

滴状凝縮のメカニズムについてわれわれは何を知らないか

What Don't We Know about the Mechanism of Dropwise Condensation?

棚 沢 一 郎*

Ichiro TANASAWA

滴状凝縮過程に関する最初の研究論文が発表されてから四十数年が経過した。以来、この伝熱過程で実現されるきわめて高い熱伝達率がどのようなメカニズムに起因するものなのか、そしてそれを実用機器に応用するにはどうしたらよいか、これらの問題の解決を目指した研究が各国で続けられている。しかし、発表される論文の数の増加と解決への歩みの早さとは必ずしも一致していない。一体、何が不足しているのだろうか。本稿は、滴状凝縮のメカニズムに関する研究でどのような点が未知のまま残されているのかについて、筆者の考えをまとめたものである。

1. はじめに

1930年、ドイツの Ernst Schmidt ら¹⁾は往復運動式蒸気機関のシリンダ内壁などで起る凝縮過程においては、古典的な Nusselt の膜状凝縮理論で予測される熱伝達率よりもずっと高い熱伝達率が実現されること、そしてそれはシリンダ内壁に付着している油脂膜のために、凝縮液が「滴状」になるためであることに気づいた。Schmidt らの測定によれば、この「滴状凝縮」の熱伝達率は、おおよそ $30,000 \sim 40,000 \text{ kcal/m}^2 \cdot \text{h} \cdot \text{deg}$ 、すなわちほぼ同一条件下での膜状凝縮と比較して 3~8 倍の値であった。しかし、この滴状凝縮過程を実際の伝熱機器に応用するという点について、これらの研究者達は消極的であった。実際の運転条件の下で滴状凝縮を長時間にわたって保持することが困難であると考えたからである。

1960年ごろから、滴状凝縮の研究が再び盛んに行なわれるようになり始めた。より精密で信頼度の高い測定が行なわれた結果、滴状凝縮時の熱伝達率は、Schmidt らが得たものよりもずっと大きな値、すなわち膜状凝縮の 20~30 倍となることがしだいに明らかになってきた。そしてこのことが、滴状凝縮現象のメカニズムを明らかにしようという基礎伝熱学的研究と、この現象を実用機器に適用しようという応用研究との両方をいっそう促進させる原因となった。

おそらく、現在までに発表されている滴状凝縮関係の論文の数は数百篇にのぼっているであろう。そして一篇の論文が発表されるごとに、滴状凝縮現象に関する一つの新たな知見がわれわれのものになってきたに相違ない。しかし、滴状凝縮の研究者の一人である筆者にとって、滴状凝縮現象の解明がその終局に到達しつつあるという実感を抱ける日はまだまだ遠い将来のことのように思われる。むしろ現段階においては、これまでの研究成果を整理し、個々に十分な吟味を加え、果して何が正しい事実として解明され、何が今後の問題として残されているかを詳細に検討することがもっとも重要な仕事のよ

うに感じられる。以下においては、滴状凝縮現象を構成している基本的な過程のいくつかについて、現段階のわれわれの知識にどのような欠落があるかを考えてみることにしたい。

2. 滴状凝縮のサイクル

滴状凝縮現象は、いくつかのランダムな過程の時間的・空間的な組合せによって構成されているが、それを図1のような4つの基本過程からなるサイクルで表わすと以後の理解が容易になる。

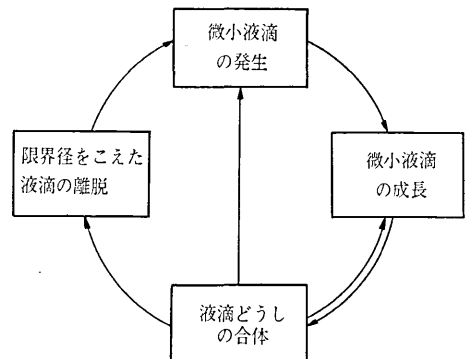


図1 滴状凝縮のサイクル

まず、凝縮面上の裸の部分に微小な液滴（初期液滴）がきわめて数多く発生する。引続く凝縮によりこれらの液滴は急速に成長（凝縮成長）するが、後にも述べるように液滴どうしの距離は最初から大変小さいので、ただちに隣接するものとの接触が生じ、表面張力による吸引力が働いて合体し新たな液滴となる（合体成長）。合体によって液滴が移動し、凝縮面上には裸の部分が生ずるが、そこには初期液滴が発生する。これらの液滴も、引続く凝縮と合体によって成長するが、多くのものはある程度の大きさになったところで、付近にある大きい液滴に吸収されて消滅する。このように、液滴の成長は凝縮と合体のひんばんな繰り返しの結果であり、実際の滴状凝縮過程の観測においてこの二者を分離することは不可能に近い。ともあれ、成長した液滴がある大きさ（離脱限界径、落下限界径、あるいは単に離脱径、落下径と呼ぶ）

* 東京大学生産技術研究所 第2部

に達すると、外力と付着力とのバランスが破れて凝縮面から離れて行く。このとき、面が水平下向きで、しかも蒸気流などによる力が働かない場合を除いては、離脱液滴は面をすべり落ちながらその通路路上にある他の液滴をすべて吸収して行ってしまう(液滴の掃除作用)。そして掃除によって新たに生じた裸の面には、また微小滴の発生がみられる。かくして一つのサイクルが完結する。

