

ISSN 0910-7851

# 伝熱研究

Journal of The Heat Transfer Society of Japan

1996<sup>July</sup>  
Vol. 35 No. 138

〈小特集：多成分系の伝熱〉

ISSN 0918-9963

**THERMAL SCIENCE AND ENGINEERING**

Vol. 4

No. 3

社団法人 日 本 伝 熱 学 会  
The Heat Transfer Society of Japan

## 日本伝熱学会第35期（平成8年度）役員

会 長 副 会 長  理 事 (編集出版) 北 海 道 東 海  (企 画) 北 陸 信 越 中 国 四 国  (総 務) 九 州 監 評 員	(編集出版) (企 画) (総 務) 早 坂 洋 史 (北 大) 熊 田 雅 弥 (岐 阜 大) 金 子 邦 彦 (東 大) 青 木 和 夫 (長 岡 技 大) 森 岡 齋 (徳 島 大) 松 木 健 次 (シ ャ ー プ) 尾 添 紘 之 (九 大) 鳥 居 薫 (横 浜 国 大) 鈴 木 立 之 (富 山 県 立 大) 西 尾 茂 文 (東 大) 功 刀 資 彰 (原 研) 森 英 夫 (九 大) 丸 山 茂 夫 (東 大) 佐 藤 春 樹 (慶 大) 辻 俊 博 (名 工 大) 田 中 宏 史 (福 岡 工 大) 山 田 明 (三 菱 重 工) 廣 田 真 史 (名 大) 小 林 健 一 (東 工 大) 山 岸 英 明 (釧 路 高 専) 松 田 理 (石 川 高 専) 時 田 雄 次 (大 分 大) 小 原 拓 (東 北 大) 富 山 明 男 (神 戸 大) 片 岡 勲 (京 大) 鈴 木 豊 彦 (鳥 取 大) 加 藤 泰 生 (山 口 大) 森 康 彦 (慶 大) 飛 原 英 治 (東 大) 水 上 紘 一 (愛 媛 大) 前 川 透 (東 洋 大) 宮 内 敏 雄 (東 工 大) 佐々木 章 (秋 田 高 専) 吉 田 英 生 (東 工 大) 武 内 洋 (北 工 技 研)	越 後 亮 三 (東 工 大) 萩 野 文 丸 (京 大) 曾 田 止 浩 (二 菱 重 工) 齋 藤 彬 夫 (東 工 大) 増 岡 隆 士 (九 工 大) 東 北 太 田 照 和 (東 北 大) 松 尾 篤 二 (三 菱 重 工) 笠 木 伸 英 (東 大) 戸 田 三 郎 (東 北 大) 中 島 健 (神 戸 大) 五 十 嵐 喜 良 (東 北 電 力) 山 田 幸 生 (工 技 院) 塩 冶 震 太 郎 (石 播 重 工) 日 向 滋 (信 州 大) 石 黒 博 (筑 波 大) 森 岡 幹 雄 (石 播 重 工) 浅 古 豊 (都 立 大) 松 島 均 (日 立) 中 山 昭 男 (九 州 産 大) 岸 波 敏 夫 (室 蘭 工 大) 大 原 誠 司 (東 工 大) 大 三 松 順 次 (岐 阜 大) 中 山 明 人 (ト ヨ タ 自 工) 原 利 次 (日 本 工 大) 東 之 弘 (い わ き 明 星 大) 高 田 保 之 (九 大) 小 宮 山 正 治 (阪 大) 久 角 喜 徳 (大 阪 ガ ス) 橋 本 律 男 (三 菱 重 工) 松 本 浩 二 (宮 崎 大) 川 西 康 平 (三 菱 重 工) 数 土 幸 夫 (原 研) 中 島 利 誠 (お 茶 水 女 大) 塩 津 正 博 (京 大) 佐 藤 勲 (東 工 大) 村 上 周 三 (東 大) 広 瀬 宏 一 (岩 手 大) 岡 田 昌 志 (青 山 学 院 大)
---	---	--

「Thermal Science and Engineering」

チーフエディター

土 方 邦 夫 (東 工 大)

# 伝熱研究 目次

会長就任にあたって

.....越後亮三 (東京工業大学工学部, (併) 京都大学大学院エネルギー科学研究科) .....	1	
会長退任にあたって .....	相原利雄 (東北大学流体科学研究所) .....	3

## 〈顕彰〉

名誉会員の顕彰 .....	副会長 齋藤彬夫 (東京工業大学) .....	4
---------------	-------------------------	---

## 〈第8回日本伝熱学会賞〉

第8回日本伝熱学会賞の報告

.....第34期日本伝熱学会賞表彰選考委員会主査 林勇二郎 (金沢大学) .....	5	
第8回日本伝熱学会学術賞を受賞して .....	伊藤猛宏, 久保田裕巳 (九州大学) .....	7
日本伝熱学会学術賞を受賞して .....	土方邦夫 (東京工業大学) .....	9
第8回日本伝熱学会技術賞を受賞して .....	小澤由行, 谷野正幸, 守屋充, 関義輝 (高砂熱学工業株式会社), 成田勝彦 (東京電力株式会社) .....	11

## 〈随想〉

近代史から見た原子力オプション .....	杉山憲一郎 (北海道大学) .....	13
-----------------------	---------------------	----

## 〈第33回日本伝熱シンポジウム〉

第33回日本伝熱シンポジウムを振り返って

.....準備委員長 前川博, 準備委員 小林睦夫 (新潟大学) .....	16
--	----

## 〈小特集：多成分系の伝熱〉

小特集「多成分系の伝熱」にあたって

.....第34期編集委員会 青木和夫 (長岡技術科学大学), 長坂雄次 (慶應義塾大学) .....	17	
合金の凝固 .....	鈴木俊夫 (東京大学大学院工学研究科金属工学専攻) .....	18
多成分系の熱物性 — 流体の輸送性質を中心に — .....	長坂雄次 (慶應義塾大学理工学部) .....	26
混合液体の沸騰熱伝達 .....	吉田駿, 森英夫 (九州大学工学部機械エネルギー工学科) .....	34
多成分系の拡散 .....	荻野文丸 (京都大学大学院工学研究科化学工学専攻) .....	41
多成分系の凝固 .....	林勇二郎 (金沢大学) .....	46
多成分系の相平衡 .....	石崎幸三 (長岡技術科学大学) .....	54
多成分系の昇華 .....	青木和夫 (長岡技術科学大学) .....	59
多成分混合冷媒の凝縮伝熱 .....	小山繁 (九州大学機能物質科学研究所) .....	65

## 〈研究トピックス〉

先端半導体プロセスの数値解析 .....	ウルスラ・ブックル (三洋電機メカトロニクス研究所) .....	73
ニューラルネットによる乗員温感予測技術と空調制御への応用 .....	上田松榮, 谷口洋介 (㈱豊田中央研究所) .....	74

## 〈賛助会員紹介〉

賛助会員紹介 (㈱日立製作所機械研究所) .....	伊藤正昭 (日立・機械研) .....	75
----------------------------	---------------------	----

## 〈故青木成文先生を偲んで〉

青木成文先生を偲んで .....	越後亮三 (東京工業大学工学部機械科学科), 有富正憲 (東京工業大学原子炉工学研究所) .....	79
青木成文先生の思い出 .....	井上晃 (東京工業大学) .....	81

## 〈お知らせ〉

行事カレンダー .....	83
平成8年度日本伝熱学会関東支部・講演会ご案内 .....	84
日本伝熱学会関西支部講演討論会の御案内 .....	84
北海道伝熱セミナー'96 .....	85
第7回東海伝熱セミナー .....	86
第8回中四国伝熱セミナー .....	87
第17回日本熱物性シンポジウム開催案内 .....	88
INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON HEAT TRANSFER ENHANCEMENT AND ENERGY CONSERVATION .....	88
3rd INTERNATIONAL THERMAL ENERGY CONGRESS .....	89
A Special Seminar: Present Status and Future Directions of Modeling Complex Turbulent Flow and Heat Transfer .....	89
「離散粒子シミュレーション入門 (パソコン実習付き)」 .....	90
第34回燃焼シンポジウム .....	90
ELEVENTH SYMPOSIUM ON TURBULENT SHEAR FLOWS .....	91
『環境と省エネルギーのためのエネルギー新技術大系』発刊のお知らせ .....	92
「伝熱研究」原稿の書き方 .....	93
「伝熱研究」会告の書き方 .....	94
事務局からの連絡 .....	95
日本伝熱学会, 入会申込み, 変更届用紙 .....	97

**Journal of The Heat Transfer Society of Japan**  
**Vol.35, No.138, July, 1996**

**CONTENTS**

New President's Address	
Ryozo Echigo (Tokyo Institute of Technology)	
(Kyoto University, Graduate School of Energy Science).....	1
On Retiring from the President	
Toshio Aihara (Institute of Fluid Science, Tohoku University) .....	3
 <b>&lt;Awards&gt;</b>	
Awards of Honorary Members	
Vice President Akio Saito (Tokyo Institute of Technology) .....	4
 <b>&lt;Heat Transfer Society Awards&gt;</b>	
On Selection of the 8th Heat Transfer Society Awards for Scientific Contributions and Technical Achievements	
Yujiro Hayashi (Kanazawa University) .....	5
On Being Awarded the 8th HTSJ Prize for Outstanding Achievement	
Takehiro Ito and Hiromi Kubota (Kyushu Univ.) .....	7
On Receiving the Heat Transfer Society Award for Scientific Contribution	
Kunio Hijikata (Tokyo Institute of Technology) .....	9
On Receiving the 8th Heat Transfer Society Award for Technical Achievements	
Yoshiyuki Kozawa, Masayuki Tanino, Mitsuru Moriya, Yoshiteru Seki (Takasago Thermal Engineering Co., Ltd.) and Katsuhiko Narita (Tokyo Electric Power Co., Inc.) .....	11
 <b>&lt;Essay&gt;</b>	
Nuclear Energy Option in Modern History	
Ken-ichiro Sugiyama (Hokkaido Univ.) .....	13
 <b>&lt;The 33rd National Heat Transfer Symposium of Japan&gt;</b>	
Looking back upon the 33rd National Heat Transfer Symposium of Japan	
Chairman Hiroshi Maekawa and Co-Chairman Mutsuo Kobayashi (Niigata Univ.) .....	16
 <b>&lt;Special Issue: Heat Transfer of Multicomponent Systems&gt;</b>	
Preface to Special Issue: Heat Transfer of Multicomponent Systems	
Kazuo Aoki (Nagaoka University of Technology) and Yuji Nagasaka (Keio University) .....	17
Solidification of Alloys	
Toshio Suzuki (Department of Metallurgy, School of Engineering, the University of Tokyo) .....	18
Thermophysical Properties of Multicomponent Systems –Transport Properties of Fluids–	

Yuji Nagasaka (Keio University) .....	26
Boiling Heat Transfer to Liquid Mixtures	
Suguru Yoshida and Hideo Mori	
(Dept. of Energy and Mechanical Engineering, Kyushu University) .....	34
Multicomponent Diffusion	
Fumimaru Ogino (Department of Chemical Engineering, Kyoto University) .....	41
Solidification of Mixtures	
Yujiro Hayashi (Kanazawa University) .....	46
Phase Equilibrium of Multicomponent Systems	
Kozo Ishizaki (Nagaoka University of Technology) .....	54
Sublimation of Multicomponent Systems	
Kazuo Aoki (Nagaoka University of Technology) .....	59
Condensation Heat Transfer of Multi-Component Refrigerant Mixture	
Shigeru Koyama (Institute of Advanced Material Study, Kyushu University) .....	65

### <Research Topics>

Numerical Simulation of Czochralski Processes for Advanced Semiconductor Materials	
Ursula Buckle (Sanyo Electric Co., Ltd. Mechatronics Research Center) .....	73
A New Technology to Predict the Thermal Sensation of an Occupant Using a Neural Network and Its Application to the HVAC System	
Matsuei Ueda and Yosuke Taniguchi (Toyota Central R&D Labs., Inc. Reaction Dynamics Lab.) .....	74

### <Profile of Industrial Member>

Introduction of Mechanical Engineering Research Laboratory, Hitachi, Ltd.	
Masaaki ITOH (MERL Hitachi, Ltd.) .....	75

### <In Memory of Professor Shigebumi Aoki>

Condolence to the late Doctor Shigebumi Aoki	
Ryozo Echigo (Faculty of Engineering, Tokyo Institute of Technology)	
and Masanori Aritomi (Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology)	79
Memories of Professor Shigebumi Aoki	
Akira Inoue (Tokyo Institute of Technology) .....	81

<Announcements> .....	83
-----------------------	----

## 会長就任にあたって

*New President's Address*

越後 亮三 (東京工業大学工学部)

((併) 京都大学大学院エネルギー科学研究科)

*Ryozo ECHIGO (Tokyo Institute of Technology)*

*(Kyoto University, Graduate School of Energy Science)*

前期会長の相原利雄先生から次期会長に推挙されたので受けてほしいとお話をいただいた時は正直にいて大変困惑しました。理由の委細はここでは控えますが、この話は実は突然ではなかったのです。伝熱学会には私と同世代の人だけに限ってみても学術的に敬服し、秘かに研究上の目標とさせていただいている人があり、そのお一人からいただいたE-mailの追伸にそれを予感させる伝聞が記されていたのをはじめ、慰労の言葉をくださる気の早い方もあった。

私が大学院生の頃、当時民間企業研究所の若い研究者が単著で“難しい課題”の研究発表をされ、厳しい討論にも余裕をもって応えておられたのを思い出します。学問の道に進むことを決心し始めていた私にとってかなり鮮烈な印象でした。この青年研究者こそが後に東北大学助教授に赴任された相原利雄先生でした。爾来学問的に大変敬服しています。会長をお受けすることに対する私の困惑は相原先生の激励とご叱正によって氷解し、また事務局をあずかる斎藤副会長の減私奉公のさまをみて霧散しました。初仕事としてここに日頃考えていることの一部を綴ってみたいと思います。

### 伝熱発展の背景

まずは法人化という大きな転換期に多くの難問の処理と運営を軌道に乗せるために払われた前期、前々期の会長、副会長はじめ役員の方々のご努力に心から敬意を表したいと思います。法的人格を得て、維持することがいかに難業であるか想像を絶するものがあります。創立35年になる本学会の誕生2~3年目にして早くも伝熱学の将来が語られていますが、楽観、悲観両論相まみえ長年議論されてきました。伝熱の将来を危惧する根強い意見があるのとは対照的に会員数、研究発表件数、各地方の活動などは非常に活況を呈し、発展の一路をたどってきました。理由は種々あるかと思いますが、産業界からのニーズはさほどのものではなかったと思いま

す。原子力開発と沸騰、二相流の関係はじめいくつが重要なものもあるが発展の主要因ではない。逆にみれば伝熱学と産業技術の関係の希薄さがすべてを物語っている。伝熱研究発展の真の背景は少々うがった見方かも知れませんがただ単に全国の工学系の殆どの大学と附置研究所に伝熱関連の講座、部門が設置されていることではないでしょうか。そして第一、二世代の優秀な教授陣が学生(院生)、若い研究者の求心力になり得るような研究成果をあげ、世代交代もスムーズに進んだことが長年持続できた理由でしょう。さらに科学研究費等の存在も見落とせないと思います。機械工学系では同じ熱関係でも内燃機関関連の講座数の減少が続き、まったくなくなった大学も少なくない。研究の重心が企業へ移り、さらにもしも大学で後継者難となり負の循環ができること、基礎研究としては衰微の一路をたどることになるが、応用研究に重心を移しながら学会としての活力は維持発展されていくものと思われま。伝熱にはそのような予兆はなく、基礎研究としてはまずは安泰と考えられます。伝熱研究の主流が内燃機関とかガスタービンのような技術開発指向の強い“新技術”を求め、それと堅固に結びつき実用研究が活性化することは基礎研究が衰退することと同等で、これらは両立しないものだと思います。これまでの経過をみると電子機器冷却関係、材料製造プロセス、牛体関連等の新しい境界領域への参入も積極的に進められていますが、シンポジウムにおけるセッション数の増加に反映されてきた程度の変化に留まっています。つまり伝熱が主役になる機会は少なく脇役になっていることです。

ここ数年本学会では他の分野で活躍されている研究者の方を“客員会員”としてお招きし、本会における新分野を拓くためにご尽力いただくような壮大な実験が行われていることを伺っていましたが、新潟シンポジウムで早くも多くのセッションに開花していたのには驚きを禁じえません。関係各位の卓越した識見とご努力に深く敬意を表します。同様な方

法を用いて企業における実用研究と伝熱学会の基礎研究指向の溝（ギャップ）を埋めることを模索する組織も本学会に設置されていますので、今後の活動が人に期待されるところであります。

### 現状と反省

最近の本学会の特徴のひとつにいわれるMD関係研究者の急増が挙げられます。シンポジウムにおけるMDセッションの盛況ぶりには目を見張るものがあります。コンピュータ好きの若い研究者を魅了するものは何なのか？ 基礎となる“物理”を十分に培った上でないとゲーム感覚と同じ単なる知的消費活動に終わってしまうでしょう。講演会の会場ではこのことに警鐘をならすような厳しい討論が行われていることは喜ばしいが、まだまだ不十分で表面的な盛況を戒め、反省することを忘れてはならないと思います。特に若い世代の研究者には、知的生産活動の糧になるような古典を学ぶことを強く要望します。MD等の研究の基礎を支える学問体系が難解であるため勉強には厳しい努力が必要ですが、学問体系の美しさに魅了され、古典を通して研究の進展にもいっそう弾みがつくものと思います。

今後の日本伝熱学会にとって重要な課題は研究の新しい指針、あるいは指導原理になり得るものを自らの手で構築することであると思います。すでに20年以上も前になりますが第一次オイルショック直後文部省にエネルギー特別研究の発足を真っ先に働きかけたのは当時の伝熱研究会の中核的な先生方で、朝日新聞はじめ全国紙が一面トップ記事で報道したことが思い起こされます。その後エネルギー特別研究は10年余り続き、さらに学術審議会の答申を受けて'87年エネルギー重点領域研究の発足へと引き継がれたのであります。当時私はエネルギー研究の本流は伝熱研究であると信じて疑わなかったのですが、電気系、化学系、材料系などすべての専門家集団も本流意識をもっておられることに初めて気付きました。他分野の研究者からは伝熱はエネルギー研究の一支流に過ぎないとみられています。相当に反発を感じながらもエネルギー研究の広がりには伝熱だけでカバー出来るようなものではないと思うに至りました。しかし伝熱研究の基盤は今後ともエネルギー問題であり、その中核として環境と調和のとれるエネルギー研究の新しい指針をうちたてていくことが必要であると確信しています。

### 学会名称

最近、大学では地獄的変動ともいべき学部、学科レベルの再編成が急ピッチで進んでおり、伝熱を研究対象とする講座、部門といった分類ができないような状況になってきています。このような状況を踏まえ将来の学会名称について考えることは重要であると思います。一般の人との日常会話で「ご専門は」と聞かれて「伝熱」と応えても理解して貰えないことを私たちは承知しています。問題は熱伝達と熱伝導の違いを理解できる人がわれわれと同じ職場のような身近な社会でも、伝熱の専門家以外では殆ど見あたらないことです。逆にわれわれが理工系の他の専門分野のキーワードを聞いてもさほどの落差は感じません。「伝熱学会」という旗印のもとにいるわれわれ千余名の知的集団の地道な活動は学会名称と社会の距離が余りにも大きいため社会から実績どおり評価されることなく、努力が報われていないのではないのでしょうか。理数科の好きな中・高校生の中に将来伝熱学を勉強したいと考えている生徒は広い日本といえども一人もいないかも知れません。HEAT TRANSFERの語感が英語国民にとってどの様なものかは知りませんが、「伝熱」は欧米専門用語の直訳した造語で、いまだ日本語になっていないようです。10年ほど前ふとしたことから伝熱あるいは熱伝達という「日本語」にいささかの疑念を感じて以来、語源を調べてみたいと思いながら時を過ごしてきましたが、ちなみに広辞苑を引いてみると熱伝導の用語はありますが、伝熱、熱伝達は収録されていないことを知り、とても複雑な心境です。状況次第によってはHEAT TRANSFERが過去に熱移動とか熱拡散と訳されてそれが定着していれば本学会が「熱移動学会」あるいは「熱拡散学会」と名乗っても我々はさほど違和感はないはずですが、実際には両名称ともとても受容できるものではありません。比較的近い専門分野でみると「燃焼」はもともと日本語で、「内燃機関」は訳語ながら日本語として定着しています。伝熱とか熱伝達という専門用語はだれがはじめて用いたのか興味もありますが、われわれもHEAT TRANSFERに拘るより本学会の活動内容にふさわしくかつ社会に定着するような日本語名を考案することが必要ではないかと思えます。

越後亮三：東京工業大学工学部（〒152 東京都目黒区大岡山2-12-1, Tel (03) 5734-2169, Fax (03) 5734-2892）、京都大学大学院エネルギー科学研究科（併任）



## 会長退任にあたって

*On Retiring from the President*

相原 利雄 (東北大学流体科学研究所)

*Toshio AIHARA (Institute of Fluid Science, Tohoku University)*

第34期の会長を退くに当り、一言ご挨拶と御礼を申し上げます。

本学会は、1994年9月に社団法人として認下されました。私はその2代目会長として、基礎固めの重要な時期を担当させて頂きましたが、法人化後、一年を通して会長職をお預かりした点で、最初のケースになろうかと思えます。

5月16日の総会でご報告した様に、第34期も活発に学会活動を展開し、財政的にも180万円余の黒字を維持できました。科学史によれば、科学技術の展開は、常に偶然による発見や発明によって大飛躍を遂げ、目的指向の緻密な研究によって完成を見えています。近年、本学会会員による研究対象が、従来の伝熱学から熱科学的な領域にまで広まった事で、偶然の確率は一層高まったと言えます。

しかし、本学会を法人組織として見た場合には、また別の評価がある様に思います。会長職について間もなく、複数以上の先達の先生方から、いろいろな御教示や御助言を頂戴致しました。その一つに『定款等諸規則が定められたが、必ずしも、それらが遵守されていないのではないか』との御指摘があります。これを契機に、本学会の組織や諸規則、あるいは諸手続等の現況を本確的に見直したところ、次の様なことに気がきました。

その第1は、法人化後も、会員(役員も含め)の中に伝熱研究会時代の感覚がまだ残っているのではないか、と言う事です。これはよく言えば、自由闊達な気風であり、臨機応変の対応と言う事になりますが、社団法人として法令の規制を受ける以上、そのギャップは順次埋めて行かなくてはなりません。

組織・運営の点でも、伝熱研究会時代と同様に、役員ボランティア奉仕を前提としている様に思えます。しかし、税務問題から会計帳簿に至るまで、法人として果すべき仕事量は、大学の先生が片手間にやれるレベルのものとは思えません。現に、34期総務担当副会長の斎藤彬夫先生の研究室では、多大

の犠牲を払われたとお見受け致します。第33期は、土方邦夫先生と言う逸材を得て、また土方先生御自身の超人的なお働きで、この問題は顕在化しませんが、事務局を回り持ちするうちに、いずれは破綻する時が来るでしょう。

私は、もうボランティアでやれる限度を超えていると判断し、全精力を組織の円滑な運用、諸規則の遵守、諸手続の整備に注ぐ事に致しました。すなわち、法務局への諸届出・手続は、専門家の司法書士を通じて行う様に改めました。公益法人会計基準に基づく帳簿作成、税務相談や決算処理については、斎藤副会長のご提案に基づいて、会計事務所と顧問契約を結び、また従前から御協力頂いて来たNTS社には委託事項の追加も致しました。

一方、本学会の活動に目を転じますと、ここでも伝熱研究会時代の大きな遺産である伝熱シンポジウムに強く依存している事に気がきます。もし本学会から、仮りに伝熱シンポジウムを取り去ったら、現在会員の方々が、そのまま残って下さるでしょうか。法人学会として企画し、社会に還元すべき知的財産や事業が他にもある様に思います。残念ながら、年4回の理事会では、十分に突込んだ議論の結を見ずに、今日に立ち至りました。

正直なところ、思った事の1/10も果たせずに会長の職を辞する事は、真に心苦しい限りであります。米期の会長に越後亮三先生をお迎えすることができましたので、いささか気が楽になりました。越後先生を中心とする来期役員の方々に、心を込めてバトンタッチさせて頂きます。

終りに、微力の私を支えて下さった第34期の副会長・理事・監事・評議員・会員各位、大変な雑事を消化して下さいました斎藤研の皆様、並びに協力各社に厚く御礼申し上げ、退任の挨拶とさせて頂きます。

相原 利雄：東北大学流体科学研究所

(〒980-77 仙台市青葉区片平2-1-1,

Tel (022) 217-5242, Fax (022) 217-5242)

名誉会員の顕彰

*Awards of Honorary Members*

副会長 斎藤 彬夫 (東京工業大学)

*Vice President Akio SAITO (Tokyo Institute of Technology)*

社団法人日本伝熱学会では、名誉会員規定に従い、本学会の発展のために尽くされた御功勞に感謝し、伝熱工学の進展に対するご貢獻を賛え、謹んで下記の2名の方々を社団法人日本伝熱学会名誉会員として、また、名誉会員の中から特に下記の5名の方々を、学会内部の呼称である社団法人日本伝熱学会特別名誉会員として、それぞれ平成8年5月16日開催の第34期総会の席上、顕彰致しました。

(1) 特別名誉会員

多賀 正夫            山之上 寛二            鳥飼 欣一            宇佐見 久雄            長谷川 修  
(順不同、敬称略)

(2) 名誉会員

相原 利雄            藤江 邦男            (順不同、敬称略)

なお、名誉会員候補を推薦申し上げるに当たり、平成7年12月16日開催の第34期第3回理事会において改訂された、新しい名誉会員規定を適用致しました。

即ち、改訂前の名誉会員規定では、“名誉会員の資格”を次の様に規定しておりました。

§ 1 名誉会員の資格

以下の項目に該当する個人を本人の承諾を得て名誉会員とする。

- (1) 60才以上の会員で、25年以上本学会または日本伝熱研究会に在籍した者。
- (2) 60才以上の会員で、本学会、または日本伝熱研究会の会長、副会長の経験者。
- (3) 60才以上の個人で、表彰選考委員会が伝熱工学の進展に顕著な寄与をしたと認めた者。

第34期第3回理事会では、上記(1) - (3)の資格年齢(60才以上)を1才ずつ、隔年に、65才に達するまで変更することを決定致しました。その結果、上記(1) - (3)の資格年齢が次のように読み替えられることとなりました。

平成7年度末、平成8年度末	: 61才以上
平成9年度末、平成10年度末	: 62才以上
平成11年度末、平成12年度末	: 63才以上
平成13年度末、平成14年度末	: 64才以上
平成15年度末以降	: 65才以上

## 第 8 回日本伝熱学会賞の報告

*On Selection of the 8th Heat Transfer Society Awards  
for Scientific Contributions and Technical Achievements*

第 34 期日本伝熱学会賞表彰選考委員会

主査 林 勇二郎 (金沢大学)

Yujiro HAYASHI (Kanazawa University)

学術賞 (森康夫元会長の拠金による), 技術賞 (同, 天野工業技術研究所), および奨励賞 (同, Wen-Jei Yang氏) について公募を行った。応募のあった学術賞 6 件, 技術賞 3 件, 奨励賞 6 件に対して慎重に審査を行い, 下記のように決定した。なお, 賞の贈呈式は, 5 月 1 6 日に新潟市で開催された総会において実施されました。

### 1. 学術賞 (順不同)

#### (1) Dynamic analysis of pool-cooled superconductor and MPZ

掲載論文: 第30回日本伝熱シンポジウム講演論文集  
Cryogenics, Vol. 36, No. 3, 1996-1

代表研究者: 伊藤 猛宏 氏 (九州大学)

共同研究者: 久保田裕巳 氏 (九州大学)

本研究は, Heのプール沸騰で冷却される超電導体の熱擾乱に対する安全性を動的に検討したものである。具体的には, 動的安定性の影響因子を明らかにし, 従来の静的な方法による安全規準が必ずしも安全性を保証しないこと, さらに, 超電導体の設計と操作条件に対して安全判別図を得たものである。このような動的安定性に対する考え方と設計規準の確立は, 学術賞としての評価に値する。

#### (2) CO<sub>2</sub> Absorption into Liquid

掲載論文: 第31回日本伝熱シンポジウム講演論文集  
Thermal Science and Engineering, Vol. 4,  
No. 1, 1996-1

代表研究者: 土方 邦夫 氏 (東京工業大学)

共同研究者: 長崎 孝夫 氏 (東京工業大学)

福島 大祐 氏 (三菱自動車工業)

笠井 一成 氏 (ダイキン工業)

酒井 雅彦 氏 (運輸省自動車交通局)

本研究は, 外部振動を付加した液表面での有義波によるCO<sub>2</sub>の水利, 表面から液中へのCO<sub>2</sub>の乱流拡散輸送など, CO<sub>2</sub>の液吸収の促進に関する基

本的な素過程を系統的に明らかにしたものである。特に, 大規模渦による表面の更新と内部乱流化によるCO<sub>2</sub>ガスの内部への取り込みの方法は, 詳細な可視化実験に基づく機構の究明に裏付けられたものであり, 学術賞としての評価に値する。

### 2. 技術賞

#### (1) 過冷却水を利用したダイナミック型氷蓄熱システム

掲載論文: 日本冷凍協会論文集, Vol.12, No.3, 1995-3

代表研究者: 小澤 由行 氏 (高砂熱学工業)

共同研究者: 谷野 正幸 氏 (高砂熱学工業)

守屋 充 氏 (高砂熱学工業)

関 義輝 氏 (高砂熱学工業)

成田 勝彦 氏 (東京電力)

本技術開発は, 水の過冷却現象を利用した新しいダイナミック型氷蓄熱システムを, 蓄氷解氷の特性式や設計条件の確立, および経済的分析を踏まえて提案したものである。これらの技術は, 幕張熱供給センターでの1407kW実証プラントや, 芝浦地区地域冷暖房施設第2プラントなどに適用されており, 今後, 電力負荷の平準化および安定した冷熱供給において, 本システムが社会的に寄与する意義は大きい。

### 3. 奨励賞 (順不同)

#### (1) 金属点接触における非平衡効果及び電子トンネル効果による熱起電力

掲載論文: 第30回日本伝熱シンポジウム講演論文集  
第32回日本伝熱シンポジウム講演論文集

研究者: 伊藤 衡平 氏 (豊橋技術科学大学)

本研究は, 同一金属で閉ループを構成した場合でも, ループの中に微細な点接触部分があると, フォノンと電子の間の非平衡効果, あるいは酸化膜の効果によって熱起電力が生じることを, 理論的, 実験的に明らかにしたものである。点接触で

の熱移動の機構は、STM、AFMなどの微細測定  
の技術と深く関連しており、これからの熱科学の進展  
の基礎をなすものであり、今後の発展が期待される。

(2) パルス管冷凍機の性能に及ぼす諸因子の影響

掲載論文: 第32回日本伝熱シンポジウム講演論文集  
研究者: 稲田 孝明 氏 (東京大学大学院)

本研究は、熱音響効果における非定在波振動に注  
目し、熱と波動が連成する輸送現象論を展開すると  
ともに、パルス管冷凍機における冷凍機構、および  
その最適作動条件を実験的に明らかにしたものであ  
る。特に、高信頼性、低振動、低騒音、低コストお  
よびノンフロン冷凍機として期待されている後者の  
研究は、伝熱工学の新しい展開に寄与するものであ  
り、今後の発展が期待される。

(3) 非平衡プラズマ衝突噴流の熱流動解析

掲載論文: 第32回日本伝熱シンポジウム講演論文集  
研究者: 江里 幸一郎 氏 (九州大学大学院)

本研究は、熱平衡にあるプラズマ流れの平行平板

内への円形衝突を対象に、電子と原子(イオンおよ  
び中性原子)の運動エネルギー(温度)の非平衡過  
程に注目し、新たな輸送現象論を確立したものであ  
る。特に、粒子間のエネルギーおよび運動量交換や  
電離再結合反応を伴う熱流動場の解析システムの構  
築に成功しており、今後、この種の問題の数値解析  
手法として発展が期待される。

(4) 融体面に衝突する液滴の蒸発挙動と熱的相互作用  
掲載論文: 第31回日本伝熱シンポジウム講演論文集

第32回日本伝熱シンポジウム講演論文集

研究者: 古谷 正裕 氏 (電力中央研究所)

本研究は、Leidenfrost点より高温の液体金属面上  
に液滴が衝突する場合、低沸点液の均質核生成温度  
から臨界温度に至る領域で、固体面上では生じない  
液滴のスプラッシュ現象が生じることを見出したも  
のである。さらに、詳細な実験により、これらの圧  
力依存性について明らかにしている。ここでの成果  
は、液液系で生じる蒸気爆発現象の解明に新たな寄  
与をするものと期待される。

## 第 8 回日本伝熱学会学術賞を受賞して

On Being Awarded the 8th HTSJ Prize for Outstanding Achievement

伊藤 猛宏, 久保田 裕巳 (九州大学)

Takehiro ITO and Hiromi KUBOTA (Kyushu Univ.)

"Dynamic analysis of pool cooled superconductor and MPZ" という論文に対して題記を受賞する栄に浴しました。この機会にこの論文の概要をご紹介します。

## 1. 問題と動機

問題にしております系は、図1のような液体ヘリウム (4.2K) のプールで冷却される超伝導体—超伝導の臨界温度が7.2Kのニオブ・チタン (NbTi) —です。たとえば、図に示してありますようなプールの温度に相対的に高温の部分がある場合に、これが時間とともに拡大して超伝導の状態が完全に失われるか、あるいは時間とともに縮小してプール温度の超伝導状態に復帰するかを判定するのが安定性の問題であります。前者をクエンチング、後者をリカバリといいます。

この問題を記述する微分方程式には定常解が存在し、定常解においては常伝導電流によるジュール発熱とプール沸騰による冷却が等しくなります。その際の導体にそう温度分布は概念的に図のようになり、高温部分が存在する状態のままで平衡します。これを Maddock の Minimum Propagating Zone (MPZ) といいます。この状態で導体がプール温度を越えて導体が保有するエネルギーは、系の固有値のようなもので、導体の設計、プール沸騰の伝熱特性、および電流により一意的に決まります。

従来の超伝導体の設計においては、上述のMPZのエネルギーが重要な目安になっており、なんらかの原因により導体に持ち込まれるエネルギー(擾乱)を、MPZのエネルギーのいかほどの比率まで許容するかということを議論しております。しかしながら、擾乱に基づいて発生する温度分布が上述の定常解のようになるはずはありませんから、勝手な擾乱に対する導体の挙動は、実験してみるか、非定常の微分方程式を解いてみないとわかりません。後者をやってみたのがこの論文です。

## 2. 方法

さて、勝手な擾乱といっても、すべてを試みることはできませんので、モデル化した図2のような擾乱に対して解析しました。xは導体にそった空間座標、 $\tau$ は時間、 $\eta$ は導体へ向かう熱流束です。すなわち、始めプール温度にある導体に、矩形の熱流束が一定時間だけ持続するような擾乱を与えて、導体温度の時間的な変化などを計算してみようというわけです。図の擾乱は3つのパラメータで指定することになり、プール沸騰の伝熱特性としては定常な伝熱特性を与えました。

## 3. 結果

計算の結果はおおむね予想の通りで、図2のような擾乱により導体に持ち込まれたエネルギーが、MPZのエネルギーより小さくてもクエンチングすることがあり、MPZのエネルギーより大きくてもリカバリすることもあることがわかりました。つまり、MPZのエネルギーは超伝導体の安定性や安全性を判定する尺度にはなりえないということです。

それでは、この論文の解析ですべてが解決したかということ、もちろんそうではありません。第一には、定常プール沸騰の伝熱特性を使って解析していることです。つまり沸騰の熱流束は導体の局所的な温度のみで一意的決まるとしてあります。勝手な速さで変化する、一様でない温度に対して熱流束を知ることができませんので、定常な伝熱特性を使わざるをえなかったわけです。第一には、図2のような擾乱によって、すべての擾乱を表現することはできないことです。

要するに、この論文によってわかったことは、MPZのエネルギーだけで超伝導体の安定性や安全性を判定したり議論したりすることはできない、ということです。

4. その後の経過

その後、2枚のリボン状超伝導体の間にヒーターと温度計を挟み込んだものを液体ヘリウムのプールに沈め、ヒーターに時間的に矩形状の電力を投入する実験で、この論文を検証することを試みています。ヒーター、温度計、これらの配線、リボンの間にある接着剤、あるいは超伝導体の幅と方位など、系を複雑にするさまざまな因子があって、図1や2

のような単純な系を実現することができません。できないならば、実験できた系で観測した結果を、この論文の結果といかに関連づけるか、関連づけが困難であるならば、いかなる別の系で新たな計算をすべきであるか、つぎつぎに問題が出てきます。

それやこれやで、その後の発展は顕著であるとは申せません。今回の受賞が現在の困難を克服する活力を注入してくれるものと期待しております。ありがとうございました。

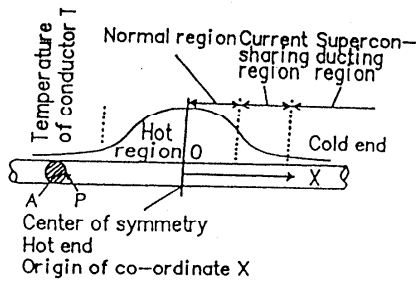


図1 System Analyzed

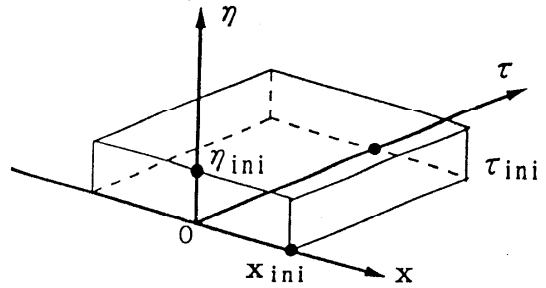


図2 Normalized heat input introduced as disturbance  $\eta(x,t)$

## 日本伝熱学会学術賞を受賞して

*On Receiving the Heat Transfer Society Award  
for Scientific Contribution*

土方 邦夫 (東京工業大学)

Kunio HIJIKATA (Tokyo Institute of Technology)

日本伝熱学会第34期総会において「CO<sub>2</sub> Absorption into Liquid」の研究により日本伝熱学会学術賞を授与されました。この研究はTSE, Vol.4, No.1に掲載されたもので共同研究者は長崎孝夫氏(東京工業大学)と福島大祐君、笠井一成君、酒井雅彦君3名の東京工業大学卒業生です。内容は彼らの卒業研究、修士論文を中心にまとめたもので、共同研究者の貢献な努力によってはじめて、本研究が完成したものであり、この場を借りて深く感謝したいと思います。

現在の学術賞は恩師の森康夫先生の基金を基に設けられたもので、デザイナーの方と学術賞の楯のデザインについて議論したことが懐かしく思い返されます。当初は楯の金属部分を磨き板にしたために、彫り込んだ文字が読み難く、第2回から艶消し板に変更したりしました。日本伝熱学会が社団法人化され、名誉会員制度が発足し、名誉会員章にHTSJをデザインして彫り込みましたが、このデザインを表彰状の中にも取り入れたのは、第33期総会の時からだだったと思います。このように学術賞は私にとって非常に身近な賞でしたが、半面、受賞という観点からは高嶺の花といったような感じでした。今回この賞を受賞できたのは、私の周りにおられる諸先生方のあたたかいご助力と、ご指導の賜と思っています。諸先生と申し上げたのは、必ずしも諸先輩を意図しているのではなく、むしろ若い研究者の方々から大きな刺激を得たことも含まれています。懇親会の挨拶でも申し上げたことですが、これからは伝熱研究というより、むしろ伝熱研究を離れて、熱工学のなかで自分なりに興味を持てる分野の研究をやってみたいと考えています。伝熱研究の4月号でも述べましたが、

