カリウムの凝縮熱伝達に関する実験的研究*

石 黒 亮 二^{*1}, 杉 山 憲一郎^{*1}

An Experimental Study on Potassium Condensation

Ryoji ISHIGURO and Kenichiro SUGIYAMA

The objective of the present study is to clarify the characteristics of metal condensation. In the present study, highly accurate measurements of condensation rate, condenser surface temperature and vapour pressure are rendered possible. In addition to the techniques for these measurements, the vacuum distillation method is adapted to ensure that the results are not affected by the presence of non-condensable gases. The conformity in the vapour flow field of the present apparatus to previous analyses is also assured. Measurements are made by using potassium for a vapour temperature range from 553 K to 633 K. It is found that the present result is in agreement with the analysis of Labuntsov and Kryukov and the condensation coefficient is very close to unity. It is also concluded that Schrage's theory predicts higher condensation rates than those in actual cases.

Key Words: Phase Change, Metal Condensation, Potassium, Condensation Coefficient, Intensive Condensation

1. 緒 言

過去 30 年間にわたり金属の凝縮熱伝達に関する実験および解析が多数報告されている⁽¹⁾。実用上これらの研究は、高温域において優れた伝熱特性を持つアルカリ金属を、人工衛星の動力用熱媒体、二流体サイクルの高温用媒体あるいはヒートパイプの熱媒体などへ利用することを目的として行われている。また、この種の研究は、Na 冷却形高速増殖炉の安全解析のためにも重要である。

この分野に関する伝熱学上の興味は、金属の凝縮では、凝縮液膜の熱抵抗が非常に小さく、気液界面に大きな温度ギャップが生じる点である。界面におけるこの温度ギャップは、実用的な温度域でも液膜で生じる温度降下と同程度となる。したがって、凝縮熱伝達率の予測に当たって、水や有機媒体に用いられていた Nusselt 流の解析は適用できない。

界面に生じる温度ギャップは、分子の平均自由行程の数倍程度の領域で生じることから、その大きさは分子運動論に基づく解析により求められなければならない

い。この際、凝縮係数や蒸発係数の値をいかに定めるかが問題となる。この点に関して従来の研究では凝縮係数と蒸発係数は同一の値を持つとして凝縮係数のみを実験的に定めている。

凝縮係数の値は、Subbotin⁽²⁾⁻⁽⁴⁾や Rohsenow⁽⁵⁾⁽⁶⁾のグループに代表される多くの実験により報告されているが、圧力が低い場合 ($<10^3 \sim 10^4$ Pa) には 1 に近く、圧力が大気圧に近づくとともに非常に小さくなる。Wilcox と Rohsenow⁽⁶⁾は、従来報告されていたこのような傾向は測定精度や不凝縮ガスの影響によるものであって、圧力によらず凝縮係数は 1 に近いと主張している。しかし、その根拠は確定的とは言えずいまだめいりような結論は得られていない。

上述の点に加え、実験的に求められた凝縮係数に関するもう一つの問題は、この係数の算出に当たって大部分の研究が Schrage の理論⁽⁷⁾を用いていることである。Schrage の理論は、その性格から蒸気側の分子と凝縮面から放出される分子との衝突が考慮されておらず、したがって、圧力が低く分子の平均自由行程が大きな系 (クヌッセン数が大きな系) においてのみ妥当性が高いと推定される。しかし、従来の実験は、いずれも蒸気圧が高く、分子の平均自由行程の値が小さい系 (クヌッセン数が小さい系) で測定が行われており、

