滴状凝縮の液滴初生の顕微鏡観察*

(膜成長説への三つの実験による助言)

原口 忠男^{*1}, 島田了八^{*2}, 武山 斌郎^{*2}

Observation of the Initial Droplet Formation Mechanism in Dropwise Condensation Using a Microscope (Film Growth Hypothesis as Suggested by Three Experiments)

Tadao HARAGUCHI, Ryohachi SHIMADA, and Toshiro TAKEYAMA

Initial droplet formation in dropwise condensation is one of the important mechanisms for nucleation in the phase change phenomenon. Film fracture hypothesis has been proposed by other researchers and they have estimated film thickness. But they could not observe the initial droplet formation. Here three experimental studies based on microscopic observations were performed. The authors observed that dropwise condensation nuclei were grown from a very thin film. Film thickness was from 0.1 μm to 0.3 μm and critical droplet size was from 0.8 μm to 1.3 μm . Critical droplet site densities of $1.4\text{--}2.8 \times 10^7$ sites/ cm^2 were found.

Key Words: Phase Change, Condenser, Heat Transfer, Dropwise Condensation, Nucleation Hypothesis, Film Growth Hypothesis, Thin Liquid Film, Steam

1. 緒 言

滴状凝縮の熱伝達率が膜状凝縮のそれに比べて1けた大きいということがShmidtら⁽¹⁾によって報告されて以来、滴状凝縮に関する多くの研究がなされてきた⁽²⁾。中でも、滴状凝縮の発生機構に関する研究にはJakob⁽³⁾の、蒸気は初め冷たい固体表面上に薄液膜状に凝縮し、ある厚さに達したところで分裂して滴になるという仮説にもとづく薄膜分裂説と、凝縮面上の小さなキャビティなどが発生点となるとする核沸騰の考察の核生成説とがある。前者の説を支持するものとしては、Welch-Westwater⁽⁴⁾、Rukenstein-Metieu⁽⁵⁾、Sugawara-Katsuta⁽⁶⁾らの研究がある。後者の説を支持するものとしては、Umur-Griffith⁽⁷⁾、McCormik-Westwater⁽⁸⁾、幡宮・田中⁽⁹⁾、棚沢・落合⁽¹⁰⁾らの研究がある。

薄膜分裂説および核生成説に共通することは、滴状凝縮時に伝熱面上に裸面が露出することである。しかし、著者らは前報⁽¹¹⁾で非常に平滑なポリ塩化ビニリデン上の観察において薄液膜中から核となる滴(液丘)

が生成・成長し、滴と滴の間には常に薄液膜が存在するということを確認し、従来の薄膜分裂説および核生成説と異なる膜成長説を提唱した。前報⁽¹¹⁾では主としてHe-Neレーザ光による干渉じまと電氣的計測を行ったが、本報では白色光による液滴の高速度顕微鏡観察を行い、大きな滴の落下直後、および真空容器中に蒸気を注入した場合における滴状凝縮面に発生する薄液膜中から核となる液丘が生成・成長する過程の撮影に成功した。また、液中に半分ほど埋没する垂直に立てられた滴状凝縮面と自由表面との境界を顕微鏡で観察し、滴の合い間を非常に薄い液膜がスムーズに上下することが観察できた。以上の二、三の実験を通して、薄液膜中より核となる液丘が生成されることが前報⁽¹¹⁾と同様確認された。また、従来の滴状凝縮研究者の初生液滴径、液膜厚さ、発生点密度などについての測定値、算出値との比較も行った。

記 号

d_p : 滴の直径 m
 n : 滴の数 drops
 r_p : 滴の半径 m
 t : 時間 s
 δ_i : 液膜の厚さ m

* 原稿受付 平成元年9月6日。

^{*1} 正員、茨城大学工業短期大学部 (〒316 日立市中成町4-12-1)。

^{*2} 正員、石巻専修大学理工学部 (〒986 石巻市南境新水戸1)。

- N : 滴径分布 drops/($\text{cm}^2 \cdot \text{mm}$)
 N_p : 液滴移動跡の滴の数 drops
 ΣN_p : 液滴移動跡の滴の総数 drops
 V_t : 液滴移動跡の総凝縮量 m^3

