

令和 5 年 6 月 16 日現在

機関番号：13102

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K14091

研究課題名（和文）天然氷の成長過程に学ぶ～放射冷却を用いた単結晶氷の製氷技術の検討～

研究課題名（英文）Learning from the Growth Process of Natural Ice ~Examination of Ice Making Technique for Single Crystal Ice Using Radiation Cooling~

研究代表者

杉原 幸信（SUGIHARA, Yukinobu）

長岡技術科学大学・工学研究科・助教

研究者番号：00824335

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 900,000円

研究成果の概要（和文）：天然氷の成長過程を再現する放射冷却装置を構築し、無気泡単結晶氷を安定的に製造する技術開発に挑戦した。特に、初晶が薄い氷板へ成長する製氷初期に着目し、製氷初期に発生する微気泡群の抑制に取り組んだ。高電圧パルス印加による過冷却解消が微気泡群析出に及ぼす影響を検討した結果、本実験条件の範囲では、印加電圧6000V以上であれば過冷却の解消を促進させるのに十分であった。9000Vを印加した場合において過冷却度2℃以内で安定して過冷却を解消し、小さい初晶成長速度を実現した。すなわち、9000Vの高電圧パルス印加が、製氷初期における微気泡群析出抑制に有効であった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

氷の性質に関する基礎研究を進めるためには、実験の標準試料となる直径10 cm以上の無気泡単結晶氷が必要となります。日常的に目にする氷はたくさんの結晶から構成されている多結晶氷と呼ばれるものです。多結晶氷を基礎的な研究に使うと、実験で設定した条件のほかに、多結晶氷の性質そのものが実験結果に影響します。そのため、氷の基礎研究を進めるためには、標準試料を定めることが望ましいです。本研究ではこのような要望に応えるべく、天然氷の成長過程に学んだ放射冷却装置を構築し、それに高電圧パルス印加装置を組み合わせることで、氷の基礎研究に使える無気泡単結晶氷を安定的に製造する技術の開発に挑戦したものです。

研究成果の概要（英文）：This study attempted to construct a radiation cooling system that reproduced the growth process of natural ice, and to develop a technology for the stable production of bubble-free single-crystal ice. In particular, the suppression of microbubble swarms that occur in the early stages of ice production was tackled. The effect of supercooling elimination by the application of high-voltage pulses on the deposition of microbubble swarms was investigated. The results showed that an applied voltage of 6000 V or higher was sufficient to promote the resolution of undercooling in the range of the present experimental conditions; when 9000 V was applied, the undercooling was resolved stably within 2 °C of the degree of undercooling and a small initial crystal growth rate was achieved. In other words, the application of a high voltage pulse of 9000 V was effective in suppressing the precipitation of microbubble groups in the early stages of ice making.

研究分野：雪氷工学

キーワード：放射冷却 製氷技術 高電圧パルス印加 過冷却

1. 研究開始当初の背景

本研究の背景は、標準試料となる直径 10 cm 以上の気泡が含まれていない単結晶氷を雪氷研究者へ安定して供給することにある。例えば、東京スカイツリーに付着した氷の落下対策につながる着氷技術に関する研究を進めるためには、標準試料となる結晶方位や粒径の整った氷、理想的には単結晶氷が必要となる。しかし、品質の安定した単結晶氷の供給が困難なため、試験方法が定まっていない(注釈：結晶方位や結晶粒径によって着氷力が変化するため、多結晶氷ではなく単結晶氷を標準試料としたい)。過去には氷河から採取した直径 20 cm 以上の単結晶氷を標準試料とした氷の基礎研究例があるが、環境への負荷や安定した供給を考えると、現代では自然界から単結晶氷を採取する方法は現実的ではない。また、現在の工業製氷に目を向けると、熱伝導が支配的なアイスカン製法や対流熱伝達が支配的なターボ製法で作られた氷は多結晶氷となり、安定して単結晶氷を製氷する技術は確立されていない。

2. 研究の目的

一方、本研究で注目する天然氷は多結晶であるものの、一つ一つの結晶粒径が大きく、結晶方位が整然と揃っている特徴を持つ。天然氷は、高標高地で雲が少なく、直射日光の当たらない日陰の採水池、すなわち放射冷却が優位な環境で製氷される。したがって、放射冷却による氷結晶の成長メカニズムを解明し、工業製氷技術に導入できれば、単結晶氷の安定供給を実現できると考える。そこで本研究の目的は、天然氷の成長過程を人工的に再現する放射冷却装置を構築し、学術研究に使える直径 10 cm 以上の気泡が含まれていない単結晶氷を安定的に短期間で製造する技術を開発することである。中でも、初晶が薄い氷板へ成長するまでの製氷初期段階において氷内部に析出する微気泡群の抑制に取り組む。