* 昭和 62 年 11 月 20 日 第 948 回講演会において講演、原稿受付 昭和 61 年 10 月 20 日。

^{*1} 正員、北海道大学工学部 (〒060 札幌市北区北 13 条西 8 丁目)。

この理論により凝縮係数を評価している点については再検討を要する。

以上は従来報告されている平衡からあまり離れていない実験結果の要約である。それに対し実用上重要な平衡から大きく離れた領域までを含む凝縮実験がRoseのグループ⁽⁸⁾⁽⁹⁾により報告されている。彼らの実験はより包括的な視点から金属の凝縮特性を明らかにしようとしており、従来報告されていない実験事実を観察している。しかし、測定精度上の問題があり、従来の問題点を含めて定量的に凝縮特性を検討するレベルに至っていない。以上のように金属の凝縮現象は現在まで基本的に良く理解されているとはいえない。

従来の研究において金属の凝縮現象が正確に把握できない最大の理由は、精度の高い実験が困難なことにある。この種の実験研究では、高温・高気密の環境下での高精度の測定が要求されるが、金属蒸気は毒性が強かったり、化学的に活性であるものが多く、精度の高い測定は容易でない。

著者らは、従来のこの種の実験における問題点を分析し、高精度の測定が可能な実験装置の開発を行ってきた^{(10)~(12)}。本論文はそれらの研究の現時点でのまとめとして位置付けられるものである。最初に本研究で開発された装置により、従来の問題点を取り除いた測定が可能であることを示す。その後、カリウムによる実験結果に基づき、Schrageの理論の妥当性やRoseらが報告した凝縮特性など従来の研究に関する包括的な検討について述べる。

2. 記 号

P_s : 凝縮液面温度に対応する飽和圧力

P_v : 凝縮面遠方での蒸気の静圧力

R : ガス定数

T_s : 凝縮液面温度

T_v : 凝縮面遠方での飽和蒸気温度

ξ : 式(2)で定義される係数

σ : 凝縮係数

σ_s : 凝縮係数〔式(3)で使用する場合〕

ϕ_h : 熱流束

ϕ_m : 凝縮量

3. 実験装置

従来の実験における問題点は、以下の項目にまとめることができる。

- (1) 凝縮液面温度および凝縮熱流束の測定精度
- (2) 蒸気圧力の測定精度
- (3) 不凝縮ガスの影響

(4) 解析の系との対応性

本研究では、これらの問題点を実質的に取り除いた実験装置を製作し実験を行った。

図1に本研究に用いた凝縮実験装置を示す。ボイラで生じたカリウム蒸気は、テストコンデンサで凝縮した後戻り管を通りボイラ部に戻る構造となっている。ボイラ部のカリウム量は2.5 kg、ボイラの加熱容量は約5 kWである。なお、この装置はメタルバルブを介して油拡散ポンプの真空系に接続されている。したがって、本装置は実験に先立ち高真空下で十分にガス放出を行うことができる。以下に上述の項目に対応させて本装置の特徴について述べる。

3.1 凝縮試験部 上記(1)の項目は、凝縮試験部の測定精度の問題である。この精度が結果にいかん影響するかについては、WilcoxとRohsenowによって検討されているが、本研究では従来のものより精度の高い凝縮試験部を開発し、実験に用いた。

本研究の凝縮試験部は30 mm×30 mmの垂直面を持つ無酸素銅製のブロックである。凝縮面温度と熱流束は、この銅ブロック側面の六つの貫通孔(0.35 mm×0.35 mm)にセットされた合計12本の外径0.25 mmシース式熱電対の指示値により評価した。このような方式による評価では、穴径ができるだけ小さくかつその位置が正確に決定されていることが精度上最も重要である。そのため、本実験ではブロックを二分割し、所定の位置に凝縮面に平行に溝加工をした後、拡散接合により一体化し貫通孔を設ける方法を採用した。

図1 実験装置

この場合、接合面が漏れの原因とならないため片面に $5\mu\text{m}$ の銀めっきを施し、両面を強く加圧した状態で約 800°C の真空容器内で接合をした。この操作により機械加工によって生じた数 μm 程度のくぼみは銀で満たされ、接合面の強度も十分なものとなる。また、銀と銅は部分固溶系であるため、銀の銅への拡散は $10\mu\text{m}$ 程度の範囲に限られ、接合面のごく近傍を除いて銅の材質への影響はない。