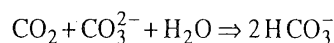
1. 種々の輸送現象を組み合わせて、新しいシステムを構築する複合化研究
2. 輸送現象には関連するが伝熱とは思えない研究
3. 走査(透過)型電子顕微鏡、質量分析計、MRI、分子間力顕微鏡、レーザー顕微鏡、各種イオンレ-

ザ、などを用いた総合力が必要とされる最先端分野でのプロジェクト的共同研究などをターゲットとして考えています。

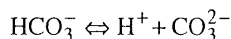
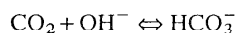
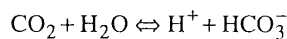
一方、今回受賞した研究内容は従来の伝熱研究の流れの中にあります。気体の液体への吸収は、吸収式冷凍機や、炭酸ガスの海水への吸収など、実用面からみてもそれなりの意味がある研究分野と考えられますが、固体面への熱移動と比較すると次のような特徴があります。

1. 界面の境界条件が固定壁とは異なり、剪断力が零の条件に近い。乱流の構造が通常の剪断流とは異なる。また界面エネルギーの効果が無視できない。
2. 液体中の拡散係数が非常に小さく、濃度境界層が極めて薄い。このため大きな渦構造により界面の高濃度部分がバルク層に運ばれ、その後、小さな渦または分子運動によって拡散する。
3. 液体中でイオン化するために、単純な拡散としてではなく、化学反応を伴う輸送現象として取り扱う必要がある。

炭酸ガスが海水へ解ける時の輸送現象では、水中のCaイオンの濃度が重要な効果を持ちますが、実験ではK<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>、Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>の水溶液を用いています。このとき炭酸ガスの総括水和反応は



で与えられますが、この素反応は



で構成されています。これらの反応のうち3番目と4番目の反応は極めて速く、常にほぼ平衡に達していると考えられます。

炭酸ガスをK<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>が溶存している水中に解かした場合、K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>濃度が1mol/lit程度でヘンリーの法則

で見積もられる濃度の30倍程度の炭酸ガスが溶解できることとなります。これは炭酸ガスが炭酸イオンや重炭酸イオンとして水中に存在するためです。K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>濃度が0.25mol/litの時の水中の炭酸ガス、および炭酸イオン濃度の時間変化を示したものが図1で、初め炭酸イオンが生じ、それが重炭酸イオンへと変化する様子が分かります。そこで、Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液の流下液膜を作り、これに炭酸ガスを吸収させた場合の吸収量を膜Re数に対し示したものが図2です。低Re数領域ではNa<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>水溶液への炭酸ガスの吸収量は純粋の水のそれに較べ明らかに多くなっていますが、高Re数になるにつれ、両者の差が減少します。これは高Re数になるほど液膜の流下時間が減少して、イオン化に必要な時間より短い時間内に装置外に流失することによると考えられます。

一方、図1に示すように炭酸ガスが溶けるにつれ、水溶液のPHは減少しますので、PHの減少量をレーザー蛍光法で可視化すれば、液体中での物質輸

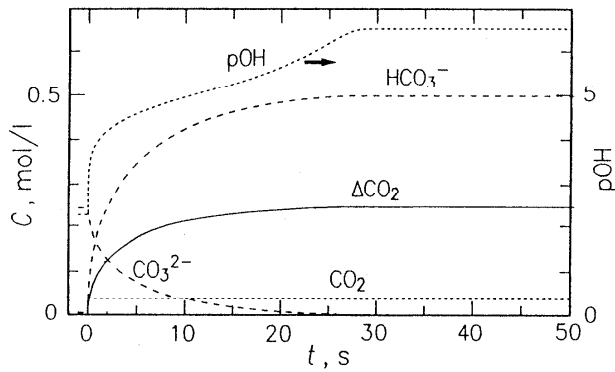


図1 炭酸ガスの吸収とイオン反応の時間

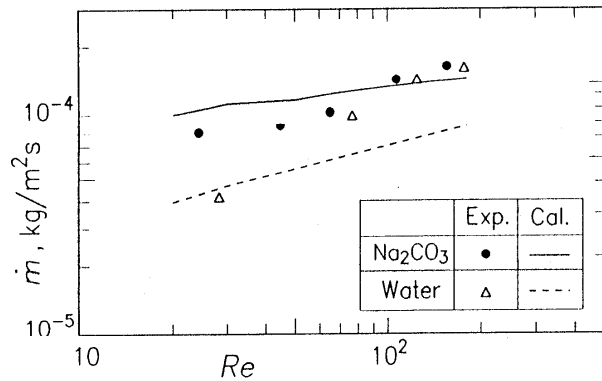


図2 流下水溶液への炭酸ガスの吸収

送現象を可視化することができます。図3は振動格子で生成した乱れにより、自由界面からの炭酸ガスの吸収させた場合の、可視化結果で高い炭酸ガス濃度の領域が濃い色で示されています。比較的大きな渦運動により界面近傍の高濃度の流体がバルク中に運ばれている様子がみられます。蛍光強度はPHと一対一の関係があり、図3の明暗から求めた空間のある点での炭酸ガス濃度を示すと図4のようになります。高濃度領域のスパイク的移動がよく見て取れ、界面から離れるに濃度が薄められ、変動も一様化している様子も分かります。これらの結果は水中での物質移動が界面更新的なモデルにより説明されることを示しています。

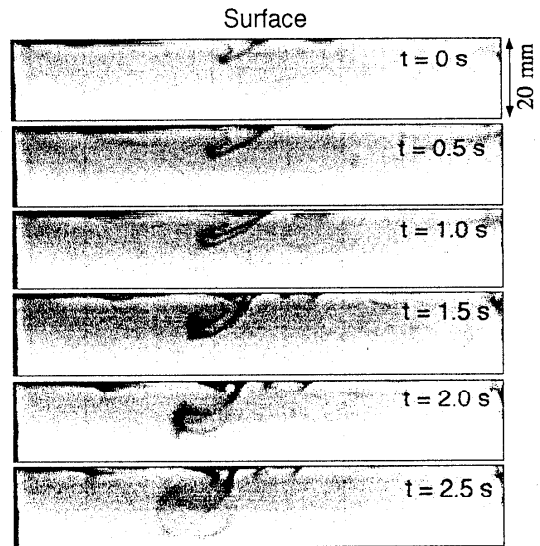


図3 液中の炭酸ガス濃度の可視化

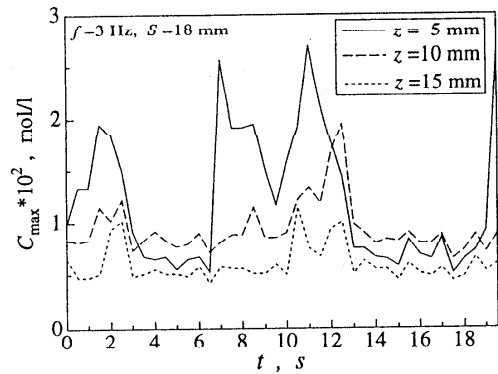


図4 液中の炭酸ガス濃度の時間変化



## 第 8 回日本伝熱学会技術賞を受賞して

*On Receiving the 8th Heat Transfer Society Award  
for Technical Achievements*

小澤 由行, 谷野 正幸, 守屋 充, 関 義輝 (高砂熱学工業株式会社), 成田 勝彦 (東京電力株式会社)

*Yoshiyuki KOZAWA, Masayuki TANINO, Mitsuru MORIYA,  
Yoshiteru SEKI (Takasago Thermal Engineering Co., Ltd.) and  
Katsuhiko NARITA (Tokyo Electric Power Co., Inc.)*

## 1. はじめに

この度は、第 8 回日本伝熱学会技術賞を拝領致し、大変有り難く存じます。受賞にあたり、お世話を戴きました先生方始め日本伝熱学会の会員の皆様様に改めて厚く御礼申し上げます。

ご案内のとおり、日本伝熱学会は熱を巧みに取り扱う科学技術者の幅広い情報交換の場でありまして共に極めて真摯な討論の場でありまして、その高質な活動の成果は広く世界へ発信されています。私どもは、空調設備を始めとした熱およびエネルギーを取り扱う技術を社会に展開させて戴いておりまして、この榮譽を恐悦至極に存じます。

## 2. 過冷却水を利用したダイナミック型氷蓄熱システム

受賞の対象にして戴きました技術開発は、日本冷凍協会論文集, Vol. 12, No. 3 (1995) に投稿しました 3 連報の「過冷却水を利用した氷蓄熱システム」と、空気調和・衛生工学会の学術講演会 (1994, 1995) で発表しました二例の「その大規模実用化」でございます。

ご承知のとおり、夏期昼間の空調による昨今の電力需要の伸びは著しいものがあります。空調設備や地域熱供給事業 (DHC) の企画/設計/施工/運転に係わっております私どもとしましても、この電力需要の伸びを少しでも低減する現実的な方法を提供すべく、上記の氷蓄熱システムを開発して参りました。開発にあたっては、先ずは以下の点に着目しました。

- (1) 蓄熱には一般に大量の蓄熱媒体が必要になります。そこで蓄熱媒体には取扱いが容易な清水を用いる。
- (2) 蓄熱は一般にエネルギーの利用端に導入されます。そこで多種・多様な導入形態を想定して、できるだけ汎用な機器を組み合わせてシステムを作り上げる。
- (3) 冷熱需要には種々のパターンがあります。そこで冷熱負荷に対する応答性の優れたダイナミック型の氷蓄熱システムを開発する。

これらの開発コンセプトを実現するための最初の技術課題は、システム内を流動する過冷却水を如何にして長時間、安定に生成・制御するかであります。過冷却水の安定生成に関する基本的な問題については、わが国では斎藤彬夫、稲葉英男、平田哲夫の各先生の精緻なご研究があります。これらのご研究を大いに参考にさせて戴き、加えて工業利用を念頭において市水レベルの純度の水で、10時間に及ぶ長時間の循環流動系での安定性などを改めて追究して、過冷却水生成用の熱交換器の設計基準を求めました。

次には、できあがった過冷却水の取り扱いがありません。過冷却水には安定性が乏しいという固有の性質があります。そこで、できるだけ早期にかつ限定した場所で、確実に過冷却を解除させる機器の構成と方法を追究しました。また過冷却解除後には、氷水固液二相流を蓄熱槽へ分配して運び込むこととなります。ここでは、できるだけ少ない駆動力で、確実にかつ均等に氷水が運べる方法を組み込みました。

さらに、蓄氷槽内には多くの技術課題があります。一般にダイナミック型の氷蓄熱では、スタティック型に比べて蓄氷槽内の造作は簡潔であるとの利点があります。しかし、幾何学的形状が捉え難いスラリー状の氷の流動・伝熱を定式化する必要があります。私どもでは種々の形状の蓄氷槽を用いて、IPF (氷のみかけの容積率) にして 40% 以上の氷を容易に貯められることを実験的に確認しました。一方、ダイナミック型氷蓄熱システムの利点である大量の冷熱が蓄氷槽から短時間に取り出せることについては、種々の実験を基にした予測計算方法を開発しました。

上述のような技術開発は、主にダイナミック型氷蓄熱システムの要素技術に関係するものであります。私どもの氷蓄熱システムでは、汎用の機器の組み合わせでシステムを構築することを基本にしています。そこで実用化を図る上では、合理的なシステム構成技術を組み込むことが大切になります。すなわち、システムの安定運転制御技術の開発とトータルシステムの簡素化とが具体的な技術課題であります。

幸いにして東京電力幕張DHCにおいて、1,400 kW (400 USRT) 規模の実験実証フィールドを得ることができました。このフィールドでは、要素技術開発で得た設計基準を検証すると共に、複数の過冷却水用熱交換器の並列運転制御技術、複数の蓄水槽への氷水二相流の分配搬送技術などを試験しました。また、実規模システムでの補助動力を含めたシステム COP や解氷特性の計測結果を基にして、トータルシステムの簡素化や高効率化のための各種の方策を立て、さらにそれらの実証試験までを行うことができました。

以上のような「過冷却水を利用したダイナミック型氷蓄熱システム」の技術開発の成果を利用して、芝浦4丁目DHC内に冷熱供給能力の増強を目的とした製氷時の冷凍能力 844 kW (240 USRT) の実用設備を1994年に完成させました。現在までの運転経過では、過冷却水用熱交換器内での1日あたりの凍結頻度は4基全体で0.31回程度と少なく、安定な蓄氷ができています。その結果、氷蓄熱量は夜間10時間で24,424 MJ、到達IPFは53.3%、製氷時のシステム COP は2.41という値が得られています。一方昼間の解氷時には、4℃以下の冷熱を夜間の蓄氷時の3倍以上の出力で安定して取り出すことができています。このような運転実績から、私どもの氷蓄熱システムは実用機として十分に利用できる段階にあるとの評価を頂きました。また、この氷蓄熱システムは地域規模の電力負荷平準化にも役立つものと考えています。

### 3. 今後の課題

わが国の夏期の気候と狭隘な土地に林立するビル群を擁する都市構造とを勘案して、さらにその中で高い生産性を維持するには、冷房需要は不可欠なことでありましょう。平成5年度の総務庁による「エネルギーに関する行政監察」の結果報告書の中では、1988年から1998年の10年間での冷房需要の伸びは、100万kWの発電所20基分に相当するとされています。このような需要増加への対策として、種々のエネルギー技術開発とその導入普及が望まれています。蓄熱技術にも、現実的な方策としてその一翼を担うことが期待されています。とくに、氷蓄熱は小さな蓄熱槽（換言すれば高い蓄熱密度）で、かつエネルギーの利用端で容易に取り扱える技術でありますことから、今後はさらなる導入普及が求められましょう。

氷蓄熱システムにはこのような潜在的な魅力が広く認められておりましても、高価なシステムになってしまえば、その魅力を現実のものにはできません。そこ

で、私どもでは現在までに開発・導入して参りました技術的な成果に対して、経済的な側面から分析を行ってみました。その結果では、私どもの氷蓄熱システムの冷熱製造単価は、通常の水蓄熱のそれとほぼ同程度のレベルに達しております。また、水と氷とのハイブリッド型の蓄熱槽を用いることも容易でありますことを利用して、蓄熱槽全容積の低減とコストの低減とを併せて勘案して、氷蓄熱の適正な導入割合を選択することも可能であります。

私どもの氷蓄熱システムの今後の課題としては、一層のコスト低減を図り、氷蓄熱の持つ優れたポテンシャルを存分に引き出すことでありましよう。氷蓄熱システムでは、低温で高密度な蓄熱が求められますがゆえに、コストに占める固定費の割合が大きくなります。また固定費の中では、当然のこととして熱源設備費、とりわけ冷凍機単体費が大きな割合を占めます。冷凍機ではフロン問題克服のための昨今の使用冷媒の変更もかなりのコスト要因になります。そこで、冷凍機の高いCOPの達成、一層のシステムの簡素化や補助動力の削減など、蓄熱量あたりの熱源容量の低減に向けた技術開発が大切になります。

### 4. おわりに

私どもが独自の氷蓄熱システムの開発に着手してから、約10年が経過してしまいました。これまでにご紹介して参りましたように、蓄熱原理の選択から要素技術の開発、システム構成技術の開発、運転制御技術の開発、実証試験の実施、実用設備の導入など、今から振り返れば幸いにも 連の順序立てた開発経過を辿ってきたように総括できます。しかしながら、「高が『氷蓄熱』、されど『氷蓄熱』」でございまして、当然の間には研究者・技術者の試行錯誤が繰り返されて参りました。そのような折々に頂きました日本伝熱学会の諸先生や諸先輩のご研究やご討論・ご批判は、掛け替えの無い貴重な情報であり、また叱咤激励でもありました。この紙面をお借りして、重ねて皆様に衷心より御礼申し上げます。

昨今は「有限な資源、有限な地球環境！」とよく言われます。これに対して技術開発は、人間の生命・生産活動が続く限り無限と考えられましよう。また資源制約や環境制約を克服する上で、技術開発への期待は無限と言えましよう。今後も、氷蓄熱に限らず熱を取り扱う技術開発で幾ばくかの貢献ができますれば、私どもも技術者冥利に尽きます。旧倍のご指導、ご鞭撻を下さいますようお願い致します。

## 近代史から見た原子力オプション

### *Nuclear Energy Option in Modern History*

杉山 憲一郎 (北海道大学)

*Ken-ichiro SUGIYAMA (Hokkaido Univ.)*

#### はじめに

光陰矢の如し、そんなことを実感する。慌ただしく日常性の中に埋没してしまうと、学生との会話にも迫力がなくなる。現在、自分は何故このような事をして貴重な時間を使っているのだろうか。もっと大袈裟な言い方をすれば、我々ほどの様な歴史的展開の時代にいて何をなすべきなのか。そんな分析を行い認識を新たにするには、自分のためにも教育・研究のベクトルを定める上からも重要である。そんな思いを込めて、400年の歴史を振り返ってみた。勿論、伝熱学に密接に関連するエネルギーの分野からである。

#### 戦略的資源：森林

ルネサンスほどは注目されていないが、オランダとイングランドは、16世紀末から17世紀初頭は最初の産業革命と呼ばれた時期であった。勿論、18世紀後半から始まる本格的な産業革命とは質と規模において同列に比較できないが、その展開は、我々に多くの示唆を与えてくれる。今日と同様、産業の活発化は多量の鉄の需要を生み出した。当時、鉄の生産はまだ木炭に依存していた。したがって、鉄の増産と共に、オランダとイングランドの森林は次々と姿を消した。木材は製鉄のみならず、船舶、家屋、家庭燃料等にとっても必需品である。当然、当時のオランダとイングランドは、戦略的資源とも言える森林の枯渇のため慢性的“木材（木炭）危機”であった。

今日の我々の視点からすれば、オランダとイングランドからの森林の消滅は、再生は可能ではあるが、人間の活動による“国単位”での自然環境破壊の発生と言える。それ以上に重要なことは、経済の視点から言えば、産業活動が、当時の戦略的資源であった森林の再生速度の限界を越えたということである。

この結果、イングランドの産鉄地は経済的支配力

を失い、鉄の生産は、森林の豊かな辺境のスウェーデンとロシアに移った。近代化の動きが、北海沿岸からバルト海沿岸の諸国に拡散したことになる。この推移は、事情は異なるが、何やら、日本の産業が空洞化し始め、東アジア全域に産業が拡散している今日の状況と重なってみえる。

#### 森林から石炭へ

石炭はイギリスではローマ帝国の時代から暖房用として細々と利用されていた。石炭の発熱量は木炭のそれと同じ程度であり、煙と灰の問題を考慮すれば、石炭は圧倒的に不潔で不便な燃料である。しかし、ヨーロッパ奥地の森林資源への依存性が強まり、木材危機が度々発生し木材の値が上昇するにつれて、経済の原理として、資源として豊富な石炭の利用が拡大して行った。

つまり、ヨーロッパの産業活動が、ヨーロッパの森林資源から、大きな制約（輸送を含めた）を受け始めたとき、技術革新（人間の英知）を頼りとして、石炭の利用を開始したと言える。製鉄を例に取れば、理想的燃料であった木炭から、不純物を多量に含み、種々の高温化学反応を生じる石炭への転換は、困難な技術的問題を当時のエンジニアに課すことを前提として、石炭利用に移行したといえる。

産業活動は炭田地帯に移動し、その後、その中心地は固定された。なぜなら、ヨーロッパ大陸の有望な炭田はイギリスおよびフランスとドイツの国境付近に存在し、技術革新を常にリードしたのもそれらの国々であったから。

400年後の今日、石油が加わったが、環境問題の視点からは、この資源の性格は石炭と変わらない。ヨーロッパ大陸で誕生した産業文明の型が、19世紀後半から北米大陸に伝播し、第二次大戦中に高度に洗練され、東アジア全域に本格的に拡散し出した時期に、人間の活動が地球大気の容量限界を越えたのではないかと議論され始めた。400年前、森林という二次元的（地表面）な戦略資源が限界に達し、石

炭という10<sup>8</sup>年（古生代石炭紀）まで遡る地下の三次元的森林資源を利用し始めた。しかし、400年前と異なり、資源容量の限界に達する前に、地球大気という三次元的環境容量が限界に達したのではないかと議論され始めたのである。

#### 地球大気の熱流動現象

新聞・テレビで報道される地球大気の問題は、炭酸ガスを含む、赤外線吸収物質の増大に伴う大気温度の漸次的上昇の側面に焦点を当てている場合が多い。非平衡熱現象を対象とする伝熱学の立場から見れば、このような上昇傾向があるとして、どの時点で局所的異常現象が現れ始め、頻度と規模において、例えば、世界的農産物の生産地帯にどのような影響を及ぼすのかが重要である。すなわち、熱流動現象として気候の分岐現象が発生するかという点である。そんなことは熱流体力学的に有り得ないと、誰かが証明してくれば一番有り難い。

予徴と思われる現象はすでに起きているのかも知れない。1993年3月12日に北米大陸の東海岸で発生したブリザードは、そんなことを著者に感じさせた。フロリダから上陸し、アトランタ、ニューヨークを大雪（局所的には1m以上の降雪があったと記憶している）で覆い、メインに抜けたブリザードは、1888年から始まった米国気象台の観測では最大規模であった。たまたま、フロリダで行われた国際会議直後の米国滞在中の出来事であり、非常に印象的であった。

日本人である著者の感覚では、時期は大幅にずれているが、その移動経路（北上し東へ抜ける）と性格（大量の降雪）から見て台風（当地ではハリケーン）と分類される自然現象であった。台風は北緯20°付近の海水温度が30℃近くまで上昇することにより発生するという経験則に基づけば、3月中旬のカリブ海の水温はすでにこの条件を満たしていたということであろうか…。この'93年3月の異常気象の前後に、日本でも大々的に報道された最強のハリケーン、アンドリュー（'92年9月）と、最大規模の洪水である中西部ミシシッピ流域の長期冠水（'93年夏）が発生している。一年間に最大、最強、最長が偶然の確率で発生するであろうか。

このような事象の続発が気象学的に異常か平常かは、専門家の中でも意見が分かれるところであろう。たとえ、時間経過の中で有意な異常性が確認できるようになったとしても、現在の我々には、気象

を制御することは出来ない。ただ成り行きに任せるのみである。

#### 原子力オプション

400年前の木炭から石炭への転換が、地球大気という大規模開放系への大量廃棄物分の開始だとすれば、原子力オプションは、エネルギーの大量発生と閉鎖系（地層内）への少量廃棄処分が特徴である。この点を納得するためには、原子力（核）エネルギーの物理的実体の把握が必要である。

原子核の中では、陽子同士の電気的反撥力のほかに、核力と言われる非電氣的力が存在し、この力が陽子同士の反撥力に打ち勝ち核子（陽子と中性子）を結合させている。しかし、核力は電気力（ $\propto 1/r^2$ ）より速く減衰する。すなわち、核力は強力ではあるが、守備範囲が狭く最接近粒子間のみ作用する。一方、電気的反撥力は弱い、守備範囲が広く核内の全ての陽子間で生じている。したがって、核内の陽子数が増大すると反撥力が強くなっていく。

天然に存在する核分裂性原子であるウラン（<sup>235</sup>U）は、陽子数92であり核内の力学的バランスは微妙である。力学的外乱があり原子核が変形すれば、電気的反撥力が卓越し容易に飛び散る状況である。熱中性子（ $\sim 0.025\text{eV}$ ）がこの原子核に衝突すれば核自体の分裂が起こる。したがって、原子力（核）エネルギーとは、陽子の正電氣的反撥力が引力である核力に打ち勝って、開放される電気エネルギーである。この電気エネルギーは核分裂片の高速運動に変換され、近傍原子による高速運動の阻止というプロセスにより、近傍原子のランダム運動、すなわち、熱エネルギーへと変換される。これらの物理的プロセスは、機械工学にとって親しみやすいものである。

この電気エネルギーの開放は、極限的不安定状態であり、電磁波（ $\gamma$ 線）や粒子（中性子）の放出を伴い、準安定状態に移行する。準安定状態では原子核の分裂片は新しい原子の誕生と見做せる。しかし、この新しい原子は安定状態になるまで非常に長い時間を必要とするものもある。そのため、時間の経過と共に電磁波や粒子を放出する。一般に、これらの新しい原子は放射性物質、放出されるものは放射線と呼ばれる。

このような核分裂反応では原子当たり MeV オーダーのエネルギーが放出される。化学反応では原子当たり eV オーダーのエネルギーしか放出されない。すなわち、原子力オプションでは、同一分子数に対

し6オーダー大きいエネルギーが開放される。燃料の貯蔵性および輸送性では原子力オプションが圧倒的に有利である。特段に注意を払わなければならない安全性の問題は、一般的には、エネルギー発生における6オーダーの有利性を経済性を担保にどれだけ利用できるかという問題である。すなわち、エネルギー発生における6オーダーの有利性が、経済性および環境性の観点からも圧倒的であれば、システムの工学的安全性に充分投資してかまわないと言える。

原子力オプションで我々が特段の注意を払わなければならない具体的事柄の一つは、原子核エネルギーの開放システム（発電所）において、許容限度を越える正のフィードバックがかかるメカニズムを残さないことである。この視点から言えば、正のフィードバックを効率良く実現できるメカニズムを捜す実験が、核爆弾保有国が行う核実験である。したがって、核爆弾開発の研究とエネルギー開発の研究は、正に、正反対の努力をしていることになる。具体的な熱流動に関連する物理現象については、伝熱研究 Vol.34, No.133 に小特集が組まれたのでここの説明は省略する。

### 環境受容性

化学反応系は、開放型システムを利用せざるを得ない。その結果、システムの成立性は大気環境の存在を前提とする。一方、核分裂反応系は、基本的には閉鎖系である。また、エネルギー発生における6オーダーの相違のため、高レベルの放射性廃棄物の量も圧倒的に少ない。因に、100万kW/年の発電で約1tonである。

最近、高レベル放射性廃棄物の処分は解決不可能な問題ではないと感じ始めている。昨年末、海面下700mの鉱山の採掘作業を見学する機会があった。地層は新生代古第三紀層（ $\sim 5 \times 10^7$ 年前）である。太平洋プレートが沈み込む地帯から最も近い鉱山で

ある。当然、鉱脈帯を1~2kmの間隔で大断層が走り、その落差は50~150mである。著者としては海底までおよぶ断層と受け取った。坑道には地下水らしきものは確認できなかった。鉱山所長は、鉱山排水は非常に少なく、大部分は、採掘層が海底であった時分に地層内に取り残された化石的な海水であろうと説明してくれた。高レベル放射性廃棄物の処分問題の本質は、分子レベルでの物質移動の予測である。 $10^3 \sim 10^4$ 年間の物質移動問題は、海底に生じている断層面の分子レベルの移動阻止メカニズムを理解することにより、相当前進するのではないかと感じた。

著者の楽観的判断は、アフリカのウラン鉱脈に多数存在する天然原子炉の放射性物質の物理化学的挙動と整合している。約 $2 \times 10^9$ 年前に稼働していた原子炉（オクロ天然原子炉と呼ばれている）で生じた高レベル放射性物質（例えば、チェルノブイリ事故で問題となっているプルトニウム）は、当時の場所から実質的に拡散していないのである。

### おわりに

このような拙文を書いたきっかけは、北海道大学の教育システムが変わり、著者が新入生に2回程講義する機会を持ったからである。彼らが成長してきた豊かな時代は、先人のどのようなチャレンジと努力により達成されたのか。そんなことを少し感じてもらおうと思い講義内容を決めた。

そんな訳で400年程の歴史を振り返ってみて、改めて人間の偉大さを感じた。また、現在、日常性の中に埋没している身近かな技術も、開発当時にはエポックメイキングなものが多い。このような歴史的な視点で見れば、現在、何かと騒がれている原子力エネルギーは、100年後にはどのように評価されるのであろうか…。こんな動機で書いてみた。何かお役に立つ内容があれば幸いである。

## 第33回日本伝熱シンポジウムを振り返って

*Looking back upon the 33rd National Heat Transfer Symposium of Japan*

準備委員長 前川 博 (新潟大学)

準備委員 小林 睦夫 (新潟大学)

*Chairman Hiroshi MAEKAWA (Niigata Univ.)*

*and Co-Chairman Mutsuo KOBAYASHI (Niigata Univ.)*

北陸信越グループとして3回目になる本シンポジウムの準備を新潟県内で担当して欲しいとグループから要請があり、新潟大学と長岡技術科学大学の間で協議した結果、施設の収容力などの面でやや難点の少ない新潟市での開催に落ち着いた。準備委員会は、新潟大学だけでは人員が足りないので、広く県内から加勢を抑いで構成した。特に長岡技術科学大学と新潟工科大学におられる経験豊富な方々から要所々々で適切な助言と支援をいただいた。

本年は熱工学関係の国際会議が複数5月末に重なったため、例年より10日ほど早く開催することを理事会でご承認いただいた。参加者の少しでも多いことを願う準備委員会の台所事情も、この提案と無関係ではなかった。そのためか、事前参加の申込者数は4月22日の締切日を過ぎて伸び悩み、ずいぶん当方の気を揉ませた。しかし結果的には、本シンポジウムは、会員各位のお陰で講演論文数437件、参加登録者930名と極めて盛況裡に開催することができた。半面、コマ数の限られた日程表中にこれだけの講演を配置するとなると講演室は最大9室必要となり、3会場への分散が避けられなくなった。初日の朝と2日目の総会前後など需要の多い時間帯にシャトルバスを運行したのも気休めに過ぎず、心ならずも多数の参加者の皆様にご足労をお掛けしてしまった。会期中、好天に恵まれたのがせめてもの救いであった。予め検討していた新潟大学脳研究所OBによる特別講演も日程上の都合で断念せざるを得なかった。

今回から電子メールによる研究発表申込みを試験的に採用した。郵送やファクシミリによる従来方式を含め3様の方式が混在することとなり、多少の混乱はあると予想していた。しかし申込みの88%が締切日を挟む3日間に集中し、しかも停電によるファクシミリの機能停止などのハプニングにも見舞われてスタッフは大変困惑した。電子メールによる申込みは約20件に過ぎなかったが、今後に向けて試行の意義は十分あったと思う。

申込書はMicro-Soft社のAccessを使用してデータ・ベース化した。約300人時間のマンパワーを使って入力し、さらに慎重な校正を経て完成させたデータ・ベースを、論文執筆要領とともに申込み者に送付したところ、約70%の方々から何らかのポリッシングがあった。事由は論文題目の変更、著者名の変更・追加等であった。ごく気軽になされたであろうこれらの変更が、本来不要なはずの労働をスタッフに強いる結果となった。今回、裏方の仕事に携わって、こうした実態を初めて知り、改善の必要性を強く感じた。最も人手を要したのがこの入力作業であるが、仕上がったデータ・ベースはプログラムの編成にはもちろんのこと、座長や講演者の個人別時間表のチェック等にも大いに威力を発揮した。しかし同一人物の人名等で新旧漢字が混用される場合が少なくなく、そのため別人と識別してご迷惑をお掛けしたこともあった。

これまでに5年以上連続して座長をお願いした方には、今回は原則として座長をお休みいただくことにした。そのため、会長経験者からごく若い会員の方々まで、広い年齢層にわたって座長をお願いすることになったが、ありがたいことにほとんどの方々が快くお引き受けくださった。

従来、本誌会告上でのプログラム公表とシンポジウム開催日との間の時間的余裕が少ないため、参加者に不便を掛けているという問題があった。こうした誌上広報の弱点をカバーする意味で、今回初めて開設したインターネット・ホームページは非常に有効であった。延べ約1200名のアクセスがあったが、その大半が4月中旬以降の20日間に集中したことから見て、目的は果たされたと言ってよいであろう。

振り返って特色というほどのものの何一つないシンポジウムではあったが、参加者各位が充実した会期を過ごされる上でいささかでもお手伝いできたとするならば、準備委員一同にとってまことに幸せなことである。

## 小特集「多成分系の伝熱」にあたって

*Preface to Special Issue: Heat Transfer of Multicomponent Systems*

第34期編集委員会 青木 和夫 (長岡技術科学大学)  
長坂 雄次 (慶應義塾大学)

Kazuo AOKI (Nagaoka University of Technology)  
and Yuji NAGASAKA (Keio University)

2種以上の成分からなる多成分系が関与する伝熱過程は混合気体の分離操作、合金の生成、化学反応を伴う系など、化学工業、金属工業、燃焼など多くの分野で古くから取り扱われています。

最近、この多成分系の伝熱現象に対し、広い分野できめ細かな取り扱いが要求されてきています。例えば、多成分系の凝固・融解を例にとると、機能性材料の創生と関連して、急速凝固による合金のデンドライト構造、ミクロ偏析、アモルファスの積極的利用、また、電力の平準化や未利用エネルギーの利用を目的とした潜熱蓄熱における種々の水溶液や熔融塩の蓄熱材としての利用、さらには、食品・生体の凍結保存などが挙げられ、多成分であるがゆえに生ずるミクロ構造が系全体の特性に重要な役割を演じております。

また、地球環境におけるフロン問題を例にとっても、CFC 冷媒の全廃に続いて HCFC 冷媒の生産規制が始まり、HCFC-22 の代替とした HFC-32/125/134a や HFC-32/125 など多成分系の非共沸冷媒および疑似共沸冷媒の沸騰・凝縮の基礎的取り扱いやシステムの性能評価が緊急課題となっています。

このように、伝熱研究を取り巻く材料・エネルギー・生体・環境といったキーワードの多くの分野で多成分系の伝熱が重要な位置を占めるとともに、熱伝導から凝縮・沸騰にいたる伝熱の基礎現象の全てに深く関連してきています。

これらを背景にして、これまで伝熱研究においてもすれば避けがちな多成分系の状態図の理解や化学ポテンシャル、自由エネルギーに代表される化学熱力学的な取り扱いにも目を向けるとともに、多成分系の状態図で示される平衡系に対し、非平衡過程の速度論を如何に適用していくかはこれからの伝熱研究に欠くことのできない重要な課題であると考えられます。

この観点から、今回の小特集では多成分系が関与する伝熱についての特集を企画いたしました。特集を組むに際し、多成分系に関する基礎的な取り扱いとともに、現在広く進められている応用的研究を含めてより

広範囲な特集とすることも提案されました。しかし、それぞれのテーマに関連する応用的研究はいずれもそれ自体で多くの内容を含んでおり、小特集としての紙面の関係および全体的なまとまりの点から、一緒にここに含めることはむずかしいものと判断されました。従って、今回は多成分系の伝熱の基礎的な取扱いに焦点を絞らせていただき、応用的な研究は次の機会に取り組むことにいたします。

また、燃焼や希薄気相・希薄プラズマ中の分子、イオンが関与する化学反応を伴う系も多成分系の重要な部分を占めるものでありますが、同様にこの小特集の一つの項目とするにはあまりに多くの紙面が必要であるとの判断のもとでここでは除外いたしました。

本特集を通して、個々の伝熱現象において多成分のもつ特徴が明確にできるとともに、多成分系の伝熱を取り扱う場合の統一的な理解が少しでも深まれば幸いです。

諸般の事情により、ここで取りあげた各項目の順序が必ずしも適当ではないものと存じますが、各項目はそれぞれ個々の著者により執筆された独立した内容となっております。読者の必要に応じた順序でお読みいただければと存じます。

最後に、ご多忙中にもかかわらず、短期間で解説記事のご執筆を賜りました著者の方々に心より感謝の意を表す次第であります。

## 合金の凝固

## Solidification of Alloys

鈴木 俊夫 (東京大学大学院工学研究科金属工学専攻)

Toshio SUZUKI (Department of Metallurgy, School of Engineering, the University of Tokyo)

## 1. はじめに

ここでは、主として2元系合金を対象として、凝固に関する基礎理論の最近の進歩を、その実験例とともに紹介する。特に急速凝固組織の形成に視点を定め、その理解に必要な古典的核生成理論とデンドライト成長理論を解説する。さらに、デンドライト成長理論の応用として、急速凝固過程の組織変化、成長相変化を予測する基本的な概念とそれに関する結果を述べる。

## 2. 核生成

## 2.1 純物質の核生成速度

ゆらぎの熱力学理論によれば、平衡状態で単位モル当たり  $n$  個の原子を含むクラスター数は、

$$N_{n,t}^e = N_A \exp\left(-\frac{\Delta G_n}{k_B T}\right) \quad (1)$$

与えられる。ここで、 $N_A$  は Avogadro 数、 $\Delta G_n$  は  $n$  個の原子のクラスターを形成する際の自由エネルギー変化、 $k_B$  は Boltzmann 定数、 $T$  は温度である。

クラスター形状を球形とすれば、 $\Delta G_n$  は単位原子当たりの自由エネルギー差  $\Delta G'$ 、界面エネルギー  $\sigma$ 、原子体積  $\bar{v}$  を用いて次式で表される。

$$\Delta G_n = n\Delta G' + (32\pi)^{\frac{1}{3}} \bar{v}^{\frac{2}{3}} n^{\frac{2}{3}} \sigma \quad (2)$$

$\Delta G'$  は融点より低い温度で負となるが  $\sigma$  は常に正なので、 $\Delta G_n$  は臨界クラスターサイズ  $n^*$  で最大値  $\Delta G_{n^*}$  となる。

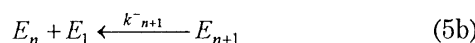
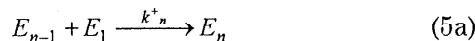
$$\Delta G_{n^*} = \frac{16\pi}{3} \frac{\sigma^3}{\Delta G'_v} \quad (3)$$

$$n^* = \frac{32\pi}{3\bar{v}} \frac{\sigma^3}{|\Delta G'_v|} \quad (4)$$

なお、 $\Delta G'_v$  は体積当たりの自由エネルギー差。

$\Delta G_n$  が  $n^*$  で最大となることから、臨界サイズ

より小さなクラスターは縮小し、大きなクラスターは成長する。このようなクラスターサイズの変化は、速度論的な観点から単純化したクラスターの成長と縮小反応によって記述できる。すなわち、 $n$  個の原子からなるクラスター  $E_n$  の分布は次の2つの反応式により決まる。



これを仮定すれば、サイズ  $n$  のクラスターの生成速度はクラスター数  $N_n$  と速度定数  $k_n^+, k_{n+1}^-$  を用いて、次の様に表されることになる。

$$I_{n,t} = N_{n,t} k_n^+ - N_{n+1,t} k_{n+1}^- \quad (6)$$

核生成の過程を単純化して、臨界サイズを超えたクラスターは急速に成長するので、 $n > n^*$  で  $N_{n,t}$  は 0、また、 $n \leq n^*$  では  $N_{n,t}$  は平衡値の  $N_{n,t}^e$  に等しいと仮定すると、単位モル当たりの核生成速度  $I$  が、

$$I = N_{n^*}^e \cdot k_{n^*}^+ = k_{n^*}^+ \cdot N_A \exp\left(-\frac{\Delta G_{n^*}}{k_B T}\right) \quad (7)$$

与えられる[1]。また、実際のクラスター分布は平衡状態ではなく定常状態であると考え、定常状態での核生成速度  $I^s$  は(7)式に補正因子を乗じた

$$I^s = N_{n^*}^e \cdot k_{n^*}^+ \cdot \sqrt{\frac{|\Delta G'|}{6\pi k_B T n^*}} \quad (8)$$

と修正される[2,3]。

(8)式を金属のような凝縮系に適用し、熱活性化型の反応速度を仮定すると、

$$k_{n^*}^+ = 4n^{\frac{2}{3}} \gamma \exp\left(-\frac{\delta g_n}{k_B T}\right) \quad (9)$$

