マランゴニ凝縮における伝熱面温度勾配付与による
表面張力差凝縮液滴移動*宇高 義郎^{*1}, 神山 知紀^{*2}Condensate Drop Movement by Applying Bulk Temperature Gradient
on Heat Transfer Surface in Marangoni CondensationYoshio UTAKA^{*3} and Tomoki KAMIYAMA^{*3} Division of Systems Research, Yokohama National University,
79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama-shi, Kanagawa, 240-8501 Japan

The spontaneous movement of condensate drops by applying bulk temperature gradient on the heat transfer surface in Marangoni condensation was investigated, considering the application to the heat transfer devices. In Marangoni condensation process, the removal of condensate on the heat transfer surface is important to keep good heat transfer. It may be useful for the heat transfer device in which the liquid movement occurs without external forces such as gravity, vapor shear force. As a result of experiment using water-ethanol vapor mixture, the movement of droplets from low temperature-side to high temperature-side could be observed on the heat transfer surface arranged horizontally. The relation between the velocity of drop movement and the gradient of surface tension was studied for different concentrations. Furthermore, the effect of inclination of condensing surface was examined.

Key Words: Heat Transfer, Phase Change, Marangoni Condensation, Vapor Mixture, Water-Ethanol, Drop Movement, Surface Temperature Gradient, Concentration Gradient, Surface Tension

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ム配に基づいて凝縮液形態を分類することができる。表1に示すように、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”を形成する場合には凝縮液表面の非定常な温度・濃度分布に基づく表面張力分布によって、凝縮液が伝熱面上で滴状などの不規則な凹凸形状を示す。この現象は伝熱面表面が疎液性をも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、ぬれ性表面において生成することができる。ここではそのような現象をマランゴニ凝縮と呼ぶ。

これまで、Mirkovich-Missen^①, Ford-Missen^②, 藤井ら^③, 土方ら^④により研究され、凝縮液形態を支配する主要な条件として混合蒸気濃度に着目し、その影響について論じられている。著者の一部^{⑤⑥}は、水-エタノールの混合蒸気の濃度が一定の条件で、伝熱面過冷度が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り、図1のような

熱伝達率の変化を表すマランゴニ凝縮の凝縮特性曲線を示した。凝縮特性曲線の定性的な性質は表2のように表され、凝縮液の伝熱抵抗を決める凝縮液形態と気液界面近傍に形成される蒸気相内摩擦抵抗の変化に依存し、水-エタノール系において、特にエタノール濃度の低い条件で極めて良好な熱伝達特性を有することが示された^⑦。さらに、マクロに見ると、液滴の合体、外力による液滴の離脱など疎液性面上で生じる滴状凝縮サイクルと類似した状態が観察される。しかし、宇高・西川^⑧の微視的な観測によれば、マランゴニ滴状凝縮の最小液滴は、条件に依存するが、概ね数十ミクロン以上と比較的大きく、それらの液滴の間には厚さ1 μm前後の薄液膜が存在し、凝縮面は液でぬれていることが明らかにされている。

このようなマランゴニ滴状凝縮現象において、伝熱面上にバブルの温度ム配を与えたときに、気液相平衡関係から決まる濃度ム配に起因して、凝縮液表面の表面張力差により凝縮液の移動現象が生じ、この現象が伝熱デバイスに応用できる可能性が考察されている。すなわち、伝熱面の水平に近い設置状態あるいは微小重力環境などにおいて、伝熱面に温度ム配を持たせることにより、重力や蒸気流などの外力の存在無しに自発的に凝縮液が移動する。その結果として伝熱の妨げとなる厚い液膜や大きな液滴を排除する

* 原稿受付 2007年5月21日。

^{*1} 正員、横浜国立大学大学院工学研究院(〒240-8501 横浜市保土ヶ谷区常盤台79-5)。^{*2} トヨタテクニカルディベロップメント(〒470-0334 豊田市花本町井前1-21)。

