

〔研究〕

微小重力下の沸騰単一気泡，隣接気泡の観察

Observation of Single and Dual Vapor Bubbles in Microgravity

阿部 宜之 岩崎 晃

Y. ABE

A. IWASAKI

A series of experiments for single and dual vapor bubbles of single component liquid (CFC-113) and non-azeotropic binary mixtures (CFC-112/CFC-12 and water/ethanol) have been conducted in a microgravity condition available in a 490-m free-fall drop shaft. The bubbles were nucleated and grown in the microgravity condition, and were observed with the aid of a two-wavelength Mach-Zehnder interferometer for the evaluation of both temperature and concentration profiles. An onset of significant Marangoni effect was observed for subcooled boiling in CFC-113, though appreciate Marangoni effect no longer appeared in the saturation boiling. Both the temperature and concentration distributions around a single bubble were clearly obtained for CFC-112/CFC-12 mixture, and the thickness of thermal and mass boundary layers developed around a bubble was found to be one order of magnitude larger than those predicted by pure diffusion models. The behavior of the temperature and concentration profiles suggested the influence of the Marangoni effect induced by temperature gradient in the early stage of bubble growth and alternative Marangoni effect induced by concentration gradient in the later stage of bubble growth. The boiling behavior of water/ethanol mixture showed the nucleation of secondary bubble from the bottom of a primary bubble, which suggests the existence of liquid layer with an appreciable thickness underneath bubbles. Such liquid layer is considered to be supplied by the Marangoni effect induced by the concentration gradient around three-phase interline, formerly pointed out by the present author.

§1 はじめに

1950年代末に初の微小重力下の沸騰実験が実施¹⁾され、以来40年、微小重力下の沸騰現象についてはかなりの研究が報告されてきたが、大半が単成分液体の沸騰現象であり、混合液体に関する報告は極めて限られる^{2,3)}。筆者は、沸点が低い組成の表面張力が小さい、いわゆるポジティブな混合系では、濃度差マランゴニ効果が顕在化する微小重力下で、濃度差マランゴニ効果が沸騰伝熱を促進するはずである、と

の予測のもと、水/エタノール混合液を用いて、微小重力下 ($\approx 10^{-4} g$) での沸騰実験を試み、重力の低下に伴い、核沸騰伝熱が著しく促進される事実を示した³⁾。実験は地下無重力実験センター (JAMIC)⁴⁾ の、490mの落下坑内の自由落下により得られる10秒間の微小重力下 ($\approx 10^{-4} g$) を利用して実施した。Fig.1はその時の実験結果であり、2種の異なった組成の水/エタノール混合液体の微小重力下における沸騰熱伝達係数と通常重力下における沸騰熱伝達係数の比を示しているが、重力の低下により沸騰熱伝達係数

が20% から60% 近く高くなっていることがわかる。この実験には、透明伝熱面ヒーターを用いたが、伝熱面の裏面からの観察結果によって、気泡の周囲に形成されていると考えられる濃度場により強い濃度差マランゴニ効果が発生し、気泡が Fig.2 に示すような挙動をすることがわかった。

筆者らが見いだした上記の事実は、微小重力下の非共沸混合系の沸騰現象に関する研究の端緒を開くと共に、非共沸混合系の沸騰メカニズムにおけるマランゴニ効果に関しても、新たな注目を引く契機となり、その後いくつかの報告が相次いだ⁵⁻⁷⁾。

一方、工学的な観点からは、組成によって沸点、露点に変化する非共沸混合液体の特徴を活かし、高効率ヒートポンプ、高効率発電サイクルなどの熱媒体への適用が期待されている^{8,9)}。しかし、非共沸混合

液体は沸騰、凝縮の相変化に伴い、伝熱面近傍の局所的な濃度も変化するため、熱伝達が単成分液体に比べて低下する。したがって、必要な熱伝達を確保するためにはどうしても伝熱面積の大きい熱交換器が必要となり、コストの上昇を招いてしまう。また、単成分液体では効果が発揮できる高性能沸騰伝熱面も、混合液体ではほとんど効果がない、という報告¹⁰⁾もあり、非共沸混合液体を利用した熱エネルギー機器開発において、熱交換器の高性能化は、最重要な解決課題となっている。筆者は、熱交換器の高性能化の上で、受動的な熱伝促進が可能な、混合液体特有の高性能伝熱面の開発が重要と考えているが、そのような開発課題に取り組む上で、沸騰現象メカニズムの理解は最も重要な研究課題である。浮力が排除された微小重力場は、このような物理現象の本質を探る上で、非常に有効な場である。

本研究では、上記の目的のため、非共沸混合液体の単一沸騰気泡を微小重力下で発生、成長させ、加熱面から離脱せずに大口径化する沸騰気泡を、2 波長干渉計で観察し、気泡の周囲に形成される温度場、濃度場を定量的に求め、さらに隣接する2つの気泡についても、微小重力下での発生、成長により、単成分液体、混合液体において、気泡間に作用する温度差マランゴニ効果、濃度差マランゴニ効果が気泡合体にどのような影響を及ぼすのかを調べる。

