

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 17 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25420141

研究課題名(和文)二成分流体による限界熱流束促進機構の解明

研究課題名(英文) Mechanism of critical heat flux enhancement in boiling of binary mixtures

研究代表者

坂下 弘人 (Sakashita, Hiroto)

北海道大学・工学研究院・准教授

研究者番号：00142696

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：二成分流体による限界熱流束促進機構を解明するために、上向き面上の2-プロパノール水溶液の沸騰において、微細熱電対を用いて測定した温度から2-プロパノールの局所濃度を推定した。これにより、濃度分布、表面張力分布は伝熱面近傍で大きな不均一を持つことが判明した。また、伝熱面上の沸騰様相の可視化実験を行い、水と2-プロパノール水溶液では、気液挙動に顕著な違いを生じることを明らかにした。この違いは、伝熱面近傍の表面張力分布によって誘起されるマランゴニ対流によるものと推察される。このマランゴニ効果によって一次気泡の離脱が促進され、厚いマクロ液膜が形成されることで、限界熱流束が促進されると考えられる。

研究成果の概要(英文)：To examine the mechanism of CHF enhancement with binary mixtures, the local concentrations of 2-propanol was deduced based on the temperatures near the heating surface measured using a micro thermocouple in pool boiling on an upward-facing heating surface for 2-propanol/water mixtures. It was found that the concentration and surface tension vary strongly near the heating surface. The boiling behaviors of the 3mol% of 2-propanol/water mixture were observed using a transparent surface via a total reflection technique. It was clarified that drying behaviors of the surface were quite different between water and the mixture. This difference is probably due to a strong Marangoni convection induced by non-uniform surface tension distribution near the heating surface. It is suggested that the this Marangoni effect leads to promotion of primary bubble detachment, and therefore, formation of thicker macrolayer, resulting in the CHF enhancement of 2-propanol/water mixtures.

研究分野：工学

キーワード：沸騰 限界熱流束 二成分流体 濃度分布 マランゴニ対流

### 1. 研究開始当初の背景

水に、アルコールやケトンを添加した2成分水溶液を作動流体として用いると、プール沸騰の限界熱流束(以下、CHF)が顕著に促進される場合のあることが知られており、高熱流束機器の沸騰除熱媒体として利用できる可能性がある。2成分流体のCHF促進に関しては過去に種々の実験的、理論的検討が行われてきたが、CHF促進機構は現在まで明らかになっていない。本研究の研究代表者は、過去に2成分水溶液のCHF促進機構を検討するために、2-プロパノール水溶液を用いて、直径12mmの上向き面上の大気圧での飽和プール沸騰の限界熱流束を測定するとともに、触針法を用いて伝熱面近傍の気液挙動を測定した(参考文献)。その結果、2-プロパノール水溶液のCHFは、濃度3.0~4.7mol%で水のCHFに対して約1.7倍促進されること、2-プロパノール水溶液の伝熱面近傍の気液構造は伝熱面径方向に大きな不均一を示し、蒸気塊下に形成される液層(マクロ液膜)は伝熱面中央部では水に比べて顕著に厚くなり周辺部に向かって薄くなることを明らかにした。以上の結果から、2-プロパノール水溶液によるCHFの促進は、伝熱面中央部での厚い液層の形成による可能性が高いことを示唆した。この機構は、過去に提案された二成分流体のCHF促進機構とは異なるものの、2-プロパノール水溶液で伝熱面近傍の気液構造が水と大きく異なることや径方向に顕著な不均一を持つ要因としては、既存の多くのモデルで想定しているように、伝熱面近傍の2-プロパノール濃度の高さ方向および径方向の不均一が要因である可能性が考えられる。したがって、2成分水溶液のCHF促進機構の検討を進めるためには、CHF近傍の高熱流束域における伝熱面近傍の濃度場に関する知見、および伝熱面上に形成される蒸気塊下の沸騰挙動に関する知見が必要である。