E-mail: utaka@ynu.ac.jp

Table 1 Classification of condensation modes in binary vapor mixture

	$\sigma_H < \sigma_L$ (Negative system)	$\sigma_H > \sigma_L$ (Positive system)
Condensate	Regular continuous distribution	Irregular distribution Non-uniform thickness Unsteady nature
Vapor (Diffusion resist.)	Regular continuous distribution	Non-uniform thickness Unsteady nature
		Transition, Max. heat transfer coefficient (Marangoni condensation)

Fig.1 Condensation characteristic curves

Table 2 Nature of condensation characteristic curves

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

ことが可能であるため、ヒートパイプにおいて毛管力を必要とせず凝縮液を移動させられるなど、高効率の熱交換の可能性が考えられる。Kuramae-Suzuki⁽⁹⁾は、無重力作動のウィックレスヒートパイプとしての応用の観点から、凝縮部から蒸発部への液体の循環流速、ヒートパイプ内作動液体温度分布の計測を行った。阿部⁽¹⁰⁾は、1-ブタノール水溶液を用いて自己浸潤性液体の沸騰実験により、マランゴニ対流により周囲から発泡点に引きずり込まれる流れが加熱面上に誘起されていることを明らかにした。以上のように、二成分混合液の気液相変化過程における液体の移動については、一部の研究が実施されているが、液滴移動の機構および特性などの系統的・定量的な検討

は十分でない。

本研究は、マランゴニ凝縮において、伝熱面にバルクの温度勾配を付与することにより生じる、濃度勾配に起因する表面張力差を利用した凝縮液滴の移動について観測を行い、水-エタノール2成分蒸気の凝縮における凝縮液滴の自発的な移動現象について実験的に検討することを目的とする。

2. 実験装置および方法

実験装置全体の概要および凝縮室をそれぞれ図2および図3に示す。所定の濃度に設定された水-エタノ

Fig.2 Outline of experimental apparatus

Fig.3 Condensing chamber

Fig.4 Condensing block

Fig.5 Example of calculation of temperature distribution of condensing surface

ール混合液を蒸気発生器内で電気加熱し混合蒸気を発生させる。凝縮室内に設置された伝熱ブロック上で混合蒸気の一部はマランゴニ凝縮実験に使われ、余蒸気は補助凝縮器で全量凝縮する。補助凝縮器と受液器との間の大気開放により、凝縮室内はほぼ大気圧に保たれる。凝縮液に溶存する不凝縮気体を脱気装置で取り除いたのち、蒸気発生器に凝縮液は戻される。また、凝縮室全体を回転させることにより伝熱面の傾斜角度を調節できる構造となっている。

図4は伝熱ブロックの詳細を示している。20×20 mm²の伝熱面を持つ厚さ 4mm の直方体形状の黄銅製伝熱ブロックの冷却側に、三角形断面のコンスタンタン製の熱抵抗材を取り付け、それを一様に冷却噴流群で冷却することにより、伝熱面表面に温度勾配を与えるようにした。伝熱ブロックおよび伝熱抵抗材の形状・寸法については数値計算により決定した。図5に伝熱面表面温度分布の計算結果の一例を示した。測定により得られた凝縮特性曲線を凝縮面側境界条件として与え、冷却液温度をパラメータとして示している。三角形断面を持つ熱抵抗材の付与により伝熱面に温度勾配が実現されることがわかる。伝熱面上での凝縮液の移動方向と蒸気の流れ方向は反対向きになるように設定されている。これは温度勾配の付与による凝縮液の移動を、蒸気流によるせん断力の影響と明確に区別するためである。凝縮室下流側には露点法による蒸気濃度測定用の銅ブロックを設置している。ブロックの温度調節により、蒸気の凝縮開始および凝縮液の蒸発開始状態の観察とそのときの温度測定から露点温度を求め、気液相平衡関係を用いて蒸気濃度を算出した。

冷却水温度をゆっくりと変化させる準定常測定を行い、伝熱ブロック内に設けた熱電対により外挿法を用いて伝熱面表面温度を算出した。また凝縮室のガラス

Table 3 Experimental conditions

Ethanol mass fraction C	Vapor velocity v m/s	Inclination of heat transfer surface θ degree
0.05	0.4	0 (Horizontal)
0.1		
0.13		
0.1		5 -5

