

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：32689

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K22019

研究課題名(和文)陽極酸化法を用いたナノ凹凸面での着霜低減と伝熱促進による熱交換器の性能向上

研究課題名(英文)Improvement of the heat exchanger performance by reducing frost formation on nano uneven surface using an anodic oxidation method

研究代表者

佐藤 哲也(Sato, Tetsuya)

早稲田大学・理工学術院・教授

研究者番号：80249937

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、超撥水材による着霜低減効果の基盤研究と広い冷却面温度に対応する霜層成長シミュレーターの開発を行った。アルミニウム材への超撥水性付与により比較的高温の冷却平板では過冷却液滴の凍結遅延による着霜遅延効果、極低温円管では吹き飛び効果による着霜低減効果が確認された。ミスト化を含めたモデルを組み込み、氷点から極低温までの広範囲な冷却面温度に適用可能なシミュレータを構築した。定量的な精度向上に向けたモデルの更なる検討が必要ではあるが、極低温熱交換器の性能予測などへの応用が期待される。また、目標の一つとしていたSUSへの陽極酸化皮膜の作成については達成できず、今後の課題となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

液体水素を燃料とすることにより、高性能で二酸化炭素を排出しない航空宇宙輸送システムが実現できる。しかしながら、極低温水素熱交換器への着霜が主要な技術課題となっている。極低温熱交換器は、水蒸気が気流中でミストになるという特徴があり、従来の冷凍空調用熱交換器での着霜現象と異なる。そこで、本研究では、冷却面にナノスケールの微細表面処理を施すことにより着霜を低減する方法を試みた。さらに、一般動力学方程式を用いて、ミスト化現象を含む新しい着霜予測シミュレータを開発した。極低温冷却面における着霜メカニズムについての知見を得たことは学術的意義があり、今後の水素社会における波及効果も高い。

研究成果の概要(英文)：We demonstrated the frost formation reduction effect by the nanostructured superhydrophobic material using anodization, and developed a simulator of the frost layer growth that supports a wide cooling surface temperature range. As a result, by imparting super-hydrophobicity to the aluminum material, frost formation delay was confirmed on the cooling plate with a relatively high temperature (-8 °C) because of the delay in freezing of the supercooled droplets. On the other hand, the frost formation was delayed on the ultra-low temperature circular tube (-180 °C) due to the frost blowing off. We constructed the simulator by incorporating a model that combines the sublimation condensation and the mist generation to be applied to a wide range of cooling surface temperatures from freezing points to extremely low temperatures.

研究分野：航空宇宙推進工学、熱流体科学

キーワード：着霜 除霜 極低温熱交換器 陽極酸化 超撥水 着霜シミュレーター

## 様式 C-19, F-19-1, Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 極超音速ターボジェットエンジンの飛行速度領域の拡大、推力の増大、燃費の向上のために、燃料である液体水素を冷媒として利用し、吸い込んだ空気を予冷却する熱交換器（プリクーラ）の搭載が検討されている。一方、プリクーラへの着霜が実用化への課題であり、機体重量の増加やシステムの複雑化を伴わず、新たな機構を必要としない着霜抑制法の確立が求められている。そこで、伝熱管表面への撥水性付与による着霜抑制法を考案し、極低温円管伝熱面に適用したところ、撥水性付与により霜の付着力が減少し、霜が伝熱面から剥がれて吹き飛ばされること（吹き飛び効果）により着霜量も減少することが、実験により確認された[1]。しかし、異なる冷却面温度や主流条件（流速、温度、湿度）、伝熱面形状での着霜抑制効果は明らかではなく、実機への適用にはさらなる調査が必要である。また、吹場ら（静岡大学）により、配管内側に施したテフロン被膜が断熱層のパラドクス（沸騰面に薄い熱抵抗層を設けることで膜沸騰から核沸騰への遷移を促進し伝熱を促進する）効果により伝熱促進に有効であることが明らかになっており[2]、本研究で行う伝熱面へのナノ凹凸微細加工により、同様の効果が期待できる。