3. 研究の方法

3. 1. 放射冷却による製氷装置

まず、放射冷却による伝熱が優位な環境下で氷を作る装置を作製した。図 1 に放射冷却による製氷装置の概略図を示す。雰囲気温度を 2 °C に設定した低温室内に製氷用の水槽を置き、その上に製氷ユニットを載せる。製氷ユニットは内層と外層に分かれている。内層上面の対角線上に不凍液の入口・出口が設けられており、隣室にある不凍液循環水槽から -15°C の不凍液が供給されている。不凍液により冷やされた内層下面のアルミニウム合金板が水槽内の水道水の熱を奪い、水面に接している外層下面の亚克力板直下から氷が成長する仕組みとなっている。なお、内層と外層の間には 3 mm の隙間があり、これにより放射冷却が優位となる環境を実現している。また、内層と外層の間には結露防止のため窒素ガスを満たしている。

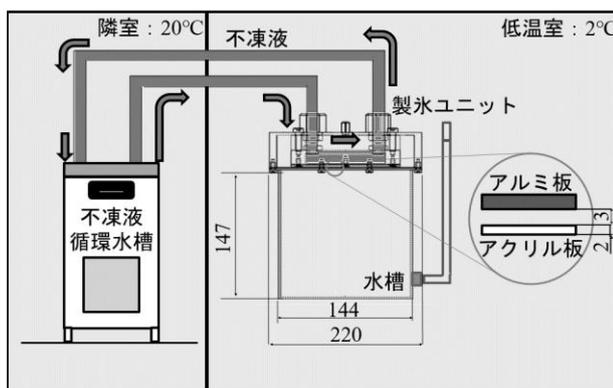


図 1 放射冷却による製氷装置

なお、内層と外層の間には 3 mm の隙間があり、これにより放射冷却が優位となる環境を実現している。また、内層と外層の間には結露防止のため窒素ガスを満たしている。

3. 2. 微気泡析出メカニズムの考察

微気泡群はデンドライト(樹枝状結晶)付近の水中に析出し、氷へ取り込まれる。デンドライトは、液体の過冷却が解消されて結晶成長が始まった際に生じ、過冷却部分の体積が大きいほど大きく、過冷却度が大きいほど速く成長する。また、微気泡群がデンドライト付近に析出するメカニズムは、過冷却が解消した際に結晶成長速度が溶存気体の拡散速度を上回り、結晶の成長面近傍で局所的に溶存気体の濃度が飽和に達するからだと考えられている^{文献1)}。このことから、小さい過冷却度で過冷却を解消し、結晶成長速度を遅くすることで、初晶が薄い氷板へ成長するまでの製氷初期段階において氷内部に取り込まれる微気泡群を抑制できると考えられる

文献 1：前野紀一(1966)：水氷界面における気泡の発生と捕捉, Low temperature science. Series A, Physical sciences, 24: 91-109.

3. 3. 高電圧パルス印加による過冷却の解消

過冷却水に通電することにより過冷却の解消が促進されるという研究例^{文献2)}を参考に、高電圧パルス印加によって小さい過冷却度での過冷却解消を試みる。高電圧パルス印加装置は、コッククロフト・ウォルトン回路によって 1.5 V 直流電源を昇圧する仕組みとした。1.5 V の電源を用いたときに理論上 6000 V、9000 V、12000 V の直流電圧を出力できる装置をそれぞれ作製した。放電用の導線は製氷面、すなわち外層下面の亚克力板の中央かつ水深 3 mm の位置に設置し、密閉された原料水内へ露出させた。過冷却度、すなわち過冷却解消時の水温は T 型熱電対で計測し、放電用導線からおおよそ 20 mm 水平方向へ離れた位置に設置した。電撃は水温が 0°C になった時点を始まりとし、1 分間隔で印加した。そして、初晶の進展を水槽の真下に設置したビデ

オカメラで観察し、ImageJによる画像解析で初晶の成長方向や成長速度を定量的に評価した。
 文献2：七里公毅, 永田隆広 (1978)：水の凍結に及ぼす電気の影響：基礎, 日本結晶成長学会誌5巻, 3号。