この銅ブロックは、ステンレス製のフランジを介して装置に溶接されているが、フランジの肉厚は極力薄くし 1.2mm とした。フランジ接合部からの伝導による流入熱が、測定値に影響しないことを確認するため、凝縮試験部を模擬した系についての熱伝導の数値解析を行った。その結果本研究の測定域では、凝縮面から流入する熱量に対し、フランジ接合部からのそれは2%以内であることがわかった。ただし、この影響は銅ブロック周辺に限られ、ブロック中央部での熱電対による測定値には、全く影響を与えない。

コンデンサに使用した銅の熱伝導率の値は、あらかじめ十分焼なました後測定し、公表されている値と一致することを確認している。また、銅ブロック中にセットされる熱電対は金属(Sn, Pb, Zn)の融点を用いて測定域に対して校正した。

3.2 湿りタイプの蒸気温度測定装置 上記の第(2)項目については、著者らの初期の実験⁽¹⁰⁾を含め、従来の実験では注意が払われておらず、単に凝縮面近傍での蒸気温度を測定し、その値に対応する飽和圧力を求めていた。ボイラ部の加熱状態、試験部付近の流路形状、凝縮試験部と流路との位置関係などにより蒸気は過熱状態となり得る。したがって、従来の方法では正確な蒸気圧の測定は保証されない。

本研究ではこの問題を取り除くため、湿りタイプのサーモカップルウエルを考案し、蒸気圧の測定を行った。このサーモカップルウエル部はステンレススチール製のパイプで作られており、表面に細かい目のステンレススチールメッシュが巻き付けてある。測定の際には、このパイプ内にガスを流して冷却し、メッシュ表面にカリウムを凝縮させ、その液をメッシュ内に保持した。その後冷却用ガスを停止し、十分時間を取れば、このサーモカップルウエルは周囲の蒸気の圧力で熱平衡状態となる。この条件下でウエル内に挿入された熱電対により温度を測定すれば、測定値は蒸気圧に対応する飽和温度である。

このタイプのサーモカップルウエルは、凝縮面に垂直に1本(外径 3mm)と凝縮面に平行に逆U字形に1本(外径 2mm)をセットした。また、ステンレスバ

イプ表面に巻き付けたメッシュに対する、カリウムの濡れ特性は、予備実験により確認した。その結果濡れは極めて良好であり、ステンレス製メッシュ全域が均一に濡れることがわかった。

3.3 カリウムの真空蒸留 高温での凝縮特性を明らかにするためには、項目(3)の問題について特段の注意を払うべきであるが、従来の研究では、この問題が取り除かれていることを明確にしていない。

本研究では、真空蒸留法を採用してカリウム中の不純物を取り除くとともに、装置壁面からのガス放出についても十分な注意を払った。真空蒸留は、カリウムを充てんしたステンレススチール製の容器を 400°C 程度に加熱し、常温の空気で冷却された別のステンレススチール製容器に凝縮する方法で行った。この際、凝縮容器にセットされた電離真空計の指示値は、1オーダほど上昇したので、同一手順でもう一度蒸留を行った。この2回目の操作では、蒸留開始前と蒸留中で、電離真空計の指示値は変化しなかった。したがって、この2回の蒸留操作により不凝縮ガスとなり得る成分は取り除かれたと判断した。

また、装置は十分ベークアウトを行った後メタルバルブを閉じ放置された。その結果 10^{-4}Pa オーダの真空度を1日以上にわたって保持することが確認できた。この保持実験の結果は、この装置では通常のヘリウムリークデテクタを用いても漏れを確認できないことを示している。またベークアウトされた面としては理想状態に近いものである。

3.4 試験部の形状 従来の金属の凝縮に関する理論や解析は、ほとんどが一次元モデルについて行われている。しかし報告されている実験の系は解析の系と対応していない場合が多く、従来の議論をあいまいにしている原因の一つになっていた。本装置では、カリウム蒸気は上流部でレデューサにより絞られ、凝縮面とほぼ等しい断面積を持つ一次元流となって凝縮試験部に飛び込む構造を採用した。したがって、形状に伴う問題は取り除かれている。

