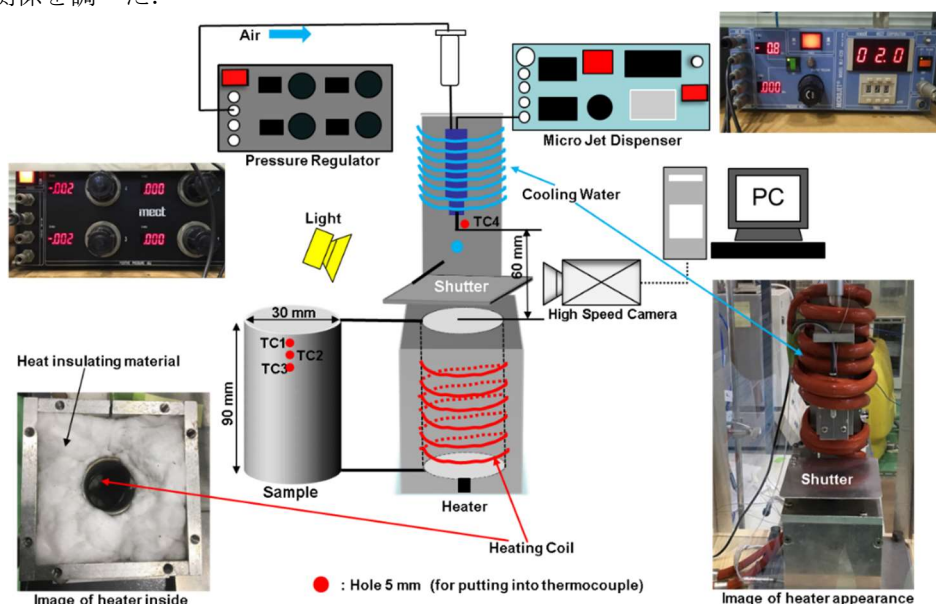







図 2 単一液滴蒸発過程観察装置

(2) 表面酸化層の影響評価

冷却特性に及ぼす表面の酸化層の影響を正しく評価するには酸化被膜の熱物性を把握する必要がある。本研究ではレーザーフラッシュ法により酸化被膜の熱拡散率を測定する。また DSC を用いて比熱の測定も行う。固液接触時の界面温度を評価するには、酸化被膜の厚さ、密度、比熱、熱伝導率が必要である。

実験に使用した伝熱面サンプルを表 1 にまとめた。使用した表面は 5 種類であり、人為的に各種の酸化被膜を付けてある。また、各被膜の厚さ、熱伝導率、熱浸透率など必要な物性値も取得した。実験前後の接触角も測定している。Fe₃O₄ 以外はどのサンプルも実験後の接触角はゼロに近くなっていることが分かる。

表 1 試験用サンプルの一覧

酸化膜	TiO ₂	Cr ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	SiO ₂ -ZrO ₂	Fe ₃ O ₄
写真					
被膜厚さ(μm)	①60, ②180	①50, ②210	①60, ②180	①60, ②190	①60, ②180
熱伝導率 (W/(m・K))	3.39	4.01	2.21	1.09	3.17
接触角 (°)(実験前)	①84, ②63	①83, ②70	①93, ②82	①78, ②82	①71, ②61
接触角 (°)(実験後)	①5.8, ②0	①14.5, ②0	①17.7, ②0	①12.8, ②2.9	①14, ②38
熱浸透率(kJ/m ² s ^{0.5} K)	3.62	4.18	2.92	1.78	3.78
表面粗さ(μm)	①0.768 ②1.224	①0.752 ②0.768	①0.983 ②1.608	①1.406 ②1.232	①0.646 ②0.998

4. 研究成果

図 3 に被膜表面温度と固液接触時間の関係、図 4 に被膜表面温度と最大液滴長を液滴径で割った比との関係を示す。全てのグラフにおいて SiO₂-ZrO₂ はどの温度においても高い値をとった。このことが図 1 において SiO₂-ZrO₂ が最も冷却が早い原因であると考えられる。SiO₂-ZrO₂ 以外の酸化被膜は高温域では低い値をとっており、温度が低くなるにつれて高い値をとる傾向が確認できた。図 3, 4 の横軸は液滴が衝突する直前の定常状態での被膜表面温度である。

