

令和 4 年 6 月 17 日現在

機関番号：53301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04226

研究課題名（和文）超音波によるスラリーの相変化熱流動センシングと音響相図の学理構築

研究課題名（英文）Thermo-hydrodynamic state measurement of phase change slurry by ultrasonic waves: Theory of acoustic phase diagram

研究代表者

義岡 秀晃 (Yoshioka, Hideaki)

石川工業高等専門学校・機械工学科・教授

研究者番号：80259845

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：スラリーの熱流動が基本となる潜熱蓄熱、材料製造等の応用技術の高度最適化を目指し、物質系の液固相変化（異相率、各相の状態量等）と流動を超音波による音速情報に基づき“見える化”する手法を追究した。塩化ナトリウム水溶液、エタノール水溶液の低温蓄熱用のアイスラリー、ならびにBi-Snの二元合金系の相変化プロセスを対象とした実験を行い、超音波音速と相変化プロセスとの連関について明らかにするとともに、広い温度域に対応可能なリアルタイム高精度状態計測法を実現させた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

熱エネルギー有効利用のための蓄熱技術において、本研究によるスラリー熱流動の音速計測システムは熱媒体の内部状態を瞬時に把握し、IoTや制御系へとつながる有効な手段となる。また、鑄造等の材料製造プロセスにおいて、時系列で生じる諸現象の音速による理解は、プロセス改善による生成物の高品質化に貢献する。学術的には、物質系の相平衡状態を、音速、温度、濃度の3変数で規定する全く新しい相図が創成されたことに意義がある。

研究成果の概要（英文）：We pursued a method to "visualize" the phase change process and flow velocity of the slurry based on the sound velocity information by ultrasonic waves in the aim to advance industrial technologies such as latent heat storage and casting. Experiments were conducted using aqueous solutions of sodium chloride, aqueous solutions of ethanol, and a binary alloys of Bi-Sn system. We clarified the relationship between the ultrasonic sound velocity and the phase change process, and created a real-time high-precision state measurement system that can handle a wide temperature range.

研究分野：熱工学

キーワード：融解凝固 計測 蓄熱 材料製造 超音波 相平衡状態図

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

エネルギー有効利用を目指した潜熱蓄熱プラントから、金属や半導体などの新素材製造、さらには人間の生死に関わる輸液ラインの血液凝固制御に至るまで、相変化スラリー（液体と固体粒子の混合流体）の熱流動が基本となる技術分野は少なくない。これらの生産、製造、処理の現場においては、緻密な温度管理による高度最適化（高機能・高性能化、信頼性・経済性・安全性向上）が課題であり、そのためには現象の本質的な理解とともに、工学上重要な因子である異相充填率、異相成長速度、各相の各種状態量、ならびに流動の速度場を瞬時に“見える化”する革新的メソッドが必要かつ切望されている。

超音波による計測は、医療用エコー検査や超音波流量計に代表されるように、比較的低速域からの流動と異相界面像を、非侵襲リアルタイムでワンパス計測できるメリットがある。

しかしながら、相変化技術において利用される例は見当たらない。その理由は、音響特性と凝固融解プロセスとの相関が明らかにされていないからである。

相選択、相転移、異相成長、溶質再分配、共晶反応等を含む複雑な相変化プロセスを音速情報に基づいて整理することは難解さを伴うが、比較的簡易なパルス音速計測法を用いて、本研究課題により創作される音速-温度-濃度を軸とした相平衡状態図（以下、音響相図）とその学理は、音響学と熱工学、さらには材料、医工学域を架橋し、種々の相変化利用技術における設計開発を根底から支えるツールとなることが期待される。

2. 研究の目的

本研究の目的は、音速-温度(-濃度)を状態変数とした凝固・融解の時間発展の全容を過渡プロセスであるマッシュ域形成を含めて新規の音響相図上で解明し、その相図に基づいて、スラリーの相変化熱流動を超音波テクノロジーにより“見える化”することにある。具体的には、以下の4つの課題を解決することである。

- (1) 広温度域音速計測システムの構築
- (2) 音速変化を伴う凝固・融解現象の全容解明
- (3) 音響相図の学理構築
- (4) 熱移動（異相率，温度，濃度）と流動（流速）の非侵襲リアルタイム計測

