449 臭化リチウム水溶液表面に生じるマランゴニ対流の動的挙動

Dynamic behavior of Marangoni convection induced at LiBr aqueous solution

○正 西村 伸也(阪市大工) 正 野邑 奉弘(阪市大工) 正 伊與田浩志(阪市大工)

Nobuya NISHIMURA, Tomohiro NOMURA and Hiroyuki IYOTA
Osaka City University, 3-3-138, Sugimoto, Sumiyoshi-ku, Osaka

Dynamic behaviors of Marangoni convection induced at LiBr aqueous solution by addition of a surfactant have been investigated experimentally by using a real-time type laser holographic visualization system. N-octanol was used as a surfactant. The Marangoni convections occurred at/beneath the solution surface in the very beginning of steam absorption were observed in three dimensions. At first, vertical convective motions induced in the LiBr aqueous solution by addition of the surfactant were observed varying the initial surfactant's concentration ranging from 0 to 50000ppm and the liquid layer thickness ranging from 2 to 25mm. And, horizontal convective motions induced at the LiBr aqueous solution by addition of the surfactant were observed varying the initial surfactant's concentration ranging from 0 to 400ppm and the shallow liquid layer thickness ranging from 2 to 5mm. Pentagonal or hexagonal cell patterns were clearly observed at the surface and these cells instantly grew in size from small to large during the 10 milliseconds after the beginning of absorption. Thus, generation and growth processes of the Marangoni convection were revealed from the visualization results. And, spatial-temporal scales of the Marangoni convection were determined experimentally.

Key words : Absorption Refrigeration, Heat Transfer Enhancement, Flow Visualization, Free Surface Flow, Absorber, Surfactant, Marangoni Convection, Laser Holography

1. 緒 言

吸収冷凍機には吸収器の性能向上策として、通常、吸収剤である臭化リチウム水溶液に界面活性剤が添加されている。この操作によって、吸収器伝熱管の表面上を流下する吸収液の気液界面近傍でマランゴニ対流による界面かく乱が発生し吸収が大きく促進されること¹⁾が指摘され、その後、臭化リチウム水溶液の静止液膜を対象とした、実験²⁾、³⁾および理論・解析シミュレーション⁴⁾、⁵⁾によって促進現象の解明が行われている。

ところで、この界面活性剤が作用する実機の吸収器伝熱管表面上の流下液膜は、1mmに満たない薄膜であって⁶⁾、しかもその流下に要する時間はさきわめて短い。このように、厚さが制限された薄膜中で、しかも短時間のうちに、界面活性剤添加によるマランゴニ対流の出現が吸収性能の向上にどのように、また、どの程度寄与するのか、すなわち実機レベルの液膜条件に即した点からは、ほとんど明らかにされていない。

そこで、著者らは、界面活性剤の添加によるマランゴニ対流の出現が吸収促進にどのように寄与するのかを定量的に評価して、界面活性剤の添加効果を吸収器設計に生かせるような指針の確立を目的に、臭化リチウム水溶液の静止液膜^{7)~9)}と流下液膜¹⁰⁾を対象に、実験と理論の両面より検討を進めてきた。本報では、臭化リチウム水溶液の静止液膜を対象に、マランゴニ対流の発生から成長の過程をミリ秒オーダーの溶液表面ならびに液膜内部の流動の可視化観察から三次元的に調べ、溶液内に生じるマランゴニ対流の動的挙動について総合的に検討した結果を報告する。

2. 界面活性剤添加により臭化リチウム水溶液の表面ならびに液膜内部に生ずるマランゴニ対流の発生・成長過程の可視化観察

2.1 鉛直方向のマランゴニ対流の可視化観察

2.1.1 実験装置および方法

実験装置は吸収器試験装置と、レーザーホログラフィー実時間干渉法光学系・高速度ビデオカメラよりなる高速現象の可視化観察システムにより構成されている。

Fig.1 Experimental apparatus

吸収器試験装置の概略を図1に示す。この装置は、蒸発器と吸収器および真空ポンプにより構成され、真空ポンプラインには、液体窒素を用いたスチームトラップが設けられている。また、二つの容器を連結する管路には2個の手動バルブと1個の電磁バルブが取り付けられており、個々に圧力調節を行うことが可能となっている。実験時には吸収器側の電磁バルブ（CKD社製、オリフィス径10mm、真空仕様）を開閉することにより、吸収器内に瞬時に水蒸気を供給することが可能となっている。

