

571  
UT

---

混合蒸気の濃度差マランゴニ凝縮における  
赤外レーザー吸光法による凝縮液厚さ測定

---

(課題番号 : 12650194)

平成12年度～平成13年度科学研究費補助金  
(基盤研究(C)) 研究成果報告書

平成14年3月

横浜国立大学附属図書館



11446315

研究代表者 宇高義郎

(横浜国立大学大学院工学研究院教授)

## 目 次

はしがき	3
研究組織、研究発表	5
Part I : 試料の消光性質と測定法の検討	6
I -1 はじめに	7
I -2 実験装置および方法	9
I -2-1 水-エタノール混合液の消光係数測定装置	9
I -2-2 凝縮装置の構造	10
I -2-3 凝縮液膜厚さ測定装置	13
I -3 結 果 お よ び 考 察	13
I -3-1 水-エタノール混合液の消光性質測定	13
I -3-2 凝縮液挙動と測定位置との対応	14
I -3-3 凝縮液膜厚さの測定	16
I -4 測定精度の検討	16
I -4-1 周囲温度の影響	16
I -4-2 冷却ガスの影響	18
I -4-3 総合的精度の検討	18
I -5 結 論	20
文献	20
Part II : 定結果とその検討	22
II -1 はじめに	23
II -2 前報までの関連結果の概要	24
II -3 実験装置および方法	26
II -4 実験結果および考察	28
II -4-1 凝縮液滴形成過程と液膜厚さ変化	28
II -4-2 離脱液滴による掃除直後の凝縮液膜および 液滴間薄液膜の厚さ測定結果	31
II -5 結 論	34
文献	35

Part III : Unsteady Measurement of Condensate Film Thickness for Solutal Marangoni Condensation	36
Abstract	37
III-1 Introduction	37
III-2 Experimental Apparatus and Method	40
III-2-1 Apparatus for Absorption Coefficient of Test Material	40
III-2-2 Apparatus for Measuring Condensate Film Thickness	40
III-3 Results and Discussion	42
III-3-1 Absorption Coefficient of Test Material	42
III-3-2 Condensate Behavior at the Measuring Position	42
III-3-3 Measurement of Condensate Film Thickness	44
III-4 Concluding Remarks	46
References	47

## は し が き

気液二相サイクルの高効率化あるいは作動媒体の多様化などを目的として非共沸混合媒体の相変化特性を有効に用いるサイクルの利用が計られてきており、混合媒体の気液相変化過程の特性把握が重要である。特に、混合蒸気の凝縮では単成分に比べ蒸気側の拡散抵抗が加わることにより一般に伝熱性能が劣化するため、その改善が課題である。

“Positive system”と呼ばれる低沸点成分に比べて高沸点成分液の表面張力の大きい混合蒸気系の凝縮過程において、主に濃度差表面張力不安定によって、表面の温度分布に起因する濃度・表面張力分布が生じる。その結果、濃度差マランゴニ効果により凝縮液表面に凹凸が生起し、擬似的な滴状凝縮などの凝縮液形態が出現する。その結果凝縮液抵抗は低減し、伝熱性能の飛躍的な向上が見られる条件が比較的広範に出現する。

本研究は、濃度差マランゴニ凝縮現象の熱伝達機構・特性を解明するための研究の一環として、混合液の赤外レーザー光の吸収特性を用いる新たな方法により、本130現象における凝縮液膜厚の変化特性の精密測定を行うことを目的とする。具体的には、水－エタノール混合蒸気の濃度差マランゴニ滴状凝縮過程のうち、特に離脱凝縮液に掃除された直後に短時間現れる薄液膜厚さの非定常測定を、凝縮特性を決定する2つの主要パラメータである凝縮面過冷度と蒸気濃度を広範囲に変化させた条件の下で行う。

水－エタノール濃度差マランゴニ凝縮においては、マランゴニ効果による擬似的な滴状凝縮が広範囲に出現し、水蒸気の疎液性面上の滴状凝縮に近い、極めて良好な熱伝達特性を示す。本研究はその高熱伝達メカニズムを明らかにする上で最も重要事項と考えられる凝縮液膜厚さに関する知見を得るものである。濃度差マランゴニ滴状凝縮の薄液膜部の厚さは極めて薄いもの（数ミクロン程度）と予測され、優れた非接触測定法を必要とする。本研究では、従来気体の微量濃度測定などに用いられてきた、物質の赤外線レーザーの吸光性質を利用する濃度測定法を、薄液膜厚さの直接測定へ適用する点に特色がある。光学測定のため、感度および応答性も十分に満足されるものと予想され、条件によっては非常に高速となる液膜厚さ変化に十分な追従性を有する方法と考えられる。さらに、広範囲な条件における凝縮液膜厚さの変化特性を明らかにすることによって、濃度差マランゴニ凝縮の良好な熱伝達機構の一端を解明することができると考えている。

混合蒸気の凝縮では、通常の凝縮液は膜状形態を示す場合が多く現れるため、従

来からそれを基本に実験的あるいは理論的研究が進展してきているのに対し、濃度差マランゴニ凝縮の研究は近年一部において遂行されているにすぎないため、現状では凝縮機構・特性は未知な部分が多いのが現状である。また、レーザー吸光法による凝縮液膜厚さの測定の試みは新たなものと考えられる。したがって、本測定法を用いて濃度差マランゴニ凝縮の凝縮液膜厚さ測定を遂行することは従来にない新規性を有するとともに、凝縮機構と伝熱特性の解明に重要であると考ええる。

## 研究組織

研究代表者： 宇高義郎（横浜国立大学大学院工学研究院教授）  
（研究協力者： 小方雅樹）  
（研究協力者： 西川哲治）  
（研究協力者： 花田元六）  
（研究協力者： 矢野 誠）

## 研究経費

平成10年度	1, 700 千円
平成11年度	1, 900 千円
計	3, 600 千円

## 研究発表

### (1) 学会誌等

Utaka,Y and Nishikawa,T., Measurement of Condensate Thickness for Solutal Marangoni Condensation by Laser Absorption Method, Thermal Science and Engineering, Vol.9, No.4 (2001) pp.79-80.

宇高義郎、西川哲治、レーザー吸光法による濃度差マランゴニ凝縮過程における凝縮液膜厚さの非定常測定（試料の吸光性質と測定法の検討）、日本機械学会論文集（B編）、投稿中。

宇高義郎、西川哲治、レーザー吸光法による濃度差マランゴニ凝縮過程における凝縮液膜厚さの非定常測定（続報；測定結果とその検討）、日本機械学会論文集（B編）、投稿中。

Utaka,Y. and Nishikawa,T., Unsteady Measurement of Condensate Film Thickness for Solutal Marangoni Condensation, Proc. 12<sup>th</sup> Int. Heat Transfer Conf., (to be published) (2002).

### (2) 口頭発表

宇高義郎、西川哲治、レーザー吸光法による濃度差マランゴニ凝縮過程の凝縮液膜厚さの非定常測定、山梨講演会講演論文集、(2000) pp.185-186.

宇高義郎、西川哲治、レーザー光吸光法による濃度差マランゴニ凝縮液膜厚さ測定、第38回日本伝熱シンポジウム講演論文集、Vol. II, (2001) pp.557-558.

# 混合蒸気の濃度差マランゴニ凝縮における 赤外レーザー吸光法による凝縮液厚さ測定

## Part I : 試料の消光性質と測定法の検討

## I-1. はじめに

非共沸二成分混合蒸気の表面凝縮においては、濃度に対する表面張力の変化傾向に基づいて凝縮液形態を分類することができる。低沸点成分液に比べて高沸点成分液の表面張力が高い、いわゆる“positive system”を形成する場合、凝縮液が伝熱面上で滴状などの不規則な凹凸形状を示し、また、それらの不規則形状は時間的・空間的に変化する非定常特性をもつ。そのような凝縮液表面の濃度分布に基づく表面張力分布によって現象が生起する濃度差マランゴニ凝縮現象は水-エタノールあるいは水-アンモニアの混合蒸気などにおいて顕著に現れる。これまで、Mirkovich - Missen<sup>(1)</sup>, Ford - Missen<sup>(2)</sup>, 藤井ら<sup>(3)</sup>, 土方ら<sup>(4)</sup>, Morrison - Deans<sup>(5)</sup> により研究されてきている。著者の一部<sup>(6, 7)</sup>は伝熱面過冷度が濃度差マランゴニ凝縮の凝縮液形態および熱伝達特性を支配する基本的な要因であることを示した。すなわち、通常の二成分蒸気の凝縮に特有な蒸気側の熱抵抗を形成する拡散抵抗に加えて、凝縮液側に濃度差マランゴニ滴状凝縮が広い範囲に存在することから、凝縮液形態の遷移を伴うことにより熱伝達率の変化は凝縮面過冷度に対して強い非線形性をもつ。図 1 および表 1 にそのような凝縮特性曲線の性質をまとめて示した。ここで、 $\alpha$  は熱伝達率を表す。図表中のアルファベット記号は凝縮特性曲線を特徴づける点を表しており、それぞれ対応している。ここでは、B 点を熱伝達率の急増開始点、D 点を極大熱伝達率点と呼ぶ。それら 2 点間を含む広範囲な過冷度域において凝縮液形態は滴状を示し、B 点から D 点に近づくにしたがって顕著に現れる傾向を持つ。このような濃度差マランゴニ滴状凝縮の凝縮液の熱抵抗を決める主要な因子として伝熱面上の凝縮液の液滴径分布および液滴の形成されていない薄液膜部分の液膜厚さに関する知見を得ることが重要である。まず、滴径分布における最小径に関して、著者ら<sup>(8)</sup>は、濃度差マランゴニ滴状凝縮サイクルの基礎となる、離脱液滴による掃除後の過渡的な凝縮液挙動を対象とし、伝熱測定と高速度撮影による液滴の挙動に関する平面的な観測を実施した。その結果、離脱液滴の掃除直後の薄液膜から生成する液滴の間隔、すなわち初生液滴間隔は伝熱面過冷度に依存し、その変化は伝熱特性曲線における熱伝達率の変化と良く対応していることを明らかにした。図 2 にそのときの代表的な条件における凝縮液の様子を示した。離脱液滴に掃除された後に現れる初生液滴は冷却強度に大きく依存していることが確認される。しかし、本現象の良好な熱伝達は蒸気側拡散抵抗の液相線温度付近での急減少と凝縮液膜厚さに支配されるはずであり、凝縮液側の検討には、上記の平面的な液滴情報に加えて、離脱液滴の掃除直後あるいは液滴間に現れる薄凝縮液膜厚さに関する知見が重要である。しかし、これらの薄液膜厚さはかなり薄いもの



Table 1 Characteristics of Marangoni Condensation heat transf.

Domain	Characteristics
Smaller $\Delta T$ than steep increase pt. (B) (Vapor-side dominant region, A-B)	Small $\alpha$ Diffusion resistance dominant
Linear increase of $\alpha$ from pt. (B) to pt. (C) (Steep increase region, B-C)	Reduction of diffusion resistance Dropwise condensation
Departing from linear increase Maximum $\alpha$ pt. (D) Negative gradient region (Transition region, C-E)	Reduction of $\alpha$
(Film region (E-))	Film condensation

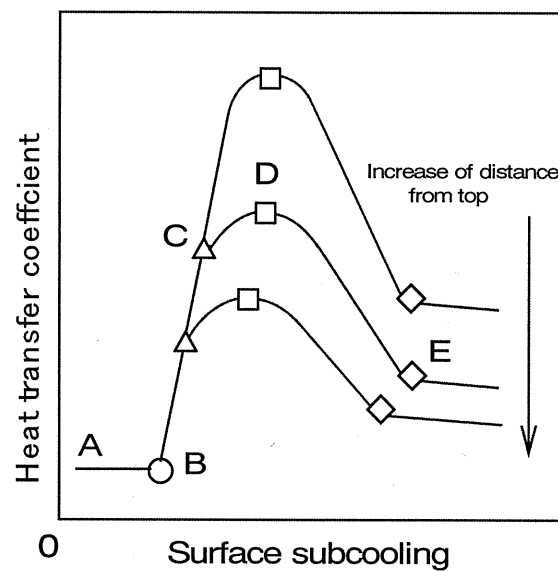
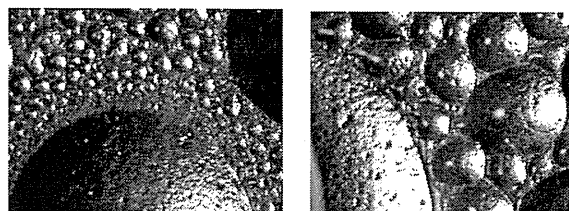


Fig.1 Nature of condensation characteristic curve for Marangoni condensation



(a)  $\Delta T = 15.2$  K

(b)  $\Delta T = 29.5$  K

Fig.2 Aspect of condensate ( $c=0.37$ )

0.2 mm

と予想されるが、その出現部分の寸法は液滴の間に存在するためかなり小さく、また非定常的な位置変化を伴うため測定は難しく、その値は知られていない。

一方、沸騰あるいは凝縮など相変化を伴う熱伝達現象は、一般に極めて良好な熱移動特性を示し、それらは極めて薄い液膜あるいは小さい液滴などの非定常かつ局所的な狭い範囲で生じる不規則現象によっている。このような性質は、上述の濃度差マランゴニ凝縮現象だけでなく、核沸騰、滴状凝縮などにおいて顕著に現れるが、測定の難しさのため、薄液膜の定量的特性に関する知見は充分でない。従来、液膜厚さ測定法として、金属針の先端の接触による導通、あるいは伝熱面上に設置した2位置間の抵抗変化など、液膜厚さによる電気抵抗値の変化からその厚さを決定する方法が多く用いられてきている。しかしそれらの方法においては、伝熱面上に特殊な加工を必要とするなど、液膜への何らかの付加的接触物により不要な乱れを生じさせることになる。本研究の測定対象とする液膜厚さは非常に薄く、また変化が速いことを考慮すると、非接触状態での光学測定方法の利用が望ましいとか考えられる。また、本研究では濃度差マランゴニ凝縮に関する測定を対象としているが、そのような薄液膜測定法の確立は他の現象解明のための有力な手段となるものと考えられる。

本研究では、波長  $3.39\ \mu\text{m}$  をもつ赤外レーザ光の凝縮液による吸収を利用するレーザ吸光法を凝縮液膜厚さの非定常成長過程の測定に適用する。なお、このような原理に基づいた伝熱工学分野における液膜厚さ測定法への適用例はあまり見られないため、例えば従来明らかになっていない混合作動流体の消光性質の測定など、測定法の基本的な部分から検討する必要がある。本報告では、赤外レーザ吸光法による薄液膜の測定可能性に関する検討を以下の項目について行う。