3. 研究の方法

上記の目的で示した4つの課題に取り組むための実験装置と方法を次に示す。

(1) 静的な状態計測実験

氷点下から数百度付近までの広範囲の相変化温度域を対象に数種のスラリーを供試した実験を行うため、相変化スラリーの連続生成系と超音波パルス計測法による音速測定系を一体とした計測システム（図1(a)(b)）を組み上げた。試料には、純水，食塩水，エタノール水溶液，Bi-Sn系合金融液を用いた。定常状態において超音波の送受信回路を稼働させ、オシロスコープによる送受波形から、相変化過程における音速変化を解析した。

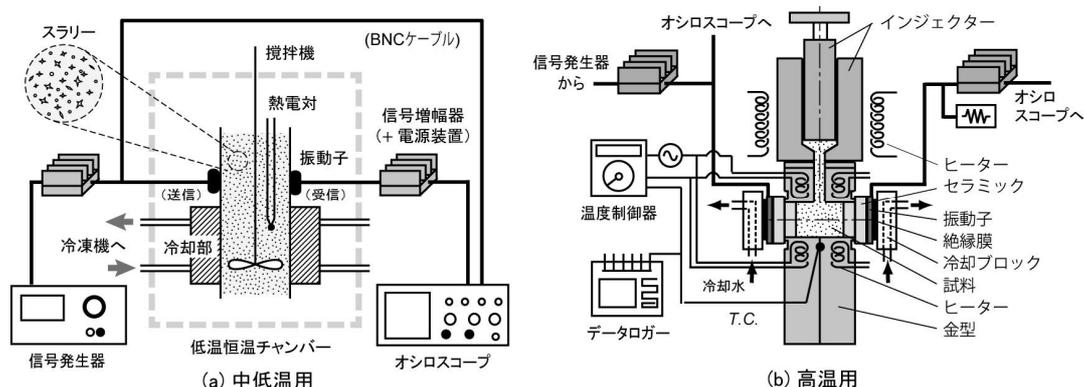
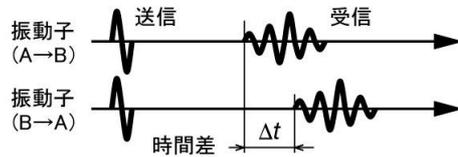
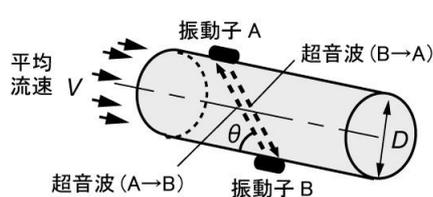


図1 実験装置概要（超音波パルス計測法による音速計測システム）

(2) 流量計測実験

音速値が明らかにされれば、管内流動を伴うスラリーの熱流動解析が進展する。図2に示すように振動子Aを角度θで取り付け、振動面から直線で結んだ対称位置に振動子Bを取り付けて両者で超音波の送受信を行った。これにより、振動子間の送受信信号の時間遅れtが流れ方向に対して異なり、AB間の距離Lと音速Cから平均流速Vが検出され、流路断面積を乗じて流量を求めた。



- 順方向 (A→B) の伝播時間: $T_{AB} = L / (C + V \cos\theta)$
- 逆方向 (B→A) の伝播時間: $T_{BA} = L / (C - V \cos\theta)$

図2 流速(流量)計測の原理

4. 研究成果

(1) 融解凝固現象と音速変化の相関

物質の相変化プロセスと音速挙動との連関に対する知見は、超音波テクノロジーを結晶成長制御や潜熱蓄熱システムに応用する上で貴重な情報となる。

実験で得られた音速と温度の関係を、初期組成 5 wt.% の塩化ナトリウム水溶液の場合を一例として図3に示す。図中の破線は、初期組成に対する液相線温度 [$T_l'(C_i) = -3^\circ\text{C}$] を、二点鎖線は共晶温度を表す。

点Aから点B(音速約 1450 m/s)の液相域においては、音速はほぼ一定値を維持しており、その値は純水に比して若干大きい値をとる。点Aから点Bへの変化の過程から延長される点B'において過冷却が崩壊し、熱力学的に安定なマッシュ状態(固液共存状態)となり、凝固経路は曲線BCに沿って推移する。経路BCにおける温度低下に伴う音速の上昇は、複雑な樹枝状界面を持つ氷晶の成長と、界面からの溶質排出を受けて氷晶間に濃化する溶液濃度の上昇に呼応するものであると考えられる。