2. 実験装置および方法

2.1 実験 I, 水膜の移動直後の模擬実験 実験装置は図 1 に示すように、水中に垂直に立てたガラス製伝熱面上に滴状凝縮を起こさせ、下面は水中に埋没し、水面との境界を人為的に静かに上下に動かす。すなわち、境界に乾燥した裸面が存在しているかどうか、境界領域の滴状凝縮の様相を 600 倍の顕微鏡を用い、高速度カメラ(ハイカム II 400 E)およびスチールカメラを使用して撮影を行った。顕微鏡は回転可能な微動台に装着されており、上下および前後の移動が可能である。対物レンズの挿入口から冷却液が漏れないよう、入口に O-リングが装着されている。ガラス面(1.80 mm)には滴状凝縮を実現させるために、水で洗浄した後エチルアルコールでさらに洗浄し、表面を乾燥させてから、オレイン酸 80%, トルエン 20% の混合液を促進剤として塗布した。ここで、新しいガラス面を使用することにより、凝縮面のきず(溝や孔)の影響を排除した。なおガラスの素材はソーダガラスである。本報の三つの実験で共通することであるが、光源としては超高圧水銀灯(1.064 kW)を透過光として凝縮面前方より照射した。蒸気はフラスコ内の純水を電気加熱で沸騰させたものを使用し、凝縮容器までのガラス管はシースヒータで加熱され、結露しない程度に保温されている。

2.2 実験 II, 液滴移動直後の観察 実験装置の概要を図 2 に示す。顕微鏡は日本光学製オプチフォト XPT-UBD で、最高倍率 4500 倍のものを使用し、光源は顕微鏡前方より透過光として光軸にほぼ平行になるように配置される。凝縮面後方より観察するので、対物レンズは凝縮面後方約 0.1 mm まで接近可能である。テフロンブロック製の凝縮容器の詳細図を図 3

図 1 液膜の移動直後の観察装置

に示す。凝縮面に用いた 10 μm のポリ塩化ビニリデン膜は促進剤を塗布しなくても真円に近い滴状凝縮液滴の輪郭が現れる。透過光が凝縮面に良く入射するように、光源側ガラス窓にはくもり防止用シースヒータが内蔵してある。

また、対物レンズの挿入口から冷却液が漏れないよう、入口には O-リングが装着されている。なお窓ガラスは顕微鏡用マイクロカバーガラス(0.135 mm)を使用している。

2.3 実験 III, 真空容器中の凝縮面への初生液滴発生の観察 実験装置を図 4 に示す。内径 55 mm、高さ 100 mm のガラス製真空容器中をロータリ式真空ポンプで真空(22.6 kPa)にした後コック弁を開き、大気圧下で沸騰させた蒸気を一気に流入させる。水中(約 20°C)に没した容器内面の内側に突出した直径 20 mm の平行に向かい合った窓の一方を滴状凝縮面とし、その面上の様子を図 2 と同じ光学系および方法で観察し

図 2 サブミクロン観察実験装置

図 3 凝縮容器

図 4 真空容器実験装置

た。なお、窓ガラス(0.50 mm)はオプチカルフラットに研磨されており、ポリ塩化ビニリデンが被覆されている。この実験では、実験 I, II で観察不可能な凝縮液滴が全く存在しない状態からの凝縮開始の観察が可能である。

