

過熱水滴の突沸挙動に及ぼす振動の影響

Ebullition Behavior of Water Droplets Vibrated under Transient Superheated
Conditions during Test Runs

鈴木道義, 針谷安男, 戸田富士夫
SUZUKI Michiyoshi, HARIGAYA Yasuo and TODA Fujio

This paper presents an experimental study on the ebullition behavior of superheated water droplets vibrated under the transient superheated conditions during the test runs. In this study, the effect of pore size of membrane filter for filtering water under experiment and the intensity of vibration (the product of frequency and amplitude of vibration) on the disintegration of superheated water droplets due to the ebullition was considered. It was clarified from this study that the ebullition probability of those increased with a increase of pore size of membrane filter for filtering water under the experiments, and a increase of the product of intensity of vibration and the square of pore size of membrane filter for filtering water under the experiments.

Key Words: Superheating, Phase Change, Ebullition, Pore Size of Membrane Filter, Intensity of Vibration

1. はじめに

過熱液体の沸騰は極めて急激かつ爆発的であり, 非常に危険なものである. このことは水冷却原子炉における一次冷却系破損事故時にみられる系圧力の低下に伴う急激な沸騰現象, あるいは金属溶解の過程で観察される接触蒸気爆発として知られる現象等に関係するものである. 従って, 過熱液体の沸騰開始のメカニズム, 即ち核生成挙動の理解を深めることは過熱液体が関与する各種工業における安全操業を確立する上に大きな意義を持つものである.

過熱液体中における核生成は液体中に含まれる微小浮遊粒子, イオン, 溶存ガス等の不純物, 液体を保持する物質, 液体がある過熱状態にさらされるまでの温度履歴等の影響を受けることが指摘されている^(1~7).

著者等は以前に, 大気圧下において上方の温度が高く, 下方の温度が低いような定常的な温度分布を有する, 水より密度の大きなシリコンオイルが入った垂直ガラスカラムの下端より水滴を注入すると, 水滴は浮力によりカラム中を上昇して行き, ある温度に達すると突沸(核生成に基づく急激な沸騰)により崩壊する現象についての観察を実施した⁽⁸⁾. その際, 水滴がカラム中を上昇して行く途中において, 水滴表面より微小気泡が離脱する場合には, 気泡が離脱する位置に応じて水滴が揺動する現象が観察された. このような揺動運動の観察された水滴の突沸時の温度は, それが観察されなか

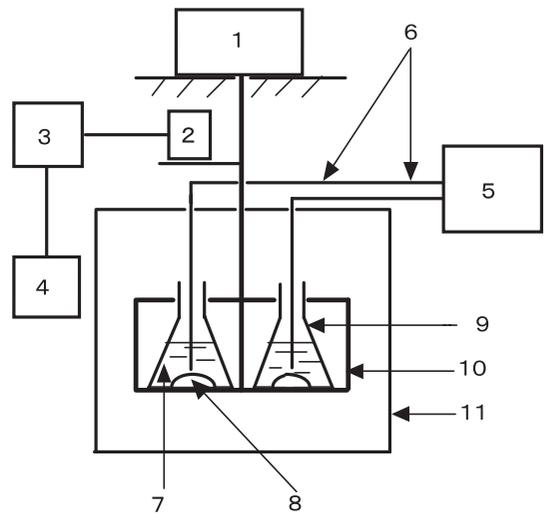
った水滴の突沸時の温度に比べて低下する傾向を有することが知られた。従って、水滴の突沸温度に与える微弱振動の影響は無視し得ないものがあると考えられる。

過熱状態にさらされた水滴に外部より振動を付加すると、水滴中に核生成に有効に働く微少不純物が存在する場合、その微少不純物と核萌芽との結合確率が増す結果として、核生成頻度が增大するため、水滴に振動を付加した場合、振動を付加しない場合に比べ水滴の突沸挙動が変化することが予測される。既に著者らは水滴の突沸挙動をコントロールするための方策を模索するための基礎的資料を得る目的で、大気圧下において静止水滴の温度が時間とともにほぼリニヤーに上昇する場合について、振動を受ける過熱水滴の突沸挙動に与える振動強度（振動数と振幅の積）の影響について報告した⁽⁹⁾。本報告は振動を受ける過熱水滴の突沸挙動に及ぼす供試母液ろ過に用いるメンブランフィルターポアサイズの影響について検討する。さらに振動強度とメンブランフィルターポアサイズの複合効果についても水滴中に含まれる微少不純物と核萌芽の結合確率への影響という観点から検討する。