次いで、共晶温度 T_e を維持した大きな音速変化 CD は共晶反応に対応する。氷(初晶)の成長限界である点C(音速約 2500 m/s)を始点とする共晶反応が点D(音速約 3800 m/s)で完了し、試料全体が完全固相となれば再び温度が降下し、音速値は点Eへと推移する。

以上、液相域・マッシュ域・固相域の各領域における音速変化が受信波形の持つ意味とともに特徴づけられた。

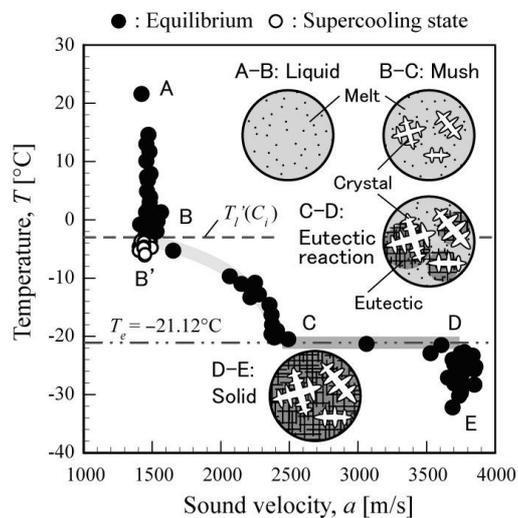


図3 音速と温度との関係
($\text{H}_2\text{O}-5.0 \text{ wt.}\% \text{NaCl}$)

(2) 音響相図の構築

実験結果を踏まえて、相変化プロセスと音速挙動の相関を、模式的な二成分共晶系の相平衡状態図として図4に示す。図4(a)は既往の温度-濃度状態図を、(b)は本研究による温度-音速状態図を示したものである。状態図(a),(b)における矢印は、冷却操作に伴う4つの組成 [$C=0$ (純成分), C_1, C_2, C_e (共晶組成)] に対する状態変化の軌跡を示したものである。温度-濃度

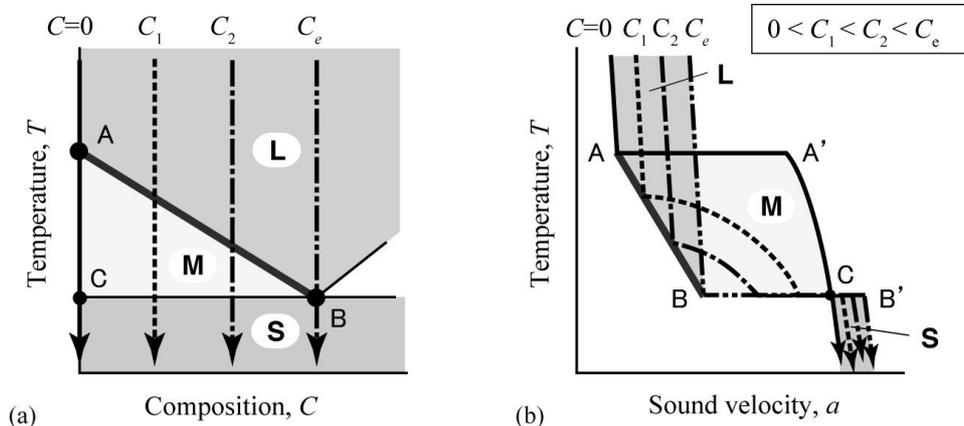


図4 二成分共晶系の相平衡状態図

状態図における氷の融点 A は、温度-音速状態図では線分 AA' となり、共晶点 B は線分 BB' となる。また、温度-音速状態図における液相線 AB の勾配 dT/da の正負は、温度-濃度状態図上の液相線勾配 dT/dC が負の場合には、次のように規定されることが明らかとなった。

$$\text{For } \left(\frac{\partial a_l}{\partial C} \right)_T > 0, \quad \frac{dT}{da} < 0$$

$$\text{For } \left(\frac{\partial a_l}{\partial C} \right)_T < 0, \quad \frac{dT}{da} > 0$$

$$\text{If } \left(\frac{\partial a_l}{\partial C} \right)_T = 0, \text{ then } \frac{dT}{da} = \infty$$