3. 実験結果および考察

3.1 実験 I, 水膜の下降直後の模擬の実験 スチール写真でとらえたものを図 5 に示す。図 1 の実験装置で示すように前方から光を照射し、流下水面際の観察を行うために、表面張力によって壁面にわん曲した水膜が光を反射し、高倍率では視野が狭くなるうえ光量が激減するので倍率をやむをえず下げた。写真の下方で黒い部分が光を反射している水膜である。図 5 中の模式図で示すように、水面より表面張力によって壁面に薄い水膜が生じ、水面が降下しても裸面が現れず、薄い水膜が壁面上に常に存在し、その水膜上に凝縮が生じ、滴状凝縮となる。写真には薄水膜域中に現れた初生液滴の核となる小さな液丘、またその上方部には一つの大きな液丘になろうとしている状態がみえる。

図 5 流下水面際の滴状凝縮

図 6 液滴移動直後の滴状凝縮の様相

図 7 真空容器への蒸気注入による滴状凝縮の様相

そしてまたその上方の領域では成長・合体を繰り返して大きな滴となっている。ここで、プロモータを塗布しないで膜状凝縮を行わせると、垂直面の膜状凝縮した液膜は連続的に水平面まで液膜が連なる状態を示す。

滴状凝縮が行われているときに水面に $100\ \mu\text{m}$ 程度の非常に小さな振動を $0.5\sim 1\ \text{Hz}$ 与えると、水面と同様に薄水膜は動揺し、滴状凝縮領域に侵入するが、薄水膜厚さより大きな径の滴は水膜に吸収されることがなく残存し、滴と滴の間を薄水膜が上下し、水膜と滴とが共存することも観察できた。これは滴と滴の間に侵入する水膜よりさらに薄い水膜がすでに撥水性凝縮面上に存在するために、滴の合い間をなめらかに水膜が上下するものと思われる。

3・2 実験 II, 液滴移動直後の観察 図 6 に $500\ \text{コマ/s}$ の高速度カメラでとらえた液滴移動直後の写真の一例を示す。顕微鏡撮影のため視野が狭いので、液滴の移動直後にカメラを始動させ、 $100\ \text{ft}$ のフィルム上に薄液膜から液滴の核となる微小液丘の生成過程が記録されるように行った。1~3 コまめは大きな滴の端の非常に薄い液膜である。4 コまめに矢印で示す薄い液膜端が波打ち際のように白くうっすらと現れる。また滴の核となる約 $1\ \mu\text{m}$ 前後の液丘も現れ始める。6 コまめには薄液膜中に多くの液丘が現れはじめ、13 コまぐらいから、液丘の外形がはっきりと現れてくる。その後、時間の経過とともに大きな液丘へと成長する。この観察において前報⁽¹⁾で提唱した、薄液膜中から核となる液丘が生成・成長するという「膜成長説」が行われていることをとらえることができた。

3・3 実験 III, 真空容器中の凝縮面への初生液滴発生の観察 図 7 に示すように、図 6 と同様、凝縮面

上に薄液膜が生じた結果その液膜中より滴となる小さな液丘が現れ、大きな液丘へと成長する「膜成長説」が行われていることをとらえた。撮影速度は図 6 と同様、 $500\ \text{コマ/s}$ である。この実験においては、薄液膜が生成されたのち液丘が生成されるため、液滴移動直後の場合より液丘の生成されるまでの時間が長い。1~2 コまめまでは薄液膜が生成される段階であるためか変化は認められないが、3 コまめになると液膜中に濃淡が現れる。これらは、あたかも水平流体層内に現れるベナードセルのようなものであり、マランゴニ効果が次第に強く現れるため、4 コまめからさらにその濃淡は多く現れ、8 コま前後で液膜中から液丘になろうとしているものもあるが、液丘同士の間隔は非常に狭く、成長・合体が激しく繰返されるため、26 コま前後からやっとはっきりとした液丘に分かれる運動が激しくなり、40 コま前後ではじめてはっきりとした大きさのそろった液丘となり、さらに合体・成長を繰返しなが大きな液丘となる。合体・成長が進むにつれて、大きさにはっきりと優劣が現れる。

