

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 8 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420156

研究課題名(和文) ナノ粒子懸濁による核沸騰限界熱流束向上機構解明と沸騰素過程に関する研究

研究課題名(英文) Study on Mechanism of Critical Heat Flux Enhancement by Nano Particle Mixing and Boiling Elementary Process

研究代表者

小泉 安郎 (KOIZUMI, YASUO)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力基礎工学研究センター・客員研究員

研究者番号：20215156

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：銅プリント基板製の10 mm×10 mm伝熱面に直接通電加熱し、圧力0.1MPaの下でプール沸騰熱伝達実験を行った。清浄純水実験では、限界熱流束点では三相界線は観察されず、伝熱面に小さな高温乾き面が現れ、それが拡大、縮小を繰り返して伝熱面の物理的焼損に至っていた。ナノ粒子懸濁液では、沸騰熱伝達率は低下していたものの、限界熱流束は1.5倍に向上化していた。清浄純水の場合に比べ、乾き伝熱面拡大領域は狭く、短時間に焼損に至っていた。伝熱面はナノ粒子析出層で被われ、そのため乾き面形成拡大が抑制され、限界熱流束は向上化したものと考えられた。

研究成果の概要(英文)：Pool nucleate boiling heat transfer experiments were performed by using a 10×10 mm heat transfer surface made of a copper print circuit board at 0.1 MPa. Three-phase contact line was not observed at the critical heat flux condition in the purified water experiments. Small dried area came out, it gradually grew oscillatory expanding and shrinking and finally the heat transfer surface physically burned out. The critical heat flux was enhanced approximately 50 % in the nano-fluid experiments than in the purified water experiments although the boiling heat transfer coefficient was deteriorated. The dry area that appeared at the critical heat flux condition in the case of nano-fluid was smaller than that in the case of purified water. The heat transfer surface was covered with deposited nano-particles. It was considered that the deposited nano-particle layer suppressed the spreading of the dried area, which resulted in the enhancement of the critical heat flux in the nano-fluid.

研究分野：伝熱工学、原子力工学、蒸気工学、ボイラー、蒸気タービン、原子炉

キーワード：核沸騰熱伝達 プール沸騰 ナノ粒子 ナノ流体 限界熱流束 赤外線カメラ 熱工学

1. 研究開始当初の背景

福島第1原子力発電所で発生した過酷事故の経験から、原子炉過酷事故時炉心溶融デブリを圧力容器内にとどめた状態で冷却する方策の検討が行われていた。その一つとして、圧力容器を外部から水漬けにし、圧力容器外壁とその外側の保温材の間隙に水を流し込み、水の沸騰冷却で除熱する方法が挙げられた。しかしながら、ステンレスなどの金属相がデブリの上部に成層化して存在すると、熱流束は $1.5 \times 10^6 \text{ W/m}^2$ にもなり、限界熱流束を超える事態になることが予測された^①。この状況に対し、注水する水にナノ粒子を混濁させて、限界熱流束を向上させる方法が提案されていた。

ナノ粒子混濁による限界熱流束向上の物理機構が明確になっていない状態で、この方策を原子炉の安全確保、また安全性解析に用いることは許されない。その意味で、ナノ流体の限界熱流束向上物理機構の解明が求められていた。

坂下^②はナノ粒子懸濁液によるプール沸騰実験を行い、限界熱流束の200%向上化を報告している。その要因として、伝熱面濡れ性向上が指摘されている。

2. 研究の目的

限界熱流束発生機構については幾つかの理論があるが、面の濡れ性に関わりを持つものとして、西尾らの三相界線理論がある^③。三相界線理論では、合体泡下伝熱面は乾き面であり、伝熱面上で接しあう大気泡間伝熱面上に液が帯状に存在する。この三相界線部の相変化伝熱が大切であり、三相界線長さの面密度が最大になったところが限界熱流束点に対応するとしている。