2. 実験方法

図1に実験装置の概略を示す。清浄な硬質ガラス製三角フラスコ（容量 50cm^3 ）に平均孔径 $5\mu\text{m}$ のガラスフィルターでろ過し、十分に脱気した清浄な流動パラフィンを、三角フラスコの底面が十分に隠れるまで注入する。次いで、水道水を所定のポアサイズを有するメンブランフィルターでろ過した後、十分に脱気したものを母液とする体積 $1\times 10^{-2}\text{cm}^3$ の水滴をマイクロシリンジで作製し、三角フラスコ底面中央に置く。その後、この水滴上方約 2cm の高さまで流動パラフィンを注入する。この三角フラスコを加熱槽内部に置いた、加振器に接続された三角フラスコ保持具にセットし、大気圧下（ $1022\sim 994\text{hPa}$ ）において、ある一定の加熱速度で加熱する。水滴温度が 100°C に到達すると同時に三角フラスコ加振

装置を作動させ、供試水滴に振動を加え始める。その後も振動を加えつつ加熱を続け、水滴が突沸するときの温度 T 及び水滴温度が 100°C 経過後突沸するまでの時間 t を測定する。水滴突沸時の温度は水滴上方 2mm の位置に挿入した熱電対の指示値によった。加熱速度 $d(T-100)/dt$ を変化させた予備実験



- | | | | |
|---|---------------------|----|------------------|
| 1 | Vibrator | 7 | Liquid Paraffine |
| 2 | Displacement Sensor | 8 | Water Droplet |
| 3 | Displacement Meter | 9 | Flask |
| 4 | Oscilloscope | 10 | Flask Holder |
| 5 | Recorder | 11 | Heating Vessel |
| 6 | Thermocouple | | |

Fig. 1 Schematic diagram of test apparatus

によれば本実験の加熱速度範囲(3.8~6.3K/min)ではいずれの場合も、このようにして得られる温度と三角フラスコ底面に接触させた熱電対によって得られる温度との差異は1℃以内であった。

本実験に用いた加振装置は、モーター、無段変速器、偏心円板から構成されている。即ち、振動数は無段変速器によって、振幅は偏心円板の偏心量を変えることによってそれぞれ所定の値を得た。なお、振動数、振幅は三角フラスコ保持具支持棒に取り付けた変位センサーの出力をオシロスコープに導き測定した。本加振装置によって得られる振動波形はほぼサインカーブに近いものであった。

実験は次の場合について行った。水道水をポアサイズ σ が0.1, 0.22, 0.45, 1.2, 3.0 μm のメンブランフィルターでそれぞれろ過して得られるものを母液とする体積 $v=1\times 10^{-2}\text{cm}^3$ の水滴に、振幅 $a=1.22\text{mm}$ 、振動数 $f=25\text{Hz}$ という振動を付与し、水滴が突沸するときの温度及び水滴温度が100℃経過後突沸するまでの時間を測定した。何れの実験条件においても供試水滴数は100個であり、振動数誤差は $\pm 2\%$ 以内、また振幅誤差は $\pm 3\%$ 以内であった。

3. 実験結果と考察

3.1 過熱水滴の突沸挙動に及ぼす供試母液ろ過に用いるメンブランフィルターポアサイズの影響

水道水をポアサイズ σ が0.1, 0.22, 0.45, 1.2, 3.0 μm のメンブランフィルターでそれぞれろ過して得られるものを母液とする体積 $v=1\times 10^{-2}\text{cm}^3$ の水滴に、振幅 $a=1.22\text{mm}$ 、振動数 $f=25\text{Hz}$ という振動を付与し、水滴が突沸するときの温度及び水滴温度が100℃経過後突沸するまでの時間を測定した。図2にメンブランフィルターポアサイズ σ が1.2 μm のときの、過熱水滴の突沸温度と経過時間との関係を示す。図2より過熱水滴の突沸挙動はかなりエラティックであることが知られる。