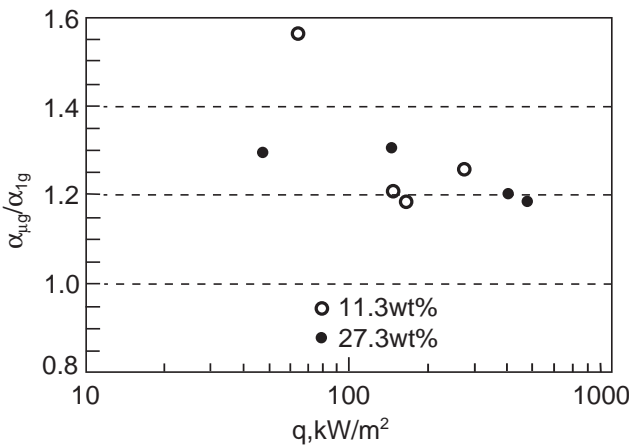


Fig.1 Boiling heat transfer coefficient ratio of microgravity and normal gravity

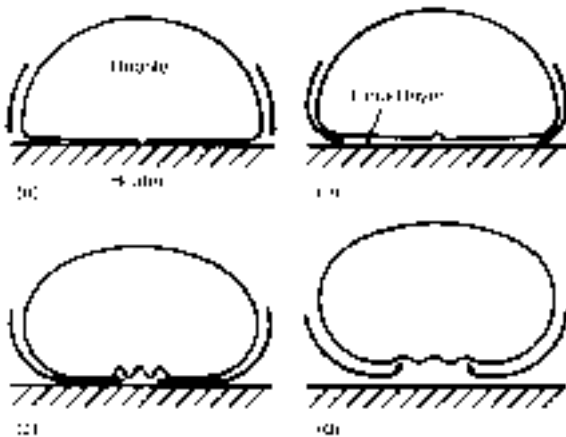


Fig.2 Bubble behavior suggested by rear-side observation of transparent heater

§2 実験装置

本実験は、北海道上砂川の地下無重力実験センター (JAMIC) で実施し、JAMICで得られる10秒間の 10^{-4} g オーダーの微小重力環境を利用した。JAMICの施設に関する詳しい記述は文献 4) になされているので省くが、490mの自由落下による10秒間の微小重力を経て、実験装置が搭載された落下カプセルは減速時に最高8gの環境に曝されて停止するが、実験装置、特に干渉計を構成する光学機器の設計にあたっては、このような急変する重力環境に十分耐えるよう留意を要する点で、落下施設を用いた微小重力実験装置の特徴である。

実験装置の本体は Fig.3 に示す2波長マッハツェンダー干渉計で、光学機器は振動を防ぐため、全て厚さ70mmのアルミハニカム構造の800mm × 800mmの

ブレッドボード上に配置されている。干渉計の光源として、初期には633nm, および544nmの2種のHe-Neレーザーを用いたが、このうち544nmのレーザーは後に473nmのものに更新した。レーザー光は、直径40mmの平行ビームとして沸騰セル内を透過させるため、レンズ、ミラー等の光学機器の口径は大きくなり振動の影響を受けやすくなってしまった。そのため、これら光学機器のホルダーの開発は、何回かの試作を重ね、振動に強い構造のものを製作した。

実験装置全体は、Photo 1のような、上記干渉計が配置されたブレッドボードをベースとした2層構造とし、干渉計の上段には実験シーケンスを制御するCPU、A/D変換器、通電加熱用電源、圧力計等が搭載されている。全体の寸法は870mm×870mm×443mmで、JAMIC搭載実験装置の横1/2ラックのサイズとなっている。

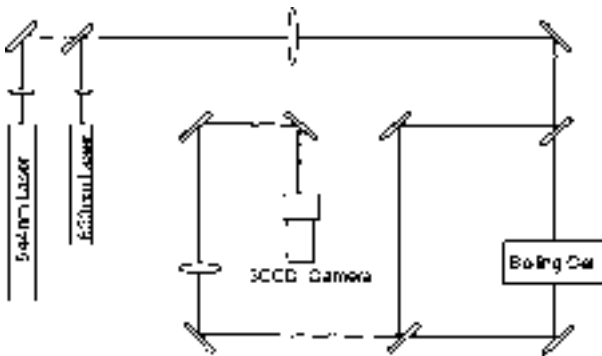


Fig.3 Two-wavelength March-Zehnder interferometer



Photo 1 Experimental rack for JAMIC experiments

Fig.4は、沸騰気泡を観察するための沸騰セルの断面で、微小重力環境下で20mm×30mmのヒーター面上に単一気泡を発生させ、これを成長させる。10秒間の限られた実験時間中に単一気泡を確実に発生、成長させるため、何種類かの異なった構造のヒーターを試したが、結局Fig.5(a)に示す構造の多層コーティングした1mm厚のガラス基板のスポットヒーターを用いて実験を実施した。多層コーティングされたITO膜はNi膜を通じて通電加熱されるが、中央部がくびれた蒸着パターンとなっているため、基板中心部のみ局所加熱され、単一気泡が発生、成長する。隣接気泡の実験に使用したヒーターも、原理は同じで、Fig.5(b)に示した多層コーティングパターンを有するガラス基板を用いた。発生した気泡が3次的に成長すると、気泡を透過するビームが、気泡周囲に形成される温度場、濃度場により複雑に曲折し、参照光と干渉縞を形成する。ビームの曲折が、

- 温度場のみ、または濃度場のみによるものであり
- かつ、これらが軸対称

であれば、干渉縞を解析的、または数値的に補正することも可能であるが、温度場、濃度場が混在した場合の補正は実際上ほとんど不可能である。したがって、本実験では光路長が短くなり分解能は低下してしまうが、Fig.4のように2mmの間隔で設置された光学ガラス板の間に気泡を2次的に成長させて干渉縞を観測した。なお、隣接気泡については、今回

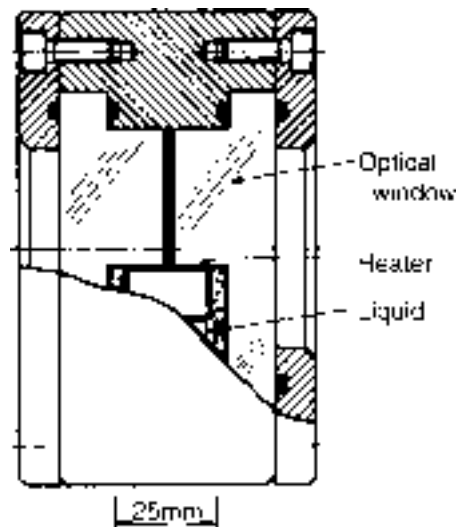


Fig.4 Boiling cell

が予備実験でもあり、また、実験目的が温度場、濃度場の定量化よりも、むしろ隣接気泡どうしの干渉の仕方を見ることにあったため、気泡の3次元的な成長を試みた。

今回の実験には、参照実験として単成分のCFC-113、非共沸混合系として筆者らが以前の微小重力実験に用いた水/エタノール、及びCFC-112/CFC-12を用いた。CFC-112/CFC-12系は

