超音波振動を利用した水の過冷却解消能動制御*

稲田 孝明^{*1}, 張 旭^{*2}, 矢部 彰^{*1}
田中 誠^{*1}, 小澤 由行^{*3}

Active Control of Freezing of Supercooled Water by Ultrasonic Vibration

Takaaki INADA^{*4}, Xu ZHANG, Akira YABE,
Makoto TANAKA and Yoshiyuki KOZAWA^{**} Mechanical Engineering Laboratory, 1-2 Namiki, Tsukuba, Ibaraki, 305-8564 Japan

A method to actively control the supercooling of water is one of the critical issues for cold-energy storage systems utilizing ice slurry. We experimentally studied the use of ultrasonic vibration to control the phase change from supercooled water to ice. Ultrasonic vibration of varying intensity was applied to water at different degrees of supercooling and we examined whether or not the supercooled water was frozen on a heat transfer surface. The experimental results indicate that ultrasonic vibration strongly promotes the freezing of supercooled water, for both pure water and tap water. Furthermore, we found that ultrasonic vibration is also effective for making ice slurry.

Key Words: Nucleation, Freezing, Ice Slurry, Cold, Supercooling, Ultrasonic Vibration

1. 緒 言

夏季日中の電力負荷は、冷房空気調和の普及によって年々増加する傾向にある。蓄冷熱システムは、このような問題に対処して電力負荷平準化を図るための有効な手段として期待されている。過冷却水から生成する氷スラリーは、単相の水と比べて大きな蓄熱密度をもち、配管内での優れた流動性を有することから、蓄冷熱システムの熱媒体として有望である。しかしながら、過冷却水を用いることによる次のような問題点もある。すなわち、水の過冷却度を大きくすると冷凍機のCOPが低下してしまうこと、小さな過冷却度での予期しない凍結が配管の閉そくを招いてしまうこと、などである。また、過冷却水からの氷スラリー生成手法としては、自由落下する過冷却水を板に衝突させて氷スラリーを生成する方式が実用化されているが⁽¹⁾、この方式を利用すると、過冷却器と蓄水槽との位置関係が限定され、システムの小型化が困難である。したがっ

て、氷スラリーを利用した蓄冷熱システムにおいては、任意の過冷却度で過冷却水から氷への相変化を制御する簡易な手法が求められている。従来の研究により、水の過冷却解消に対する多くの影響因子が明らかにされてきたが^{(2)~(4)}、任意の過冷却度を有する過冷却水からの過冷却解消を制御する実用的な手法はいまだ確立されていない。

超音波振動も水の過冷却解消に影響を及ぼす要因の一つとして知られており、従来から超音波によって引き起こされる核生成についての研究が行われてきた^{(5)~(8)}。本研究では、超音波振動を過冷却解消の能動制御手法として利用するために、伝熱面上での水の過冷却解消に及ぼす超音波振動の影響を実験的に調べた。また、超音波振動によって伝熱面上に生成する氷の様相を観察し、氷スラリー生成手法としての超音波振動の可能性についても検討した。

2. 実験装置

図1に実験装置の概略を示す。試料水容器の底面は超音波振動板となっており、容器底面の内径は140 mmである。超音波の周波数は28 kHzで一定であり、超音波発振器の出力は最大100 Wで可変制御できる。容器側面下部はステンレス製であり、その外壁

* 原稿受付 1999年1月5日。

^{*1} 正員、工業技術院機械技術研究所(☎ 305-8564 つくば市並木1-2)。^{*2} 工業技術院機械技術研究所。^{*3} 正員、高砂熱学工業(株)(☎ 243-0213 厚木市飯山3150)。

E-mail: inada@mel.go.jp

Fig. 1 Schematic of the experimental apparatus

Fig. 2 Details of the heat transfer plate

に溶接した銅管に冷媒を供給することによって、試料水の温度制御を行う。容器側面上部はアクリル製であり、アクリル壁を通して氷が生成する様子をビデオカメラで観察する。図1に示したように、容器内部の4点に熱電対を挿入し、試料水の温度を計測する。熱電対の高さ方向の位置は、(A)、(B)については底面から76 mm、(C)、(D)については底面から8.5 mmである。また、径方向の位置は、(A)、(C)については容器の中心部付近、(B)、(D)については壁面付近である。試料水に浸漬された銅製の伝熱板は上側から冷媒によって冷却される。伝熱板表面の高さは容器底面から101 mmであり、これは試料水が0°Cの場合の超音波の波長の約2倍に相当する。