(2) 極低温下での着霜では空気中の水蒸気が温度境界層内で凝結し、微小な液滴や氷粒子となる現象（ミスト化）が特徴であり、撥水性を付与した伝熱面ではさらに吹き飛び効果も確認されている。このような現象は、一般的な冷凍機や空調機などで見られる比較的高温の冷却面とは異なる特異な現象である。しかし、これらの現象を定量的に再現可能な数値計算手法は未確立であり、数理モデルの開発が必要である。また、プリクーラでは、主流温度や水蒸気濃度、冷却面温度に分布があるため、様々な着霜条件に適用可能な数値解析手法の確立が必要である。

### 2. 研究の目的

(1) 液体窒素を冷媒とした極低温条件で着霜抑制効果が確認されている[1]、アルミニウム伝熱管への超撥水性を付与による着霜抑制法について、氷点から極低温域まで全ての温度域をカバーする着霜試験を行い、異なる着霜条件での超撥水性の付与による着霜抑制効果を調査する。また、超撥水性付与が着霜抑制へとつながるメカニズムを明らかにする。

(2) 着霜プロセスとして、昇華凝結過程（水蒸気の昇華凝結による霜形成過程）とミスト沈着過程（ミスト化により生成したミストの沈着による霜形成過程）の二つに分類し、それぞれ結晶成長理論と一般動力学方程式に基づくモデル化を行う。これらの数値モデルを CFD と統合し、氷点付近から極低温まで幅広い冷却面温度に適用可能な着霜数値解析手法を構築する。並行して着霜実験も実施し、実験結果と数値計算結果の比較を行い、提案手法の妥当性、有用性を明らかにする。

### 3. 研究の方法

(1) 超撥水性の付与は、陽極酸化法にて微細な表面粗さを付与し、パーフルオロアルキル基含有りん酸エステルに浸漬処理することで行った。陽極酸化条件は硫酸濃度 200 g/L、電流密度 25 A/m<sup>2</sup>、電解時間 120 min、液温 20 °C で実施し、陽極酸化処理後は希硫酸で十分洗浄した後、DIC 社製メガファック F-510（パーフルオロアルキル基含有りん酸含有エステル）—エタノール 1 wt% 溶液に 24 時間浸漬することで撥水性を付与した。試料の評価は、走査電子顕微鏡を用いた観察で行い、撥水性の評価は静滴接触角計にて行った。超撥水性の付与による着霜抑制効果を確認するために、3 つの冷却面温度で実験を実施した。冷却面温度は、過冷却液滴の生成に伴う -8°C、過冷却液滴が生成せず昇華凝結により霜層が形成される -40°C、ミストの生成を伴う -180°C とした。主流条件は、-8°C、-40°C の実験では、主流温度 20°C、主流湿度 60%、主流流速 1.0 m/s とした。冷却面温度 -180°C の実験では、主流温度 27°C、主流湿度 62.1%、主流流速 2.0 m/s とした。

(2) 着霜モデルとしては、昇華凝結モデル（昇華凝結過程）とミスト沈着モデル（ミスト沈着過程）の構築に取り組んだ。昇華凝結モデルについては、結晶成長理論に着目し、付着成長やスパイラル成長といった結晶成長様式を仮定してモデルを構築した。昇華凝結過程により霜層が形成される -40°C 以上の冷却面温度の平板冷却面上における着霜現象を対象に数値計算を実施し、実験結果と比較して妥当性の検証を行った。また、ミスト沈着過程に対しては、一般動力学方程式を基にミストの生成・輸送・粒径成長・沈着を考慮した数理モデルを構築した。昇華凝結過程のモデルとミスト沈着過程のモデルを統合し、極低温冷却面上での着霜現象を対象に計算を実施し、実験結果と比較した。

### 4. 研究成果

(1) 陽極酸化法による表面微細加工とパーフルオロアルキル基含有りん酸エステルに浸漬処理により得られた試料の接触角を測定したところ、それぞれ平均で非処理材では 73.0 度、鏡面研

磨材で 55.9 度、超撥水材で、153.6 度であった。また、図 1(a)には非処理材の、図 1(b)には処理材の接触角測定の様子を示す。図 1(a)は超純水滴下後直ちに材料表面に液滴が広がったが、図 2 (b)は広がることなく球形を維持しており、撥水性が付与できていることがわかる。