- 両成分の表面張力差が比較的大きい
- 両成分の屈折率差が大きい
- 沸点曲線、露点曲線間の温度差が大きい

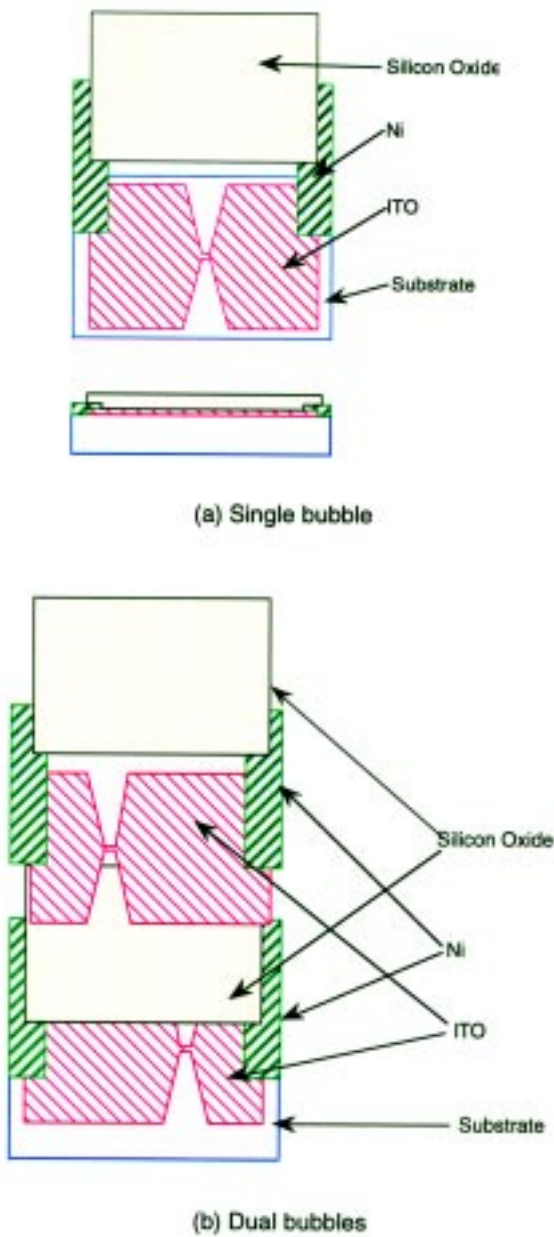


Fig.5 Glass substrate heater

という特徴から選択した。Fig.6 は理想溶液として算出したCFC-112/CFC-12の相状態図である。

干渉縞の解析において、2本のレーザー光の波長における流体の屈折率に関する情報が必要とされるが、CFC-113およびCFC-112/CFC-12の屈折率は、ナトリウムD線を基準とする市販のアップ屈折計に、544 nm及び633 nmの干渉フィルターを併用することによって、濃度を変え、10~50 の温度範囲で実測した。Fig.7はCFC-113の測定結果、Fig.8 (a), (b)はCFC-112/CFC-12の測定結果であり、(a)は544nmの屈折率の値、(b)は633nmの屈折率の値である。測定結果より得られた、干渉縞の解析に必要な各波長における屈折率の温度係数、濃度係数は

CFC-113:

544 nm

$$\frac{\partial n}{\partial T} = -5.8 \times 10^{-4} (K^{-1})$$

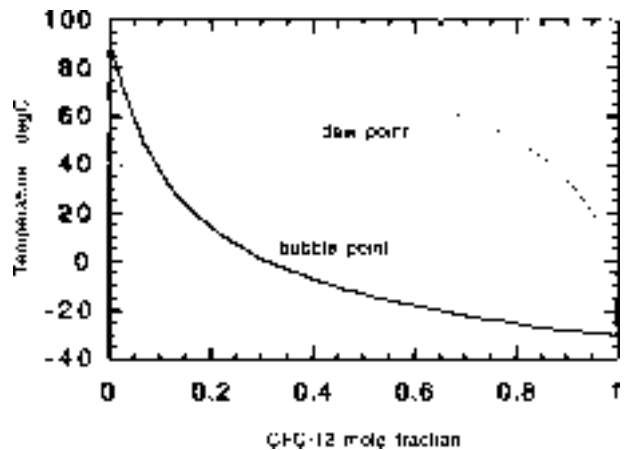


Fig.6 Phase Diagram of CFC-112/CFC-12

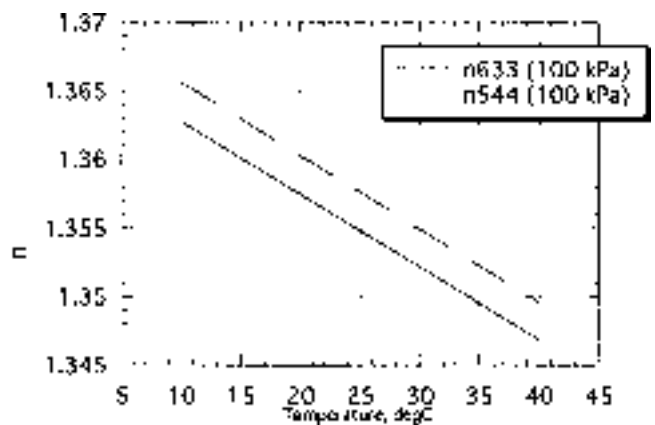


Fig.7 Refractive index of CFC-113

§3 結果および考察

633 nm

$$\frac{\partial n}{\partial T} = -6.0 \times 10^{-4} \text{ (K}^{-1}\text{)}$$

CFC-112/CFC-12:

544 nm

$$\left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_C = -4.6 \times 10^{-4} \text{ (K}^{-1}\text{) at 10 mol\% of CFC-12}$$

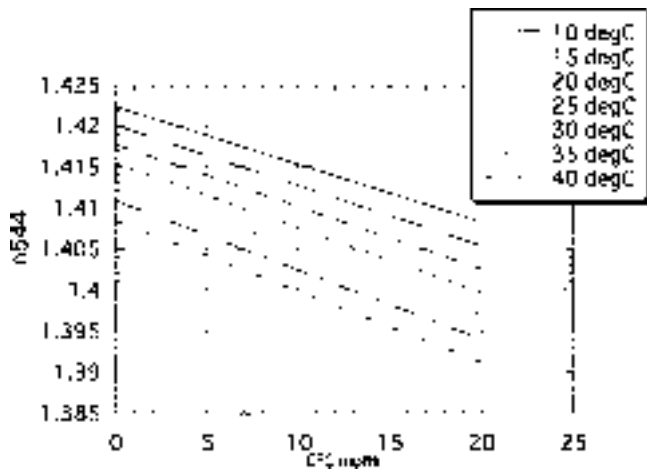
$$\left(\frac{\partial n}{\partial C}\right)_T = -7.9 \times 10^{-4} \text{ (mol\%}^{-1}\text{) at 25}$$

633 nm

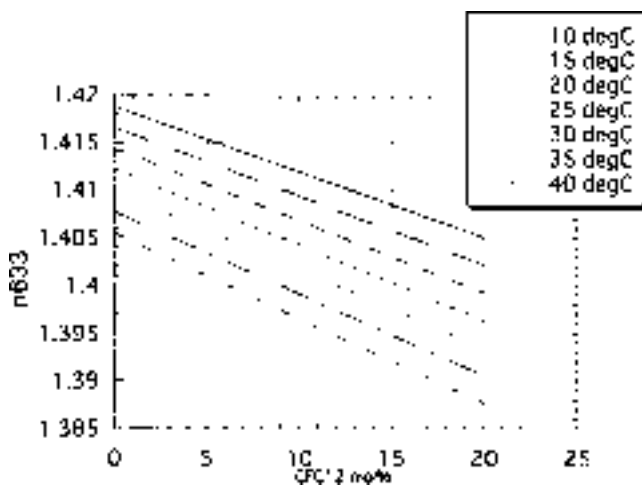
$$\left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_C = -4.3 \times 10^{-4} \text{ (K}^{-1}\text{) at 10 mol\% of CFC-12}$$

$$\left(\frac{\partial n}{\partial C}\right)_T = -7.9 \times 10^{-4} \text{ (mol\%}^{-1}\text{) at 25}$$

となった。



(a) n544



(b) n 633

Fig.8 Refractive index of CFC-112/CFC-12

3.1 CFC-113

サブクール度9.9KのCFC-113単一気泡の干渉画像をPhoto 2 に示す。気泡発生直後から、気泡の底部から頂部に向かう激しいブルームが生じていることがわかる。スポットヒーター近傍での蒸気泡界面温度と、サブクール状態のバルク液に曝された蒸気泡頂部との間の界面温度差に起因した温度差マランゴニ効果による、気泡底部 頂部に向かう対流である。各々の干渉縞の間隔は、温度差0.5Kに相当している。また、CFC-113の表面張力の温度係数 $d\sigma/dT = -0.12 \text{ (mN/m}\cdot\text{K)}$ を用い、サブクール度を温度差として算出したマランゴニ数は 9.6×10^4 となった。気泡発生直後に、気泡頂部に小さなジェットが見られるが、このようなマランゴニ・ジェットはLarkin¹¹⁾, Straubら¹²⁾ も報告している。

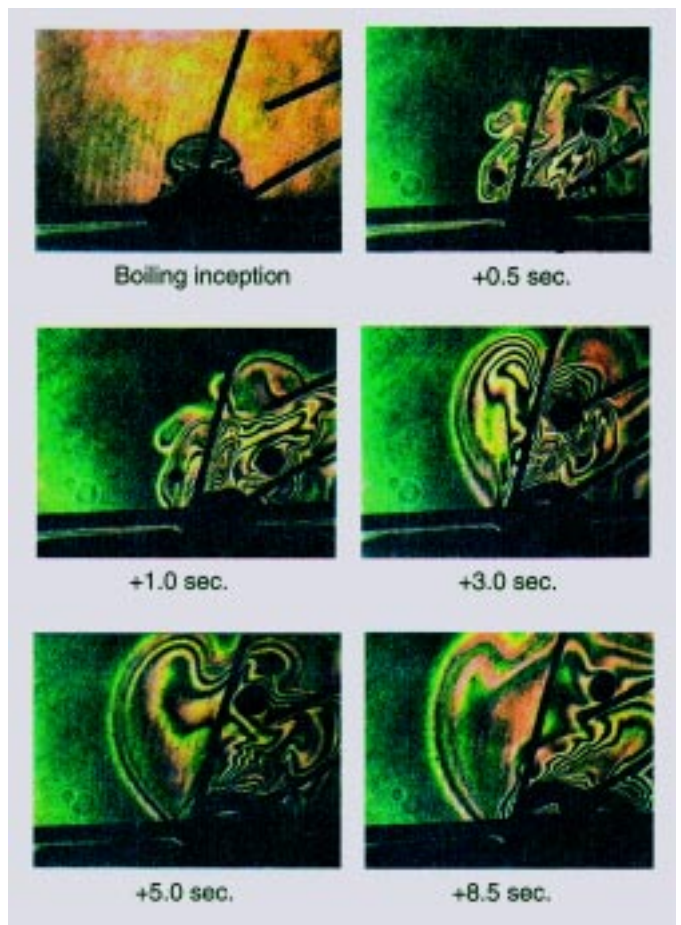


Photo 2 Interferograms for CFC-113 single bubble ($\Delta T_{\text{sub}}=9.9\text{K}$)