### 2. 研究の目的

本研究では二成分流体として2-プロパノール水溶液を用い、核沸騰高熱流束域で微細熱電対を用いて伝熱面近傍の温度場を測定し、得られた温度の測定値から、2-プロパノールの濃度分布の推定を試みた。さらに、透明伝熱面上の沸騰様相の可視化測定を行い、水と2-プロパノール水溶液での気液挙動の違いについて検討した。

### 3. 研究の方法

(1)微細熱電対による局所濃度測定  
 実験は、濃度3mol%の2-プロパノール水溶液を用いて大気圧で行った。図1に伝熱面近傍の温度測定に用いた実験装置の概略を示す。伝熱面は直径12mmの銅製上向き面であり、表面温度と表面熱流束は銅ブロック中心軸上に表面から4mm・12mmの位置に設置した2本の熱電対を用いて測定した。伝熱面近傍の温度分布の測定には、素線径25 $\mu$ mのK

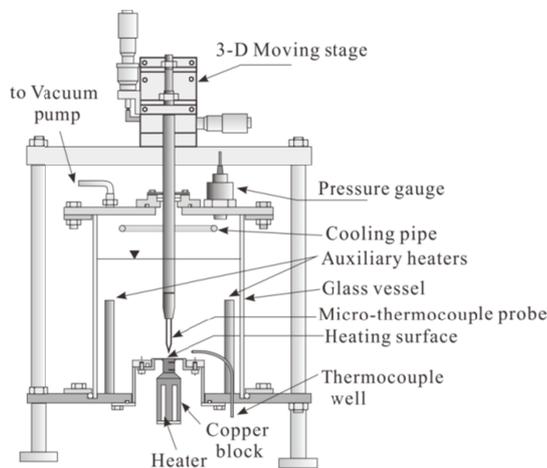


図1 温度測定用沸騰実験装置

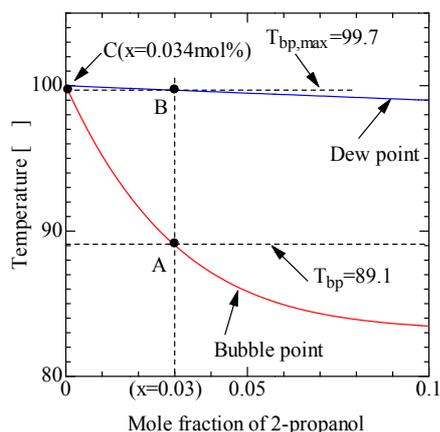


図2 2-プロパノール水溶液の気液相平衡図 (モル分率0~0.1の領域を拡大した図)

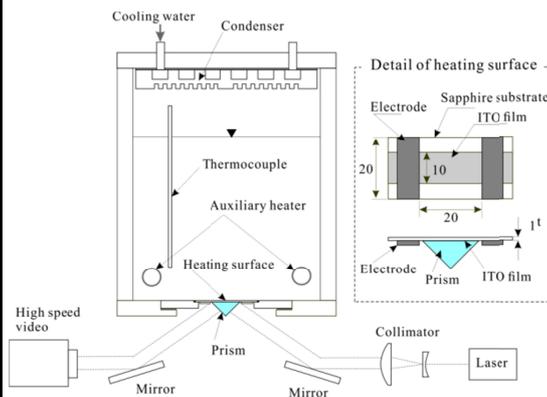


図3 可視化測定用実験装置

型微細熱電対プローブを用いた。プローブは、2本の熱電対素線を先端が針状になるように溶接し、熱膨張の小さい石英ガラス管に収め、熱電対先端部分が2mm程度突き出した構造になっている。このプローブを、水平方向に10 $\mu$ m、垂直方向に0.5 $\mu$ mの精度で移動可能な3次元移動ステージに取り付けて、伝熱面近傍の温度測定を行った。

図2に、モル分率0~0.1までの領域の2-プロパノール水溶液の気液相平衡図を示す。濃度3mol%の2-プロパノール水溶液の沸点

は  $T_{bp}=89.1$  (A 点) で与えられるが, 伝熱面近傍で低沸点成分の優先的な蒸発が生じると沸点は最大で  $T_{bp,max}=99.7$  まで上昇することになる(この時の 2-プロパノールの液濃度は  $x=0.034\%$  (C 点), 蒸気濃度は  $y=3\text{mol}\%$  (B 点)となる.) この気液相平衡関係より, 局所温度から 2-プロパノールの局所濃度を推定する.