図 5 (a), (b) は、それぞれ (a) 塩化ナトリウム水溶液、(b) Bi-Sn 合金の亜共晶域における相平衡状態図を、温度 (T)-濃度 (C)-音速 (a) を座標軸とした三次元空間に描いたものである。三つの示強性変数を用いて描かれた同図により、液相面 $T_l(C, a)$ 、マッシュ面 $T_m(C, a)$ 、共晶平面 $T_e(C, a)$ 、ならびに固相面 $T_s(C, a)$ からなる発現平衡相の全体像がより鮮明に多次元の情報を含んで顕示された。三次元相図では、従来の氷の融点は融解等温線に、共晶点は共晶線に、そして共晶等温線は共晶平面へと次元が拡張された。したがって、この相図に基づく音速測定は、温度不変の反応を含む相変化量計測に対する一つの有効な手段になる。例えば、アイスラリーをパイプで輸送するダイナミック蓄熱方式では液中に微小氷晶が分散した固液混相流が対象であり、統一的な音速値を用いることで管閉塞等の診断や定量評価への応用が期待される。

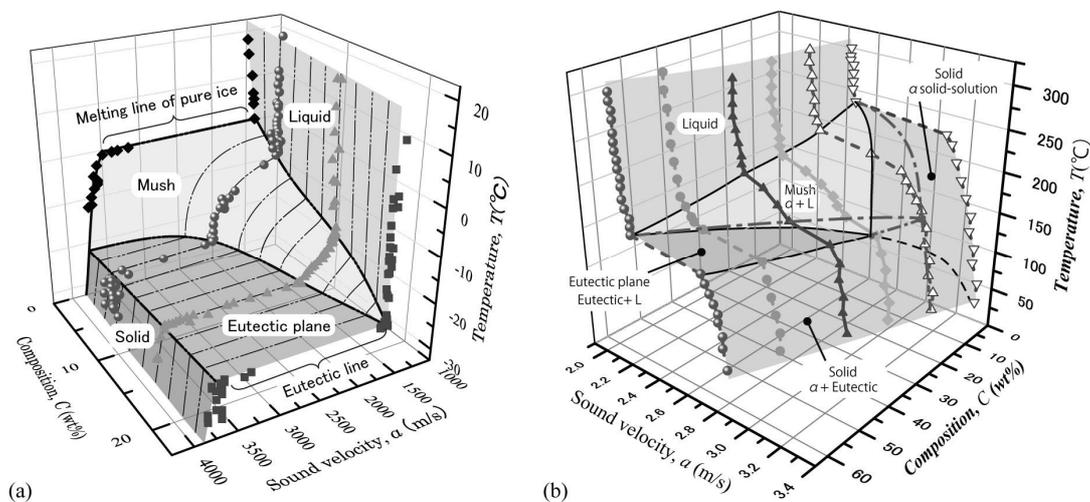


図 5 三次元 (温度-濃度-音速) 相平衡状態図

(3) 相変化スラリーの状態計測

初期組成 C_i が既知の場合、音響相図におけるマッシュ面 $T = T_m(C_i, a)$ の関係から、音速の計測値 a によって温度 T が検出できる。このことは、相変化を伴う熱流動場に熱電対等の温度センサを投入することなく、超音波非侵襲センシングによって温度検出が可能となることを意味する。他方、温度計測と音速計測を併用する場合には、音響相図におけるマッシュ面 $C = C_m(T, a)$ の関係から、スラリーの平均濃度の検出できる。

図 6 に、塩化ナトリウム水溶液から生成されるスラリーの氷充填率 f を無次元音速 ψ との関係のもとで示す。ここで、 f は氷の質量固相率としている。無次元音速 ψ は次式で定義した。

$$\psi = \frac{a - a(T_l'(C_i), C_i)}{a_m(T_e, C_i) - a(T_l'(C_i), C_i)}$$

ここで、 $a(T_i^*(C_i), C_i)$ は初期組成に対する液相線温度における音速値を、 $a_m(T_e, C_i)$ は共晶温度におけるマッシュ相の音速値を示す。実験プロットは、実験による温度の測定値から従来の温度-濃度状態図に基づく溶質量バランスを用いて計算された値であり、また図中の実線については、音速に対する音響相図の液相面の関係より理論的に推測された値を示したものである。これより、氷充填率 f は無次元音速 ψ とともに増加しており、 $\psi = 1$ においては各組成に対する氷の成長限界 $f_e(C_i)$ に到達していることが判る。以上により、音響相図に基づく音速測定によって相変化スラリーの氷充填率が検知できることが明らかとされた。