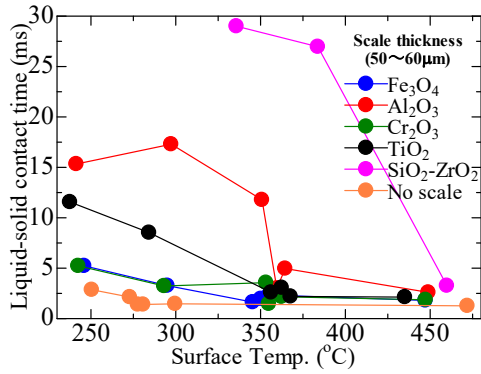


図3 衝突前被膜表面温度と液滴接触時間

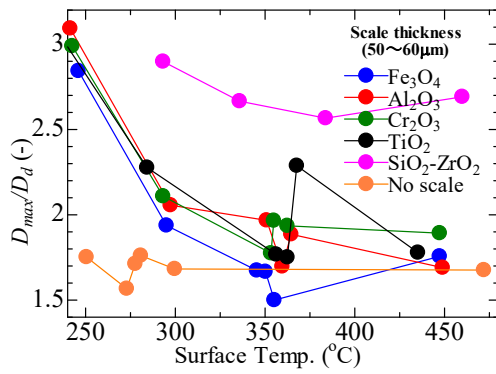


図4 衝突前被膜表面温度と液滴の最大広がり径

液滴が高温面に衝突するときごく短時間の現象を半無限固体の非定常熱伝導で近似すると、界面の温度は

$$T_s = \frac{T_1 \sqrt{\rho_1 c_1 k_1} + T_2 \sqrt{\rho_2 c_2 k_2}}{\sqrt{\rho_1 c_1 k_1} + \sqrt{\rho_2 c_2 k_2}} \quad (1)$$

で与えられる。ここで添字 1 と 2 はそれぞれ液滴と液滴衝突前の被膜表面の値である。検討によれば 1ms 程度の時間で酸化被膜を半無限固体と近似することが可能である。

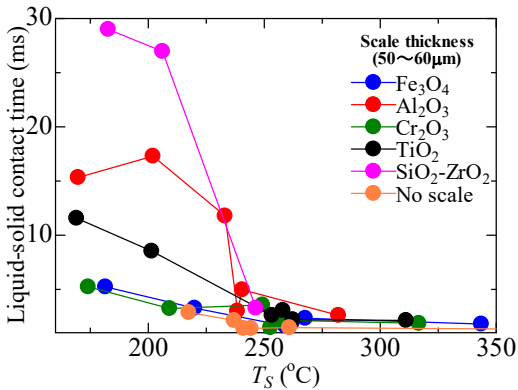


図5 Ts と液滴衝突時間

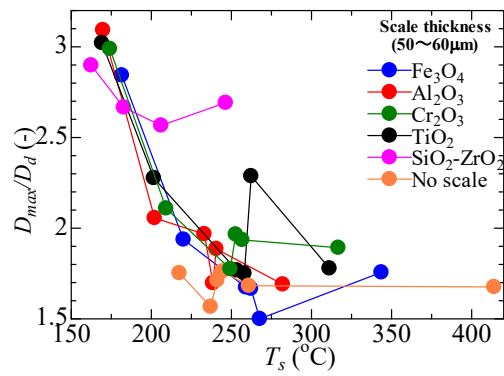


図6 Ts と液滴の最大広がり径

図5と6には、式(1)で求めた横軸に T_s を使って図3と4をプロットしなおしたデータを示す。これらの図から、 $T_s=250^\circ\text{C}$ 付近で、すべての酸化被膜のデータの液滴衝突時間と最大広がり径を整理することができる。すなわち、図3と4ではバラバラであったデータが T_s によって整理することができる。酸化被膜がついている場合は、見かけ上、熱力学的過熱限界温度以上の表面温度でクエンチを開始するが、実際のクエンチ点での固液界面温度は T_s であると考えられることができる。この T_s で整理できるという知見が本研究における一番重要な成果である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計7件)