3.2 無次元過熱指数 λ

図2から知られるように本実験においては水滴個々の加熱速度は相違する。即ち、それぞれの水滴によってある温度への水滴保持時間、つまり水滴温度が単位温度変化するのに要する時間が異なる。核生成論⁽⁸⁾から明らかなように過熱水滴の突沸挙動は、温度が同じであれば水滴保持時間の影響を受け、保持時間が長い程突沸は起こり易い。したがって、水滴個々の加熱速度が相違する場合、過熱水滴の突沸挙動を評価する際には突沸温度 T あるいは100℃経過後の時間 t の何れもそれ単独では不十分なものと考えられる。そこで水滴が突沸するまでの温度履歴を考慮した、新しいパラメータを導

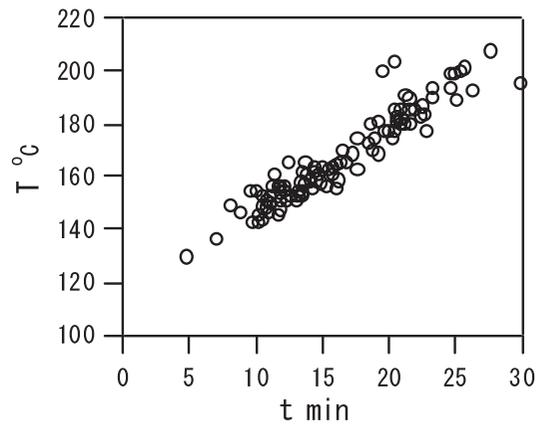


Fig. 2 Relationship between ebullition Temperature T and elapsed time t ($\sigma=1.2\mu\text{m}$)

出する。

今、次のような物理量を定義する。 $J_v(T)$: 核生成頻度 $1/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$, N_0 : 供試水滴数, $N(T)$: 温度 T に至るまで突沸せずに残存している水滴数, v : 水滴体積 cm^3 , t : 水滴温度が大気圧下において沸点に達してから突沸するまでの経過時間 s .

さて、多数個の水滴をある一定の加熱速度 V_T で加熱し、水滴を過熱状態にさらした場合を考える。この場合、個々の水滴の突沸は独立に生起するものとし、水滴の突沸挙動は一次の化学反応速度式に従うものと仮定すれば次式が成立する。

$$dN(T)/N(T) = -v \cdot J_v(T) \cdot dt = -v \cdot A \cdot \exp(B \cdot T) \cdot dT/V_T \quad (1)$$

ここで、 $J_v(T) = A \cdot \exp(B \cdot T)$ であり、 A , B は定数であるものとする。また、 $V_T = dT/dt$ である。

大気圧下における水の沸点を基準温度 T_0 とすると、 $J_v(T_0) = A \cdot \exp(B \cdot T_0)$ の関係が成立するから次式が得られる。

$$dN(T)/N(T) = -v \cdot J_v(T_0) \cdot [\exp\{B(T - T_0)\} / V_T] \cdot dT \quad (2)$$

上式を $T \sim T + \Delta T$ の区間で積分し、 $B \cdot \Delta T \ll 1$ を仮定すれば、次式が得られる。

$$\ln\{N(T + \Delta T)/N(T)\} = -\{v \cdot J_v(T_0) / V_T\} \cdot \exp\{B(T - T_0)\} \cdot \Delta T \quad (3)$$