ナノ粒子混入時、ナノ粒子析出層が面濡れ性向上をもたらすと考えると、面上液接触角は小さくなり、三相界面濡れ領域の拡大をもたらし、限界熱流束の向上化の説明になる。このことを実験的に確認し、混入ナノ粒子濃度、接触角の減少、結果としてのCHF向上化の関係を検証する。

上述のことは、実は、沸騰素過程解明と関わりを持つ。沸騰素過程解明はまだ道遠き状態にある^④。沸騰研究の難しいところは、或る時間間隔の、加えて、或る面の大きさの平均量でしか伝熱面温度、また、伝熱面熱流束は測定できないことにある。或る面の広がりとして瞬時局所のこれらの値の測定が、時系列的に為される必要がある。

そこで、本研究では以下を目的とした。

- (1) 飽和プール核沸騰実験を行い、ナノ粒子混入による、限界熱流束向上と三相界線との関係を明らかにする。
- (2) そのために、或る面の広がりとして瞬時局所の伝熱面温度と熱流束の測定を、時系列的に実施する。

3. 研究の方法

実験装置概略を図1に示す。実験装置は、実験容器、テスト伝熱面、低電圧定電流電源、標準抵抗、デジタルマルチメーター、データロガー、高速度ビデオカメラ、赤外線カメラ、その他計測機器で構成される。実験容器はジュラルミン製で、一辺が200 mmの立方体密閉容器である。試験容器底面にテスト部である伝熱面が設置される。図2(a)に示すように、伝熱面には、不要部分をエッチングで取り除いた蒸着銅薄膜厚さ $35 \mu\text{m}$ のプリント基板を用いた。計測対象の伝熱面は一辺が10 mmの正方形である。さらに図2(b)のように、伝熱面中央位置 $7 \text{ mm} \times 7 \text{ mm}$ の領域において、銅伝熱面背面の厚さ1.57 mmのベークライト基板部を除去し、銅薄膜を露出させた。放射率を一様にするために、露出した銅薄膜背面に黒色塗料をスプレー塗布し、この面を金ミラーを介して、赤外線放射カメラで撮影し伝熱面温度分布を計測した。

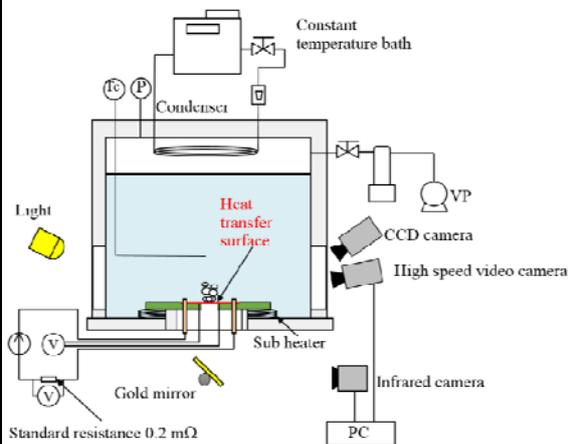


図1 実験装置概要

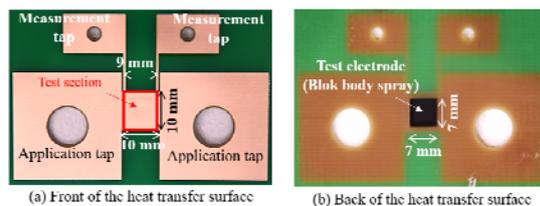


図2 伝熱面詳細

作動流体には蒸留水、及び、 TiO_2 ナノ粒子を蒸留水に添加したナノ流体を用いた。ナノ流体濃度は、 0.04 g/L 、 0.4 g/L 、 4 g/L とした。