#### (2) 沸騰挙動可視化実験

図 3 に, 可視化測定に用いた実験装置と光学系の概略を示す. 伝熱面には高熱伝導率のサファイア基板(厚さ 1mm)を用い, 裏面に蒸着した ITO 膜への直流通電によって加熱する. 加熱領域は, 長さ 20mm, 幅 10mm の矩形である. 伝熱面底部にプリズムを密着させ, 伝熱面上面が乾いている場合に全反射条件を満たすようにレーザーを入射し, 沸騰様相を高速ビデオにより撮影した. これにより, 伝熱面が乾いている部分は明るく, 液で覆われている部分は暗く観察される.

#### 4. 研究成果

(1) 温度測定結果 図 4 に, 濃度 3mol% の 2-プロパノール水溶液の  $q=1.95\text{MW}/\text{m}^2$  の条件で, 伝熱面中央( $r=0\text{mm}$ )で伝熱面から各高さ  $h$  で得られた温度波形を示す. 図中で, 赤の破線はバルク液(3mol%)の沸点  $T_{bp}(=89.1)$ , 青の一点鎖線は 3mol% 水溶液の取り得る沸点の最大値  $T_{bp,max}(=99.7)$  である.  $h=0.01\text{mm}$ ,  $0.05\text{mm}$  の位置では, 高温側ピーク値は  $T_{bp,max}$  以上となっており, 熱電対先端が過熱液層内にあることを示している. 一方, 低温側ピーク値は, バルク液の沸点  $T_{bp}$  よりかなり高い値を示し,  $T_{bp,max}$  にほぼ一致している.  $h=0.25\text{mm}$  では変動が非常に小さくなっており, この位置において液温と蒸気温度がほぼ等しくなっていることを示している. ただし

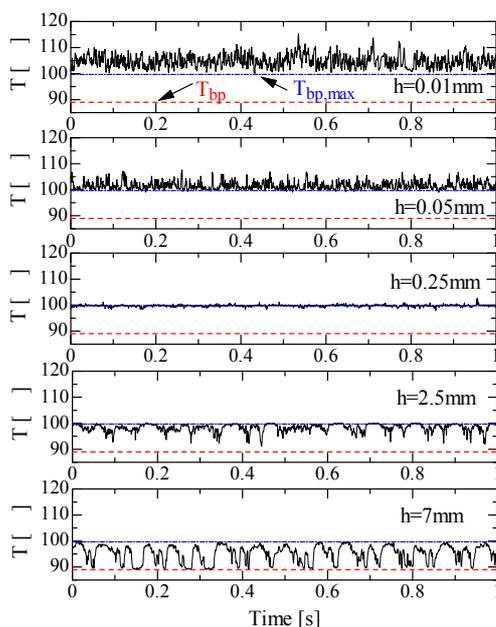


図 4 2-プロパノール水溶液の沸騰で得られた温度波形(3mol%,  $q=1.95\text{MW}/\text{m}^2$ )

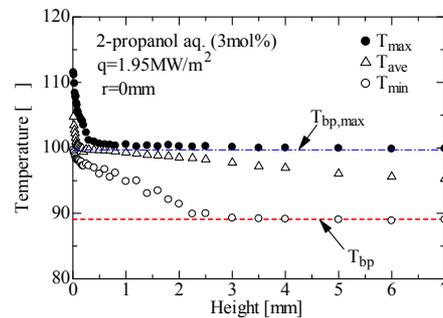


図 5 温度波形の最大値, 平均値, 最小値(3mol%,  $q=1.95\text{MW}/\text{m}^2$ )