サブクール度18Kの、隣接気泡の実験結果をPhoto 3 に示す。なお、前述したように、単一気泡は2次元的に成長させたが、隣接気泡の実験は全て3次元気泡である。サブクールが大きいため、気泡径が約1mm程度と成長せずに、当初期待していた隣接気泡同士の干渉には至っていないが、あたかも通常重力場の沸騰気泡のように、激しい対流がマランゴニ効果によって発生している様子が見られる。サブクール度で算出したマランゴニ数は 3.5×10^4 である。同じ隣接気泡の実験で、サブクールがない飽和状態の沸騰気泡の様子を Photo 4 に示す。干渉計のアライメントがやや不完全であったため、画像には加熱面近傍付近の干渉縞が消失し切れなかったが、気泡界面にはほとんど干渉縞が生じていないことが明確に観察されており、これは気泡の寸法と共にサブクール沸騰との顕著な差である。実験時間内では加熱面上での沸騰気泡同士の合体に至っていないが、画面左側でセル内に浮遊していた蒸気泡（飽和沸騰であるため、クローズドなセル内では加熱以前にもこのような蒸気泡が残存する）との合体が生じている様子が見られる。

3.2 CFC-112/CFC-12

単成分系である CFC-113 の結果に比べて、2成分系の CFC-112/CFC-12 (CFC-12 10mol%) の干渉画像は全く

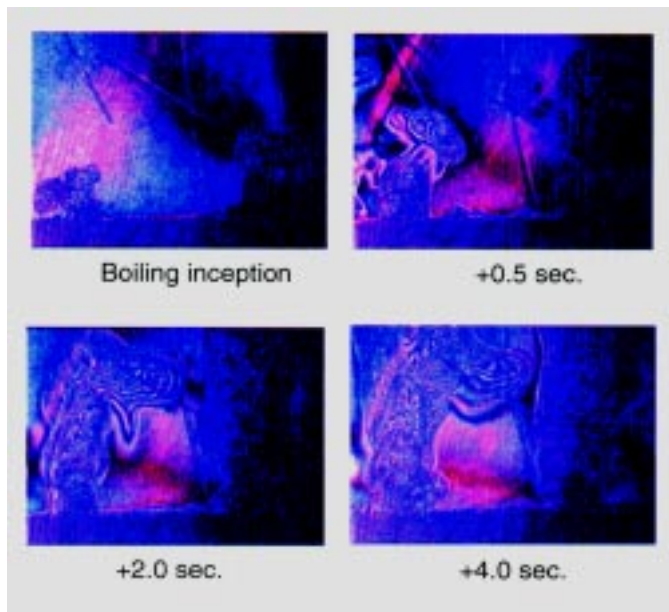


Photo 3 Interferograms for CFC-113 dual bubbles ($\Delta T_{\text{sub}}=18\text{K}$)

異なる振る舞いを示した。Photo 5 はわずかにサブクール状態にある (サブクール度 3 K) CFC-112/CFC-12 の単一気泡発生・成長実験の一連の干渉画像を示したものであるが、まず気泡発生と同時に、単成分系でみられたものと同様な小さなブルームが急速に発達する。しかし、初期のブルームの発達はすぐに抑制され、次には気泡の両側から対称的な1対のブルームが形成され、これが次第に成長していく。さらに時間の経過と共にこの左右1対のブルームの成長が抑制され、気泡頂部及び底部から新たなブルームが発達している。

これら微小重力実験で得られた干渉縞を、画像処理装置によって、まず2波長干渉計の光源の波長に対応するR成分、およびG成分の別々の干渉画像に変換し、さらに輝度調整、画像強調等の処理を経て、鮮明な干渉画像を得、これをもとに先に測定した屈折率データを用いて、Eq.(1)により干渉縞に相当する温度場、濃度場を求めた。

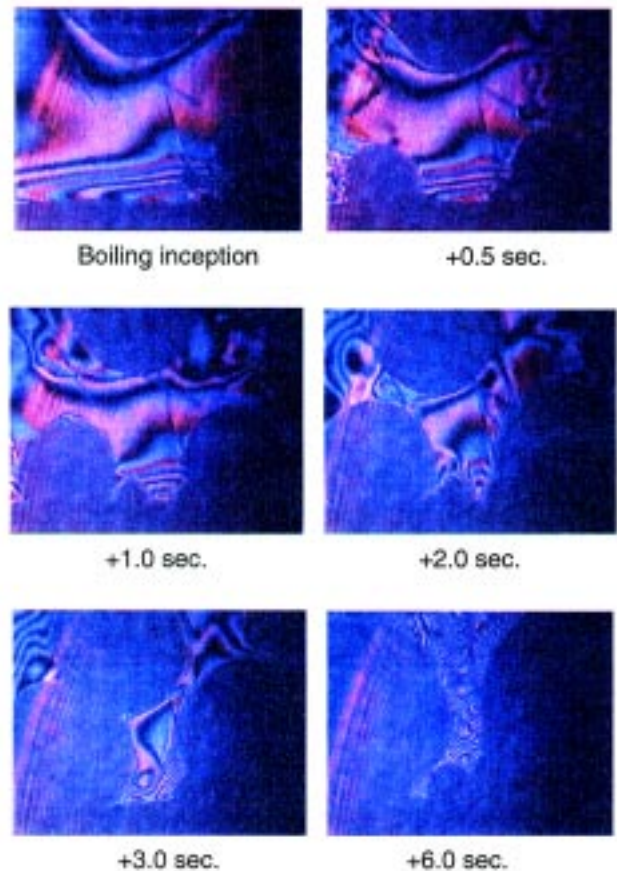


Photo 4 Interferograms for CFC-113 dual bubbles (Saturation)

$$\Delta n = (\partial n / \partial C)_T \Delta C + (\partial n / \partial T)_C \Delta T \quad (1)$$