(a) untreated (b) treated

図 1 接触角測定

(2) 冷却面温度 $-8^{\circ}\text{C}$ において、行った実験で取得した凍結開始時間と凍結伝播時間を図 2 に示す。凍結開始時間は、平板上にできた過冷却液滴のうち最初の 하나가凍結するまでの時間、凍結伝播時間は、一つ目の液滴が凍結し始めてからすべての液滴が凍結するまでの時間である。処理材では非処理材に比べ凍結開始時間が遅延し、30 分を超えても凍結開始しない結果も得られた。また、超撥水平板は非処理材に比べ、いずれの実験においても凍結伝播時間が大幅に遅延しており、超撥水性の付与により液滴同士の間隔が広くなり、ice bridge による伝播が遅くなったためだと考えられる。過冷却液滴の生成を伴う場合、霜層は過冷却液滴の凍結後に形成されるため、凍結開始時間の遅延、凍結伝播時間の遅延の 2 つの要因により、霜層の生成が遅延することが明らかになり、超撥水性の付与は冷却面温度が氷点付近の条件で凍結遅延、着霜遅延に有効であると結論づけられる。

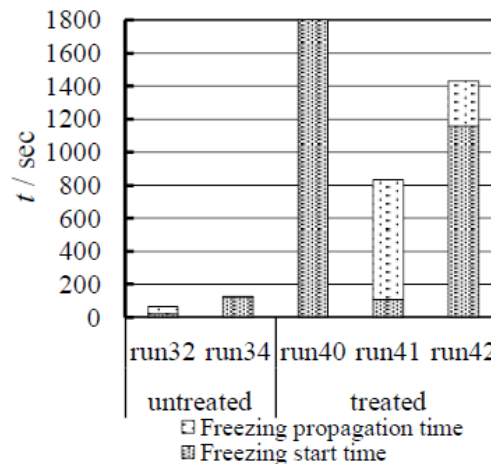


図 2 凍結遅延時間と凍結伝播時間

(3) 冷却面温度 $-40^{\circ}\text{C}$ で行った実験では、処理材と非処理材ともに、過冷却液滴の生成は確認されなかった。そのため、霜層は水蒸気の昇華凝結により形成されたものと考えられる。実験はそれぞれの試料で各 5 回ずつ実施し、600 s 経過後の霜質量を計測した。平均霜質量は非処理材では 0.107 g、超撥水材では 0.105 g であり、その差はわずかに 0.002 g であった。一方で、同じ条件でも $\pm 0.02\text{ g}$  程度のばらつきがみられており、本実験結果から、 $-40^{\circ}\text{C}$ においては未処理材と超撥水材で有意な差は見られない。したがって、超撥水性付与による着霜抑制法は、冷却液滴の生成を伴う条件では過冷却液滴の凍結遅延により大きな効果を発揮するが、昇華凝結により霜層が形成される条件においてはほとんど影響を与えないことが明らかになった。

(4) 冷却面温度 $-180^{\circ}\text{C}$ で行った実験で取得した霜質量の時間履歴を図 3 に示す。200 s までの範囲では、鏡面研磨材と超撥水材の間にほとんど差がみられないが、600 s では撥水性の付与により霜質量が減少した。200 s までの範囲では平板の前端部付近でのみ着霜がみられた。平板前端部では境界層が薄くミストの生成量が少ないため、昇華凝結により霜が形成されていると考えられ、撥水性は昇華凝結過程にはほとんど影響しないため、ほとんど差異がみられなかったと考えられる。一方で、600 s では、非処理材に比べて処理材の着霜量が減少しているが、本研究では原因を特定することはできなかった。また、極低温平板冷却面上では、先行研究[1]において円管冷却面で確認されたような霜層の吹き飛びは観察されなかった。そのため、霜層の吹き飛びは円管冷却面特有の現象であり、円管まわりで生じる流れの剥離などによる流体力の影響が霜の吹き飛びと大きく関係していることが予想される。