窓を通して高速度カメラにより伝熱面上の凝縮液の挙動を記録した。

3. 実験結果および考察

表3に本研究の実験条件を示した。まず、伝熱面傾斜角 0° 、すなわち水平伝熱面の場合について、エタノール濃度条件を3通り設定した。次に、伝熱面傾斜の影響を明らかにするため、傾斜角度を 5° ($\theta = 5$) および -5° ($\theta = -5$) の2通りについて実験を行った。なお、傾斜角 θ の定義は表3中の図に示した。

3・1 水平伝熱面の場合 図6(a)および(b)にエタノール蒸気濃度 $C=0.1$ における、水平伝熱面上での凝縮液の移動の様子を示した。それぞれ凝縮面過冷度 $\Delta T = 5.0 \sim 5.6$ K、温度勾配は $dT/dx \approx 0.03$ K/mm、表面張力勾配 $d\sigma/dx \approx 0.05$ N/m²、および $11.7 \sim 15.3$ K、 0.18 K/mm、 $d\sigma/dx \approx 0.35$ N/m² である。いずれの画像においても、混合蒸気は図上で下方に流れ、上方にいくにしたがって伝熱面表面温度は高くなる温度勾配が付与されている。

図6(a)は ΔT および dT/dx が比較的小さい場合、図6(b)は dT/dx が大きい場合である。画像中に代表的な液滴を白線の丸印で囲んで移動の様子を示した。図6(a)の場合に示している3つの液滴ともページ上方に進んでおり、高温側へ液滴が移動していることが確認される。また、図6(b)においても、定性的には類似の傾向が見られるが、 $d\sigma/dx$ が大きいので液滴移動がより速くなっていることがわかる。それらより凝縮液が蒸気流に対向して伝熱面の下から上へすなわち低温部から高温部へ移動し、また温度勾配が大きい場合に移動速度が大きくなっていることが確認される。

図7(a)～(c)は水平伝熱面上においてそれぞれ C

Fig.6 Aspect of condensate liquid movement for $C=0.1$

$=0.05, 0.1, 0.13$ における, 表面張力勾配と液滴移動速度との関係を, 液滴直径 d をパラメータとして示している. ここで d として, 液滴移動方向とそれに垂直方向の長さの平均値を用いている. 液滴の移動速度の求め方としては, 記録画像の測定位置に移動方向と垂直の仮定の線を設定し, その線を通して全液滴の移動速度を測定した. また, 上記の物理量は仮想線上の局所値を表している. また, 凝縮液表面の表面張力勾配としては, 第1章で述べたように, 液滴間の液膜はミクロンオーダーであり, 非常に薄いため薄液膜部の凝縮液表面温度は伝熱面表面温度により近似することが可能である. さらに, 液滴の移動を生じさせる駆動力としては, 液滴の端部近傍の凝縮液流れが支配的であると考えられるため, 支配的な物理要因として薄液膜表面温度を考慮することが妥当と考えられる. したがって, 伝熱面表面温度分布と伝熱面表面温度から気液相平衡関係より決められる濃度分布から凝縮液表面張力勾配 $d\sigma/dx$ を求めた. いずれの蒸気濃度においても $d\sigma/dx$ が増加すると, 液滴移動速度は大きくなる傾向を示した. また図 7(a)~(c)の各蒸気濃度において, 3通りに区分した各液滴直径および全てのデータに対して, 図 7(a)中に示したような液滴移動速度 v と表面張力勾配 $d\sigma/dx$ の関数形を仮定して最小自乗法による曲線をあてはめた. 図 7(a)~(c)のそれぞれにおいて, いずれの曲線も類似していることがわかる. したがって, 表面張力勾配による凝縮液の移動速度は液滴直径に依存しないといえる.