- (1) 本研究で使用する水-エタノール混合液体の赤外光消光係数の値を明らかにする。
- (2) 微小な薄液膜部寸法の測定に対応するレーザ光照射寸法を実現する。
- (3) レーザ光照射位置と凝縮液挙動の対応を明らかにする。

上記の3項目から得られる情報、すなわち薄液膜厚さと作動流体の消光性質により決まる消光割合、薄液膜の平面的寸法とレーザ光のビーム径の相対的關係、および他の誤差要因の検討に基づく薄液膜厚さ測定精度を考慮した本測定の適用可能性について明確にする。

## **1-2 実験装置および方法**

### **1-2-1 水-エタノール混合液の消光係数測定装置**

消光係数の決定には、式 (1) で示される Lambert の法則を用いた。

$$A = -d^{-1} \times \log(I/I_0) \quad (1)$$

ここで、 $A$ ：消光係数 [ $\text{m}^{-1}$ ]， $I_0$ ：入射光強度， $I$ ：透過光強度， $d$ ：消光物質光路長 [ $\text{m}$ ] を表している。消光係数  $A$  はレーザ光が通過する液体の質量濃度に依存する未知量であり、液膜厚さ測定の前に予め定めておくことが必要である。レーザ光の透過割合の測定値  $I/I_0$  および既知の液膜厚さから消光係数  $A$  を算出した。なおここでは、入射光強度とは簡単のための呼称であり、透過光強度測定と同様の測定系のまま、試料を封入しないときの透過光強度を意味している。図 3 に水—エタノール混合液の赤外レーザ光の消光係数測定系を示した。直径 2.6 mm、波長  $3.39 \mu\text{m}$ 、出力 4.0 mW のヘリウムネオンレーザがビームコリメータにより直径 52 mm の平行光に変換された後、使用赤外線用の光学用シリコン製集光レンズ（焦点距離 150 mm）により集光され、ビームウエスト部が混合液の封入された薄液層を通過する。一部が石英ガラス製容器に封入された試料により吸収され、通過した光は石英ガラス製レンズにより集光されセレン化鉛製ディテクタ（受光面  $3 \times 3 \text{ mm}^2$ 、時定数  $1 \sim 3 \mu\text{s}$ ）により透過光強度  $I$  が測定される。上述のように、入射光強度  $I_0$  は同一の系において、試料容器に試料の入っていない状態で測定される。以上の光学装置により試料部におけるレーザ光直径は約  $30 \mu\text{m}$  に集光された。試料の作成には 2 種類の方法を用いた。一つは、側方を閉じた 2 枚の石英ガラス板の間隙に試料を封入する方法であり、試料厚さ  $20 \sim 48 \mu\text{m}$  における測定を行った。試料厚さの測定には、ガラス間隙を高精度顕微鏡にて読みとる方法を採用した。次に、さらに薄い  $3 \sim 30 \mu\text{m}$  の試料の場合には、中央を切り取った既知厚さの金属板を 2 枚の石英ガラス板に試料とともに挟み込み剛性の高い板により圧着固定し、挿入板の厚さを試料厚さとして採用した。

### I-2-2 凝縮装置の構造

本測定に用いた混合蒸気の凝縮室およびその冷却室部分をそれぞれ図 4 および図 5 に示した。本研究においては、赤外レーザ光が凝縮装置および冷却装置内を通過することから、光学測定を用いない従来のものと比べて特別な工夫を必要とする。まず、図 4 の凝縮室において、蒸気の通過する流路の両面には赤外光の透過の良好な石英ガラス製の観察窓と凝縮用伝熱面が取り付けられている。伝熱面寸法は  $12 \times 12 \text{ mm}^2$ （有効面積  $9 \times 9 \text{ mm}^2$ ）、厚さ  $30 \mu\text{m}$  とした。伝熱面上方には、露点から蒸気濃度を定めるための補助伝熱ブロックが取り付けられており、既報<sup>(6)</sup>と同様である。図 5 に示すように、冷却には赤外光に対して透明な窒素ガスを用いた。レ

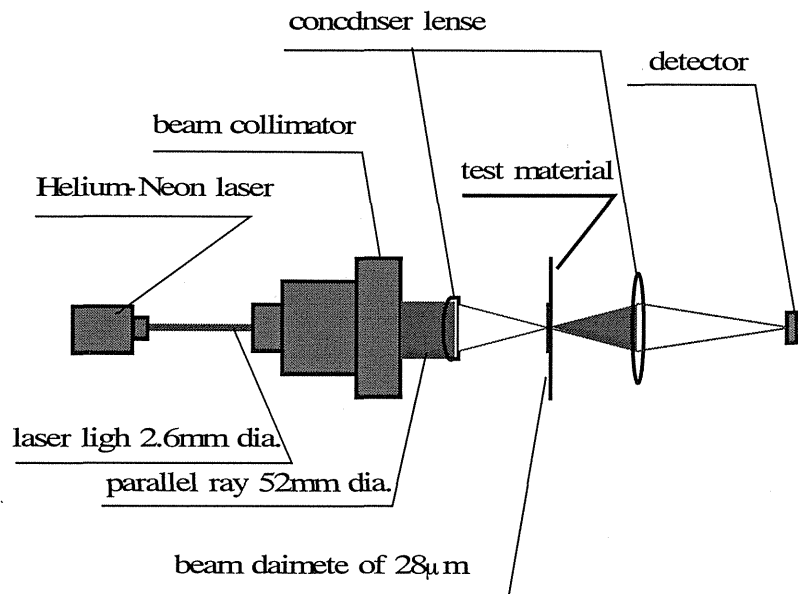


Fig.3 Apparatus for measurement of absorption property

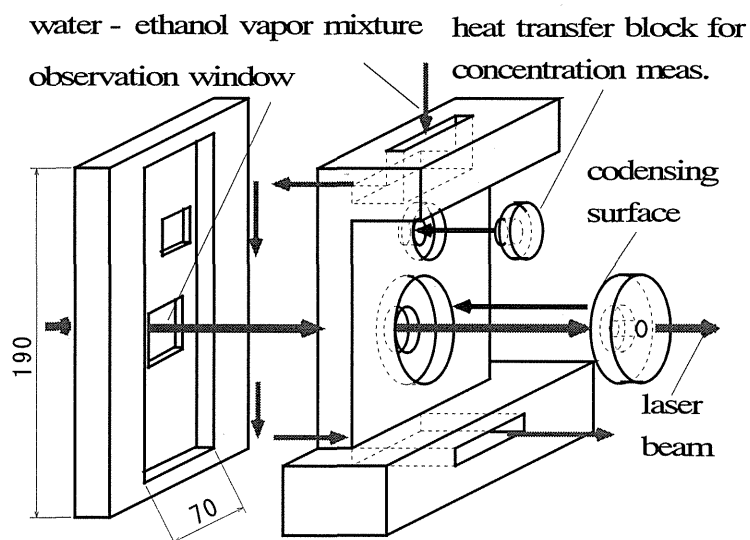


Fig.4 Condensing chamber

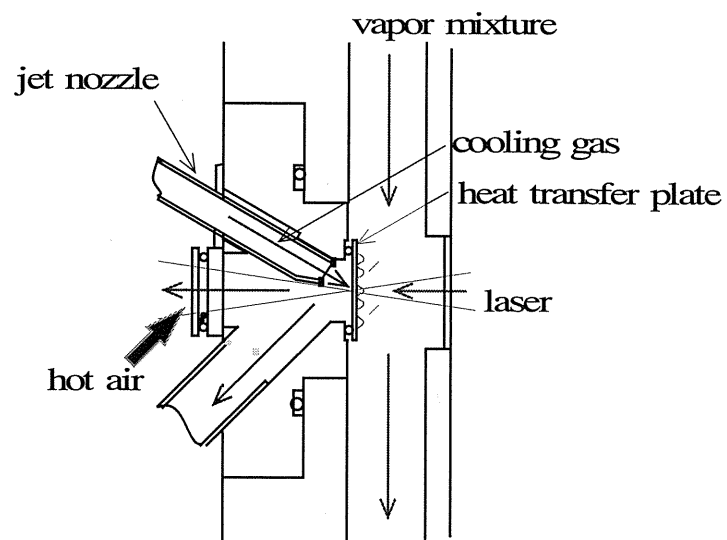


Fig.5 Cooling chamber

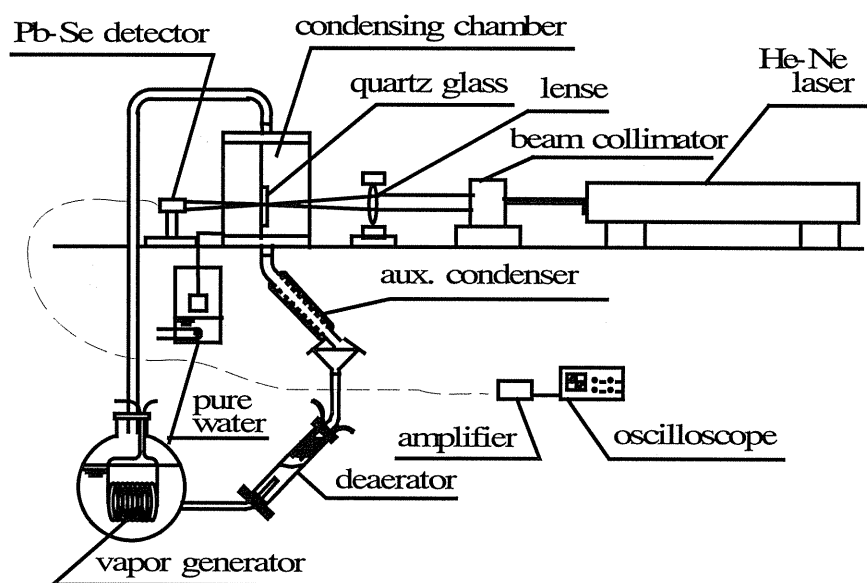


Fig.6 Experimental system

ーザ光の通過を妨げないように、先端を変形させた内径 8 mm のノズルを冷却室内に斜めに配置し、液体窒素タンクから蒸発させた低温窒素ガス噴流を伝熱面に斜めに衝突させる構造とした。また、冷却側透過ガラスを二重構造とした上、曇り止め用の高温空気を外部から当てることによりレーザー光の透過を妨げないようにした。

### I-2-3 凝縮液膜厚さ測定装置

本研究で用いた実験装置全体図を図 6 に示す。主に凝縮装置を含む蒸気ループと冷却系、およびレーザー吸光測定装置から構成される。蒸気発生器内部の電気ヒータにより試料液体を加熱・蒸発させ、発生蒸気は凝縮室、補助凝縮器、脱気装置などを経て蒸気発生器に戻る。補助凝縮器と受液器の間の小孔を通じて大気開放してあるので、蒸気系はほぼ大気圧に保たれる。前述のように、混合蒸気は液体窒素の蒸発気体噴流より冷却され、凝縮室内の石英ガラス製伝熱面上で凝縮する。

レーザー吸光測定装置系は 2.1 節で述べた混合液の消光係数測定装置とほぼ同様であり、混合液試料の代わりに凝縮装置が設置されている。なお、赤外レーザー光は可視範囲にないため、光軸合わせおよび伝熱面上での透過位置の決定に、ミキサおよび LD プロジェクタを用いて可視光線を補助的に利用した。また直径の異なるワイヤ等の遮光物体を用いて実際のビームサイズを測定した結果、前述のように、測定部における直径は約 30  $\mu\text{m}$  であった。ディテクタで検出した信号を直流アンプにより増幅し、デジタルオシロスコープに取り込み記録した。また、凝縮液挙動との対応を確認するため、凝縮液の様相を高速デジタルカメラにより同期撮影した。

## I-3 結果 および 考 察

### I-3-1 水-エタノール混合液の消光性質測定

図 7 は、水-エタノール混合液の消光係数を定めるための測定結果を示している。2.1 節に記したように、2 種類の方法により試料厚さを決定した。図中の黒塗り記号は試料容器間隙の顕微鏡測定による結果を示している。試料厚さ約 30~50  $\mu\text{m}$  の測定範囲において、エタノール濃度と消光係数の関係は、液層厚さに関わらず一定の傾向を示していることが確認される。また、図中の白抜き記号が試料厚さ 3 ~ 20  $\mu\text{m}$  の薄板を挟み込んだ場合で、定性的傾向は良く一致しているがやや大きな値を示した。しかし、薄板を挟む場合には、実際の試料は薄板厚さよりも若干大きくなりやすいこと、また、差異は約 20 % 程度であることを考慮して、以後の測定においては破線で示される間隙測定の関係を用いて凝縮液厚さを決定することとした。以上の結果から、本赤外光に対する吸収性の強い炭化水素系試料であるエタノールだけでなく、水にも比較的大きな消光性が存在した。そのため、消光性の濃

度依存性はあまり強くない．また，消光係数はエタノール濃度に対して線形性を示すことから，それぞれの成分の単位厚さ質量に比例する消光特性を有することがわかる．

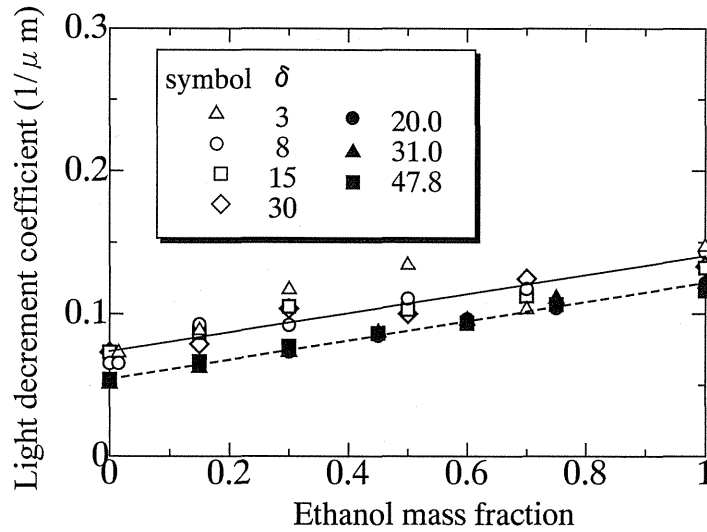


Fig.7 Light decrement coefficient of water-ethanol mixtures

### I-3-2 凝縮液挙動と測定位置との対応

蒸気エタノール質量分率  $c = 0.30$ ，蒸気流速  $v = 0.7$  m/s の条件の下で，離脱液滴の掃除後の薄液膜状態から開始される微小液滴群の形成・成長過程における液膜厚さと凝縮液の様相の同時観測を行った．掃除された直後に液膜の平滑な状態がわずかに保たれた後，急速に液膜に凹凸が生じ液滴群が形成される．図 8 に離脱液滴による掃除中あるいは掃除直後の高速撮影画像を示した． $t = 0$  ms の画像において，右側の大きな黒い部分が離脱液滴，左側の白く現れている部分が薄液膜，ほぼ中央の白抜き線の円がレーザ光の通過部分を表している．レーザ測定位置は， $t = 0$  ms のとき離脱液滴で覆われているが，その後，離脱液滴は右下方向に移動し， $t = 6$  ms では離脱液滴の掃除直後の薄液膜部上にある． $t = 12$ ， $20$  および  $28$  ms では直径  $0.1$  mm 程度の液滴部分が測定されている．さらに， $t = 36$ ， $44$  ms では，測定位置は液滴間の薄液膜であるが， $t = 54$  ms の画像からわかるように，そこでは次の小液滴の形成が始まっている．なお，本測定の初生液滴間隔は  $d_i = 120$   $\mu$ m であった．前報<sup>(8)</sup>の結果から，この条件は熱伝達の急増開始点よりやや大き