3. 4. 氷の透明度評価

結晶成長速度と微気泡群析出の関係を定量的に評価するため、レーザー光を氷に透過させた強度値から局所的な透明度を評価する方法を考案した。透明度測定の概要図を図2に示す。測定点は氷の上面から35mmの場所を30mm間隔で1辺につき4カ所、4辺で計16ヶ所測定した。氷の透明度はレーザーの透過率によって評価し、以下のように定義した。なお、レーザーの波長は、氷に吸収されにくい532nmとした。

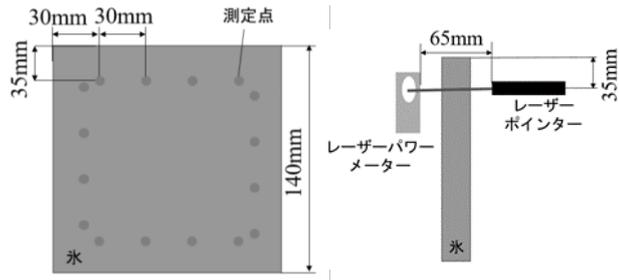


図2 透明度測定概要図

$$\text{透過率} = \text{氷透過時のレーザー光強度} / \text{空気中でのレーザー光強度} \times 100 \quad [\%] \quad (1)$$

4. 研究成果

4. 1. 高電圧パルス印加による過冷却の解消

過冷却図3に氷結晶の核生成時の過冷却度と結晶成長速度の関係を示す。実線は高井ら(1992)^{文献3)}の純水における氷結晶の成長速度の実験式である。図3より、放射冷却が優位な環境における核生成時の過冷却度と氷結晶の成長速度の関係は、高井らの実験式によく一致した。

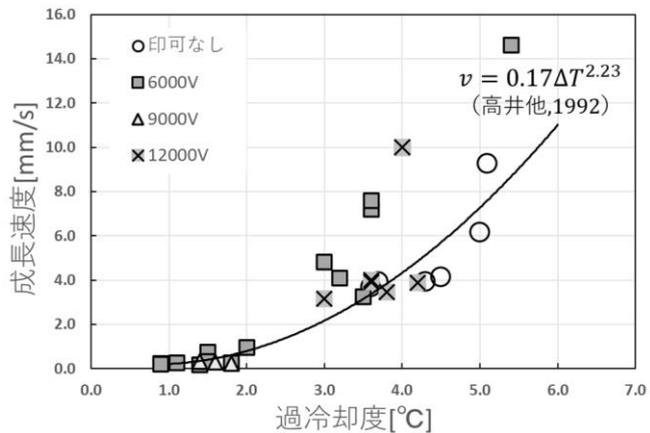


図3 核生成時の過冷却度と結晶成長速度の関係

高電圧パルスを印加しない条件では過冷却度が3.5°C以上で氷結晶の核が生じた。過冷却解消までに要する時間は約54分であった。これに対して高電圧パルスを印加した条件では、過冷却度2°C以下で核生成を起こり、結晶成長速度は1.0 mm/s以下となった。過冷却解消までに要する時間は約25分であった。

したがって、高電圧パルスを印加した条件では、印加しない条件に比べて過冷却が解消するまでの時間および過冷却度が半減することがわかった。また、印加電圧6000V以上であれば過冷却の解消を促進させるのに十分であることがわかった。

文献3：高井陸雄ほか(1992)：各種水溶液から成長する氷結晶，凍結及び乾燥研究会誌，Vol.38, pp.54～57。

4. 2. 氷の透明度評価

高電圧パルスを印加して核生成を促進させた氷(過冷却度2.0°C)と印加なしで核生成が起きた氷2つ(過冷却度3.9°Cと4.5°C)の計3つの氷の透明度を評価した。

それぞれの氷の外観を図4に示す。平面写真から、過冷却度が大きい氷ほど微気泡が中央から放射状に表れている様子がわかる。ここで、氷の内部に微気泡が取り込まれた部分は、白く濁って見える。次に側面写真を見ていく。側面写真の左側が、製氷ユニット外層下面の亚克力板に接触していた水槽の水面に相当する。したがって、氷の成長方向は側面写真の左から右の方向である。図4より、高電圧パルスを印加し過冷却度2.0°Cで核を生成させた氷では、初晶が薄い氷板へ成長するまでの製氷初期に形成された氷に微気泡はほとんど見られない。一方、高電圧パルスを印加せず自然に過冷却を解消させた氷(過冷却度3.9°C)だと製氷初期に形成された氷に微気泡が見えるようになり、過冷却度4.5°Cになると雲のように微気泡が群となって析出している様子が観察される。