となる[4]。ここで、 $\delta g_n$  は原子の移動(拡散)の活性化エネルギー、 $\gamma$  は界面における原子のジャンプ頻度である。この  $\gamma$  を拡散係数  $D$  と原子間隔  $\lambda$  で書き換えると核生成速度式が得られる。



$$I^s = \frac{24Dn^{*2}N_A}{\lambda^2} \sqrt{\frac{|\Delta G'|}{6\pi k_B T n^*}} \exp\left(-\frac{\Delta G_n^*}{k_B T}\right) \quad (10)$$

この式は一般に頻度因子を次式のように近似して用いられている。

$$I^s \approx \frac{N_A k_B T}{h} \exp\left(-\frac{\delta g_n}{k_B T}\right) \exp\left(-\frac{\Delta G_n^*}{k_B T}\right) \quad (11)$$

ここで、 $h$ は Planck 定数。

急速凝固のように融液の温度が急速に変化する場合には、核生成速度  $I$  は定常に達するまでに一定の時間  $\tau$  を要する。この場合の核生成速度は、一般に定常核生成速度と定常状態までの特性時間  $\tau$  の関数  $F(\tau)$  の積として与えられる。

$$I = I^s \cdot F(\tau) \quad (12)$$

いくつかの報告で  $F(\tau)$  の具体的な関数形が提案されているが、いずれも指数関数的に定常に近づく関数形を持っている。[5-8]。

不均質核生成の場合には、核と不均質核物質との濡れ性により臨界クラスター生成の自由エネルギーは減少する。この場合にも(10)式中の  $\Delta G_n^*$  として、不均質核との濡れ角  $\theta$  の関数で修正した次式を用いればよい。

$$\Delta G_n^* = \frac{16\pi}{3} \frac{\sigma^3}{\Delta G_v} f(\theta) \quad (12a)$$

$$f(\theta) = \frac{1}{4}(2 + \cos \theta)(1 - \cos \theta)^2 \quad (12b)$$

## 2.2 合金系の核生成速度

合金系の核生成速度式にも(10)式と類似の式が用いられる。

$$I^s = A^*_{a,b} \exp\left(-\frac{\Delta G(n^*, n^*_a)}{k_B T}\right) \quad (13)$$

ただし、 $A^*_{a,b}$  は組成に依存する頻度因子で、 $\Delta G(n^*, n^*_a)$  は  $n^*_a$  個の  $a$  原子を含む  $n^*$  個原子の臨界クラスター生成の自由エネルギーである。合金系の核生成の取り扱いでは、この臨界クラスターの組成とクラスター生成の自由エネルギーをどう決めるかが問題となる。

一般に  $\Delta G(n^*, n^*_a)$  は組成とクラスターサイズに対する極値を取ると考えられており、

$$\frac{\partial \Delta G(n, n_a)}{\partial n} = 0, \quad \frac{\partial \Delta G(n, n_a)}{\partial n_a} = 0 \quad (14)$$

を満たす。しかし、この条件だけで臨界クラスターの組成を決定できない。すなわち、臨界クラスターと液相は平衡状態でないので、自由エネルギーを算出するにはクラスターの組成を決める必要がある。

提案されている簡単なモデルの1つは、臨界クラスターの組成は相変化によるクラスターの自由エネルギー変化が極大になる値を取る、というものである。この条件は、クラスターと液相での各原子の化学ポテンシャル差が等しいという条件に整理され、

$$\Delta \mu_a = \Delta \mu_b \quad (15)$$

となる。この条件と熱力学的な溶液モデルを仮定すれば、具体的な臨界クラスター組成が決まり、核生成速度が求められる[9]。

核生成理論を検証することは一般に困難であり、報告例も少ない。ただ、ガラスは核成長速度が小さく、透明で観察も容易なため、核生成速度を実験的に求めた結果も報告されている[10,11]。これに対し、合金系のデータは限られており、いくつかの合金で組成と最大過冷度の関係が求められるにとどまっている。図1に Cu-Ni 合金の実験結果と核生成理論による予測の例を示すが、理論と実験の一致は必ずしも良くない[9]。また、合金の核生成理論の応用として初晶晶出相の予測を試みた例もあるが、必ずしも成功を収めていない[12]。

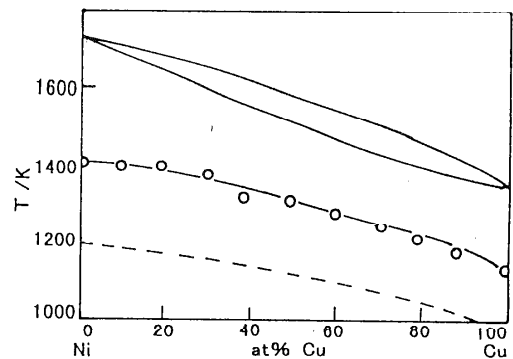


図1 Ni-Cu 合金の最大過冷度 (○印は実験値、破線は均質核生成、実線は  $f(\theta) = 0.16$  とした場合の不均質核生成に対する理論予測)

## 3. 界面の成長機構と非平衡効果

界面が成長を続ける場合には、界面の温度、

溶質濃度は平衡状態からずれていなければならない。金属の界面は原子的に粗く、その移動は一樣であることに留意すると、界面の成長速度  $V$  は固相と液相の自由エネルギー差  $\Delta G$  を用いて次のように表される[13]。

$$V = fV_0 \left[ 1 - \exp\left(-\frac{\Delta G}{RT_i}\right) \right] \quad (16)$$

ここで、 $R$  は気体定数、 $T_i$  は界面温度、 $f$  は界面における成長サイトの分率（金属ではほぼ1に等しい。）、 $V_0$  は界面前進速度の上限値で、音速のオーダーである。

平衡からのずれが小さい場合には上式は次のように簡化できる。

$$\frac{V}{V_0} = -\frac{\Delta G}{RT_i} \quad (17)$$

また、純金属では  $\Delta G$  が凝固潜熱  $\Delta H$  を用いて簡単に  $\Delta G = -\Delta H(T_M - T_i)/T_M$  と表せるので、上式は動的過冷度  $\Delta T_K = T_M - T_i$  と速度の関係として、

$$V = \mu_0 \Delta T_K \quad (18)$$

と整理できる。この比例係数  $\mu_0$  は線形速度論係数と呼ばれる。

合金系の場合には、成長速度の増加につれ平衡からのずれが大きくなり、各相の組成も変化する。このような場合にも熱力学的な制約が働くとし、希薄溶液近似を用いると、 $\Delta G$  は次のようになる[14]。

$$\frac{\Delta G}{RT_i} = \left\{ \ln \left[ \frac{1-C_s^*}{1-C_L} \frac{1-C_L^e}{1-C_s^e} \right] \right\} \cdot (1-C_s^*) + \left\{ \ln \left[ \frac{1-C_s^*}{1-C_L} \frac{1-C_L^e}{1-C_s^e} \right] \right\} \cdot C_s^* \quad (19)$$

ここで、 $C_s^*$ 、 $C_L^*$  は移動する界面での固相、液相の溶質濃度、 $C_s^e$ 、 $C_L^e$  は平衡状態での固相、液相の溶質濃度である。さらに、溶質の平衡分配係数  $k = C_s^e/C_L^e$  と、速度に依存した分配係数  $k_V = C_s^*/C_L^*$  を考えると、液相線勾配  $m$  の成長速度依存性が次のように求められる。

$$m_V = m \left( 1 + \frac{k - k_V + k_V \ln(k_V/k)}{1 - k} \right) \quad (20)$$

上記の熱力学的関係とは別に、分配係数の速度依存性は原子移動の速度論的考察から求められ、次式が提案されている[15]。

$$k_V = \frac{k + \beta_0 V}{1 + \beta_0 V} \quad (21)$$

ただし、 $\beta_0 = a_0/D_i$ 、 $a_0$  は原子間距離のオーダーの特性距離、 $D_i$  は界面での拡散係数である。

なお、提案されている分配係数や液相線勾配の成長速度依存性を直接測定することはできないので、後述の自由デンドライトの成長速度測定や急速凝固試料の溶質分布の測定と組織観察の結果から、モデルの妥当性が検討される。

## 4 デンドライト成長

### 4.1 デンドライト先端の安定性

純金属がデンドライト成長するのは、過冷された融液への自由な成長の場合であり、この時の成長速度やデンドライト先端のサイズは融液の過冷度によって決まる。このため、デンドライト理論は過冷融液への自由デンドライト成長を主たる対象として展開されてきた。

$z$  方向に速度  $V$  で定常成長するデンドライトの3次元形状は等温界面を持つ回転放物体である。この時の先端近傍の温度場は回転放物体座標  $(\alpha, \beta, \theta)$  を用いた次の方程式で記述される。

$$\frac{d^2 T}{d\alpha^2} + \left( \frac{1}{\alpha} + 2P_t \alpha \right) \frac{dT}{d\alpha} = 0 \quad (22)$$

ここで、 $\alpha$  は回転放物体座標、 $P_t$  は熱 Peclet 数で  $P_t = V\rho/2\alpha_L$ 、 $\rho$  は先端曲率半径、 $\alpha_L$  は温度伝導率である。

この方程式の解は Ivantsov により求められており[16]、界面位置を  $\alpha=1$  とすると次式となる。

$$T_i - T_\infty = \frac{\Delta H}{c_L} I_V(P_t) \quad (23)$$

なお、 $T_i$  はデンドライト先端温度、 $T_\infty$  は無限遠方の過冷融液の温度、 $\Delta H$  は体積当りの凝固潜熱、 $c_L$  は体積当りの比熱、 $I_V(P)$  は Ivantsov 関数  $I_V(P) = P \exp(P) E_1(P)$  で、 $E_1(x)$  は積分指数関数である。

(23)式の解では温度場が  $P_t$  の関数となっているので、これだけでは与えられた過冷度に対してデンドライト成長速度と先端曲率半径を一意に決められない。このため、界面温度に曲率過冷と動的過冷を考慮したモデル(Temkin モデル[17])や前者のみを考慮したモデル(修正 Ivantsov モデル)が提案されてきた。すなわち、界面の等温条件に代わり、デンドライト先端近

傍の界面温度  $T_t$  を次式で与えることになる。

$$T_t = T_M - \frac{2\Gamma}{\rho} - \frac{V}{\mu_0} \quad (24)$$

ここで、 $\Gamma$  は Gibbs-Thomson 係数 ( $=\sigma \cdot T_M / \Delta H$ 、 $\sigma$  は固液界面エネルギー) である。

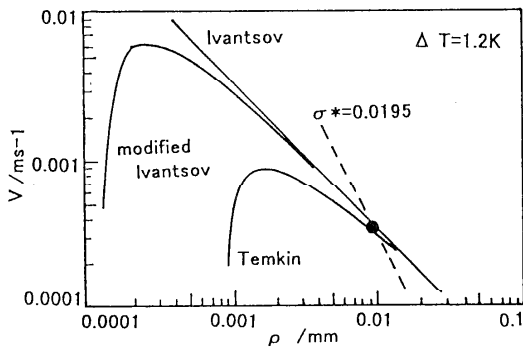


図2 サクシノニトリルの自由デンドライト成長における先端曲率半径と成長速度の関係 (●印は実験値、曲線は各種モデルの予測)

界面で曲率過冷を考慮すると、図2に示すように先端曲率半径に対し成長速度が最大を持つので、この“与えられた過冷度で成長速度が最大となる”条件が先端のサイズを決める基準として想定されてきた。なお、これらのモデルでは界面温度が等温でないため、(22)式も $\beta$ 方向の依存性を持つ形に修正され、これに対する厳密解が求められている[18]。

最大成長速度の基準を用いたデンドライト成長の予測は、図2のように透明有機物の測定結果[19]とは異なっており、新たな基準として先端の安定性の概念が提案されてきた[20,21]。この基準は、熱拡散で生じる不安定な力を毛管力が安定化するというものである。具体的には、熱拡散長  $l = a_L / V$  と毛管長  $d_0 = \Gamma_{c_L} / \Delta H$  の組み合わせた次式の安定性パラメータ  $\sigma^*$  が定義され、これにより  $\rho$  と  $V$  の関係が決まる。

$$\sigma^* = \frac{ld_0}{\rho^2} \quad (25)$$

安定性パラメータの値に対する結論はまだでないが、これまでの報告では0.019~0.025の範囲であり、平らな界面の安定性と関連で導出された  $1/4\pi^2$  の値[21]がよく用いられる。

#### 4.2 合金のデンドライト成長

合金のデンドライトは、過冷融液中へ成長する自由デンドライトと、一方向凝固法のように一定の成長速度、温度勾配の条件下で成長する拘束デンドライトに分けられる。いずれのデンドライトの成長も熱と溶質の移動に律速されるが、溶質については固相中の溶質拡散が液相中のそれに比べ遅いことから、通常は固相中の溶質拡散は無視される。

液相中の溶質濃度は、先端近傍では界面に沿って等濃度と見なせるので、濃度場は温度場と同様の方程式で記述され、その解は次式となる。

$$C_t - C_\infty = C_t(1-k)I_v(P) \quad (26)$$

ここで、 $C_t$  は先端濃度、 $C_\infty$  は無限遠方の濃度、 $P$  は溶質 Peclet 数  $P = 2D/V\rho$  である。

溶質場と温度場は固液界面での熱力学的平衡条件あるいはこれに曲率過冷や動的過冷を考慮した次式の条件で結合される。

$$T_t = T_M + m_V C_t - \frac{2\Gamma}{\rho} + \frac{V}{V_0} \frac{m}{1-k} \quad (27a)$$

あるいは、合金の動的過冷も単純に純金属の場合と同じとすると、次式となる。

$$T_t = T_M + m_V C_t - \frac{2\Gamma}{\rho} - \frac{V}{\mu_0} \quad (27b)$$

上の境界条件を想定すると、界面は等温、等濃度でなくなる。このため、デンドライト先端近傍での場の厳密解も得られているが[22]、簡単のために濃度場の計算には(26)式を用いるのが通常である。

合金のデンドライト先端曲率半径を定めるためには、純金属での議論と同様の先端安定性の基準が用いられる。ただし、ここでは熱と溶質拡散のそれぞれに対する寄与を考慮しなければならない。議論の詳細は省略するが、先端曲率半径と凝固条件の関係として次式が一般に用いられる[23,24]。

$$mG_c \xi_c - G = \frac{1}{\sigma^*} \frac{\Gamma}{\rho^2} \quad (28)$$

ここで、 $G$ 、 $G_c$  は先端での温度勾配、濃度勾配、 $\xi_c$  は濃度場に対する高 Peclet 数領域に対する補正関数[25]である。

一方向凝固法やレーザー照射法のような拘束デンドライト成長では、温度勾配、成長速度は変数となる。この場合には、先端での質量保存

則を適用し、(26)式を微分して求めた  $G_c$  を(28)式に代入して先端曲率半径を求める。さらに、この値から先端温度、先端濃度を求める。

過冷融液中への自由 dendrait 成長では、(28)式中の温度勾配  $G$  には、固相、液相の熱伝導率  $\kappa_s$ 、 $\kappa_L$  を重みとした各相の温度勾配  $G_s$ 、 $G_L$  の平均値が用いられる。

$$G = (\kappa_s G_s \xi_s + \kappa_L G_L \xi_L) / (\kappa_s + \kappa_L) \quad (29)$$

なお、 $\xi_s$ 、 $\xi_L$  は固相、液相の温度場に対する高 Peclet 数領域に対する補正関数である[25]。

実際の計算では、 $G_s$  が  $G_L$  に比べて十分小さいので  $G_s \approx 0$  と近似し、さらに先端近傍を等温として、 $G_L$  を(23)式の微分から求めている。なお、合金の自由 dendrait 成長では、先端曲率半径とともに、成長速度、先端温度、先端濃度の4つが未知数となり、これらは(23)、(26)、(27)、(28)式により決定される。

これまでの議論では単純な2元系合金を仮定してきたが、dendrait 成長理論は多元系へ拡張可能である。この場合には、次式のように、(28)式中の  $mG_c$  項を各成分の寄与  $m_i G_{c,i}$  の総和と置き換えることで、上記の議論がそのまま適用できる。

$$mG_c = \sum_i m_i G_{c,i} \quad (30)$$

ただし、上式は液相面を平面に近似することに対応し、一般には正しくない。また、多元系合金での液相線勾配や分配係数が正確に知られていないことが、理論の検証を困難にしている。

#### 4.3 dendrait 成長理論の実験的検証

dendrait 成長を検証する実験、特に合金系による実験は少ない。拘束 dendrait 成長では、一方向凝固中の Al-Cu 合金 dendrait の先端温度測定[26]、同合金の先端曲率半径と先端濃度の測定[27]が挙げられる。いずれも、凝固途中の急冷試料についての測定であり、試料数や実験条件範囲の点でデータ量は限られている。このため、無次元溶解エントロピーの値が金属のそれにほぼ等しく、界面構造や状態図が合金と類似している、サクシノニトリル-アセトン系などの透明有機物の実験結果が、理論の検証にはしばしば用いられる。例えば、この系の一方向凝固 dendrait の先端曲率半径が広い条

件範囲で測定され、理論との一致も良いことが示されている[28]。

自由 dendrait の成長速度や先端曲率半径の測定でもサクシノニトリル-アセトン系のデータがしばしば参照される[29]。データは過冷度が比較的小さい低 Peclet 数領域のものに限定されているが、理論との一致も良い[30]。

合金を用いた実験では、過冷融液中の dendrait 成長速度が、過冷度の関数として測定される[31-33]。合金の実験では先端曲率半径の測定は不可能だが、有機物に比べて大過冷度の実現が容易であり、測定される成長速度も数  $m/s$  に及ぶ。このため、高成長速度領域で顕著になる、3で述べた界面の成長機構や非平衡効果を間接的に検証できる利点がある。

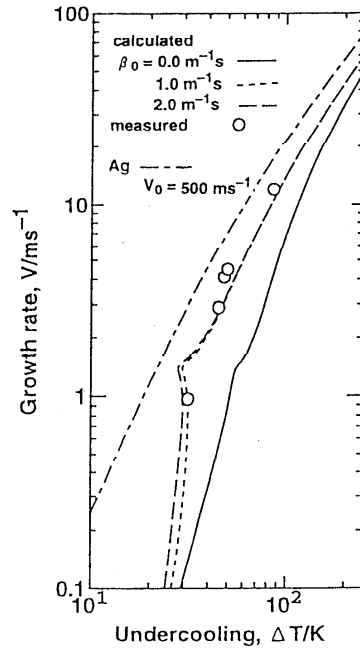


図3 Ag-5wt%Cu 合金における過冷度と dendrait 成長速度 (○印は実験値、曲線は界面の非平衡効果を考慮した理論予測)

図3は Ag-5%Cu 合金の実験結果を理論と比較することにより、界面の非平衡効果を検討した結果を示す。この例では、まず Ag の実験結果から(17)式の  $V_0$  を求め、さらに、この値と合金の実験結果から(21)式の  $\beta_0$  を求めている。図から分かるように、分配係数に速度依存性を考慮

たモデルにより実験結果をよく説明できる。

なお、高成長速度での溶質捕捉現象を示す例として、レーザーによる Ag-15%Cu 合金表面の急速溶解凝固実験の結果がよく引用される[34]。この報告では、デンドライト中心部の溶質濃度がビーム走査速度の増加につれ平均組成に近づき、理論の予測とほぼ一致するとされている。

## 5 急速凝固組織の形成

### 5.1 急速凝固における界面形態変化

さまざまな機能性材料の製造に用いられる、単ロール法、ガスアトマイジング、レーザー表面処理といった急冷凝固プロセスでは、通常とは異なった組織や非平衡相が形成される。この急速凝固組織の形成をデンドライト成長理論の観点から理解することが試みられ、一定の成功を収めている。

急速凝固時の組織変化の典型は、通常のデンドライト組織が消滅して無偏析領域が形成されたり[35]、セルと無偏析の領域が交互に生じるバンド構造が形成されたり[36]、することである。これらの組織変化は、高成長速度の領域で平らな界面が再び安定に成長することに関連している。その要因の1つは、ある成長速度 $V_c$ 以上で平らな界面が再び安定成長するという、線形安定性理論(MS理論[37])による絶対安定性の予測である。もう1つの要因は(21)式で表される溶質捕捉であり、界面での溶質分配がなくなると平らな界面が安定になることに対応する。一般に溶質捕捉の実現する成長速度は絶対安定性のそれに比べて大きいので、溶質捕捉による無偏析組織の形成以前に、急速凝固特有の組織変化が生じることになる。

これら組織変化と、成長速度と界面温度の関係を模式的に図4に示す。成長速度が平らな界面の成長限界(a)を超えると、界面形態はセルに変化し(a-b)、界面温度は固相線温度からほぼ液相線温度近くまで上昇する。その後界面形態はデンドライトへと変化し(b-c)、界面温度は徐々に減少する。さらに成長速度が増加すると界面形態は再びセルになり(c-d)、絶対安定性により平らな界面が実現するまで界面温度も上昇する(e)。ただ、この時点ではまだ、完全な溶質捕捉は生じていない。

絶対安定性による平らな界面の成長と溶質分配の減少によって界面温度は上昇するが、さらに成長速度が増加すると成長に必要な動的過冷が増加し、界面温度は低下することになる。この結果、セル成長が開始し、完全な溶質捕捉の生じるまでの速度領域では、界面温度が成長速度に対し極大値を持つことになる。すなわち、図4の②から③の領域では成長速度の増加につれ成長の駆動力としての界面過冷が逆に減少することになり、成長は不安定となる。このため、界面は平均的な成長速度を一定に保ちながら、①→②→④→③→①の状態を周期的に変化をすることになる。これがAl合金などで観察されるバンド構造の形成理由とされる[38,39]。このような機構を仮定すれば、数値解析によりAl-Fe合金ガスアトマイズ粉末でのマクロ界面変動や組織変化なども予測できる[40]。

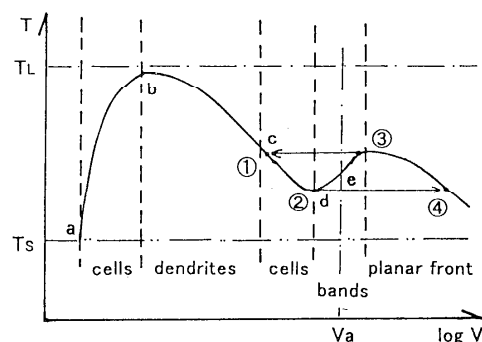


図4 成長速度に対する界面温度、界面形態、組織の変化

### 5.2 成長相の予測と凝固組織マップ

合金の液相から晶出する固相は組成により変化する。しかし、同じ組成の合金でも急速凝固時には晶出、成長する固相が変化し、通常と異なった組織が形成される場合もある。18Cr-8Ni ステンレス鋼の急速凝固では、冷却速度が増加し、核生成時の過冷度が増加すると、表面近傍の成長相が安定フェライト相から準安定オーステナイト相に変化すると報告されている[41]。

これら形成相の変化を核生成の観点から議論することも重要である[42,43]。しかし、現象を成長相の変化としてとらえ、デンドライト理論から理解することも実際的である。この場合には成長相を決める基準として“界面過冷度最小”

の条件が用いられる。ステンレス鋼の例では、ある過冷度または成長速度に対してデンドライト成長理論により求めたオーステナイト相、フェライト相の界面温度を比較し、界面温度のより高い相が優先成長するとして、成長相を予測する[44,45]。成長相の選択基準をマクロ的な温度場の解析と組み合わせると、さらに詳細な表面組織形成の検討も可能となる[46]。

成長相の選択という概念は、デンドライトだけでなく、ファセット成長する金属間化合物や炭化物、さらには共晶成長に対しても拡張できる。そこで、ある合金系について、組成と成長速度の広い範囲で成長する相や組織を決定し、これを図示すると、いわゆる“凝固組織マップ”が作成できる[47,48]。図5はAl-Cu合金の凝固組織マップの例を示すが、先に述べたデンドライト、セルからバンド構造、平らな界面への組織変化が一目瞭然に理解できる。

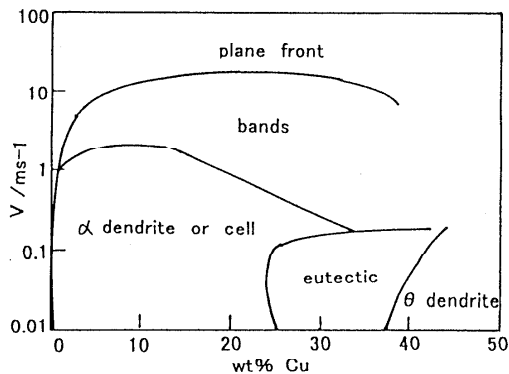


図5 Al-Cu合金の凝固組織マップ

## 6. おわりに

以上、合金の凝固について、基礎理論の発展とその応用を簡単に紹介してきた。基礎研究の観点からは合金の凝固現象に対する理解はすでに一定の水準に達したと思えるが、応用の面ではまだ多くの問題が残されている。表面欠陥、内部欠陥とマクロ偏析の形成、凝固殻の変形挙動、マクロ組織予測などが、その例である。

また、ここでは触れなかったが、凝固組織制御に関連して、核生成やデンドライト成長といったマイクロ成長条件と温度場の解析を組み合わせた、いわゆる“マイクロマクロ解析”の進展は実用的な観点からも今後の発展が期待されて

いる。これについては参考文献に挙げた解説などを参照していただきたい[49,50]。

## 文献

- [1] M. Volmer and A. Weber, Z. phys. Chem., 119 (1926), 277
- [2] R. Becker and W. Doering, Ann. Phys., 24 (1935) 719
- [3] K. F. Kelton, Solid State Phys., 45 (1991) 75
- [4] D. Turnbull and Fisher, J. Chem. Phys., 17 (1949) 71
- [5] J. B. Zeldovich, Acta Physicochim URSS, 18 (1943), 1
- [6] H. Wakeshima, J. Chem. Phys., 22 (1954), 1614
- [7] F. C. Collins, Z. Electrochem, 59 (1955) 404
- [8] D. Kashchiev, Surf. Sci., 14 (1969) 209
- [9] C. V. Thompson and F. Spaepen, Acta Metall. 31 (1983) 3021
- [10] D. G. Morris, Acta Metall., 29 (1981) 1213
- [11] R. S. Tiwari et al., Mater. Sci. Eng., 55 (1982) 1
- [12] W. Loser, T. Volkmann and D. M. Herlach, Mater. Sci. Eng., A178 (1994) 163
- [13] J. C. Baker and J. W. Cahn, "Solidification", ASM, Metals Park, Ohio, (1971), 23
- [14] W. J. Boettinger and S. R. Coriell, "Science and Technology of the Undercooled Melt", ed. by P. R. Sahm, H. Jones and C. M. Adams, Martinus Nijhoff Publications, Dordrecht, (1986), 81
- [15] M. J. Aziz, J. Appl. Phys., 53 (1982), 1158
- [16] G. P. Ivantsov, Dokl. Akad. Nauk SSSR, 69 (1947), 567
- [17] D. E. Temkin, Dokl. Akad. Nauk SSSR, 132, (1960), 1307
- [18] R. Trivedi, Acta Metall., 18 (1970), 287
- [19] M. E. Glicksman, R. J. Schaefer and J. D. Ayers, Metall. Trans., 7A (1976), 1747
- [20] W. Oldfield, Mater. Sci. Eng., 11 (1973), 211
- [21] J. S. Langer and H. Mueller-Krumbhaar, Acta Metall., 26 (1978), 1681, 1689, 1697
- [22] Y. Miyata and T. Suzuki, Metall. Trans., 16A (1985), 1807

- [23]W.Kurz and D.J.Fisher, *Acta Metall.*, 29 (1981), 11
- [24]J.Lipton, W.Kurz and R.Trivedi, *Acta Metall.*, 35(1987), 957
- [25]R. Trivedi and W.Kurz, *Acta Metall.*, 34 (1986), 1663
- [26]M.H.Burden and J.D.Hunt, *J. Crystal Growth*, 22(1974), 109
- [27]Y.Miyata, T.Suzuki and J.Uno, *Metall. Trans.*, 16A(1985), 1799
- [28]K.Somboonsuk, J.T.Mason and W.Kurz, *Metall. Trans.*, 15A(1984), 967
- [29]M.Copra, M.E.Glicksman and N.B.Singh, *Metall. Trans.*, 19A(1988), 543
- [30]J.Lipton, M.E.Glicksman and W.Kurz, *Mater. Sci. Eng.*, 65(1984), 57
- [31]Y.Wu, T.J.Piccone, Y.Shiohara and M.C.Flemings, *Metall. Trans.*, 18A(1987), 915
- [32]M.Barth, K.Eckler, D.M.Herlach and H.Alexander, *Mater. Sci. Eng.*, A133 (1991), 790
- [33]T.Suzuki and K.Sakuma, *ISIJ Int.*, 35 (1995), 178
- [34]W.J.Boettinger, I.A.Bendersky, S.R.Coriell, R.J.Schaeffer and F.S.Biancaniello, *J. Crystal Growth*, 80(1987), 17
- [35]C.Levi and R.Merabian, *Metall. Trans.*, 13A(1982), 221
- [36]M.Gremaud, M.Carrard and W.Kurz, *Acta Metall. Mater.*, 39(1991), 1431
- [37]W.W.Mullins and R.F.Sekerka, *J. Appl. Phys.*, 34(1963), 323, 35(1964), 444
- [38]M.Carrard, M.Gremaud, M.Zimmermann and W.Kurz, *Acta Metall. Mater.*, 40(1992), 983
- [39]S.Grill and W.Kurz, *Acta Metall. Mater.*, 41(1993), 3563
- [40]S.G.Kim, S.H.Shin, T.Suzuki and T.Umeda, *Mater. Sci. Eng.*, A181/A182(1994), 1156
- [41]水上英夫、鈴木俊夫、梅田高照, *鉄と鋼*, 77(1991), 1672, 78(1992), 580, 1369
- [42]H.Loesser, T.Volkman and D.M.Herlach, *Mater. Sci. Eng.*, A178(1994), 163
- [43]G.Shao and P.Tsakiropoulos, *Acta Metall. Mater.*, 42(1994), 2937
- [44]H.Loesser and D.M.Herlach, *Metall. Trans.*, 23A(1992), 1585
- [45]H.Mizukami, T.Suzuki, T.Umeda and W.Kurz, *Mater. Sci. Eng.*, A173(1993), 361
- [46]佐久間健、鈴木俊夫、鉄と鋼、81(1995), 518
- [47]S.Gill, M.Zimmermann and W.Kurz, *Acta Metall. Mater.*, 40(1992), 2895
- [48]P.Grilglen, A.Zryd and W.Kurz, *ISIJ Int.*, 35(1995), 566
- [49]M.Rappaz, *Int. Mater. Rev.*, 34(1989), 93
- [50]D.M.Stefanescu, *ISIJ Int.*, 35(1995), 637

多成分系の熱物性  
- 流体の輸送性質を中心に -

Thermophysical Properties of Multicomponent Systems  
- Transport Properties of Fluids -

長坂 雄次 (慶應義塾大学大学院工学部)  
Yuji NAGASAKA (Keio University)

1. はじめに

傾斜機能材料や混合冷媒などに代表されるように、材料にさらに高度な機能や付加価値を付けるために、複数の物質を混合あるいは配列させた多成分系（ここでは一言でそう呼ぶことにする）物質の利用が増えてきている。これらの場合は、意図的にデザインして多成分系になっているが、設計段階で純粋な物質を想定していても、動作中に不純物が混入して実際には多成分系になっており、その影響を考慮しなければならない場合も多い。工学的・工業的に使用されている物質の多くは、多成分系であるとも言えるだろう。

多成分系の伝熱問題を定量的に解くためには、多成分系の各種熱物性値が必要であることは言うまでもない。しかし、熱物性値に関する多くのデータブックを見ても、多成分系が積極的に記載されている例は少なく、ニーズを満たしているとは言えな

い。純物質に関するデータは、比較的充実してきているし、また高精度のデータも実験技術の向上とともに増えて来ている。しかし多成分系のデータは非常に限られている。その理由は簡単で、多成分系は無数にあり、網羅的に測定することは不可能だし、データブックに載せることも難しいからである。もちろん、特定の多成分系（例えば代替フロン混合物）について集中的かつ系統的に測定することは可能である、しかし、一般的な多成分系にはこの手法は適用できない。

そこで、伝熱問題で重要になる多成分系の熱物性値に関して、次のような研究が今後さらに重要になると考えられる。

- (1) その場測定方法の開発 (計測技術)
- (2) 新たな推算手法の研究 (理論あるいはシミュレーション)

表1 多成分系の熱物性値が必要な例

相など	均質/不均質	具体的な例	備考
気体		湿り空気, 混合冷媒, 燃焼ガス	
液体		水溶液, ブライン, 混合冷媒, 油 海水, 地熱水, 溶岩 熔融スラグ 熔融半導体 熔融高分子	微量な不純物の影響
固体	不均質 不均質 不均質	合金 セラミックス 分散系複合材料 傾斜機能材料 岩石, 土砂, 石炭 断熱材, 多孔性物質 コンクリート等建築材料 高分子材料 ガラス固化体 木材, 皮, 繊維	方向性のある不均質 含水率の影響大
固体/気体	不均質	粉粒体, 多孔性物質 霜相	
固体/液体/気体	不均質	凍土, 土壌	
食品・農産物	不均質	穀物, 肉, 魚, 加工食品	不均質混合系で水分が重要
生体物質	不均質	血液, 皮膚, 臓器, 筋肉	その場測定 (in vivo) が必要



(1)については、すでに述べたように<sup>(1)</sup>、例えば錆び付いた金属表面のままの状態でのふく射率や、あるいは現場での汚水や汚泥などの熱伝導率を簡便に測定する、いわば熱物性値マルチメータのような装置の開発を意味する。(2)については、平衡性質、非平衡性質いずれについても、これまで数多くの研究がなされているが、単純な系しか扱えなかったり、経験則的なものが多く応用範囲が限られており、さらに研究が必要である。

ここでは、流体の輸送性質を中心に、多成分系の理論的扱いの基礎と現状ベストがどこにあるのかを述べる。

## 2. 熱物性の混合則 (Mixing Rule) と推算

表1は伝熱研究において、多成分系の熱物性値が必要な例をまとめたものである。混ぜたら性質がどうなるか？についての一般論はなく、個々の物質、性質で考えなければならないが、多成分系の熱物性を扱う場合にまず考慮しなければならない項目は：

(1)成分と組成、(2)成分の相、(3)成分の形状や構造、である。つまり、多成分系の材料としてのキャラクター化ができるかどうかをまず重要になる。材料の素性がある程度わかれば、熱物性の推算にもとりかかれるが、それが不可能な場合には、その場測定するしかない。また材料のキャラクター化ができた場合でも、各純成分の熱物性値

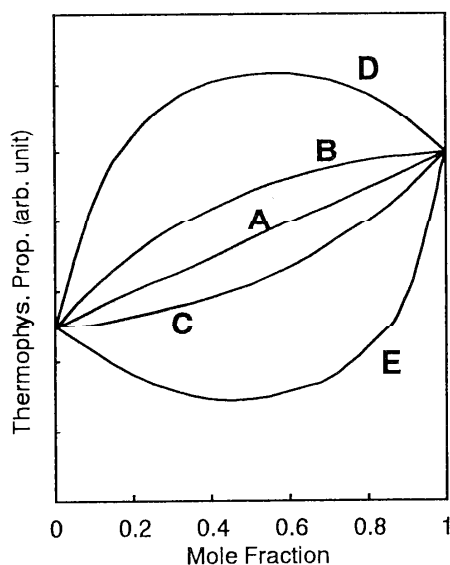


図1 混合則：混ぜたらどうなるか？

が既知かどうかによって推算方法は変わってくる。

一般的に熱物性の混合則とは、多成分系の熱物性値を各純成分の組成およびその熱物性値を使って表現する式のことを意味する。図1は2成分系のある熱物性値の組成依存性を模式的に描いたものである。最も単純な混合則は、理想気体の比熱のようにモル分率についての加性が成立する図1のAの場合である。通常の場合、定性的にはほとんどの熱物性値が、図1のA～Eのどれかの組成依存性を示すと考えて良い。(特殊な物質の組合せの粘性率などでは、最大・最小のあるS字型のような組成依存性の例やシャープな極大を示す例もある<sup>(2)</sup>。)混合則について特に注目した研究には、混合液体の粘性率についての理論式と実測値(1960年以前)を集大成した石川の著書<sup>(2)</sup>があり、また流体の熱伝導率と粘性率のデータと混合則の関数形をまとめた例もある<sup>(3)</sup>。

多成分系の熱物性値推算を行うには次の2つの方向とそれぞれの特徴がある。

- (1)理論的に厳密な手法：単純な系での見通しは良いが、複雑な系では実用にならない場合が多い。
- (2)実験値を基礎にした相関式を用いる手法：単純で実用的ではあるが、適用範囲が狭く推算能力が弱い場合が多い。

実用的でしかも幅広い系に適用できる推算方法は、(1)(2)を相補的に用いる方法である。つまり、理論的ベースが明確で、組成や温度依存性を表す関数形は理論をもとにし、複雑な係数などをポイントを押さえた精密な実測値あるいは計算機シミュレーションのデータより決定する方法である。流体の熱物性値推算法に関して全般的に知りたい場合は、幾つかの著書<sup>(4,5)</sup>があるので参照されたい。

## 3. 気体 (低密度) の多成分系の輸送性質

### 3-1 単原子分子気体

低密度における単原子分子気体の輸送係数は、Boltzmann方程式

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \frac{\partial f}{\partial \mathbf{r}} + \frac{\mathbf{F}}{m} \cdot \frac{\partial f}{\partial \mathbf{v}} = J(f) \quad (1)$$

のChapman-Enskog解としてほぼ厳密に記述できる<sup>(6)</sup>。ここで、 $f$ は分布関数、右辺は分子衝突による

$f$  の変化を表す項である。この理論は、以下の仮定のもとに導かれている。

- (1) 二体分子衝突のみが重要な低密度気体である。
- (2) 分子の内部自由度はない。
- (3) 分子間力の場は対称的な球形である。
- (4) 分子間の衝突は古典力学で記述される。

一例として、熱伝導率は

$$[\lambda^0]_1 = \frac{75(k^3 T)^{\frac{1}{2}}}{64 \pi m} \frac{1}{\sigma^2 \Omega^{(2,2)*}(T^*)} f_\lambda \quad (2)$$

のように表すことができる。ここで、 $T^*$  は還元温度  $T^* = kT/\epsilon$ 、 $\epsilon$  および  $\sigma$  は分子間ポテンシャルパラメータ、 $\Omega^{(2,2)*}$  は還元衝突積分である。Chapman-Enskog理論による輸送係数は、厳密には無限級数として表現され、 $f_\lambda$  はこの無限級数項を表現する因子であるが、通常高次の展開を行っても、第1項のみとの違いは1~2%程度であるため、無視されることが多い。また添字0は、輸送係数が圧力の影響をほとんど受けない低密度での値を示し、zero-density limitとも呼ばれ、通常は数気圧程度まで適用可能である。(2)式より、分子間ポテンシャルモデルを決定すれば、輸送係数が計算できる。

この理論を多成分系に拡張することは容易で、(1)式を $v$ 成分の連立方程式に置き換え、同様の手法で解けばよい。しかし、解は非常に複雑であり、やはり熱伝導率についてのみ書くと以下ようになる。

$$[\lambda_{mix}^0]_1 = - \left| \begin{array}{ccc|c} L_{11}^{11} & \dots & L_{1v}^{11} & x_1 \\ \vdots & & \vdots & \vdots \\ L_{v1}^{11} & \dots & L_{vv}^{11} & x_v \\ \hline x_1 & \dots & x_v & 0 \end{array} \right| \left| \begin{array}{ccc} L_{11}^{11} & \dots & L_{1v}^{11} \\ \vdots & & \vdots \\ L_{v1}^{11} & \dots & L_{vv}^{11} \end{array} \right| \quad (3)$$