伝熱板の詳細を図2に示す。過冷却解消が始まる位置を伝熱板中心部表面に限定するために、以下のような工夫を施した。伝熱板には幅13 mm、深さ14 mmの溝を切っており、以下では溝の内側の部分(直径20 mm)を中心部、それ以外の外側を周囲部と呼ぶことにする。この溝に断熱材を充てんすることによって、冷却過程で中心部と周囲部との間に温度差を形成した。しかし、この温度差だけでは、伝熱板端部とアク

リル壁との接着部分からの過冷却解消を避けられなかったため、さらに中心部表面を60番の紙やすりで格子状に研磨し、周囲部と比べて表面粗さを大きくした。伝熱板表面の形状を触針式の粗さ計で測定したところ、中心部では約10 μm の深さの傷が確認できたのに対し、周囲部には約1 μm の深さの傷しか存在しなかった。その結果、超音波振動を付与しない場合の過冷却解消は必ず伝熱板中心部の表面から起こることを確認した。伝熱板内部の熱電対のうち、図2中(a)と(c)は表面から2 mm、(b)は表面から5.5 mmの位置に埋め込まれている。一連の測定を通じて、冷却中に中心部(a)と周囲部(c)とでは1 K以上の温度差があった。一方、(a)と(b)との比較から伝熱板中心部の高さ方向には有意な温度差は計測されなかったため、中心部の表面温度は熱電対(a)の測定値で表されていると考え、さらに中心部の表面温度とそれに接している試料水の温度は等しいとして、熱電対(a)の測定値から試料水の過冷却度を求めた。

3. 実験方法

超音波振動付与の影響を調べるために、以下のような二通りの測定(実験1, 2)を行った。実用的な観点から、純水だけでなく、市水レベルの清水も試料水として用いた。実験1では、超音波振動を付与しないまま、伝熱面上で試料水が過冷却解消するまで伝熱板を冷却していき、過冷却解消したときの過冷却度を最大過冷却度として測定する。実験2では、試料水が所定の過冷却度に達した瞬間に超音波振動を5 s付与し、伝熱面上での過冷却解消の有無を確かめる。

いずれの場合も、伝熱板中心部の温度を1.9°C、試料水温度(A)、(B)の平均水温を2.3°C、試料水温度(C)、(D)の平均水温を2.9°Cに保った初期状態から、伝熱板に-30°Cの冷媒を供給して冷却していく。水の密度は約4°Cで最大値をもつために、本実験の冷却過程は自然対流の影響を受けない。図3に、純水について行った実験1の冷却曲線の一例を示す。過冷却解消が起こると、氷生成に伴う潜熱放出のために、伝熱板温度が急激に上昇する。この温度変化の計測とビデオ撮影の両者から、過冷却解消を検出した。図3からわかるとおり、初期状態から過冷却解消までの間で冷却速度は一樣ではない。そこで、毎回同じ冷却速度の条件で測定するために、0°Cから-5°Cまでの平均冷却速度を求め、0.044 K/sから $\pm 12\%$ 以内に収まる場合についてのみデータとして採用した。測定は多数回繰返して行われるが、1回の測定が終了すると、伝熱板を4°C以上に昇温して伝熱面上に発生した氷を完全に融

Fig. 3 Temperature change of the heat transfer plate

Fig. 4 Erosion area of an aluminum film, caused by ultrasonic vibration

解させ、その後伝熱面を試料水中からいったん取り出すことによって、融解に伴って残った伝熱面上の気泡を取り除いた。

キャビテーション強度を評価する一手法として、キャビテーションエロージョンを測定する方法がある⁽⁹⁾。本研究では、伝熱面上に厚さ 15 μm のアルミニウムはくを貼って超音波振動を付与し、アルミニウムはくのせん孔面積を画像処理から測定することによって、キャビテーション強度を評価した⁽¹⁰⁾。キャビテーション強度の評価は実際の測定と同じ条件で行うべきであるが、試料水を過冷却状態にして超音波振動を付与するとアルミニウムはく上で氷が生成してしまう。そこで、ここでは実際の測定の初期温度条件においてせん孔面積の測定を行った。超音波振動の付与時間とせん孔面積の関係を図 4 に示す。図 4 中の I_u は、超音波発振器の電流値を表す。時間とせん孔面積の関係はほぼ直線で近似できることがわかる。この結果から、図 4 中に示したように、超音波振動のキャビテー