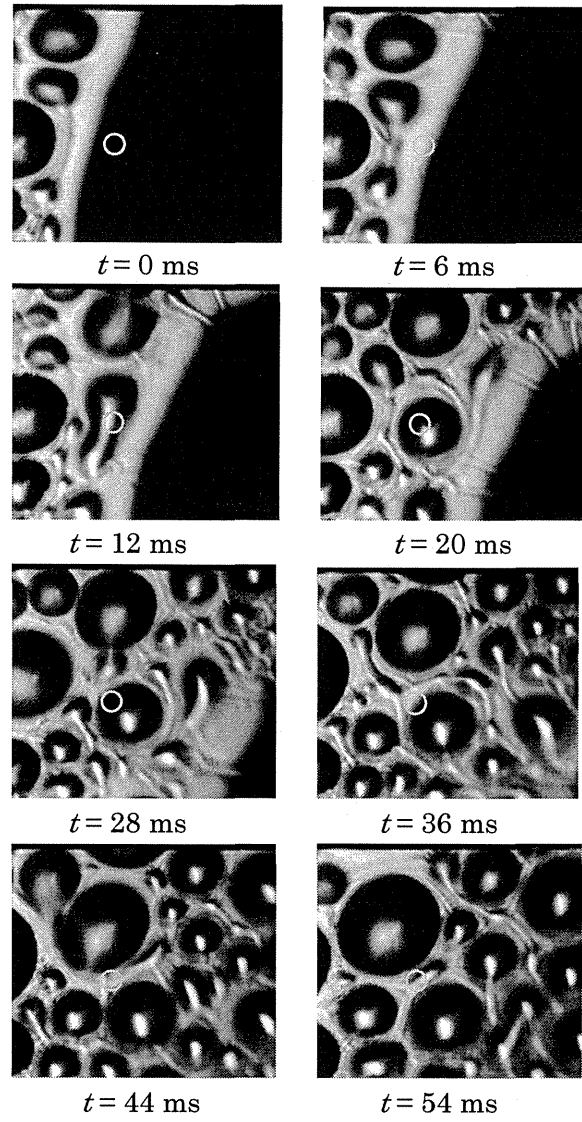


Fig. 8 Variation of condensate aspect  $\overline{\text{0.2 mm}}$

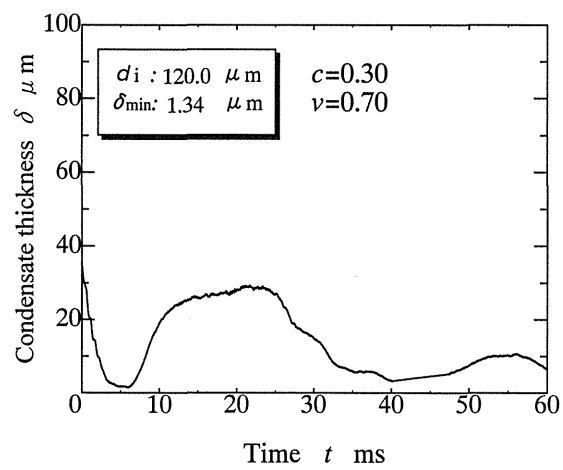


Fig.9 Variation of condensate thickness



な過冷度域の状態にあるものと予想される。以上から、本測定のレーザ照射部寸法約  $30\mu\text{m}$  を実現することにより離脱液滴による掃除後の平滑薄液膜部あるいは液滴間の薄液膜部の厚さに関する情報を得られることが確認される。

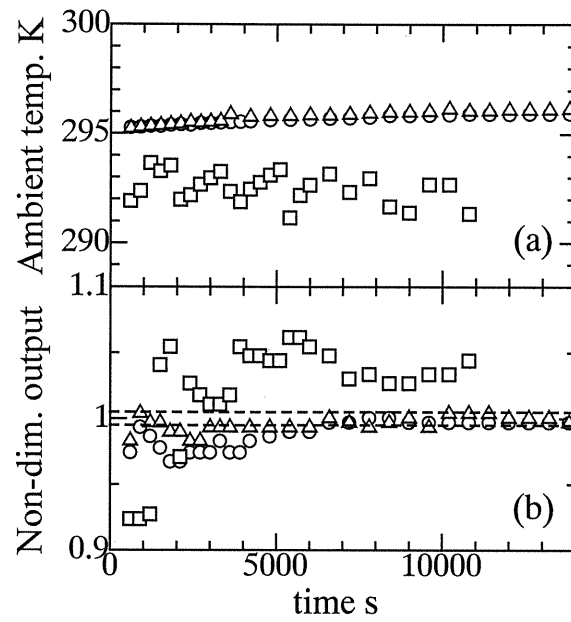
**I-3-3 凝縮液膜厚さの測定** 図9は離脱液滴によって掃除された直後からの液膜成長過程において、レーザ吸光法により測定された  $I/I_0$  を用いて凝縮液膜厚さ  $\delta$  を計算した結果を示している。ここで、時刻  $t$  は図8の画像と対応している。図9において、液膜厚さは  $t = 6 \sim 7\text{ms}$  のときに最小値  $\delta_{\min} = 1.3\mu\text{m}$  を、また  $t = 40\text{ms}$  付近で極小値を示しており、図8の画像と非常に良い対応を示していることがわかる。したがって、掃除直後の液膜厚さはほぼ  $1\mu\text{m}$  のオーダーの比較的薄い液膜が存在し、また、伝熱面は常に凝縮液でぬれていることが確認される。なお、ここでは離脱滴の掃除直後に出現する平滑な液膜厚さ測定を目的としており、滴状など表面形状が平滑でない状態では、膜厚の不均一、および傾斜面へのレーザ光透過に関する検討が十分でないことから特に定量的な議論は行わない。

#### I-4 測定精度の検討

濃度差マランゴニ凝縮伝熱現象における特徴的な薄液膜の厚さスケールは  $1\mu\text{m}$  程度と測定されたが、レーザ測定系に係わるそのように非常に薄い液膜厚さの測定精度に関する検討を行っておく必要がある。前述のように、本実験系ではレーザ発振器からディテクタまでの間のレーザ光透過経路の設定は固定されているので、レーザ消光測定の精度を決める要因としては、構成機器、すなわちレーザ発振器とディテクタの安定性、および周囲状態、測定条件の変化によるそれらの出力あるいは安定性への影響をあげることができる。それらへの影響要因としては、室温変化および低温の冷却ガスによる周辺への影響が考えられ、次にそれらに関する検討結果を記す。なお、これらの検討項目は、本測定で用いた使用機器に固有のものであるが、それらが与える影響に関しては液膜厚さ測定の一般的な特徴を知る上で検討の価値があると考えられる。

##### I-4-1 周囲温度の影響

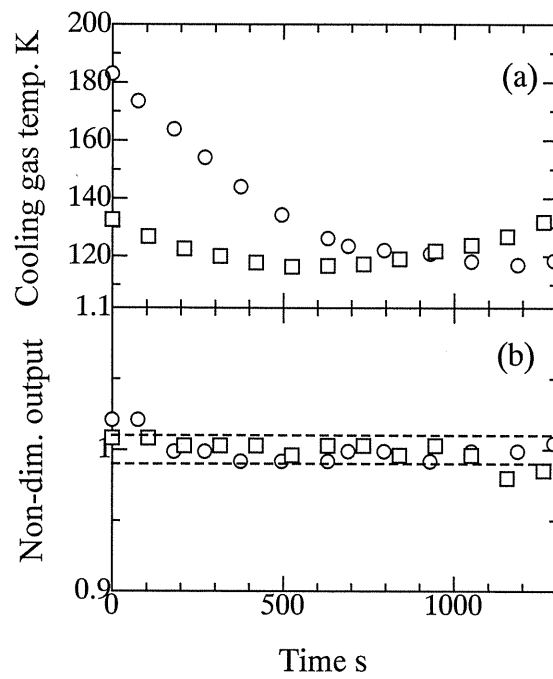
図10(a)(b)は、凝縮室に蒸気を通さない状態で、レーザ測定システムを起動した時からの周囲（室内）温度とそのときのディテクタ出力変化をそれぞれ示している。○印および△印は室温の自然な変化が与えられた場合、□印は空調機により室温を意図的に大きく変化させた場合を表している。ここでは比較の簡単のため、図10(b)



(a) Time variation of ambient air temperature

(b) Time variation of detector output

Fig.10 Effect of ambient air temperature



(a) Cooling gas temperature

(b) (b) Non-dimensional output variation

はいずれの場合にも縦軸の値を同一の代表値で規格化しており、2本の破線は $\pm 0.5\%$ の誤差を表している。ディテクタ出力は比較的強い温度依存性を有しており、周囲温度の低下に伴って増加することがわかる。しかし、起動から約100分程度の後には出力は安定し、室温の変化を0.5 K程度以内に設定することにより、出力変化を $\pm 0.5\%$ 以内に収められることがわかる。

#### I-4-2 冷却ガスの影響

次に、本実験の冷却媒体に液化窒素の蒸発ガスを用いているため、その低温が温度変化ばかりでなく、周囲水蒸気の結露など冷却室近傍に影響を与える可能性が考えられる。ここでは冷却ガス温度の変化を与えときの、レーザ発振器からディテクタまでの測定系全体にわたる総合的な測定値の変化を考慮した。なお、ディテクタ部分に低温ガスが近づかないこと、および冷却室の周囲との仕切りには二重ガラスと加熱ヒータを用いて結露を防止していることなど、凝縮室に水蒸気を通さないこと以外は実験時と同様の状態としている。ここでは、4.1節のディテクタに対する室温の影響が重なりにくいように、室温の変化の小さい状態を保って行った。図11 (a) は実際の測定時の冷却ガス温度範囲に対応する2通りの温度変化を、図11 (b) はそのときの出力変化をそれぞれの平均値で規格化して示している。レーザ測定系の安定する起動から約100分以後の測定結果を示している。図11 (b) から、ディテクタ出力の変化はほぼ $\pm 1\%$ 以内の変化に収まっていることが確認される。

#### I-4-3 総合的精度の検討

上記以外に、入射光強度と透過光強度測定時の違いによる要因として、伝熱面上の液膜の有無によるレーザ光の反射状態の変化の可能性が考えられた。ここではガラス製伝熱面上に、液膜の存在する状態から冷却側を徐々に加熱してゆき、薄液膜が蒸発により消滅する過程の透過光強度の連続測定を行った。その結果、液膜消滅の前後で透過光強度の変化は見られず、液膜上での表面反射の影響はほとんど現れないことを確認した。

次に、厚さ測定の対象である凝縮液は2成分液体であるため、図7に示されるように、消光係数は濃度依存性を有している。したがって、液濃度の違いが固有の誤差として加わってくることになる。気液相平衡関係において、与えられた蒸気濃度の蒸気線(露点)温度と液相線温度におけるそれぞれの液相エタノール質量分率から、凝縮液の濃度の最大範囲をほぼ特定することができる。3.1節より明らかなように、水-エタノール混合液の消光係数の濃度依存性は特に強くないため、考慮すべき濃

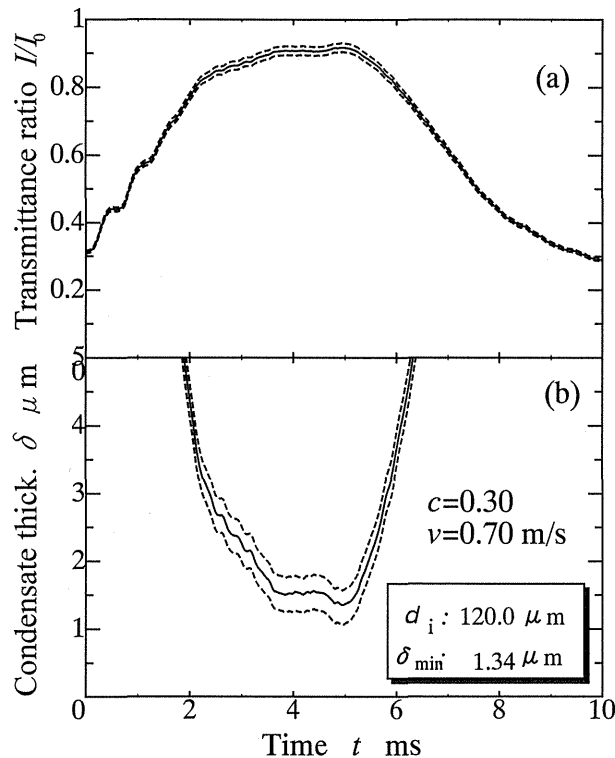


Fig.12 Precision in thickness measurement

(a) Transmittance ratio  $I/I_0$  (b) Condensate film thickness

度範囲は比較的大きいながら、消光係数に及ぼす誤差は特に大きなものにはなりにくい。本測定は蒸気エタノール質量分率  $c = 0.3$  の場合には、濃度による消光係数の誤差として  $\pm 13\%$  の値が導かれる。消光係数は液膜厚さに逆比例することから、液膜厚さの誤差も同様の値である。本研究ではこれらの濃度範囲のほぼ中央値を採用しており、離脱液滴により掃除された直後の液濃度は掃除作用により何らかの混合されたものとなるため、液体濃度の中央値との差異は大きくないものと予測される。なお、本測定例は比較的高いエタノール濃度条件における場合であるが、低濃度になるほど本誤差は小さくなる。

