

# 高温壁面近傍における液滴挙動と液滴消滅時間に関する研究 Behavior and life time investigation of droplet around high temperature wall.

知能機械システム工学コース  
材料革新サステイナブルテクノロジー研究室 1225043 秦 暦

## 1. 緒言

ライデンフロスト効果<sup>[1]</sup>とは、液滴がその沸点よりも高温の固体壁面に接触した際、薄い蒸気膜が形成されることによって熱伝達を阻害され、液滴自身が高温壁面に浮遊することで液滴の蒸発時間が大幅に増加する現象である。この現象は、1756年にJ.G.Leidenfrost<sup>[2]</sup>によって紹介されている。

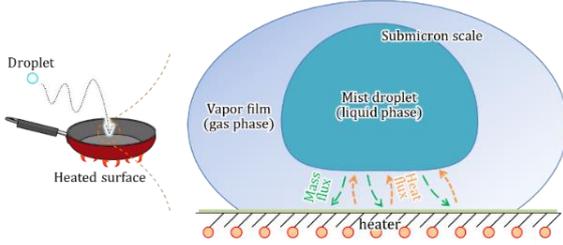


Fig.1 Leidenfrost effect

このライデンフロスト効果について理解しその挙動を解析することは、主に工業の分野においてとても重要とされてきた。例えばアルミニウム合金の急冷を行う際、合金の温度がライデンフロスト点より低い場合は、冷却速度の大きさから生じる熱応力によって反りや歪みが生じる。しかし合金の温度がライデンフロスト点より高い場合は、金属表面と冷却液の間に熱伝達率の低い蒸気膜の層が発生し、冷却速度は遅くなる。このライデンフロスト効果により、望ましくない力が加わることなく材料変換が可能となる<sup>[3]</sup>。このような事例に見られるように、液体と基材の熱伝達を理解しようとするとき、ライデンフロスト現象の特性を把握することは必須である。特性を把握するにあたり、着眼点の1つとして液滴蒸発時間に着目する。基材から液滴へ熱が伝わる時、その熱伝達量に応じて液滴の蒸発時間は変化する。従って液滴の蒸発時間の変化を見ることで、ライデンフロスト現象が起きている場合とそうでない場合の熱伝達の具合を把握することができる。しかし、液滴の蒸発時間を方程式によって表そうとすると、液が基板に直接接している場合は熱伝達に関連する現象は単純だが、液滴と基板間に蒸気膜が存在する場合多くの物性値が影響するものと考えられるため、困難を極める。

## 2. 研究目的

B.S.Gottfried らの研究で、基板表面温度と液滴蒸発時間の関係を表したモデル式(1)が報告された<sup>[1]</sup>。この式は液の熱伝導率や表面温度、密度、気化熱、動粘度、比熱、拡散係数、液滴サイズ、重力を操作変数とし、純物質の蒸発時間を測定した結果を用いて次元解析を行い導出された。以下にモデル式(1)を示す。

$$\tau \sqrt{\frac{g}{r_0}} = 37.8 \left( \frac{k\Delta T}{\rho_v D \lambda} \right)^{-0.735} \left( \frac{\rho_l}{\rho_v} \right)^{0.407} \left( \frac{C_p \mu}{k} \right)^{-0.874} \left( \frac{\mu}{\rho_v D} \right)^{0.714} \left( \frac{D}{\sqrt{g r_0^3}} \right)^{-1/3} \quad (1)$$

ところで式(1)において、滴下溶液をメタノールにした場合、

B.S.Gottfried の導出した冪指数を使ったモデル式では、実測値と誤差がみられた。そのため測定したデータを使用し、水、メタノール、ベンゼンなどに対応できるように調整を行った。

また、先行研究では、式(1)に新たに基板表面の特性を考慮した2つの項が付け加えられた、式(2)が作成された<sup>[4]</sup>。式(2)に関してもいくつかの溶液の液滴蒸発時間を実測し、モデル式の指数を導出した。基板粗さの変化による液滴蒸発時間の影響は微小ではあったが、追加した2つの項の指数を調整することで、その変化を表現することができた。

$$\tau \sqrt{\frac{g}{r_0}} \propto \left( \frac{k\Delta T}{\rho_v D \lambda} \right)^{C_1} \left( \frac{\rho_l}{\rho_v} \right)^{C_2} \left( \frac{C_p \mu}{k} \right)^{C_3} \left( \frac{\mu}{\rho_v D} \right)^{C_4} \left( \frac{D}{\sqrt{g r_0^3}} \right)^{C_5} \left( \frac{k_l C_l \rho_l}{k_s C_s \rho_s} \right)^{C_6} \left( \frac{4\epsilon\sigma T_m^3 \pi r^2}{k_s} \right)^{C_7} \quad (2)$$