- ① Deendarlianto, Takata, Y., Kohno, M., Hidaka, S., Wakui, T., Majid, A.I., Kuntono, H.Y., Indarto, Widyaparaga, A., The effects of the surface roughness on the dynamic behavior of the successive micrometric droplets impacting onto inclined hot surfaces, International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol.101, pp.1217-1226, 2016 October
- ② Yutaku Kita, Alexandros Askounis, Masamichi Kohno, Yasuyuki Takata, Jungho Kim, Khellil Sefiane, Induction of Marangoni convection in pure water drops, Applied Physics Letters, Vol.109, 171602, 2016 October
- ③ Askounis, A., Kita, Y., Kohno, M., Takata, Y., Koutsos, V. & Sefiane, K., Influence of Local Heating on Marangoni Flows and Evaporation Kinetics of Pure Water Drops, Langmuir. 33, 23, p. 5666-5674, 2017 Jun
- ④ Yutaku Kita, Yuya Okauchi, Yuki Fukatani, Daniel Orejon, Masamichi Kohno, Yasuyuki Takata, Khellil Sefiane, Quantifying vapor transfer into evaporating ethanol drops in a humid atmosphere,

- Physical Chemistry Chemical Physics, Vol. 20, pp.19430-19440, 2018 June
- ⑤ Deendarlianto, Yasuyuki Takata, Arif Widyatama, Akmal Irfan Majid, Ardi Wiranata, Adhika Widyaparaga, Masamichi Kohno, Sumitomo Hidaka, Indarto, The interfacial dynamics of the micrometric droplet diameters during the impacting onto inclined hot surfaces, International Journal of Heat and Mass Transfer, Volume 126, Part A, Pages 39-51, 2018 November
 - ⑥ Tejaswi Josyula, Zhenying Wang, Alexandros Askounis, Daniel Orejon, Sivasankaran Harish, Yasuyuki Takata, Pallab Sinha Mahapatra, and Arvind Pattamatta, Evaporation kinetics of pure water drops: Thermal patterns, Marangoni flow, and interfacial temperature difference, Physical Review E, Vol.98, No.5, 052804, 2018 November 26
 - ⑦ Yutaku Kita, Coinneach Mackenzie Dover, Alexandros Askounis, Yasuyuki Takata, Khellil Sefiane, Drop mobility on superhydrophobic microstructured surfaces with wettability contrasts, Soft Matter, Vol. 14, pp. 9418-9424, August 2018

[学会発表] (計 5 件)

- ① 高田保之, 永井二郎, 光武雄一, 次世代鉄鋼材料創生技術の研究, 特定推進研究特別ワークショップ, F141, 第 55 回日本伝熱シンポジウム, 2018 年 5 月 29 日~2018 年 05 月 31 日, 札幌市
- ② 塚本健吾, 日高澄具, 福田啓之, 高田保之, 酸化皮膜を表面に溶射した高温面に衝突する単一液滴の挙動観察, 日本機械学会 熱工学コンファレンス 2014, A113, 2018 年 10 月 20 日~2018 年 10 月 21 日, 富山
- ③ 酒井諒太, 日高真澄, 河野正道, 芹沢良洋, 今村拓哉, 高田保之, 金属表面酸化皮膜の高真空下における加熱冷却が表面濡れ性に及ぼす影響, 第 39 回日本熱物性シンポジウム, D314, 2018 年 11 月 13 日~2018 年 11 月 15 日, 名古屋市
- ④ 高田保之, 河原朋美, 日高澄具, 高橋厚史, 急冷開始温度を理解するためのスケールの熱物性評価, 日本鉄鋼協会圧延理論部会, 2018 年 11 月 30 日, 北九州市
- ⑤ 喜多由拓, Askounis Alexandros, 張 華誠, 迫田直也, 高田保之, Sefiane Khellil, 局所加熱面上の液滴蒸発および熱流動に関する研究, B225, 第 56 回日本伝熱シンポジウム, 2019 年 5 月 29 日~2019 年 5 月 31 日, 徳島市

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高田保之 (TAKATA YASUYUKI)
九州大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号: 70171444

(2) 研究分担者

高橋厚史 (TAKAHASHI KOJI)
九州大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号: 10243924

河野正道 (KOHNO MASAMICHI)
九州大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号: 50311634

(3) 研究協力者

Khellil Sefiane
エディンバラ大学・教授

Jungho Kim
メリーランド大学・教授