さらに従来の超音波流量計に氷充填率計測の手法を採用することで、固相割合だけでなく流速(流量)計測が可能となる。流れに対して45度の角度を設けた2つの超音波送受信の信号を取得し、それら時間差を得ることで超音波伝播経路の長さのみに依存した平均流速が得られる。平均流速(流量)と固液相の体積割合の情報を同時に推定することで管内の流動の様子が物質の状態と関連づけて計測できる。

以上、相変化を伴う種々の状態量が音速測定により非侵襲検知可能であることが示され、音響相図に基づく各種状態計測の考え方が提示された。

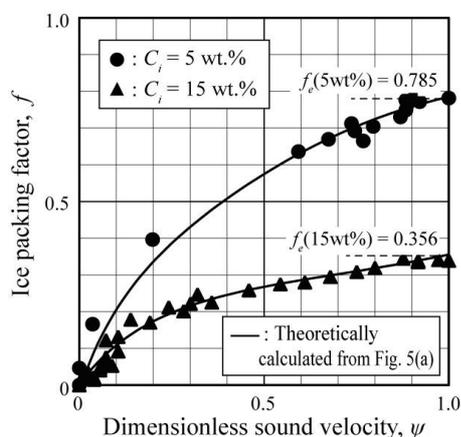


図6 氷充填率の音速依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 3件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 義岡秀晃, 経田僚昭, 八賀正司	4. 巻 H132
2. 論文標題 超音波定在波を付与した過冷却懸濁液の凝固	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 第58回日本伝熱シンポジウム講演論文集	6. 最初と最後の頁 1
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Tomoaki Kyoden, Hideaki Yoshioka, Noboru Momose, Tadashi Hachiga	4. 巻 130
2. 論文標題 Array formation by ultrasound standing waves with solidification of liquid-suspended microparticles	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 195109
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0068551	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 堀純也, 経田僚昭, 加藤亨, 義岡秀晃	4. 巻 56
2. 論文標題 非一様温度分布を有するステップ型超音波ホーン的设计	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本設計工学会論文集	6. 最初と最後の頁 35-46
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.14953/jjsde.2020.2894	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 義岡秀晃, 経田僚昭, 八賀正司	4. 巻 J234
2. 論文標題 合金の液固相変化における超音波挙動	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 第57回日本伝熱シンポジウム講演論文集	6. 最初と最後の頁 1
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 義岡秀晃、経田僚昭、八賀正司	4. 巻 36
2. 論文標題 塩化ナトリウム水溶液の凝固過程と超音波挙動の連関 -音響相図の構築-	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本冷凍空調学会論文集	6. 最初と最後の頁 291-301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11322/tjsrae.19-24KE_EM	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 義岡秀晃、経田僚昭、八賀正司、寺西恒宣、蓑茉莉乃、西谷有瑠生	4. 巻 G232
2. 論文標題 水の融解・凝固過程と超音波挙動の連関	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 第56回日本伝熱シンポジウム講演論文集	6. 最初と最後の頁 1
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 経田僚昭、義岡秀晃、八賀正司、山東寛、西谷有瑠生	4. 巻 OS11-04
2. 論文標題 異相共存場を伝播する超音波に基づくその場観察システムの提案	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本機械学会第97期流体工学部門講演会講演論文集	6. 最初と最後の頁 1
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 上坂朋史、西谷有瑠生、義岡秀晃、飯塚亮太、河上仁美、八賀正司、経田僚昭	4. 巻 PS2-49
2. 論文標題 超音波探索に基づくアイスラリーの状態計測システムの開発	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本機械学会北陸信越支部第49回学生員卒業研究発表講演会講演論文集	6. 最初と最後の頁 1-2
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 義岡秀晃、経田僚昭、八賀正司	4. 巻 J234
2. 論文標題 合金の液固相変化における超音波挙動	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 第57回日本伝熱シンポジウム講演論文集	6. 最初と最後の頁 1
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 小谷悟、義岡秀晃、経田僚昭、八賀正司
2. 発表標題 Bi-Sn合金の相変化過程における音速挙動と状態計測への応用
3. 学会等名 日本伝熱学会北陸信越支部秋季セミナー
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔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
研究分担者	経田 僚昭 (Kyoden Tomoaki) (50579729)	富山高等専門学校・その他部局等・准教授 (53203)	
研究分担者	八賀 正司 (Hachiga Tadashi) (80123305)	公立小松大学・保健医療学部・教授 (23304)	

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
---------	---------