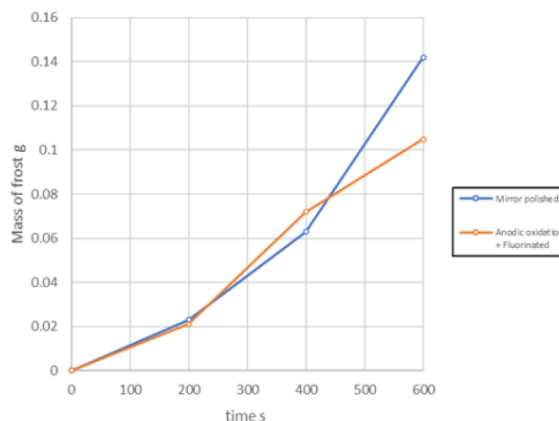


図 3 極低温での霜質量の時間履歴

(5) 着霜数値解析においては、霜層での局所的な水蒸気の相変化量を正しく算出することが必要である。本研究では昇華凝結過程の数値モデルとして、付着成長による結晶成長速度の算出式であるヘルツ・クヌーセンの式を用いたモデルと、BCF 理論に基づくモデルを構築した。これらの二つのモデルでは、数値解析結果に大きな差異は見られなかった。構築したモデルの妥当性の検証のために、矩形風洞内に設置した冷却平板上での着霜現象を対象に数値計算を行い、実験と比較した。

ヘルツ・クヌーセンの式を用いたモデルによる計算結果を図4に示す。計算条件は、主流流速 2.0 m/s、主流温度 27°Cで一定とし、冷却面温度と主流絶対湿度はそれぞれ、表1に示す各3通りとした。図中のプロットは実験値であり、ラインは計算結果である。霜質量(図4)については、高い精度で予測でき、その絶対誤差は最大でも 0.03 gであった。霜厚さについては、一部条件では比較的良好に実験と一致するが、冷却面温度が高い場合、主流湿度が高い場合には誤差が大きくなる傾向がみられる。霜厚さの誤差の要因としては、霜層内の水蒸気相変化量の分布や霜層内での霜密度分布が実現象と異なることが挙げられ、霜層内で水蒸気が昇華しより内部へと拡散することや、クヌーセン拡散・表面拡散などの異なる拡散形態による影響などで、霜層内での水蒸気の有効拡散係数が通常の分子拡散に比べ大きくなることを考慮する必要があると推測される。

表1 計算条件

Case	冷却面温度 °C	主流絶対湿度 kg/m <sup>3</sup>
1	-20	0.012
2	-10	0.012
3	-30	0.012
4	-20	0.008
5	-20	0.016

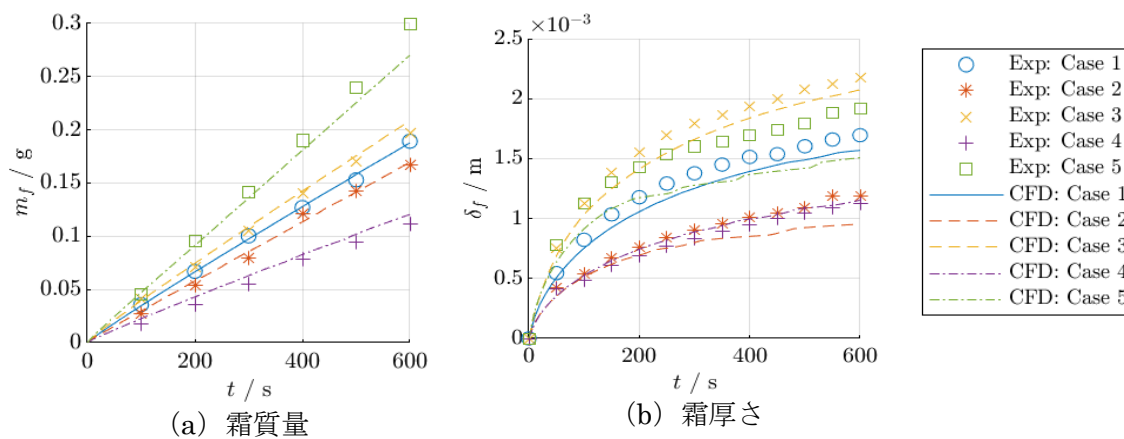


図4 数値計算結果

(6) ミスト沈着過程については、一般動力学方程式を基にモデル化を行った。ミストの生成・粒径成長・沈着のモデルには、それぞれ ICCT model [3]、Fuchs' model [4]、Sørensen's model [5]を用いた。また、ミスト沈着モデルを昇華凝結モデルと統合して、極低温冷却面上での着霜を対象に計算を実施し、実験結果と比較した。計算条件は、主流流速 2.0m/s、主流温度 27°C、主流絶対湿度 0.012kg/m<sup>3</sup> で一定とし、冷却面温度は-100°C (Cond. 1)、-150°C (Cond. 2) の二通りとした。着霜実験は同条件で実施し、平板は非処理材を用いた。