以上に述べた滴状凝縮のサイクルを構成する一つ一つの基本過程とそれらの相互のつながりを知ることが、滴状凝縮のメカニズムを解明することにほかならない。このことを念頭におきながら、それではわれわれはそれらの基本過程について、またその相互関係について一体何を知らないのかを検討してみよう。

3. 初期液滴の発生について

3.1 歴史的経過

滴状凝縮が生じている凝縮面上での初期液滴の発生について、1936年に Jakob²⁾ は薄膜分裂説なるものを提唱した。これは、面上へ蒸気が凝縮する際、凝縮液は最初薄膜を形成し、それがしだいに厚くなって行ってある厚さ(限界膜厚)に達したところで何らかの原因による不安定が生じ、分裂して小さな液滴になるという考え方であった。それから25年後、Welch-Westwater³⁾ は、高速度顕微鏡写真による滴状凝縮面の観測を行ない、液滴の合体によって生じた凝縮面上の裸の部分の光沢の変化に着目し、上述の限界膜厚の大きさが $0.5 \sim 1 \mu$ であるという結果を得た。これに続いて Ruckenstein-Metiu⁴⁾ は薄膜-液滴遷移に関する熱力学的解析を行ない、また Sugawara-Katsuta⁵⁾ は干渉顕微鏡を用いて凝縮現象を観測し、それぞれ Welch らが求めたのと同程度の限界膜厚を得ている。

これに対して、1964年、Umur⁶⁾ あるいは Umur-Griffith⁷⁾ は、凝縮過程に関する熱力学的解析と、偏光の性質を利用した巧妙な測定とによって次のような結論に到達している。すなわち、滴状凝縮が生じうような面においては、

- (i) 液滴の間の面には、単分子層以上の厚みの液膜は存在しない。
- (ii) 液滴の間の面には正味の凝縮は起らない。したがって冷却側へのエネルギー伝達は、ほとんどすべて液滴を通して行なわれる。
- (iii) 液滴の発生点としてもっとも可能性の大きいのは、面上にある濡れたピット(小孔)や溝などである。

これらの結論は、それまでの薄膜分裂説をまったく否定し、液滴の発生は核生成現象(nucleation phenomenon)であることを主張するものである。そして、以後こちらの考え方が広く受け入れられることになった。

以上が初期液滴の発生に関するこれまでの研究の推移

の概略である。筆者も、もちろん初期液滴の発生が核生成現象であるという考えに同意するものである。しかし筆者は、前述の Umur-Griffith による推論の過程とその結論に全面的に賛成するわけにはいかない。彼らの理論と実験にはいくつかの点で疑問があると思う。初期液滴の発生について、これからわれわれが確かめなければならない本質的に重要な問題がいくつか残っている。次にそれらについて述べることにしよう。

3.2 凝縮の条件と成長の限界

Umur らが前述の三つの結論を導くに到った根拠は次のようなものであった。まず第一に、熱力学的解析の結果として、滴状凝縮が生ずるような面(すなわち、濡れない面)の上で、正味の凝縮が生ずるためには、凝縮面の過冷度 ΔT に応じた限界厚さ δ (これは前出の Jakob の限界膜厚とはまったく異なるものである) 以上の吸着分子層が存在しなければならない。表1は、彼らの計算による ΔT と δ との関係を示したものである。凝縮面上のどこかに何らかの原因により、この δ よりも大きい凝縮分子層ができた場合に限り引き続いて正味の凝縮が進行するが、そうでない場合には、いったんできた吸着分子層はただちに蒸発して単分子層以下しか残らないことになる。第二の根拠は、偏光を用いた光学的測定の結果である。彼らは、金属面表面に平面偏光を当てると、その反射光は楕円偏光になること、そして表面に他の物質の透明な薄膜が存在すると、その厚さに応じて反射してくる楕円偏光の楕円率などが変化することを用いて、滴状凝縮時の薄膜の存在を調べようとした。その結果、液滴が転がり落ちた跡の面にも、液滴と液滴の間にも、単分子層以上の液膜は存在しないことを見出した。

表1 凝縮面過冷度 (ΔT) と限界膜厚 (δ) との関係⁷⁾ (1気圧の水蒸気の場合)

ΔT (deg F)	δ (分子層)
0.1	14
1	6
10	3

さて、この Umur らの仕事は大変興味深いものであるが、その推論の過程にはどうも納得できかねる点がある。まず第一に、彼らが示した限界吸着層厚さ δ が正しいと仮定しよう。表1によれば、1気圧の飽和水蒸気の凝縮において $\Delta T = 10 \text{ deg F}$ ($\approx 5.6 \text{ deg C}$) の場合 $\delta = 3$ 分子層である。凝縮面の表面状態が滴状凝縮の起こる条件をみたしているときには、たまたま3分子層以上の水蒸気の吸着があった場所でのみ正味の凝縮が起こり、他の場所には単分子層をこえる吸着層はできない。しかし、この条件はそれほど実現しにくいものであろうか? 水蒸気分子のクラスター(いくつかの分子の集合体)の存在を考えると、それが凝縮面に衝突し捕獲される確率はかなり高いと考えられるし、また後にも述べるように、