伝熱面への供給電流と伝熱面両端の電極間の電圧から電気抵抗を得、予め検定されている電気抵抗と温度との関係から伝熱面平均温度を算出した。伝熱面加熱量はこの電流と電圧から求め、これを電極間伝熱面面積で除して伝熱面平均熱流束とした。さらに、高速度ビデオカメラと赤外線カメラを同期させて撮影し、沸騰挙動と伝熱面の局所瞬時温度分布を計測した。用いた高速度ビデオカメラの撮影速度は 1000 fps 、空間分解能は

0.02 mm/pixel、赤外線放射カメラの撮影速度は 120 Hz、空間分解能は 0.2 mm/pixel であった。

4. 研究成果

(1) 純水実験結果

図 3、図 4 に沸騰曲線を示す。図には、上向き平面自然対流熱伝達相関式、Rohsenow のプール沸騰熱伝達相関式、また、Kutateladze の限界熱流束相関式の値も比較のため示されている。図 4 の実験では、 $9 \times 10^5 \text{ W/m}^2$ 迄は熱流束を階段状に定常を維持しつつ増加させ、それ以降 $1.1 \times 10^6 \text{ W/m}^2$ まで緩やかに熱流束を限界熱流束相関式の値まで上げた場合の結果で、物理的焼損に至っている。

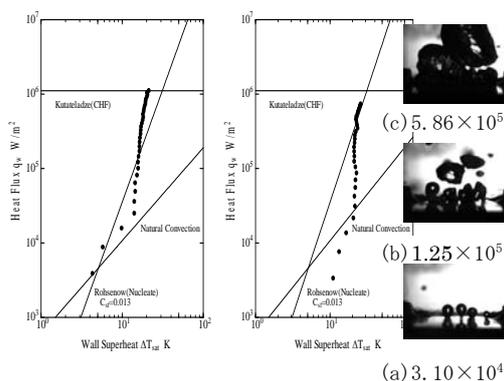


図 3 沸騰曲線

図 4 沸騰曲線

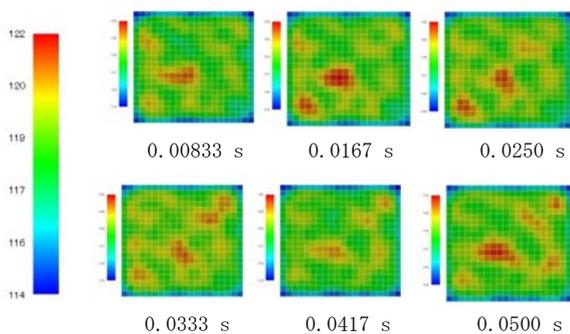


図 5 伝熱面温度分布 ($q = 1.25 \times 10^5 \text{ W/m}^2$)

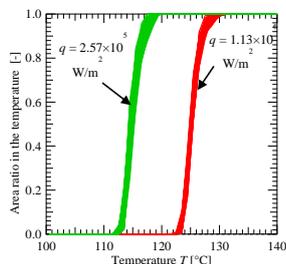


図 6 面温度度数積算頻度

図 5 に、図 4 (b) $q_w = 5.86 \times 10^5 \text{ W/m}^2$ の場合の 0.00833 秒から 1/120 秒ごとの放射温度計による伝熱面温度分布測定結果を示す。図 6 に、図 3 の実験の場合の各 1 秒間の伝熱面温度度数積算頻度の例を示す。図 5、図 6 より、限界熱流束に至るまで、伝熱面温度分布は狭い範囲、限界熱流束点でも 6°C 内に限

られていることが分かる。

図 7 に、図 4 の実験の場合の伝熱面温度分布測定結果を示す。120Hz で測定されているが、間引いて表示されている。尚、計測器設定の関係で 150°C 以上は一定値になっている。図 7 で左下隅に小さな高温部が現れ、それが拡大、縮小を数回来り返しながら次第に高温部の大きさが大きくなり、ついには拡大の一途に移り、ついには伝熱面の物理的焼損に至っている。 $7 \times 7 \text{ mm}$ の大きさの範囲ではあるが、高温部は 1 つのみ現れ、それが拡大成長し限界熱流束に至っていることは注目に値する。西尾ら^③によって指摘されていた、網目状の三相界線分布は伝熱面温度分布測定結果には見られていない。