ここで、

$$L_{ij}^{11} = \frac{-x_i x_j m_i m_j}{2A_{ij}^* [\lambda_{ij}^0]_1 (m_i + m_j)^2} \left\{ \frac{55}{4} - 3B_{ij}^* - 4A_{ij}^* \right\} \quad i \neq j \quad (4)$$

$$L_{ii}^{11} = \frac{x_i^2}{[\lambda_{ii}^0]_1} + \sum_{\substack{k=1 \\ k \neq i}}^v \frac{x_i x_k}{2A_{ik}^* [\lambda_{ik}^0]_1 (m_i + m_k)^2} \times \left\{ \frac{15}{2} m_i^2 + \frac{25}{4} m_k^2 - 3m_k^2 B_{ik}^* + 4m_i m_k A_{ik}^* \right\} \quad (5)$$

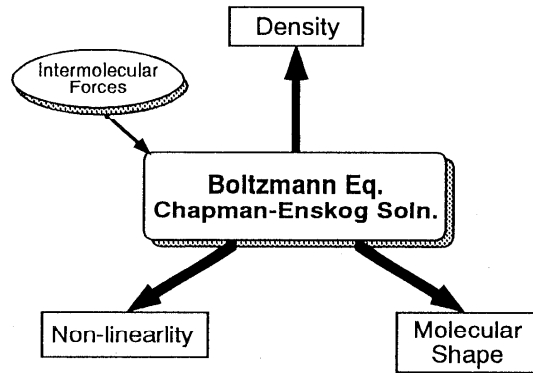


図2 Boltzmann方程式を中心とした流体の輸送性質の理論展開

$$[\lambda_{ij}^0]_1 = \frac{75 \left( \frac{k^3 (m_i + m_j) T}{2\pi m_i m_j} \right)^{\frac{1}{2}}}{64} \frac{1}{\sigma_{ij}^2 \Omega_{ij}^{(2,2)*}(T_{ij}^*)} \quad (6)$$

である。式中  $m$  は分子の質量、 $x$  はモル分率、また  $A_{ij}^*$ 、 $B_{ij}^*$  は還元衝突積分の関数であり、詳細は他の輸送係数や高次の近似式（分子の質量が大きく異なる場合重要になる）なども含めて文献<sup>(6)</sup>に詳しい。多成分系を扱う場合には、(6)式の  $\lambda_{ij}$  ように異種分子間の相互作用を表す輸送係数が必要になる。これは平均分子量  $2m_i m_j / (m_i + m_j)$  の仮想的な気体で、その分子間ポテンシャルパラメータ  $\sigma_{ij}$ 、 $\epsilon_{ij}$  は

$$\sigma_{ij} = (\sigma_i + \sigma_j) / 2 \quad (7)$$

$$\epsilon_{ij} = (\epsilon_i \epsilon_j)^{1/2} \quad (8)$$

を用いる。

以上の理論は、低密度希ガスのあらゆる多成分系の輸送係数計算に適用できるが、実際の正確な計算には、分子間ポテンシャルモデルおよび一貫性のあるポテンシャルパラメータの決定（実験値から求める）が必要である。Kestinら<sup>(6)</sup>はこの理論と、分子間ポテンシャルについての対応状態原理および量子効果の補正を用いて、5種の希ガス（He, Ne, Ar, Kr, Xe）の2成分から5成分までの多成分系について、第2ビリアル係数、粘性率、熱伝導率、自己および相互拡散係数、熱拡散比を、50K程度からイオン化温度までの広い温度範囲について計算を行っている。この対応状態原理（Extended law of corresponding states）とは、特定の2体分子間ポテン

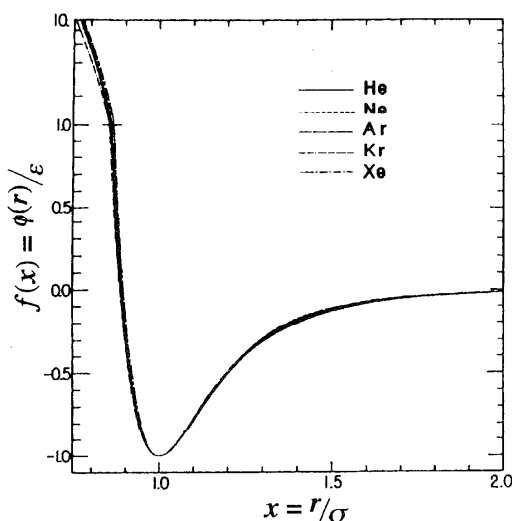


図3 スケーリングされた分子間ポテンシャル<sup>(11)</sup>

シャルモデルを用いなくても、適切なスケーリングパラメータを導入することによって、すべてのポテンシャル曲線が一本に重なるという仮定である<sup>(10)</sup>。つまり、希ガスにおいては、すべての分子間ポテンシャルが

$$\phi(r) = \epsilon f(r/\sigma) \quad (9)$$

で表示され、 $f$  がユニバーサルな関数になる（図3参照）というものである。この計算結果は<sup>(9)</sup>、現時点の最高精度の実験と同等の推算精度があり、希ガスの多成分系の熱物性値の決定版と言える。

### 3-2 多原子分子気体

単原子分子気体では完成しているChapman-Enskog理論も、多原子分子になるだけで、困難が生じてくる。多原子分子気体で新たに考慮する必要がある項目は以下のようなものである。（図2）

- (1)分子に形状があるため、方向依存性のある分子間ポテンシャルが必要になる。
- (2)並進以外に、回転、振動などの内部自由度を考慮する必要がある。

ただし、これらの問題がマクロな輸送性質に大きく効いてくるのは、分子衝突に伴うエネルギーの伝達に内部自由度の寄与が大きい、熱伝導率の場合だけである。拡散係数や粘性率については（Masonら<sup>(12)</sup>

の近似解はあるが）、質量や運動量の輸送が分子の内部自由度に鈍感であるため、多原子分子であっても、適切な分子間ポテンシャルパラメータを選択したり対応状態原理を用いれば、多成分系についても前節の理論が十分適用できる<sup>(8)</sup>。

多原子分子の多成分気体の熱伝導率については、Monchickら<sup>(13)</sup>によって幾つかの仮定で、以下のような式で表されている。

$$\lambda_{\text{mix}}^0 = \lambda_{\text{HE}} + \Delta\lambda \quad (10)$$

$$\lambda_{\text{HE}} = \lambda_{\text{mix, trans}} + \sum_{i=1}^V [\lambda_i^0 - \lambda_{i, \text{trans}}] \left[ 1 + \sum_{j \neq i} \frac{x_j D_{i, \text{int}, i}}{x_i D_{i, \text{int}, j}} \right]^{-1} \quad (11)$$

$\Delta\lambda$  については、複雑すぎるため省略した。ここで、 $\lambda_{\text{mix, trans}}$  は並進成分のみ抽出した多成分系の熱伝導率で、前節(3)式から(6)式で表される。 $\lambda_{i, \text{trans}}$  は  $i$  成分の熱伝導率の並進成分で、(2)式により算出できる。 $D_{i, \text{int}, j}$  は、 $i$  分子の内部自由度エネルギーの  $j$  分子の衝突による拡散係数を表し、実測が極めて困難である。この理論を用いて、計算を試みた例はあるが<sup>(14)</sup>、多成分系の熱伝導率を推算する方法としては、必ずしも適当ではなく、むしろ純物質のデータから組成依存性のみを予測する方法と考えるべきである。

## 4. 液体の多成分系の輸送性質

Boltzmann方程式を中心にした理論を密度を大きくする方向に発展させると（図2）、高密度気体や液体を扱うことになる。超臨界域や臨界点近傍のような高密度流体の多成分系の熱物性は、超臨界抽出に代表されるような工学的応用だけでなく、現象としても面白く未知の部分がたくさんある。しかし、紙面の制約もあるので、ここでは通常の液体の多成分系の輸送係数に絞ることにする。

液体の純物質および多成分系については、現在までのところ低密度気体の場合のような厳密な理論がないため、現実的な分子間相互作用を用いて輸送係数を精度良く推算する方法はない。もちろん、全く異なるルートとして分子動力学法によるアプローチはあるが、現在までのところ精度良く（少なくとも10%以内）任意の多成分系の輸送係数を簡便に算出

することは容易ではない。従って、これまで液体の多成分系の輸送係数推算には、実験データを基に作成された相関式を利用してきた。これらの経験的相関式は数多く提案されてきているが（例えば文献<sup>(4,5)</sup>）、使用する場合には以下の点に留意する必要がある。

- (1) 物理的にしっかりした裏付けがない場合が多いため、相関式の基礎にした実験データの範囲外（温度、物質の種類など）に適用できない場合がある。つまり本来の意味での予知力に乏しい。
- (2) 基礎にしている実験データの信頼性が十分検討されていない場合がある。

ここでは、従来ある相関式には触れないこととし、現時点では理論的基盤が比較的しっかりし、かつ適用範囲も広い剛体球理論による推算方法について述べる。

#### 4-1 剛体球理論(Hard-sphere Theory)<sup>(15)</sup>

従来、高密度流体の輸送係数を計算する理論として、Enskog<sup>(16)</sup>の方法が用いられることが多かった。この理論は、密度の増加に伴う単位時間当たりの分子の衝突回数の変化を、直感的な方法でBoltzmann方程式に組み込むことによって高密度流体の輸送係数を記述したものである。Enskog理論による輸送係数の一例として、熱伝導率  $\lambda_E$  は以下のように表される。

$$\lambda_E = \lambda_0 \left[ g(\sigma)^{-1} + 1.2(b/V) + 0.755g(\sigma)(b/V)^2 \right] \quad (12)$$

ここで、

$$\lambda_0 = \frac{75}{64\sigma^2} \left( \frac{k^3 T}{\pi m} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (13)$$

は、(2)式の低密度気体の熱伝導率を分子直径  $\sigma$  の剛体球に適用したものであり、 $g(\sigma)$  は動径分布関数、 $V$  はモル体積、 $b = \frac{2}{3}\pi N\sigma^3$  である。この理論を現実の高密度流体に適用する試みは多くなされてきたが、特に高密度領域ではあまり満足のいく成果は得られなかった。その最大の理由は、Enskog理論では分子間の衝突について"molecular chaos"の仮定つまり、各分子は過去の衝突の記憶全く無しに次の衝突

に進んでいく、という仮定を用いている点にあった。実際には、液体のような密度の高い系では、一つの分子に注目すると、次の分子に衝突する時に、その直前の衝突と反対の速度を持っていることが多く (back-scattering)、速度の相関を考慮する必要が生じてくる。

Alderら<sup>(17)</sup>は、この分子衝突相関の影響を剛体球による分子動力学シミュレーションを行って明らかにし、Enskog理論に補正を加える形で、剛体球高密度流体の輸送係数を表した。

$$\lambda_{HS} = \lambda_E \left( \frac{\lambda_{HS}}{\lambda_E} \right)_{MD} \quad (14)$$

熱伝導率の場合、上式の  $(\lambda_{HS}/\lambda_E)_{MD}$  が分子動力学によるEnskog理論への補正項を表し、 $V_0/V$  の関数で与えられている。この補正項の大きさは最大で粘性率の場合で約50%、拡散係数で約40%、熱伝導率で数%である。このように剛体球モデルを基本にして、Enskog理論に対して、分子動力学による分子衝突の相関の補正を行って高密度流体の輸送性質を求める理論を剛体球理論と呼んでいる。

実際の剛体球理論（より詳しくは Exact Smooth Hard-sphere Theory）の利用は、例えば粘性率の場合には次のように行う。粘性率について補正を加えたEnskog理論式を無次元化すると、

$$\eta^* = \left( \frac{\eta_E}{\eta_0} \right) \left( \frac{\eta_{HS}}{\eta_E} \right)_{MD} \left( \frac{V}{V_0} \right)^{2/3} = F(V/V_0) \quad (15)$$

と変形できる。ここで、

$$V_0 = \frac{N\sigma^3}{\sqrt{2}} \quad (16)$$

は、最密充填モル体積である。一方  $\eta^*$  は実際の流体が剛体球に従うと仮定して、実験値を以下のように無次元化して表すことも可能である。

$$\eta^* = 2.093 \times 10^8 V^{2/3} \frac{\eta_{\text{exp}}}{(M/T)^{1/2}} \quad (17)$$

剛体球理論が、ある温度における粘性率の実験デー

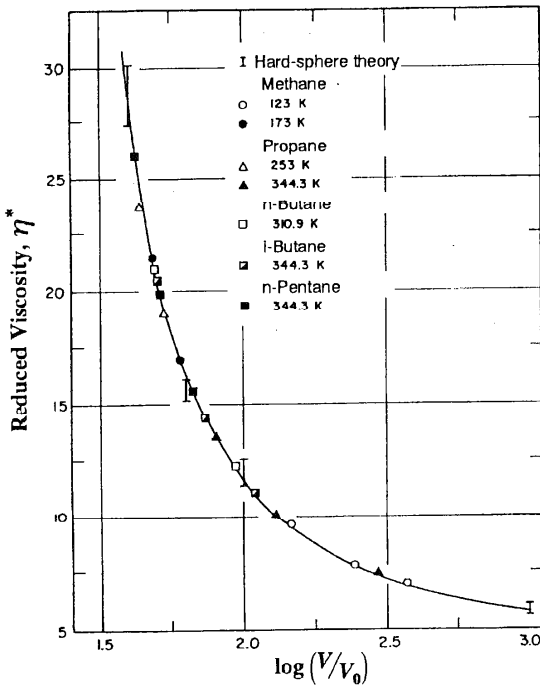


図4 剛体球理論による液体の粘性率の相関<sup>(18)</sup>

タの密度依存性を十分表現しているかどうかをテストするためには、まず理論から(15)式で  $\eta^*$  を  $\log(V/V_0)$  に対してプロットし、他方(17)式より実験データを無次元化して  $\log(V)$  の関数としてプロットする。次に、グラフ上で(17)式を平行移動することによって両曲線を重ねることができれば、その系は剛体球理論で記述できることになる。そして、両曲線が重なった点から  $V_0$  を決定し、 $V_0$  は温度が高くなると小さくなるコア体積として温度の関数として得られる。図4は、粘性係数の場合の上で述べたグラフの一例を示している<sup>(18)</sup>。分子形状が球に近いような場合については、液体状態の拡散係数や熱伝導率についても剛体球で記述できる。また分子の球形からのはずれや内部自由度の問題を、剛体球の Roughness として理論に取り込み、Rough Hard-sphere Theory<sup>(19,20)</sup>として推算に用いられている。

#### 4-2 Assaelらの推算手法（多成分系）

最近、Assaelらのグループは一連の論文<sup>(21-26)</sup>で剛体球理論をさらに発展させ、多くの液体とその多成分系のすべての輸送係数を相関・推算する方法を提案している。彼らの研究内容のポイントは次のようにまとめられる。

- (1)各輸送係数について、すべての液体についてユニバーサルな関数形を提案している。
- (2)ある物質に関してすべての輸送係数で一貫性のある  $V_0(T)$  を用いている。
- (3)分子の非球形性をフネスパラメータとして導入し、物質ごとに相関式を作成している。
- (4)多成分系にも適用可能で、5%程度で推算可能である。

n-アルカンの多成分系<sup>(23)</sup>の輸送性質の具体的な推算法を熱伝導率を例に以下に述べる。

熱伝導率についてのユニバーサルな関数は以下のように求められている。

$$\log_{10} \left[ \frac{\lambda_{\text{exp}}^*}{R_\lambda} \right] = \sum_{i=0}^4 a_{\lambda i} (V_0/V)^i \quad (18)$$

$$\lambda^* = \frac{\lambda_{\text{exp}}^*}{R_\lambda} = 1.936 \times 10^7 \left[ \frac{M}{RT} \right]^{1/2} \frac{\lambda V^{2/3}}{R_\lambda} \quad (19)$$

ここで  $a_{\lambda i}$  は、 $i=0-4$  まで: 1.0655, -3.5380, 12.1200, -12.4690, 4.562 のように決定されている。コア体積  $V_0$  は、温度とn-アルカンの炭素数で表示されており、例えばC5からC16までは次式で与えられている。

$$\begin{aligned} 10^6 V_0 = & 117.874 + 0.15(-1)^C - 0.25275T + 0.000548T^2 \\ & - 0.0000004246T^3 \\ & + (C-6)(1.27 - 0.0009T)(13.27 + 0.025C) \end{aligned} \quad (20)$$

また  $R_\lambda$  は分子の非球形の効果を考慮する因子で、炭素数の関数で

$$\begin{aligned} R_\lambda = & -18.8416C^{-1.5} + 41.461C^{-1} - 30.15C^{-0.5} \\ & + 8.6907 + 0.001337C^{2.5} \end{aligned} \quad (21)$$

と表示されている。n-アルカンについての任意の多成分系の熱伝導率を推算するには、 $V_0$  と  $R_\lambda$  に以下のような混合則を適用し、あたかもこれらのパラメータを持った純物質のように扱えば良い。

$$V_{0,m} = \sum_{i=1}^n x_i V_{0,i} \quad (22)$$

$$R_{\lambda,m} = \sum_{i=1}^n x_i R_{\lambda,i} \quad (23)$$

ここで  $x_i$  は  $i$  成分のモル分率である。(20)~(23)式を用い必要とする多成分系の  $V_{0,m}$  と  $R_{\lambda,m}$  を算出し、多成分系の  $V$  がわかっているならば、(18)式のグラフの横軸の位置がわかるため、その時の縦軸の値と(19)式より多成分系の  $\lambda$  を求めることができる。 $n$ -アルカン多成分系の熱伝導率と粘性率については、2成分から4成分の実験結果を5%以内で予測している。

この方法は、剛体球理論をベースに輸送係数の密度依存性を精度の高い実験データをもとに構築した一種の相関であるが、他の経験的な推算式に比べて、任意性のあるパラメータがなく、かつ粘性率、拡散係数、熱伝導率どれについても一貫性のある手法で、しかも5%程度の誤差で実用的に推算できることに意義がある。 $n$ -アルカンだけでなく、 $n$ -アルコール、芳香族炭化水素適用できることが、明らかになっており、今後多成分系液体の輸送係数の推算手法として、幅広く使われていくものと考えられる。

### 5. 分子シミュレーションの役割

実験ですべてを検証することが不可能なほど無限に組み合わせがある多成分系の熱物性研究には、今後さらに計算機を利用した分子シミュレーションの必要性が増してくることは言うまでもない。すでにこの方向でまとめられた研究もある<sup>(27)</sup>。究極的には、数多くの分子に関する情報をデータベース化しておき、必要とする多成分系の物質と組成、そして温度や圧力を入力すれば、どのような熱物性値も計算機内でシミュレートすることが可能なプログラムを作れば良いことになる。現在の計算機の進歩のスピードを考えると、範囲を限定すればこれに近いものは、十分実現可能だと思われる。しかし、精度の問題や実験による検証の問題は常にあるわけで、将来の最も実用的かつ信頼性の高い推算方法は、やはり高精度の実験、理論、シミュレーションがそれぞれの持ち場生かして補うような形になるだろう。

(図5)

分子シミュレーションを用いて多成分系の熱物性研究を行うアプローチの仕方としては、大きく分け

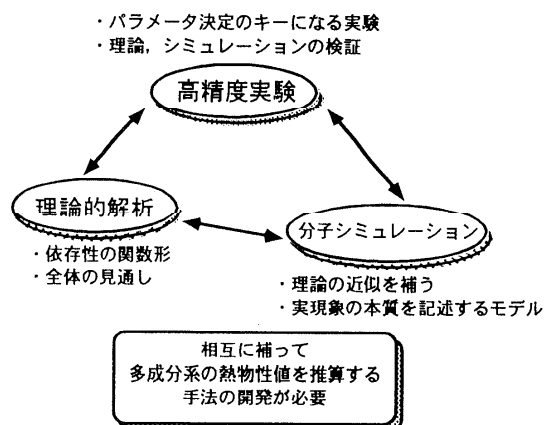


図5 分子シミュレーション、理論、実験

て次の2つがある。

- (1) 現実に近い分子間ポテンシャルやシミュレーション条件を用い、実験と比較しうるような結果を求める。
- (2) 単純化した分子間ポテンシャルを使うが、実現象の本質を記述しうる物理モデルを確立するためにシミュレーションする。

前者では、個別の系についての詳細なデータは得られるかもしれないが、多成分系の振る舞いを全体的に見通すような知見は得られにくい。それに対し、後者ではシミュレーションだけでは不十分であるが、理論や実験を補うように利用すれば、物理現象の本質がわかり、見通しの良い結果(例えば混合則)が得られる。前節で述べた剛体球理論はこの手法を用いており、今後の研究の進む方向を示唆している。

### 6. おわりに

「多成分系の熱物性」を自分なりに考え直してみても思ったことは、一つのタイトルに納めるにはあまりにも内容が豊富で、未解決な問題がたくさん残っており、まだまだチャレンジングなことがいろいろありそうだ、ということである。ここでは、比較的良くわかっていて、理論的筋もそれなりにある流体の場合についてまとめたが、複合材料や食品、生体なども含めて「混ぜたらどうなるか」という切り

口で、統一的にながめてみると面白い視点が生まれてくるかもしれない。また、分子シミュレーションの成果を効率的に推算法に利用していくことは、一層重要になってくるだろう。

文献

- (1) 長坂雄次, 伝熱研究, Vol.34, No.132 (1995), 22.
- (2) 石川鐵彌, "混合液粘度の理論", 丸善, (1968).
- (3) Stephan, K. and Heckenberger, T., *Thermal Conductivity and Viscosity Data of Fluid Mixtures*, DECHEMA, (1988).
- (4) Reid, R. C., Prausnitz, J. M. and Poling, B. E., *The Properties of Gases and Liquids*, 4th Ed., McGraw-Hill, (1987).
- (5) 蒔田董, 粘度と熱伝導率, 培風館, (1975).
- (6) Chapman, S. and Cowling, T. G., *The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases*, 3rd Ed., Cambridge Univ. Press., (1970).
- (7) Hirschfelder, J. O., Curtiss, C. F. and Bird, R. B., *Molecular Theory of Gases and Liquids*, 2nd Ed., John Wiley & Sons, (1964).
- (8) Maitland, G. C., Rigby, M., Smith, E. B. and Wakeham, W. A., *Intermolecular forces, Their origin and determination*, Oxford Univ. Press, (1981).
- (9) Kestin, J., Knierim, K., Mason, E. A., Najafi, B., Ro, S. T. and Waldman, M., *J. Phys. Chem. Ref. Data*, **13**(1) (1984), 229.
- (10) Kestin, J., Ro, S. T. and Wakeham, W. A., *Physica*, **58** (1972), 165.
- (11) Kestin, J., THERMAL CONDUCTIVITY **14**, (1976), 315.
- (12) Mason, E. A. and Monchick, L., *J. Chem. Phys.*, **44** (1962), 1622.
- (13) Monchick, L., Pereira, A. N. G. and Mason, E. A., *J. Chem. Phys.*, **42** (1965), 3241.
- (14) 例えば, Kestin, J., Nagasaka, Y. and Wakeham, W. A., *Physica*, **113A** (1982), 1.
- (15) Dymond, J. H., *Quart. Rev. Chem. Soc.*, **39** (1985), 317.
- (16) Enskog, D., *Kungl. Svenska. Vet.-Ak. Handl.*, **63**, No.4 (1922).
- (17) Alder, B. J., Gass, D. M. and Wainwright, T. E., *J. Chem. Phys.*, **53** (1970), 3813.
- (18) Dymond, J., *Chem. Phys.*, **17**, (1976), 101.
- (19) Chandler, D., *J. Chem. Phys.*, **60** (1974), 3500.
- (20) Chandler, D., *J. Chem. Phys.*, **62** (1975), 358.
- (21) Assael, M. J., Dymond, J. H., Papadaki, M. and Patterson, P. M., *Int. J. Thermophys.*, **13** (1992), 269.
- (22) Assael, M. J., Dymond, J. H., Papadaki, M. and Patterson, P. M., *Fluid Phase Equil.*, **75** (1992), 245.
- (23) Assael, M. J., Dymond, J. H., Papadaki, M. and Patterson, P. M., *Int. J. Thermophys.*, **13** (1992), 659.
- (24) Assael, M. J., Dymond, J. H. and Patterson, P. M., *Int. J. Thermophys.*, **13** (1992), 729.
- (25) Assael, M. J., Dymond, J. H., Papadaki, M. and Patterson, P. M., *Int. J. Thermophys.*, **13** (1992), 895.
- (26) Assael, M. J., Dymond, J. H. and Polimatidou, K., *Int. J. Thermophys.*, **15** (1994), 189.
- (27) Hoheisel, C., *Theoretical Treatment of Liquids and Liquids Mixtures*, Elsevier, (1993).

## 混合液体の沸騰熱伝達

Boiling Heat Transfer to Liquid Mixtures

吉田 駿, 森 英夫

(九州大学工学部機械エネルギー工学科)

Suguru YOSHIDA and Hideo MORI

(Dept. of Energy and Mechanical Engineering, Kyushu University)

### 1. まえがき

多成分混合液体の沸騰は、従来から化学工業、特に石油工業において利用されてきたが、最近は特定フロンの規制に対処するために、その代替冷媒として混合冷媒の使用が検討されており、そのためこの分野が注目され、研究が活発に行われるようになってきた。

今までの研究を振り返ってみると、プール核沸騰では、水、アルコール類および炭化水素類の混合液体に関するものが比較的多く、管内流沸騰ではフロン系冷媒に関するものが多い。この稿では、混合冷媒の場合に重点を置きながら、限界熱流束あるいはドライアウトが発生する前までの沸騰熱伝達について述べることにする。共沸混合液体の沸騰熱伝達の特徴は、単一成分の液体の場合と変わらず、混合液体特有の性質は現れないので、ここでは、非共沸混合液体の場合に限って記述する。また、3成分以上の多成分液体については触れていないが、基本的な特性は二成分の場合と同様である。

なお、文献<sup>(1-4)</sup>にも混合液体の沸騰に関する研究のレビューが行われているので、参照されたい。

### 2. 蒸発における温度と成分比の変化

一定量の二成分非共沸混合液体を圧力一定のもとで加熱する場合の蒸発過程における温度と気液各相の成分比の変化を、模式的に図1に示す。低沸点成分のモル分率が  $\xi_0$  の一定量の混合液体が蒸発する場合を考える。点1で表されるサブクール液体を加熱すると、2の状態では蒸発が始まり、そのとき2''で表される状態の蒸気が発生する。加熱を続けて蒸発が進むと、液体は2→3'、蒸気は2''→3''の状態をたどり、更に蒸発が進んで残った混合液体が4'の状態になったとき、液体は完全に蒸発してしまい、生じた蒸気はモル分率  $\xi_0$  の4の状態のものとなる。すなわち、蒸発が進行する間、液体の温度は一定でなく、 $T_2$  から  $T_4$  に上昇する。

### 3. プール核沸騰熱伝達

混合液体の飽和沸騰の熱伝達係数  $\alpha$  は、通常、次のように定義されたものが用いられている。

$$\alpha = \frac{q}{T_w - T_b} \quad (1)$$

ここに、 $q$  は伝熱面熱流束、 $T_w$  は伝熱面温度、 $T_b$  はバルク液体濃度に対応する相平衡温度 (図1で、モル分率  $\xi_0$  ならば温度  $T_2$ ) である。

非共沸混合液体のプール核沸騰では、単一成分液体の場合と比べて、大きな伝熱低下が生じる。図2は、その例として、混合冷媒 HCFC-22/CFC-11 の細線からのプール核沸騰に関する Inoue-Monde<sup>(5)</sup> の実験結果を示している。図(a)は、熱伝達係数  $\alpha$  と混合液体の低沸点成分 HCFC-22 のモル分率  $\xi_l$  の関係で、図(b)は同じデータを伝熱面過熱度  $\Delta T_s (= T_w - T_b)$  とモル分率  $\xi_l$  の関係で表している。また、図(b)には、混合液体の各モル分率での露点と沸点の差  $\Delta T_{db}$  および液相と気相との相平衡状態にお

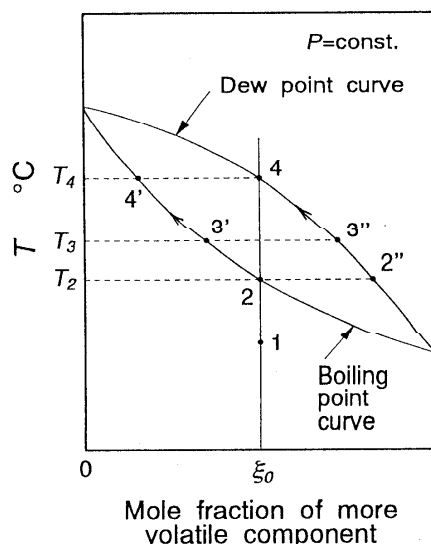


図1 非共沸混合液体の蒸発における温度と成分比の変化



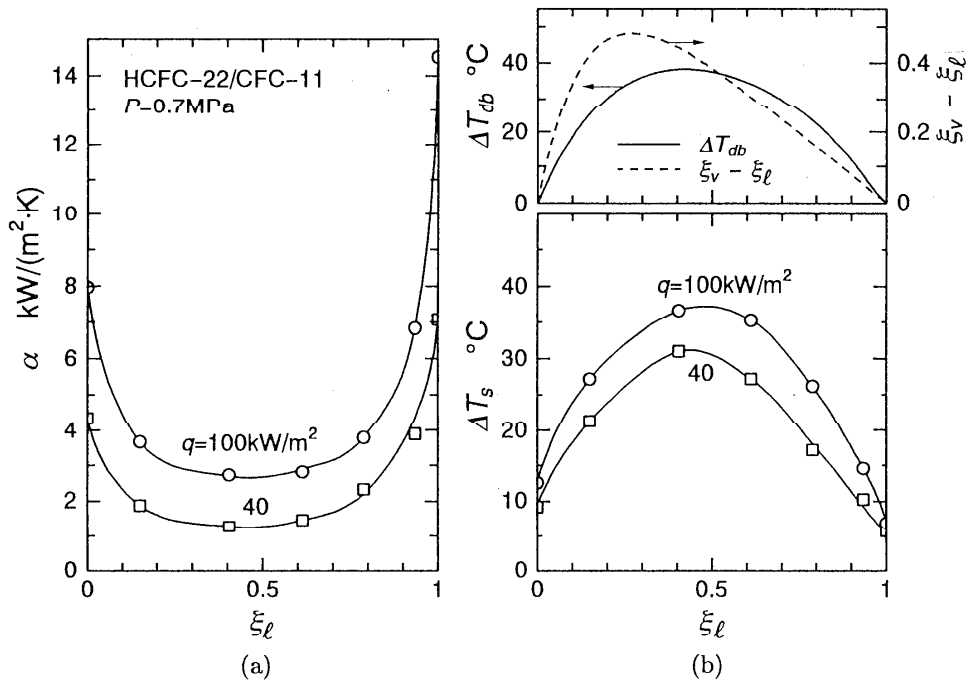


図2 プール核沸騰熱伝達に及ぼす成分比の影響

る濃度差  $\xi_v - \xi_l$  も示している。混合液体では、単一成分液体と比べて、熱伝達係数の値はかなり低く、過熱度は高くなっている。一般に、混合液体の核沸騰熱伝達の低下は、濃度差  $\xi_v - \xi_l$  あるいは露点と沸点の差  $\Delta T_{db}$  が極大となる成分比  $\xi_l$  の近傍で最大となる傾向を示すが、図2の例では、過熱度  $\Delta T_s$  は露点と沸点の差  $\Delta T_{db}$  が最も大きい成分比近傍で最大となっている。

この混合液体の核沸騰における伝熱低下は、主にバルク液体と気泡表面液相の間に生じる成分物質の拡散に対する抵抗による有効過熱度の低下のためだと考えられる。すなわち、気液界面において低沸点成分が多く蒸発し、高沸点成分の濃度が気液界面近傍の液相で高くなるため、バルク液体と気液界面の間に成分物質の拡散が生じる。この物質拡散の速度は一般に遅いため、図3に示すように、気泡表面で液体の低沸点成分濃度  $\xi_{li}$  はバルク液体の濃度  $\xi_l$  より低下し、これに伴い気液界面温度  $T_i$  がバルク液体濃度に相当する沸点  $T_b$  よりも高くなって、沸騰に対する有効過熱度が、 $T_w - T_b$  から  $T_w - T_i$  に低下する。この有効過熱度の低下のために、その分沸騰が弱くなって、伝熱が悪くなる。もし、物質拡散抵抗がない理想的な場合であれば、同じ熱量を伝えるときに、伝熱面温度は図に示すように  $T_w$  より低い  $T_{wid}$  になるはずである。すなわち、このような

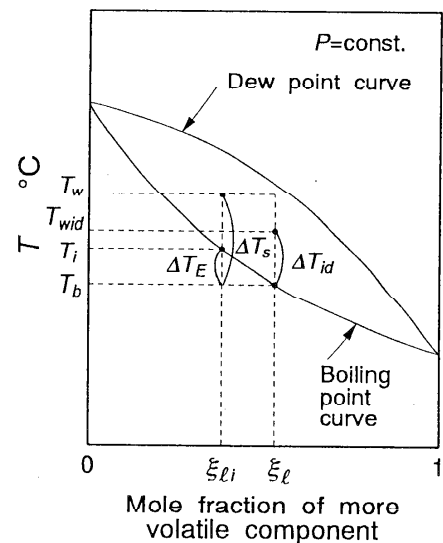


図3 有効過熱度の低下

理想的な場合の過熱度  $\Delta T_{id}$  は次のようになる。

$$\Delta T_{id} = T_{wid} - T_b \quad (2)$$

混合液体における熱伝達係数  $\alpha$  の低下の程度は、上述の理想的な場合の熱伝達係数  $\alpha_{id}$  に対する比  $\alpha/\alpha_{id}$  で表される。この比は、同一の熱流束の場合、実際の有効な過熱度が  $T_w - T_i \approx \Delta T_{id}$  ( $T_i$  は気泡表面にわたる平均温度) になることを考慮すれば、次のように表される。

$$\frac{\alpha}{\alpha_{id}} = \frac{\Delta T_{id}}{\Delta T_s} \simeq \frac{\Delta T_{id}}{\Delta T_{id} + \Delta T_E} = \frac{1}{1 + \Delta T_E / \Delta T_{id}} \quad (3)$$

ここに,

$$\Delta T_s = T_w - T_b \quad (4)$$

$$\Delta T_E = T_i - T_b \quad (5)$$

混合液体の理想的な場合の熱伝達係数  $\alpha_{id}$  の値は、各単一成分液体の過熱度  $\Delta T_s$  の値をモル分率で直線補間して近似的に見積もった  $\Delta T_{id}$  から求めるか、混合液体の物性値を用いて単一成分液体のプール核沸騰の熱伝達予測式から算出するのが普通である。前者の方法で求めた  $\alpha_{id}$  を用いて混合液体の伝熱低下  $\alpha/\alpha_{id}$  を評価する場合、物質拡散の影響の他に、成分比による物性値変化の非線形性の影響が含まれる。一方、後者の場合、熱伝達係数  $\alpha_{id}$  の算出値は、混合液体と同じ物性値を持つ等価な単一成分液体の値とみなせるものであり、この値を用いる伝熱低下の評価は、物質拡散抵抗の影響のみを考慮したものになる。したがって、 $\alpha_{id}$  として、後者の方法で算出した値を用いる方が望ましいと考えられる。ただし、この場合には、混合液体の物性値が必要である。フロン系の混合冷媒について、例えば、単一成分冷媒の核沸騰熱伝達の式として Stephan-Abdelsalam の式<sup>(9)</sup>を用い、物性値を NIST REFPROP Ver.4<sup>(7)</sup>から見積もって、両者の方法で求めた  $\alpha_{id}$  を比較してみると、一般にほとんど差がない。したがって、フロン系の混合冷媒の場合には、前者の方法を適用してもさしつかえないと思われる。水、アルコール類および炭化水素類の混合液体では、表面張力などの物性値がある成分比の近傍で急激に変化することがあるため、このような場合には、前者の方法によると、物性値変化の非線形性の影響を無視できないので、注意を要する。

これまで、伝熱低下の程度を表す熱伝達係数の比  $\alpha/\alpha_{id}$  に関しては、主に水、アルコール類および炭化水素類の混合液体を対象として、多数の予測式が提案されている<sup>(5,8-17)</sup>。それらの式のほとんどのものでは、式 (3) 中の有効過熱度の低下分  $\Delta T_E$  あるいはその有効過熱度に対する比  $\Delta T_E / \Delta T_{id}$  を、気液間のモル分率の差  $\xi_v - \xi_l$  または質量分率の差  $\tilde{\xi}_v - \tilde{\xi}_l$ 、あるいは露点と沸点の差  $\Delta T_{db}$  と関連づけて表している。このうち、特定の混合液体ではなく、一般に適用可能な形式をとっているものとし

ては、前者では  $\Delta T_E / \Delta T_{id}$  を、気泡成長モデルによる解析解に基づいて求めたもの<sup>(9,10,12)</sup>、気泡近傍の濃度境界層に膜理論を適用して導いたもの<sup>(13)</sup>、実験からその形を定めたもの<sup>(11)</sup>などがあり、後者では、 $q \rightarrow 0$  (現実的には核沸騰開始熱流束) で  $\Delta T_E \rightarrow 0$ 、 $q \rightarrow \infty$  (現実的には限界熱流束) で  $\Delta T_E \rightarrow \Delta T_{db}$  になるように、膜理論の結果を修正して  $\Delta T_E$  を表したもの<sup>(16)</sup>や、同様な傾向になるように  $\Delta T_E$  の形を実験から定めたもの<sup>(17)</sup>などがある。

これらの式の中には、一般に液相の物質拡散係数または物質伝達係数が含まれている。いくつかの式では物質伝達係数の値を物質によらず一定値に走めているが、そうでないものは、物質拡散係数を正確に見積もることは一般に困難であるため、実用には不適である。

周知のように、核沸騰の気泡成長には、気泡と伝熱面の間に形成されるマイクロ液膜の蒸発が大きく寄与している。また、高熱流束域では、このほかに、合体泡下にマクロ液膜も形成される。非共沸混合液体の場合、他の気泡周囲と比べて、液膜内では物質拡散の抵抗が大きくなっていると考えられるので、液膜の蒸発過程が混合液体の伝熱低下に重要な影響を及ぼしていることが推測される。しかしながら、これに関する研究はわずかしかなかく<sup>(18-20)</sup>、マイクロ液膜の蒸発は気泡成長にほとんど寄与しないという理論的検討結果<sup>(18)</sup>と、気泡下で測定された伝熱面温度の時間変化はマイクロ液膜の蒸発に伴う大きな物質拡散抵抗を考慮して説明できるという実験結果<sup>(19,20)</sup>の相反する結果が報告されている程度である。今後、この観点からの研究が更に必要であると思える。

また、成分比による表面張力の変化が大きい非共沸混合液体の核沸騰では、発生気泡表面上の伝熱面に近い側で低沸点成分の濃度が小さくなり、このために生じる表面張力の分布によって誘起されるマランゴニ対流の影響が考えられる。特に、低沸点成分の濃度の低下とともに表面張力が大きくなる 'positive' 非共沸混合液体では、このようなマランゴニ対流による伝熱促進が予想される。この観点から、いくつかの研究が行われているが、限界熱流束に関するものが多く<sup>(21,22)</sup>、核沸騰域に関してはほとんど報告されていない。わずかに、Abe ら<sup>(23)</sup>が、positive 水溶液の微小重力下での核沸騰の実験を行って、伝熱が促進される結果を得ている。混合冷媒の場合、一般に、各成分冷媒の表面張力の間に