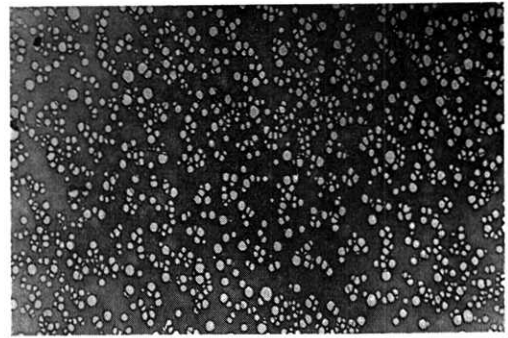
凝縮面表面を完全無欠の撥水性表面と考えることも実際上無理があるように思われる。したがって、現実の滴状凝縮の条件下では、Umurらの限界膜厚はいたるところで満たされると考えるのが妥当なように思われる。そうすると、この真偽は別として、面上にJakobやWelchらが考えたような薄膜の拡がる可能性は否定できないことになる。

さらに、Umurらの限界吸着層厚さと、いわゆる液滴の成長限界径との関連も問題となる。すなわち、凝縮面上にたまたま発生した初期液滴が成長しうするためには、その大きさが熱力学的に定まるある値(これを成長限界径と呼ぶ)を越えることが必要である。いま成長限界半径を r^* と書き、よく知られた Kelvin-Helmholtz の関係式からこれを計算すると次式が求まる。

$$r^* = \frac{2\sigma v_l T_w}{J\lambda\Delta T} \quad (1)$$

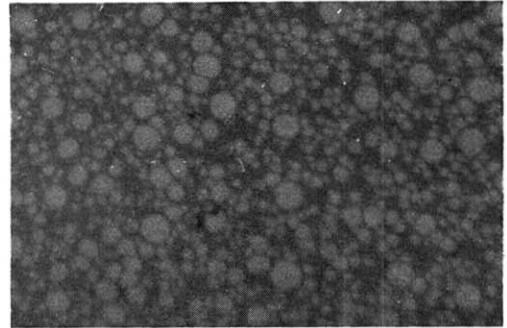
ただし、 v_l は凝縮液の比体積、 σ は表面張力、 T_w は凝縮面の表面温度、 J は熱の仕事当量、 λ は凝縮潜熱、 ΔT は蒸気の飽和温度と表面温度との差である。(なお、 r^* は液滴の曲率半径であって、厳密にはいわゆる液滴半径——面上に置かれた液滴の底部の半径——とは一致しない。) 大気圧の水蒸気が過冷度 $\Delta T=1$ deg Cの凝縮面上に凝縮する場合について、上の式(1)に物性値を入れて計算してみると $r^* \approx 200 \text{ \AA}$ となる。すなわち、 $\Delta T=1$ deg Cの場合、曲率半径が約 200 \AA 以下の液滴は、たとい発生したとしてもすぐに蒸発してしまう。このような成長限界半径に対して、前述の Umur らの限界厚さはどのような関係をもつ量なのであろうか? 液滴の発生・成長に二つの閾値があるというのであろうか? 筆者には、Umur らの限界厚さは実際上ほとんど意味をもたず、 r^* だけが重要なもののように思われる。

次に、Umur らの実験について考えてみる。確かに彼らの実験はきわめて巧妙なものであったが、少なくとも二つの疑問点がある。第一は、照射に用いた光のスポットの大きさが約 $2 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ (楕円形)であったという点である。第二は、平面状の薄膜だけでなく、微細な液滴あるいは液体のパッチが共存するような面に入射光が当たった場合には、光が散乱されて正しい厚さ測定ができないのではないかということである。後でも述べるように、滴状凝縮過程における初期液滴の発生時の密度はきわめて高いから、上のような広い領域についての測定で、液滴発生時の現象について細かい議論をすることがそもそも無理なことのように思われる。また、液滴と液滴との間を観測するといっても、目に見える程度の大きさの液滴の間には、目に見えない微小な液滴が無数に存在するのであって、そこを正しく観測するにはごくごく微小な光のスポットを用いなければならぬ。Umur らは、液滴が離脱した跡や、液滴どうしに吸着層は



(a) 5600倍, 露点15°C, 露出7sec.

1 μ



(b) 92,000倍, 露点10°C, 露出3sec.