4. 実験手順

蒸気温度を一定とした測定を行うため、ボイラへの入力にPID制御装置によりコントロールされた。この状態で凝縮試験部およびその下流部の戻り管や第2コンデンサ接続部は断熱条件に保持され、上流から流入する蒸気は一次元流で凝縮面に飛び込むように調整された。また、測定に先立ち、凝縮試験ブロック端面の冷却フィンの数を調整するとともに、サーモカップルウエルに冷却ガスを流し、ウエル表面の湿りの条件を作

った。蒸気温度測定用熱電対および凝縮試験部の熱電対の起電力は、最小感度 $1\mu\text{V}$ のデータ集録装置(タケダ理研製)に取り込んだ。

5. 精度確認実験の結果

5.1 凝縮試験部銅ブロック内温度分布 図2に銅ブロック内の温度分布の測定例を示した。最小二乗法で得られた直線に対し、測定値は良く乗っている。この例では熱流束は 293 kW/m^2 であるが、測定値の直線からの最大ずれは約 0.2°C であった。本報での熱流束はいずれの場合もこの値より小さい。したがって、この結果より凝縮試験部の測定精度は、本研究の目的のためには十分なものであると判断した。

5.2 湿りタイプのサーモカップルウエルによる温度測定 本測定法による蒸気温度の測定例を図3に示した。この例は、ボイラの入力是一定(装置内の蒸気圧は一定)として、ウエル近傍の壁面を加熱し、過熱蒸

図2 凝縮試験部銅ブロック内の温度分布の測定例

図3 湿りタイプのサーモカップルウエルによる温度の測定例

気と壁面からの放射がウエルに影響を与える環境下での値である。湿りの条件が成立している間(約 30 min)は、蒸気圧に対応する一定な温度を示し続けることがわかる。しかし、一度乾いた状態になると、壁面に追従してサーモカップルウエルの温度が上昇して行く。従来のこの種の実験では、この点に十分な配慮が行われておらず、状況により実験精度に影響を与えていた可能性がある。

5.3 不凝縮ガスの影響に関する実験 本装置には、不凝縮ガス成分が試験部に蓄積される場合、カリウム蒸気の強力な流れを作り出し、この流れとともにその成分を排除する目的で第2コンデンサを設けた。この第2コンデンサを利用し、本測定で不凝縮ガスの問題が本質的に取り除かれていることを次の手順で確認した。まず、凝縮試験部と第2コンデンサ間のバルブを全開にし、試験部付近に蓄積しているかもしれない不凝縮ガスを強いカリウムの蒸気流により第2コンデンサ側へ排除する。一定時間この操作を行った後、このバルブを閉じ凝縮実験を行う。もし時間経過とともに凝縮伝熱特性が悪くなるのであれば、不凝縮ガスが再度徐々に蓄積していることになる。一方、一定値を保つのであれば、不凝縮ガスは存在しないと判断できる。このようにして行った実験結果を図4に示した。縦軸には、式(2)で定義されるガスの影響を敏感に受ける係数 ξ を取った。横軸は時間である。図4では上記の操作を2度行っているが、係数 ξ の値は常に一定で時間の経過に対し変化は認められない。この結果は、本実験では、不凝縮ガスの影響が実質的に存在しないことを意味する。

6. 測定結果および考察

6.1 測定結果 図5に本測定で得られた凝縮液面と蒸気の温度差と凝縮熱流束の関係を蒸気温度をパラメータとして示した。図5から明らかなように蒸気

図4 係数 ξ の時間に対する非依存性

温度が高くなる程凝縮伝熱特性が急激に向上して行くことがわかる。

図5の実線は、次式で示される Labuntsov と Kryukov⁽¹³⁾の値である。

$$\phi_m = \frac{1.67}{\sqrt{2\pi}} \left[1 + 0.515 \ln \left\{ \frac{P_v}{P_s} \left(\frac{T_s}{T_v} \right)^{1/2} \right\} \right] \frac{P_v - P_s}{\sqrt{RT_v}} \quad \dots\dots\dots (1)$$