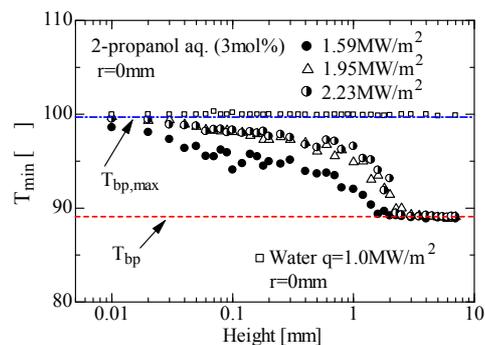


図 6 温度波形の最小値  $T_{min}$  の垂直方向分布の熱流束による違い

その値は, バルク液の沸点  $T_{bp}$  よりかなり高く,  $T_{bp,max}$  とほぼ一致している.  $h=2.5\text{mm}$  では, 低温側ピーク値はバルク液の沸点  $T_{bp}$  に近づく傾向を示し,  $h=7.5\text{mm}$  では低温側ピークは  $T_{bp}$  とほぼ一致している. 一方, 蒸気塊中の蒸気温度を示す  $h=2.5\text{mm}$ ,  $7\text{mm}$  での高温側ピーク値は, バルク液と平衡状態にある場合に示す蒸気温度である  $T_{bp}$  よりかなり高く, ピークの最大値は  $T_{bp,max}$  に近い値となっている. このため, 蒸気塊の形成と離脱後の周囲液の流入に対応する周期的な温度変動が現れている.

図 5 に, 図 4 に示した温度波形の高温側ピークの最大値  $T_{max}$ , 低温側ピークの最小値  $T_{min}$ , および温度波形の時間平均値  $T_{ave}$  の高さ方向分布を示す.  $T_{max}$  は, 伝熱面近傍の過熱液層内では沸点の最大値  $T_{bp,max}$  よりかなり高い温度となっており, 伝熱面から離れるに従って減少し  $h>2\sim 3\text{mm}$  の領域では  $T_{bp,max}$  にほぼ一致する.  $T_{min}$  は伝熱面ごく近傍では沸点の最大値  $T_{bp,max}$  にほぼ一致し, 伝熱面から離れるに従って低下し,  $h>3\text{mm}$  以降では, バルク液の沸点  $T_{bp}$  に一致している. 図 6 は, 低温側ピークの最小値  $T_{min}$  の高さ方向分布を, 異なる 3 つの熱流束について示す. ただし, 伝熱面近傍の状況をより明瞭に示すために片対数で示している. 図には, 参考までに水の  $q=1\text{MW}/\text{m}^2$  で得られた  $T_{min}$  も併記した. 飽和温度が濃度によって変化しない水の場合は,  $T_{min}$  はどの高さにおいても飽和温度 (100) と一致している. 2-プロパノール水溶

液では、伝熱面から十分に離れた位置では、 $T_{\min}$  はいずれの熱流束においてもバルク液の沸点  $T_{bp}$  に一致し、伝熱面に近づくにつれて増大する。さらに、伝熱面のごく近傍の  $T_{\min}$  は熱流束が増大するにつれて、 $T_{bp,max}$  に漸近する傾向を示す。ただし、 $T_{bp,max}$  を超えることはない。

以上の図4~図6の結果は、2-プロパノール水溶液の沸騰では、伝熱面高さ方向に濃度の不均一が存在していることを示している。沸点が濃度によって変化する2-プロパノール水溶液の沸騰では、伝熱面から十分に離れた位置では2-プロパノール濃度はバルク液の濃度となるため局所沸点はバルク液の沸点  $T_{bp}$  と一致し、伝熱面に近づくにつれて2-プロパノール濃度の減少によって局所沸点は増大する。さらに伝熱面近傍では、熱流束の増大とともに2-プロパノール濃度は減少し下限値である相平衡図(図2)のC点( $x=0.034mol\%$ )に近づくため、局所沸点は  $T_{bp,max}$  に漸近すると予想される。(ただし、局所沸点は  $T_{bp,max}$  を超えることはない)。以上の2-プロパノール水溶液の沸騰で予想される濃度の伝熱面高さ方向分布や熱流束による変化の傾向は、図5、図6の  $T_{\min}$  の結果とよく一致している。そこで、測定された温度波形の低温側ピークの最小値  $T_{\min}$  がその位置における液の局所沸点に対応していると仮定して、図2に示した相平衡図より2-プロパノールの局所濃度の推定を試みた。