この他に、本論文では混合溶液の液滴蒸発時間や内部温度の推移を計測した。また、液滴像を上から撮影してライデンフロスト液滴の体積の時間変化を計測、レーザーの干渉を利用したライデンフロスト蒸気膜厚さの計測などを行い、様々なパラメータの導出を試みた。

## 3. 実験方法

### 3.1 液滴蒸発時間測定方法

ヒーターの上に高温に熱した基板を設置し、電動ピペットにより一定量の液滴を滴下する。基板表面温度を10°Cずつ上昇させ、各温度で10回ずつ蒸発時間の測定を行った。測定は液滴が基板表面に接触した瞬間から蒸散し消失するまでを確認し、その時間をストップウォッチで計測することで行った。使用基板はアルミニウム、滴下高さは4mmで統一した。対象とした液体は純溶媒、混合溶媒である。また、液滴内部温度は熱電対を用いて測定した。

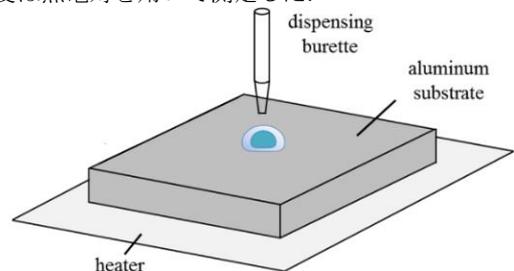


Fig.2 Schematic of evaporation time measurement system

### 3.2 蒸気膜厚さ測定方法

ライデンフロスト液滴の蒸気膜厚さのモデル式を導出するために、2通りの実験を行った。

1つ目は液滴の状態を上から撮影し、その像の直径から体積、液滴下面圧力などを計算することで蒸気膜厚さの値を算出する方法である。ここでは基材にアルミニウムを用い、液滴径は画像処理ソフトで計測した。

2つ目はライデンフロスト液滴の下面と固体表面の間を単スリットとみなし、そこにレーザー光を通すことによって、光の干渉から蒸気膜厚さを直接的に測定する方法である。詳しい実験手順を以下に記す。熱した基板表面に液滴を滴下し、直径 0.75 mm の細い針で固定した。本来ライデンフロスト液滴は、その蒸気膜によって基板と固定表面の間に摩擦がほとんどないため、縦横無尽に動き回る。それではレーザー光の進路を液滴の中心にとらえることが困難であったためこのような方法をとった。そして固液間に青色レーザーの光を通して数メートル先に設置したスクリーンに映る干渉縞を撮影し、そのパターンから蒸気膜厚さを計算した。以下に概略図を示す。

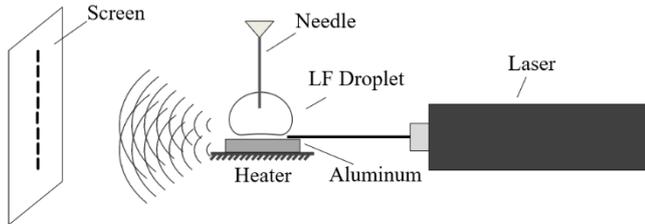


Fig.3 Experimental system for measurement of the vapor film thickness of Leidenfrost droplets

この計測と同時に液滴の蒸発状況をカメラでモニタリングすることによって、蒸気膜厚さと基板温度、最大液滴半径の関係を調べた。

#### 4. ライデンフロスト液滴のパラメータ算出

##### 4.1 液滴蒸発時間測定実験

モデル式(1), (2)を検証するために、液滴や基板のパラメータを変更して液滴蒸発時間測定実験を行った。まずはモデル式(1)の指数を調整した結果を、図4に示す。ここでは例として、水とメタノールの測定値と B.S.Gottfried のモデル式、指数を調整したモデル式のプロットを示す。水の場合、2つのモデル式は実験値を明確に示していると見えるが、メタノールの測定値と B.S.Gottfried のモデル式のプロットは LFP(ライデンフロスト点)付近で差があるのに対し、修正モデル式は測定値を示しているといえる。以下にモデル式(1)を修正した式の各冪指数の値を示す。