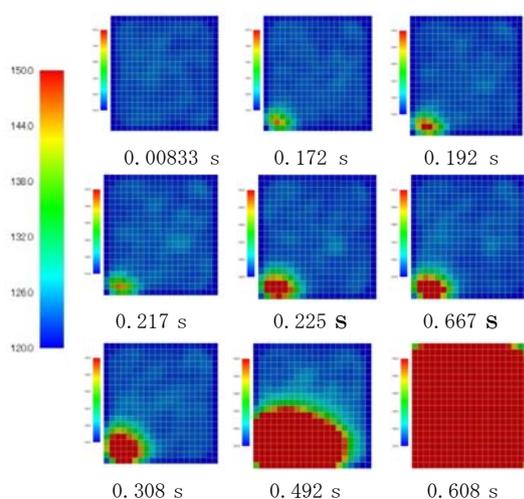


図 7 伝熱面温度分布 ($q = 1.10 \times 10^6 \text{ W/m}^2$)

(2) ナノ流体実験結果

図 8 にナノ流体の沸騰曲線を、蒸留水の場合の結果と比較して示す。図に示した蒸留水の 3 回の実験で、壁面過熱度に 5°C 程度の差異が見られる。本実験で用いているプリント基板の沸騰熱伝達では 5°C 程度の範囲で壁面過熱度にばらつきが生じることがわかる。

2 回目の蒸留水の実験では $1.44 \times 10^6 \text{ W/m}^2$ 、3 回目の実験では $1.07 \times 10^6 \text{ W/m}^2$ で伝熱面は焼き切れている。1 回目の実験では伝熱面が焼き切れる前に実験を終了している。これら焼損発生時熱流束は Kutateladze の限界熱流束相関式の値に近い。

図 8 に示すナノ流体の沸騰曲線においても、その傾向は蒸留水と同様である。低熱流束条件では自然対流熱伝達相関式の関係に従い、さらに熱流束を増加させると自然対流熱伝達相関式の関係からはずれて立ち上がる。しかし、高熱流束域では、蒸留水の場合より高壁面過熱度域に測定点はある。特に、Kutateladze の相関式が示す熱流束以上では、壁面過熱度は 20°C 程度高く、蒸留水の場合に比べて熱伝達率が低下したことがわかる。この熱伝達率の低下の原因のひとつとして、熱伝導率の低い TiO_2 ナノ粒子が伝熱面上に析出したことが考えられる。実験終了後の光学

式顕微鏡による観察から、析出したTiO₂ナノ粒子層の厚さは6 μm~14 μmであった。濃度0.4 g/Lのナノ流体実験でのKutateladzeの相関式が示す限界熱流束は1.06×10⁶ W/m²であり、そのときの銅伝熱面平均伝熱面温度は152℃であった。TiO₂の熱伝導率7 W/(m・K)とこの銅伝熱面温度を用い、伝熱面上TiO₂粒子析出層厚さを14 μmとして、伝熱面上析出層厚さ方向に対する一次元定常熱伝導式から析出層表面温度を推算すると150℃となる。蒸留水の場合の同熱流束時の伝熱面温度は図8にあるように130℃である。濃度0.4 g/Lのナノ流体実験時、沸騰は析出層表面で生じているとすれば銅表面での沸騰に比べて、析出層表面での沸騰では熱伝達率が大きく低下していることを示している。

伝熱面焼損前に実験を終了した1回目の濃度4.0 g/Lのナノ流体実験後、ナノ粒子層を伝熱面上に析出させた状態で蒸留水による実験を再度行った。その沸騰曲線はナノ流体で行ったときの沸騰曲線とほぼ同一であり、ナノ流体が沸騰曲線に与える影響はナノ流体自身ではなく伝熱面上に析出したナノ粒子層によるものであることがわかる。