ここで n は屈折率, C は CFC-12 の濃度 (mol%), T は温度 (K) である。Eq.(1)中の係数は, 屈折率の測定結果より, 633nmの波長に対しては

$$(\partial n / \partial C)_T = -0.00079 \text{ mol}\%^{-1} \text{ at } 25$$

$$(\partial n / \partial T)_C = -0.00043 \text{ K}^{-1} \text{ at } 10 \text{ mol}\% \text{ of CFC-12}$$

また, 544nmの波長に対しては

$$(\partial n / \partial C)_T = -0.00079 \text{ mol}\%^{-1} \text{ at } 25$$

$$(\partial n / \partial T)_C = -0.00046 \text{ K}^{-1} \text{ at } 10 \text{ mol}\% \text{ of CFC-12}$$

である。

これらの数値を用いて干渉縞を解析し, フリンジに相当する温度, 濃度を算出するが, Eq.(1)中の両波長の係数の差は非常に小さいため, 読み取り誤差が著しい。そのため, 今回の解析過程では, まず沸騰セル内に配置した熱電対の測定値を用いて, フリンジに相当する温度を規定し, 次に得られた温度情報を用いて濃度を算出する, という手段を用いた。ま

た, 気泡界面近傍は重要な情報を含んでいるが, フリンジが密に形成されており誤差が大きくなってしまい, かつ, 気泡の2次元化によるメニスカスの影響の発生の可能性があるため, 今回の解析では除外している。

算出した温度分布, 濃度分布の時間変化を Fig.9 および Fig.10 に示すが, それぞれ, バルク液の濃度, 温度からの CFC-12 濃度の増加量, 温度の上昇分を模式的に示している。解析結果より, 気泡発生直後の小ブルームは蒸気の主成分である CFC-12 が, 気泡内からバルク液中に凝縮して滲出したものであることがわかる。CFC-112/CFC-12 系は相状態図における沸点曲線と露点曲線の間隔が非常に広いのが特長で

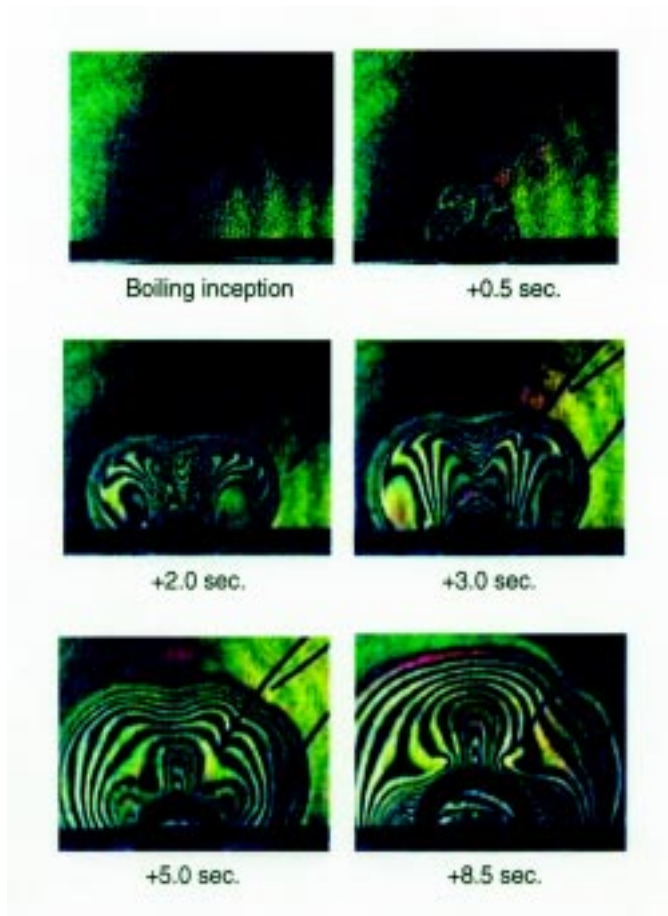


Photo 5 Interferograms for CFC-112/CFC-12 single bubble ($\Delta T_{\text{sub}}=3\text{K}$)