0.1 μ

図2 ガラス面上での液滴発生時の電子顕微鏡写真⁹⁾

存在しなかったと述べているが、このような大まかな観測の結果にどれ程の信頼が置けるか疑わしい気がする。

結局、これまで述べた薄膜の存在や成長限界径などの問題についてもっと決定的な結論を導くためには、今後より精密な観測が必要であろう。

筆者らは、ガラス板の表面上に発生する初期液滴をプラスチック膜によるレプリカにとり、それを電子顕微鏡によって観測するといういわば間接法による測定を行なった⁹⁾。図2(b)はその時に撮った写真の一つであり、プラスチック膜に最小直径約 100 \AA の孔のあいているのが見られる。ただし、この方法では液滴発生時の過渡的な現象を時間的に追跡することが難しく、また正確な定量的測定も困難であるので、現在は光学顕微鏡を用いた直接観測を試みている。

3.3 液滴発生点の問題

現在では滴状凝縮における初期液滴発生は核生成現象であると考えられているが、この場合凝縮面上のどのような場所が核生成点となるのであろうか。McCormick-Westwater⁹⁾は、凝縮面表面に人工的なくぼみや溝や突出部、付着物などをつくり、それらからの液滴発生のように観測した。その結果、くぼみ(cavity)やある種の付着粒子が発生点になるという結論を得た。現在まで、滴状凝縮における核発生点について詳細に観察した結果の報告は他に見当たらないが、おおかたの研究者も面上

の小さくぼみが滴発生点になっているものと漠然と想像しているのではないかと思う。

筆者も上の観察結果を否定するものではない。しかし面上のくぼみが発生点になるという考え方は、どうも核沸騰現象における気泡発生点についての研究結果に大きく影響され過ぎているように思われる。核沸騰の場合と比較すると、滴状凝縮における成長限界径はきわめて小さいから（すなわち、凝縮の場合の限界半径は式(1)で与えられるが、沸騰の場合の限界気泡半径は、式(1)の v を蒸気の比体積で置き換えたものになり、蒸気と凝縮液の比体積の比だけ大きさが異なることになる）、顕微鏡で観測しうる程度の大きさのくぼみなどがそのまま液滴発生点になるとは考えられない。前に述べた筆者らの観測⁹⁾においては、エメリー紙で磨いた金属表面などよりもはるかに滑らかなガラス表面からでも、 10^{10} 個/cm² をこえる液滴が発生する事実がみられたが、このことから考えると、滴状凝縮における核生成点は、面上の幾何学的凹凸ではなく、表面エネルギー分布の不均一、すなわち促進剤塗布などにおいてできる撥水性の不完全な部分（ぬれやすい部分）の分布と対応しているのではないかと思われる。しかし、このことの実証は今後の研究にまたなければならぬ。

4. 液滴の成長について

滴状凝縮における液滴の成長速度の計算は Fatica-Katz¹⁰⁾ によるものが最初と思われる。彼らの計算では、液滴の表面温度および凝縮面表面（液滴底面）温度をそれぞれ一様かつ一定と仮定し、液滴の表面から底面へ定常熱伝導によって流れる熱量を求め、これと液滴表面での凝縮量とを等置することによって成長速度を求めている。そして、もし液滴が切り欠き球の形をしているなら、その半径の2乗の増加率が一定になるという結果を得ている。容易にわかるように、この Fatica らの解析においては、液滴と凝縮面との接触部分で温度のジャンプが生ずることになり、この点不自然である。

Umur-Griffith⁷⁾ は、この不合理を解消するために液滴の表面温度を一定かつ一様とはせず、表面での等価的な熱伝達率を与えることにしている。また Hurst¹¹⁾ は、凝縮面の側の熱伝導をも考慮に入れた2体問題としての解を数値計算法により求めている。

本稿のはじめにも述べたように、液滴の成長速度について知ることには滴状凝縮のメカニズムの解明にきわめて重要なことの一つである。しかし筆者は、上のような熱伝導モデルを中心にした成長速度の解析は、実際の液滴の成長速度を知る上である程度までしか役に立たないのではないかと考えている。その理由は、凝縮面表面温度の局部的な不規則変動にある。

上に挙げた解析のうち、Fatica らのものと Umur らのものは凝縮面温度が時間的に一定であり、かつ場所的

に一樣であるという仮定の上に立っている。しかし、考えてみればわかるように、通常の凝縮面は有限の熱伝達率をもった材料からできており、また冷却側の熱伝達率も有限である。しかも両者による熱抵抗は蒸気側のそれにくらべてかなりの程度大きいのがふつうであるから、凝縮面表面の温度は液滴の成長とともに大きく変化するものと考えなければならない。（Hurst の計算では一応この点を考慮に入れている。）

しかし、それ以上に問題なのは合体・吸収という不規則過程の影響である。前述のように、滴状凝縮時の液滴の分布はきわめて密であり、発生の当初においてすら、液滴間の距離は平均的にみて 1μ 以下と考えられるから、ごく短い時間のうちに無数の合体吸収が行なわれ、そのために液滴の成長は凝縮のみによる成長とはまったく様相の異なったものになっているはずである。さらに、合体と合体との間の凝縮成長の過程にしても、合体による液滴の位置の移動のために、その底面の温度分布を知ることはおよそ不可能である。また、液滴はいつどのような状態で他の液滴に掃除されるかわからず、掃除された後の表面温度分布についても知るすべはない。こうしてみると、滴状凝縮時の液滴の成長については、今後従来の解析を離れてまったく新しい視点からの取扱いが必要と考えられる。