伝熱面焼損は、濃度0.04 g/Lのナノ流体では1.74×10⁶ W/m²、0.40 g/Lのナノ流体では1.66×10⁶ W/m²、2回目の4.0 g/Lのナノ流体では1.66×10⁶ W/m²で生じていた。ナノ粒子添加により限界熱流束は大略1.5倍に向上化されているが、本実験の濃度の範囲では向上化の度合いの濃度への依存性は見られなかった。

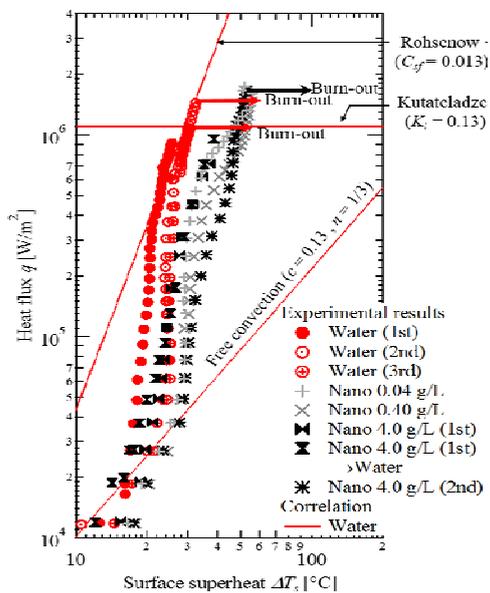
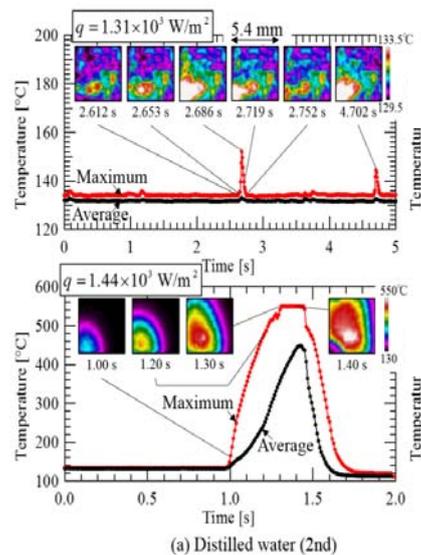


図8 ナノ流体沸騰曲線

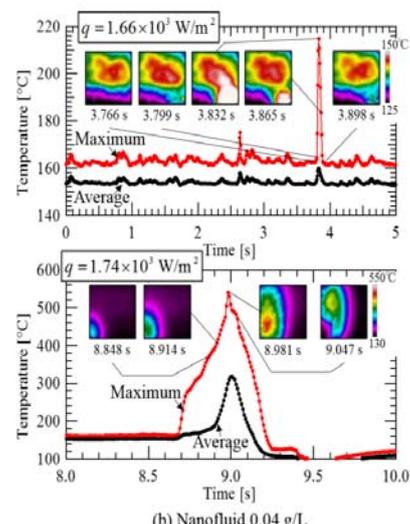
図9は赤外線カメラを用いて計測した伝熱面温度分布、撮影面平均温度と面内最高温度の時間変化である。図中の図(a)が蒸留水2回目の実験、図(b)が濃度0.04 g/Lのナノ流体の実験結果である。図(a)の上図に示す蒸留水実験において、熱流束1.31×10⁶ W/m²時、急峻な伝熱面温度上昇が見られ始めた。その

温度上昇はおよそ0.07秒間続き、最高温度は150℃程度まで到達した後、0.07秒後程度で元の温度に復した。伝熱面温度分布から、その温度上昇は図中計測領域の左下の局所で発生し、温度上昇域は時間とともに広がっていることがわかる。その広がり最高温度到達後、減少に転じた。また、時刻4.702秒においても同一箇所で再び温度上昇が起きた。このような短時間内に局所で発生する急峻な伝熱面温度上昇と急冷は、一時的な伝熱面上局所乾き面の発生と消滅に起因すると考えられる。