3・4 液膜厚さおよび初期液滴径 実験 II における液滴が薄い液膜を残して早く移動した直後からの各時刻における滴径分布の一例を図 8 に示す。大きな液滴の移動直後のその跡の面積は $2.609 \times 10^{-9}\ \text{m}^2$ で、そこには滴径のそろったものがほとんどであり、その直後の $0.75\ \text{s}$ 後には大きさはほぼ $1.65\ \mu\text{m}$ であり、そのときの個数は $2.18 \times 10^{11}\ \text{個/m}^2$ である。なおこのときの過冷度は約 $10\ \text{K}$ である。図 9 はこのときの任意

図 8 各時刻における液滴径の分布

図 9 滴径の成長速度

図 10 液滴移動後の滴の個数と凝縮量の変化

の数個の滴についての成長速度を示したものである。時間の経過とともに滴は成長・合体を繰返しながら大きくなり、それぞれの滴径に優劣が現れる。このとき時刻零に外挿すると、 d_p は $0.8\mu\text{m}$ である。また、図10はこのときの液滴移動直後におこるその跡の液滴の総個数変化 ΣN_p および個々の滴径から滴を半球と仮定して算出した総凝縮液量の変化 V_t を示したものである。時刻零における総凝縮量を外挿して求め、液滴移動後のその跡の面積で除し、求めた液膜厚さは $\delta_t=0.3\mu\text{m}$ であった。

実験IIIによって得られた図7に示す真空容器中への蒸気の流入による、任意の数個の滴の成長速度および個数変化について整理したものを図11に示す。なおこのときの顕微鏡の分解能は超高压水銀灯の強くなる波長を用いると、 $0.2\sim 0.4\mu\text{m}$ である。図11より、最小液滴直径を $0.9\mu\text{m}$ として、正方ちゅう密に存在するとした場合、薄液膜厚さに換算すると $\delta_t=0.23\mu\text{m}$ となる。また、このときにおける滴径分布の時間的変化を求めたものが図12である。

滴径分布の時間変化に関する研究は、Tanaka⁽¹²⁾⁽¹³⁾による理論および実験による報告がなされている。

とくに滴径半径の大きな所における、ある一定条件下の理論と実験の良好一致を示している。しかしながら、本報における滴径半径の範囲とは違うものの、山のような類似の分布を示す。全体としての分布は、Tanasawa-Ochiai⁽¹⁴⁾、Graham-Griffith⁽¹⁵⁾の傾向にある。

本実験結果に、Ruckenstein-Metiu⁽⁵⁾による薄液膜が分裂してできる限界液滴径とその接触角との関係、式(1)を適用する。

$$\delta_t = 1/5(1 - \cos\theta)r_c \dots\dots\dots (1)$$

(ここで、 δ_t は液膜厚さ、 θ は接触角、 r_c はそのと

図11 滴の成長速度と個数変化

きの限界液滴径)

図7の平均液滴直径 $d_p=0.95\mu\text{m}$ を用い、ポリ塩化ビニリデン上の接触角 $\theta=80^\circ$ を用いると、液膜厚さ $\delta_t=0.08\mu\text{m}$ を得る。

従来の薄膜分裂説を支持する研究者おのこの膜厚さについて以下に述べる。Jakob⁽³⁾によれば、蒸気膜と仮定すると約 $0.3\mu\text{m}$ で、水膜の場合は約 $9\mu\text{m}$ の厚みであると述べている。Welch-Westwater⁽⁴⁾は液滴の最小径 $3.5\mu\text{m}$ から、水膜厚さは $0.4\sim 0.7\mu\text{m}$ という結論を得ている。Ruckenstein-Metiu⁽⁵⁾は分裂した滴はすべて同一の大きさになるという条件のもとで解析を行い、Welch-Westwaterの実験値を使用して $0.25\mu\text{m}$ を得た。Sugawara-katsuta⁽⁶⁾の干渉顕微鏡を用いた測定結果では $0.63\mu\text{m}$ であり、最小液滴径は $8.8\mu\text{m}$ である。著者らは前報⁽¹¹⁾で薄液膜の厚さが $0.12\sim 0.25\mu\text{m}$ なる結果を得ている。他研究者の初期液滴径は本報より大きいためか、液膜厚さは厚くなっている。なお、液膜は流体力学的に $0.025\mu\text{m}$ まで存在することがKirpatrick-Lockett⁽¹⁶⁾によって報告されている。

