

平成 30 年 4 月 20 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05825

研究課題名(和文) 高温固体に入射する水溶性高分子ポリマー水溶液液滴の固液界面現象と被膜形成の素過程

研究課題名(英文) Transient contact behavior of aqueous polymer solution droplets with hot solid and formation process of polymer enriched-layer

研究代表者

藤本 仁 (FUJIMOTO, HITOSHI)

京都大学・エネルギー科学研究科・准教授

研究者番号：40229050

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：金属材料を強化する焼き入れ冷却では、水溶性ポリマー水溶液が冷媒として用いられることがある。この冷媒によるスプレー冷却特性の素過程を解明するため、加熱固体面に衝突する単一液滴の衝突挙動、液滴と固体間の熱移動、および液滴衝突途中で固体面に形成されるポリマー被膜を可視化実験により研究した。その結果、ポリマー被膜はその熱分解温度以上に加熱された固体面でも一時的に形成されることがあること、また被膜形成から消失までの時間は固体面温度や固体の熱物性の影響を受けることが明らかになった。さらに、ポリマー被膜は液滴と固体間の熱移動を妨げる熱抵抗層として作用し、焼入冷却時の製品不良を軽減することを確認した。

研究成果の概要(英文)：In the metal forming industry, quench hardening is commonly used to strengthen steel products by rapidly cooling hot materials with spray jets. One of the typical coolants is an aqueous polymer solution. During the hardening process, several phenomena occur simultaneously, namely, coolant boiling, separation of the polymer from the aqueous solution, and formation of a polymer-enriched layer on the solid surface. We developed experimental methods to observe these phenomena and explored that polymer-enriched layer formed temporarily at substrate temperatures higher than the temperature range for thermal decomposition measured by the thermogravimetric curve. The lifetime of this temporary polymer-enriched layer decreased as the substrate temperature increased. The lifetime was also influenced by the type of solid substrate. In addition, we found that aqueous polymer solution reduced heat transfer between droplets and substrate in some temperature range of solid.

研究分野：熱流体工学

キーワード：aqueous polymer boiling heat transfer flow visualization spray cooling droplet dynamics

1. 研究開始当初の背景

鉄鋼材料の製造では、製品の高強度化を目的とする熱処理「焼入れ」が広く利用されている。焼入れでは、約 800 に加熱した材料を、浸漬冷却法や、本研究で対象とする噴霧冷却法で急冷し、マルテンサイトと呼ばれる高強度な無拡散変態組織を発現させる。マルテンサイト変態発現後は、すみやかに強冷却を終了させ、熱応力に起因する局所破壊「焼割れ」や変形による形状不良の発生を防止する必要がある。

水溶性高分子ポリマー水溶液は焼入れ冷却の冷却媒体の一つで、最近適用例が増えつつある。この冷媒は、材料の焼き割れが起きやすい温度領域で冷却面にポリマー被膜を形成し、それが熱抵抗層となることで、破壊を抑制する効果があるとされている。しかし、噴霧冷却時の高分子ポリマー水溶液の流動・伝熱のメカニズムに関する基礎研究はほとんどなされておらず、ポリマー被膜形成機構や破壊抑制効果は未解明であった。これらが明らかになれば、より効果的な焼き入れ冷却条件の決定が可能になると考えた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、水溶性高分子ポリマー水溶液液滴を高温固体面に衝突させ、そのときの变形挙動と固液界面で起こる物理現象、およびポリマー被膜の形成プロセスを実験によって明らかにすることと、固体面の温度履歴を計測することで、被膜の効果を明らかにすることにある。また、固体面温度や液滴衝突速度などの諸因子が、被膜形成や熱伝達量に及ぼす影響を調査することも研究の目的とした。

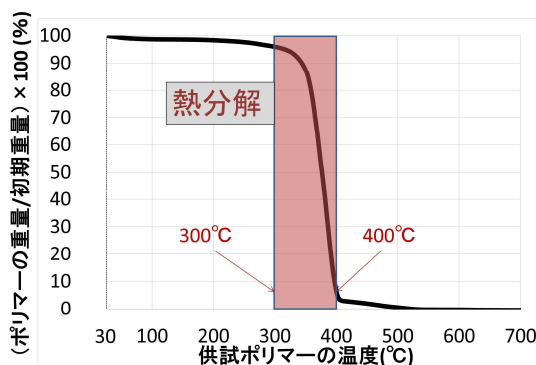


図1 供試ポリマーの熱重量曲線

3. 研究の方法

研究は2種類のラボ実験により遂行した。一つは、透明なサファイアプリズムに衝突する液滴の变形挙動とポリマー層形成過程を観察する可視化実験で、もう一つは加熱ステンレス箔にポリマー液滴を衝突させたときの变形挙動と固体の過渡的冷却プロセス計測する実験である。実験装置および観察手法は本研究で開発した。供試液体は、分子量約 20,000 のポリオキシエチレンポリプロピレ