また、 $N(T + \Delta T) - N(T) = \Delta N (< 0)$ と置けば、式 (3) の左辺は次式で表される。

$$\ln\{N(T + \Delta T)/N(T)\} = \ln\{[\Delta N / N(T)] + 1\} \quad (4)$$

ところで、 $T \sim T + \Delta T$ の区間の水滴の突沸確率 P は $P = -\Delta N / N(T)$ であるから、式 (3), (4) から次式を得る。

$$P = 1 - \exp\{-v \cdot J_v(T) \cdot \Delta T / V_T\} \quad (5)$$

ここで、 $\Delta T = 1 \text{ K}$ とすれば、 $1 / V_T$ は単位温度変化に必要な時間 Δt_u と考えられる。従って、水滴の突沸確率 P は次式で表される。

$$P = 1 - \exp\{-v \cdot J_v(T) \cdot \Delta t_u\} \quad (6)$$

式 (6) において、前述のように $J_v(T)$ は $\exp(T)$ に比例するから、結局水滴の突沸確率 P は $v \cdot \exp(T) \cdot \Delta t_u$ の値に比例すると考えられる。なお水滴体積が一定であれば水滴の突沸確率 P は $\exp(T) \cdot \Delta t_u$ の値に比例することになる。

以上の考察から、過熱水滴の突沸挙動を整理するに当たり、次式で定義される無次元過熱指数 λ を

採用する.

$$\lambda = [\exp(T/T_0)] \cdot [(\Delta t_u / \Delta t_{u0})] = [\exp(T/T_0)] \cdot [(V_{T0}/V_T)] \quad (7)$$

ここで, Δt_{u0} : 単位温度変化に要する基準時間=1 min, V_{T0} : 基準加熱速度=1 K/minである.

3.3 最多突沸無次元過熱指数 $\lambda_{m.p.}$

ある無次元過熱指数 λ における過熱水滴の突沸度 $\alpha(\lambda)$ を, 単位 λ 変化あたりの突沸水滴数とその時点で突沸せずに残存している水滴数の比として定義すれば, $\alpha(\lambda)$ は次式で表わされる.

$$\alpha(\lambda) = [1/\{N_0 - N'(\lambda)\}] \cdot dN'(\lambda)/d\lambda \quad (8)$$

ここで $N'(\lambda)$ は無次元過熱指数が λ に到達するまでに突沸した水滴数である.

ある λ において単位変化 λ あたりの突沸水滴数 $\alpha(\lambda) \{N_0 - N'(\lambda)\}$ が最大になる場合, その λ を最多突沸無次元過熱指数 $\lambda_{\text{most probable}}$ (以後, $\lambda_{m.p.}$ と略記する) と定義する. 即ち, 次式を満足する λ を $\lambda_{m.p.}$ とする.

$$d[\alpha(\lambda) \cdot \{N_0 - N'(\lambda)\}]/d\lambda = 0 \quad (9)$$

今, ある λ に到達するまでに突沸せずに残存している水滴数 $N_0 - N'(\lambda)$ と供試水滴数 N_0 の比として定義するものを水滴の残存率 $p(\lambda)$ とすれば, 単位変化 λ あたりの突沸水滴数 $\alpha(\lambda) \{N_0 - N'(\lambda)\}$ は次のように表わすことができる.

$$\alpha(\lambda) \cdot \{N_0 - N'(\lambda)\} = dN'(\lambda)/d\lambda = -N_0 \cdot dp(\lambda)/d\lambda \quad (10)$$

式(9),(10)より $\lambda_{m.p.}$ は次式を満足することが知られる.

$$d[\alpha(\lambda) \cdot \{N_0 - N'(\lambda)\}]/d\lambda = d\{-N_0 \cdot dp(\lambda)/d\lambda\}/d\lambda = -N_0 \cdot d^2p(\lambda)/d\lambda^2 = 0 \quad (11)$$

故に, 式 (4) を満足する $\lambda_{m.p.}$ は $p(\lambda)$ 曲線の変曲点である $p(\lambda) \approx 0.5$ にほぼ対応する λ であることから, $p(\lambda) = 0.5$ のときの λ の値を $\lambda_{m.p.}$ と定める⁽⁹⁾.