大きな差はないので、通常の重力下では、マランゴニ対流の影響は小さいものと考えられる。

以上、通常の平滑面における非共沸混合液体の核沸騰熱伝達に関して述べたが、伝熱の改善を目的として、単一液体の場合と同様に、伝熱促進面を用いることが考えられる。High Flux面、GEWA-T面、ローフィン面などの伝熱促進面で得られたプール核沸騰の実験データが、いくつか報告されている<sup>(24-27)</sup>。いずれのデータにおいても、伝熱促進面を有する管を用いることによって、平滑管の場合と比べて、混合液体の熱伝達係数は促進される結果が得られているが、単一成分液体の場合と比較した混合液体の伝熱促進の程度については、研究者間で異なる結果が得られている。

#### 4. 管内流沸騰熱伝達

蒸発管内を流れる非共沸混合液体の沸騰過程においては、流れ方向に蒸発が進行するとともに、2章で述べたように、気液各相における低沸点成分の濃度は低下し、温度は上昇する。したがって、混合液体に加えられた熱は蒸発に要するほかに、一部分は気液各相の温度上昇に消費される。

管断面で気液二相は相平衡状態にあるとすると、クオリティ  $x$  は、混合流体全体および気液各相における低沸点成分の質量分率  $\tilde{\xi}_0$  および  $\tilde{\xi}_v$ 、 $\tilde{\xi}_l$  を用いて、次式で表される。

$$x = \frac{\tilde{\xi}_0 - \tilde{\xi}_l}{\tilde{\xi}_v - \tilde{\xi}_l} \quad (6)$$

また、流体の混合平均エンタルピー  $h_b$  は、気液各相のエンタルピー  $h_v$ 、 $h_l$  と、クオリティ  $x$  を用いて、次式で表される。

$$h_b = (1-x)h_l + xh_v \quad (7)$$

したがって、管断面における混合流体の混合平均温度  $T_b$  は、気液二相が相平衡にあると仮定して、式(6)と式(7)および混合液体の状態方程式から求めることができる。管軸方向局所の熱伝達係数  $\alpha$  は、この混合平均温度  $T_b$  を用いて、式(1)から求められる。

管内流沸騰の実験で得られた混合冷媒の熱伝達係数の例を、図4と図5に示す。図4は、換算圧力0.08の混合冷媒 HCFC-22/CFC-114 の局所熱伝達係数  $\alpha$  に及ぼす成分比の影響を示した例<sup>(28)</sup>である。 $\xi_0$  は混合冷媒全体での低沸点成分 HCFC-22 のモル分率を表す。管内流沸騰でも、前述のプール沸騰の

場合と同様に、混合液体では熱伝達が低下しているのが認められる。

図5は、質量分率30/70%の混合冷媒 HFC-32/HFC-134a の局所熱伝達係数  $\alpha$  の値<sup>(29)</sup>を、熱流束  $q$  をパラメータにして、質量速度  $G$  に対してプロットしたもので、クオリティ  $x=0.3$  と  $0.7$  の場合について示している。比較のために、著者らの単一成分冷媒に関する熱伝達予測方法<sup>(30)</sup>を適用して求めた混合冷媒と同じ物性値の等価な単一成分冷媒の値 ( $\alpha_{id}$  に相当する)も併記している。熱伝達係数の測定値  $\alpha$  は、等価な単一成分冷媒の値と比べて、流量およびクオリティが低いほど、また影響の程度は比較的小さいが熱流束が高いほど、低くなっているのがわかる。

管内流沸騰における伝熱は、一般に液体の核沸騰と強制対流によって行われる。前者は高熱流束(高伝熱面過熱度)、低流量、低クオリティの場合に、後者は低熱流束(低過熱度)、高流量、高クオリティの場合に、それぞれ支配的になる。したがって、図5の例からわかるように、一般に、非共沸混合液体の管内流沸騰の伝熱特性は、低流量、低クオリティ、高熱流束で核沸騰が伝熱に大きく寄与する場合ほど、成分物質の拡散抵抗のために伝熱は悪くなり、一方、高流量、高クオリティ、低熱流束で強制対流が支配的となる領域では、物質拡散抵抗の影響は比較的小さく、物性値が等価な単一成分液体との差は小さくなる傾向を示すと考えられる<sup>(31-33)</sup>。

核沸騰が伝熱に大きく寄与する領域での特性は、

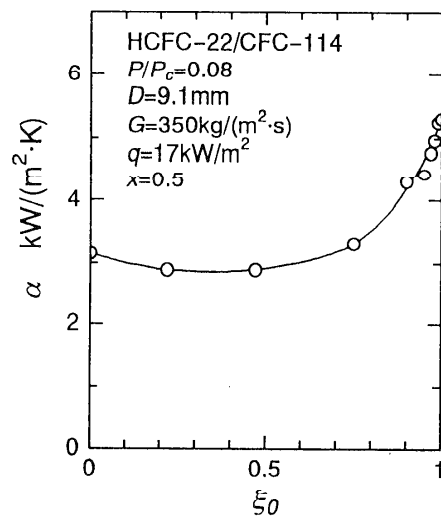


図4 管内流沸騰の熱伝達係数に及ぼす成分比の影響

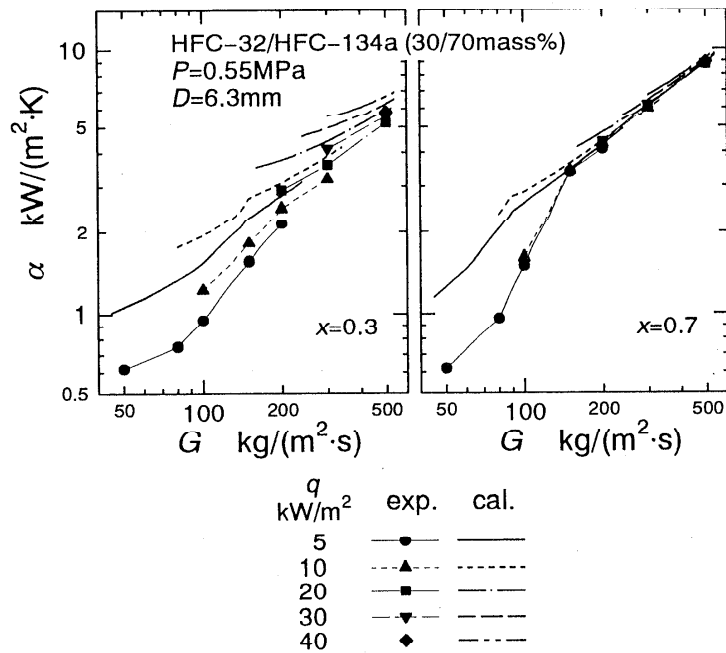


図5 管内流沸騰の熱伝達係数に及ぼす流量の影響

前章で述べたように、発生気泡近傍の液相における物質拡散の抵抗によって、核沸騰の伝熱が低下するためだと考えられる。

一方、強制対流が支配的な領域における混合液体の伝熱に関しては、核沸騰が生じていない環状二相流における液膜の蒸発を対象とした理論解析がいくつかなされている<sup>(34-36)</sup>。これらの結果によると、液相内の物質拡散の抵抗は十分小さく無視できるが、気相における物質拡散の抵抗の方が大きく、これによる気液界面温度の上昇のために、伝熱が幾分低下することになる。しかしながら、その影響はそれほど大きくなく、混合冷媒では一般に、伝熱低下の程度はたかだか20%程度であると考えてよい。したがって、前述の管内流沸騰の実験結果とも併せて考えると、強制対流が支配的となる領域では、物質拡散抵抗の影響は比較的小さいと考えて良い。

管内流沸騰の熱伝達係数を予測するための式は、核沸騰の寄与分と強制対流の寄与分を重ね合わせた次の形で表されることが多い。

$$\alpha = S\alpha_b + F\alpha_\ell \quad (8)$$

ここに、 $\alpha_b$ は核沸騰の熱伝達係数、 $\alpha_\ell$ は液体のみが管内を満たして流れている場合の熱伝達係数、 $S$ は強制対流によって核沸騰が抑制される効果を考慮した係数、 $F$ は蒸気存在によって対流の効果が

増大する割合を表す係数である。混合液体の場合には、上式は次のようになる。

$$\alpha = SK_b\alpha_{bid} + FK_c\alpha_\ell \quad (9)$$

ここに、 $\alpha_{bid}$ は物質拡散抵抗を無視した場合の核沸騰熱伝達係数で、前章で述べたようにして求められる。 $\alpha_\ell$ はこの場合混合液体の単相流熱伝達係数である。 $K_b$ と $K_c$ は、物質拡散の抵抗によって、それぞれ核沸騰および強制対流蒸発の熱伝達が低下する割合を表す係数である。前に述べたように、強制対流蒸発では、気相側の物質拡散抵抗によって、気液界面の温度が高くなるために伝熱が悪くなるのであるが、この影響は比較的小さいので、 $K_c$ は1に近い値になり、近似的には1としても大きい誤差は生じない。一方、核沸騰における係数 $K_b$ は、核沸騰自体の伝熱低下と、核沸騰の抑制効果への影響の両方を含むと考えられる。核沸騰自体の伝熱低下に対しては、前章で述べたプール核沸騰に関する結果を適用すれば良い。核沸騰の抑制効果への影響については、Jungら<sup>(33)</sup>およびTakamatsuら<sup>(37)</sup>によって、検討がなされている。Jungらは、熱伝達係数の測定値にHsuの気泡発生条件<sup>(38)</sup>を適用した検討を行い、等価な単一成分液体より高い熱流束で核沸騰が完全に抑制されてしまうという結果を得て、これを $S$ に対する影響に拡張して適用している。また、Taka-

matsuらは、気液界面の温度上昇を考慮して、Bennettらの方法<sup>(39)</sup>により、混合液体における $S$ を求めている。

混合液体の管内流沸騰熱伝達に関して、式(9)の形の予測式がいくつか提案されている<sup>(33,37,40-42)</sup>が、いずれもまだ不十分であり、更に検討を要する。

平滑管内における非共沸混合冷媒の伝熱特性を改善し、空調機の蒸発器に適用することを目的として、内面ら旋微細溝付管(マイクロフィン管とも呼ぶ)における伝熱性能が調べられている<sup>(29,42-44)</sup>。単一成分冷媒の場合と同様、混合冷媒でも、溝付管を用いることによって、伝熱促進が達成されるが、伝熱促進の程度は、単一成分冷媒の場合よりも小さくなる傾向がある。図6に、同一の溝付管および平滑管における単一成分冷媒と混合冷媒の熱伝達係数の例<sup>(29)</sup>を示す。混合冷媒の場合、溝付管では、単一成分冷媒の場合よりも流量の影響が大きく現れ、低流量ではかなり小さい熱伝達係数の値となっており、平滑管と比べた伝熱促進の程度も、単一成分冷媒の場合より、小さくなっている。これは、低流量の場合に溝内に形成されるメニスカス液膜の先端付近の薄い部分において、低沸点成分の濃度が低下するこ

とを考慮すれば説明できる。すなわち、単一成分の場合には伝熱が良好である液膜先端付近において、混合冷媒では気液界面温度が上昇するために、伝熱が悪くなることによると考えられる<sup>(44)</sup>。

### 5. あとがき

以上、非共沸混合液体の沸騰熱伝達について、今までに分かっていることの大略を述べた。ただし、はじめにお断りしたように、限界熱流束や膜沸騰などについては今回は除外した。熱伝達予測式に関しては、どのような形のものが最も妥当と考えられるかについては触れたが、著者らのデータベースがまだ十分には整っていないために、具体的にどの整理式が最良かという推奨は今回行っていない。このように限られた内容のものであるが、この分野にご関心のある方々のご参考になれば幸いである。

### 文 献

- (1) J.R.Thome and R.A.W.Shock, *Advances in Heat Transfer*, Academic Press, 16(1984), 59.
- (2) K.Stephan, *Proc. 7th Int. Heat Transfer Conf.*, 1(1982), 59.

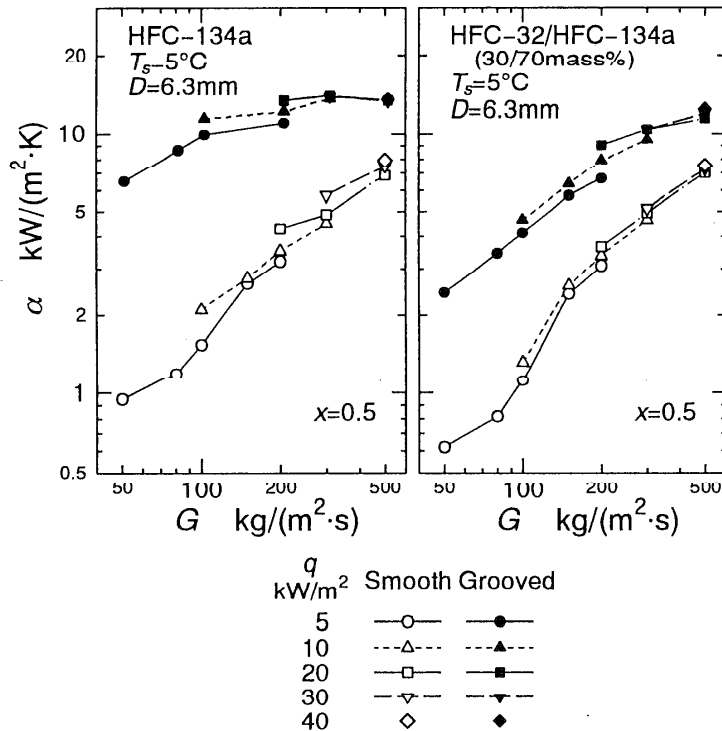


図6 平滑管と溝付管における熱伝達係数の比較

- (3) J.G.Collier and J.R.Thome, Convective Boiling and Condensation, 3rd ed., Oxford University Press, (1994), 535.
- (4) J.R.Thome, Proc. 10th Int. Heat Transfer Conf., 1(1994), 19.
- (5) T.Inoue and M.Monde, Wärme- und Stoffübertragung, 29(1994), 171.
- (6) K.Stephan and M.Abdelsalam, Int. J. Heat Mass Transfer, 23-1(1980), 73.
- (7) J.Gallagher et al., NIST Standard Reference Database 23, NIST, (1993).
- (8) K.Stephan and M.Körner, Chemie-Ing.-Techn., 41-7(1969), 409.
- (9) W.F.Calus and P.Rice, Chem. Engng Sci., 27(1972), 1687.
- (10) W.F.Calus and D.J.Leonidopoulos, Int. J. Heat Mass Transfer, 17(1974), 249.
- (11) H.Jungnickel et al., Int. J. Refrigeration, 3-3(1980), 129.
- (12) J.R.Thome, A.I.Ch.E. Symp. Ser., 77-208(1981), 238.
- (13) E.U.Schlünder, Int. Chem. Engng, 23-4(1983), 589.
- (14) J.R.Thome, Int. J. Heat Mass Transfer, 26-7(1983), 965.
- (15) H.C.Ünal, Int. J. Heat Mass Transfer, 29-4(1986), 637.
- (16) J.R.Thome and S.Shakir, A.I.Ch.E. Symp. Ser., 83-257(1987), 46.
- (17) Y.Fujita et al., Mem. Fac. Engng, Kyushu Univ., 55-3(1995), 303.
- (18) S.J.D.Van Stralen et al., Int. J. Heat Mass Transfer, 18(1975), 453.
- (19) L.Zeugin et al., Chem. Engng Sci., 30(1975), 679.
- (20) M.G.Cooper and C.R.Stone, Int. J. Heat Mass Transfer, 24-12(1981), 1937.
- (21) J.Hovestreibdt., Chem. Engng Sci., 18(1963), 631.
- (22) 藤田ら, 日本機械学会論文集 B 編, 60-578(1994), 3434.
- (23) Y.Abe et al., Int. J. Heat Mass Transfer, 37-16(1994), 2405.
- (24) J.R.Thome, Engng Sci., 42-8(1987), 1909.
- (25) S.M.Bajorek et al., A.I.Ch.E. Symp. Ser., 85-269(1989), 54.
- (26) A.S.Kadhun et al., Proc. 10th Int. Heat Transfer Conf., 5(1994), 1.
- (27) R.R.Trewin et al., Proc. 10th Int. Heat Transfer Conf., 5(1994), 165.
- (28) D.S.Jung et al., Int. J. Heat Mass Transfer, 32-1(1989), 131.
- (29) 吉田ら, 第 29 回空調和・冷凍連合講演会講演論文集, (1995), 73.
- (30) 吉田ら, 日本冷凍協会論文集, 11-1(1994), 67.
- (31) 村田・橋詰, 日本機械学会論文集 B 編, 54-506(1988), 2856.
- (32) 吉田ら, 日本機械学会論文集 B 編, 56-524(1990), 1084.
- (33) D.S.Jung et al., Int. J. Heat Mass Transfer, 32-9(1989), 1751.
- (34) R.A.W.Shock, Int. J. Multiphase Flow, 2(1976), 411.
- (35) S.Yoshida et al, Proc. ASME-JSME Thermal Engng Joint Conf., 2(1991), 295.
- (36) 柴田ら, 日本機械学会論文集 B 編, 58-550(1992), 1883.
- (37) H.Takamatsu et al., Int. J. Heat Mass Transfer, 36-14(1993), 3555.
- (38) Y.Y.Hsu, J. Heat Transfer, 84(1962), 207.
- (39) D.L.Bennett et al., A.I.Ch.E. Symp. Ser., 76-199(1980), 91.
- (40) D.L.Bennett and J.C.Chen, A.I.Ch.E. J., 26-3(1980), 454.
- (41) J.R.Thome, Heat Transfer Engineering, 10-2(1989), 29.
- (42) K.Murata and K.Hashizume, J. Heat Transfer, 115(1993), 680.
- (43) 宮良ら, 日本機械学会論文集 B 編, 54-505(1988), 2523.
- (44) 吉田ら, 日本機械学会論文集 B 編, 59-560(1993), 1285.

## 多成分系の拡散

### Multicomponent Diffusion

荻野 文丸 (京都大学大学院工学研究科化学工学専攻)  
 Fumimaru OGINO (Department of Chemical  
 Engineering, Kyoto University)

拡散という現象は成分  $i$  とその他の成分の速度が互いに異なることにより起こる。いま、成分  $i$  の速度 (これは成分  $i$  の1個の分子の速度ではなく、ある小さな容積中における個々の  $i$  分子の速度の和を分子数で除した平均の速度である) を  $v_i$  とすれば、拡散による成分  $i$  の物質流束は次式で表わされる。

$$\text{質量流束 } j_i = \rho_i (v_i - v) \quad (1)$$

$$\text{モル流束 } J_i = c_i (v_i - v_m) \quad (2)$$

ここで、 $\rho_i$  および  $c_i$  はそれぞれ成分  $i$  の質量濃度およびモル濃度であり、 $v$  および  $v_m$  はそれぞれ次式で表わされる  $n$  成分混合物の質量平均速度およびモル平均速度である。

$$v = \sum_{k=1}^n \omega_k v_k \quad (3)$$

$$v_m = \sum_{k=1}^n x_k v_k \quad (4)$$

$\omega_k, x_k$  はそれぞれ成分  $k$  の質量分率およびモル分率である。式 (3) による速度  $v$  がピトー管等で測定される速度である。

このように、拡散という現象は本質的に速度と密接に関連していること、および物質の量として  $kg$  と  $kmol$  の2つの単位が用いられることにより、熱伝導という現象に比べてより複雑となる。

#### 1. Maxwell-Stefan の式

多成分混合物中の成分  $i$  が他の成分と異なる速度  $v_i$  で運動するのは、 $i$  分子に働く外力が他の分子に働く外力とは異なるからである。 $i$  分子が速度  $v_i$  で運動する間に  $i$  分子は他の分子と衝突を繰返し、運

動量を交換する。いま、 $i$  分子に働く外力  $f_i$  はこの運動量の交換速度に比例すると考えて、Maxwell(1866,1952)と Stefan(1871)は次式を提出した。

$$f_i = - \sum_{j=1}^n \frac{x_i x_j (v_i - v_j)}{D_{ij}^*} \quad (i=1, \dots, n-1) \quad (5)$$

$f_i$  の総和は一般にゼロであり、また次の関係

$$D_{ij}^* = D_{ji}^* \quad (6)$$

が成立するので、第  $n$  成分に関する式は独立ではなくなり、式 (5) は  $n-1$  個の式を表わす。

式 (5) の右辺は  $i$  分子と  $j$  分子との間の運動量の交換速度を表わす。すなわち  $i$  分子1個が  $j$  分子1個と衝突した時の運動量の交換量は  $v_i - v_j$  に比例すると考え、さらに今考えている系内の  $i$  分子および  $j$  分子の総数はそれぞれ  $x_i$  および  $x_j$  に比例すると考えれば、総運動量交換量は  $x_i x_j (v_i - v_j)$  に比例することになる。 $D_{ij}^*$  は比例定数の逆数であり、これを Maxwell-Stefan 拡散係数と呼び、式 (5) を Maxwell-Stefan の式と呼ぶ。

式 (5) は次のように物質流束を用いて表わすこともできる。

$$f_i = \sum_{j=1}^n \frac{x_i N_j - x_j N_i}{c D_{ij}^*} \quad (i=1, \dots, n-1) \quad (5a)$$

$$f_i = \sum_{j=1}^n \frac{x_i J_j - x_j J_i}{c D_{ij}^*} \quad (i=1, \dots, n-1) \quad (5b)$$

ただし

$$N_i = \rho_i v_i \quad (7)$$

であり、 $c$  はモル密度である。

式 (5) の左辺は一般に次式で表わされる。

$$f_i = \sum_{j=1}^{n-1} \Gamma_{ij} \nabla x_j + \frac{1}{cRT} (\phi_i - \omega_i) \nabla \rho - \frac{c_i}{cRT} (F_i - \sum_{j=1}^n \omega_j F_j) \quad (8)$$

$$\Gamma_{ij} = \delta_{ij} + x_i \frac{\partial \ln \gamma_i}{\partial x_j} \quad (9)$$

$\gamma_i$  は成分  $i$  の活量係数であり、理想混合物では  $\gamma_i = 1$  である。また、式 (8) 中の  $R, T$  はそれぞれ気体定数および絶対温度であり、 $\phi_i, F_i$  はそれぞれ成分  $i$  の体積分率および成分  $i$  に働く体積力である。

式 (8) の右辺第 1 項の濃度勾配による拡散を普通拡散、第 2 項の圧力勾配による拡散を圧力拡散、および第 3 項の外力によるそれを強制拡散と呼ぶ。

式 (5 b) を  $n-1$  次の行列を用いて書き直せば

$$c[f] = -[A][J] \quad (10)$$

を得る。但し

$$[f] = \begin{bmatrix} f_1 \\ f_2 \\ \vdots \\ f_{n-1} \end{bmatrix}, \quad [J] = \begin{bmatrix} J_1 \\ J_2 \\ \vdots \\ J_{n-1} \end{bmatrix},$$

$$[A] = \begin{bmatrix} A_{11} & A_{12} & \cdots & A_{1, n-1} \\ A_{21} & A_{22} & \cdots & A_{2, n-1} \\ \cdots & \cdots & \cdots & \cdots \\ A_{n-1, 1} & A_{n-1, 2} & \cdots & A_{n-1, n-1} \end{bmatrix}$$

であり、 $[A]$  の各成分は次式で与えられる。

$$A_{ii} = \frac{x_i}{D_{in}^*} + \sum_{k=1}^n \frac{x_k}{f_{ik}^* D_{ik}^*} \quad (11)$$

$$A_{ij} = -\frac{x_i}{D_{ij}^*} + \frac{x_i}{D_{in}^*} \quad (11a)$$

よって次式を得る。

$$[J] = -c[A]^{-1}[f] \quad (12)$$

$[A]^{-1}$  は  $[A]$  の逆行列である。

## 2. 普通拡散

普通拡散の Maxwell-Stefan の式は式 (8) および式 (12) より次式で表わされる。

$$[J] = -c[A]^{-1}[\Gamma][\nabla x] \quad (13)$$

$[\Gamma]$  の各成分は式 (9) で与えられる。

上式から判るように、普通拡散による物質流束は、すべての成分の濃度勾配に複雑に依存することがわかる。たとえば、ある容器内に多孔質の隔壁を設け、一方 (A 室) に硫酸ナトリウム水溶液、他方 (B 室) には純粋の水を満たすと、硫酸ナトリウムは多孔質内を通して A 室から B 室へ拡散する。無限大時間経れば両者の硫酸ナトリウム濃度は等しくなる。しかし、今 A 室の硫酸ナトリウム水溶液にアセトンを加えると硫酸ナトリウムの A 室から B 室への拡散の速度は大きくなる。逆に B 室の水にアセトンを加えると、硫酸ナトリウムの拡散速度は小さくなる。すなわち、アセトンの濃度勾配は硫酸ナトリウムの拡散速度に影響を及ぼす。よく「Diffusion is confusion.」と言われるゆえんである。

成分 1 の濃度が他の成分のそれに比べて極めて小さいような希薄溶液では  $x_1 \approx 0$  であるから  $\gamma_1 \approx 1$  となり、式 (13) より次式を得る。

$$J_1 = -c A_{11}^{-1} \nabla x_1 \quad (14)$$

ただし

$$A_{11} = \frac{x_2}{D_{12}^*} + \frac{x_3}{D_{13}^*} + \cdots + \frac{x_{n-1}}{D_{1, n-1}^*} \quad (15)$$

$D_{ij}^*$  は希薄溶液における Maxwell-Stefan 拡散係数



を表わす。

どの成分も、分子の大きさ、形状等がほぼ同じであるならばどの $D_{ij}^*$ もほぼ同じ値になり、

$$D_{ij}^* = D^* \quad (16)$$

となる。またこの時は理想混合物としてよいから、式(13)より次式を得る。

$$\mathbf{J}_i = -cD^* \nabla x_i \quad (17)$$

2成分系では

$$\mathbf{J}_1 = -cD_{12}^* \Gamma_{11} \nabla x_1 \quad (18)$$

さらに理想2成分混合物では $\gamma_1 = 1$ であるから $\Gamma_{11} = 1$ となり、

$$\mathbf{J}_1 = -cD_{12}^* \nabla x_1 \quad (19)$$

を得る。

同様に3成分混合物では

$$\mathbf{J}_1 = -cD_{13}^* (x_1 D_{23}^* + x_2 D_{12}^* + x_3 D_{12}^*) (\Gamma_{11} \nabla x_1 + \Gamma_{12} \nabla x_2) / S - cD_{23}^* (D_{13}^* - D_{12}^*) x_1 (\Gamma_{21} \nabla x_1 + \Gamma_{22} \nabla x_2) / S \quad (20)$$

$$\mathbf{J}_2 = -cD_{13}^* (D_{23}^* - D_{12}^*) x_2 (\Gamma_{11} \nabla x_1 + \Gamma_{12} \nabla x_2) / S - cD_{23}^* (x_1 D_{12}^* + x_2 D_{13}^* + x_3 D_{12}^*) \times (\Gamma_{21} \nabla x_1 + \Gamma_{22} \nabla x_2) / S \quad (20a)$$

$$S = x_1 D_{23}^* + x_2 D_{13}^* + x_3 D_{12}^* \quad (21)$$

が成立し、理想混合物では $\Gamma_{11} - \Gamma_{22} = 1, \Gamma_{12} - \Gamma_{21} = 0$ である。

### 3. 圧力拡散

圧力拡散を利用する典型的な例が遠心分離である。圧力拡散を扱う場合の基礎式は式(5)、(8)より

$$\sum_{k=1}^{n-1} \Gamma_{ik} \nabla x_k + \frac{1}{cRT} (\psi_i - \omega_i) \nabla p = - \sum_{j=1}^n \frac{x_i x_j (v_i - v_j)}{D_{ij}^*} \quad (22)$$

である。上式の圧力勾配が遠心力によって生じているとすれば

$$\nabla p = \rho \Omega^2 r \quad (23)$$

$r$ は回転半径で $\Omega$ は角速度である。さらに、そのような回転場で混合物濃度が定常状態にある場合は

$$\sum_{k=1}^{n-1} \Gamma_{ik} \nabla x_k + \frac{1}{cRT} (\psi_i - \omega_i) \rho \Omega^2 r = 0 \quad (24)$$

より濃度分布が求められる。

### 4. 強制拡散

強制拡散の典型例は電解液中のイオンの拡散である。この時 $F_i$ は一般に次式で与えられる。

$$F_i = -z_i F \nabla \phi \quad (25)$$

ここで $z_i$ は $i$ イオンの電荷、 $F_r$ はファラデー定数、 $\phi$ は電位である。さらに、電極のごく近傍を除いて、一般に電気的中性の条件

$$\sum_{k=1}^n c_k z_k = 0 \quad (26)$$

が成立する。従ってMaxwell-Stefanの式は次式で与えられる。

$$\sum_{k=1}^{n-1} \Gamma_{ik} \nabla x_k + \frac{x_i z_i}{RT} F_r \nabla \phi = - \sum_{j=1}^n \frac{x_i x_j (v_i - v_j)}{c D_{ij}^*} \quad (27)$$

理想溶液では式(26)は次式となる。

$$\nabla x_i + \frac{x_i z_i}{RT} F_r \nabla \phi = - \sum_{j=1}^n \frac{x_i x_j (v_i - v_j)}{c D_{ij}^*} \quad (28)$$

さらに、第 $n$ 成分以外の濃度が極めて小さいような希薄電解溶液であるならば、上式は次式となる。

$$\mathbf{J}_i = -c D_{in}^* (\nabla x_i + \frac{x_i z_i}{RT} F_r \nabla \phi) \quad (29)$$

あるいは

$$N_i = -c D_{in} \nabla x_i - c x_i z_i D_{in} \frac{F_T}{RT} \nabla \phi + c_i v_m \quad (30)$$

上式をNernst-Planckの式と呼び、右辺第1項を拡散項、第2項を泳動項、第3項を対流項と呼ぶ。

### 5. Fickの法則

Maxwell とほぼ同じ頃Fick(1855)は  $J$  と  $\nabla x$  について次式のような線形の関係式を提出した。

$$J_i = -c \sum_{j=1}^{n-1} D_{ij} \nabla x_j \quad (31)$$

$D_{ij}$  を Fick 拡散係数と呼ぶ。しかし、この  $D_{ij}$  は Maxwell-Stefan 拡散係数のように、必ずしも  $i$  と  $j$  両成分の相互作用を示しているとは言えないので、 $D_{ij}$  に物理的意味は余りないと言える。さらに  $D_{ij}$  は負の値もとる得る。しかし、式 (31) の形は多成分系の物質輸送方程式に導入するのが極めて容易であるという利点がある。

Fick 拡散係数と Maxwell-Stefan 拡散係数との間の関係は、式 (31) と (13) を比較することにより、次式で与えられる。

$$[D] = [A]^{-1} [\Gamma] \quad (32)$$

ここで  $[D]$  の各成分は式 (31) の係数、すなわち Fick 拡散係数である。

例として3成分理想混合気体を取り上げれば、両拡散係数の関係式は次式となる。

$$D_{11} = D_{13}^* [x_1 D_{23}^* + (1-x_1) D_{12}^*] / S \quad (33)$$

$$D_{12} = x_1 D_{23}^* (D_{13}^* - D_{12}^*) / S \quad (33a)$$

$$D_{21} = x_2 D_{13}^* (D_{23}^* - D_{12}^*) / S \quad (33b)$$

$$D_{22} = D_{23}^* [x_2 D_{13}^* + (1-x_2) D_{12}^*] / S \quad (33c)$$

$S$  は式 (21) で与えられる。

成分1と2が成分3中にわずかに混合している場合

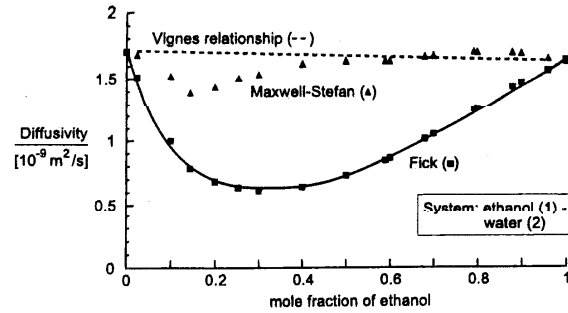


図1. エタノール水溶液の拡散係数

は、 $x_1=0, x_2=0$ より次式となる。

$$D_{11} = D_{13}^*, D_{12} = D_{21} = 0, D_{22} = D_{23}^* \quad (34)$$

一般に  $x_n \approx 1$  で他の成分が希薄ならば

$$D_{ii} = D_{in}^*, D_{ij} = 0 \quad (35)$$

である。

2成分系では次式が成立する。

$$J_1 = -c D_{11} \nabla x_1 \quad (36)$$

$$D_{11} = D_{12}^* \Gamma_{11} \quad (37)$$

2成分系の Fick 拡散係数と Maxwell-Stefan 拡散係数の例を図1に示す。Maxwell-Stefan 拡散係数の方が濃度依存性は小さいことがわかる。もし理想混合物であれば

$$D_{11} = D_{12}^* \quad (38)$$

となり、両拡散係数は一致する。

### 6. 拡散係数の推算式

2成分系混合ガスのFickあるいはMaxwell-Stefan 拡散係数に関するいろいろな式が主として1950~1970年代に提出され、希薄溶液に対する式は1970年代から現在まで、これもいろいろな式が提出されている。濃厚溶液に対する拡散係数に対してもいくつかの式が提案されているが、次のVignesの式が

簡単で、比較的精度も良いとされている。

$$D_{12}^* = (D_{12}^{\circ})^{x_2} (D_{21}^{\circ})^{x_1} \quad (39)$$

上式による計算値を図1に破線で示す。

一般の多成分系のMaxwell Stefan 拡散係数の推算式もいくつか提案されているが、最も簡単で精度が高いと思われるのは次式である。

$$D_{ij}^* = (D_{ij}^{\circ})^{(1+x_j-x_i)/2} (D_{ji}^{\circ})^{(1+x_i-x_j)/2} \quad (40)$$

### 7. 有効2成分拡散係数

多成分混合物の拡散を扱う場合は、以上のようにMaxwell-Stefan 拡散係数 $D_{ij}^*$ の値が必要となるが、これの測定は一般に困難であるので、混合物全体を成分*i*と*i*を除いた他の成分よりなる混合物*m*との2成分と考えて、有効2成分拡散係数 $D_{im}$ を次式で定義することがしばしば行われる。

$$J_i = -cD_{im}\nabla x_i \quad (41)$$

もし成分1の濃度が大きく、成分2,3,...,nの濃度が非常に小さいときは成分2,3,...,n-1間の相互作用も小さくなり

$$D_{im} = D_{i1} \quad (42)$$

としてよい。すなわち成分*i*はそれぞれ独立に成分1との2成分混合物として拡散する。

有効2成分拡散係数を使用したときは、一般に物質移動速度の計算値はかなりよい結果を与えるのに対し、濃度分布に関しては余りよくない。したがって、多成分系の物質移動過程を積分法で解析するような場合は、 $D_{im}$ を用いるのはかなり有効と思われる。

以上、多成分拡散について概要を述べた。多成分拡散の機構についての研究、これはとりも直さず拡散係数の定式化に他ならないが、これは1960年代以降かなり活発であったが、現在は高分子溶液等の複雑な形状の分子の溶液における多成分拡散に焦点が移っているようである。従って、比較的簡単な形状の分子を持つ物質の多成分拡散の問題は、物質輸送

方程式中の物質流束がやや複雑な形をしているというだけで、物質輸送方程式を解くという観点からはそう大きな問題ではない。ただし、多成分系の場合、現象そのものが、我々の直観的に予想される挙動と異なることがあり得るので、この意味で、この方面の研究は興味深い。

最後に、多成分拡散に関する参考書として、よくまとめられているのが、文献3)である。文献2)もよく読まれているようである。文献1)での多成分拡散についての取り扱い、本質的には文献2)、3)と同じであるが、記述の仕方はかなり異なっている。

### 参考文献

- 1) R. B. Bird, W. E. Stewart and E. N. Lightfoot, Transport Phenomena, John Wiley & Sons, Inc., New York 1960
- 2) E. L. Cussler, Multicomponent Diffusion, Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam 1976
- 3) R. Taylor and R. Krishna, Multicomponent Mass Transfer, Wiley Series in Chemical Engineering, John Wiley & Sons, Inc., New York 1993

多成分系の凝固  
Solidification of Mixtures

林 勇二郎 (金沢大学)  
Yujiro HAYASHI (Kanazawa University)

1. はじめに

液相から固相への変化である凝固は、液体分子の回転運動の凍結であり、原子の集合・配列化による相構造の固定と熱の放出を伴う。熱の移動を主たる論点とする従来の伝熱研究では、温度などの場の巨視的な状態を記述する、所謂、Neumann-Stefan型の取扱いを行って来た。近年、潜熱蓄熱の性能向上を受けて、PCM(相変化材)の多様化、機器形状の複雑化、温度域の拡大など、系の高次・複雑化が著しく、凝固問題の取扱いにも新たな展開が見られている。しかし、たとえ対象が多成分であったとしても、通過型の熱の移動を目的とする限り、その取扱いは従来の輸送現象論の枠を超えるものではない。多成分系の伝熱は、固相あるいは液相にあっては、単に束一的挙動を示すにすぎないからである。

他方、凝固を利用した材料、特に新素材の製造においては、固相の組成や構造の微視的スケールでの固定が主眼となる。液体の状態では、マイクロ性は高い自由度の中に埋没し、それはマクロスケールでのバルク挙動に取って代わるが、内部エネルギーが小

さく安定度の高い固相にあっては、ミクロスケールの個性が発現し得る<sup>(1)</sup>。即ち、残留型の材料製造においては、相の固定が主、熱の移動が従であり、ここに新たなパラダイムのもとでの輸送現象論が発展し得る。

筆者に与えられた課題”多成分系の凝固”は、本質的に、後者の材料分野に視点を置いた言及を示唆する。本稿では、多成分系の凝固の伝熱を、筆者らがこれまで進めて来た研究をまじえ、なるべく基礎的な立場から解説する。

2. 凝固とマイクロ性の固定

2.1 冷却速度

結晶とアモルファスは、原子の秩序配列と無秩序配列の差異はあるが、いずれも原子レベルでのマイクロ性が固定されたものである。アモルファスは急冷凝固による新素材の代表的な例であるが、急冷の操作はこの他に、過飽和固溶体、無分配凝固、準安定結晶相など、通常操作では得られない特異な凝固相を発現する<sup>(2)</sup>。このように凝固においては、原子レベルから微細な組織のレベルまでさまざまなマイクロ性が固定され、バルク相としての優れた特性を引き出す。凝固の場において、マイクロ性の固定を主役とするならば、冷却速度は脇役として重要となる。

図1は、過冷却状態のもとでの結晶成長開始の条件を、温度と時間の関係で示したTTT線図(温度・時間変態図)である。以下に、この図をもとに冷却速度とマイクロ性の固定について概観する。液体を熱力学的平衡を維持しながらゆっくりと冷却すると、凝固点 $T_m$ で原子が周期的に配列された結晶が形成される。冷却速度を時間当たりの温度降下とすれば、図中の領域(a)が緩速冷却に相当し、このような条件では、凝固層を介した外部冷却により結晶相が界面形成される。冷却速度を増大させていくと、やがて安定固相の成長を上回って場の冷却が進行し、熱力学的に準安定な過冷却状態が出現する。