ングリコールを水で希釈した水溶液で、希釈濃度は5または10重量%である。図1は供試ポリマーを常温から700まで、毎分5で加熱した場合の熱重量曲線である。供試ポリマーは300~400に加熱されると、低分子の気体に熱分解し、重量の急激な低下が起こる。ただし、この曲線はゆっくりした加熱条件下での結果であるので、液滴と固体との突然接触による急加熱状態での熱分解プロセスに直接適用できるものではない。

4. 研究成果

(1) 液滴衝突変形挙動及び固液接触挙動の高時空間精度観察手法の開発

ポリマー被膜形成過程の解明には、固液界面接触状況と液滴の变形特性を同時観察する必要があった。そのような実験を可能にするために、本研究代表者が開発したMultidirectional flash photography法を拡張し、かつ高精度化した。具体的には3台のデジタルカメラと、4台のマイクロフラッシュを、3種類の異なる光学手法で同期撮影する装置を開発した。装置や観察手法の改良は継続的に行い、その詳細は、「5. 主な発表論文等」の、雑誌論文、および学会発表、で公表した。

図2は300に加熱した透明なサファイアプリズムに、直径2.4mmの10wt%ポリマー液滴を1m/sで衝突させた場合の観察結果である。図中に液滴衝突後の経過時間を示し、上段および中段の写真が液滴形状、下段が固体と液体の接触状況である。下段画像の暗部が固液接触領域である。固体は水の沸騰温度より遥かに高いが、ポリマーの熱分解がほとんど起こらない温度であるので、固液接触が発生する。また、液滴は衝突後分裂・飛散後も、固液接触部は観察された。これがポリマー被膜である。

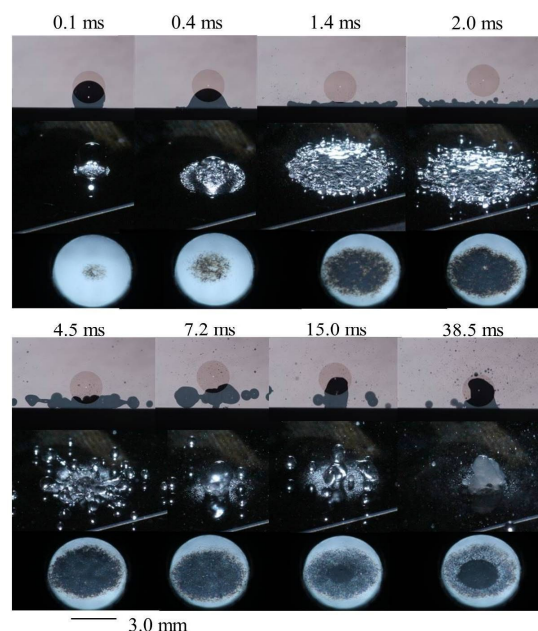


図2 観察結果の一例(固体面温度 300)

(2) 液滴衝突挙動と冷却能評価装置の開発

加熱面から液滴への熱伝達量は、両相の温度や液滴内部の熱流動の影響を受ける。そのため、単一液滴の冷却能評価を行うには、固体の過渡的溫度履歴と液滴変形挙動を同時観察する必要があった。本研究で、(1)で述べた光学観察手法と、量子型センサーを備えた高速応答の放射温度計による点計測を併用する装置を開発した。その詳細は、雑誌論文 で公表した。

(3) 加熱面温度、衝突速度、水溶液濃度、固体の物性などの諸因子が液滴変形挙動やポリマー被膜形成に及ぼす影響

(1)で開発した観察手法を用い、ポリマー被膜形成に及ぼす諸因子の影響を研究した。その結果を以下に列記する。なお、これらの結果は、雑誌論文、学会発表、で公表した。

固体面温度の影響

図3は固体面温度が(a)400 および(b)500 の場合の観察結果である。液滴直径は約2.4mm、液滴衝突速度は約1m/sである。(a),(b)より、固体が図1の熱分解発生領域よりも高い温度に加熱された場合でも、下段の写真で固液接触が発生していることが分かる。400 の固体に水液滴を衝突させた場合は、固液接触はほとんど観察されなかったことから、写真中の暗部は一時的に形成されるポリマー被膜であると推察される。図(b)は(a)に比べて、被膜部分が淡く、かつ被膜形成から消失までの時間が短くなっている。また、固体面温度を600に設定すると、ポリマー被膜は全く形成されなくなった。このことから、被膜量は加熱面温度に多大な影響を受けていることが示された。サファイア-10wt%ポリマー液滴の場合、一時的なポリマー被膜が形成される上限温度は約580であった(図4)。