5. 液滴の離脱

5.1 接触角のヒステリシスと離脱限界径

簡単に考えれば、液滴の離脱限界径は、表面張力による付着力と外力（重力、蒸気せん断力など）とのつり合いで定まる量である。

Macdougall-Ockrent¹²⁾、Fatica-Katz¹⁰⁾ および Sugawara-Michiyoshi¹³⁾ は、傾斜した固体表面に付着している液滴について重力の作用のもとでの離脱径の解析を行っている。図3は彼らが行なった解析のモデルであるが、図中 θ_a は前進接触角、 θ_r は後退接触角と呼ばれるものである。ここで注意しておきたいことは、この2種類の接触角が、傾斜面に垂直な対称断面（図3の A-A）内での角度だという点である。実際には、液滴と傾斜面との接触点にはそれぞれ異なった接触角が対応しているはずである。ところが、上に挙げた研究者達は、いずれも対称断面内での力のつり合いだけから離脱限界径を求めようとしている。これが近似としてどの程度に正しいものかは詳しい検討が必要であろう。

ところで、傾斜平面上で現われる液滴の二つの接触角の違いは、「接触角のヒステリシス」と呼ばれることがある。上の解析においてもこの事実を用いている。しかしこの「ヒステリシス」が生ずる原因そのものがよくわかっていないのである。

一般に、液にぬれにくい固体面上では、液は広がることができず固体表面とある接触角 θ をもつことが知られ

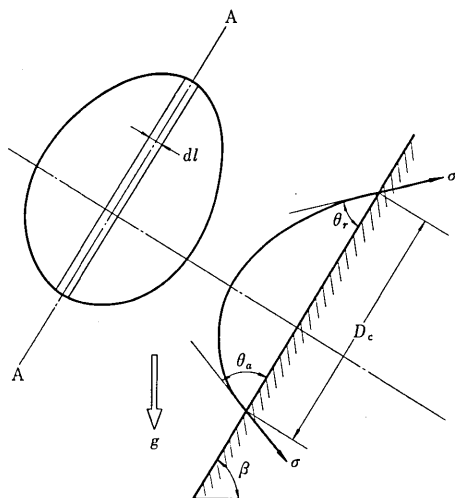


図 3 離脱径解析のモデル

ている。このとき3つの界面、すなわち気-液(vl)、気-固(vs)、液-固(ls)、においてはそれぞれ界面張力が作用するが、それらの張力と θ の間にはよく知られた Young の関係式

$$\cos \theta = \frac{\sigma_{vs} - \sigma_{ls}}{\sigma_{vl}} \quad (2)$$

が成立する。一方、このような場合の液滴の表面の形状は、ある閉じた系の中で上記の3つの界面のエネルギーと重力のポテンシャル・エネルギーの総和が最小になるような形に落ちついているものと考えられる。したがって、原理的には液滴の表面の形状を未知関数で表わし、液滴の体積が一定という拘束条件の下で総和を最小にするように未知関数を定めるといふ変分問題を解くことに帰着する。この際、境界条件が必要となるが、この問題においては、拘束条件が液滴の体積一定という形で与えられており、液滴と固体表面との接触点は自由に動くため、いわゆる自然境界条件が現われる³⁰⁾³¹⁾。そしてこの自然境界条件を定式化し整理すると、接触点のいたるところで、前出の式(2)が成立するという結果が導かれる。すなわち、傾斜面上の液滴が重力の作用下にある場合でも、液滴と固体表面との接触角はいたるところ一定であり、「ヒステリシス」は生じないことになる。もしこのようなことが実際に起きれば、傾斜面上の液滴は静止していることができなくなってしまうはずであるが、現実にはそのようなことはなく、「ヒステリシス」が生じて液滴は傾斜面上に静止している。したがって、液滴には界面張力と重力以外の力が作用していると考えなければならない。それがどのようなものであるかについては古くからいろいろな説が出されているが、いまだに決定的なものはないというのが現状である。

5.2 静的な離脱径と動的な離脱径

以上のように、液滴の離脱径を理論的に求めるには、

「ヒステリシス」の大きさが理論的に予測できなければならぬが、これは現段階では不可能である。そこで前述の研究者達は、実験的に得られている2つの接触角 θ_a 、 θ_r を用いて力のつり合い条件を求めている。このとき彼らは、液滴の重心を通る垂直面内での力のつりあいだけを考えるというかなり大胆な近似を行なっているが、それでも実測の結果とは割によく一致しているようである。Sugawara-Michiyoshi¹³⁾によれば、真ちゅう平板にオレイン酸を吸着させた面上で測定した場合、20°Cの水滴の離脱径 D_c は、面の傾斜にはほとんど無関係に約4.5 mmである。ただし、ここでの D_c は水滴の付着面内での最大傾斜線方向の長さである。