3.4 最多突沸無次元過熱指数 $\lambda_{m.p.}$ に及ぼす供試母液ろ過メンブランフィルタポアサイズ σ の影響

供試母液をろ過する際のメンブランフィルタポアサイズ σ が残存率 $p(\lambda)$ に及ぼす影響を図3に示す. これより各メンブランフィルタポアサイズ σ と最多突沸無次元過熱指数 $\lambda_{m.p.}$ の関係を求め, 図に4示す. 図4より供試母液ろ過メンブランフィルタポアサイズが大きくなるに伴い最多突沸無次元過熱指数 $\lambda_{m.p.}$ が小さくなることが知られる.

このことは次のように考えられる. 供試水滴中に存在する微小不純物粒子のサイズはメンブランフィルタポアサイズに支配されるが, 微小不純物粒子のサイズは微小不純物粒子の水に対する濡れ性と

密接に関係し、水に対して濡れにくいものほど大きなサイズで水中に存在する⁽⁴⁾。このため、供試母液ろ過メンブランフィルタポアサイズが大きくなるに伴い水滴中には水に対して濡れにくい不純物、即ち核生成により有効に働く不純物が含まれることになり突沸が起りやすくなる。その結果、メンブランフィルタポアサイズが大きくなるに伴い最多突沸無次元過熱指数 $\lambda_{m.p.}$ が小さくなる。

3.5 最多突沸無次元過熱指数 $\lambda_{m.p.}$ に及ぼす供試母液ろ過メンブランフィルタポアサイズ σ と振動強度 af の複合効果

既に報告⁽⁹⁾したように振動を受ける過熱水滴の突沸挙動は振動の影響を受け、最多突沸無次元過熱指数 $\lambda_{m.p.}$ は振動強度（振動数 f と振幅 a の積： af ）の増加とともに減少する。この結果を踏まえ、ここでは $\lambda_{m.p.}$ に及ぼす供試母液ろ過メンブランフィルタポアサイズ σ と振動強度 af の複合効果を検証すべく、供試水滴中に存在する粒子サイズの代表値としてメンブランフィルタポアサイズ σ を取り、 af と σ^2 の積と $\lambda_{m.p.}$ の関係を図5に示す。図5より $\lambda_{m.p.}$ は $af \cdot \sigma^2$ の増加とともに減少することが知られる。

このことは、過熱水滴の突沸挙動に及ぼす振動の効果は供試水滴中に存在する核生成に有効に働く不純物と核萌芽との遭遇確率を増大させる効果、すなわち攪拌効果と考えられ。この攪拌効果は振動強度 af （振幅 a と振動数 f の積）の増大に伴い大きくなるとともに、核生成に有効に働く不純物と核萌芽との遭遇確率は不純物粒子サイズに比例することによるものと考えられる。