$$\tau \sqrt{\frac{g}{r_0}} = 1.76 \left( \frac{k\Delta T}{\rho_v D \lambda} \right)^{-0.325} \left( \frac{\rho_l}{\rho_v} \right)^{0.936} \left( \frac{C_p \mu}{k} \right)^{-0.501} \left( \frac{\mu}{\rho_v D} \right)^{0.423} \left( \frac{D}{\sqrt{g r_0^3}} \right)^{-1/3} \quad (1')$$

図5には基板の表面粗さを変更してメタノールの蒸発時間を測定した結果と、基板粗さの変化を考慮した液滴蒸発時間を表すモデル式(2)の、指数を調整した結果を示す。基板粗さの変化による液滴蒸発時間の変化は測定した範囲内ではメタノールを使用したとき最大7秒ほど、水を使用した場合最大10秒ほどと、微小ではあったが実験的に確認され、モデル式(2)でそれを表現することができた。以下に新たに指数を代入したモデル式(2)の各冪指数の値を示す。

$$\tau \sqrt{\frac{g}{r_0}} = 2.09 \left( \frac{k\Delta T}{\rho_v D \lambda} \right)^{-0.388} \left( \frac{\rho_l}{\rho_v} \right)^{0.907} \left( \frac{C_p \mu}{k} \right)^{-0.386} \left( \frac{\mu}{\rho_v D} \right)^{-0.354} \left( \frac{D}{\sqrt{g r_0^3}} \right)^{-1/3} \left( \frac{k_l C_l \rho_l}{k_s C_s \rho_s} \right)^{0.008} \left( \frac{4\epsilon\sigma T_m^3 \pi r^2}{k_s S_q} \right)^{0.027} \quad (2)$$

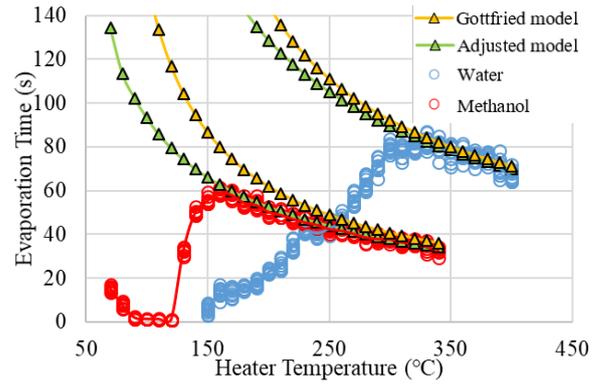


Fig.4 Evaporation time of water, methanol and model equation

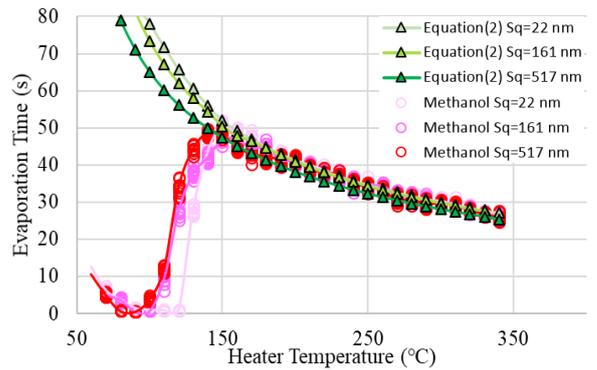


Fig.5 Methanol evaporation time and equation(2) when substrate roughness is changed

##### 4.2 混合溶液の液滴蒸発

水とメタノール、メタノールとベンゼンの混合溶液の液滴蒸発時間を測定した。液体の体積濃度比を 3:7~7:3 のように変化させ、体積濃度比と液滴蒸発時間の関係を調べた。ここでは同一の基板を使用し、基板粗さの変化を無視している。