一方、高速度写真撮影によって、実際の滴状凝縮における離脱径を測定してみると、上とはまったく異なった結果が得られる。図4は、筆者ら¹⁴⁾による、銅にオレイ

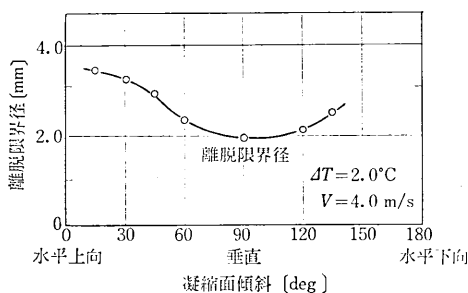


図 4 凝縮面傾斜と離脱限界径の関係¹⁴⁾

ン酸を吸着させた凝縮面上への1気圧の水蒸気の滴状凝縮についての測定結果であるが、離脱径は傾斜が90°(垂直)の場合にもっとも小さく、傾斜が水平に近づくにつれて大きくなっているのがわかる。ここで傾斜が90°の場合について比較してみると、筆者らの凝縮実験においては、離脱径は約2 mmであって前の静止実験の場合の半分以下となっている。この違いは何に起因するものであろうか。細かい実験条件の違いなどはいずれも無視できるものと考えられるから、上の二つの離脱径の差異の一番の原因は、静的なものとの動的なものとの違いであると考えなければならぬ。すなわち、実際の滴状凝縮においては、個々の液滴はその成長の過程で多数回の吸収合体を繰り返して、たえず少しずつ位置を変えている。この微小移動のために、静的な場合とくらべて離脱がかなり小さい直径で始まるのではないかとというのが筆者の考えである。しかし、このような吸収合体の影響が離脱径をどの程度小さくするものなのかを定量的に解析することはきわめてむずかしい問題のように思われる。

5.3 離脱径と熱伝達率との関係

以上に述べた離脱径は、ある定まった条件のもとで凝縮面に存在する液滴の直径の上限を与える量であるから、次章に述べる滴径分布を定める上でもっとも重要なパラメータと考えられる。そしてこのことは、離脱径

が滴状凝縮の熱伝達率を支配するもっとも重要な因子の一つであることを意味する。すなわち、滴状凝縮熱伝達のメカニズムに関しては、まだはっきりしない部分が多いが、少くとも (i) 凝縮面のうち比較的大きな液滴に覆われている部分は伝熱にあまり寄与しないこと、(ii) 合体や落下滴による掃除の跡にできる裸の面への凝縮が大きく寄与すること、の 2 点について異論はないものと思われる。離脱径の大きさは、まさにこれら 2 点に大きな影響を与えるものである。

しかし不思議なことに、これまでの滴状凝縮の研究者達は、離脱径と熱伝達率の関係にあまり注意を払わなかったように思われる。たとえば Wenzel²⁴⁾、Citakoglu-Rose²⁵⁾、Tower-Westwater²⁶⁾ らは、いずれも凝縮面の傾斜を変えて熱伝達率の測定を行っており、その際には当然離脱径も変化していたはずであるが、そちらの測定は行っていない。また、Tanasawa-Tachibana²⁷⁾、Glicksman-Hunt²⁸⁾ らは、電算機によるシュミレーション法を使った解析を行っており、その中で離脱径と熱伝達率との関係に言及してはいるが実験的裏付けを欠いている。

最近、筆者ら²⁹⁾は、凝縮面の傾斜を変えるばかりでなく、蒸気流によるせん断力や遠心力などを利用することにより液滴に作用する外力を広範囲に変えて実験を行ない、離脱径と熱伝達率との関係を求めた(図 5)。その結

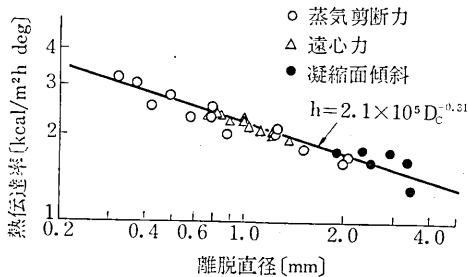


図 5 離脱直径と熱伝達率との関係

果、これら 2 つの間には、外力の種類とは無関係な一定の関係があることを認めた。しかし、この実験結果を他の条件にまで拡張することはまだ無理であり、また、離脱径の変化が熱伝達率に及ぼす影響が、どのようなメカニズムにもとづくものかを明らかにするには、今後いっそうの研究が必要である。

6. 滴径分布

滴状凝縮においては、前に図 1 で示したようないろいろの過程が、凝縮面上の各部分で一見まったくランダムに起っているが、それらを時間的・場所的に平均すると一つの定常的な熱伝達率が実現されている。滴径分布についても同様で、局部的には時間的に大きな変化を示すが、全体の平均としてはある定常的な分布をとっているものと推測されている。しかし、滴径分布についての測定データはまだ十分ではなく、場所的・時間的な変動が

一体どの程度のものであり、その平均をとるにはどのぐらいの時間をかけて測定すればよいのかまったくわかっていない。

滴径分布を表わすのに、LeFevre-Rose¹⁵⁾あるいはRose¹⁶⁾は、凝縮面のうち、半径が r より大きい液滴で覆われている面積割合 $\alpha(r)$ を用いている。また Tanasawa-Ochiai¹⁴⁾ は、凝縮面の単位面積において、半径が $[r, r + dr]$ にある液滴の個数を $N(r)dr$ としている。簡単な計算によって、 $\alpha(r)$ と $N(r)$ との間には

$$N(r) = -\frac{d\alpha(r)}{dr} \quad (3)$$

なる関係があることがわかる。

滴径分布について今後に残された課題のもう一つは、上の滴径分布関数 (α あるいは N) の形が外的条件によってどのように変わるかをはっきりさせることである。LeFevre-Rose¹⁵⁾ が与えた関数形は

$$\alpha(r) = 1 - \left(\frac{r}{R_f}\right)^{1/n} \quad (4)$$

という形であり (R_f は最大滴半径、 n は定数で 2~3 の値をとる)、これは滴半径を R_f で無次元化すれば滴径分布が定まった形になることを表わしているが、それがどの程度の広い条件変化にまで適合するかは明らかでない。