以上より、上記の測定誤差のうち、測定法固有の値として上述の 4.2 節および 4.3 節を考慮すると、入射光強度と透過光強度の比の誤差として最大約  $\pm 1.5\%$  が考えられることがわかった。ただし、それら 2 種類においては、レーザ発振器の安定性による誤差などが双方の測定に重なりを有しているため、値をやや大きく見積もっていると解釈される。以上に基づいて、図 9 の測定例の測定誤差検討を行った。12(a)(b)は、それぞれ入射光強度と透過光強度の比およびその値から液膜厚さに換算した場合の誤差範囲を示したものであり、図 12 (b) 中の実線は図 9 の一部を拡大したものである。本検討結果から、約  $1.3 \mu\text{m}$  の液膜厚さに対して、 $\pm 28\%$  以

内の測定精度を有していることが確認される。なお、ここでは液体濃度および消光係数に起因する誤差を除外しているが、前記のようにその値は相対的に大きくないと考えられる。

## I-5 結 論

波長 3.39  $\mu\text{m}$  をもつ赤外レーザー光の凝縮液の消光による減衰を利用する方法を濃度差マランゴニ滴状凝縮現象における薄凝縮液膜厚さの非定常測定に適用し、以下の結果を得た。

- (1) 本研究で使用する水-エタノール混合液体の赤外光吸収係数の測定を行い、混合液体の消光性質を明らかにした。
- (2) レーザ光の集光により、微小な薄液膜部寸法に対応する直径約 30  $\mu\text{m}$  のレーザー光照射寸法を実現した。
- (3) 液膜厚さ測定位置と凝縮液挙動の対応関係を明確にし、離脱液滴による掃除後の平滑薄液膜部あるいは液滴間の薄液膜部の厚さ情報を得られることを薄液膜部の膜厚測定と凝縮様相の同時観測により確認した。
- (4) 上記の(1)～(3)項から得られる情報、すなわち薄液膜厚さと作動流体の消光性質により決まる消光割合、薄液膜の平面的寸法とレーザー光のビーム径、および他の誤差要因の検討に基づく薄液膜厚さ測定精度を考慮した結果、本測定の液膜厚さ 1  $\mu\text{m}$  程度の測定へ適用可能であることを示した。

本実験に協力いただいた元横浜国立大学学生、花田元六君、矢野誠君に謝意を表する。本研究の一部は科学研究費補助金（12650194）の補助を受けて遂行された。

## 文 献

Mirkovich, V.V. and Missen, R.W., Non-Filmwise Condensation of Binary Vapors of Miscible Liquids, Canadian J. chem. Eng., (1961) pp.86-87.

Ford, J.D. and Missen, R.W., On the Conditions for Stability of Falling Films Subject to Surface Tension Disturbances; the Condensation of Binary Vapor, Canadian J. chem. Eng., Vol.48 (1968) pp.309-312

Fujii, T., Osa, N. and Koyama, S., Free Convective Condensation of Binary Vapor Mixtures on a Smooth Horizontal Tube: Condensing Mode and Heat Transfer Coefficient of Condensate, Proc. US Eng. Foud. Conf., (1993) pp.171-182.

土方, 深作, 中別府, 水・エタノール混合蒸気の凝縮における液滴発生機構の不安定解析, 機論(B), Vol.60, No.572 (1994) pp.1337-1342.

Morrison, J.N.A. and Deans, J., Augmentation of Steam Condensation Heat Transfer by Addition of Ammonia, Int. J. Heat Mass Transfer, Vol.40, No.4 (1997) pp.765-772.

宇高, 寺地, 水-エタノール 2 成分蒸気の凝縮熱伝達特性曲線の測定, 機論(B), Vol.61, No.583 (1995) pp.1063-1069.

宇高, 寺地, 水-エタノール混合蒸気の凝縮熱伝達に関する研究 (凝縮熱伝達特性曲線と凝縮液形態の関係), 機論(B), Vol.61, No.588 (1995) pp.3059-3065.

宇高, 剣持, 横山, 水-エタノール混合蒸気の凝縮熱伝達に関する研究 (濃度差マランゴニ滴状凝縮における液滴形成および離脱過程の観測), 機論(B), Vol.64, No.626 (1998) pp.3364-3370.

# 混合蒸気の濃度差マランゴニ凝縮における 赤外レーザー吸光法による凝縮液厚さ測定

## Part II : 測定結果とその検討

## II-1 はじめに

非共沸混合作動流体の蒸発・凝縮などの気液相変化伝熱過程では、相変化の生じている気液界面における温度と濃度は混合物質固有の気液相平衡関係に従う。そのため、温度と濃度の分布に基づく表面張力差による液面不安定が拡大し、マランゴニ対流が液相内に生じる場合が存在する。低沸点成分液体に比べて高沸点成分液体の表面張力が大きい "positive system" を形成する混合蒸気の凝縮において、Mirkovich-Missen, Ford-Missen<sup>(1,2)</sup> に示されるように、凝縮液面上での表面張力分布の生起により凝縮液は滴状などの不規則な形態を示す。その現象は伝熱面表面が疎液性を持つ場合に限って生じる非ぬれ面上の滴状凝縮とは本質的に異なり、非ぬれ性表面を生成の条件としない。したがって、疎液性面上で生起する滴状凝縮と区別するためにここではそのような現象を濃度差マランゴニ凝縮あるいは濃度差マランゴニ滴状凝縮と呼ぶ。本現象は膜状と滴状の間の凝縮液形態遷移を伴う冷却強度に強い依存性を有する現象である。しかし、従来の多くの実験的な研究においては、凝縮液形態を支配する主要な条件として混合蒸気濃度が着目され、その影響について論じられてきたため、凝縮面過冷度の影響は充分には明らかにされてこなかった。著者らの一部<sup>(3,4)</sup> は、水-エタノールの混合蒸気濃度を一定に保った条件で、凝縮面過冷度の比較的小さい側から大きな領域にわたる測定を行い、水-エタノール濃度差マランゴニ凝縮熱伝達は凝縮面過冷度に強い依存性を持つことを示した。凝縮面過冷度を変化させるときの熱流束あるいは熱伝達率の変化を表す濃度差マランゴニ凝縮の伝熱特性曲線を図1のようにまとめることができる。それ

らは凝縮液の伝熱抵抗を決める凝縮液形態と気液界面付近に形成される蒸気相内拡散抵抗の変化に依存しており、過冷度の変化にともなって複雑な挙動を示す。ここで、複数に分かれている線は伝熱面位置の影響を表している。凝縮特性曲線を特徴づける点Bを熱伝達率の急増開始点、直線的増加を示すB-C間を急増領域、点Dを極大熱伝達率点と呼ぶ。これらの過冷度域

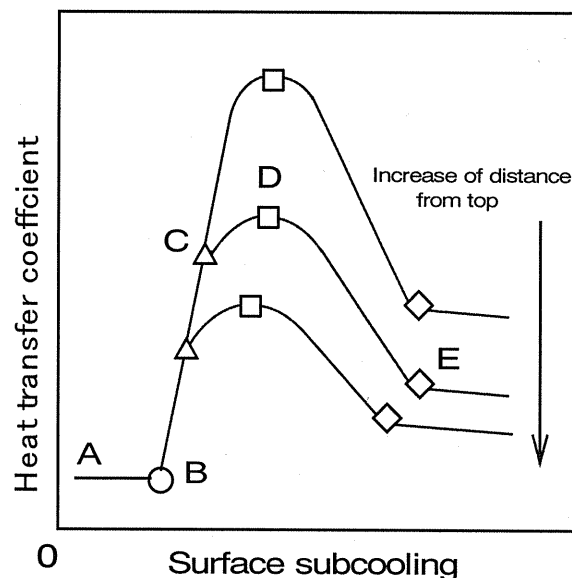


Fig.1 Condensation characteristic curves



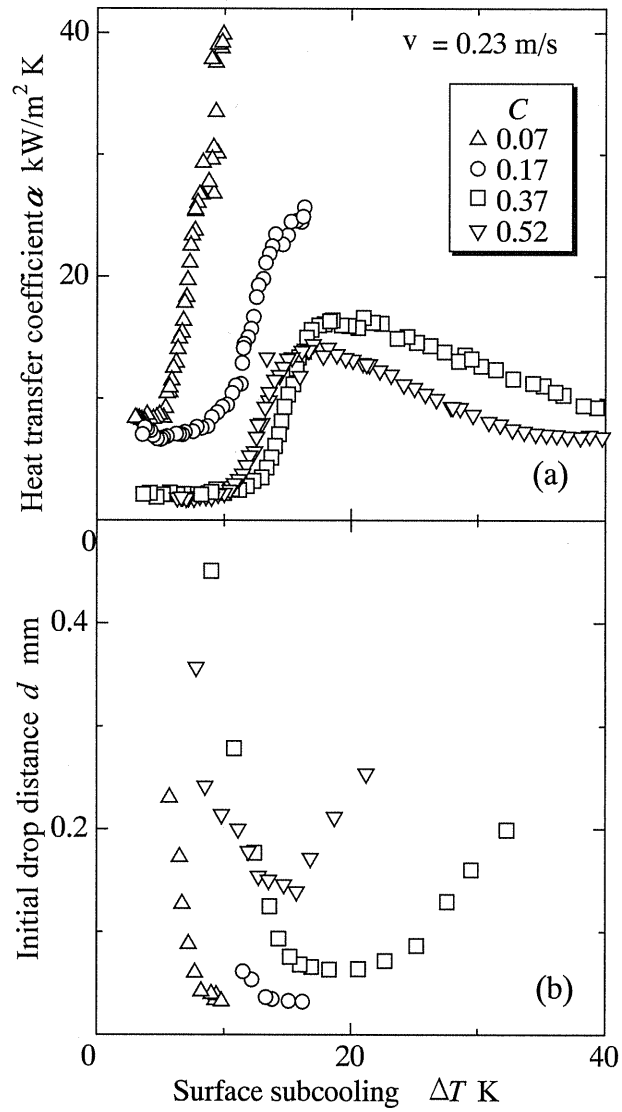
を含むより広い範囲で凝縮液形態は滴状を示す。

一般に、凝縮伝熱の促進においては、非定常変化のもとに凝縮液の薄膜化あるいは微小滴化が有効となることが多く存在し、本現象においても同様と考えられる。したがって、極めて良好な熱的特性を有する濃度差マランゴニ凝縮現象を知る上で、比較的小さいスケールを特徴とする非定常現象としての凝縮面上の液滴群挙動に関する詳細かつ系統的な知見を得ることが重要と考えられる。これまで、藤井ら<sup>(5)</sup>により、水平円管外表面上における実験が行われ、液滴寸法および蒸気濃度と液滴形状の関係などが報告されている。また、土方ら<sup>(6)</sup>は、薄液膜から液滴への形状変化の生起条件に関する不安定解析を行い、実験との定性的な一致を示している。しかし上述のような、液滴の更新サイクルを決める液滴の離脱、液滴の生成あるいは成長などと凝縮伝熱特性との系統的・定量的な関係およびそれらと密接な関係を持つと考えられる凝縮液薄液膜部の特性に関しては十分な検討は行われてきていない。

本研究では、濃度差マランゴニ滴状凝縮における凝縮サイクルの基礎となる、離脱液滴による掃除後の過渡的な凝縮液挙動を対象としている。測定精度の検討を行った前報<sup>(7)</sup>で詳述したレーザの凝縮液による消光減衰を利用する方法を用いる。凝縮熱伝達を直接支配する局所凝縮液膜厚さ、および液滴間の薄液膜厚さを測定し、最小液膜厚さと初生液滴間隔などの濃度差マランゴニ凝縮の支配要因との関係を明らかにすることを目的とする。

## II-2 前報までの関連結果の概要

既報<sup>(8)</sup>では、水-エタノール濃度差マランゴニ滴状凝縮における離脱液滴による掃除後に開始される過渡的な凝縮液挙動の特徴を明らかにするため、伝熱測定と離脱液滴の掃除後に現れる液滴群の形成および成長過程の観察を同時に行った。その結果、液滴の離脱過程においては、離脱液滴による掃除直後の離脱液滴の上流側周縁に現れる狭い帯状部分には液滴は存在せず、その部分は平滑な液膜状であった。掃除後の時間経過が増大する上流側帯状部の隣接位置から小液滴の形成が観察されたことから、離脱滴に掃除された後に残る薄液膜から凸状の液滴の形成・成長が生じることを明らかにした。また小液滴群の液滴寸法は凝縮面過冷度に強く依存していた。これらの観測結果から、エタノール濃度あるいは伝熱面過冷度に対する凝縮液の変化特性を表すための因子として初生液滴間隔を採用した。ここで初生液滴間隔は離脱液滴の掃除後の薄液膜から形成される初期小液滴の平均間隔を意味する。熱伝達率の凝縮特性曲線と初生液滴間隔の凝縮面過冷度に対する変化を図2(a)



(a) Heat transfer characteristic curves  
 (b) Variation of initial drop distances  
 Fig.2 Characteristics of initial drop distance

(b) にそれぞれ示した。濃度差マランゴニ滴状凝縮では、過冷度の変化に対して初生液滴間隔は大きく変化し、最小値を有するU字型の曲線形状を示した。エタノール質量分率が7～50%において、初生液滴間隔は概ね30  $\mu\text{m}$  から300  $\mu\text{m}$  程度であった。いずれの濃度条件でも、初生液滴間隔の最小最小値の現れる過冷度は、図2(a)に示した凝縮特性曲線の極大熱伝達率のそれとほぼ一致するが、若干低めの過冷度において現れた。したがって、濃度差マランゴニ滴状凝縮の凝縮液抵抗の減少は、初生液滴間隔の減少と何らかの対応関係を有しているものと考えられた。また、初生液滴間隔はエタノール濃度にも比較的強い依存性を示し、エタノール濃度の低下にともなって減少する傾向を示した。さらに、熱伝達率の極大値付近の過冷度域で、初生液滴間隔および離脱液滴直径が最小となることから、凝縮液の伝熱抵抗は、液滴寸法の減少と液滴の形状がより球形に近づくことに対応していると考えられた。そのことは表面張力による液流駆動力の増大を意味しており、そのような場合に、液滴間の凝縮液の薄膜化が促進されているものと推察された。しかし、以上の結果からは初生液滴間隔と凝縮特性曲線との対応関係が存在することは理解されるが、初生液滴間隔の変化と実際の伝熱量を支配する要因である凝縮液膜厚さとの関係は明らかにされていない。