(2)  $T_{\min}$  から推定された2-プロパノール濃度分布 図7に相平衡図を用いて  $T_{\min}$  から2-プロパノール濃度を算出した結果を示す。どの熱流束においても2-プロパノールの濃度は伝熱面から十分に離れた位置ではバルクの

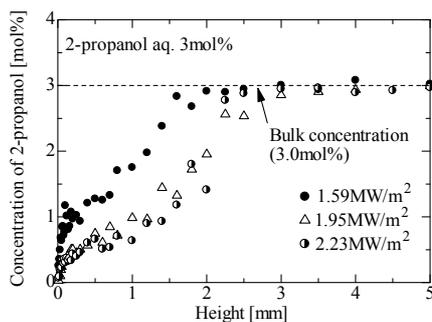


図7 2-プロパノール濃度の垂直方向分布

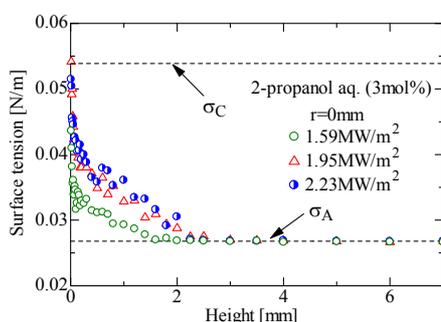


図8 表面張力の垂直方向分布

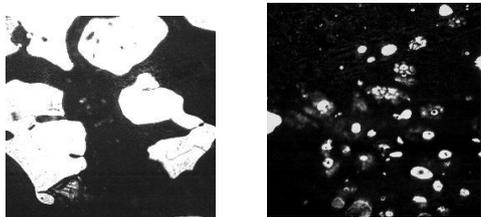
濃度に一致し、伝熱面に近づくにつれて大幅に低下し  $CHF(2.42MW/m^2)$  に近い  $1.95MW/m^2$ 、 $2.23MW/m^2$  ではほぼ下限濃度(図2のC点、 $x=0.034mol\%$ )まで低下する。また、バルク濃度(3mol%)より低い濃度を示す領域は、熱流束の増大とともに伝熱面から離れた位置まで広がる傾向にある。以上の温度分布、濃度分布の結果より、本実験で用いた上向き円形面上の2-プロパノール水溶液の沸騰では、蒸気塊の離脱に伴って伝熱面周囲から流入した液が、低沸点成分の選択的な蒸発を伴いながら伝熱面中央部に向かい、伝熱面中央付近では2-プロパノール濃度はほぼ下限濃度まで低下し、図2の相平衡図におけるB点の組成に近い蒸気が上部蒸気塊に供給されていると考えられる。このため、蒸気塊中の最大温度  $T_{max}$  は  $T_{bp,max}$  にほぼ一致することになる。

(3) 表面張力分布の推算 既往研究では、2-プロパノール水溶液のように低沸点成分の表面張力が高沸点成分の値より小さい positive 混合液の CHF 促進の要因として、マランゴニ効果の影響が示唆されている。そこで、得られた温度分布と濃度分布を用いて局所の表面張力を求めた。図8に、表面張力の高さ方向分布を示す。伝熱面近傍で表面張力が急激に増加しており、この領域では気液界面での強いマランゴニ対流の発生が予想される。図には、図2の相平衡図のA点、およびC点( $x=0.034mol\%$ )での表面張力  $\sigma_A$ 、 $\sigma_C$  の値も示した。伝熱面近傍の表面張力は、熱流束の増大とともに  $\sigma_C$  に近づく。