数値計算と実験の霜質量の時間履歴を図5に示す。実験では各条件で3回ずつ質量を取得し、プロットは平均値、バーは実験での最小値、最大値をそれぞれ意味している。極低温冷却面上での着霜では、ミスト化により水蒸気が消費されるため、霜層に供給される水蒸気量が減少する。また、この影響は初期ほど大きく、霜質量の増加率は着霜初期から徐々に増加する。数値計算、実験結果ともに同様の傾向が確認でき、本モデルでミスト化の影響を定性的には捉えられていることがわかる。定量的精度については、Cond. 2 では高い精度で予測

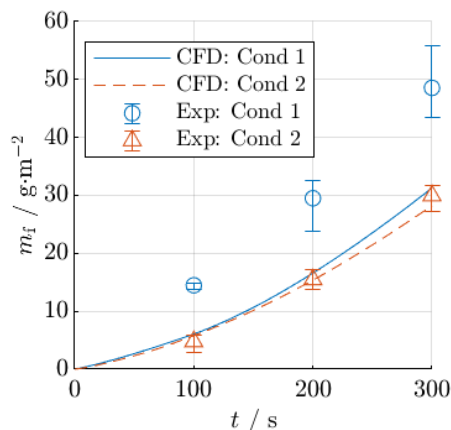


図5 霜質量の時間履歴

Cond.	CFD (Frost density distribution)	Experiment
1		
2		

図6 霜密度分布の計算結果と実験での霜形状

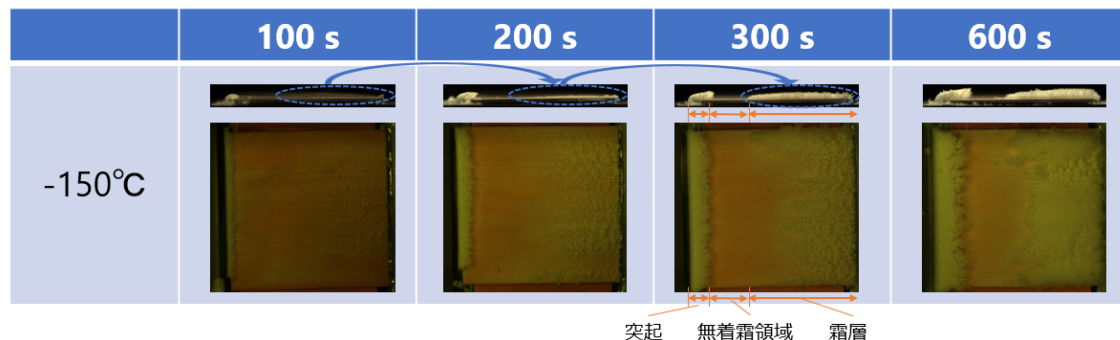


図7 冷却面における霜成長の様子

できているが、Cond. 1 では霜質量が実験の約半分となっている。

200 s 経過時の霜形状を図6に示す。CFD ではいずれの条件でも主に前縁に形成されているが、実験では平板後方にも霜が形成されており、Cond. 1 では平板全体で霜が形成している。これが、CFD と実験で霜の質量が大きく異なる主な理由であると考えられる。ここで、実験で取得した霜画像を図7に示す。極低温冷却面上での着霜では、冷却平板前縁から突起、その後方に無着霜領域、さらに後方に霜層が見られる。この前縁の突起は境界層の薄い前縁において、水蒸気の昇華によって形成されたものと考えられる。前端の突起形成により境界層が厚くなることで、突起のすぐ後方ではミストの生成が増加し、水蒸気のほとんどがミスト化で消費されるため、霜層の形成が阻害され、さらに後方では、生成したミスト一部が沈着することで霜層が形成される。後方の霜層について、100 s から200 s と、200 s から300 s の100秒間での変化を比較すると、後者において霜厚さが急激に増加しており、霜層表面温度の上昇に伴い、ミストが沈着することによる着霜から、昇華凝結による着霜へと遷移したためと推測される。