次に, 液滴移動速度の液滴直径依存性について考察

Fig.7 Variation of velocity of droplet against surface tension gradient for different concentration

する. 図 8(a)に伝熱面上に温度勾配を有するときの液滴周辺の温度分布と表面張力流れの様子, および図 8(b)に水-エタノール系の相平衡関係とエタノール濃度に対する表面張力変化を示した. まず, 液滴移動の駆動力 F を考える. マランゴニ凝縮においては, 図 8(a)中の液滴基底端部に描いた矢印で示されるように, 液滴周縁の薄液膜部分に比べて温度が高い凝縮液の厚い液滴側の表面張力が大きくなる. そのため液滴基底端周辺の薄液膜から液滴への液体の引き込みが生じる. その結果として液滴はその反力を受けることになる. その進行方向への作用力を液滴周縁に沿って周回積分すると液滴全体に働く力となり, それは周長に比例す

る。等温伝熱面ではその力の総和はゼロになるはずである。しかし、伝熱面に温度勾配が付与されている場合には、添字 a で表される高温側と添字 b の低温側とでは温度条件が異なるため、何らかの力の不均衡が生じると考えられる。そのような液滴移動のメカニズムの詳細については現段階では明確でなく、今後の課題である。しかし、例えば、図 8(b)の液相線温度変化、

(a) Force balance by surface tension difference

(b) Phase equilibrium and variation of surface tension

Fig.8 Mechanism of condensate liquid movement by surface tension difference

Fig.9 Comparison of velocity of droplet for different concentration

表面張力変化の傾向、あるいは図 8(a)に示される液滴基底周縁部の形状等により表面張力分布は決められるはずである。伝熱面温度勾配の存在により、高温側と低温側では液滴基底部の温度が異なることになり、対応する液滴周縁の表面張力勾配も増加し、液の引き込み力は高温側がより強くなっていることが推測される。いずれにしても、高温側と低温側の液滴周縁における作用力の差により液滴移動が生じるものと考えられる。表面張力勾配が伝熱面位置に対して直線的に変化すると考えると、その引き込み力を規定する表面張力差の大きさは、液滴の進行方向先端と後端の距離、すなわち液滴直径 d に比例する。したがって、液滴移動の駆動力 F は d の二乗に比例することになる。

$$F \propto d^2 \quad (1)$$

次に、液滴の移動に対する流動抵抗 R として、伝熱面との粘性抵抗を考えると、それは概ね伝熱面との接触面積、すなわち d^2 に比例することになる。

$$R \propto d^2 \quad (2)$$

したがって、液滴に作用する駆動力と移動抵抗の液滴直径への依存性が等しいため、液滴移動速度 v は液滴直径には依存しないことが導かれる。しかし、実際の液滴は多くの合体を繰り返し、また凝縮成長しながら移動する、また液滴形状もそれにとまって変形するなどさらに複雑な要因が加わる。そのため、このような単純な考え方が厳密に成立するとは限らないが、少なくとも定性的な理解には役立つものと考えられる。

図 9 に $C = 0.05, 0.1, 0.13$ において、それぞれの全データに当てはめた曲線をまとめて示した。いずれの濃度においても、表面張力勾配に対する液滴移動速度の変化は類似の傾向を示し、定量的にもほぼ一致した。表面張力勾配が $d\sigma/dx = 0.5 \text{ N/m}^2$ において移動速度は $v = 35 \text{ mm/s}$ 程度であり、比較的大きな速度を示している。なお、上述のように、マランゴニ凝縮における液滴移動現象はさらに複雑な要因が多い状況で、図 7 において横軸に近似的に薄膜表面の温度勾配に基づく表面張力勾配を採用しているなどの点を考慮すると、実際の液滴移動のメカニズムに関してはさらに検討が必要であろうと考えられる。

3・2 傾斜伝熱面の場合

図 10 (a) および (b) は $C = 0.1$ において伝熱面を傾斜させたときの、表面張力勾配と液滴移動速度との関係を示しており、それ

Fig.10 Variation of velocity of droplets against surface tension gradient for different inclination angles of heat transfer surface