過冷却された液体中に時刻 $t$ 秒後に形成される結

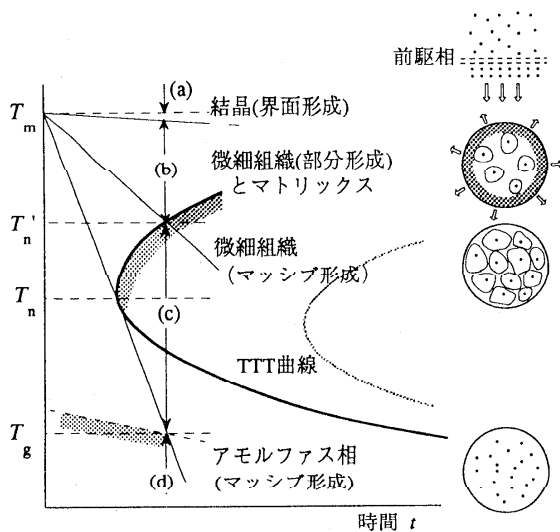


図1 凝固形態と冷却速度

表 1

冷却速度 (凝固の熱的源資)	温度条件	固相形成	固定されるミクロ性
緩速 (外部冷却)	$T = T_m$	界面	原子 (周期配列)
中速 (過冷却と外部冷却)	$T_m > T > T_m - \frac{L_H}{C_p}$	部分バルクと界面	微細結晶とマトリックス相
急速 (過冷却)	$T_m - \frac{L_H}{C_p} \geq T \geq T_n$	バルク (Bi<0.01)	微細結晶
超急速 (過冷却)	$T_g > T$	バルク (Bi<0.01)	原子 (無秩序)

晶の体積分率  $X$  は、均一核生成頻度  $I_{\text{homo}}$  [個/cm<sup>3</sup>・s] と結晶成長速度  $u$  を用いて次式で与えられる<sup>(3)</sup>。

$$X = \frac{\pi}{3} I_{\text{homo}} u^3 t^4 \quad \dots (1)$$

式(1)に  $I_{\text{homo}}$  と  $u$  の関係式を代入することにより、 $X$  をパラメーターとした C 形の TTT 曲線が得られる。安定固相の出現に対する臨界の冷却速度は、この曲線のノーズに接する条件で与えられる。即ち、図中の領域 (d) の条件では結晶の変態はなく、温度降下とともに液体の流動性 (粘性係数  $\eta$  の逆数) が低下し、 $\eta = 10^{13}$  poise 程度となるガラス化温度  $T_g$  で、液体構造をそのまま持ち込んだアモルファス相がバルク形成される。この際、液相からアモルファス相への構造緩和の時間は冷却速度に依存するため、ガラス化温度も一定とならず、固定されるミクロ性にも差異が生ずる。領域 (d) で示される条件は、一般に超急速冷却と呼ばれる。

緩速冷却 (a) と超急速冷却 (d) の間の領域を、ここでは中速冷却 (b) と急速冷却 (c) に分けて考える。これらの領域は、冷却速度としては (a) と (d) の中間に位置するが、温度範囲は  $T_m > T \geq T_n$  であり、 $T_n$  と  $T_g$  の温度は実際には取り得ない。ここで、 $T_n$  は冷却曲線が TTT 曲線と接する点の温度である。また、この温度範囲では過冷却が凝固の源資となり、マッシュな凝固と部分的な凝固は  $T = T_n' (= T_m - L_H / C_p)$  の温度で規定される。即ち、 $T_n' \geq T \geq T_n$  の温度範囲となる急速冷却のもとでは、C 形の上部の TTT 曲線に沿って核生成と結晶成長により、メソスケールの組織がマッシュに形成され、そのスケールの大きさは核生成頻度の大きいほど小さいものとなる。 $T_m > T > T_n'$  の温度範囲となる中速冷却では、まず過冷却による部分凝固が

生じ、残りのマトリックス相は外部冷却により固定化される。全体に対する部分凝固率は、冷却曲線と TTT 曲線とによる凝固温度 (準安定な過冷却状態が崩壊する温度) で一意的に決まり、部分凝固の挙動は、急速冷却の延長として議論される。表 1 は、緩速、中速、急速、超急速からなる 4 種の冷却速度の分類のもとで、以上のことをまとめて示したものである。アモルファス相の生成には  $10^4 \sim 10^{12}$  K/s の大きな冷却速度を必要とするが、超急速に限らずここで分類される冷却速度およびそれに対する凝固範囲は、対象となる液体の性質によって決定される。

## 2.2 純成分と多成分

新素材の製造において留意すべき点は、目的とする構造のミクロ性と空間的な均質性である。純成分の場合の均質性は、バルク形成においては、Biot 数 ( $\ll 0.01$ ) による温度分布の空間的一様性で議論される。界面形成においては、界面付近での温度条件の 2 次元的一様性と、その条件の時間維持が要求される。これらのことは、バルク形成にあつては寸法スケールの制約が、界面形成 (例えば、Czochralski による単結晶の育成) にあつては大径化に対する条件設定の困難さを意味する。

構造のミクロ性の固定は、相転移する液体状態を、できるだけ目的とする固相の構造に近づけることによって達成される。液体状態では、自由体積は原子の激しい熱運動により生成消滅を繰り返してはいるが、固体状態とはエネルギー的にも空間的にも比較的近い関係にある。これは、分散気相からの固体膜形成において、表面に到達した原子が構造化するための緩和挙動が許されるのと大きな違いである。界面形成では、このような固体状態に近い数分子層

からなる液体の前駆相の存在が、MD法によるシミュレーション計算で明らかになっている<sup>(4)</sup>。アモルファスにおいては、冷却速度と関係する構造緩和の時間が空間としての前駆相を決定している。さらに、核生成頻度と結晶成長速度によって固相のミクロ（厳密にはメゾ）構造が定まる急速冷却においては、図1で示されるように、冷却曲線とTIT曲線とが交叉する状態が前駆相を与えていることになる。

多成分系の凝固では、マッシュ変態をとらない緩速ならびに中速の冷却が興味の対象となる。固液界面での溶質の排出（または、抱き込み）が、凝固温度のみならず組成的不安定による界面形状の変化をもたらすため、凝固による組成や構造のミクロ性固定はimplicitなものとなる。簡単のために、固相線をもたない二成分系融液の状態図（図2(a)）をもとに、まず熱的過冷を伴わない緩速凝固について説明する。

純成分（成分C=1, 相数P=2）あるいは共融組成（C=2, P=3）の液体を冷却すると、圧力指定のもと

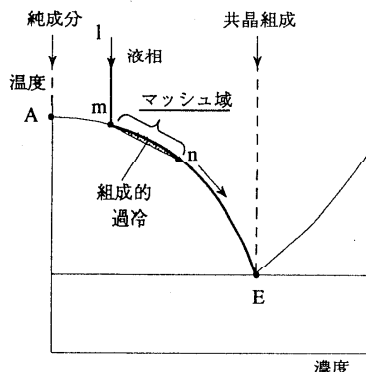
で自由度Fはそれぞれ0となり、温度一定のもとで凝固が進行する。両者の中間にある任意の組成のもとでは、液相線に達した点mで純成分（溶液の場合）あるいは固溶体（合金融液）を析出する。液相線ではC=2, P=2, F=1であるので、排出溶質による凝固点降下を伴う液相線に沿った凝固が継続し、やがて点Eで共融混合物を析出する。以上は、排出された溶質（ここでは、液相線の勾配を負とし、凝固によって溶質が排出される場合を考えている）が液相側に形成する濃度境界層に対し、固液界面での相平衡のみを考慮した議論である。しかし、実際には、固液界面が点nに達した時点で液相側に組成的過冷（温度場が濃度に対する平衡温度を下回る）が生じ、この熱力学的不安定性は界面の不安定化による固液共存域を形成する。即ち、二成分系においては、平滑な固液界面のもとでの平衡凝固が開始しても、容易に組成的過冷の状態が現れる。この熱的不安定が形状的に安定な固液共存域（液相線mn）にとって代わり、このマッシュ域は領域を拡大（点nのEへの接近）させながら平衡凝固へと移行する。

図2(b)にもとづき、熱的過冷を伴う中速凝固について説明する。外部冷却により液体側に過冷却場（点nからmの領域）が生ずると、この熱的不安定性は壁面での核生成と結晶成長とにより崩壊し、安定なマッシュ域を液相線mn'上に形成する。即ち、熱的過冷は、二成分系に潜在する不安定を先取りしてマッシュ域を形成し、安定な平衡凝固をもたらすと言える。凝固においては、通常、熱的過冷却が少なからず生じていることを考えれば、多成分系の凝固においては、熱的過冷却の存在を前提とした議論が優先されることになる。第3章では、過冷却と外部冷却とを凝固の熱的源資とする、中速冷却を対象とした速度論的について述べる。

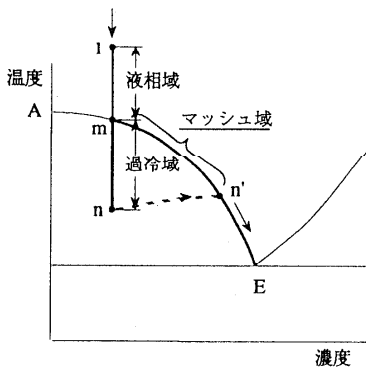
### 3. 非平衡凝固（二成分系）<sup>(5) - (7)</sup>

#### 3.1 凝固過程

図3に過冷却を伴う合金融液の凝固過程を、温度場と凝固相の形態変化として示す。Tは濃度に対する平衡温度である。外部冷却により、まず(1)非一様な過冷却場が形成される。次いで、(2-1)壁面核生成に始まる結晶の自由成長と、それに続く(2-2)結晶の肥大化とによる、非平衡凝固が過冷域内で進行する。肥大化が、先行した自由結晶の先端に達すると、凝固先端は再び移動を開始し(3)安定なマッシュ域をもった平衡凝固となる。



(a) 熱的過冷を伴わない場合



(b) 熱的過冷

図2 多成分凝固とマッシュ域の形成

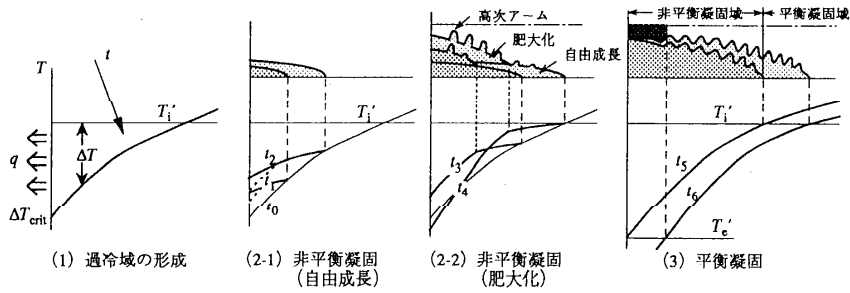


図3 過冷却凝固の過程

$$\Delta T = \frac{L_H}{c_p} \text{Iv}(P_T) + mC_i \left\{ 1 - \frac{1}{1 - (1 - k_0)\text{Iv}(P_C)} \right\} + \frac{2\Gamma}{R} \quad \dots (1)$$

$$R = \frac{\Gamma/\sigma^*}{\frac{P_T L_H}{c_p} + \frac{P_C m C_i (1 - k_0)}{1 - (1 - k_0)\text{Iv}(P_C)}} \quad \dots (2)$$

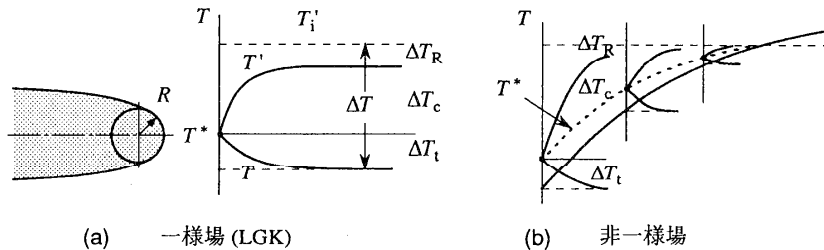


図4 自由成長

以上の過程で、過冷却と外部冷却を源資とする非平衡凝固の過程は、凝固全体の枠組を与える意味で極めて重要である。以下、これについて詳述する。合金融液では、自由結晶の成長速度が小さく、外部冷却によるポスト自由成長の場の回復が速いため（凝固潜熱が小さく、熱物性が大きいことによる）、結晶の自由成長と肥大化は相前後して生ずる。水溶液では、これと逆の理由により、両者はほぼ独立な過程となって現れる<sup>(8)・(9)</sup>。また、固溶体を形成する合金融液に対して、溶質の排出の大きい水溶液の自由結晶は、側部に高次アームを持った粗雑なデンドライト晶となり、この段階で過冷却場はほぼ完全混合化（熱力学的平衡状態）される。即ち、水溶液の場合は、(2-1)の結晶の自由成長が、再熱により準定常的な伝熱場を中断させ、(2-2)の肥大化は外部冷却により、それが回復する待ちの過程となる。それに対し、合金融液では、(2-1)の自由成長では過冷却場は解消されず、(2-2)の過程で平衡状態となる緩和が行われると言える。

### 3.2 結晶の自由成長

過冷却状態からの結晶の自由成長は、それに継続する凝固に対する時間的・空間的な前駆過程となる。一様過冷却場での融液からの結晶成長速度  $v$  は、結晶の先端形状（曲率半径  $R$ ）の安定性に基づく LGK モデル<sup>(10)</sup> により、 $\Delta T (= \Delta T_t + \Delta T_c + \Delta T_R)$  と溶液濃度  $C$  の関数として決定される。図 4 (a) に示される一様過冷却場のもとでは、放出潜熱を伝熱的に受入れるための負の温度勾配（過冷却  $\Delta T_t$ ）が結晶前方に存在しており、このことはデンドライトの優先的成長を示唆する。他方、図 4 (b) に示される非一様の過冷却場は正の温度勾配をもつが、結晶の先端付近では、局所的には一様場と同様の考え方が認め得ると考えられる。実験的に得られた非一様場に対して、式 (1)、(2) で与えられる LGK の関係式を適用し、得られた結果を実験結果とともに図 5 に示す。Pb-Sn 合金融液を供試したここでの結果は推定値と比較的良好く一致しており、過冷却が大きく融液濃度が小さいほど結晶成長の速度が大きくなること、および先端の曲率が大きくなることが判る。これより、非

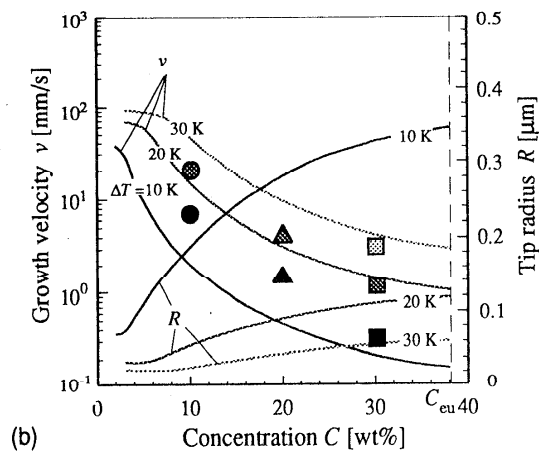
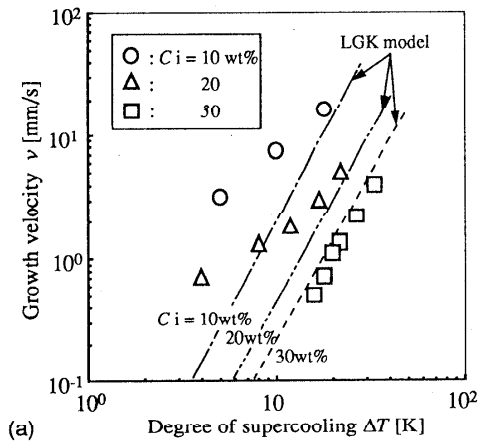


図5 自由結晶の成長速度と形状

一様な過冷場に対しても、局所的にLGKモデルが適用が可能と言える。

### 3.3 ミクロ性の固定

凝固によって組込まれる結晶の形態と組成のミクロ性について、Bi-Sn融液を供試した実験結果をもとに説明する。図6はSn-30.8wt%Biを例とした。(a)金属顕微鏡による組織の観察、(b)SEMによる反射電子像、および(c)EPMAによる成分分析の結果である。図7~9は、これらの結果を定量化して示したものである。図7では、壁面から凝固組織が粒状晶、セル、セルとデンドライト、さらにはデンドライトへと変化しながら結晶の太さと間隔を増加させ、やがて平衡凝固へと移行している様子が判る。一次アーム間隔の拡大は二次アームの成長と符合するが、二次アームの間隔はほぼ一定である。図8は、結晶中心軸上での組成分布を、初期の温度分布とともに状態図上に示したものである。Biの組成が30.8wt%の場合、結晶に固定される組成は、壁面から内部にかけての過冷却温度abに対応する固相線a"b"に沿って結晶成長方向に減少し、平衡凝固の過程ではb"で一定となっている。このことは、点aでの壁面核生成による僅かな温度上昇のあと、自由結晶は液相線と固相線に沿う局所平衡の界面をもって進行し、その後、初期濃度に対する平衡温度のもとで結晶が成長していることを示している。また、壁面から離れるにつれて結晶側部から排出される溶質は多くなるた

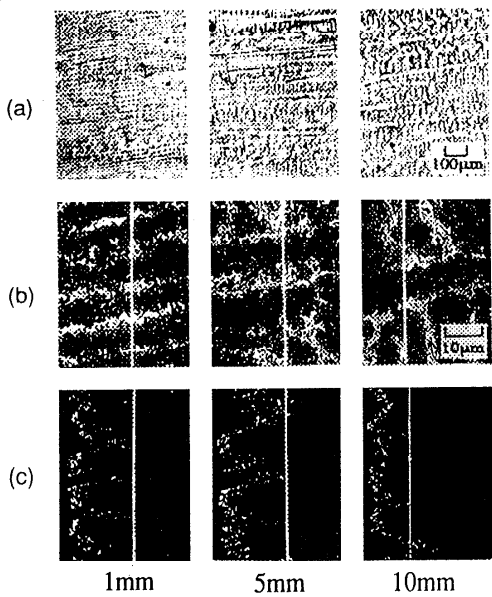


図6 ミクロ組織

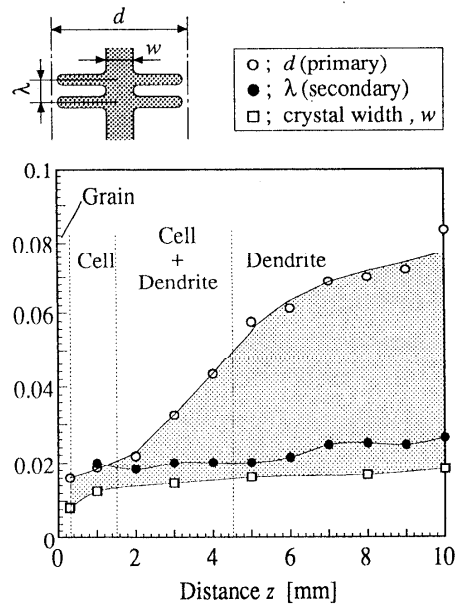


図7 結晶のミクロ形態



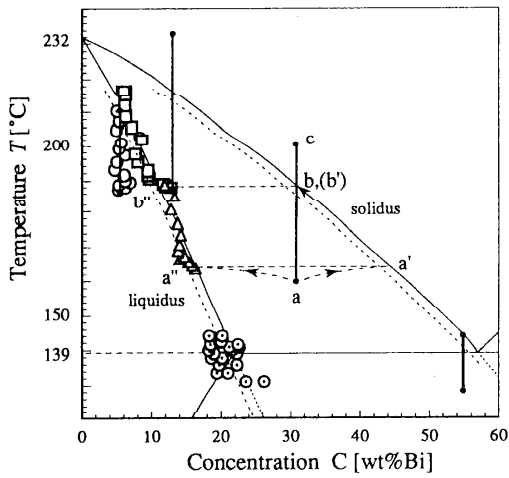


図8 結晶中心軸上の組成分布

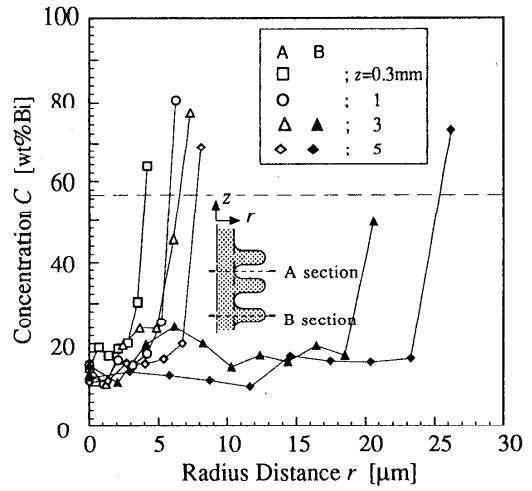


図9 結晶半径方向の組成分布

め、核生成に始まる粒状結晶は、セルからデンドライトへと形態を変化させる。以上の議論は、過冷却状態が液相線と固相線、あるいはその延長線にある場合に対してすべて適応する。なお、Biの初期組成と固相線との差異の大きさは、結晶形態の粗雑さを相対的に決定する。Biの組成が5.3wt%については、初期において固相線を下回る過冷却場となっているため、組織形成のないマッシュ変態となる。図9では、結晶のスパン方向の組成が、中心軸から若干低下し再び増加して共晶組成をもった粒界を形成していることが、セルからデンドライトへの形態の変

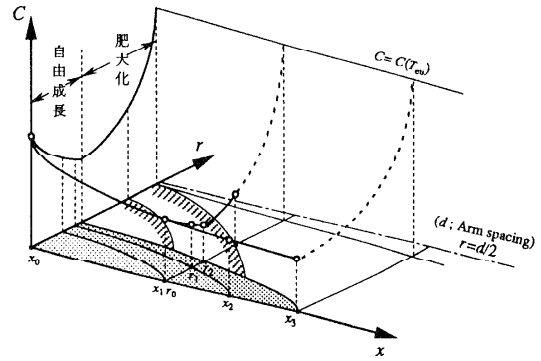


図10 ミクロ性発現の機構

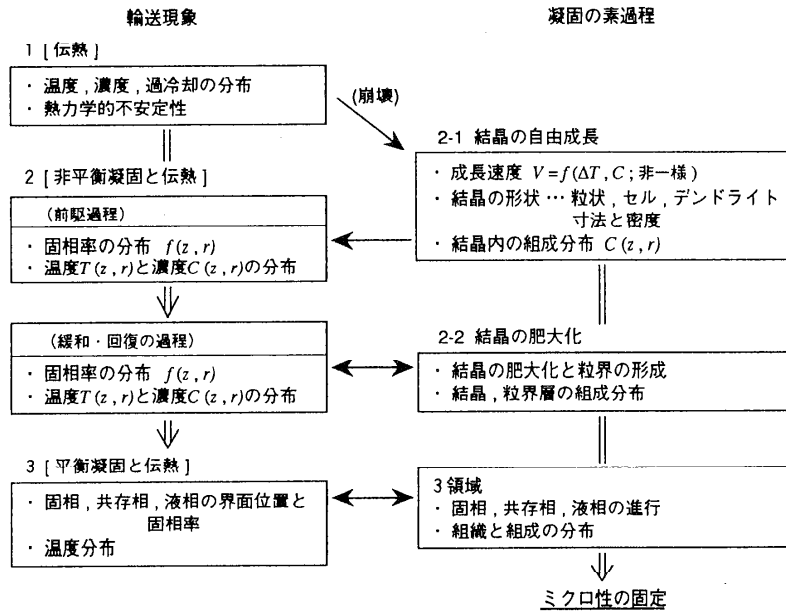


図11 輸送現象と凝固素過程の連結

化とともに捉えられている。

以上を総合して、過冷却を伴う凝固におけるマイクロ性の取込みが図10のように示される。自由成長する結晶の中心軸上では、過冷却場に対応する固相線の組成がin-situに固定され、平衡凝固では一定となる。半径方向には、自由成長の過程では再熱の影響を受けて若干低下するが、外部冷却による肥大化の過程では場の温度低下に従って増大する。このように、半径方向では場の状態変化に対応した局所平衡のもとで組成と構造が固定される。組成のスパン方向積分値が初期の液体組成より小さい場合、共晶組成をもった粒界が形成される。

### 3.4 ミクロ凝固のシミュレーション

過冷融液凝固の伝熱は、過冷却場を形成するまでの伝熱、自由結晶の成長による伝熱場の中断、潜熱と溶質の排出を受けた非平衡場が、壁面冷却のもとで結晶の肥大化を伴い回復する過程、および平衡凝固の伝熱過程よりなる。即ち、ここでのミクロ伝熱は、マクロな輸送現象に、組織と組成のマイクロ性を取り込む凝固の素過程を連結したものとなる。図11に示したマクロとミクロの連結により、Bi-30wt%Snを例にシミュレーション計算した(a)温度場と(b)結晶形態の経時変化、および(c)自由結晶成長と肥大化の過程での組成分布についての結果を、図12に示す。高次アームの形成については省略した。

### 4. 平衡凝固 (3成分系)

前章では、熱力学的に不安定な状態(熱的過冷、あるいは組成的過冷)が安定系へ移行する非平衡凝固の過程を、2成分系を対象に言及した。ここでは、平衡凝固におけるマッシュュー域の出現とその形態を3成分系について説明する。3成分系( $C=3, P=1$ )では、圧力指定のもとで $F=3$ となり、温度と2つの組成を変数とした3次元状態図が基本となる。図13は、 $\text{NH}_4\text{Cl}$ と $\text{NaCl}$ を溶質とする水溶液を例として、3次元状態図での温度一定の切り口を三角底面に投影したものである。図において、線分AC, BC, および点Cは、 $\text{NaCl}$ の結晶、 $\text{NH}_4\text{Cl}$ の結晶、それら2つの塩の結晶が、それぞれ飽和水溶液と共存する状態である。

10wt%NaClと3wt% $\text{NH}_4\text{Cl}$ を初期組成(点1)とする水溶液を冷却すると、約 $-10^\circ\text{C}$ で凍結が開始し、両者の量比 $R(=3.3)$ 一定の水溶液と氷からなるマッシュュー域のもとで凝固が進行する。 $-23^\circ\text{C}$ と

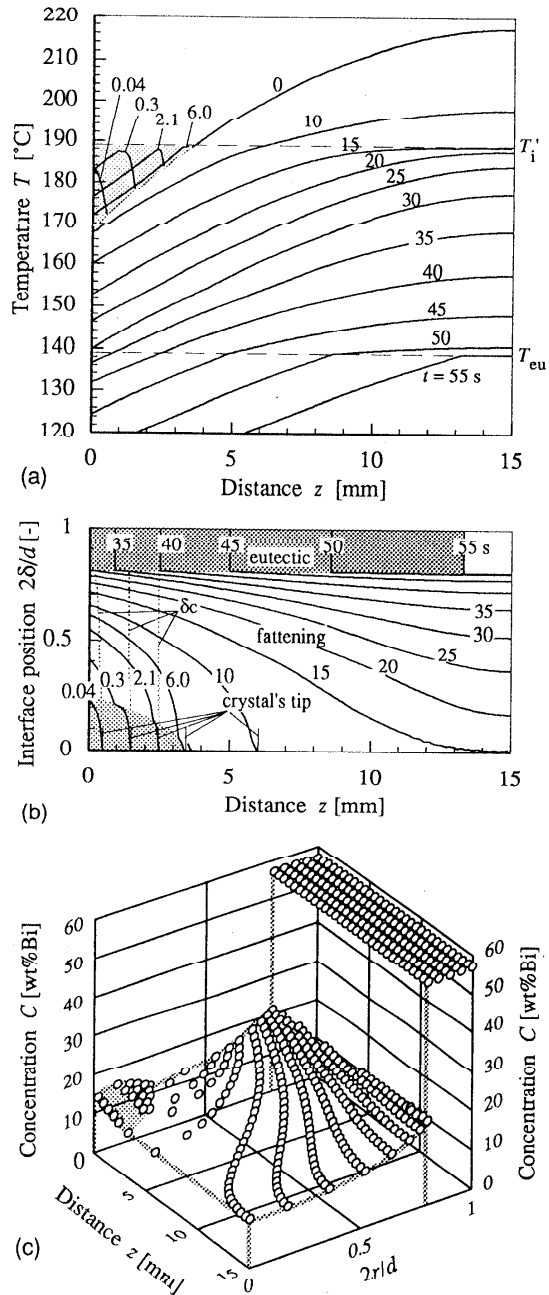


図12 シミュレーション結果

なる点mでは $\text{NaCl}\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ の結晶が析出し、それ以降は、氷と $\text{NaCl}\cdot 2\text{H}_2\text{O}$ の結晶と水溶液からなる共存相が $mC$ の曲線に沿って成長し、 $-24.5^\circ\text{C}$ となる点Cで完全固相となる。以上の過程は、溶質の量比 $R$ が図中の波線で示される $R_{\text{crit}}$ より小さい場合である。 $R > R_{\text{crit}}$ では $l'm'C$ の経路を辿り、氷結晶に続いて点 $m'$ では $\text{NH}_4\text{Cl}$ の結晶が析出する。 $R = R_{\text{crit}}$ では、氷結晶のあと完全固相が形成される。

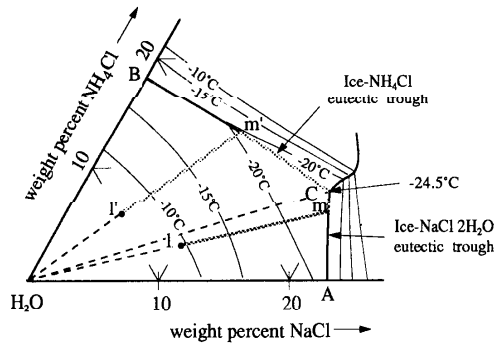


図13 3成分系状態図

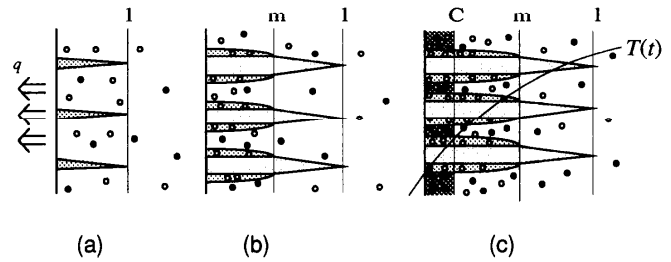


図14 3成分系でのマッシュー域の出現

図14に、氷、氷と1つの塩の結晶、氷と2つの塩の結晶からなるマッシュー域の出現を模式的に示す。これより、マッシュー域を形成する結晶の種類と出現の順序、さらにはそれらの領域が状態図を基本とした温度場に対して決定されることが判る。以上は、マッシュー域の結晶間に存在する溶液が完全混合化された、所謂、平衡状態の成立を前提としたものである。しかし、実際には、凝固により水和している溶質イオンが解離し、新たな水和と拡散により溶質濃度の分布が生ずる。図15は図14(c)に対応した観察結果の例である。二次的不安定場による高次アームの形成や、不連続な状態での結晶の偏析などが観察されるが、この他にも冷却速度に影響される多くの複雑現象が生ずる<sup>(11)</sup>。ここでは、詳述は避け、3成分系の平衡凝固の全体像の説明にとどめる。

### 5. おわりに

相の固定を主、熱の移動を従としたここでの取扱いは、従来のNeumann-Stefan型の取扱いと視点を異にする。第3章では、重点領域研究”新素材・マイクロ伝熱”で得られた成果の一部を紹介した。金属凝固の分野でこれまで説明がつかなかった現象が、伝熱研究によってダイナミックに解明されたと言えよう。これまで主役を演じて来た伝熱研究が脇役に甘んじることには抵抗はあるかも知れないが、大切なことは、伝熱技術・伝熱学の発展に繋がる新しい伝熱研究のスタンスである。その意味において、多成分系の凝固は格好の舞台であることだけは確かなようである。

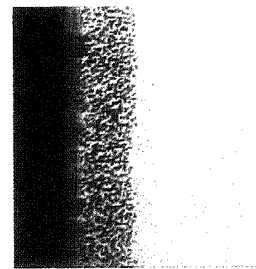


図15 H<sub>2</sub>O-6wt%NaCl-14wt%NH<sub>4</sub>Cl

### 参考文献

- (1) 林, 機械学会第70期全国大会資料, F (1992), P.114.
- (2) 西尾, 伝熱研究, 30-119 (1991), P.8.
- (3) 増本, アモルファス金属の基礎, オーム社 (1982)
- (4) 岩木, 機論A, 62-593 (1996), P.108.
- (5) 林, 重点領域研究「新素材・マイクロ伝熱」成果報告書 (1996), P.69.
- (6) 林, 義岡, ほか, 第32回日本伝熱シンポ講演論文集, 2 (1995), p.413.
- (7) 義岡, 林, ほか, 第33回日本伝熱シンポ講演論文集, 1 (1996), p.223.
- (8) 林, 國峰, ほか, 機論B, 62-596 (1996), P.237.
- (9) 國峰, 林, 義岡, 機論B, 61-591 (1995), P.353.
- (10) Lipton, J, ほか, Mater. Sci. Eng., 65 (1984), p.57.
- (11) 鈴木, 金沢大学工学部卒業論文 (1996)

## 多成分系の相平衡

## Phase Equilibrium of Multicomponent Systems

石崎 幸三 (長岡技術科学大学)

Kozo ISHIZAKI (Nagaoka University of Technology)

## 1. はじめに

多成分系の相平衡を理解するのは、エネルギー問題、環境問題そしてその解決のための機能性材料の創生など、現代の工学の諸問題究明のための第一歩である。まずここでは(平衡)状態図(または相図)の誤解されている面を分かりやすく説明する。また、状態図としての、気体と固体反応も説明する。分かりやすく専門家以外の方が容易に理解できることを主眼に稿を進める。

## 2. (平衡)状態図

工学を行うものが一度は聞いたことがあるのが状態図である。不幸なことに状態図は一般の学習の影響でほとんどの人が一種のグラフと勘違いをしている。この誤解を解くのがまずは状態図の理解第一歩である。

## 2.1 数学上のグラフと状態図の違い

まず数学上では我々は中学高校のレベルで状態図に似たものとしてグラフを学ぶ。中学生になったつもりでグラフのおさらいすると、横軸に $x$ をとり、縦軸に $y$ をとり、 $x$ のある値に対する $f(x)$ なる値を $y$ 軸上にとる。それにより得られた曲線をグラフと呼んでいる。図1.はある物質の一元系の状態図である。横軸に温度 $T$ をとり、縦軸に圧力 $P$ をとると、先ほどのグラフと同じような図に見える。しかし、ある温度 $T$ の時に $f(T)$ を計算、あるいは実験で求め、それに対する $P$ が決定され曲線が求まったとすると、つまりグラフ的に理解すると、これは明らかに間違いである。

温度 $T$ も圧力 $P$ も、完全に独立した変数であり、また実験値として我々が自由に設定できる。つま

り、実験条件によりある温度の時に圧力をいくらにするかは完全に自由である。したがって $P=f(T)$ のグラフではないのは明確であり、このような簡単な例の場合、読者の多くは問題なくグラフと状態図の差が理解できると思うが、もっと複雑になると理解していただけない場合がでてくる。

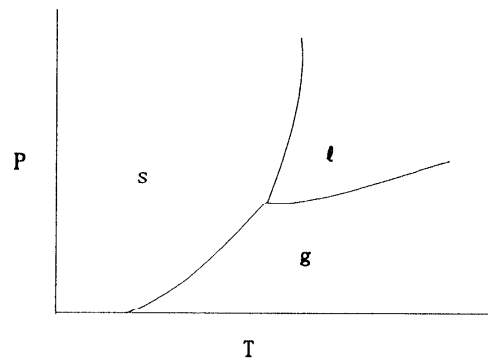


図1. 一成分系の状態図の例。この図は横軸 $T$ 、縦軸 $P$ のグラフではなく領域を示した状態図であることに注意。ここで $g$ 、 $l$ 、 $s$ は各々気体、液体、固体の意味。

そこでもう少しくどくグラフと状態図の差異について述べる。まず、グラフは曲線である(当たり前のように思えるだろう)。ところが状態図は曲線ではなく、領域をもった面(二次元の図の場合)や体積(三次元以上の図の場合)であり、曲線は領域の境界線として表れる。すなわち図1.で $g$ はgasの領域、 $s$ はsolidの領域、 $l$ はliquidの領域を意味しており、曲線はそれらの境界線つまり両方の相の共存する線である。このグラフとの違いはこれ以外の複雑な状態図、例えば、2元系、3元系、酸素分圧-温度状態図などはすべての場合に

言えることであり、状態図は常に領域をもつ。

### 3. 2成分系状態図

2成分系状態図を理解するため、少し幼稚なパラドックスを利用し説明したい。そこで相平衡を考える基本であるギブスの相律を考えたい。

#### 3.1 ギブスの相律

多成分系の平衡を考える一つの基本にギブスの相律がある。成分の数をCとし、相の数をP、その相を保ちながら自由に変化をさせることができる独立した変数の数をFとすると、

$$F = C - P + 2 \quad (1)$$

という関係がある。

例えば図1の場合、Cが1であり、固体、気体、液体三相が同時に存在する点でPは3であるので、自由に変化できる独立した変数が零になり、変化できないことを意味する。つまり不動の定点となる。したがって三重点を温度（水の三重点）や圧力（水銀の三重点）の定点として使うことができるのはこれが理由である。

#### 3.2 2成分系状態図

一般的な2成分系状態図は図2のように描ける。図中の $P_1$ 、 $P_2$ 、 $P_3$ 、 $P_4$ 点でギブスの相律をチェックしてみると、表1ようになる。ここに圧力を略して( $F=C-P+1$ )というギブスの相律の式を使った。

各点における自由に独立して変化させうる変数とは、 $P_1$ 点では温度、濃度 $x_B$ である。同様に $P_2$ 点も同じ2変数、 $P_3$ 点では定点であり一点に定まる。ところが $P_4$ 点では図面上、 $P_1$ とか $P_2$ と同様に温度と濃度が独立して変化できそうであるが、自由度はとなる。

はたしてこのパラドックスはいかに？ 図が悪いのか、相律が悪いのか。しかし状態図が領域をもっていることを思いおこせば、全く矛盾のないことが次ぎのようにしてわかる。

#### 3.3. 領域を明確にした状態図

筆者は領域を明確にした状態図を教育の場で十数年使っている。学生等にはこの方が理解しやすい

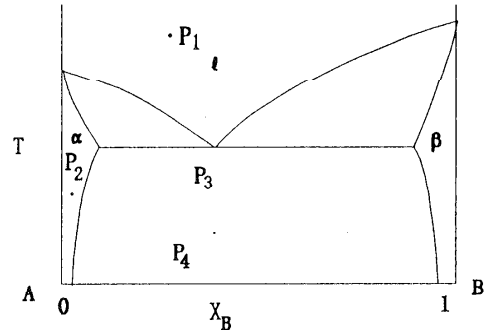


図2. 典型的な2成分系状態図。横軸は成分Bの濃度、縦軸は温度。 $P_1$ 、 $P_2$ 、 $P_3$ 、 $P_4$ の各点の自由度は表1のようになる。 $P_4$ 点では図面上、 $P_1$ とか $P_2$ と同じように見えるが、自由度が違う点に注意。

	C	P	F
$P_1$	2	1	2
$P_2$	2	1	2
$P_3$	2	3	0
$P_4$	2	2	1

表1 図2中の各点におけるC、P、Fの値

いようである。図2中に領域をあからさまに示した状態図が図3である。

図2の点 $P_1$ 、 $P_2$ は各々、点々の領域および斜めのハッチングの領域内に存在する。点 $P_4$ は何もないところに位置し本来はこの点の状態は存在し得ない。ここにパラドックスの解がある。