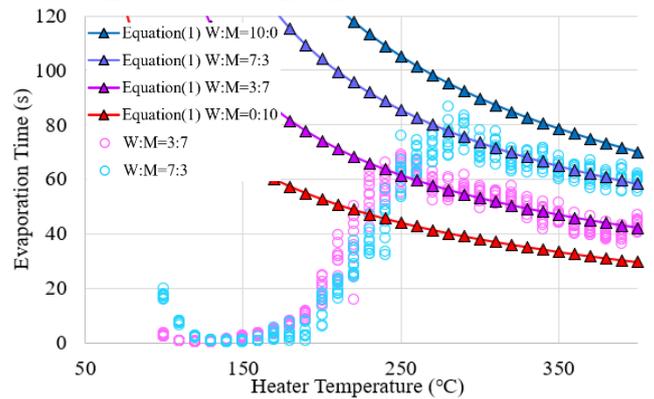


Fig.6 Evaporation time of mixed solution of Water and Methanol for each concentration and equation(3)

溶液 A の蒸発時間を  $\tau_A$ 、溶液 B の蒸発時間を  $\tau_B$ 、溶液 A の体積濃度を  $x$  とすると、混合溶液の蒸発時間  $\tau_{AB}$  は

$$\tau_{AB} = x\tau_A + (1-x)\tau_B \quad (3)$$

と体積比を基としたヴェガード則で単純に表すことができた。

また、混合溶液の内部温度を測定した。純物質の液滴内部温度は一定であるのに対し、混合溶液の内部温度は上昇してゆき、温度と時間の傾きが変化する点が存在した。これは、ライデンフロスト液滴の混合溶液の蒸発プロセスを示すこ

とつながると考えられる。詳細は本文に記す。

### 4.3 ライデンフロスト液滴の蒸気膜厚さ

ライデンフロスト溶液を上から撮影することにより、その体積変化などから蒸気膜厚さの算出を試みた。直径 2 mm の液滴が 350°C の基板上で蒸発する様子を撮像した。液滴直径の変化を図 7 に示す。

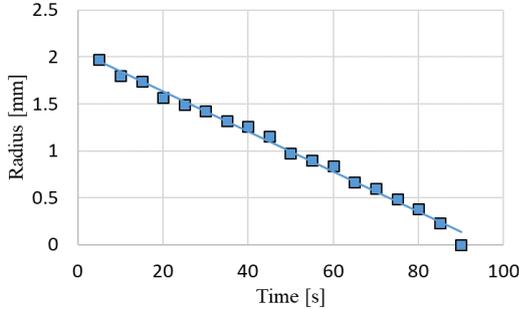


Fig.7 Volume change of Leidenfrost droplet

この結果からライデンフロスト液滴の体積、下面圧力を算出し、エネルギー収支、物質収支、運動方程式、液滴蒸発時間を表すモデル式(1)から、蒸気膜の厚さを算出した。

$$\delta = \sqrt{\frac{(\dot{m}RT)^2}{8\pi^2 r^2 M^2 N_A^2 P_b^2 \left(\frac{P_0}{\rho_0} - \frac{P_b}{\rho_b}\right)}} \quad (4)$$

この式(4)から半径 2 mm、基板温度 350°C の水の蒸気膜厚さは 2 μm と予想された。しかし、過去の文献では蒸気膜厚さは 10~100 μm オーダーと予測されてきた<sup>[5]</sup>。

そこで式(4)の整合性を確かめるために、レーザー光の干渉を利用した蒸気膜厚さの観測系を作成し、温度と液種、液滴径との関係を調べた。実験結果を以下に記す。

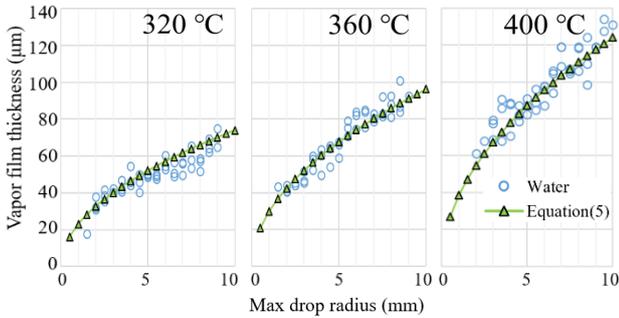


Fig.8 Comparison between measured vapor film thickness and equation(5)