また、前報(7)では波長3.39  $\mu\text{m}$  をもつ赤外レーザ光の凝縮液による消光減衰を利用する方法を、濃度差マランゴニ滴状凝縮現象における薄凝縮液膜厚さの非定常測定に適用した。その結果として、(1)水-エタノール混合液体の赤外光吸収係数の測定、(2)レーザ光の集光による微小な薄液膜部寸法に対応する直径約30  $\mu\text{m}$  のレーザ光照射寸法の実現、(3)液膜厚さ測定位置と凝縮液挙動の対応関係の明確化、および(4)膜厚測定と凝縮様相の同時観測による薄液膜部の凝縮液厚さ情報取得可能性の確認、を行った。さらに、上記(1)～(4)項から得られる薄液膜厚さと作動流体の消光性質により決まる消光割合、薄液膜の平面的寸法とレーザ光のビーム径、および他の誤差要因の検討に基づく薄液膜厚さ測定精度を考慮することにより、液膜厚さ1  $\mu\text{m}$  程度の測定への適用が可能であることを示した。

### II-3 実験装置および方法

図3に本研究で用いた実験装置の概略を示す。前報(7)と同様な装置により実験を行ったので、ここでは要点を記す。本実験装置は凝縮装置とレーザ透過割合測定装置から構成される。蒸気ループ内を循環する混合蒸気は凝縮室に入り、伝熱面上で凝縮が生じる。レーザ光透過割合測定装置はヘリウムネオンレーザ(波長3.39  $\mu\text{m}$ )、セレン化鉛製ディテクタ等を用い、レーザ光が凝縮面上の凝縮液膜を通過

する際の透過割合を計測する．赤外線用の集光レンズ等の光学装置を用いて絞られたレーザ光の伝熱面上における照射部直径は約  $30\ \mu\text{m}$  である．レーザ光に対して透明性の高い有効面積  $9\times 9\ \text{mm}^2$ ，厚さ  $0.030\ \text{mm}$  の石英ガラス伝熱面を用いた．酸化チタン光触媒の塗布により伝熱面表面のぬれ性を高めた．凝縮室内部に設置した露点観測用銅ブロックの温度調節による凝縮開始温度の計測と気液平衡関係から濃度を決定する露点法を用いて蒸気濃度を決定した．測定用レーザに対して透明な性質を持つ液体窒素の蒸発ガス噴流を伝熱面の冷却媒体に採用した．窒素ガスの流量と温度を変化させることにより冷却強度を調節した．ディテクタで検出した信号を直流アンプにより増幅し、オシロスコープに取り込んだ．また、凝縮液挙動との対応を確認するため液膜厚さ測定と同時に凝縮液の様相の高速撮影を行った．試料としてエタノール質量分率  $C=0.11\sim 0.42$  の条件の水・エタノール混合蒸気を用いた．実験においては凝縮室内蒸気流速を  $0.7\ \text{m/s}$  の一定条件とした．

液膜厚さの決定には、式 (1) で示される Lambert の法則を用い、レーザ光の透過割合  $I/I_0$  から液膜厚さ  $\delta$  を算出した．

$$\delta = -A^{-1} \times \log(I/I_0) \quad (1)$$

ここで、 $A$ ：消光係数  $[\text{m}^{-1}]$ ， $I_0$ ：入射光強度， $I$ ：透過光強度， $\delta$ ：消光物質光路長  $[\text{m}]$  を表している．レーザ光の透過割合の測定値  $I/I_0$  と前報 (7) により

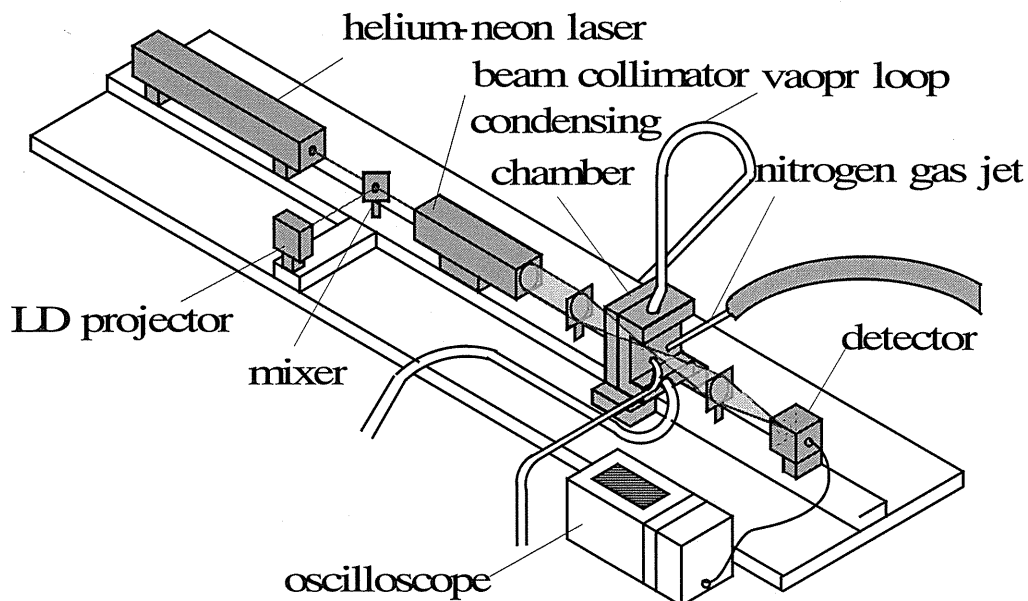


Fig.3 Experimental apparatus  
 for measuring condensate film thickness

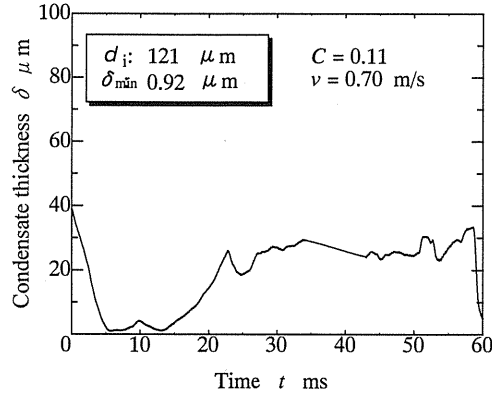
既知の消光係数  $A$  から液膜厚さを算出した．なおここで，入射光強度は透過光強度測定と同様の測定系，すなわち実験状態のままで伝熱面を乾燥させた状態における透過光強度を意味している．

## Ⅱ-4 実験結果および考察

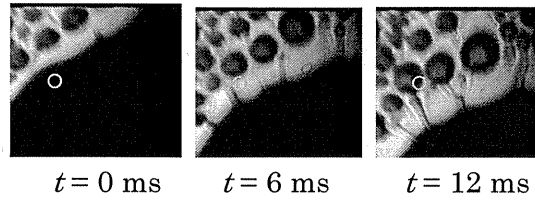
### Ⅱ-4-1 凝縮液滴形成過程と液膜厚さ変化

図 4 ～ 7 は，離脱液滴によって掃除された直後の薄液膜の出現・成長および液滴の生成過程における，レーザ光の透過率から求めた液膜の厚さ変化および同時に撮影した凝縮液様相の代表的な場合を例示している．蒸気のエタノール質量分率が 11 % における図 4 (a) (b) と図 5 (a) (b) は異なる冷却強度の場合を表しており，初生液滴間隔が異なっている．これらのうち図 4, 5 の (a) はレーザ光の消光割合測定から求めた凝縮液膜厚さを，(b) はそれぞれに対応する離脱液滴通過直後の凝縮液挙動を捉えた画像である．ここで，時間  $t = 0$  ms は任意に決めたものであり，それぞれの液膜厚さ変化と画像が対応している．図 4, 5 の (b) においてみられる画像中の黒い部分が液滴を，特に  $t = 0$  ms の画像の大きな部分が離脱液滴を表しており，左上から右下方に移動してゆく様子が分かる．また，比較的白く移っている部分が薄液膜部分を表しており，第 2 章で述べたように，掃除直後に薄液膜が現れ，その後に液滴が形成されてゆく様子がわかる．画像中の○印はレーザ光が透過している測定位置およびその大きさを示している．図 4, 5 の (a) の曲線から掃除直後の最小液膜厚さ  $\delta_{\min}$  を決定した．濃度差マランゴニ滴状凝縮においては，掃除直後にミクロンオーダーの比較的薄い液膜が存在し，伝熱面は常に液でぬれていることが確認される．図 4 (a) の  $t = 6$  ms において液膜厚さが極小値を示していることと，図 4 (b) の同時刻の画像におけるレーザ測定位置から，離脱液滴移動直後の薄液膜部分の膜厚が測定されていることとの良好な対応が確認される．この場合の測定値は，図 4 (a) 中に記してあるように  $\delta_{\min} = 0.92 \mu\text{m}$  であった．図 5 の (a) (b) は冷却強度のより低い場合を表しており，図 5 (a) からわかるように， $t = 8$  ms 前後で液膜厚さの測定値は極小値  $\delta_{\min} = 1.6 \mu\text{m}$  を示し，図 4 (a) の場合に比較して増大した．これは画像からもわかるように，初生液滴間隔がより大きなことに対応している．

図 6, 7 はエタノール質量分率が 30 % の場合における異なる初生液滴間隔の場合を表している．図 4, 5 の場合と初生液滴間隔はほぼ等しいにもかかわらず，最小液膜厚さの値が増大していることがわかる．なお，図 4 ～ 7 の (a) はレーザ光の透過割合の測定値から Lambert の法則を用いて膜厚を計算したものであるため，本研

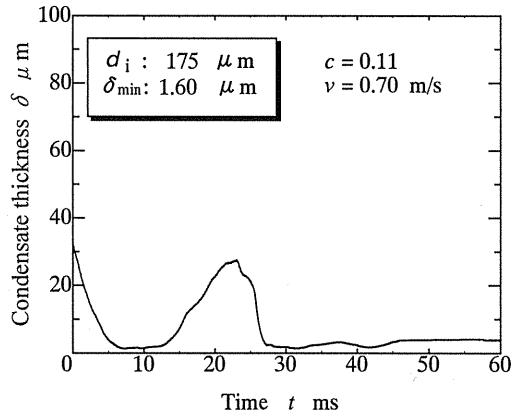


(a) Condensate thickness

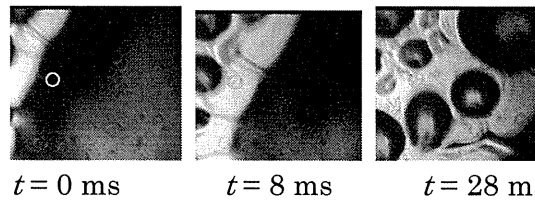


(b) Aspect of condensate

Fig.4 Variation of condensate thickness and aspect of condensate for  $C = 0.11$  and  $d_i = 121 \mu\text{m}$

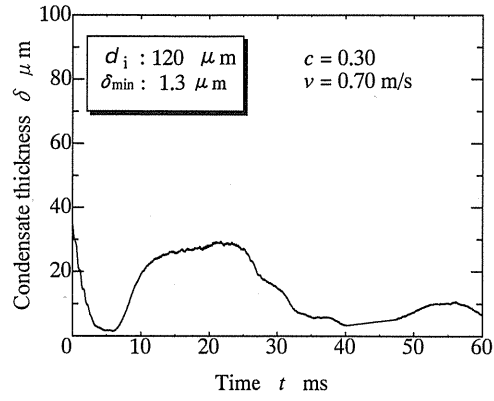


(a) Condensate thickness

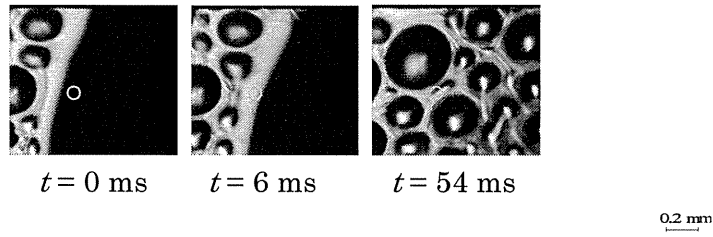


(b) Aspect of condensate

Fig.5 Variation of condensate thickness and aspect of condensate for  $C = 0.11$  and  $d_i = 160 \mu\text{m}$

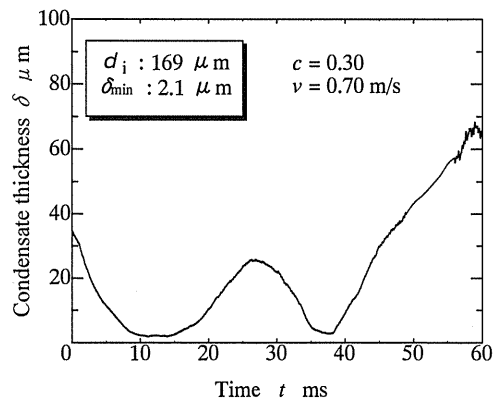


(a) Condensate thickness

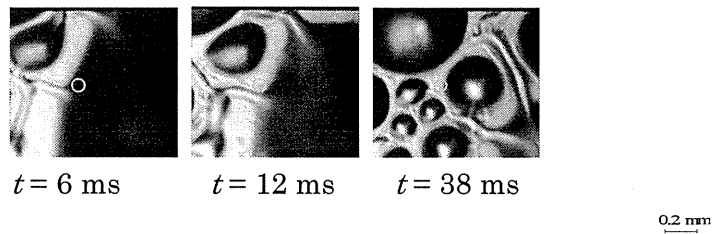


(b) Aspect of condensate

Fig.6 Variation of condensate thickness and aspect of condensate for  $C = 0.30$  and  $d_i = 120 \mu\text{m}$