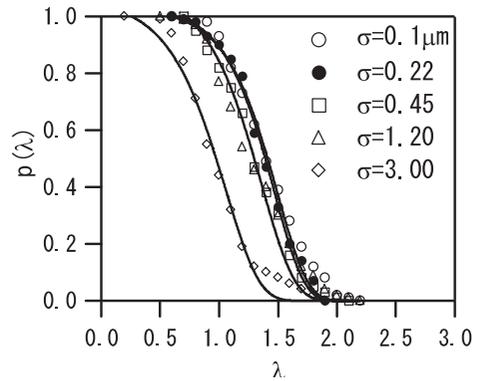


Fig. 3 Effect of σ on $p(\lambda)$

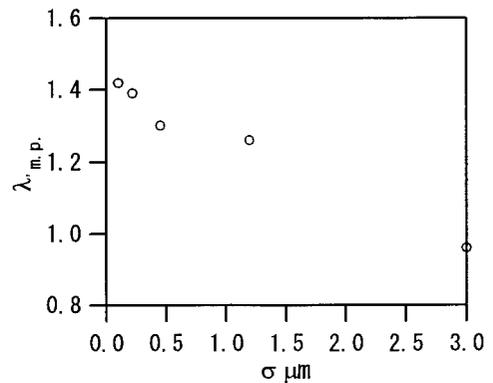


Fig. 4 Effect of σ on $\lambda_{m.p.}$

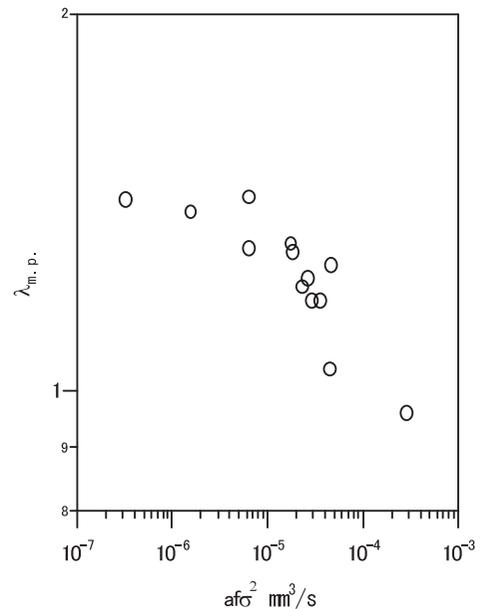


Fig. 5 Effect of $af \cdot \sigma^2$ on $\lambda_{m.p.}$

4. おわりに

水道水をポアサイズ σ が0.1, 0.22, 0.45, 1.2, 3.0 μm のメンブランフィルターでそれぞれろ過して得られるものを母液とする体積 $v=1\times 10^{-2}\text{cm}^3$ の水滴に, 振幅 $a=1.22\text{mm}$, 振動数 $f=25\text{Hz}$ という振動を付与し, 水滴が突沸するときの温度及び水滴温度が 100°C 経過後突沸するまでの時間を測定した. その結果, 本論文において定義した最多突沸無次元過熱指数 $\lambda_{m.p.}$ は過熱水滴の突沸の起こりやすさを表わす指標として適切なものであり, 供試母液ろ過メンブランフィルタポアサイズ σ が大きくなるに伴い $\lambda_{m.p.}$ が小さくなることを示した. また既に報告⁽⁹⁾した結果と併せ検討し, $\lambda_{m.p.}$ は供試母液ろ過メンブランフィルタポアサイズ σ と振動強度 af の双方の影響を受け, $af\cdot\sigma^2$ の増加とともに減少することを明らかにした.

参考文献

- (1) Fisher, J.C., The Fracture of Liquids, *J. Applied Physics*, **19** (1948), pp.1062~1068.
- (2) Blander, M. and Hengstenberg, D., Bubble Nucleation in n-Pentane, n-Hexane, n-Pentane + Hexadecane Mixtures, and Water, *J. Physical Chemistry*, **75-23** (1971), pp.3613~3619.
- (3) Apfel, R.E., Vapor Nucleation at a Liquid-Liquid Interface, *J. Chemical Physics*, **54-1** (1971), pp.62~63.
- (4) 鈴木, 西脇, 過熱水滴の突沸温度を支配する因子, *日本機械学会論文集*, 47-416 (1981), pp.676~683.
- (5) 鈴木, 針谷, 銅板上に置かれた過熱水滴の突沸挙動に及ぼす供試面洗浄法の影響, *宇都宮大学教育学部紀要*, 第50号, 第2部 (2000-3), pp.43~49.
- (6) 鈴木, 針谷, 過熱水滴の突沸挙動に及ぼす供試母液活性炭洗浄条件の影響, *日本産業技術教育学会誌*, **42-3** (2000-8), pp.115~121.
- (7) 鈴木, 針谷, 戸田, 固体面上に置かれた過熱水滴の核生成に及ぼす供試面表面粗さの影響, *日本産業技術教育学会誌*, **44-1** (2002-2), pp.21~27.
- (8) 鈴木, 西脇, 小林, 秋山, 過熱液滴の核生成に関する解析と実験, *日本機械学会講演論文集*, No.740-17 (昭和49), pp.153~156.
- (9) 鈴木, 針谷, 戸田, 振動を受ける過熱水滴の突沸挙動—振動強度の影響—, *宇都宮大学教育学部紀要*, 第58号, 第2部 (2008-3), pp.15~21.