図 8 に示すように、ライデンフロスト蒸気膜の厚さは測定の結果、10~100 μm オーダーであることが分かった。そして液滴径、基板表面温度によって大きく影響を受けることが分かった。この結果から、式(4)の値は実際の蒸気膜厚さと大きく差があるとわかる。そこで新たに次元解析を用いて蒸気膜厚さの算出を試みた。ライデンフロスト蒸気膜には以下の 11 のパラメータが必要だと考えられる。

$$\delta = \delta(k, \Delta T, \rho_v, \rho_l, \lambda, \mu, C_p, D, r_{max}, g, \gamma)$$

Buckingham の π 定理より、蒸気膜厚さは 7 つの項によって表され、式の指数を、蒸気膜厚さの測定値や液種ごとの熱物性値を代入し、回帰分析をすることによって導出した。以下にその式を記す。

$$\left(\frac{\delta}{r_{max}}\right) = 0.35 \left(\frac{gr^3}{D^2}\right)^{-0.691} \left(\frac{\rho_v \lambda D}{\Delta T k}\right)^{0.665} \left(\frac{\rho_l}{\rho_v}\right)^{-2.79} \left(\frac{C_p \mu}{k}\right)^{-2.75} \left(\frac{\mu}{\rho_v D}\right)^{3.822} \left(\frac{r_{max} \gamma}{\rho_v D^2}\right)^{1.582} \quad (5)$$

このモデル式から導出した蒸気膜厚さの値と実測した値を図 8 に示す。図 8 からわかるように、モデル式(5)は実測した蒸気膜厚さを表せているといえる。

### 5. 結言

本研究では、ライデンフロスト状態にある液滴の蒸発時間を表すモデル式、体積変化や蒸気膜厚さなどのパラメータ、混合溶液の蒸発過程などに関して研究した。4.1 では、基板表面粗さを変化させて蒸発時間を測定し、その変化をモデル式(2)で表すことができた。しかし、基板表面粗さを変更すると、LFP も変化するという結果も得られたが、今回の研究からでは基板表面粗さと LFP の変化について、式を導出するまでには至らなかった。今後の展望として、基板の多孔度や濡れ性を測定し、LFP と基板粗さの関係を調べることを課題とする。

4.2 では混合溶液の液滴蒸発時間を、モデル式と体積濃度で表現することができることがわかった。液滴内部温度の変化については、今後液滴量、液種を変えるなどして、傾向を調べ、理論化することを目指す。

4.3 ではライデンフロスト蒸気膜厚さの算出を試みた。まず始めに液滴を上から撮影した。その像から液滴直径の推移を測定し、蒸発量を把握することによって蒸気膜厚さの理論式を算出した。しかしその値は新たにレーザーによって直接的に測定した蒸気膜厚さの値と大きな差が表れた。そこで次元解析より新たな蒸気膜厚さの理論式を構築し、回帰分析よりモデル式(5)を算出した。このモデル式(5)によって液滴の温度や径によって変化する蒸気膜厚さの値を表現することができた。このモデル式(5)の結果は、Burton らがカメラで液滴の蒸気膜厚さを撮影した結果<sup>[6]</sup>とかなり近い値を示している。しかし Biance らが過去に提示した蒸気膜厚さの測定結果やモデル<sup>[5]</sup>と比較すると、わかる範囲で 40 μm ほどの差が出ていることが見られた。原因としては、彼らは液滴の大きさを定常化するために、液滴に絶えず液を補充し続けたことなどが挙げられる。もしも液の補充によって蒸気膜厚さに差が出るのなら、ライデンフロスト液滴を工業的に使用する場合液滴に直接液を補充する状況は考えにくい。今回のモデル式(5)のほうが実用的な式だと考える。過去の文献との比較は本文に詳細を記載する。

### 6. 参考文献

- (1) B.S.Gottfried, K.J.Belli & EC Fundamentals 5, 561 (1966)
- (2) J.G.Leidenfrost, (A Tract about Some Qualities of Common Water), translation of portions to appear in Intern J Heat Mass Transfer (1756)
- (3) Bernardin and Mudawar, Transactions of the ASME, (Vol. 124, Oct. 2002)
- (4) 松崎 俊祐, 高知工科大学大学院 知能機械システム工学コース 修士論文(2017)
- (5) Biance, A. L., Christophe, C., and Quere, D., 2003, Phys. Fluids, 15(6), pp. 1632–1637.
- (6) Burton J C, Sharpe A L, van der Veen R C A, Franco A, Nagel S R. Physical Review Letters, 2012, 109(7)