吸収器は可視化観察を行うために、透明アクリル板を用

いて製作し、容器の幅 L は、 $L=10, 15, 25\text{mm}$ の3種類とした。容器の側面よりシース径が 0.3mm のK型熱電対を深さ方向に5点一列に挿入し、熱電対による臭化リチウム水溶液の温度測定を可能とした。

可視化に用いたレーザーホログラフィー実時間干渉法光学系および実験条件は既報¹¹⁾に述べた通りである。

2.1.2 実験結果

臭化リチウム水溶液の鉛直方向の可視化観察結果例を図2および3に示す。このときの液膜厚さは約 25mm である。図中左上部に見える3本の水平な線は、シース径が 0.3mm のT型熱電対である。いずれの図も、冷媒蒸気吸収開始後1秒間の変化を捉えたものであり、図2は界面活性剤を添加してない無添加時の結果であり、図3は界面活性剤を飽和溶解度である 100ppm まで添加した場合の結果である。

図2より、界面活性剤無添加時には、吸収開始後約1秒の間に液膜内部の状態にほとんど変化が見られない。これより、界面活性剤を添加しない場合には、鉛直方向の対流は発生していないと判断できる。したがって、溶液内部の熱および物質の移動は主に拡散により行われているものと考えられる。

Fig.2 Vertical convective motion without surfactant

Fig.3 Vertical convective motion with surfactant (100ppm)

一方、界面活性剤を添加した図3の場合には、吸収開始後 0.2 秒後から、マランゴニ対流によるものとみられる局所的な界面かく乱、つまり鉛直方向の流動が確認できる。この鉛直方向の界面かく乱は、時間の経過とともに発達し、 1 秒経過後の液膜内部への最大到達深さは約 5mm となった。

同様の実験を、界面活性剤の添加濃度を $0, 50, 100, 200, 500, 1000, 5000, 10000, 50000\text{ppm}$ の9段階に変えて行った。

以上の結果、界面活性剤無添加の場合には臭化リチウム水溶液内部においてマランゴニ対流が生じないこと、それに対して、界面活性剤を添加した場合には、臭化リチウム水溶液内部においてマランゴニ対流が生じることがわかった。また、マランゴニ対流による界面かく乱領域は、 n -オクタノールの飽和溶解濃度である 100ppm において最大となり、それよりも添加濃度が増加すると、次第に減少していき、 10000ppm になるとほとんど見られなくなった。

このような傾向を定量的に評価するために、マランゴニ対流による界面かく乱が発生している領域の断面積 S をその部分の表面長 L で割り、界面かく乱の平均深さ d を求めてみた¹¹⁾。吸収開始1秒後の平均深さを図4に示す。界面かく乱領域の平均深さ d は界面活性剤添加濃度が 100ppm で最大値を示し、可視化写真の視認結果と同様な結果が得られた。

Fig.4 Averaged disturbance layer depth by Marangoni convection

Fig.5 Surface migration speed

また、液膜厚さを変えた実験¹¹⁾から、臭化リチウム水溶液表面における水平方向の流動速度 u を推定してみた。結果を図5に示す。添加濃度が 200ppm 以下においては、界面活性剤添加濃度の増加に伴い流動速度が大きくなること、そして、その速度は飽和溶解度以上で $2 \sim 3\text{cm/秒}$ のオーダーであることがわかった。

2.2 溶液表面における水平方向のマランゴニ対流の可視化観察

冷媒蒸気吸収時に臭化リチウム水溶液表面において生じる界面かく乱は、本来、三次元的な動きを示すものと考えられることから、溶液表面における水平方向の流動観察が不可欠となる。そこで、前節と同様な光学観察システムを用いて、吸収開始直後に溶液表面に生じるマランゴニ対流の可視化観察を行った^{7),8)}。