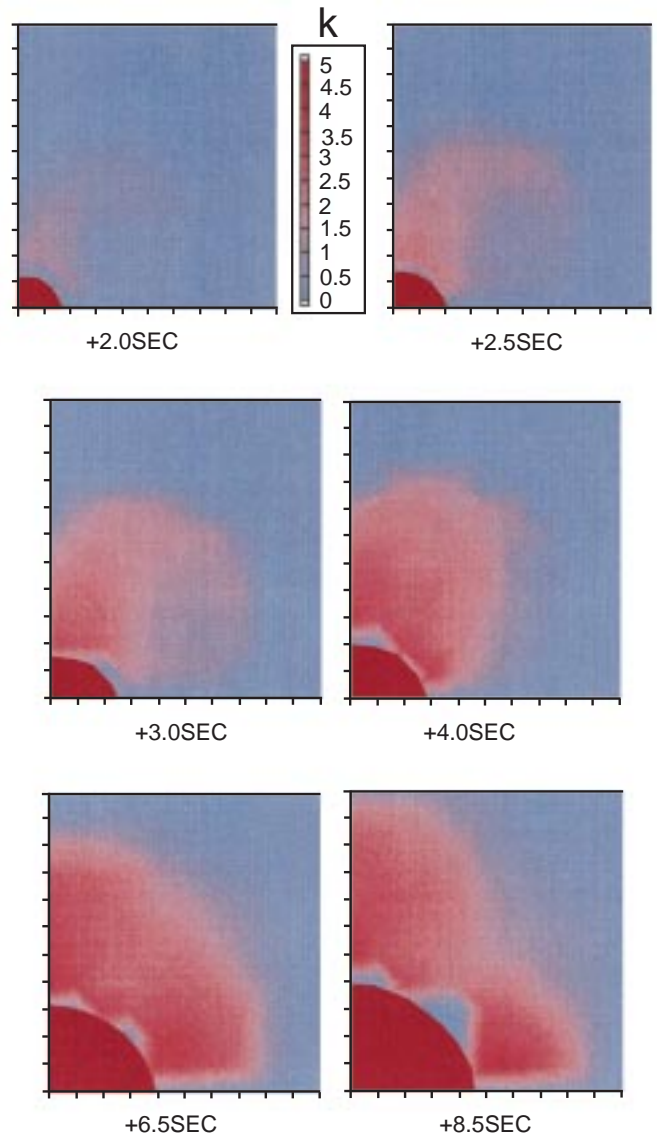


Fig.9 Temperature profile for CFC-112/CFC-12 single bubble ($\Delta T_{\text{sub}}=3\text{K}$)

(Fig. 6 参照) 沸騰開始時の蒸気成分は大半が CFC-12 である。気泡発生直後、気泡界面に急速に形成された温度差によって、マランゴニ効果が誘起され、凝縮した CFC-12 が巻き上げられた結果が、気泡成長初期の 1 対のブルームとなったと考えられる。気泡成長初期 CFC-12 の濃縮は、低沸点成分である CFC-112 の凝縮の進行、拡散、及び濃度差マランゴニ効果により次第に緩和されていく。CFC-12 の蒸発が進行した結果、気泡界面に新たに CFC-12 の濃度の分布が生じ、CFC-12 濃度の高い気泡頂部から CFC-12 濃度の低い気泡附着面に対して、温度差マランゴニ効果による流れとは逆向きの濃度差マランゴニ効果が発生した結果、気泡成長後半に見られた、気泡頂部及び底部

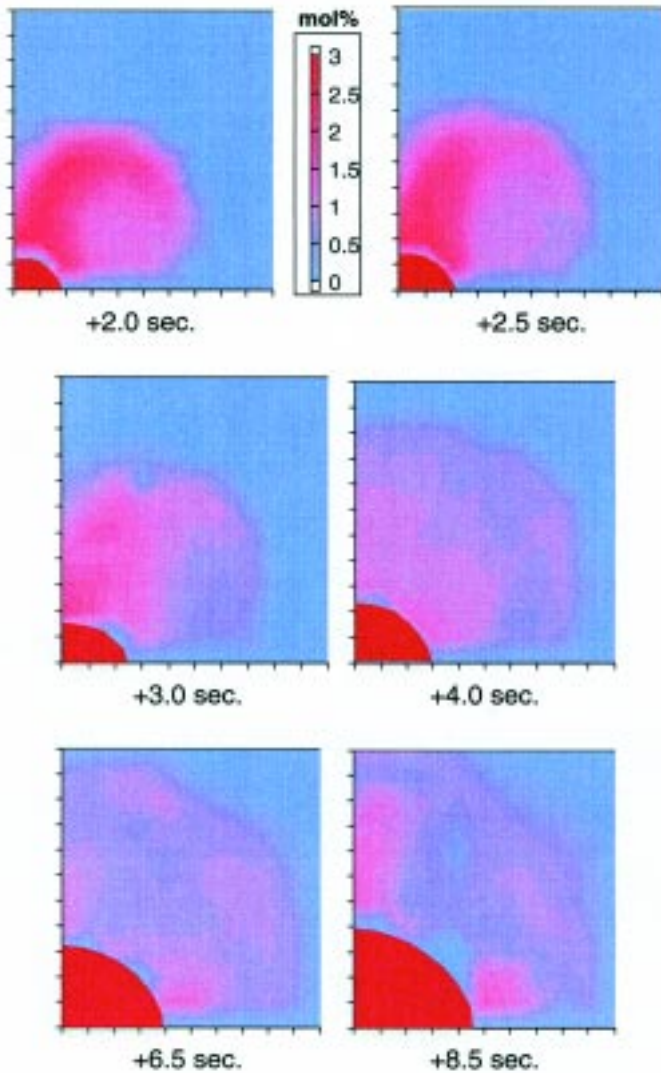


Fig.10 Concentration profile for CFC-112/CFC-12 single bubble ($\Delta T_{\text{sub}}=3\text{K}$)

に発達するブルームが形成されたものと理解される。拡散係数を Wilke-Chang の相関式により $6.5 \times 10^{-6} \text{m}^2 \cdot \text{s}$ と推算し¹³⁾、濃度分布によるマランゴニ数を求めると、最大時で 4.9×10^5 程度と推定される。

従来の多成分液体の沸騰気泡の成長理論では、気泡界面に形成される温度境界層、濃度境界層を熱拡散、物質拡散のみで議論し、それぞれ温度境界層厚さ δ_t 、濃度境界層厚さ δ_m を

$$\delta_t = (\pi \alpha t)^{1/2} \quad (2)$$

$$\delta_m = (\pi D t)^{1/2} \quad (3)$$

としているが、今回の微小重力実験の観察結果は、これらの値よりもオーダーが 1 桁大きく、熱拡散、物質拡散以外のマランゴニ効果による流動メカニズムが強く作用していることを示唆している。

3.3 水/エタノール

水/エタノール系は、エタノールの界面活性効果が顕著であるため、CFC-112 / CFC-12 系に比べて、濃度差マランゴニ効果がより一層顕著になることが予想される。