上式は、彼らが凝縮係数 σ を1として得た解析値に基づき提案した整理式である。図5から明らかなように本結果は、彼らの結果とほぼ一致している。なお、本測定値を整理するに当たり、液膜表面温度は、測定した熱流束の値を用い、Nusselt 流⁽¹⁴⁾の液膜速度分布と温度分布を仮定して評価した。液膜内における温度降下は測定された蒸気温度と銅ブロック表面温度との差に対し非常に小さく、最大の場合でも3%以下である。したがって、従来の測定に比べ液膜内での温度降下は小さく、上述の液膜表面温度の評価方法による誤差は実質的に生じない。

6・2 凝縮特性の検討 金属蒸気の凝縮特性を明らかにするため、図5の結果を図6のように整理した。横軸は凝縮量であり、左縦軸は次式で定義される ξ である。

$$\phi_m = \xi \frac{P_v - P_s}{\sqrt{RT_v}} \quad \dots\dots\dots (2)$$

従来の平衡に近い理論では、この ξ の値は定数で与えられている。したがって、縦軸にこの値を取り、平衡に近い場合の理論値と実験値の比較や非平衡度が大きい場合のそれらの値からの相違を明らかにすることにより、金属の凝縮現象の特徴をめいりようにすることができる。

図6の右縦軸には係数 ξ との対応を容易にするため、従来の平衡に近い実験で比較に用いられていた次式の Schrage の理論の凝縮係数 σ_s を取った。

$$\phi_m = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left(\frac{2\sigma_s}{2-\sigma_s} \right) \frac{P_v - P_s}{\sqrt{RT_v}} \quad \dots\dots\dots (3)$$

最初に凝縮量が小さい平衡に近い場合 ($\phi_m \approx 0$) について検討してみる。本実験の外挿値は、いずれの蒸気温度でも、 $\xi = 0.67$ 程度の値を持ち、 σ_s で0.9程度の値となっている。この温度域での従来の実験結果としては Subbotin ら⁽²⁾のデータがある。本測定に比べ、彼らの測定域は高温側にあるため、部分的な比較しかできないが、図6にはそれらの値も併記した。彼らの測定では、凝縮量と蒸気温度を系統的に変化させた場合のデータは得ていない。図6から明らかなように、彼らのデータは同一凝縮量に対し、本実験値より幾分高い値を示し、 σ_s で見るとほぼ1であることがわか

る。

従来、平衡に近い Subbotin ら⁽²⁾⁻⁽⁴⁾や Wilcox と Rohsenow の実験では、Schrage の理論による評価を行い凝縮係数はほぼ1であると報告している。本測定では、実験上の問題が取り除かれていることを確認した後、蒸気温度を固定し、凝縮量に対する依存性を検討した。その結果係数 ξ は、明らかに凝縮量が増加するほど増加することが確認できた。また、 $\phi_m \approx 0$ の場合には、Schrage の理論で評価すると見掛け上 σ_s は1ではなく0.9に近い値となることもわかった。

本実験値は、測定全域で実線で示された Labuntsov と Kryukov の解析結果とほぼ一致している。先に述べたようにこの解析結果は凝縮係数を1として得られたものである。平衡に近い場合 ($\phi_m \approx 0$) には、彼らの解析では $\xi = 0.67$ を与えるのに対し、Schrage の理論では $\sigma_s = 1$ の場合 $\xi = 0.80$ となる。式(2)より明らかなように係数 ξ は一種のコンダクタンスと見ることが出来るから、平衡に近い場合 Schrage の理論では、凝縮係数 σ_s を1とした場合、同一の蒸気圧差に対し凝縮係数を1とした Labuntsov と Kryukov の解析より1.19 ($=0.8/0.67$) 倍だけ大きな凝縮量を与えることを意味する。この相違は、Labuntsov らの解析では蒸気相側から凝縮面に向かう分子と凝縮面から放出される分子との衝突を考慮しているのに対し、Schrage の理論ではこの干渉効果を考慮していない