(4) 可視化実験結果

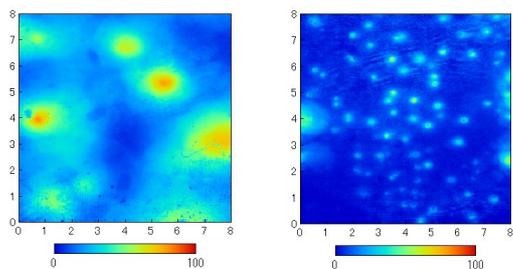
「1. 研究開始当初の背景」で述べたように、2-プロパノールの沸騰では、伝熱面中央部で水に比べてはるかに厚い液層(マクロ液膜)が形成される。既往の研究によると、気泡周囲に表面張力勾配が形成されマランゴニ対流が生じる場合、気泡にはマランゴニ対流と逆向きの力が働くことが知られている。したがって、図8のような伝熱面に向かって増加する表面張力分布が形成された場合には、伝熱面上の気泡には離脱を促進する方向に力が作用する。これによって、マランゴニ対流の無い場合に比べて、気泡同士が伝熱面からより離れた位置で接合し、水に比べて厚いマクロ液膜を形成する可能性がある。マクロ液膜形成とそのドライアウト機構を検討するための第1段階として、図3に示した実験装置を用いて、全反射を利用して伝熱面下面からの沸騰様相の可視化を試みた。測定熱流束の範囲は、水で  $0.1\sim 0.73MW/m^2$ 、3mol%の2-プロパノール水溶液で  $0.2\sim 1.48MW/m^2$  である。なお、水では約  $0.4MW/m^2$  以上、2-プロパノール水溶液では約  $1.0MW/m^2$  以上で、伝熱面を覆う蒸気塊が形成される。

図9に、伝熱面下面から撮影された高速ビデオ画像のスナップショットの一例を示す。図は、水、2-プロパノール水溶液ともに本実



(a) Water (0.732MW/m<sup>2</sup>) (b) 2-propanol aq. (1.48MW/m<sup>2</sup>)

図9 高速ビデオ映像のスナップショット (8mm×8mm area)



(a) Water (0.732MW/m<sup>2</sup>) (b) 2-propanol aq. (1.48MW/m<sup>2</sup>)

図10 時間平均ドライアウト割合 (8mm×8mm area).

験条件の最も高い熱流束の場合であり、伝熱面上部に形成されている大きな蒸気塊の下の沸騰様相を示している。画像の白い部分が、入射レーザー光が全反射を生じた領域である。全反射を利用した観察では、伝熱面が乾燥している場合に全反射条件を満たすように観察光を入射する。しかし、伝熱面上にごく薄い液膜が存在している場合も薄液膜上面で全反射条件を満たすため、全反射領域が実際に乾燥状態にあるかどうかの判別は困難である。この点は今後の課題として、以下では全反射領域は乾燥領域に対応しているとみなすことにする。観察の結果、水と2-プロパノール水溶液では蒸気塊下の沸騰様相は全く異なることが判明した。水では、乾燥領域が比較的ゆっくりとした周期で拡大と収縮を繰り返すのに対し、2-プロパノール水溶液では乾燥領域は大きく広がらずに高頻度(最大で 300~400Hz)で発生と消滅を繰り返す。

図10に、図9に例示した高速ビデオ画像(2000fpsで0.5sec.に亘って撮影)を平均化処理した時間平均乾燥割合の結果を示す。水の $q=0.732\text{MW/m}^2$ では、乾燥領域が大きく広がり乾燥時間割合が最大80%に達するのに対し、2-プロパノール水溶液の $q=1.48\text{MW/m}^2$ では熱流束が水の約2倍にもかかわらず、乾燥部分は斑点状に限定され最大値も65%に留まっている。

図11 図12は、図9、10に示した8mm×8mm領域の面積平均乾燥割合の時間変化である。水の $q=0.732\text{MW/m}^2$ では、乾燥領域は平均で

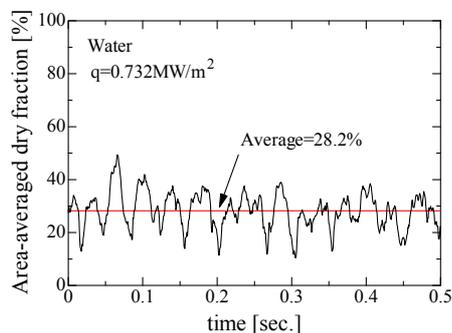


図11 面積平均ドライアウト割合の時間変化 (Water,  $q=0.732\text{MW/m}^2$ )