数値計算では、前端部で昇華凝結により突起状の霜が形成されているが、後方で形成される霜は冷却面端部に限定されている。これは本モデルでは後方での沈着量が非常に少なく、後方でのミスト沈着による霜形成が再現されていないためである。その結果、後方でも霜成長が盛んであったCond. 1の条件では質量、形状ともに実験との差が大きくなったと考えられる。今後、熱泳動力や重力沈降を考慮することで、定量的精度の向上が期待される。

#### <引用文献>

- [1] 十川悟、佐藤哲也他、陽極酸化法を用いた超撥水伝熱管によるプリクーラ伝熱面への着霜遅延化に関する研究、2017年度日本冷凍空調学会年次大会講演論文集、2017.
- [2] Fukiba, K., et al., "Improvement in pipe chilldown process using low thermal conductive layer," International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol.111, August 2017, pp.115-122.
- [3] Girshick, S. L., and Chiu, C. P., "Kinetic Nucleation Theory: A New Expression for the Rate of Homogeneous Nucleation from an Ideal Supersaturated Vapor," J. Chem. Phys., Vol.93 No.2, 1990, pp.1273-1277.
- [4] 高橋幹二、"エアロゾル学の基礎"、森北出版、2003.
- [5] Sørensen, D. N., and Charles J. W., "Modeling-Gas Phase Reactions in Indoor Environments Using Computational Fluid Dynamics," Atmospheric Environment, Vol.36 No.1, 2002, pp.9-18.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 服部皓大, 倉田琢巳, 十川悟, 森永裕大, 陳衛偉, 植田晃弘, 佐藤哲也	4. 巻 38(2)
2. 論文標題 強制対流条件下での着霜現象への冷却面温度及び主流絶対湿度の影響	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本冷凍空調学会論文集	6. 最初と最後の頁 掲載予定
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Akihiro Hattori, Satoru Tokawa, Yudai Morinaga, Weiwei Chen, Akihiro Ueda, Mikio Yoshida, Tetsuya Sato
2. 発表標題 Numerical prediction of frost formation on a cryogenic plate considering mist generation using general dynamic equation
3. 学会等名 The 10th Asian Conference on Refrigeration and Air-conditioning (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 森永裕大, 十川悟, 服部皓大, 植田晃弘, 吉田幹男, 佐藤哲也
2. 発表標題 極低温平板冷却面での着霜現象におけるミスト化の影響に関する実験研究
3. 学会等名 令和三年度宇宙輸送シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 服部皓大, 十川悟, 森永裕大, 陳衛偉, 植田晃弘, 吉田幹男, 佐藤哲也
2. 発表標題 ヘルツ・クヌーセンの式に基づく昇華凝結モデルを用いた着霜現象の予測
3. 学会等名 2021年度 日本冷凍空調学会 年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 十川悟, 服部皓大, 森永裕大, 陳衛偉, 植田晃弘, 吉田幹男, 佐藤哲也
2. 発表標題 陽極酸化法を用いた超撥水アルミニウム平板上での過冷却水凍結時間の遅延化に関する研究
3. 学会等名 2021年度 日本冷凍空調学会 年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Akihiro Hattori, Tetsuya Sato
2. 発表標題 Influence of Sublimation Models on the Computational Method for Predicting Frost Formation Phenomena During the Sublimation Process
3. 学会等名 2nd Asian Conference of Thermal Science (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 服部皓大, 十川悟, 森永裕大, 植田晃弘, 佐藤哲也
2. 発表標題 強制対流条件下における着霜現象への冷却面温度および絶対湿度の影響
3. 学会等名 令和二年度宇宙輸送シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 服部皓大, 佐藤哲也
2. 発表標題 エアロゾル輸送解析とCFDとの連成による着霜解析手法の提案
3. 学会等名 第34回数値流体力学シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 森永裕大, 佐藤哲也
2. 発表標題 陽極酸化によるナノスケール超撥水性付与が着霜抑制に対する効果に関する実験研究
3. 学会等名 日本機械学会関東学生会第59回学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 倉田琢巳, 服部皓大, 堀越大輝, 十川悟, 佐藤哲也
2. 発表標題 核形成理論を用いた数理モデルによる平板上への着霜現象の予測
3. 学会等名 2019年度 日本冷凍空調学会年次大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	十川 悟  (Tokawa Satoru)  (50822136)	早稲田大学・理工学術院・助手    (32689)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------