図5 測定結果

ことから生じていると推定される。この結果から、実用上重要な飽和温度が高い領域では、液相からの分子と蒸気相からの分子の衝突を考慮していない解析では正確な凝縮量を予測できないことがわかる。

また、図6に示された凝縮量の増加とともに係数 ξ が大きくなる現象に対し、両相からの分子の衝突も寄与していることが次のように説明できる。分子運動論の立場からみると正味の凝縮量は、蒸気相から凝縮面へ向かう分子と凝縮面から放出される分子との衝突によって影響をうける。この衝突の効果は、両相の温度が近くエネルギー的に差がない時程強く、この場合は、蒸気側からの分子は容易に凝縮面に飛び込めない。一方、液相の温度が低くなった場合、液相からの分子の

エネルギーは相対的に小さくなるため、エネルギーの大きい蒸気相側からの分子は衝突の影響を強く受けて、容易に液相に飛び込むことができる。したがって、マクロ的な凝縮のコンダクタンスを表す係数 ξ は、蒸気相と液相の温度差が大きくなり凝縮量が増加すると、大きな値を与える傾向を持つと言える。以上の理由に従えば、本実験より高い蒸気温度で測定が行われた場合でも、界面での物理現象に変化がない限り、凝縮量に対し右肩上がりのデータが得られることになる。

なお、図6の傾向が存在することは、Roseら⁽⁸⁾⁽⁹⁾が水銀の実験で最初に報告している。しかし、彼らの実験では、蒸気圧の測定や測定部の幾何学形状が解析系に対応していないなどの問題があり、Labuntsovらの解析とは大きな差が生じていた。

7. 結 論

この種の実験において問題となる、凝縮熱流束と凝縮面温度の測定精度、蒸気圧力の測定精度、不凝縮ガスの除去、解析の系との対応性を保証した実験装置を制作し、カリウムの凝縮実験を蒸気温度553 Kから633 Kの範囲で行った。その結果以下のことが明らかとなった。

本測定値は、凝縮係数を1とし、蒸気相からの分子と液相からの分子の相互干渉（衝突）を考慮して求めたLabuntsovとKryukovの解析値と良い一致を示した。また、一種の凝縮のコンダクタンスを示す係数 ξ は、凝縮量が増加するほど大きくなることが明らかとなった。これは物理的にも妥当な傾向である。本結果は、凝縮係数を1としたSchrageの理論で予測されるよりも小さな凝縮量を与える。従来、Schrageの理論($\sigma_s=1$ の場合)で予測されるよりも低い凝縮量を与える測定値は、不凝縮ガスなど実験装置上の問題が懸念された。しかし、本研究ではその懸念はない。したがって、この相違は実際の現象と解析モデルとの相違から生じていると考えるのが自然である。蒸気相の分子と液相の分子の相互干渉（衝突）による抵抗を考慮していないSchrageの理論では、実際より高い凝縮量を予測すると結論される。

本研究は初期の段階で文部省科学研究費〔昭和53～54年度特定研究エネルギーの有効利用に関する工学的研究ならびに55年度エネルギー特別研究(I)〕の援助をいただいた。また、研究を進める過程で、東京大学生産技術研究所 棚沢一郎教授、ロンドン大学クイーンメリー校 Rose教授およびマサチューセッツ工科大学 Rohsenow教授にご助言あるいはご討論