点 $P_4$ が意味する相とは、図3中の $P_4$ と同じ温度の点qの $\alpha$ 相と点rの $\beta$ 相の2相が共存することを意味しており、そもそも点 $P_4$ には相はない。

点 $P_4$ にて温度を上下するのが唯一の自由度である。 $x_B$ を図中で左右( $x_B$ を増加したり、減少させたり)することは、何も相の自由度には関係ない。

これは0°C、1気圧で水と氷を共存させている系に熱を入れたり出したりして、氷と水の割合を変化させているのに相当する。氷の量にかかわらず、

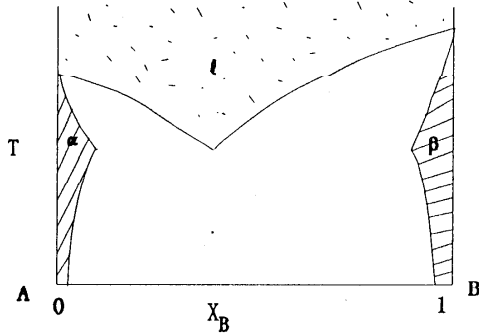


図3 3つの領域を明確にした図2の状態図。この状態図には3つの相の領域しか存在せず、他の領域は空である。成分Aの多いα相、成分Bの多いβ相、液相lが存在する。

水と氷が共存できる1気圧下の状態は0°Cで状態が決定する。したがって点P<sub>4</sub>が自由度が1であるのは、温度に対応し矛盾しない。

三成分系など複雑な系も全て領域で見ると分かりやすくなる。各々の方に一度それを試みることをお勧めする。今回は、もっと変わった応用例の多い状態図の話の次ぎに進める。

#### 4. 気体-固体反応状態図

気体と固体の反応を示す状態図がある。エーリングラム図、あるいは高圧下で筆者自らがHIP相図と呼んでいる状態図である。

一番応用の広い場合として、気体が酸素の場合を取り上げよう。それは酸化還元の状態図である。例えば元素M、M'が酸化してMO、M'O<sub>2</sub>になる場合を考えると、



の化学式が考えられる。これらがどんな酸素の濃度でM、M'が安定しているか、MOまたはM'Oが安定しているかというのを示したのがエーリングラム

図という、一種の状態図である。

この状態図は、例えば横軸に温度、縦軸に酸素分圧(P<sub>O<sub>2</sub></sub>)で図中にM、M'、MO、M'O<sub>2</sub>の領域が存在するはずである。

まずギブスの相律を式(2)に適用すると、成分の数C=2であり、相の数はMのみ、またはMOのみが安定している場合、気相と固相のP=2となり、自由度が2となる。これは、温度と酸素分圧が自由に变化できるT-P<sub>O<sub>2</sub></sub>面中の面であることを表す。

一方、MとMOが共存できる状態では固相が2となり相の合計が気相と合わせるとP=3となる。したがって自由度は1となり、温度酸素分圧面上で両者の間に関係を持たせながら変化させる必要が出てくる。したがってMとMOが共有するのは線となる。

また、(3)式の元素M'がMと同じ場合、つまり元素Mが2つの形の酸化物をもつ場合を考えると、成分の数は同じくC=2、相の数は、気体、固体M、固体MO、固体MO<sub>2</sub>がある。三相M、MO、MO<sub>2</sub>が共存している場合、気相を含めP=4となり自由度F=0となる。これは2つの線の交点として存在することを意味するが、実際には後述するように、この2本の線(MとMOが共存する線とMOとMO<sub>2</sub>が共存する線)はほぼ並行となり交点を持たない。つまり、温度、酸素分圧が一つに決定される定点となり、温度-酸素分圧面中に点として表されるはずであるが、一般には存在しない。

ではMがもう一つの酸化物、例えばM<sub>2</sub>O<sub>3</sub>をもった場合、M、MO、MO<sub>2</sub>、M<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が同時に共存できるであろうか。この場合はもちろん、Fが負となり、答えはノーである。

これらが共存するにはもう一つ別な条件が必要となる。一つの可能性としては、MとMOが固溶体を作り一相になること、もう一つ別な可能性は成分をもう一つ増すこと。後者の場合その成分として全圧も一つの可能性であり、それがHIP(Hot Isostatic Processing)相図と呼ばれているものである。<sup>1)</sup>

#### 4.1 エーリングラム図

ここで話を元に戻しエーリングラム図の説明を行う。先ほどの説明で、MとMOあるいはM'とM'O<sub>2</sub>が共存するのはT-P<sub>O<sub>2</sub></sub>面上で線となることが分かった。

この線より高い $P_{O_2}$ 側で酸化物が低い $P_{O_2}$ 側でMが安定しているはずである。これを求めるのに、便宜上 $P_{O_2}$ の代わりに $RT \ln P_{O_2}$ として（ここにRはガス定数、lnは自然対数） $P_{O_2}$ をエネルギーの単位で示したのがエーリングム図であり、次ぎのようにして求めることができる。

(2)式中の各物質のギブス自由エネルギーをGとし、ある標準状態（圧力： $P_0$ 、温度： $T_0$ 、純粋）のGの値を $G^0$ とすると（注：この標準状態の定義は、圧力の影響を入れやすくするために、このような取り方をしたが、そうでない場合もある。）また、簡単に計算するため、固体の濃度を常に純粋と仮定しよう。

$$G = G^0 + g(P, T) \quad (4)$$

ここにGは一般のP、Tにおける値で、gはPとTの関係、(2)式中のGを求めると、

$$G_M = G_M^0 + g_M(P, T) \quad (5)$$

$$G_{O_2} = G_{O_2}^0 + g_{O_2}(P, T) \quad (6)$$

$$G_{MO} = G_{MO}^0 + g_{MO}(P, T) \quad (7)$$

平衡状態では

$$\begin{aligned} \Delta G &= 2G_{MO} - (2G_M + G_{O_2}) \\ &= 0 \end{aligned} \quad (8)$$

したがって、(5)、(6)、(7)を代入すると

$$\Delta G^0 + 2g_{MO} - (2g_M + g_{O_2}) = 0 \quad (9)$$

平衡の条件は

$$\Delta G^0 = 2g_M + g_{O_2} - 2g_{MO} \quad (10)$$

ここで固体の自由エネルギー変化は気体に比べて充分小さいとし（エントロピー、モル体積が小さいこと）、MとMOが固体ならば

$$g_M, g_{MO} \ll g_{O_2} \quad (11)$$

したがって

$$\Delta G^0 = g_{O_2} \quad (12)$$

ある一定の圧力下の反応で、なおかつ純酸素気圧を標準状態とすると、

$$\Delta G^0 = RT \ln P_{O_2} \quad (13)$$

となる。ここで注意を要するのは、普通我々が問題にする酸素反応では、 $P_{O_2}$ だけが問題で他のガス、たとえばアルゴンや窒素が混じっていても他の反応（窒化反応など）がなければ影響がない。したがって、この式は通常での酸化反応の真空中でも、数気圧中でもガス混合が理想ガス混合に近い状態

なら使える式である。また、(11)式の省略を行わずに(12)式を求めると、(13)式の $P_{O_2}$ の代わりに平衡定数Kがはいる。

(13)式により通常の条件の酸化反応を示したものが、エーリングム図であり、これは温度と酸素分圧に対する状態図である。同様に窒化物に関する状態図なら温度と窒素分圧の図を画くことができる。

もう1つ面白い事実は「酸化反応原料と酸化物が固体で純粋と仮定できるならば、そのモル式 $M_2O_3$ 、 $M_4O_3$  etc.)によらず、すべての酸化反応が(13)式のように書ける。」ということである。つまり、酸化物が $M'O_2$ という形であってもエーリングム図には(13)式のように、1molの酸素ガスとの反応、つまり1molの酸素ガスを比較してして作成される。この場合、いわゆる物質の生成自由エネルギー（生成物1molに対する化学式）と同じになる。しかし、(12)式の場合、エーリングム図では生成自由エネルギーの2倍になるので注意を要する。また、左辺のMがMOの形の酸化物であり、右辺が $MO_2$ を生成する場合であっても同じである。

ここで図4のようにTを横軸、 $\Delta G^0 (= RT \ln P_{O_2})$ を縦軸に状態図を作成すると、温度と酸素の分圧によってどの領域で金属が安定か、酸化物が安定かが判明できる状態図を画くことができる。これがエーリングム図である。これも領域を持つ図で、x-yのグラフではない。あるTと $P_{O_2}$ で酸化物が安定か還元物が安定かを表している。エーリングム図は色々な初歩的な材料熱力学に出ている。<sup>(1,2)</sup>

## 4.2 多成分系

本稿の題に戻り、多成分系の相平衡を考えてみよう。仮に(2)式と(3)式の2つの金属MとM'が同時に存在する場合の平衡を考えてみよう。

まずMとM'と酸素からなる系でMとM'が純粋でMOとM'O<sub>2</sub>も純粋な固体で溶け合わない場合。この場合の相律を考えると、まず成分の数は、M、M'、O<sub>2</sub>となり3である。そしてすべての固相（M、M'、MO、M'O<sub>2</sub>）が同時に存在するとすれば気相のO<sub>2</sub>も入れ、Pが5となり、Fが0となる。この場合も2本の直線の交点となり1点となる。しかし多く

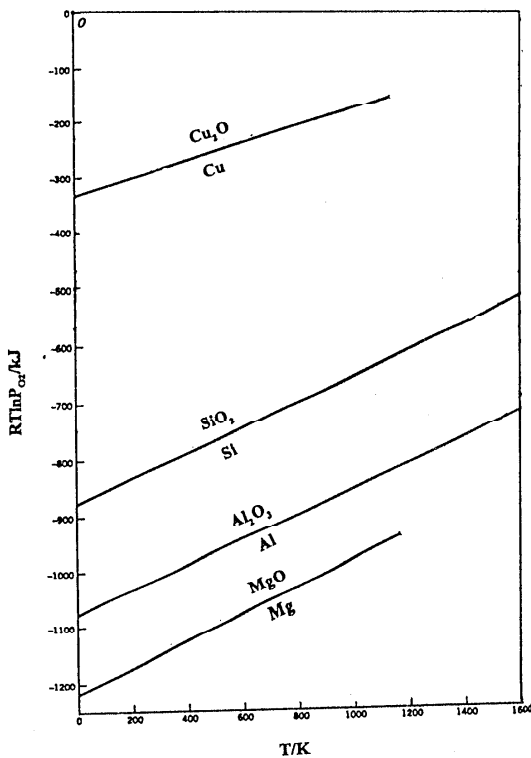


図4. エーリングガム図、線は金属と酸化物の共存線。線から上では酸化物が安定。

の場合この2本線もほぼ並行となり、この交点は存在しない。

ではMとM'が固溶体、つまり合金を作る場合はどうなるであろうか。まず第一に片方の酸化物だけが生成する酸素分圧の場合で、MとM'が全率固溶体を作る場合、Cが同じく3であるが相の数は2減って3となる。したがってFが2となり共存領域は面の領域となるはずである。これはMとM'が固溶体を作り、ギブスエネルギーとしては2つの元素で1つの値しか持たないことを意味する。一般にこの全率合金のギブスエネルギーは低くなり、酸化にはもっと高い酸素分圧、つまりエーリングガム図上では共存線が高酸素分圧側にずれた面となる。一つ注意を要するのはこの場合の共存面は、T、 $P_{O_2}$ とM/M'の量比3変数により決定されるということであり、M/M'の量比を決定すれば、共存域では線となる。

同様に酸化物同士が固溶体を作る多成分系の場合も考えることができる。

もう一つの可能性の多成分系を考えてみよう。(2)式中で表される系に酸素以外の気体、たとえばアルゴンを入れるとどうなるであろうか。これにより全圧の制御が可能となる。アルゴンの量が少なく、気体が理想気体のごとく振る舞える時にはエーリングガム図の通りでよいが、量が多くなり全体の圧力が上がるとエーリングガム図が使えなくなる。(2)式の左辺には気体の成分があるが、右辺にはない。アルゴンの量を多くすることにより、すなわち全圧を上げることにより、右辺のほうがより一層安定する。これはエーリングガム図に圧力軸を加えた3次元の図が成立する、多成分系の状態図を意味する。

多くの場合、圧力の影響がすべての反応に対して等しく、エーリングガム図の各線が平行にずれるだけである。しかし、たとえば炭素を含む系では酸化物が気体であり、全圧の影響が他の酸化物とは異なるので注意を要する。この図の作成の仕方は文献(3)に詳しく述べた。

## 5. まとめ

多成分系の相平衡を通常の本には出てこない視点から解説した。多成分系の相平衡のある一面のみの解説となったかも知れないが、読者の理解の手助けとなれば幸いである。

### 文献

- (1) P. Bolsaitis and K. Ishizaki, "Termodinámica Metalúrgica", CEA Press (1980).
- (2) D. V. Ragona, "Thermodynamics of Materials", Vol. I, John Wiley (1995).
- (3) K. Ishizaki, "Phase Diagrams under High Gas Pressure - Ellingham Diagrams for Hot Isostatic Press Process", Acta. Met. et Mat., **38**, 2059-2066 (1990).



## 多成分系の昇華

### Sublimation of Multicomponent Systems

青木 和夫 (長岡技術科学大学)

Kazuo AOKI (Nagaoka University of Technology)

#### 1. はじめに

昇華とは液相を経由することなく固相と気相間の相変化を意味し、固相から気相に変化するときも、気相から固相に変わる場合もどちらも昇華とよぶ。まぎらわしい場合、結晶が析出する後者を逆昇華とよぶこともある。

これまで、昇華現象は化学工業および金属工業における分離精製技術として利用されており、実用例として、無水フタル酸やショウノウなどの精製、合金からのマグネシウムの真空昇華精製などが挙げられる。しかし、一般に対象となる物質の昇華圧が低く、析出物の回収も困難となるため昇華精製の例はあまり多くはない。

液相から結晶をつくる場合に比べて、昇華法により結晶をつくる場合、異種分子間の相互作用(分子間)がきわめて弱く、成分分子が単独で存在するように扱え、操作条件の選択の幅が広く、また、できた結晶(固相)と原料(気相)とが完全に分離できる利点を有する。このため、近年、CVD(化学気相成長法)やPVD(物理気相成長法)に代表される薄膜の製造に昇華現象が積極的に利用されるようになってきている。

ここでは、混合蒸気からの昇華による生成物の組成に関する基礎的取り扱いを示すとともに、現在進めている液化天然ガス(LNG)の冷熱を利用した二酸化炭素の固化回収<sup>(1)(2)</sup>と関連する二酸化炭素と水蒸気の昇華現象について述べる

#### 2. 多成分系の昇華と生成物の組成

多成分混合蒸気からの昇華では、生成物の組成は作動条件や相平衡図に依存する。昇華分離に関連する蒸気圧は多くの場合非常に低く、バルクガス中の個々の蒸気成分は互いに独立して取り扱うことができる。

Matsuoka<sup>(3)(7)</sup>はナフタリン、安息香酸、p-ジクロロベンゼン(p-DCB)、p-ジブロムベンゼン(p-DBB)

などの多成分系有機混合気体からの昇華に対して一連の実験を行い、操作条件と生成物の組成の関係を報告している。

##### (1) 共晶系

共晶系では、昇華表面における個々の成分の蒸気分圧は単純にその温度に対する各成分の蒸気圧に等しいとみなされる。

図1はp-ジクロロベンゼン(p-DCB)とナフタリンの系に対し、両ガスの蒸気圧の和が一定(3.5mmHg)の条件で蒸気-固相平衡図を示すとともに、3つの蒸気成分割合に対し、共晶温度以下の冷却面温度で昇華した場合の冷却面温度と生成物の組成の関係を示している。図中の実線は生成したナフタリン(A物質)の組成割合 $Z_A$ の計算結果を示し、それは、単純に物質伝達量 $N$ (キル基準)の割合から次式で与えられる。

$$Z_A = N_A / (N_A + N_B) = \frac{\overline{h_{DA}}(x_{A\infty} - x_A^*)}{\overline{h_{DA}}(x_{A\infty} - x_A^*) + \overline{h_{DB}}(x_{B\infty} - x_B^*)} \quad (1)$$

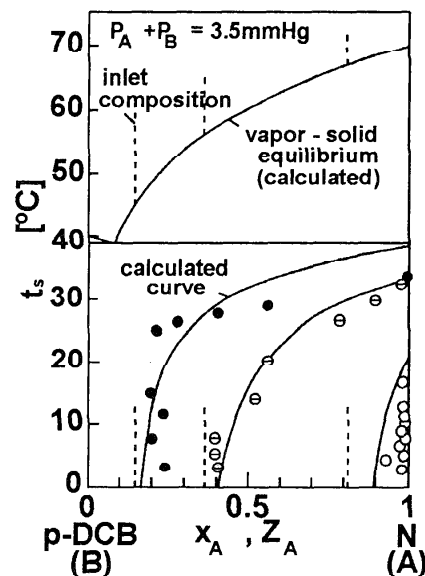


図1 p-ジクロロベンゼン(p-DCB)とナフタリン系の生成物の組成(共晶系)

ここで、冷却面温度に対する各成分の飽和蒸気分圧は次式で与えられる。

$$x_i^* = P_i(T_s) / (P_A + P_B) \quad (i = A \text{ and } B) \quad (2)$$

低温冷却面では、昇華により生成物の組成割合は蒸気の成分割合とほぼ等しいが、温度の上昇とともに平衡蒸気圧が低いナフタリンが富んだ生成物となることがわかる。

(2) 固溶体系

二つ以上の成分が固相において少なくともある組成の範囲で任意の割合に混ざり合って均一な固体をつくるとき固溶体という。このとき一定圧力下での状態図は気相線および固相線からなる。図2は生成物が固溶体を形成する p-ジブロムベンゼン (p-DBB) と p-ジクロロベンゼン (p-DCB) の系に対し、両ガスの蒸気圧の和が一定 (3.5mmHg) の条件で蒸気-固相平衡図を示すとともに、4つの蒸気成分割合に対し、固相線温度以下の冷却面温度で昇華した場合の冷却面温度と生成物の組成の関係を示している。生成物の組成の計算結果は同様に式(1)で与えられるが、固溶体となるため各成分の飽和蒸気分圧は活量係数  $\gamma_i$  を用いて次式で与えられる。

$$x_i^* = \gamma_i P_i(T_s) Z_i / (P_A + P_B) \quad (i = A \text{ and } B) \quad (3)$$

図中の破線はラウールの法則が成り立つ理想的な場合 ( $\gamma_i = 1$ ) であり、実線は活量係数<sup>(1)</sup>を考慮した場合の計算結果を示す。共晶系と同様に、低温冷却面では生成物の組成割合は蒸気の成分割合とほぼ等しく、温度の上昇とともに平衡蒸気圧が低い p-ジブロムベンゼンが富んだ固溶体となる。

3. 二酸化炭素と水蒸気系の昇華

前章において、昇華による生成物が共晶となる場合と固溶体となる場合について冷却面温度と生成物の組成の関係を示した。しかし、昇華においては冷却面上の固体生成物の堆積が重要な問題であり、生成物の物性を含めた議論が不可欠なものとなる。

ここでは、空気中に二酸化炭素と水蒸気の二つの凝縮性ガスが含まれる共晶系の昇華現象について、主として、気流中での昇華によるミスト生成および冷却面上への二酸化炭素と水蒸気の複合的な生成物の成長について述べる。

3. 1 ミスト生成と物質伝達<sup>(8)</sup>

図3に水蒸気および二酸化炭素を含む空気線図を

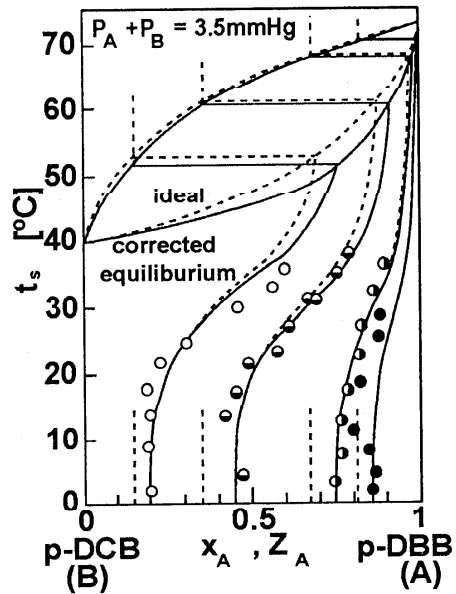


図2 p-ジブロムベンゼン (p-DBB) と p-ジクロロベンゼン (p-DCB) 系の生成物の組成 (固溶体型)

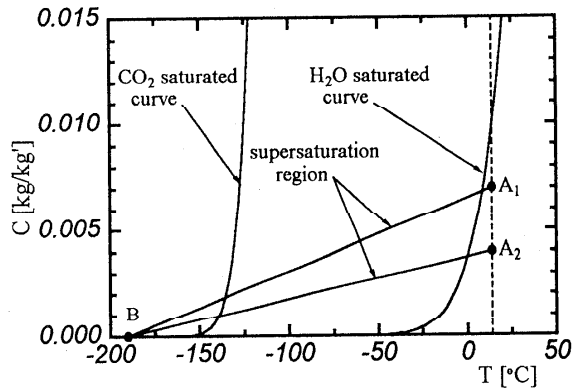


図3 二酸化炭素と水蒸気に対する空気線図

示すとともに、代表的な実験条件をプロットする。図中のそれぞれの曲線は温度に対する飽和二酸化炭素濃度および飽和水蒸気濃度を表す。点 A<sub>1</sub>, A<sub>2</sub> は主流の空気状態を表す。例えば、二酸化炭素に対して A<sub>1</sub> 点で、水蒸気に対して A<sub>2</sub> であるとする、温度 14[°C]、二酸化炭素濃度 0.007[kg/kg]、水蒸気濃度 0.004[kg/kg]であることを意味する。点 B は冷却面温度に対する飽和状態を示し、この温度では両ガスの飽和濃度はほぼ 0 となる。点 A と点 B を結ぶ直線とそれぞれの飽和濃度曲線で囲まれる領域は過飽和状態を表し、気流中でそれぞれのミストが生成される。

気流中でミストが生成する場合、ミスト生成により

蒸気の濃度分布が変化するため物質伝達率は大きく変化する。図4に水蒸気および二酸化炭素の物質伝達率と冷却面温度の関係の一例を示す。図中の●、○は実験値、実線および破線はそれぞれの蒸気に対する飽和モデル（気流中でミストが生成し、温度と濃度は熱力学的に平衡条件を満足する）<sup>(9)(10)</sup>による物質伝達率の解析値を示している。ミスト生成場では、冷却面近傍での濃度勾配が穏やかとなるため物質伝達率は低下する。飽和モデルによる解析ではミストの発生とともに物質伝達率は急激に低下するのに対し、実験では物質伝達率の低下は緩慢なものとなり、解析結果とは大きなずれがある。この要因として、ミストの重力沈降と熱および拡散泳動の効果が考えられている<sup>(11)</sup>。

このように、気流中でミストが生成する場合には物質伝達率が大きく変化するため生成物の組成もこれに影響を受けることになる。

### 3. 2 二酸化炭素および水蒸気霜の複合成長<sup>(12)</sup>

図5にミスト生成を伴う二酸化炭素と水蒸気の混合生成物（以下、生成物を霜とよぶ）の複合成長過程を示す。低温冷却面上に二酸化炭素と水蒸気を含む空気を流すと、気流中で両気体の濃度が温度に対する飽和濃度以上になるため両気体のミストが生成される。冷却面近傍では二酸化炭素ミスト層、その上部では水蒸気ミスト層が主に存在する(a)。共晶系であり両気体が昇華した混合霜層が成長し始めるが、二酸化炭素に比べて水蒸気霜の生成量は少ない(b)。生成物の成長により表面温度が上昇するため、二酸化炭素ミストの生成および二酸化炭素霜の成長が緩慢となり、水蒸気ミストの生成および水蒸気霜の成長が優位となる(c)。その後、二酸化炭素ミストおよび二酸化炭素霜の成長はほぼ終了し、水蒸気ミストおよび水蒸気霜のだけの成長となる。このため霜層は下部に二酸化炭素と水蒸気の混合霜層、上部に水蒸気霜層の二重構造となる(d)。

### 3. 3 複合成長過程の解析

昇華においては冷却面上の固体生成物の堆積が重要な問題であり、この系では、昇華過程は低温度場での二酸化炭素と水蒸気霜の混合霜層成長過程と、高温度場での混合霜層の上部に水蒸気霜が成長する水蒸気霜層成長過程の二つに分けられる。これらの堆積層は層内の濃度勾配により内部的にも成長する。以下、各成分の物質伝達率を既知として生成物の成長過程を解析する。

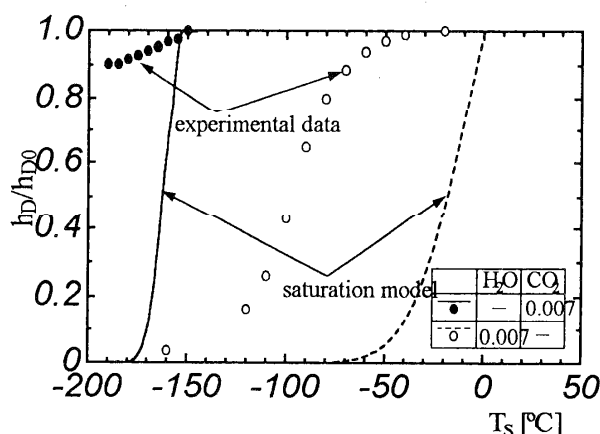


図4 ミスト生成場の物質伝達

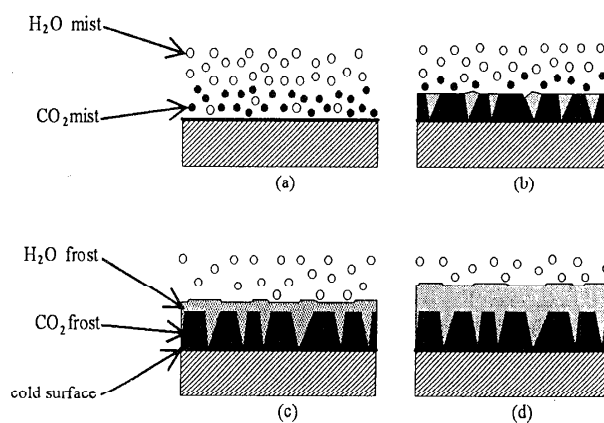


図5 二酸化炭素霜と水蒸気霜の複合成長過程

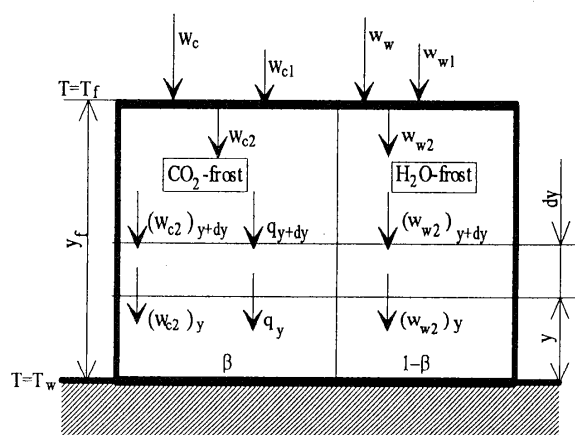


図6 混合霜層成長モデル

(1) 混合霜層成長過程

(1) 混合霜層成長過程

この過程では、二酸化炭素と水蒸気が同時に付着するため霜層は両者が混ざりあった混合層となる。ここでは簡単に図6に示すように二酸化炭素霜層(面積割合 $\beta$ )と水蒸気霜層(面積割合 $1-\beta$ )を並列に分離した混合層として取り扱う。

主流から物質拡散・ミストにより表面に供給される二酸化炭素と水蒸気の着霜速度 $w_c$ 、 $w_w$ (質量基準)は霜層表面で付着し霜層高さを増加させる $w_{c1}$ 、 $w_{w1}$ と霜層内への内部拡散により密度を増加させる $w_{c2}$ 、 $w_{w2}$ に分けられ、それぞれ次のように表される。

$$w_c = h_{Dc}(C_{\infty} - C_{cf}) \tag{4}$$

$$= \frac{d(\beta\rho_{ci}\phi y_f)}{d\theta} = w_{c1} + w_{c2}$$

$$w_w = h_{Dw}(C_{w\infty} - C_{wf}) \tag{5}$$

$$= \frac{d\{(1-\beta)\rho_{wi}\phi y_f\}}{d\theta} = w_{w1} + w_{w2}$$

ここで $w_{c2}$ 、 $w_{w2}$ はそれぞれ

$$w_{c2} = y_f \frac{d(\beta\rho_{ci}\phi)}{d\theta} = \beta w_{diff,c} \tag{6}$$

$$= \beta(1-\phi) \frac{D_c}{R_c T_f} \frac{P}{P-p_{cf}} \left( \frac{dp_c}{dy} \right)_{y=y_f}$$

$$w_{w2} = y_f \frac{d\{(1-\beta)\rho_{wi}\phi\}}{d\theta} = (1-\beta) w_{diff,w} \tag{7}$$

$$= (1-\beta)(1-\phi) \frac{D_w}{R_w T_f} \frac{P}{P-p_{wf}} \left( \frac{dp_w}{dy} \right)_{y=y_f}$$

系は準定常状態とし、両霜が占める体積密度 $\phi$ の空間的な分布は一定とすると、霜層高さ $y_f$ 、体積密度 $\phi$ 、二酸化炭素霜の面積割合 $\beta$ の時間変化はそれぞれ次式で与えられる。

$$\frac{dy_f}{d\theta} = \frac{1}{\phi} \left( \frac{w_c - w_{c2}}{\rho_{ci}} + \frac{w_w - w_{w2}}{\rho_{wi}} \right) \tag{8}$$

$$\frac{d\phi}{d\theta} = \frac{1}{y_f} \left( \frac{w_{c2}}{\rho_{ci}} + \frac{w_{w2}}{\rho_{wi}} \right) \tag{9}$$

$$\frac{d\beta}{d\theta} = \frac{1}{\phi y_f} \left\{ \frac{w_{c2}}{\rho_{ci}} - \beta \left( \frac{w_{c2}}{\rho_{ci}} + \frac{w_{w2}}{\rho_{wi}} \right) \right\} \tag{10}$$

一方、熱バランス式は層内の熱伝導と空隙部での内部拡散による熱移動を考慮した霜層の有効熱伝導率 $\lambda_{eff}$ を用いて次式で与えられる。

$$\frac{d}{dy} \left\{ \lambda_{eff} \frac{dT}{dy} \right\} = 0 \tag{11}$$

$$\lambda_{eff} = \beta \lambda_{eff,c} + (1-\beta) \lambda_{eff,w} \tag{12}$$

ここで、二酸化炭素および水蒸気霜層の有効熱伝導率 $\lambda_{eff,c}$ 、 $\lambda_{eff,w}$ は層を氷と空気の混在する多孔質層と考え、多孔質層のWoodsideモデルに内部拡散を考慮して表す<sup>(13)</sup>。

境界条件は冷却面温度一定のもとで、

$$y=0 : T = T_w$$

$$y=0 : \lambda_{eff} \frac{dT}{dy} = h(T_{\infty} - T_f) + h_{Dc}(C_{\infty} - C_{cf})L_c \tag{13}$$

$$+ h_{Dw}(C_{w\infty} - C_{wf})L_w$$

基礎式を上記の境界条件で解くと、次の積分方程式が得られる。

$$\int_0^{T_f} \lambda_{eff} dT = \left\{ h(T_{\infty} - T_f) + h_{Dc}(C_{\infty} - C_{cf})L_c + h_{Dc}(C_{\infty} - C_{cf})L_c + h_{Dw}(C_{w\infty} - C_{wf})L_w \right\} y_f \tag{14}$$

$$+ \int_0^{T_w} \lambda_{eff} dT$$

これより霜層表面温度および温度勾配が求められ、混合霜層の成長が計算される。混合霜層表面温度が上昇し、二酸化炭素の着霜速度が霜層内部への拡散速度より低下するとき混合霜層成長過程は終了し、水蒸気霜層成長過程となる。

(2) 水蒸気霜層成長過程

この過程では霜層表面への二酸化炭素の付着は生じず、霜層は図7に示すように一定高さの混合霜層の上部に水蒸気霜が成長する構造となる。水蒸気の着霜速度 $w_w$ は混合霜層成長過程と同様に霜層表面に付着する $w_{w1}$ と霜層内部に拡散する $w_{w2}$ に分けられる。ここでは詳細を省略するが、二つの層の直列モデルにより同様に計算される。

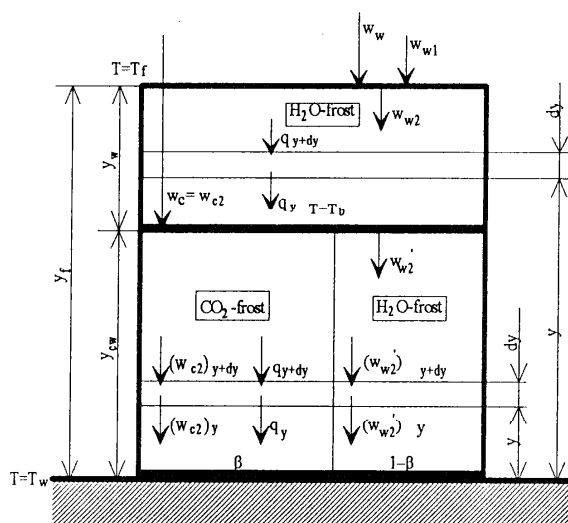


図7 水蒸気霜層成長モデル

### 3. 4 計算結果と実験結果の比較

二酸化炭素と水蒸気霜の複合成長に対する計算結果と実験結果の比較を示す。図8に霜付着量の時間変化の比較を示す。二酸化炭素霜付着量は初期に比例して増加するが、やがて水蒸気濃度が高い条件ほどその増加は緩慢となり、逆に、水蒸気霜付着量が増加する。このことは、低温度域では生成物は二酸化炭素成分が多く含まれているが、高温度域では水蒸気成分が主となることを意味している。これらのことは、図9の着霜速度の時間変化でより明確となる。各成分の着霜速度は時間に対して大きく変化する。二酸化炭素だけの場合、着霜速度は表面温度の上昇により濃度推進力が低下するため徐々に低下する。しかし、複合成長の場合、二酸化炭素の着霜速度はある時間から急激に低下するが、水蒸気の着霜速度は逆に表面温度の上昇にもかかわらず増加する。前者は水蒸気霜層成長による濃度推進力の急激な低下によるものであり、後者は温度上昇による水蒸気霜の物質伝達率の増大による。着霜速度のこの変化が生成する霜の組成に大きく影響することになる。

次に、図10に生成する霜層高さの時間変化の比較を示す。二酸化炭素霜の成長が支配的な実験初期では、どの条件においても霜層高さはほぼ等しいが、やがて水蒸気濃度が高い条件ほど高さの増加は急激になる。これは二酸化炭素霜に比べて水蒸気霜の密度が低いいため、後者の成長が優位になると高さの増加が急激となるものである。このことは図11に示す霜層密度の時間変化からも理解される。混合霜層成長過

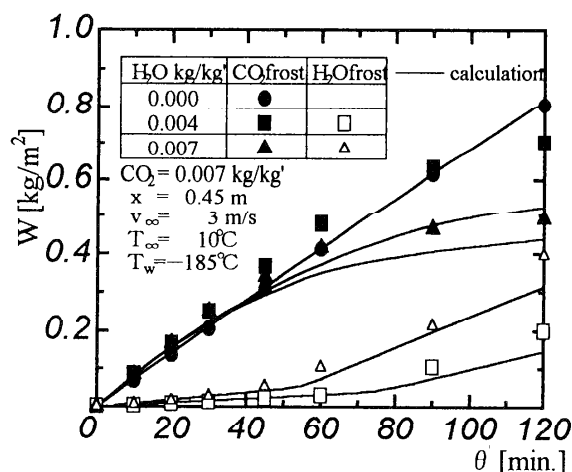


図8 着霜量の時間変化

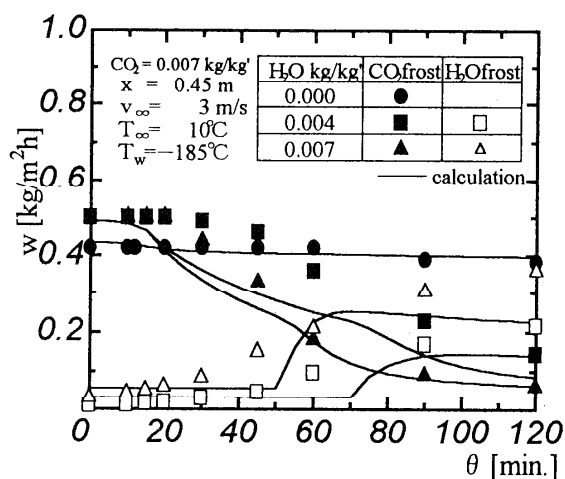


図9 着霜速度の時間変化

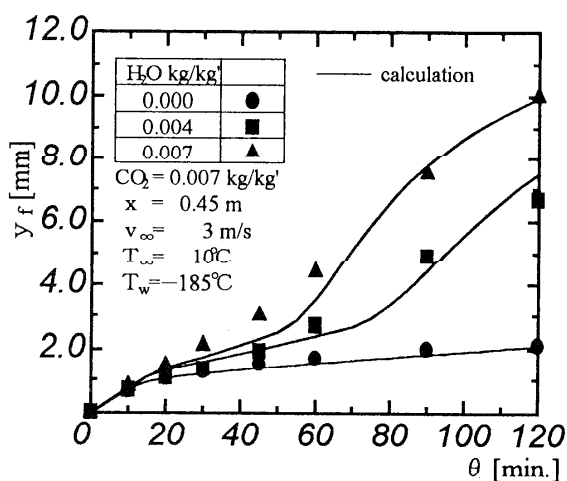


図10 霜層高さの時間変化

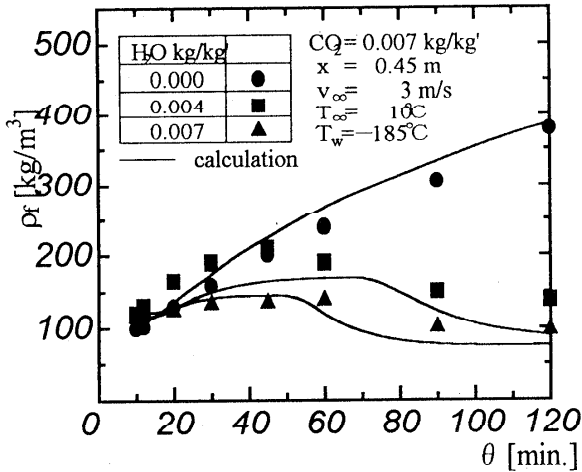


図 1 1 霜層密度の時間変化

程では、二酸化炭素の内部拡散により密度は増加するが、水蒸気霜成長過程が始まると全体の密度は時間とともに低下する。

#### 4. おわりに

二成分凝縮性混合気体からの昇華による生成物の組成に関する基礎的取り扱いを示すと同時に、二酸化炭素と水蒸気の昇華（着霜）現象について、気流中でのミスト生成場による生成組成の変化および堆積にともなう温度変化による組成の時間変化についてその概要を示した。

多成分系の昇華では気相と固相の状態図も未だ不確定な要素が多く、今後、さらに詳細な検討が必要と考える。

#### 参考文献

- (1) 青木, 日本エネルギー学会誌, Vol.71, No.4, p.231, 1992.
- (2) 竹内・他3名, 伝熱研究, Vol.3, No.4, p.34, 1995.
- (3) M.Matsuoka and H. Komiya, J.of Chemical Engineering of Japan, Vol.14, No.4, p.295, 1981.
- (4) M.Matsuoka, J.of Chemical Engineering of Japan, Vol.15, No.3, p.194, 1982.
- (5) M.Matsuoka and M. Suzuki, J.of Chemical Engineering of Japan, Vol.16, No.2, p.156, 1983.
- (6) M.Matsuoka, J.of Chemical Engineering of Japan, Vol.17, No.1, p.93, 1984.