ぞれ水平から反重力方向に 5° ($\theta = 5$) と重力方向に 5° ($\theta = -5$) 傾斜の場合である。いずれの傾斜角においても水平の場合と同様に、表面張力勾配が増加すると液滴移動速度は増大する傾向を示した。なお、図 10 中においては、図 7 にみられるように、ほぼ直線的な変化を示す表面張力勾配の比較的大きな範囲の測定値を示したこと、および重力の影響が新たに加わっていることから、ここでは傾向を見やすくする意味で、各条件における最小自乗法による直線を示している。これらの結果により伝熱面に $\theta = 5$ の上り傾斜をつけても、表面張力差による液滴移動が生じることが分かる。また、水平伝熱面の場合にはほとんど重力の影響は現れないのに対して、傾斜面においては、作用力として、表面張力差による表面力と重力による体積力の差異の影響が現れる。すなわち、液滴直径が

3 mm 以下では液滴移動速度はほとんど水平の場合と同様で、傾斜角の影響はほとんど現れなかった。しかし、液滴直径が 3 mm 以上では重力による影響が顕著になり、 $\theta = 5$ のときには、より小さい他の液滴群と逆方向に移動した。また、 $\theta = -5$ では他の液滴群と同方向に、より加速されていることがわかる。

4. 結論

水-エタノール混合蒸気を用いて、マランゴニ凝縮における伝熱面温度勾配の付与による凝縮液滴移動の観測を行った。その結果、以下のことが明らかにされた。

- (1) マランゴニ滴状凝縮において伝熱面にバルクの温度勾配を付与することにより、凝縮液滴が伝熱面の低温部から伝熱面の高温部に移動することを示した。
- (2) 水平伝熱面の場合には、伝熱面温度勾配の増大による凝縮液表面の表面張力勾配の増加に伴って、液滴移動速度は増大した。
- (3) さらに水平伝熱面では、液滴移動速度は液滴直径に依存しなかった。この傾向は液滴に作用する駆動力と流動抵抗の関係から導かれることを示した。
- (4) 傾斜伝熱面の場合には、表面張力の表面力と重力の体積力の差異により、液滴直径の小さい領域では表面張力が支配的であるが、大きい場合には重力の影響が顕著に現れてくることが示された。

文献

- (1) Mirkovich, V.V. and Missen, R.W., Non-Filmwise Condensation of Binary Vapor of Miscible Liquids, Canadian Journal of Chemical Engineering, Vol.39 (1961), pp.86-87.
- (2) 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
- (3) Fujii, T., Osa, N. and Koyama, S., Free Convection Condensation of Binary Vapor Mixtures on a Smooth Horizontal Tube: Condensing Mode and Heat Transfer Coefficient of Condensate, Proc. US Engineering Foundation Conference, (1993) pp.171-182.
- (4) Hijikata, K., Fukasaku, Y. and Nakabeppu, O., Theoretical and Experimental Studies on the Pseudo-Dropwise Condensation of a Binary Vapor Mixture, Journal of Heat Transfer, Vol.118 (1996) pp.140-147.

- (5) Utaka, Y. and Terachi, N., Measurement of condensation characteristic curves for binary mixture of steam and ethanol vapor, Heat Transfer Japanese Research, Vol.24, No.1 (1996), pp.57-67.
- (6) Utaka, Y. and Terachi, N., Study on condensation heat transfer for steam-ethanol vapor mixture (Relation between condensation characteristic curve and modes of condensate), Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers (Seies B), Vol.61, No.588 (1995), pp.3059-3065.
- (7) Wang, S. and Utaka, Y., Effect of Non-Condensable Gas Mass Fraction on Condensation Heat Transfer for Water-Ethanol Vapor Mixture, JSME Int. J., Vol.47, No.2 (2004) pp.162~167.
- (8) Utaka, Y. and Nishikawa, T., Measurement of Condensate Film Thickness for Solutal Marangoni Condensation Applying Laser Extinction Method, J. of Enhanced Heat Transfer, Vol.10, No.1 (2003) pp.119-129.
- (9) M. Kuramae & M. Suzuki, Two-component heat pipes utilizing the Marangoni effect, J. Chem. Eng. Japan, Vol.26 (1993), 230-231.
- (10) Abe, Y., About Self-wetting Fluids, Them. Sci. and Eng., Vol.11, No.4 (2003) 27-28.
-