Fig. 5 Frequency distribution of the maximum degree of supercooling of pure water

ション強度をせん孔速度 A_e によって定義した。なお、このキャビテーション強度評価方法においては、せん孔されたアルミニウム粒子が試料水中に混入してしまうために、試料水に含まれる混入粒子の影響までは評価できないことを付記しておく。

4. 過冷却解消温度に及ぼす 超音波振動の影響

4.1 純水 測定に用いた純水の比抵抗は、測定の前後で変化した、0.8~2.0 $\text{M}\Omega\cdot\text{cm}$ の範囲内であった。また、測定前には試料純水を孔径 0.2 μm のフィルタに通して混入粒子を取り除いた。

実験 1 における最大過冷却度の測定結果を、過冷却度の幅を 0.5 K として度数分布に表したのが図 5 である。合計 52 回の測定を行った結果、最大過冷却度は 9.5~13.5 K の間にばらつき、平均の最大過冷却度 ΔT_c は 11.6 K、標準偏差 S_{td} は 0.72 であった。無限回数の測定から得られる最大過冷却度の平均値(母平均) m が 99% の確かさで存在する範囲は、次式で表される。

$$\Delta T_c - 2.58(S_{td}/N^{0.5}) < m < \Delta T_c + 2.58(S_{td}/N^{0.5}) \quad \dots\dots\dots (1)$$

ただし、 N は実際の測定回数を表す。ここでは、母平均 m が 99% の確かさで $\Delta T_c \pm 0.5 \text{ K}$ の範囲に存在するように、式(1)から測定回数 N を決定した。

実験 2 では、所定の過冷却度 (3.0, 4.5, 6.0 K) おいて、異なるキャビテーション強度の超音波振動を与えた。それぞれの測定条件に対して、合計 25 回ずつの測定を行った。実験 1 および実験 2 の結果を、過冷却度に対する過冷却解消確率でまとめて整理すると、図 6 のようになる。実験 1 の過冷却解消確率は、図 5 の度数分布を累積分布の形で表したものである。実験 1 と実験

Fig. 6 Probability of the freezing of pure water as a function of degree of supercooling

2の結果の比較から、超音波振動の付与が過冷却解消の促進効果をもつことがわかる。また、実験2の結果から、キャビテーション強度が増加するにしたがって過冷却解消確率は1に近づくことがわかる。このことは、超音波振動付与による過冷却解消能動制御手法の有効性を示している。

実験2では、超音波振動を付与する過冷度が3.0 Kの場合、過冷却解消はすべて伝熱板中心部表面から起こったが、超音波振動を付与する過冷度が4.5 Kまたは6.0 Kの場合、過冷却解消が最初に始まる位置は必ずしも伝熱板中心部表面のみとは限らず、中心部表面と同時に周囲部の不特定の位置からの解消が観察されることがあった。伝熱板中心部と周囲部とは表面粗さや過冷度が異なるため、結果の比較が困難である。図6に示した実験2の結果は、すべて伝熱板表面中心部の過冷却解消データを用いて整理している。

4・2 市水レベルの清水 超音波振動の付与が純水の過冷却解消に効果をもつことが確かめられたが、この効果を実用的な技術へ適用するためには、一般的に用いられる市水レベルの清水に対しても同様の効果を確認しておく必要がある。そこで、清水についても純水の場合と同じ実験を行った。測定に用いた清水の比抵抗は2.6~2.9 kΩ・cmの範囲内であった。また、清水はフィルタを通していないため、混入粒子は除去されていない。

実験1における最大過冷度の測定結果を、過冷度の幅を0.5 Kとして度数分布に表したのが図7である。

Fig. 7 Frequency distribution of the maximum degree of supercooling of tap water

Fig. 8 Probability of the freezing of tap water as a function of degree of supercooling

合計30回の測定を行った結果、最大過冷度は7.0~11.5 Kの間にばらつき、平均の最大過冷度 ΔT_c は9.0 K、標準偏差 S_{td} は0.73であった。測定回数 N については、母平均 m が99%の確かさで $\Delta T_c \pm 0.5$ Kの範囲に存在するように式(1)から決定した。清水の平均の最大過冷度が純水の場合に比べて小さいのは、清水に各種イオンや0.2 μm以上の混入粒子が含まれているためである。