図(a)下図の伝熱面焼損が起きた熱流束1.44×10⁶ W/m²では、急峻な伝熱面温度上昇が発生すると、0.3秒後には計測器設定上限値の550℃に達した。この急峻な温度上昇は熱流束1.31×10⁶ W/m²時とほぼ同一箇所で発生し、温度上昇域はそこを中心に広がっていることは興味深い。面温度上昇域は更に広がり、急峻な温度上昇開始から0.4秒後には計測領域全面に広がっている。温度上昇開始から0.45秒後に計測域平均温度は下降を始めている。この時刻に伝熱面焼損が発生したと推定される。



(a) Distilled water (2nd)



(b) Nanofluid 0.04 g/L

図9 焼損発生前後の伝熱面温度分布

図9中の図(b)上図で示すように、濃度0.04 g/Lのナノ流体実験においても、蒸留水実験と同様に、局所での伝熱面の急激な温度上昇と冷却が伝熱面焼損発生熱流束到達以前に計測された。ただし、この発生時の熱流束は蒸留水実験よりも高く、 $1.66 \times 10^6 \text{ W/m}^2$ である。また、この伝熱面温度上昇は蒸留水実験の場合と同様に局所で発生しており、およそ0.07秒で215°Cに到達した。その後、0.07秒後には元に復した。蒸留水の結果と比較すると、温度上昇が続く時間は同様であったものの、到達温度はナノ流体の場合のほうが高い。

図9中の図(b)下図の伝熱面焼損発生熱流束 $1.74 \times 10^6 \text{ W/m}^2$ 時の局所伝熱面の急峻な温度上昇は、蒸留水実験の場合と同様局所で発生しており、発生後約0.3秒で計測器設定上限値近くの530°Cに達した。この後伝熱面温度は急降下していることから、530°C到達直後に伝熱面焼損が発生したと考えられる。より詳細に最高温度の推移を見てみると、図(a)下図の蒸留水実験の場合には放物線状に温度が上昇しているのに対し、図(b)下図のナノ流体実験の場合には温度上昇開始直後280°Cまで急激に温度が上昇した後、一度緩やかになり、その後急激な上昇に移っている。また、最高到達温度は蒸留水実験が550°C以上であったのに対し、0.04 g/Lのナノ流体実験では530°Cと熱流束が大きいナノ流体実験のほうが低く、温度上昇域は、蒸留水の場合より小さかった。このような温度上昇が緩やかになる傾向は蒸留水では確認されておらず、ナノ流体特有の現象といえる。このようにナノ流体においては、伝熱面焼損熱流束は蒸留水よりも高く、伝熱面焼損時においても、温度上昇が蒸留水と比較して緩やかであり、到達温度が低いなど、伝熱面焼損を抑制する傾向が確認された。

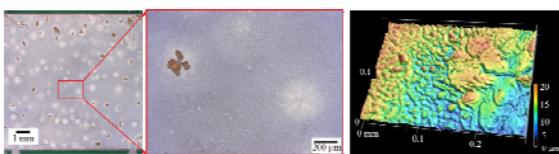


図10 ナノ粒子析出層顕微鏡写真

図10は、1回目の濃度4.0 g/Lのナノ流体実験でナノ粒子層が析出した伝熱面を用いた蒸留水実験の終了後に撮影した伝熱面上TiO₂粒子析出層の様相である。図中左と中央が光学顕微鏡による二次元画像、右がレーザー顕微鏡で計測した粒子層厚さである。図10の左図の光学顕微鏡による全面の画像では、濃い白色のナノ粒子析出が確認できる。また、茶色の領域はナノ粒子層が剥がれて伝熱面が露出している領域で、中央図の光学顕微鏡画像ではこの赤枠の領域を拡大している。濃い白色の領域とナノ粒子層が剥がれた領域を中心に、環状の溝のような構造が多数見られる。一方で、それ以外の領域では溝構