Photo 6 は、飽和状態の水/エタノール (エタノール 15mol%) を用いた単一気泡の実験で取得した干渉画像である。飽和状態のため、気泡の周囲には干渉

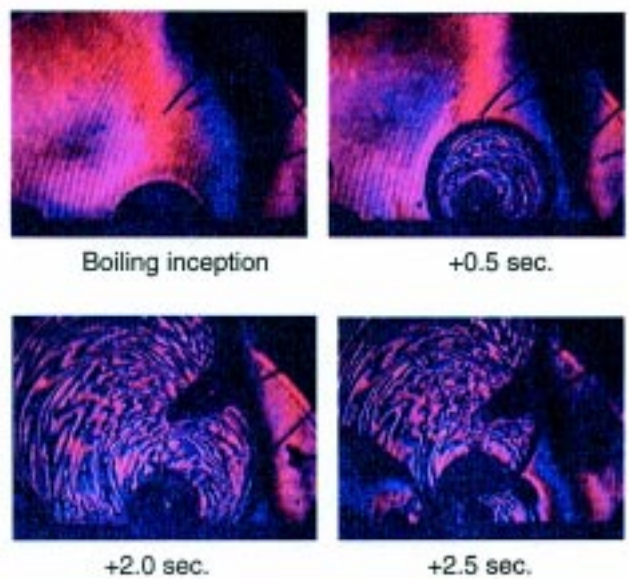


Photo 6 Interferograms for water/ethanol single bubble (Saturation)

縞の形成が見られず、また熱電対による温度計測結果も、10秒間の一連の気泡成長実験中、熱電対が液中、蒸気泡中の存在の如何に依らず、わずかに0.6Kの温度上昇を検知した程度であった。単成分系、CFC-112/CFC-12と比べて顕著な差異は、蒸気泡の成長過程で、必ず気泡底部（気泡/伝熱面付着部）より2次気泡が発生している点である。Photo6では1サイクルしか示していないが、2次気泡の成長により1次気泡が伝熱面より排除され、2次気泡の成長中にさらに次の気泡が2次気泡内に発生、成長する、というサイクルが繰り返す様子が観察された。今回の観察系では、気泡/伝熱面界面を観察することはできなかったが、このような2次気泡の形成は、気泡成長中にも、気泡/伝熱面の付着部に、いわゆるマイクロ液膜ではなく、新たな気泡を発生するに足る量の液膜（あるいは液層）が存在していることを示唆している。これは筆者が以前に報告した、濃度差マランゴニ効果による気泡/伝熱面への液体の供給メカニズム、すなわちFig.2に示す気泡挙動を支持するものである。

§4 おわりに

単成分系のCFC-113、非共沸2成分系のCFC-112/CFC-12（CFC-12 10mol%）および水/エタノール（エタノール 15mol%）を用いて、微小重力環境における単一沸騰気泡、隣接沸騰気泡成長過程を、2波長干渉計により観察した。サブクール状態のCFC-113では、気泡界面に形成された温度差に起因したマランゴニ効果が顕著となる一方、飽和沸騰ではこの効果がほとんど消失している様子が理解された。

わずかにサブクール状態にあるCFC-112/CFC-12非共沸系では、単成分系と全く異なった挙動を示すことがわかった。すなわち、気泡発生直後は、気泡界面に形成された温度差に起因したマランゴニ効果が主体となるが、気泡の成長に伴い、蒸気の主成分であるCFC-12が気泡界面に濃縮されることにより、気泡界面には濃度分布が形成されることがわかった。さらに気泡周囲に形成された濃度分布は、新たに濃度差に起因したマランゴニ効果を誘起することが示された。気泡周囲に形成された温度境界層、濃度境界層、共に従来の熱拡散、物質拡散過程のみで予測

される値よりも1オーダー大きく、これは拡散過程以外のメカニズムである温度差、濃度差によるマランゴニ効果が顕著であることを示していると理解される。なお、非共沸系混合液体の沸騰気泡の周囲の温度場、濃度場の形成過程を明らかにしたのは、本研究が初めてである。

飽和状態の水/エタノール非共沸系の実験では、気泡界面に顕著な干渉縞が形成されなかったため、温度場、濃度場に関する情報を得ることはできなかったが、一次気泡発生、成長、次に一次気泡の気泡/伝熱面付着部からの2次気泡の発生、さらに2次気泡の成長に伴う一次気泡の排除と新たな気泡の発生、という一連の気泡サイクルが観察された。この結果は筆者が以前に報告した濃度差マランゴニ効果による気泡/伝熱面付着部への液体の供給メカニズムを支持するものであった。

謝辞

本研究における地下無重力実験センターを利用した一連の微小重力実験は、（財）宇宙環境利用推進センターが実施した調査研究等による。

参考文献

- 1) R. Siegel & C. Usiskin : Trans. ASME J. Heat Transfer, Vol.81, (1959) p. 230.
- 2) T.H. Cochran, J.C. Aydelott & C.M. Spuckler : NASA TN D-4301 (1968).
- 3) Y. Abe, T. Oka, Y.H. Mori & A. Nagashima : Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 37 No. 16, (1994) p. 2405.
- 4) T. Mori, K. Goto, R. Ohashi & A. Sawaoka : Microgravity Sci. Tech., Vol. 4, (1993) p. 238.
- 5) S. Ahmed & V.P. Carey : Trans. ASME J. Heat Transfer, Vol. 121, (1999) p. 80.
- 6) S. Ahmed, V.P. Carey & B. Motil : NASA-CP-3338, (1996) p. 201.
- 7) L.H. Choi, X.F. Peng, B.X. Wang & J.M. Ochterbeck : Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 41 (1998) p. 3529.
- 8) H. Kruse : Int. J. Refrigeration, Vol. 43, (1981) p.119.
- 9) A.I. Karina : ASME 83-JPGC-GT-3, (1983) p.1.
- 10) J. Arshad & J.R. Thome : Proc. 1st ASME/JSME Thermal Eng.

Conf., Vol. 1, (1983) P.191.

- 11) B.K. Larkin : AIChE J., Vol. 16, (1970) p. 101.
- 12) J. Straub, J. Winter, G. Picker & M. Zell : National Heat Transfer Conference, Portland (1995).
- 13) R.C. Reid, J.M. Prausnitz & T.K. Sherwood : The Properties of Gases and Liquids 3rd Edition, McGraw-Hill (1977).

(2000.2.24受付)