実験2では、所定の過冷度(1.5, 3.0, 4.5 K)において、異なるキャビテーション強度の超音波振動を与えた。それぞれの測定条件に対して、合計10回ずつの測定を行った。実験1および実験2の結果を、過冷度に対する過冷却解消確率でまとめて整理すると、図8

のようになる。実験1の過冷却解消確率は、図7の度数分布を累積分布の形で表したものである。実験1と実験2の結果の比較から、純水の場合と同様に、清水の場合も超音波振動の付与が過冷却解消の促進効果をもつことがわかる。また、実験2で超音波振動を与える過冷度が3.0 K以上の場合には、今回の測定で用いたすべてのキャビテーション強度において、過冷却解消確率は1であった。したがって、超音波振動を与える過冷度が3.0 K以上の場合には、超音波振動による確実な過冷却解消能動制御技術を実現できることがわかる。

実験2では、超音波振動を付与する過冷度が1.5 Kまたは3.0 Kの場合、過冷却解消はすべて伝熱板中心部表面から起こったが、超音波振動を付与する過冷度が4.5 Kの場合、過冷却解消が最初に始まる位置は必ずしも伝熱板中心部表面とは限らず、中心部表面と同時に周囲部の不特定の位置からの解消が観察されることがあった。純水を用いた場合と同様、図8に示した実験2の結果は、すべて伝熱板表面中心部の過冷却解消データを用いて整理している。

4・3 考察 超音波振動による核生成は、従来からおもに二つのモデルによって説明されてきた。Hickling⁽⁵⁾のモデルによれば、キャビテーション気泡の崩壊に伴う急激な圧力上昇が平衡凝固点を高くし、その結果として核生成が起こる。一方Hunt-Jackson⁽⁶⁾のモデルによれば、キャビテーション気泡の崩壊の後に生じる急激な圧力降下による平衡凝固点の上昇および液体の冷却の結果、核生成が起こる。いずれのモデルにおいても、キャビテーション気泡の崩壊が核生成の主要因となっている。本測定で使用した超音波振動の音圧レベルでは、図4に示したように、超音波発振器の電流値 I_u が0.6 Aおよび0.8 Aの場合にはアルミニウムはくがせん孔されており、キャビテーション気泡の崩壊が起こっていることは明らかである。超音波発振器の電流値 I_u が0.4 Aの場合でも、見掛け上せん孔面積は零であるが、実際にはアルミニウムはく上に多くの小さなくぼみが観察されており、やはりキャビテーション気泡の崩壊が起こっていることが推測される。したがって、今回測定された超音波振動による過冷却解消の促進効果も、キャビテーション気泡の崩壊が一つの要因となっている可能性がある。

過冷却水に超音波振動を与えると、超音波振動のエネルギーによって水の温度は徐々に上昇していく。したがって、水が十分に過冷却されていない場合には、たとえキャビテーション気泡が崩壊しても超音波振動

の効果が得られない⁽⁸⁾。図6および図8の結果から、本測定におけるこの臨界の過冷度は、純水の場合には3.0 K以下、清水の場合には1.5 K以下に存在することがわかる。

図6と図8の結果を比較すると、実験2における過冷却解消確率は純水よりも清水の場合のほうが高いことがわかる。この結果について考察してみる。水に含まれる混入粒子の径が大きくなるにしたがって、キャビテーションはより小さい超音波振動の圧力振幅で起こることが知られている⁽¹¹⁾。このことから、混入粒子径が大きくなるにしたがってキャビテーション強度が大きくなることが推測される。本測定においては、純水を生成する過程で0.2 μm のフィルタを通してあるので、純水に比べて清水のほうが大きな混入粒子を含んでいる。したがって、見掛け上せん孔速度 A_e が同じ値であっても、試料水に清水を用いた場合のキャビテーション強度は、純水を用いた場合に比べて、実際には大きいことが予測できる。実験2において清水の過冷却解消確率が純水の場合よりも高いのは、このような理由による。