(a) Condensate thickness



(b) Aspect of condensate

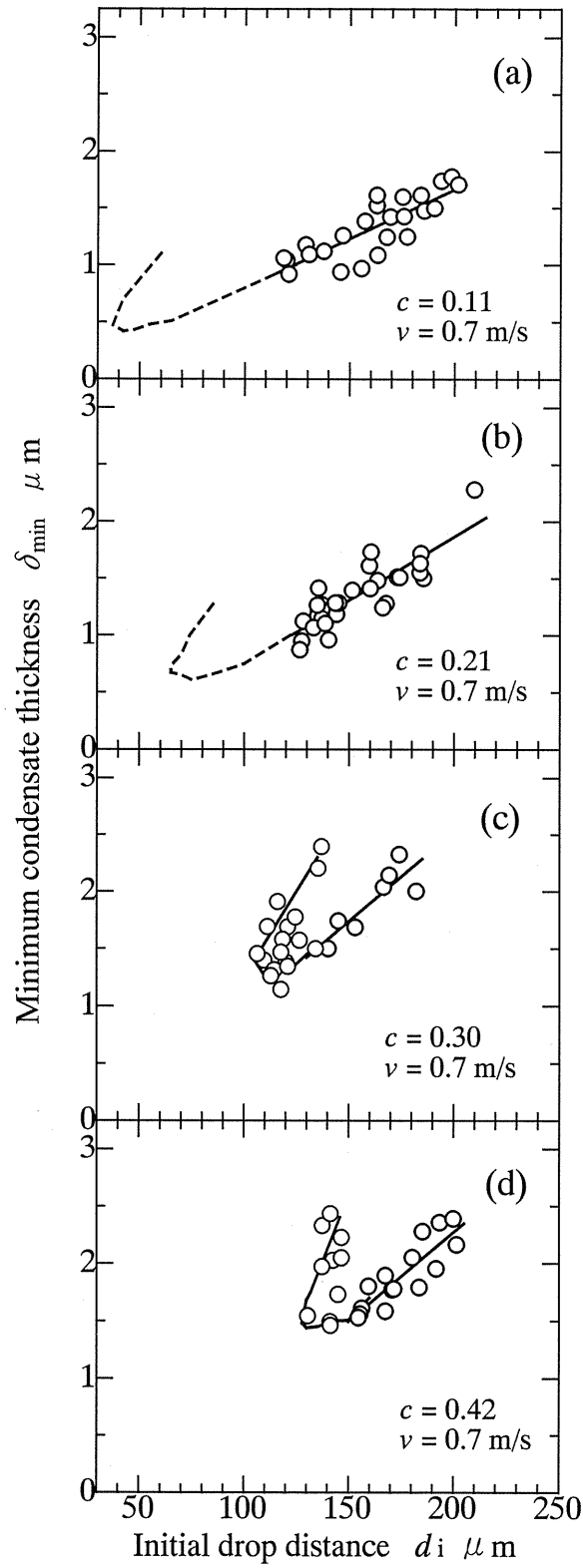
Fig.7 Variation of condensate thickness and aspect of condensate for  $C = 0.30$  and  $d_i = 137 \mu\text{m}$

究の対象としている離脱液滴の掃除直後の薄液膜など、凝縮液状態がほぼ平滑な場合に適用できるものである。液滴など液面が傾斜あるいは曲率をもつ場合に対しては、液膜厚さ測定の正確度は劣るものと考えられるが、その場合でも定性的傾向についての議論は成立するはずである。

#### II-4-2 離脱液滴による掃除直後の凝縮液膜および液滴間薄液膜の厚さ測定結果

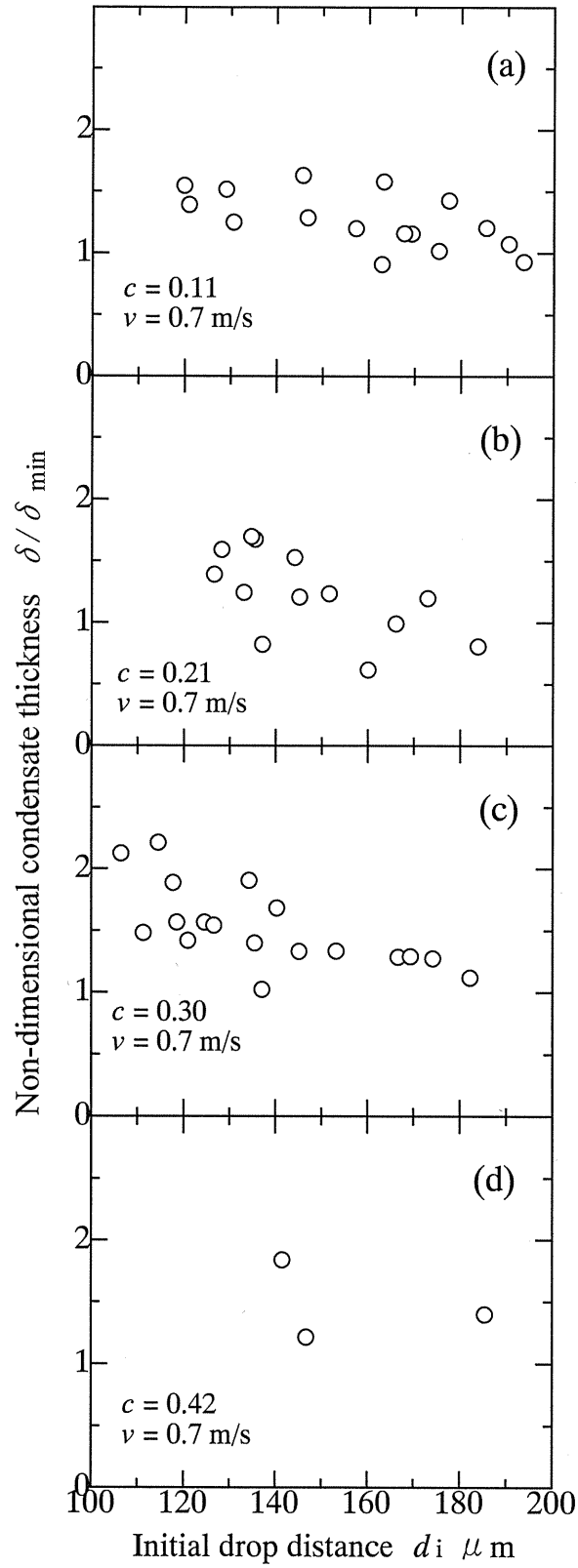
図 8(a)～(d) は 4 種類のエタノール濃度条件、すなわち 11 %、21 %、30 % および 42 % での濃度差マランゴニ滴状凝縮サイクルにおける離脱液滴通過直後の最小液膜厚さ  $\delta_{\min}$  と同期撮影による画像から得られた初生液滴間隔  $d_i$  との関係を示している。なお、初生液滴間隔には同一条件における数回以上の離脱における平均値を採用している。全濃度条件において凝縮面過冷度を低過冷度領域から増加させてゆくと初生液滴間隔は減少し、それに伴って最小液膜厚さは減少する傾向を示した。また、図 8 (c) および (d) のエタノール濃度の比較的高い条件の結果においては、凝縮面過冷度の小さな側から冷却強度を増大させると、初生液滴間隔は減少してゆき、その変化にともなって最小液膜厚さは直線的に減少してゆく。その後、最小液膜厚さは最小値をとる。さらなる冷却強度の増大にともなって、逆に初生液滴間隔および最小液膜厚さとも増大してゆく。既報 ( 8 ) から初生液滴間隔の最小値付近において極大熱伝達率が現れることから、初生液滴および最小液膜厚さの最小値を示す付近、すなわち曲線の折り返し部は凝縮特性曲線の熱伝達率の極大値付近に対応するはずである。最小液膜厚さは非常に薄く、その最小値はエタノール濃度 30 % で  $1.2 \mu\text{m}$ 、42 % で  $1.5 \mu\text{m}$  程度であった。また、初生液滴間隔の最小値は最小液膜厚さの現れるその値よりやや小さく、それぞれ  $100 \mu\text{m}$ 、 $130 \mu\text{m}$  程度であった。条件が異なるため厳密な比較は難しいながら既報 ( 8 ) の結果と比較すると、本測定の初生液滴間隔の最小値はやや大きな値が得られているが、エタノール濃度および凝縮面過冷度に対する変化傾向は類似していることがわかる。また、エタノール濃度の減少に伴い最小液膜厚さは全体的に減少する傾向を示した。エタノール濃度 11 % および 21 % のいずれの場合でも、本測定範囲では最小液膜厚さは約  $1 \mu\text{m}$  であったが、これは冷却強度の限界によるものであると考えられる。本研究では赤外レーザー光の透明性を確保する目的で伝熱面に石英ガラス、冷却に蒸気窒素ガス噴流を用いているため比較的低エタノール濃度が低く極大熱流束の大きい条件においては、大きな凝縮面過冷度の実現が難しかったことによる。したがって、これらの場合においては初生液滴間隔の最小値付近の測定はできなかった。各濃度条件における初生液滴間隔に対して直線的变化を示す範囲の最小自乗法による直線の勾配はそれぞれ、





(a)  $C = 0.11$ , (b)  $C = 0.21$ , (c)  $C = 0.30$ , (d)  $C = 0.40$

Fig.8 Variation of minimum film thickness against initial drop distances after sweeping by departing drops



(a)  $C = 0.11$ , (b)  $C = 0.21$ , (c)  $C = 0.30$ , (d)  $C = 0.40$

Fig.9 Variation of non-dimensional condensate thickness against initial drop distances between drops

エタノール濃度  $C=11\%$  にて 0.0087、 $21\%$  にて 0.011、 $30\%$  にて 0.016、 $42\%$  にて 0.016 と変化し、濃度の増加とともに増大した。図 8 (a) (b) の破線は図 8 (c) (d) の変化形状と図 2 に示される既報 (8) の初生液滴間隔に関する測定結果をもとに変化を推測したものである。厳密な定量的議論は難しいが、両図に示されるようにエタノール濃度の減少に伴って最小液膜厚さの最小値は減少してゆき、それらの濃度範囲では  $0.5\ \mu\text{m}$  前後の薄さに達するものと予想される。

次に、図 9(a)~(d)は図 8 と同様な条件での濃度差マランゴニ滴状凝縮サイクルにおける初生液滴間隔  $d_i$  と、液滴と液滴の間の薄膜部厚さ  $\delta$  を図 8 中の実線で示された最小液膜厚さ  $\delta_{\min}$  で無次元化した無次元液膜厚さとの関係を示している。ここで液滴間の薄液膜とは、例えば図 5(b)  $t=28\ \text{ms}$  の画像の測定位置におけるような、液滴間に存在する凹凸のみられないときの液膜厚さを意味している。これらの結果により離脱液滴による掃除それら特性量のエタノール濃度に対する変化特性に関しても同様であった。したがって、濃度差マランゴニ現象の液膜不規則化の駆動力である表面張力差分布の変化に対応して凝縮特性曲線の熱伝達率は変化してゆくことになる。熱伝達率のピーク付近でその駆動力は最も強まり、凝縮液滴の微小化と凝縮液膜の薄膜化が進むものと推測される。その結果として凝縮液熱抵抗の減少が生じ、それが熱伝達率の向上の主要な要因の一つとなっていると考えられる。

## II-5 結 論

波長  $3.39\ \mu\text{m}$  をもつ赤外レーザ光の凝縮液の消光による減衰を利用する方法により、エタノール質量分率  $11\sim 42\%$  の水-エタノール混合蒸気の濃度差マランゴニ滴状凝縮現象における薄凝縮液膜厚さの非定常測定を行い、以下の結果を得た。

- (1) 液膜厚さ測定位置における液膜厚さと凝縮液挙動の同時観測により、離脱液滴による掃除後の薄液膜および液滴間薄液膜の厚さ変化の測定を行った。
- (2) レーザ光の通過する位置の液膜厚さの非定常測定から、液滴間にはミクロンオーダーの比較的薄い液膜が存在し、伝熱面は常に液でぬれていることが確認された。
- (3) 低過冷度領域から初生液滴間隔の減少に伴い最小液膜厚さは減少する傾向を示し、さらに冷却強度を増大させると、初生液滴間隔および最小液膜厚さとも増大した。
- (4) 最小液膜厚さは濃度の減少に伴って減少し、本測定の範囲においては約  $1\ \mu\text{m}$  であった。冷却能力の限界から測定できなかった低エタノール濃度の高過冷度領域においてはさらに膜厚は減少するものと予測された。

- (5) 本研究と既報<sup>(8)</sup>の結果から、熱伝達率の極大値付近の過冷度域で、初生液滴間隔、離脱液滴直径および最小液膜厚さとも最小となることなど、凝縮特性曲線における熱伝達率の変化特性とそれらの特性量変化の間には類似の対応関係が存在していることが明らかになった。またそれらの濃度依存性も類似していた。
- (6) 上記(5)から、濃度差マランゴニ現象の液膜不規則化の駆動力である表面張力差分布の変化に対応して凝縮特性曲線における伝熱特性は変化する。熱伝達率のピーク付近で駆動力は最も強まると推測され、凝縮液膜は薄膜化し、その結果としての凝縮液熱抵抗の減少が熱伝達率向上の主要因の一つとなっていることが結論される。

最後に、本実験に協力いただいた元横浜国立大学学生、花田元六君、矢野誠君に謝意を表す。本研究の一部は科学研究費補助金(課題番号 12650194)および(財)日本宇宙フォーラムが推進している「宇宙環境利用に関する地上研究公募」プロジェクトの一環として行ったものである。また、ぬれ性面の実現のための表面塗布剤として酸化チタン光触媒を東陶機器(株)に提供いただいた。謝意を表す。

## 文 献

Mirkovich, V.V. and Missen, R.W., Non-Filmwise Condensation of Binary Vapors of Miscible Liquids, Canadian J. chem. Eng., (1961) pp.86-87.

Ford, J.D. and Missen, R.W., On the Conditions for Stability of Falling Films Subject to Surface Tension Disturbances; the Condensation of Binary Vapor, Canadian J. Chem. Eng., Vol.48 (1968) pp309-312

宇高, 寺地, 水-エタノール 2 成分蒸気の凝縮熱伝達特性曲線の測定, 機論(B), Vol.61, No.583 (1995) pp.1063-1069.

宇高, 寺地, 水-エタノール混合蒸気の凝縮熱伝達に関する研究(凝縮熱伝達特性曲線と凝縮液形態の関係), 機論(B), Vol.61, No.588 (1995) pp.3059-3065.

Fujii, T., Osa, N. and Koyama, S., Free Convective Condensation of Binary Vapor Mixtures on a Smooth Horizontal Tube: Condensing Mode and Heat Transfer Coefficient of Condensate, Proc. US Eng. Foud. Conf., (1993) pp.171-182.

土方, 深作, 中別府, 水・エタノール混合蒸気の凝縮における液滴発生機構の不安定解析, 機論(B), Vol.60, No.572 (1994) pp.1337-1342.

宇高, 西川, レーザ吸光法による濃度差マランゴニ凝縮過程における凝縮液膜厚さの非定常測定(試料の吸光性質と測定法の検討), 機論(B), 投稿中.