造は確認できなかった。右図のレーザー顕微鏡による計測から、その溝の深さは5 μmから10 μm程度であり、幅は1 μmから3 μm程度であった。このような沸騰面の微細な溝が乾き面への液の供給を促進させ、上述のナノ流体の限界熱流束状態発生時の乾き面拡大の抑制、引いては限界熱流束の向上に繋がっているものと推測される。

(3) まとめ

蒸留水、及びナノ流体の飽和プール核沸騰熱伝達実験を実施し、以下の結論を得た。

- ① ナノ流体プール核沸騰では、実験後伝熱面上にナノ粒子の析出層が形成されていた。析出層厚さは10数 μmと薄く、析出層表面には幅が数 μm、深さが5 ~ 10 μmの不規則な多数の溝が形成されていた。
- ② ナノ流体の場合、核沸騰熱伝達率は蒸留水の場合に比べて低下していた。一方、ナノ流体の限界熱流束は、蒸留水の場合に比べて向上していた。ナノ流体、蒸留水の場合ともに伝熱面に局所的に乾き面が発生し、それが拡大することによって伝熱面焼損は発生していた。但し、蒸留水の場合に比べてナノ流体の場合には、乾き伝熱面拡大領域は狭く、短時間に焼損に至っていた。ナノ粒子析出層表面に形成される無数の微細溝によって、乾き面形成拡大が抑制されてナノ流体では限界熱流束は向上したものと考えられる。

<引用文献>

- ① 青木、水口、佐藤、小此木、炉心溶融デブリ対策(IVR)に関する研究、日本原子力学会2012年秋の大会、L04(2012)、473。
- ② 坂下、ナノ流体によるプール沸騰CHF促進機構—ナノ粒子析出面近傍の気泡挙動の測定—、第48回日本伝熱シンポジウム、C224(2011)、341。
- ③ (例えば) Nishio, S. and Tanaka, H., JSME Int. J., Ser. B, 45-1(2002), 72-78。
- ④ 小泉他、相変化研究会の立ち上げと沸騰伝熱の話題、伝熱学会誌、Vol. 49, No. 209(2010)、39-69。

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 5件)

- ① 上澤伸一郎、小泉安郎、柴田光彦、吉田啓之、析出物を伴う懸濁液プール核沸騰熱伝達に関する研究、第53回日本伝熱シンポジウム、2016年5月24日、大阪府立国際会議場(大阪府・大阪市)
- ② 小泉安郎、高橋和希、上澤伸一郎、吉田啓之、高瀬和之、放射温度計を用いた瞬時伝熱面温度分布測定によるプール沸騰熱伝達機構解明に関する研究、第52回日本伝熱シンポジウム、2015年6月3日、福岡国際会議場(福岡県・福岡市)
- ③ Yasuo Koizumi, Kazuki Takahashi, Shinichiro Uesawa, Hiroyuki Yoshida and

Kazuyuki Takase, Study on Heat Transfer Surface Temperature Variation during Pool Nucleate Boiling by Measuring Instantaneous Surface Temperature Distribution with Infrared Radiation Camera, Apr. 27, 2015, Boulder (USA)

④ Kazuki Takahashi and Yasuo Koizumi, Study on Nucleate Boiling Heat Transfer by Measuring Detailed Surface Temperature Distribution and Variation with Infrared Radiation Camera, Nov. 18, 2014, Montreal (Canada)

⑤ Yasuo Koizumi and Kazuki Takahashi, Study on Nucleate Boiling Heat Transfer by Measuring Instantaneous Surface Temperature Distribution by Infrared Radiation Camera, 15th International Heat Transfer Conference, Aug. 14, 2014, 京都国際会議場（京都府・京都市）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小泉 安郎 (KOIZUMI YASUO)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
原子力科学研究部門 原子力基礎工学
研究センター・客員研究員

研究者番号：20215156