図6 本実験結果と従来の結果との比較

をいただいた。ここに付記して深く謝意を表する次第である。

文 献

- (1) Rohsenow, W. M., Dwyer, O. E. ed., *Progress in Heat and Mass Transfer*, 7, (1973), 469, Pergamon Press.
- (2) Subbotin, V. I., ほか 3 名, *Teplofiz. Vys. Temp.*, 2-4 (1964), 616.
- (3) Bakulin, N. V., ほか 3 名, *Teplofiz. Vys. Temp.*, 5-5 (1967), 930.
- (4) Ivanovskii, M. N., ほか 2 名, *Atomn. Energ.*, 24-2 (1968), 146.
- (5) Sukhatme, S. P. and Rohsenow, W. M., *J. Heat Transf.*, 88-1 (1966), 19.
- (6) Wilcox, S. T. and Rohsenow, W. M., *J. Heat Transf.*, 92-3 (1970), 359.
- (7) Schrage, R. W., *A Theoretical Study of Interphase Mass Transfer*. (1953), 32, Columbia Univ. Press.
- (8) Necmi, S. and Rose, J. W., *Int. J. Heat Mass Transf.*, 19-11 (1976), 1245.
- (9) Niknejad, J. and Rose, J. W., *Proc. R. Soc. London*, 378-1774 (1981), 305.
- (10) Ishiguro, R. ほか 2 名, Mizushima, T. and Yang, W. J. ed., *Heat Transfer in Energy Problems*. (1983), 93, Hemisphere Pub. Corp.
- (11) Ishiguro, R. ほか 2 名, Wang, B. W. ed., *Heat Transfer Science and Technology*, (1987), 463, Hemisphere Pub. Corp.
- (12) Ishiguro, R. and Sugiyama, K., *Heat Transf.* 1986, 4, (1986), 1635.
- (13) Labuntsov, D. A. and Kryukov, A. P., *Int. J. Heat Mass Transf.*, 22-7 (1979), 989.
- (14) 甲藤, 伝熱概論, (昭 39), 259, 養賢堂.

討 論

〔質問〕 棚 沢 一 郎〔東京大学生産技術研究所〕
大変むずかしい実験を根気よく続けられ、信頼性の高い結果を得られたことに敬意を表す。

貴論文 972 ページめで、蒸発分子と凝縮分子の衝突の効果について述べておられるが、例えば液相の温度が低くなり飛び出す分子のエネルギーが相対的に小さくなると、凝縮分子との衝突によって再び液相に戻される割合が多くなるものと思われる。これは、見掛けの蒸発係数の減少であり、凝縮係数と蒸発係数の値が等しいことを前提としている Labuntsov らの理論との矛盾を招くようにも思えるのだがいかがか。

〔回答〕 凝縮係数および蒸発係数は、液相に向かって飛んできた分子のうち実際に液相に吸収される割合、および液相温度の飽和圧で放出することが見込まれる分子数に対し、実際に飛び出す割合を表す係数として定義されている。したがって、液相から蒸気相へ放出された分子が、他の分子との衝突の結果再び液相方向へ戻される場合、この分子は前歴に関係なく蒸気

相から液相へ向かう分子であり、この分子が液相で吸収される確率は凝縮係数によって定まり、蒸発係数には無関係である。

従来実験との比較に用いられていた Schrage の理論〔式(3)〕では液相と蒸気相からの分子の衝突が考慮されていない。それゆえ、この理論で衝突の効果を反映している実験値を解釈するためには、見掛けの凝縮係数が 1 より小さい（あるいは大きくなる場合もある）と説明せざるを得なかった。説明が不十分だが 971 ページ右欄 9 行めの“見掛けの σ_s が 0.9 となる“という記述はこの事情を述べたものである。

この問題を明らかにするため、本研究では、凝縮係数、蒸発係数および衝突の効果を含む係数 ξ を用いて実験結果の物理的意味を説明したものである。Labuntsov らの解析においても上述の意味で蒸発係数・凝縮係数を用いており、それらの値を 1 とした場合の結果が本実験値と一致することを述べたのであり、両者の比較には矛盾はない。