宇高, 劔持, 横山, 水-エタノール混合蒸気の凝縮熱伝達に関する研究(濃度差マランゴニ滴状凝縮における液滴形成および離脱過程の観測), 機論(B), Vol.64, No.626 (1998) pp.3364-3370.

混合蒸気の濃度差マランゴニ凝縮における  
赤外レーザー吸光法による凝縮液厚さ測定

Part III : Unsteady Measurement of Condensate Film  
Thickness for Solutal Marangoni Condensation  
(English version)

## Abstract

The simultaneous measurement of the condensate film thickness using the laser light absorption by condensate liquid and observation of condensation using a high-speed camera were performed for solutal Marangoni dropwise condensation of water – ethanol vapor mixture. Good correspondence between the measuring film thickness data and condensate behavior was observed. The heat transfer surface always covered by the condensate film and was wetted. The minimum condensate thickness appeared after the sweeping of departing drop decreased with increasing initial drop distance in the steeply increase region of the condensation characteristic curve. In the region of larger cooling intensity, both initial drop distance and minimum condensate thickness increased with cooling intensity. Observation of the minima of the minimum condensate thickness almost agreed with minimum initial drop distance. Since the initial drop distance and minimum condensate thickness were a minimum in the surface subcooling region near to the maximum heat transfer coefficient in the heat transfer characteristic curve, the surface tension difference acting as the driving force behind the generation of a thin and irregular condensate film increased with heat transfer coefficient. Therefore, the close relation among the condensate film thickness, the initial drop distance and the heat transfer characteristics was confirmed.

### III-1 Introduction

A simultaneous distribution of temperature and concentration following the phase equilibrium relationship is often observed on the surface of mixtures during the vapor-liquid phase change. Especially in the surface condensation of vapor mixtures of “positive systems” with a higher surface tension for the higher boiling temperature component, it is known that the Marangoni force acts at the liquid surface due to the surface tension gradient and condensation modes such as dropwise mode in which the condensate adopts an irregular shape are exhibited as shown by Mirkovich-Missen (1961). Since this phenomenon is essentially different to the so-called dropwise condensation that is limited to the case for a lyophobic surface, the non-wetting surface is not necessary. Here, such phenomenon is called solutal Marangoni condensation in order to distinguish it from dropwise condensation occurring on a lyophobic surface. Utaka-Terachi (1995) performed measurements over a wide

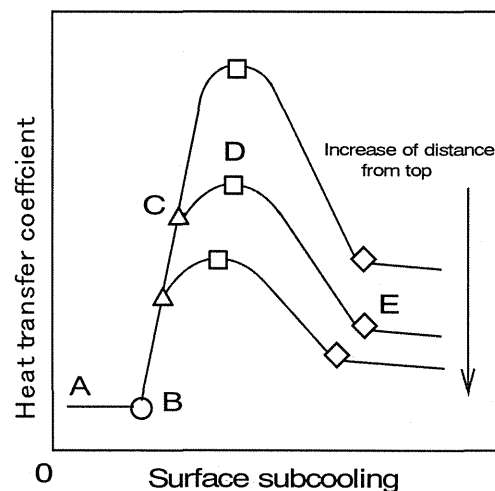
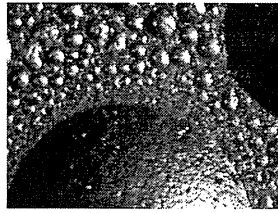


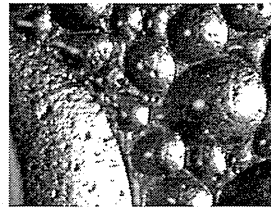
Fig.3 Heat transfer characteristic

range of surface subcooling conditions of water-ethanol vapor. This is the phenomenon with the transition of condensation mode between the film and dropwise modes, which depends on the cooling intensity and it was shown that the nature of the heat transfer characteristic curve could be summarized as shown in Fig. 1. The heat transfer rate depends on the change of the diffusion resistance in the vapor phase and the condensate mode determining the heat transfer resistance of the condensate. That is, the heat transfer coefficient is very low independent of the condensate mode in the region of the comparatively small subcooling because the diffusion resistance is dominant. On the other hand, the decrease of diffusion resistance begins at point B (the commencement point of steep increase) in Fig.1, which corresponds to the liquid line temperature of the vapor-liquid equilibrium relation. Since the diffusion resistance in the vapor phase begins to decrease and the dropwise mode of condensate is maintained, a steep gradient rectilinear increase to point C occurs. The film mode (E) appears with further increase in subcooling due to the uniform temperature distribution of the condensate surface after passing through the maximum heat transfer coefficient (D).

The heat transfer characteristics are determined not only by the macroscopic condensate mode but also by the detailed drop behavior from formation to departure. A few studies have been conducted on the condensate behaviors about the formation of comparatively microscopic drops and the departing drops. Fujii et al. (1993) reported the experiment on a horizontal tube was performed and the relation among the drop sizes, the vapor concentrations and drop shapes were investigated. Hijikata et al. (1994) made the instability analysis of drop formation process from a flat liquid film. It is shown that the analytical result was coincided qualitatively with the experiment. However, further study is needed to get a systematic relationship among the departure of drops, which controls the appearance of new condensation cycle, the formation and the growth of drops and the heat transfer characteristics. Observation and measurement of the transient formation and growth of the drops appearing after a sweeping by a departing drop under the vapor mass fraction of ethanol of 0.17, 0.37 and 0.52 were performed (Utaka et al., 1998). The representative images of the condensate aspects are shown in Fig.2. The dropwise condensation cycle was observed in Marangoni dropwise condensation similar to that on a lyophobic surface. That is, dense groups of small drops appeared after the sweeping by a departing drop. Those drops grew until they were absorbed by a departing drop. The greater the distance from the departing drop in the upstream region, the greater the elapsed time after the sweeping because the velocity of the departing drop is limited. Therefore, the dimensions of drops increase with upstream distance from the departing drop. It was noted that there no drops on the narrow belt-shaped region next to the departing drop and the formation of the small drops commenced in regions a short distance from the departing drop. Therefore, it was suggested that a thin flat liquid film remained just after the sweeping. Moreover, it was observed that the sizes of small drops nearest to the upper peripheral of the departing drop strongly depended on the rate of surface subcooling. On the basis of these observations, it is adequate to use initial drop distance, which shows the interval between neighboring small drops after sweeping by a departing drop, as a factor to represent the characteristics of the condensate. The variation in initial drop distance under the same conditions in the condensation characteristic curves is shown in Fig.4. In solutal Marangoni dropwise condensation, the initial drop distance was significantly altered by the surface subcooling and exhibited a U-shaped curve having a distinct minimum. The initial drop distances varied between 0.03mm and 0.15mm. The subcooling at the maximum heat transfer coefficient in heat transfer characteristic curves shown in Fig.3 coincided with the minimum value of initial drop distance. Therefore, the decrease in the condensate resistance for



(c)  $\Delta T = 15.2 \text{ K}$



(e)  $\Delta T = 29.5 \text{ K}$

Fig.2 Aspect of condensate ( $c=0.37$ )

0.2 mm

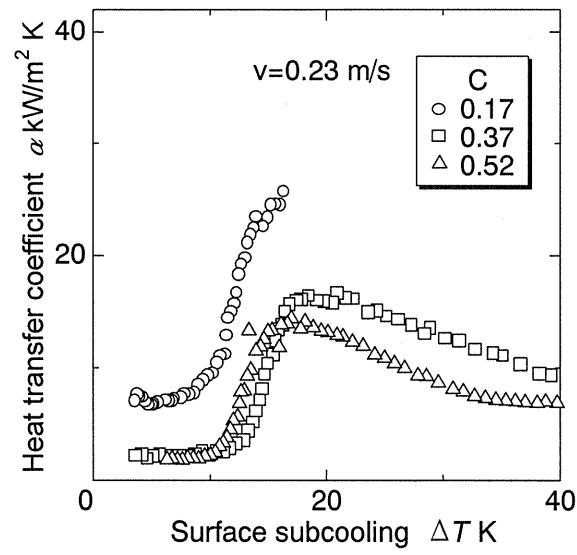


Fig.3 Heat transfer characteristic

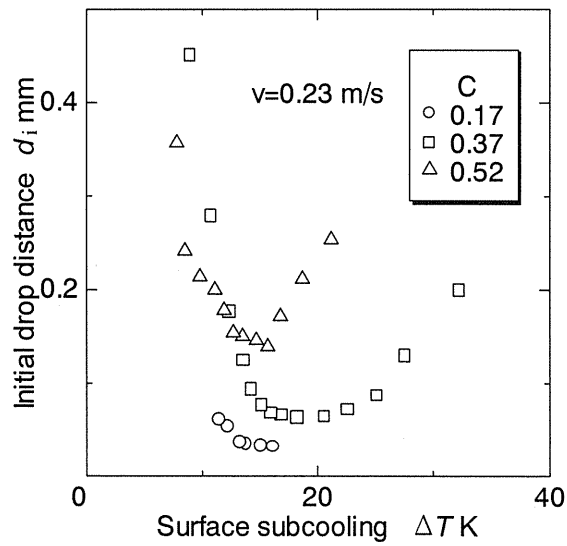


Fig.4 Variation of initial drop



solatal Marangoni dropwise condensation may correspond to the decrease in initial drop distance. Further, the initial drop distance depends on the ethanol concentration.

In this study, the transition of condensate behavior after sweeping by a departing drop is considered as a basis of the condensation cycle in solatal Marangoni dropwise condensation. The growth of the condensate film thickness, which controls the condensate resistance directly, is measured using the laser absorption method to investigate the systematic relation between the heat transfer characteristic curves and the initial drop distances. The objective is to clarify the relation between the heat transfer characteristics and the condensate on the basis of the measurement of the variations of initial drop distance and condensation characteristic curves.

### **III-2 Experimental Apparatus and Method**

#### **III-2-1 Apparatus for Absorption Coefficient of Test Material**

The Lambert's law shown in Eq.(1) was adopted to decide the absorption coefficient of water – ethanol liquid mixture against the laser light with a wave length of 3.39  $\mu\text{m}$ .

$$A = -\delta^{-1} \times \log(I/I_0) \quad (1)$$

The laser light absorption coefficient  $A$  has a dependency on the mass fraction of the test liquid and is an unknown factor to be determined. It is determined from the thickness  $\delta$  of the test liquid and the transmittance ratio  $I/I_0$  of the laser light. The experimental apparatus for measuring the laser absorption coefficient is shown in Fig.5. Helium-Neon laser light having wavelength of 3.39  $\mu\text{m}$  and 2.6 mm was expanded to 52 mm and collimated before being on a thin liquid layer of water – ethanol mixture. Part of the laser light was absorbed by the liquid layer and the rest of the transmitted light was converged using the quartz lens and the intensity  $I$  is measured by a Pb-Se detector. The incident light intensity  $I_0$  was measured under the same conditions without the test liquid.

#### **III-2-2 Apparatus for Measuring Condensate Film Thickness**

Figure 6 shows a schematic of the experimental apparatus for the measurement of condensate film thickness, which is composed of a condensation device and a measuring device of laser transmittance. The vapor mixture was generated using a steam generator and the condensate passed through the condensing chamber, the auxiliary condenser and the deaerator. The system was maintained under approximately atmospheric pressure conditions, because a small hole was located between the receiver and the auxiliary condenser. The method for the measurement of laser absorption was determined from the

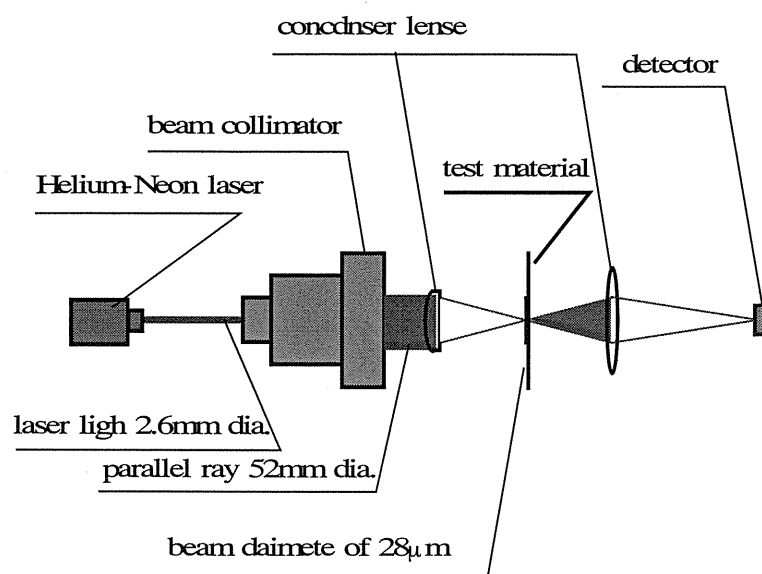


Fig.5 Apparatus for measurement of absorption

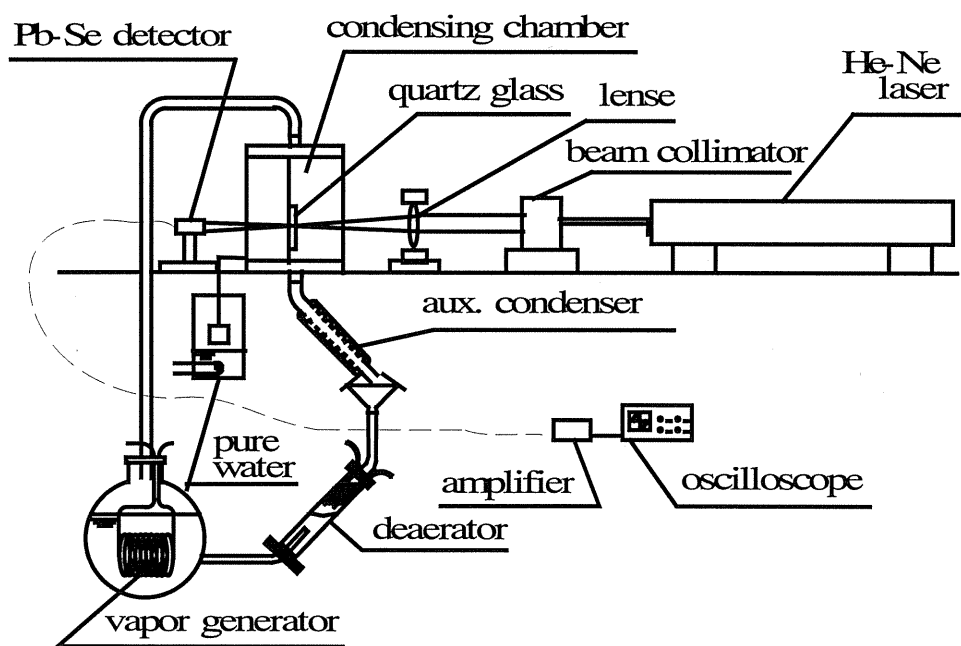


Fig.6 Experimental system

transmittance ratio of the laser beam passing through the condensate film. The spot diameter of the laser beam on the heat transfer surface was  $30\text{ }\mu\text{m}$ . Quartz glass, which is transparent to laser light, with an effective area of  $9\times 9\text{mm}^2$  and a thickness of  $0.032\text{ mm}$  was used as the heat transfer surface. The vapor concentration was determined by the dew-point measuring method. The jet of evaporated nitrogen gas, which is also transparent to laser light, was used as the coolant. The detected signal was amplified using a direct current amplifier and output to an oscilloscope. High-speed digital image capture of the aspect of condensate was performed simultaneously with liquid film thickness measurement to confirm the condensate behavior.