2.2.1 実験装置および方法

Fig.6 Experimental apparatus

吸収器試験装置の概略を図6に示す。吸収器試験装置は、蒸発器と吸収器および真空ポンプにより構成されている。可視化に用いたレーザーホログラフィー-実時間干渉法光学系および実験条件は既報^{7),8)}に述べた通りである。

2.2.2 実験結果

可視化観察の結果例を図7に示す。同図は吸収開始から約10ミリ秒間の臭化リチウム水溶液表面の挙動を示したものである。このときの液膜厚さは5mmである。

界面活性剤を添加した場合には、溶液表面において大きさがほぼ一様な5～6角形のセル（以後、マランゴニ対流セルと称す）が多数発生するのが観察された。しかし、無添加の場合には、このようなマランゴニ対流セルは一切観察されなかった。よって、同図より、界面活性剤を添加された臭化リチウム水溶液が水蒸気を吸収する場合には、まず液表面においてマランゴニ対流が発生するといえる。

また、図には示していないが、上述の規則性を持ったマランゴニ対流セルは吸収開始後10ミリ秒位で形状が崩れ始めた。そして、40～60ミリ秒ぐらいでマランゴニ対流セルの輪郭がしだいに不鮮明になり、局所的に、溶液内を鉛直上方から下方に向かって通過するレーザー光の溶液中での散乱のためと思われるキラキラと明るく輝く部分が生じた。また添加濃度が高くなるほど、崩れる直前のマランゴニ対流セルの大きさは小さくなった。また対流セルは、生成した瞬間には六角形であるが崩れ始める瞬間には五角形となる事例が多く見られた。（左段下に続く）

Fig.7 Cellular convection induced at LiBr aqueous solution surface

このような傾向を定量的に評価するために、時間経過に伴うマランゴニ対流セルの大きさの変化について調べた。結果を図8に示す。

Fig.8 Development of vortex cell's size

同図に示すように、セルは時間経過に伴ってその大きさが絶えず変化した。また、同図より、界面活性剤の添加濃度が高くなるほど、規則正しいマランゴニ対流セルが最大となる時間（10ミリ秒以下の領域において）が早まることがわかる。添加濃度30ppmの場合にはセルひとつひとつの境界を判断しにくかった。これは添加濃度が薄いため、液表面での表面張力差が小さいためだと考えられる。

ついで、以上の2ミリ秒間隔の連続可視化写真を元に、マランゴニ対流セルの成長について調べるために、マランゴニ対流セルの移動速度を求めた。結果を図9に示す。 v_1 はセル中央部の移動速度であり、 v_2 はセル輪郭部の移動速度である。マランゴニ対流セルの移動速度は0.2～0.4m/sの範囲である。この大きさは図5に示した鉛直方向の可視化観察より推定した表面の水平方向移動速度よりも大きくなった。なお、セルの中心部とセルの輪郭部が同方向に進む場合には、移動速度は0.15m/sほどに減少することになる。ところで、セル中央部とセル輪郭部とは、その移動方向が異なる場合も多々見られたが、今回は考慮に入れなかった。溶液表面の温度測定結果⁹⁾をもとに、溶液表面に生ずる流動について検討を加える。溶液表面に生ずるせん断力は、局所的に生ずる表面張力差をもとに次式で表される。

Fig. 9 Cell's migration speed

$$\mu \frac{\partial u}{\partial y} = \left(\frac{\partial \sigma}{\partial t} \right) \frac{\partial t}{\partial x} + \left(\frac{\partial \sigma}{\partial c} \right) \frac{\partial c}{\partial x} \quad (1)$$