最近、田中¹⁷⁾¹⁸⁾ はまったく理論的に滴径分布を求めることを試みており、そこでも一応滴径分布が最大径で無次元化された滴径に関して同形になるという結果が導かれているが、まだ確定的ではない。

むしろ今後の解析や測定値の整理に当たって注意すべきことは、最大径としてどのような値を選ぶかということである。筆者らを含めて、これまで多くの研究者達は、滴径分布における最大径として前述の離脱径を考えてきた。比較的小さい凝縮面、あるいはあまりひんぱんに掃除されない部分においてはそれでもよいであろう。しかし、上方(液滴の離脱の方向に関して)からの液滴によってひんぱんに掃除されるような部分では、液滴は離脱限界径まで成長する前に掃除されてしまうから、最大径は力学的に定まる離脱径よりも小さくなることに注意しなければならない。さらに、このような場所においては、ある瞬間に掃除されつつある部分の占める面積割合がかなり大きくなりうるが、これを滴径分布の中にどう考慮していったらよいかも問題であろう。

7. 滴状凝縮熱伝達のメカニズムについて

7.1 活性な液滴とは?

滴状凝縮において実現されるきわめて高い熱伝達率がどのようなメカニズムに基づくものであるかについてはいろいろと議論の分かれるところである。Welch-Westwater³⁾ は、全凝縮伝熱量の 97% が、直径 1/4 mm 以下の液滴および面上の裸の部分を通して流れると述べ

ている。また Mikic¹⁹⁾ は、凝縮面上にある半径 0.1 mm 以上の液滴は伝熱にほとんど寄与せず、これより小さい液滴だけが熱を通す活性な滴 (active drop) であるといっている。このような考え方とはやや趣を異にするものとして、Hurst¹¹⁾ は、液滴の底面周囲の部分、すなわち凝縮面と接しているリング状の部分を通しての伝熱が支配的であると述べている。

ここで次のような計算をしてみよう。まず筆者ら¹⁴⁾の測定によれば、1 気圧の水蒸気が過冷度 1 deg の垂直面上に滴状凝縮した場合の滴形分布関数は次式で表わされる。

$$N(r) = 15.9r^{-2.54} \text{ 個/cm}^2/\text{mm} \quad (5a)$$

(ただし、0.005 mm \leq r < 0.25 mm)

$$N(r) = 3.16r^{-3.87} \text{ 個/cm}^2/\text{mm} \quad (5b)$$

(ただし、0.25 mm \leq r < 0.96 mm)

この分布関数を使い、液滴がすべて半球形であると仮定して凝縮面上の平均の液膜厚さ δ を求めると

$$\begin{aligned} \delta &= \frac{1}{100} \int_{R_{\min}}^{R_{\max}} \frac{2}{3} \pi r^3 N(r) dr \\ &= \frac{1}{100} \left\{ \frac{2 \times 15.9\pi}{3} \int_{0.005}^{0.25} r^{0.46} dr \right. \\ &\quad \left. + \frac{2 \times 3.16\pi}{3} \int_{0.25}^{0.96} r^{-0.87} dr \right\} \\ &= 0.11 \text{ [mm]} \quad (6) \end{aligned}$$

が得られる。この値を、膜状凝縮における液膜厚さと考えれば、対応する熱伝達率は約 5,300 kcal/m²·h·deg となるがこれは滴状凝縮の場合の約 1/30 でしかない。一方、式(5)の滴径分布関数を用いて別な計算を行なうと、半径 5 μ 以上の液滴が存在する凝縮面の面積割合は約 75% であることがわかる。このことと、上に求めた平均液膜厚さを考えあわせると、凝縮面上の裸の部分あるいは直径 10 μ 以下の液滴が占めている部分の伝熱への寄与がきわめて大きいことが推測される。しかしながら、液滴の大きさ (直径ゼロの場合も含めて) と伝熱への寄与の割合の量的な関係については、現在までの結果はいずれも不十分なものでしかない。確かに、小さな液滴の伝熱抵抗は大きな液滴よりも小さいであろうが、同時に小さな液滴における温度差 (すなわち、液滴の表面温度と底部の温度との差) も小さいであろうから、時間的変化をも含めた熱通過量と滴径との関係はそれほど簡単には求まらないのではないかと考えられる。

7.2 凝縮面材料による差異はあるのか?