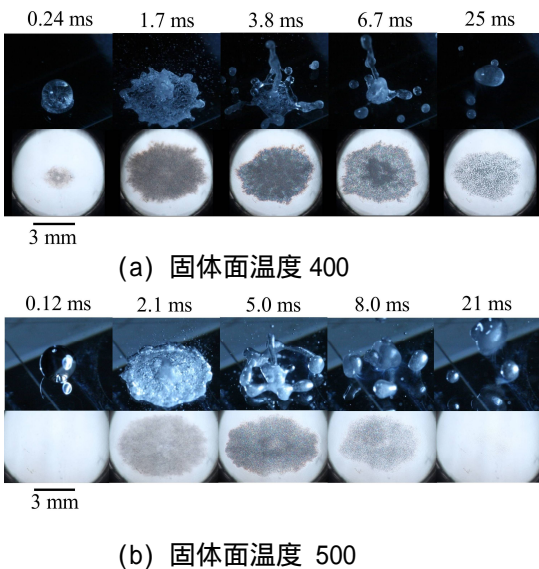


図3 加熱面温度がポリマー被膜形成に及ぼす影響

衝突速度、ポリマー濃度の影響

水のような純物質の液滴衝突では、慣性力と表面張力の比で定義される無次元量、Weber数が重要な支配因子であることが知られている。衝突速度が大きい(すなわちWeber数が大きい)場合、変形の空間的スケールが大きくなり、液滴の分裂が起こりやすくなる。高分子ポリマー水溶液液滴の衝突挙動も、ほぼ同様の結果が得られた。しかしながら、図4に示すように、高温域の一時的なポリマー被膜の消失時間は、Weber数にほぼ無関係であった。また、ポリマー濃度5wt%10wt%の結果を比較したところ、10wt%の方が、一時的なポリマー被膜量は厚くなることが確認された。

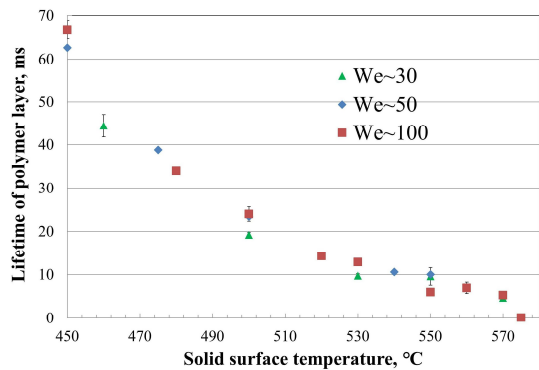


図4 サファイア表面温度とポリマー被膜消失時間の関係

固体物性値の影響

加熱固体を合成石英製のプリズムに変更して同様の実験を行った。この場合も、固体温度が供試ポリマーの熱分解温度より遥かに高く設定しても、一時的なポリマー被膜が形成された。また、そのポリマー被膜は、サファイアと比較して長時間存在した。これは、合成石英とサファイアの熱物性(具体的には、熱伝導率)の差によるものと考えられる。

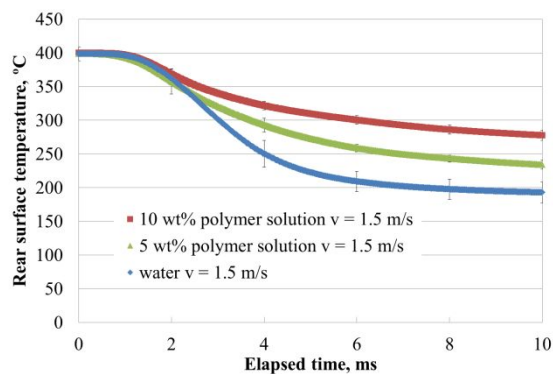
(4) 薄い加熱ステンレス箔に衝突する水溶性ポリマー液滴の熱伝達特性

(2)で説明した実験手法を用いて、液滴衝突途中の温度履歴を計測した。図5は400に加熱した厚さ0.1mmのステンレス箔に、常温の水、濃度5および10wt%のポリマー水溶液液滴を衝突させたときの衝突点裏面の温度履歴を示す。液滴径は約2.4mm、衝突速度は1.5m/sである。いずれの場合も、固体裏面温度は衝突後1msから低下をはじめ、2~4msで大きな温度降下を示し、その後、緩やかかつ単調に減少している。ステンレス箔が薄く、熱容量が小さいため、固体の復熱は起こらない。温度降下量は水が最も大きく、衝突後6msで、初期温度から200以上降下している。温度降下量は10wt%ポリマー水溶液が最も小さく、ポリマーが伝熱量を低減していることが確認できた。