これまで、ごく細熱電対を用いて複数点の溶液表面温度を測定してきた。よって、右辺第 1 項を実験的に求めることができる。本研究では、右辺第 2 項の空間的な濃度変化は測定していないので、とりあえずこの影響を無視し、上式より速度 u を求めた。なお、液膜厚さを代表厚さとした。結果を図 10 に示す。表面流動速度は界面活性剤の添加により急激に増大し、その後 100ppm ほどから低下している。また、その速度は 0.07m/s くらいであり、この値は溶液内部の鉛直方向および溶液表面の水平方向の可視化観察結果より得た速度の中間にある。上述の推定手順を考えると、溶液表面の移動速度は数十 cm/s のオーダーにあるといえる。

Fig. 10 Surface migration speed

3. 結 言

- (1) 界面活性剤の添加により、臭化リチウム水溶液が冷媒蒸気を吸収する際にマランゴニ対流が発生する。マランゴニ対流は、まず、吸収開始後数ミリ秒のうちに溶液表面において発生し、その後数十ミリ秒 (100ppm の場合 40~60 ミリ秒) 経過後、液膜内部に及ぶようになる。
- (2) 界面活性剤を添加した場合、吸収開始直後の溶液表面には 5~6 角形の規則正しい多数の対流セルが観察された。この規則正しい対流セルは 10 ミリ秒くらいまでの間に

成長し、その後形状が崩れ始め、不規則で大規模な流動へと変化した。対流セルの大きさは界面活性剤の添加濃度により変化した。およそ 2~5mm であった。

(3) 界面活性剤添加濃度の増加に伴い、規則正しい対流セルが最大となる時間は短くなり、また、形状が崩れる直前の対流セルの大きさは小さくなった。また、対流セルの水平方向移動速度を求めたところ 0.2~0.4m/s であった。これは鉛直方向の観察結果から求めた水平方向移動速度よりも大きかった。

(4) 液膜厚さを 25mm とした鉛直方向の可視化観察の場合、マランゴニ対流による界面かく乱の及ぶ平均深さは、飽和溶解度である 100ppm のときに最大となり、吸収開始後 1 秒で約 5mm となった。飽和溶解度以上の添加濃度になると、この界面かく乱の及ぶ平均深さは減少し、10,000ppm でほぼ 0 となった。

使用記号

a	温度伝導率	m^2/s
c	溶液濃度	wt%
D	拡散係数	m^2/s
d	深さ	m
l	対流セルの代表長さ	m
T	温度	$^{\circ}\text{C}$
t	時間	s
u	速度	m/s
x	水平方向	-
y	鉛直方向	-
μ	粘性係数	$\text{Pa} \cdot \text{s}$
ξ	界面活性剤添加濃度	ppm
σ	表面張力	N/m

参考文献

- (1) 柏木孝夫ほか 2 名, 機論, 51(B463), 1002(1985).
- (2) 柏木孝夫ほか 2 名, 機論, 57(B 539), 2277 (1991).
- (3) 高原勉ほか 4 名, 冷論, 9(3), 235 (1992).
- (4) M.Hozawa et al., J.Chem.Eng. Japan, 24(2), 209 (1991).
- (5) H.DAIGUJI et al., Int.J.Heat Mass Transfer, 40(8), 1743 (1997).
- (6) 西村伸也ほか 3 名, 冷論, 17(3), 223(2000).
- (7) 西村伸也ほか 3 名, 第 26 回可視化情報シンポジウム講演論文集, 18(1), 29 (1998).
- (8) N.Nishimura et al., Proc. of 20th Int. Congress of Refrigeration, 2604(CD-ROM)(1999).
- (9) 奥野泰幸ほか 3 名, 平成 12 年度日本冷凍空調学会講演論文集, 85(2000).
- (10) 西村伸也ほか 3 名, 第 10 回環境工学総合シンポジウム 2000 講演論文集, 00-7, 386 (2000).
- (11) 野邑奉弘ほか 3 名, 平成 8 年度日本冷凍協会講演論文集, 209 (1996).

本研究は科学研究費補助金 (基盤研究(C)(2)09650251 および(C)(2)13650234) ならびに文部省最先端設備費の助成を受けてなされたものであり、ここに記して謝意を表す。また、吸収現象の可視化観察に用いたレーザーホログラフィー実時間干渉法についてご指導いただいた東京農工大学大学院の柏木孝夫教授に謝意を表します。