3.5 微小液滴径の発生割合 本報では、初生液滴の発生点密度は膜から核となる小さな液丘の段階で

図12 滴径分布の時間的変化

$(1.4 \sim 2.8) \times 10^7$ 個/cm² である。鶴田・田中⁽¹⁷⁾らは $5 \times 10^6 \sim 1.2 \times 10^7$ 個/cm² なる実験結果を得ている。McCormick-Westwater⁽⁸⁾らは 10^5 個/cm² という値であり、核生成説を唱える研究としては値が小さすぎる感がある。棚沢・永田⁽¹⁸⁾は湿り空気中におけるガラス面への凝縮を電子顕微鏡技術の応用によって観測し、 2.6×10^{11} 個/cm² にのぼることを報告している。

4. 結 言

高速度顕微鏡撮影で滴状凝縮面の二、三の観察を行い、滴状凝縮面上に凝縮した液膜または液滴移動直後の液膜中より小さな核となる液丘を生じ成長・合体する「膜成長説」をとらえることができた。このときの初期液滴直径は $0.8 \sim 1.30 \mu\text{m}$ と小さく、発生点密度は $(1.4 \sim 2.8) \times 10^7$ 個/cm² と大きな値である。

初期液滴以前の液膜は $0.1 \sim 0.3 \mu\text{m}$ という非常に薄い水膜であり、前報⁽¹¹⁾の滴状凝縮時の電氣的測定結果による平均薄液膜厚さ $0.25 \mu\text{m}$ と液滴落下直後の厚さ $0.12 \mu\text{m}$ は本実験範囲内に収まっている。

文 献

- (1) Schmidt, E., Schuring, W. and Sellschopp, W., *Techn.*

- Mechan. u. Thermodyn.*, **1**(1930), 53.
 (2) 棚沢, 滴状凝縮, 伝熱工学の進展, (1975), 229, 養賢堂.
 (3) Max Jakob, *Mechanical Engineering*, (1936-11), 729.
 (4) Welch, J. F. and Westwater, J. W., *Int. Heat Transf. Conf.*, (1963), 302.
 (5) Ruckenstein, E. and Metiu, H., *Chem. Eng. Sci.*, **20** (1965), 173.
 (6) Sugawara, S. and Katsuta, K., *Proc. 3rd Int. Heat Transf. Conf.*, **2**(1966), 354.
 (7) Umur, A. and Griffith, P., *Trans. ASME, J. Heat Transf.*, **87**(1965), 275.
 (8) McCormick, J. L. and Westwater, J. W., *Chem. Eng. Sci.*, **20**(1965), 1021.
 (9) 幡宮・田中, 機論, **52**-476, B (1986), 1828.
 (10) 棚沢・落合, 機論, **38**(1972), 3193.
 (11) 原口・島田・武出, 機論, **55**-519, B (1989), 3472.
 (12) Tanaka, H., *Trans. ASME, J. Heat Transf.*, **97**(1975), 72.
 (13) Tanaka, H., *Trans. ASME, J. Heat Transf.*, **97**(1975), 341.
 (14) Tanasawa, I. and Ochiai, J., *Bull. JSME*, **16**(1973), 1184.
 (15) Graham, C. and Griffith, P., *Int. J. Heat Mass Transf.*, **16** (1973), 337.
 (16) Kirpatrick, R. D. and Lockett, M., *J. Chem. Eng. Sci.*, **29**-12(1974), 2363.
 (17) 鶴田・田中, 機論, **49**-446, B (1983), 2181.
 (18) 棚沢・永田, 機論, No.710-14(1971), 137.