5. 超音波振動による氷スラリーの生成

氷スラリーを用いた実用的な冷熱蓄熱システムを想定すると、過冷却解消と同時に超音波振動によって氷スラリーを生成することが望ましい。エチレングリコール水溶液については、超音波振動を利用してやわらかいペースト状の氷結晶を生成した例がある⁽¹²⁾。そこで、ここでは超音波振動による過冷却水からの氷スラリー生成の可能性を検討するために、過冷却水に超音波振動を与えたときに生成する氷結晶の観察を行った。

実験1においては、純水、清水のいずれの場合も、伝熱板中心部の表面から過冷却解消が起こり、そこから伝熱板の表面全体へ放射状に広がり、その後氷結晶は伝熱板表面に付着したまま伝熱板表面と垂直な方向に徐々に成長していく様子が観察された。

一方、実験2においては、伝熱板表面上の不特定の位置で過冷却解消が起こり、その後氷結晶は伝熱板表面全体に広がっていった。それと同時に、超音波振動を付与し続けると、超音波振動を付与する過冷度 ΔT_u が4.5 Kまたは6.0 Kの場合には、氷結晶の一部が伝熱板表面からはく離し、氷スラリーを形成することが観察された。 ΔT_u が6.0 K、 A_e が3.8 mm²/sの条件において試料水に純水を用いた場合を例にとり、超音波振動を付与した際に氷スラリーが生成する様子を真横から0.5 s間隔で撮影した結果を図9に示す。図9

Fig. 9 Generation of ice slurry by ultrasonic vibration

中の白い雲状の部分が氷結晶を表している。図9(a)で伝熱面上の一部に発生した氷スラリーは、わずか0.5 s後の図9(b)では、すでに伝熱面上の広い領域へと広がっていることがわかる。このような氷スラリー生成の要因は、キャビテーション気泡の崩壊によって伝熱面近傍に数多くの氷核が生成するためか、あるいは超音波振動に伴う音響流によって氷結晶の一部が表面からはく離するためだと考えられる。

上記の観察結果から、超音波振動によって過冷却水

からの氷スラリー生成が可能であることが確かめられた。この氷スラリー生成手法を実際の冷熱蓄熱システムに適用するためには、今後氷スラリーの性状や生成量に関する詳細な評価を行っていく必要がある。

6. 結 論

超音波振動が伝熱面上での水の過冷却解消に及ぼす影響を、純水および市水レベルの清水の両者について調べ、さらに超音波振動によって伝熱面上に生成する氷結晶の様相を観察し、以下の結論を得た。

(1) 純水、清水の両者に対して、超音波振動の付与は過冷却解消を著しく促進する効果をもつ。

(2) 清水を用いた実験において過冷却度が3 K以上の場合には、超音波振動による確実な水の過冷却解消能動制御を実現することができた。

(3) 超音波振動の付与によって、過冷却水からの氷スラリー生成が可能であることが確かめられた。

最後に、本研究に多大なるご助力をいただいた、福岡県工業技術センターの吉村賢二氏に感謝する。

文 献

- (1) 守屋充・ほか5名, 日本冷凍協会論文集, **12-3**(1995), 253-262.
- (2) Shichiri, T. and Araki, Y., *J. Crystal Growth*, **78**(1986), 502-508.
- (3) Saito, A., ほか4名, *Int. J. Heat Mass Transf.*, **33**(1990), 1697-1709.
- (4) Inaba, H., Takeya, K. and Nozu, S., *JSME Int. J. Ser. B*, **37**(1994), 385-393.
- (5) Hickling, R., *Nature*, **206**(1965), 915-917.
- (6) Hunt, J. D. and Jackson, K. A., *J. Appl. Phys.*, **37**(1966), 254-257.
- (7) Lee, C. P. and Wang, T. G., *J. Appl. Phys.*, **71**(1992), 5721-5723.
- (8) Ohsaka, K. and Trinh, E. H., *Appl. Phys. Lett.*, **73**(1998), 129-131.
- (9) Knapp, R. T. and Calif, P., *Trans. ASME*, **77**(1955), 1045-1054.
- (10) 野村信福・中川勝文, 機論, **59-562**, B(1993), 2028-2034.
- (11) Roy, R. A., ほか4名, *J. Acoust. Soc. Am.*, **78**(1985), 1799-1805.
- (12) 山田雅彦・ほか3名, 第34回日本伝熱シンポジウム講演論文集, (1997), 471-472.