表1 各過冷却度における氷の透明度

過冷却度 [°C]	透明度 [%]				
	2.0	90.9	90.7	88.4	87.8
86.7		89.0	89.2	88.7	88.7
88.1		86.1	89.0	87.8	分散
88.4		89.8	90.1	89.0	1.6
3.9	86.4	89.5	81.8	88.9	平均
	88.0	88.9	89.2	89.8	87.0
	86.1	85.8	88.9	87.7	分散
	87.0	80.6	86.1	87.3	6.5
4.5	88.2	87.9	79.9	64.3	平均
	61.8	86.8	87.1	84.9	83.0
	84.9	84.6	85.7	85.2	分散
	85.7	86.8	87.1	87.1	60.5

透明度の測定結果を表1に示す。表中の各測定点の透明度と16点の平均値より、過冷却度が大きくなるにつれて透明度が低くなる傾向がわかる。分散を見ても過冷却度にもなって大きくなっており、特に過冷却度4.5℃では、局所的に他の測定点に比べて著しく透明度の低い箇所がある。これは、目視観察で見られる微気泡群が析出している箇所に対応する。

以上より、本実験条件の範囲では、9000Vの高電圧パルス印加が安定して過冷却度2℃以内で過冷却を解消できることがわかった。そして、初晶成長速度を約1.5 mm/s以下とすることが、製氷初期における微気泡群の析出抑制に有効である可能性が示唆された。

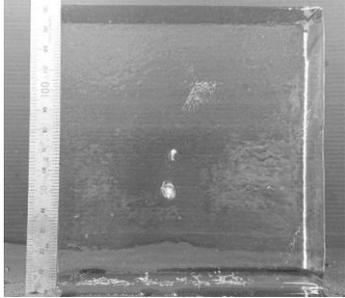
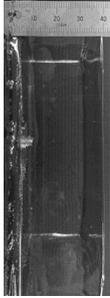
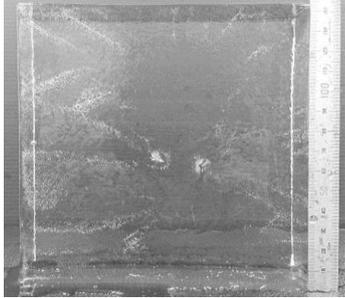
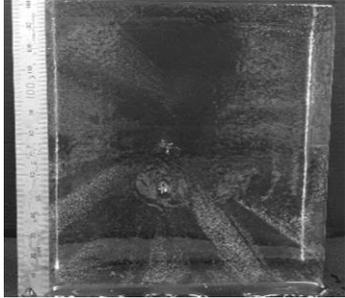
	平面 (成長方向は紙面奥行方向)	側面 (成長方向は左から右)
高電圧パルス 印加あり 過冷却度 2.0℃		
高電圧パルス 印加なし 過冷却度 3.9℃		
高電圧パルス 印加なし 過冷却度 4.5℃		

図4 透明度を評価した氷の外観

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 泉野祥太郎, 吉田匡貴, 杉原幸信, 上村靖司
2. 発表標題 放射製氷において製氷面の温度勾配が初晶成長に及ぼす影響
3. 学会等名 2021年度（公社）日本雪氷学会北信越支部 研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉田匡貴, 杉原幸信, 上村靖司
2. 発表標題 放射冷却による高品質製氷の実用化 -その2 高電圧パルス印加による過冷却解消促進と微気泡群抑制-
3. 学会等名 雪氷研究大会（2021・千葉 - オンライン）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉田匡貴, 杉原幸信, 上村靖司
2. 発表標題 放射冷却による高品質製氷の実用化：微気泡群の発生抑制
3. 学会等名 第37回寒地技術シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉田匡貴, 岡本忠次, 藤崎颯太, 杉原幸信, 上村靖司
2. 発表標題 高電圧パルス印加による初晶形成促進
3. 学会等名 2022年度（公社）日本雪氷学会北信越支部 研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤崎颯太, 吉田匡貴, 杉原幸信, 上村靖司
2. 発表標題 放射冷却による高品質製氷の実用化 - その3 微気泡群発生抑制に有効なパルス電圧範囲 -
3. 学会等名 雪氷研究大会 (2022・札幌)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 製氷装置	発明者 上村靖司、杉原幸信	権利者 国立大学法人長岡技術科学大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-165278	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------