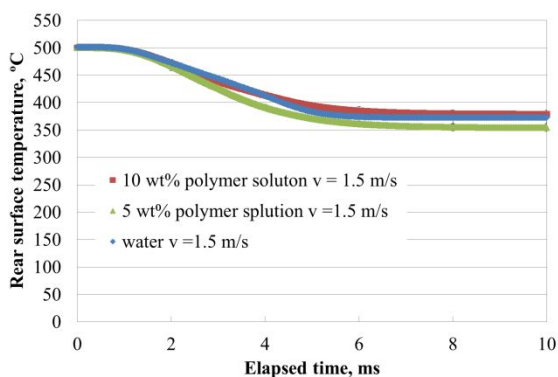
図5(b)は、固体温度が500の場合の結果

を示している。液体の種類にかかわらず温度履歴はほぼ同じであり、ポリマーによる伝熱量低減効果は見られない。同様の実験を種々の固体温度条件で実施し、水とポリマー水溶液の温度降下量を比較したところ、300 ~ 400 °Cではポリマー水溶液による顕著な伝熱量抑制効果が見られた。

これについては、現在も実験を継続しており、今後、研究成果を学術雑誌論文へ投稿し、公表する予定である。



(a) 初期固体温度 400



(b) 初期固体温度 500

図5 液滴衝突時のステンレス箔の温度履歴の一例

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計3件)

Hitoshi Fujimoto, Soushi Yoshimoto, Ken Takahashi, Takayuki Hama, Hirohiko Takuda, "Deformation behavior of two droplets successively impinging obliquely on hot solid surface," *Experimental Thermal and Fluid Science*, 81(2017), 136-146. DOI:10.1016/j.expthermflusci.2016.10.009

Hitoshi Fujimoto, Wataru Obana, Masayoshi Ashida, Takayuki Hama, Hirohiko Takuda, "Hydrodynamics and heat transfer characteristics of oil-in-water emulsion droplets impinging on hot stainless steel foil," *Experimental Thermal and Fluid Science*, 85(2017), 201-212. DOI:

10.1016/j.expthermflusci.2017.02.024

Hitoshi Fujimoto, Shogo Sakane, Takayuki Hama, Hirohiko Takuda, "Transient contact behavior of aqueous polymer solution droplets with transparent hot solid," *Experimental Thermal and Fluid Science*, 96(2018), 1-10. DOI:10.1016/j.expthermflusci.2018.02.026

〔学会発表〕(計5件)

Hitoshi Fujimoto, Kentaro Hamano, Takayuki Hama, Hirohiko Takuda, Impact phenomena of drops of aqueous polymer solution on hot solid, 10th Pacific Symposium on Flow Visualization and Image Processing (国際学会), 2015年06月15日~2015年06月18日, Naples, Italy

濱野顕太郎, 藤本仁, 浜孝之, 宅田裕彦, 岡本隆彦, 高温固体面に衝突する水溶性ポリマー液滴の沸騰現象と皮膜形成, 日本鉄鋼協会秋季講演大会, 2015年09月16日~2015年09月18日, 九州大学伊都キャンパス

坂根将伍, 藤本仁, 浜孝之, 宅田裕彦, 水溶性ポリマー液と加熱固体面の接触による皮膜形成素過程, 日本鉄鋼協会秋季講演大会, 2016年09月21日~2016年09月23日 大阪大学豊中キャンパス

Hitoshi Fujimoto, Masayoshi Ashida, Shogo Sakane, Takayuki Hama, Hirohiko Takuda, AN EXPERIMENTAL STUDY OF COLLISION OF DROPS WITH A HOT SOLID BY MEANS OF THREEDIRECTIONAL FLASH PHOTOGRAPHY, 1st Asian Conference of Thermal Science (国際学会)2017年03月27日~2017年03月30日, Jeju, South Korea

坂根将伍, 藤本仁, 浜孝之, 宅田裕彦, 高温固体面とポリマー水溶液液滴の接触挙動に及ぼす衝突速度の影響, 日本鉄鋼協会秋季講演大会 2017年9月6日~2017年9月9日, 北海道大学

6. 研究組織

(1)研究代表者

藤本 仁 (Fujimoto, Hitoshi)
京都大学・エネルギー科学研究科・准教授
研究者番号: 40229050

(2)研究分担者

宅田 裕彦 (Takuda, Hirohiko)
京都大学・エネルギー科学研究科・教授
研究者番号: 20135528