Griffith-Lee²⁰⁾, Mikic¹⁹⁾, Horowitz-Mikic²¹⁾ および Nijaguna-Abdelmessih²²⁾ は、凝縮面材料の熱伝導率が、滴状凝縮における熱伝達率に影響を与えると考え、このことに関する理論解析と実験を行なっている。定性的に考えれば、前節で述べたこととも関連して、滴状凝縮時の凝縮面を通る熱流束および凝縮面表面温度は面上で

一様ではありえないから、Mikic が主張するような熱流の収縮 (constriction) の程度が面材料の熱伝導率によって変わり、それが熱伝達率に影響を与えることが考えられる。しかし、その影響が量的にどの程度になるかを推定するには、前掲の研究者らによる解析はまだ不十分なように思われる。事実、Aksan-Rose²³⁾ の実験では、熱伝達率が凝縮面材料によって変わらないという結論が得られており、問題の解決はまだ今後に残されている。

8. 結 び

滴状凝縮のメカニズムについての現在までの研究結果を検討して、まだよくわかっていない問題は何であるかを考えてみた。すでに多くの論文が発表されており、ほとんどすべてが明らかになってしまったかに思われるような分野でも、注意深く検討してみると、かなり根本的な部分について意外な欠落があることに気がつく。そのような欠落についてのはっきりした認識をもつことが、今後の滴状凝縮の研究を発展させる上で、きわめて重要なことであると筆者は考えている。

なお、この9月上旬、第5回国際伝熱会議が東京で開かれるが、本稿はそこで行なわれる Round Table Meeting: "What Don't We Know about Dropwise Condensation" のパネリストとしての筆者の腹案をまとめたものである。予想される討議内容、他の発表などとの関連を考えて、内容的に多少偏った点をそのまま残したことをお断りしておきたい。(1974年6月28日受理)

文 献

- Schmidt, E., W. Schurig and W. Sellschopp: Techn. Mech. u. Thermod., 1 (1930), 53.
- Jakob, M.: Mech. Engng., 58 (1936), 729.
- Welch, J.F. and J.W. Westwater: Int. Developments in Heat Transfer, Proc. 1961~1962 Int. Heat Transfer Conf. (1963), 302, ASME.
- Ruckenstein, E. and H. Metiu: Chem. Engng. Sci., 20 (1965), 173.
- Sugawara, S. and K. Katsuta: Proc. 3rd Int. Heat Transfer Conf., Vol. 2 (1966), 345, AIChE.
- Umur, A.: Ph. D. Thesis, Massachusetts Institute of Technology (1963).
- Umur, A. and P. Griffith: Trans. ASME, Ser. C, J. Heat Transfer, 87 (1965), 275.
- Tanasawa, I. and S. Nagata: Preprint of Japan Soc. Mech. Engrs. (in Japanese), No. 710-14 (1971), 137.
- McCormick, J.L. and J.W. Westwater: Chem. Engng. Sci., 20 (1965), 1021.
- Fatica, N. and D.L. Katz: Chem. Engng. Progr., 45 (1949), 661.
- Hurst, C.J.: Ph. D. Thesis, Pennsylvania State University (1966).
- Macdougall, G. and C. Ockrent: Proc. Roy. Soc. London, Ser. A, 180 (1942), 151.
- Sugawara, S. and I. Michiyoshi: Memoir of Faculty of Engineering, Kyoto University, 18 (1956), 84.
- Tanasawa, I. and J. Ochiai: Bull. JSME, 16 (1973), 1184.
- LeFevre, E.J. and J.W. Rose: Proc. 3rd Int. Heat

- Transfer Conf., Vol. 2 (1966), 362, AIChE.
- 16) Rose, J. W. : Int. J. Heat Mass Transfer, **10** (1967), 755.
 - 17) Tanaka, H. : Trans. JSME (in Japanese), **39** (1973), 3099.
 - 18) Tanaka, H. : Preprint of Japan Soc. Mech. Engrs. (in Japanese), No. 730-18 (1973), 101.
 - 19) Mikic, B. B. : Int. J. Heat Mass Transfer, **12**(1969), 1311.
 - 20) Griffith, P. and M. S. Lee: Int. J. Heat Mass Transfer, **10** (1967), 697.
 - 21) Horowitz, J. S. and B. B. Mikic: Proc. 5th Int. Heat Transfer Conf., Cs 2.2 (1974), 259.
 - 22) Nijaguna, B. and A. Abdelmessih: ASME Paper, No. 71-WA/HT-47 (1971).
 - 23) Aksan, S. N. and J. W. Rose: Int. J. Heat Mass Transfer, **16** (1973), 461.
 - 24) Wenzel, H. : Allg. Wärmetechnik, **8** (1957), 53.
 - 25) Citakoglu, E. and J. W. Rose: Int. J. Heat Mass Transfer, **12** (1969), 645.
 - 26) Tower, R. E. and J. W. Westwater: Chem. Engng. Progr. Symp. Ser., **66**, No. 102 (1970), 21.
 - 27) Tanasawa, I. and F. Tachibana: Proc. 4th Int. Heat Transfer Conf., Vol. 4 (1970), Cs. 1.3.
 - 28) Glicksman, L. R. and A. W. Hunt, Jr. : Int. J. Heat Mass Transfer, **15** (1972), 2251.
 - 29) Tanasawa, I., J. Ochiai, Y. Utaka and S. En-ya: Preprint of 11th Japanese Heat Transfer Symposium (in Japanese) (1974), 229.
 - 30) Tanasawa, I. and J. Ochiai: J. Institute of Industrial Science (Seisan-Kenkyu), **26** (1974), 113.
 - 31) Ochiai, J. and I. Tanasawa: J. Institute of Industrial Science (Seisan Kenkyu), **26** (1974), 155.