### III-3 Results and Discussion

#### III-3-1 Absorption Coefficient of Test Material

Figures 7 shows the result of the measurement of the laser light absorption coefficient of water - ethanol binary liquid mixture. The linear relation between the ethanol mass fraction and the absorption coefficient was independent of the test liquid thickness in the range of in  $20 - 48\text{ }\mu\text{m}$ . It is therefore suggested that the dependency on the concentration is not so large and the absorption coefficient is proportional to the mass of each component per unit thickness.

#### III-3-2 Condensate Behavior at the Measuring Position

The simultaneous measurement of condensate film thickness and observation of condensate behaviors during the formation of the initial drops commenced after the sweeping by the departing drops were conducted under the ethanol vapor mass fraction of  $C = 0.30$  and a vapor velocity of  $0.7\text{ m/s}$ . The non-uniformity of the condensate thickness grew rapidly from a flat thin film appeared after the sweeping

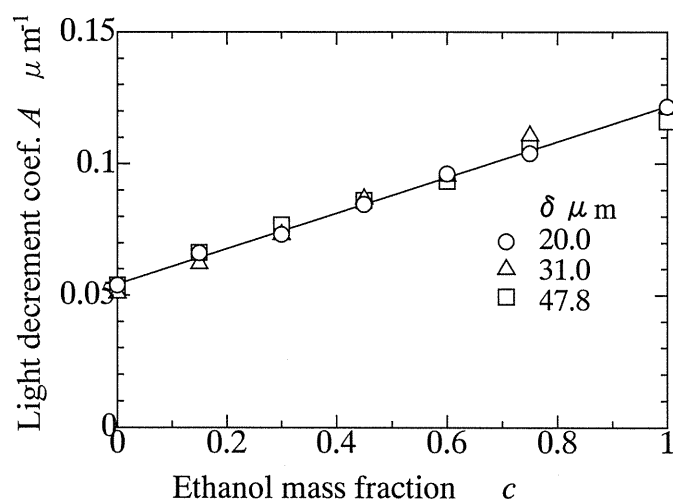


Fig.7 Light decrement coefficient and ethanol mass fraction

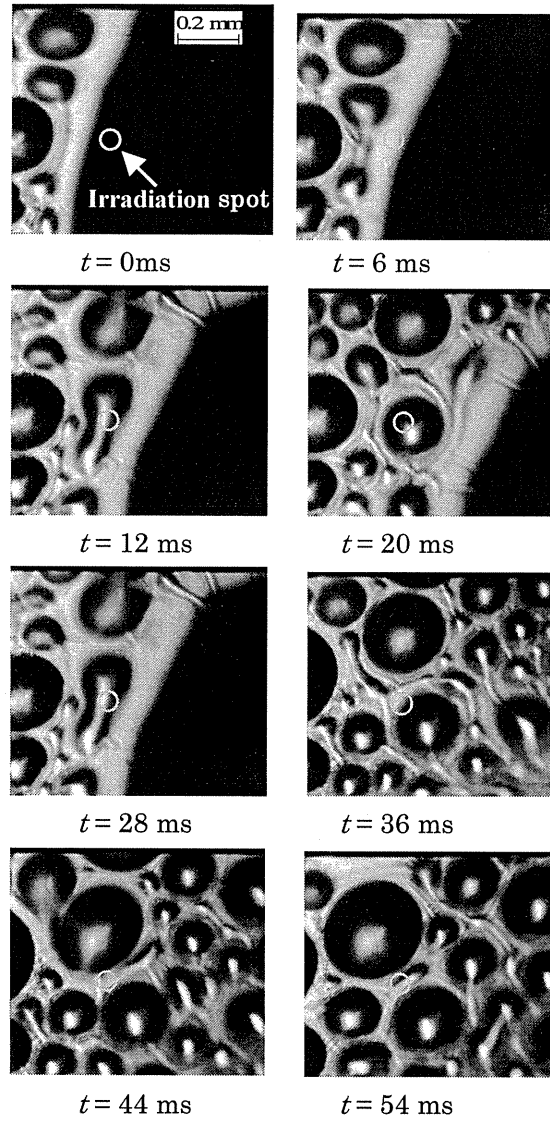


Fig.8 Variation of condensate aspect

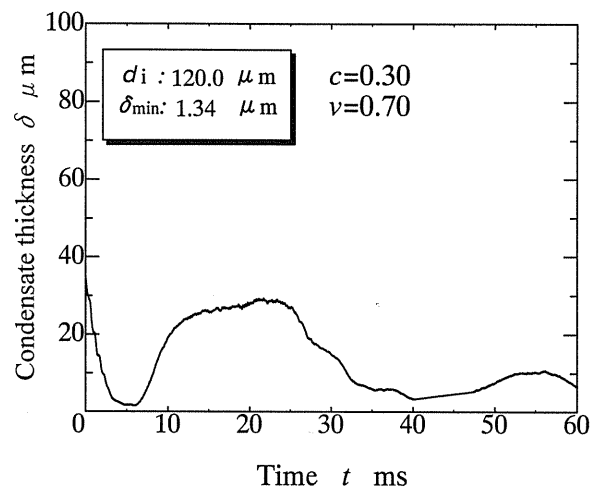


Fig.9 Variation of condensate thickness

by the departing drops. Figure 8 shows images of the condensate behavior. The relatively large black region on the right hand-side of the image denotes the departing drop and the white region is thin condensate film at  $t = 0$  ms. The measuring position irradiated by the laser beam is highlighted in each image. After the measuring position was covered by the departing drop at  $t = 0$  ms, the thin film observed immediately after sweeping at  $t = 6$  ms by the movement of the departing drop towards the bottom right-hand corner. The drop with a diameter of about 0.1 mm was measured at  $t = 12, 20$  and  $28$  ms. Furthermore, it can be seen that the measuring position is located between drops at  $t = 44$  and  $54$  ms, at which time the formation of a new drop began. Here, the initial drop distance was  $d_i = 120 \mu\text{m}$ . Previous result (Utaka and Terachi, 1995) predicted that the condition shown in such images represents a somewhat larger subcooling region than that at the commencement point of steep increase. These results confirm that the thickness of condensate can be determined using an irradiation spot size of about  $30 \mu\text{m}$ . Figure 9 shows the variations in liquid film thickness calculated using the laser absorption measurement of  $I/I_0$ . The time expressed in the abscissa corresponds to that shown in the images in Fig.8. It can be seen that the local minimum value of condensate film thickness  $\delta_{\min} = 1.2 \mu\text{m}$  appeared at  $t = 6 - 7$  ms and  $t = 40$  ms. Good correspondence between the measured values and images is confirmed. These results confirm that a thin liquid film with a thickness of  $1 \mu\text{m}$  remains after sweeping and the heat transfer surface was always covered by the liquid in solutal Marangoni dropwise condensation.

### III-3-3 Measurement of Condensate Film Thickness

Variation in the minimum film thickness with initial drop distance for ethanol vapor concentration of  $C = 0.30$  was observed immediately after sweeping by the departing drops in the solutal Marangoni dropwise condensation cycle as shown in Fig. 10. The minimum condensate film thickness decreased with decreasing initial drop distance and with increasing surface subcooling from the small subcooling-side. Further increase in cooling intensity, both of the initial drop distance and the minimum film thickness increased via the minimum values of them. Thus, the binary values of minimum film thickness were observed at the single value of initial drop distance. As the maximum heat transfer coefficient appeared at the minimum initial drop distance <sup>(3)</sup>, the position near the minimum initial drop distance and condensate film thickness, that is, the turn of the curve (denoted by closed circle) in Fig.10 must correspond to the region near the maximum heat

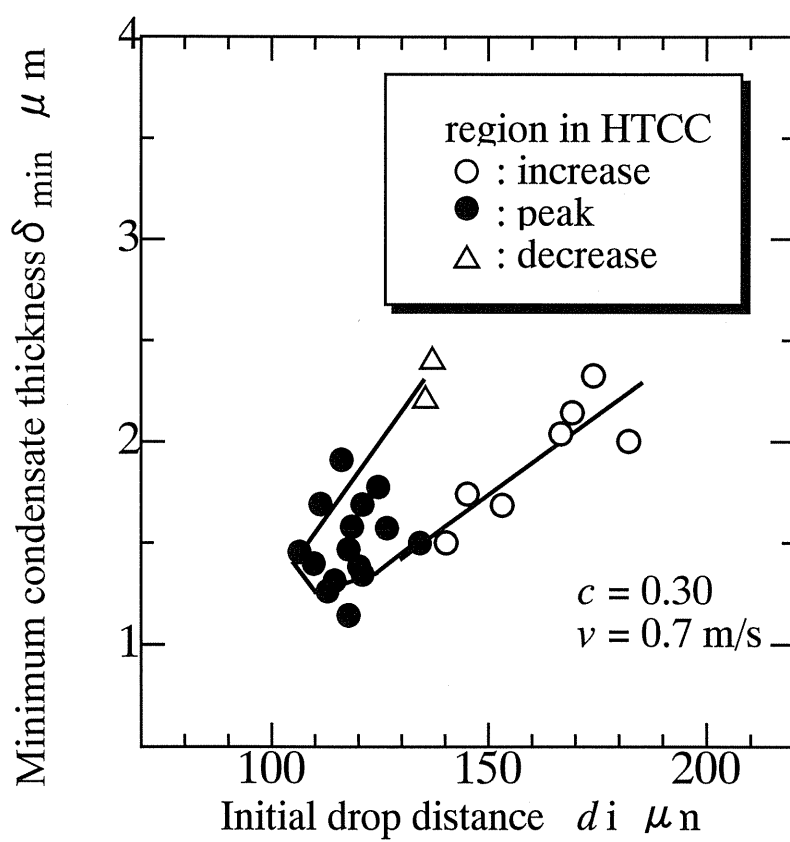


Fig.10 Variation of minimum condensate

transfer coefficient in the condensation characteristic curve. The triangle symbol denotes the domain in the decreasing heat transfer coefficient in the characteristic curve. As described previously, the minimum condensate thickness was 1.2  $\mu\text{m}$  in this measurement. Thinner condensate film appeared in the steep increase region of the condensation characteristic curve. Conversely, relatively thick film appeared in the transition region. Thus, the initial drop distance and the minimum film thickness are minimal in the surface subcooling region near to the maximal heat transfer coefficient. Therefore, it is concluded that the heat transfer was enhanced by the thinning of the condensate film and the resultant decrease of condensate thermal resistance due to the augmentation of the surface tension difference.

### III-4 Concluding Remarks

The measurements of the heat transfer coefficient and the condensate film thickness using the analysis of infrared laser light absorption characteristics of the condensate and observation of condensation phenomena using a high-speed digital camera were performed for water – ethanol solutal Marangoni dropwise condensation with the ethanol vapor mass fraction of 0.3. The following results were obtained.

- (1) The absorptivity of water - ethanol binary liquid mixtures against the laser light with a wavelength of 3.39  $\mu\text{m}$  was measured and the absorption property of the mixture was clarified.
- (2) It was confirmed that the liquid film with a thickness of approximately 1  $\mu\text{m}$  remained after sweeping and also the heat transfer surface was always covered by the liquid in solutal Marangoni dropwise condensation, as confirmed by the measurement of condensate film thickness at the irradiation point whose diameter was approximately 30  $\mu\text{m}$ .
- (3) The minimum condensate film thickness decreased with decreasing initial drop distance and increasing surface subcooling. Both the initial drop distance and the minimum film thickness increased with further increase in cooling intensity. The minimum film thickness was 1.2  $\mu\text{m}$ .
- (4) Good correspondence between the heat transfer characteristics, initial drop distance and minimum film thickness was observed. The minimum film thickness took a minimum value in the surface subcooling region near the maximum heat transfer coefficient. Therefore, it is concluded that, in the surface subcooling region near the maximum heat transfer coefficient, the initial drop distance and the minimum film thickness tend to the minimum values as a result of the occurrence of the maximum driving force due to the surface tension gradient on the condensate surface in solutal Marangoni dropwise condensation.

The authors would like to express their gratitude to Mr. Genroku Hanada and Mr. Makoto Yano for their cooperation with this experiment. This study is funded in part by a grant for “Ground Research for Space Utilization” promoted by NASDA and Japan Space Forum, and also by a grant-in-aid for scientific research of Japan Society for the

Promotion of Science.

### References

- T. Fujii, N. Osa and S. Koyama, Free Convective Condensation of Binary Vapor Mixtures on a Smooth Horizontal Tube: Condensing Mode and Heat Transfer Coefficient of Condensate, Proc. US Eng. Foud. Conf., pp.171-182, 1993.
- K. Hijikata, Y. Fukasaku and O. Nakabeppu, Instability Analysis of the Drop Growth Mechanism on Condensation of a Water – Ethanol Binary Mixture, Trans. JSME, vol.60, no.572, pp.1337-1342, 1994.
- V. V. Mirkovich and R.W. Missen, Non-Filmwise Condensation of Binary Vapors of Miscible Liquids, Canadian J. Chem. Eng., pp.86-87, 1961.
- Y. Utaka and N. Terachi, Measurement of Condensation Characteristic Curves for Binary Mixture of Steam and Ethanol Vapor, Heat Transfer Japanese Research, vol.24, no.1, pp.57~67, 1996.
- Y. Utaka, T. Kenmotsu, and S. Yokoyama, A Study on Marangoni Condensation (Measurement and Observation for Water and Ethanol Vapor Mixture), Proc. 11th Int. Heat Transfer Conf., vol.6, pp.397~402, 1998.