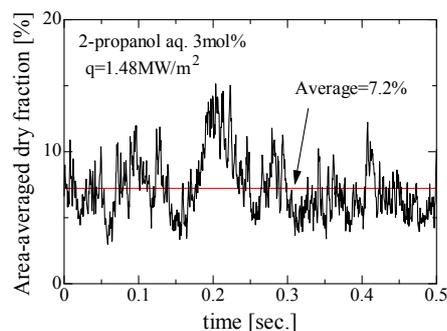


図12 面積平均ドライアウト割合の時間変化 (2-propanol aq.  $q=1.48\text{MW/m}^2$ )

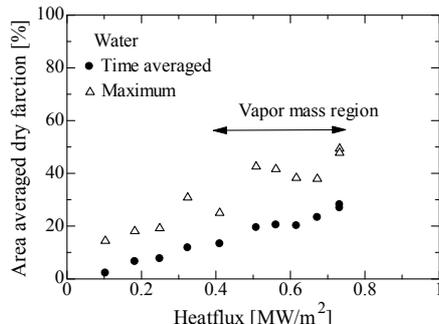


図13 面積平均ドライアウト割合の最大値および時間平均値の熱流束による変化 (Water)

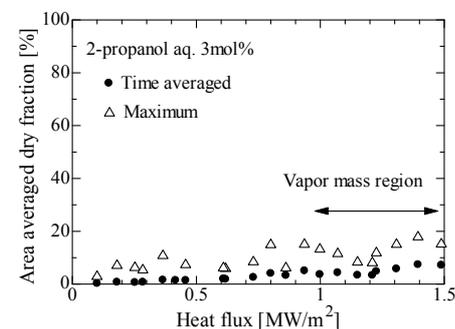


図14 面積平均ドライアウト割合の最大値および時間平均値の熱流束による変化 (2-propanol aq. 3mol%)

28%であるが、最大では領域の約 50%が乾燥状態になる。一方、2-プロパノール水溶液の  $q=1.48\text{MW/m}^2$  では、乾燥領域は平均で 7.2%、最大でも 15%に留まる。また、伝熱面上に斑点状に形成される乾燥領域の高頻度の生成・消滅に起因して、面平均乾燥割合も水に比べて激しく変動する様子が確認できる。

図 13、図 14 に面平均乾燥割合の最大値および時間平均値の熱流束による変化を示す。水、2-プロパノール水溶液ともに、熱流束の増加とともに乾燥割合は増大傾向を示すが、2-プロパノール水溶液の乾燥割合は水に比べて大幅に小さい値を示し、本実験条件の最大熱流束近傍でも平均で 7.5%、最大で 15~18%程度に留まる。

このように、2-プロパノール水溶液では水に比べてドライアウトが大幅に抑制される。この違いは、本研究の測定により初めて定量的に示された伝熱面近傍の強い表面張力勾配によって一次気泡周囲に誘起されるマランゴニ対流によるものと推察される。この効果によって、一次気泡の離脱が促進され、伝熱面からより離れた位置で接合して蒸気塊を形成するために、蒸気塊下の液層は顕著に厚くなり二成分流体の限界熱流束が促進されると考えられる。

#### <参考文献>

H.Sakashita and A. Ono, Measurements of critical heat flux and liquid-vapor structure near the heating surface in pool boiling of 2-propanol/water mixtures, International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol.53, 2010, pp.1554-1562.

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計1件)

H.Sakashita, Temperature measurements near the heating surface at high heat fluxes in pool boiling of 2-propanol/water mixtures, International Journal of Heat and Mass Transfer, 査読あり, vol.93, 2015, pp.1000-1007, DOI:<https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2015.10.042>

[学会発表](計1件)

坂下弘人, 2-プロパノール水溶液のプール沸騰高熱流束域における伝熱面近傍の局所濃度の推定, 2016年5月24日, 第53回日本伝熱シンポジウム, グランキューブ大阪, 大阪市

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

坂下 弘人 (SAKASHITA, Hiroto)  
北海道大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号: 00142696