(7) M.Matsuoka and Y. Hitokoto, J.of Chemical Engineering of Japan, Vol.21, No.4, p.426, 1988.

(8) 青木・他3名, 第29回伝熱シンポジウム, p.613, 1992.

(9) 森・土方, 機論, 38-314, p.2630, 1972..

(10) 林・他2名, 機論, 46-412, p.2391, 1980.

(11) 澤田・他3名, 第33回伝熱シンポジウム, p.57, 1996.

(12) K. Aoki, et al., Thermal Science and Engineering, Vol.4, No.1, p.75, 1996.

(13) 青木・他3名, 機論, 45-394, p.869, 1979.

## 多成分混合冷媒の凝縮伝熱

Condensation Heat Transfer of Multi-Component Refrigerant Mixture

小山 繁 (九州大学機能物質科学研究所)

Shigeru KOYAMA (Institute of Advanced Material Study, Kyushu University)

### 1. はじめに

蒸気圧縮式ヒートポンプ・冷凍システムの作動媒体としてこれまで広く使用されてきた CFC 系及び HCFC 系のフロンは地球環境の保全・保護の立場から使用削減・禁止されつつあり、数種類の HFC 系フロンのみが使用できる状況にある。しかしながら、これらの HFC 系フロンを単体で使用することは、冷凍機油との相溶性、電気絶縁性、使用条件下での圧力、可燃性などの化学的・熱力学的性質及び安全性の観点から困難であると考えられている。従って、現在、代替冷媒の最有力候補として純冷媒の長所を生かし短所を補うことを目指した 2 成分系あるいは 3 成分系の混合冷媒について、その熱物性、伝熱及びシステム性能に関する研究が盛んに行われている。

一般に、混合冷媒の相変化を伴う伝熱は、それぞれの成分単体の場合に比して低下することが指摘されている<sup>(1)</sup>。従って、エネルギー消費を増加させることなく、ヒートポンプ・冷凍システムの作動媒体として混合冷媒を使用するには凝縮器や蒸発器のより一層の高性能化が不可欠である<sup>(2)</sup>。

本稿では、特に、非共沸混合冷媒用の凝縮器の熱的最適設計法を確立するための一助になればと考え、多成分混合冷媒の凝縮伝熱の基礎として、まず、3 成分混合気が平板上で層流強制対流膜状凝縮する場合の 2 相境界層理論<sup>(3)</sup>を紹介し、ついで、平滑円管内で 2 成分混合冷媒が凝縮する場合について著者らの最近の研究の一部<sup>(4)</sup>を紹介する。なお、純蒸気から多成分混合気までの層流凝縮理論を統一的に取り扱ったものとして Fujii<sup>(5)</sup>の成書があるので、理論の詳細はそちらを参考のこと。

### 2. 二相境界層理論

3 成分以上の多成分蒸気が平板上で凝縮する場合、個々の成分の拡散は相互に干渉するので各成分の質量保存の式は 2 成分のそれに比して複雑になる。そして、その理論的取り扱いについては、これまで、(1) 物質伝達を拡散の相互干渉を無視して擬似的な 2 成

分系として取り扱う方法<sup>(6)</sup>、(2) 物質伝達における対流項を無視して、多成分系の濃度差拡散に関する Maxwell-Stefan の式<sup>(7)</sup>を厳密に解く方法<sup>(8)</sup>、(3) 濃度の関数となる多成分系の拡散係数及びその他の物性値を一定と近似し、各成分の質量保存の式を 2 成分系の式の組み合わせに変換する方法<sup>(9),(10)</sup>の三通りの方法が提案されている。従来の研究<sup>(11),(12)</sup>によれば、

(3) の方法が比較的厳密であるとされている。そこで、本章では、3 成分混合蒸気が平板上で層流強制対流膜状凝縮する場合について、(3) の方法と境界層理論を適用することによって導出される基礎式と、その相似変換によって得られる凝縮量、伝熱量及び気液界面状態を代数的に予測する方法<sup>(3),(5)</sup>について概要を説明する。

#### 2. 1 基礎式

図 1 に物理モデルと座標系を示す。x は平板先端から平板に沿って測った距離、y は平板からその法線方向に測った距離、 $\delta$  は液膜厚さである。また  $U$ 、 $V$ 、 $T$ 、 $w_1$  及び  $w_2$  はそれぞれ x 方向速度成分、y 方向速度成分、温度、成分 1 の質量分率及び成分 2 の質量分率であり、そのうち添字  $\infty$  は混合気境界層内での値、添字  $\infty$  は混合気境界層外縁での値、添字  $i$  は気液界面での値、添字  $L$  は液膜内での値、添字  $w$  は平板上での値を示す。

境界層近似を適用し、若干の仮定<sup>(10),(11)</sup>を用いれば、

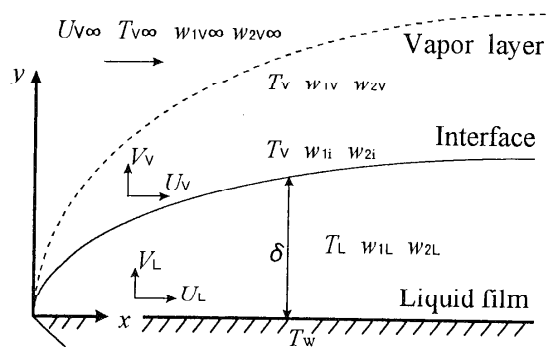


図 1 物理モデルと座標系

基礎式は次のように表せる。

液膜に関する基礎式

$$\frac{\partial U_L}{\partial x} + V_L \frac{\partial U_L}{\partial y} = 0 \quad (1)$$

$$U_L \frac{\partial U_L}{\partial x} + V_L \frac{\partial U_L}{\partial y} = v_L \frac{\partial^2 U_L}{\partial y^2} \quad (2)$$

$$U_L \frac{\partial T_L}{\partial x} + V_L \frac{\partial T_L}{\partial y} = \kappa_L \frac{\partial^2 T_L}{\partial y^2} \quad (3)$$

混合気境界層に関する基礎式

$$\frac{\partial U_V}{\partial x} + V_V \frac{\partial U_V}{\partial y} = 0 \quad (4)$$

$$U_V \frac{\partial U_V}{\partial x} + V_V \frac{\partial U_V}{\partial y} = v_V \frac{\partial^2 U_V}{\partial y^2} \quad (5)$$

$$U_V \frac{\partial T_V}{\partial x} + V_V \frac{\partial T_V}{\partial y} = \kappa_V \frac{\partial^2 T_V}{\partial y^2} \quad (6)$$

$$U_V \frac{\partial w_{1V}}{\partial x} + V_V \frac{\partial w_{1V}}{\partial y} = D_{11}^* \frac{\partial^2 w_{1V}}{\partial y^2} + D_{12}^* \frac{\partial^2 w_{2V}}{\partial y^2} \quad (7)$$

$$U_V \frac{\partial w_{2V}}{\partial x} + V_V \frac{\partial w_{2V}}{\partial y} = D_{21}^* \frac{\partial^2 w_{1V}}{\partial y^2} + D_{22}^* \frac{\partial^2 w_{2V}}{\partial y^2} \quad (8)$$

ここに、

$$D_{kl}^* = D_{k3} - D_{kl} \quad (k, l=1, 2) \quad (9)$$

$$D_{kl} = M_k D_{kl}^M \sum_{m=1}^3 \frac{w_m}{M_m} - \frac{M_k}{M_1} \sum_{m=1}^3 D_{km}^M w_m \quad (10)$$

また、 $D_{kl}^M$  は多成分系における成分  $k$ - $l$  間の相互拡散係数であり、3成分系の場合は文献(7)を参照。

境界条件

$y = 0$  で、

$$U_L = 0 \quad (11)$$

$$V_L = 0 \quad (12)$$

$$T_L = T_w \quad (13)$$

$y \rightarrow \infty$  で、

$$U_V = U_{V\infty} \quad (14)$$

$$T_V = T_{V\infty} \quad (15)$$

$$w_{1V} = w_{1V\infty} \quad (16)$$

$$w_{2V} = w_{2V\infty} \quad (17)$$

気液界面での適合条件

$y = \delta$  で、

$$U_L = U_{Vi} \quad (18)$$

$$\mu_L \left( \frac{\partial U_L}{\partial y} \right)_i = \mu_V \left( \frac{\partial U_V}{\partial y} \right)_i \quad (19)$$

$$\begin{aligned} \rho_L \left( U_L \frac{d\delta}{dx} - V_L \right)_i &= \rho_V \left( U_V \frac{d\delta}{dx} - V_V \right)_i \\ &= \dot{m}_x = \sum_{k=1}^3 \dot{m}_{kx} \end{aligned} \quad (20)$$

$$T_L = T_V = T_i \quad (21)$$

$$\lambda_L \left( \frac{\partial T_L}{\partial y} \right)_i = \lambda_V \left( \frac{\partial T_V}{\partial y} \right)_i + \sum_{k=1}^3 L_k \dot{m}_{kx} \quad (22)$$

$$w_{kV} = w_{kVi} \quad (k = 1, 2) \quad (23)$$

$$\begin{aligned} \rho_V \left( D_{11}^* \frac{\partial w_{1V}}{\partial y} + D_{12}^* \frac{\partial w_{2V}}{\partial y} \right)_i &= \dot{m}_{1x} \\ &- w_{1Vi} \sum_{k=1}^3 \dot{m}_{kx} \end{aligned} \quad (24)$$

$$\begin{aligned} \rho_V \left( D_{21}^* \frac{\partial w_{1V}}{\partial y} + D_{22}^* \frac{\partial w_{2V}}{\partial y} \right)_i &= \dot{m}_{2x} \\ &- w_{2Vi} \sum_{k=1}^3 \dot{m}_{kx} \end{aligned} \quad (25)$$

ここに、 $\dot{m}_{kx}$  及び  $L_k$  はそれぞれ成分  $k$  の局所凝縮質量流束及び凝縮潜熱、 $\dot{m}_x$  は局所全凝縮質量流束。

液膜内の物質伝達が無視でき、各成分が互いに溶け合うとすれば、各成分の液膜内質量分率と凝縮質量流束との間には次の関係が成り立つ。

$$w_{kL} = \dot{m}_{kx} / \dot{m}_x \quad (k = 1, 2, 3) \quad (26)$$

さらに、気液界面で次の相平衡の関係が成立する。

$$w_{kL} = f(w_{1Vi}, w_{2Vi}, T_i) \quad (k = 1, 2, 3) \quad (27)$$

## 2. 2 凝縮量、伝熱量及び気液界面状態の予測法

式(1)~(8)の基礎方程式を相似変換すれば、連立常微分方程式が得られる。さらに、連成した成分1及び2の質量保存の式を直交変換(対角化)すれば、独立な二組の2成分混合気の相似解が得られる。従って、3成分混合気の凝縮は、2成分混合気の場合と同様に取り扱うことができ、従来の2成分混合気の相似解を数値的に解くことによって得られた相似解の境界値間に成立する関係式(液膜の熱伝達、混合気の熱伝達及び物質伝達の式)を用いれば、3成分系における凝縮量、伝熱量及び気液界面状態を求めるための代数方程式が得られる。それらは、以下のように表せる。

気液界面での成分1及び2の物質収支

$$E \left( Sc_1 \cdot \frac{1-\beta}{\frac{w_{1Vi}-w_{1L}}{w_{1Vi}-w_{1V\infty}} - \beta \frac{w_{2Vi}-w_{2L}}{w_{2Vi}-w_{2V\infty}}} \right)$$

$$= \left[ \frac{w_{1Vi} \sum_{k=1}^3 \dot{M}_{kL} - \dot{M}_{1L}}{w_{1Vi} - w_{1V\infty}} - \beta \frac{w_{2Vi} \sum_{k=1}^3 \dot{M}_{kL} - \dot{M}_{2L}}{w_{2Vi} - w_{2V\infty}} \right] \frac{R Sc_1}{1-\beta} \quad (28)$$



$$E \left( Sc_2, \frac{1-\alpha}{\frac{W_{2Vi}-W_{2I}}{W_{2Vi}-W_{2V\infty}} - \alpha \frac{W_{1Vi}-W_{1I}}{W_{1Vi}-W_{1V\infty}}} \right) = \left[ \frac{W_{2Vi} \sum_{k=1}^3 \dot{M}_{kL} - \dot{M}_{2L}}{W_{2Vi} - W_{2V\infty}} - \alpha \frac{W_{1Vi} \sum_{k=1}^3 \dot{M}_{kL} - \dot{M}_{1L}}{W_{1Vi} - W_{1V\infty}} \right] \frac{R Sc_2}{1-\alpha} \quad (29)$$

ここに、関数  $E(\xi, \eta)$  は混合気境界層の物質伝達に関する境界値の関係式であり、次式で与えられる。

$$E(\xi, \eta) = 0.332 \xi^{0.355} \left\{ 1 + \frac{0.726 \left( \frac{\eta}{1-\eta} \right)^{0.96}}{\left[ 1 - 0.1 \left( \frac{\eta}{1-\eta} \right)^{0.3} + 0.281 \left( \frac{\eta}{1-\eta} \right) \right]^{0.45}} \right\} \quad (30)$$

また、直交変換されたシュミット数  $Sc_1$  及び  $Sc_2$  は次の二次方程式の根である。

$$\left( 1 - \frac{Sc_{11} Sc_{22}}{Sc_{12} Sc_{21}} \right) t^2 - (Sc_{11} + Sc_{22}) t + Sc_{11} Sc_{22} = 0 \quad (31)$$

ただし、 $Sc_{kl} = \nu_v / D_{kl}^*$  (32)

さらに、定数  $\alpha$  及び  $\beta$  は、

$$\alpha = - \frac{Sc_1 Sc_{22} (W_{1Vi} - W_{1V\infty})}{Sc_{21} (Sc_1 - Sc_{22}) (W_{2Vi} - W_{2V\infty})} \quad (33)$$

$$\beta = - \frac{Sc_2 Sc_{11} (W_{2Vi} - W_{2V\infty})}{Sc_{21} (Sc_2 - Sc_{11}) (W_{1Vi} - W_{1V\infty})} \quad (34)$$

$\rho \mu$  比  $R$  及び成分  $k$  の無次元凝縮流束  $\dot{M}_{kL}$  は以下のように定義される。

$$R = \left( \frac{\rho_L \mu_L}{\rho_v \mu_v} \right)^{1/2} \quad (35)$$

$$\dot{M}_{kL} = \frac{m_{kx}}{\mu_L Re_{Lx}} \quad (36)$$

ただし、 $Re_{Lx}$  は二相レイノルズ数である。

気液界面での熱収支

$$G \left( 2R \sum_{k=1}^3 \dot{M}_{kL} \right) = \frac{\mu_L \sum_{k=1}^3 L_k \dot{M}_{kL}}{\lambda_L (T_i - T_w)} + \frac{\lambda_v}{\lambda_L} \left( \frac{\nu_L}{\nu_v} \right)^{1/2} \frac{T_w - T_i}{T_i - T_w} \times H \left( Pr_v, 2R \sum_{k=1}^3 \dot{M}_{kL} \right) \quad (37)$$

ここに、関数  $G(\xi)$  は液膜熱伝達に関する境界値の関係式、関数  $H(\chi, \xi)$  は混合気境界層の熱伝達に関する境界値の関係式であり、以下の諸式で与えられる。

$$G(\xi) = 0.433 (1.367 - 0.432/\xi^{1/2} + 1/\xi)^{1/2} \quad (38)$$

$$H(\chi, \xi) = \chi \xi \left\{ \frac{3}{8} + \frac{1}{4} \left[ \frac{1}{4} + \frac{1.767}{\chi^{4/3} \xi^2} \right]^{1/2} \right\} \quad (39)$$

また、 $Pr_v$  は混合気のプラントル数である。なお、混合気から気液界面への対流伝熱量(式(37)中の右辺の関数  $H(\chi, \xi)$  を含む項)は周囲混合気の過熱度が数十℃以上の場合や臨界点近傍の場合を除けば一般に凝縮潜熱量に比して小さく、無視できる。

各成分の液膜内質量分率と無次元凝縮流束の関係

$$w_{kL} = \dot{M}_{kL} / \sum_{m=1}^3 \dot{M}_{mL} \quad (k = 1, 2, 3) \quad (40)$$

以上より、伝熱面温度及び周囲混合気の状態が与えられれば、気液界面における成分1及び2の物質収支の式(28)及び(29)、気液界面における熱収支の式(37)、各成分の液膜内質量分率と凝縮流束の関係式(40)、気液界面における相平衡の関係式(27)を連立させて解けば、無次元凝縮流束  $\dot{M}_{kL}$  ( $k=1, 2, 3$ )、気液界面の状態  $T_i$ 、 $w_{kVi}$  ( $k=1, 2, 3$ ) 及び  $w_{kL}$  ( $k=1, 2, 3$ ) が求められる。そして、任意の  $U_{v\infty}$  に対する各成分の局所凝縮流束  $\dot{m}_{kx}$  ( $k=1, 2, 3$ ) は次式より求められる。

$$\dot{m}_{kx} = \frac{\mu_L}{x} \dot{M}_{kL} Re_{Lx}^{1/2} \quad (41)$$

また、任意の  $U_{v\infty}$  に対する局所伝熱面熱流束  $q_{wx}$  及び気液界面における混合気境界層の局所対流熱流束  $q_{cvx}$  は以下の式より求められる。

$$q_{wx} = \frac{\lambda_L (T_i - T_w)}{x} G \left( 2R \sum_{k=1}^3 \dot{M}_{kL} \right) Re_{Lx}^{1/2} \quad (42)$$

$$q_{cvx} = \frac{\lambda_v (T_w - T_i)}{x} H \left( Pr_v, 2R \sum_{k=1}^3 \dot{M}_{kL} \right) Re_{vx}^{1/2} \quad (43)$$

なお、不凝縮ガスを含む場合は、式(28)、(29)、(37)、(40)~(43)において、対応した  $\dot{M}_{kL}$  及び  $w_{kL}$  を零と置けばよい。

式(28)、(29)及び式(37)において、 $\alpha=0$ 、 $\beta=0$ 、 $Sc_1 = Sc_2 = Sc$  (シュミット数) と置けば、以下のような成分1及び2からなる2成分混合蒸気の凝縮特性の予測式が得られる。

$$E \left( Sc, \frac{w_{1Vi} - w_{1V\infty}}{w_{1Vi} - w_{1L}} \right) = \frac{w_{1Vi} \sum_{k=1}^2 \dot{M}_{kL} - \dot{M}_{1L}}{w_{1Vi} - w_{1V\infty}} R Sc \quad (44)$$

$$G \left( 2R \sum_{k=1}^2 \dot{M}_{kL} \right) = \frac{\mu_L \sum_{k=1}^2 L_k \dot{M}_{kL}}{\lambda_L (T_i - T_w)} + \frac{\lambda_V \left( \frac{v_L}{v_V} \right)^{1/2} \frac{T_\infty - T_i}{T_i - T_w}}{\lambda_L \left( \frac{v_L}{v_V} \right)} \times H \left( P_{1V}, 2R \sum_{k=1}^2 \dot{M}_{kL} \right) \quad (45)$$

なお、これらの式に置いて、 $\dot{M}_{1L} = 0$  及び  $w_{1L} = 0$  と置けば、成分1が不凝縮ガスの場合の2成分系の諸式が得られる。

### 2. 3 空気を含むメタノール及び水の凝縮

計算例として、圧力  $P = 101.325 \text{ kPa}$ 、周囲流体温度  $T_{V\infty} = 363.15 \text{ K}$  の空気+メタノール+水の3成分混合気が温度一定の伝熱面上で凝縮する場合の特性を示す。その際、混合気は境界層外縁で露点温度にあり、混合気の大気熱伝達は凝縮の潜熱に比して無視できるとする。

図2に  $P = 101.325 \text{ kPa}$  における相平衡図を示す。成分1、2及び3はそれぞれ空気、メタノール及び水であり、 $w_{2L} = 0$  及び  $w_{2L} = 1$  の面はそれぞれ空気+水及び空気+メタノールの2成分系に対応する。例えば  $T_V = 90^\circ\text{C}$ 、 $w_{1V} = 0.2$  の混合気の状態は点Aで表され、それと平衡にある液の状態は点A'で表される。この混合気が凝縮し、気液界面での温度が  $T_i = 74.8^\circ\text{C}$ 、空

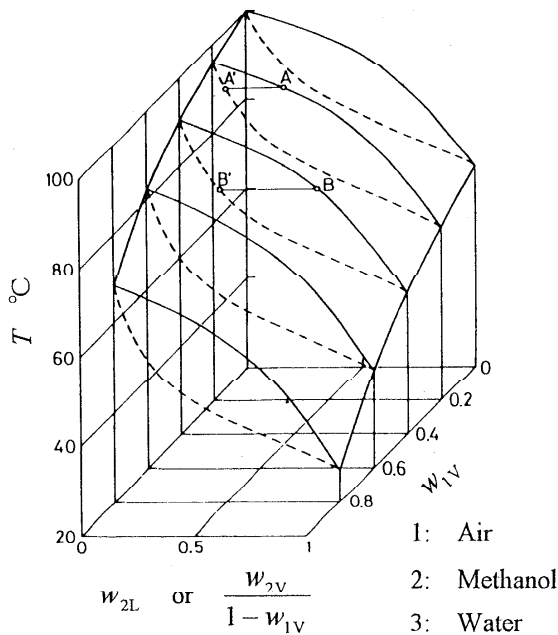


図2 空気+メタノール+水系の相平衡図

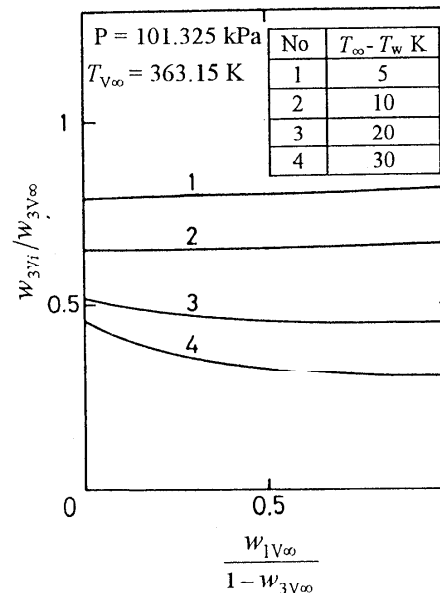
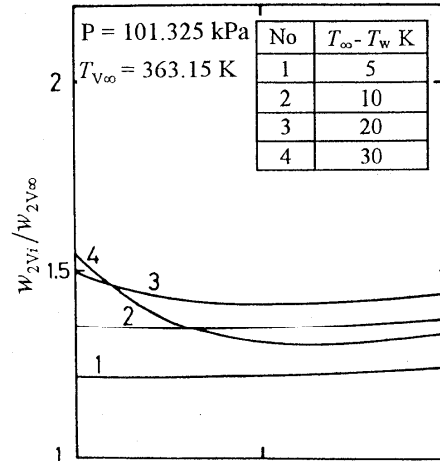
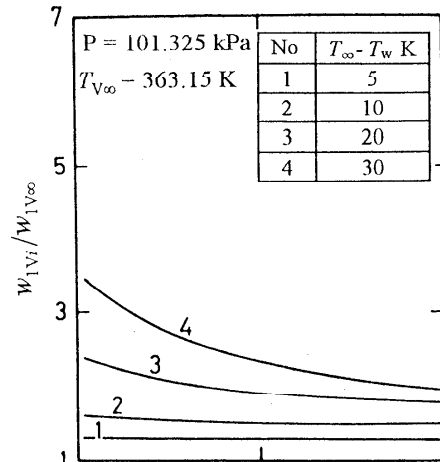


図3 各成分の濃縮比  $w_{kVi}/w_{kV\infty}$  と組成比  $w_{1V\infty}/(1-w_{3V\infty})$  との関係

気の質量分率が  $w_{1Vi} = 0.4$  となったとすれば、その点における蒸気及び液の状態は点B及びB'で表される。そして、混合気境界層内で点Aから点Bへと混合気の状態は変化する。

図3は各成分の気液界面での濃縮比  $w_{kVi}/w_{kV\infty}$  と周囲混合気の組成比  $w_{1V\infty}/(1-w_{3V\infty})$  との関係  $T_{V\infty} - T_w$  をパラメータとして示したものであり、図

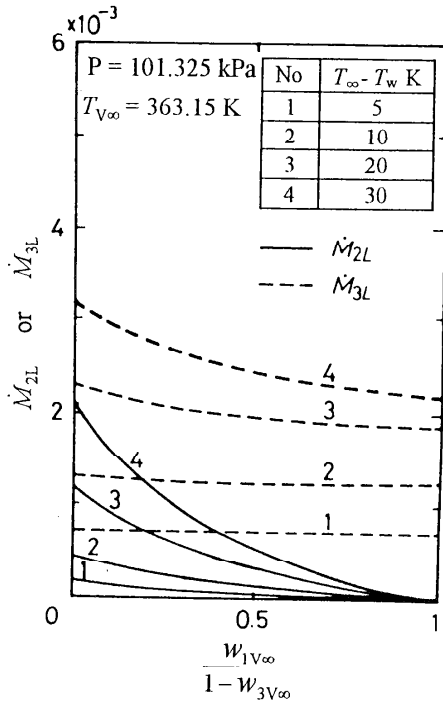


図4 無次元凝縮流束  $M_{2L}$  及び  $M_{3L}$  と組成比  $w_{1V\infty}/(1-w_{3V\infty})$  との関係

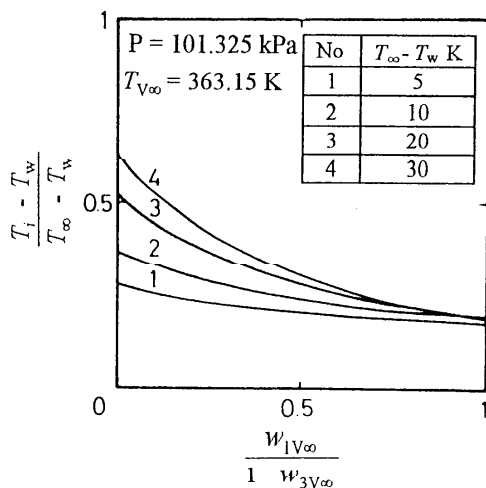


図5 無次元気液界面温度  $(T_i - T_w)/(T_{V\infty} - T_w)$  と組成比  $w_{1V\infty}/(1-w_{3V\infty})$  の関係

(a)、(b)及び(c)はそれぞれ空気、メタノール及び水の結果である。不凝縮ガスの空気と低沸点成分のメタノールが気液界面で濃縮され、高沸点成分の水の質量分率が周囲混合気に比して小さくなるのが分かる。

図4に無次元凝縮流束  $M_{2L}$  及び  $M_{3L}$  と組成比  $w_{1V\infty}/(1-w_{3V\infty})$  との関係を示す。  $M_{2L}$  及び  $M_{3L}$  はいずれも  $w_{1V\infty}/(1-w_{3V\infty})$  の増加 (周囲混合気中の空気の質量分率が増加しメタノール質量分率が減少することに対応) とともに減少し、その減少の程度は  $T_{V\infty} - T_w$  が増加するほど大きくなる。また、  $T_{V\infty} - T_w$  が増加すると、全凝縮流束は増加し、全凝縮流束に対するメタノールの凝縮流束が増す (凝縮液のメタノール質量分率が高くなる)。

図5に無次元気液界面温度  $(T_i - T_w)/(T_{V\infty} - T_w)$  と組成比  $w_{1V\infty}/(1-w_{3V\infty})$  の関係を示す。横軸が増加すると、  $(T_i - T_w)/(T_{V\infty} - T_w)$  は減少する。これは、横軸の増加と共に凝縮流束が減少すること (図4参照) に対応して液膜の熱抵抗が小さくなることを示している。一方、  $T_{V\infty} - T_w$  が大きくなると  $(T_i - T_w)/(T_{V\infty} - T_w)$  は増加するが、これは凝縮量の増加 (図4参照) に対応して液膜の熱抵抗が増加することを示している。

### 3. 多成分蒸気の管内凝縮

多成分蒸気が管内凝縮する場合、前章の平板の場合とは異なり、流れ方向に蒸気及び液のバルク組成が変化する。従って、その伝熱特性を予測するには、液相内及び気相内の熱及び物質伝達を予め把握しておく必要がある。

従来の実験データの整理や凝縮特性の予測計算には気相と液相のバルクが相平衡にあるとした断面平衡モデル (管断面で温度分布が一樣で、蒸気相及び液相内の濃度分布はそれぞれ一樣と仮定) がよく用いられてきた。しかしながら、このモデルには、蒸気相の物質伝達と液相内の物質伝達を同時に考慮することができず、液膜内においても蒸気相内と同じオーダーの濃度差が生じるなどの不明瞭な点がある。この点を解決するために、最近、著者ら<sup>(4)</sup>が行っている蒸気相と液相とが非平衡にあり、気液界面でのみ相平衡の関係が成り立つとした非平衡モデルを用いた凝縮特性の予測法についてその概要を以下に示す。

#### 3.1 予測計算法

図6に予測計算に用いた物理モデルを示す。圧力  $P_m$ 、温度  $T_{b,m}$ 、成分1 (低沸点成分) 質量分率  $w_{1Vb,m}$  の2成分飽和蒸気が質量流量  $W_{in}$  で円管内に流入し、

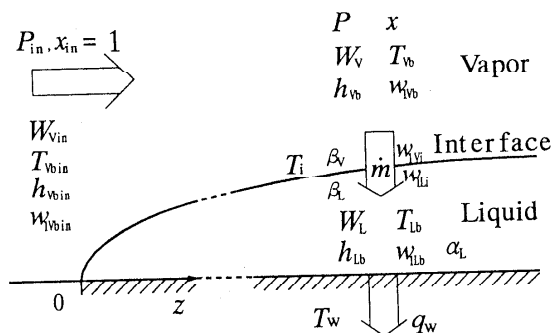


図6 物理モデル

管軸方向の位置  $z=0$  で凝縮を開始し、管軸方向位置  $z$  で、圧力が  $P$ 、クオリティが  $x$ 、蒸気及び液の質量流量がそれぞれ  $W_v$  及び  $W_l$  となるとする。また、位置  $z$  での管断面において、蒸気バルクは温度  $T_{vb}$ 、成分1質量分率  $w_{1vb}$ 、エンタルピ  $h_{vb}$  の状態にあり、液バルクは温度  $T_{lb}$ 、成分1質量分率  $w_{1lb}$ 、エンタルピ  $h_{lb}$  の状態にあり、気液界面の状態は温度  $T_i$ 、成分1の蒸気質量分率  $w_{1vi}$ 、液の質量分率  $w_{1li}$  であるとする。さらに、位置  $z$  における伝熱面熱流束を  $q_w$ 、全凝縮質量流束を  $\dot{m}$  とする。本予測計算モデルで用いた主な仮定は、(1) 気液界面でのみ相平衡が成立、(2) 蒸気バルクは飽和で、液バルクは過冷、(3) 液膜内には濃度分布はなく、液膜の物質伝達係数  $\beta_L$  は無限大、(4) 液膜の熱伝達係数  $\alpha_L$  は純冷媒に関する式と同形。

予測計算に用いた基礎式は以下のように表せる。

z 方向のエネルギ保存

$$q_w = -\frac{W_{vin}}{\pi d_w} \frac{d}{dz} \{x h_{vb} + (1-x)h_{lb}\} = \alpha_L (T_i - T_w) \quad (46)$$

ここに、 $d_w$  は円管の内径である。

蒸気相における z 方向の成分1の質量保存

$$\dot{m}_1 = -\frac{W_{vin}}{\pi d_w} \frac{d}{dz} (x w_{1vb}) = -\frac{W_{vin}}{\pi d_w} w_{1vi} \frac{dx}{dz} - \beta_v (w_{1vi} - w_{1vb}) \quad (47)$$

ここに、 $\dot{m}_1$  は位置  $z$  における成分1の凝縮質量流束である。

液膜内における z 方向の成分1の質量保存

$$\dot{m}_1 = \frac{W_{vin}}{\pi d_w} \frac{d}{dz} \{(1-x) w_{1lb}\} = -\frac{W_{vin}}{\pi d_w} w_{1li} \frac{dx}{dz} + \beta_L (w_{1li} - w_{1lb}) \quad (48)$$

ここに、 $\beta_L$  は無限大としているので、上式が有限値となるためには次の関係が成立する必要がある。

$$w_{1lb} = w_{1li} \quad (49)$$

クオリティと蒸気及び液の質量分率との関係

$$x = \frac{W_{1vb} - w_{1lb} W_{1vb}}{W_{1vb} - w_{1lb} W_{1vb}} \quad (50)$$

液バルクのエンタルピ

$$h_{lb} = H_L(P, T_{lb}, w_{1lb}) \quad (51)$$

ここに、 $T_{lb}$  は次式で近似する。

$$T_{lb} = (T_i + T_w)/2 \quad (52)$$

蒸気バルクのエンタルピ

$$h_{vb} = H_v(P, w_{1vb}) \quad (53)$$

気液界面の相平衡

$$w_{1li} = W_L(P, T_i) \quad (54)$$

$$w_{1vi} = W_v(P, T_i) \quad (55)$$

3. 2 二成分蒸気の水平平滑管内凝縮特性

本予測計算法と、原口ら<sup>(15)</sup>が先に行った内径  $d_w=8.4\text{mm}$ 、有効伝熱長さ  $L=5.44\text{m}$  の水平平滑管内の混合冷媒 HFC134a/HCFC123 (HFC134a の質量分率： $w_{1vb} = 35 \sim 85\text{wt}\%$ 、質量速度： $G=120 \sim 300 \text{kg}/(\text{m}^2 \text{s})$ ) の実験との比較を行った。その際、液膜の熱伝達係数  $\alpha_L$  の予測には純冷媒の実験式<sup>(16)</sup>を用いて、蒸気相の物質伝達係数  $\beta_v$  は次式で与えられるとした。

$$Sh_v \equiv \frac{\beta_v d_w}{\rho_v D_{12}} = C \times 0.023 Re_v^{0.8} Sc_v^{0.3} \quad (56)$$

ここに、 $C$  は実験的に定めた係数で、 $C=2$  とすれば、管軸方向の熱流束分布に関して、予測計算結果と実験結果とが混合冷媒の組成比及び質量流量によらず最もよく一致した。以下、 $C=2$  の結果について示す。

図7に、冷媒流れ方向の冷媒温度  $T_r$  及び壁温  $T_w$  の実験値、蒸気バルク温度  $T_{vb}$ 、気液界面温度  $T_i$  及び液バルク温度  $T_{lb}$  の計算値、並びに熱流束の実験値及び計算値からそれぞれ求められた平衡クオリティ  $x_{exp}$  及び  $x_{cal}$  を示す。 $T_{vb}$  は入口近傍を除いて  $T_r$  よりも高い値となる。また、 $T_i$  は入口近傍では  $T_r$  よりも低く、下流域では  $T_r$  よりも高い値となるが、この関係は純冷媒における飽和温度と測定冷媒温度との関係に非常によく似ている。さらに、 $T_{vb} - T_i$  の値は凝縮が進行するにつれて小さくなるが、これは凝縮の進行とともに液膜の熱抵抗が蒸気物質伝達抵抗に比して相対的に大きくなることによるものである。なお、熱流束の予測値と実験値がよく一致していることに対応して、 $x_{cal}$  は  $x_{exp}$  と良く一致している。

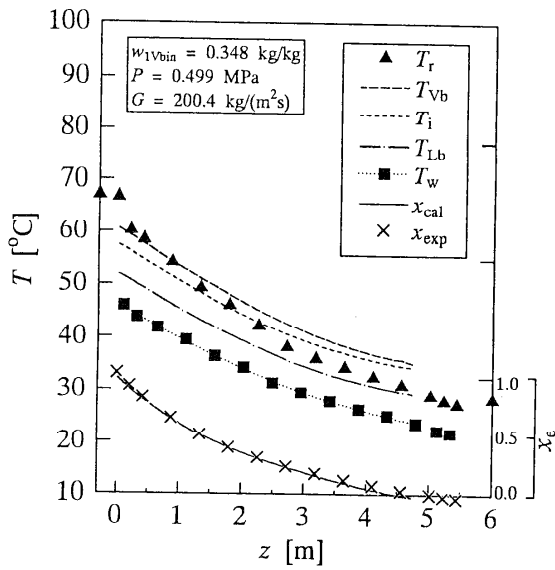


図7 温度及びクオリティの管軸方向分布

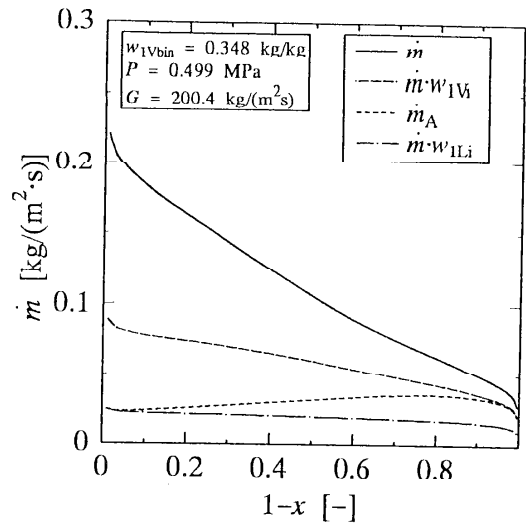


図9 凝縮質量流束の管軸方向分布

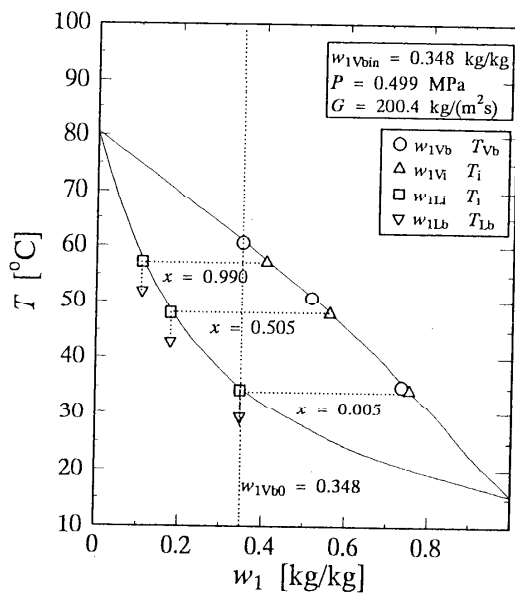


図8 蒸気バルク、気液界面及び液バルクの状態点

図8は  $x_{cal} = 0.990, 0.505, 0.005$  での蒸気バルク、気液界面及び液バルクの状態点を相平衡図上に示したものである。 $w_{1vb}$  は凝縮の進行とともに  $w_{1vi}$  に近づく。

図9に  $1-x$  に対して全凝縮流束  $\dot{m}$ 、蒸気側から気液界面に向かう低沸点成分の対流成分  $\dot{m}_1 w_{1vi}$ 、低沸点成分の凝縮流束  $\dot{m}_1$  及び気液界面から液膜内に向かう低沸点成分の対流成分  $\dot{m}_1 w_{1Li}$  を示す。 $\dot{m}_1$  は入口近傍で一旦わずかに減少し、その後下流に向かって増加

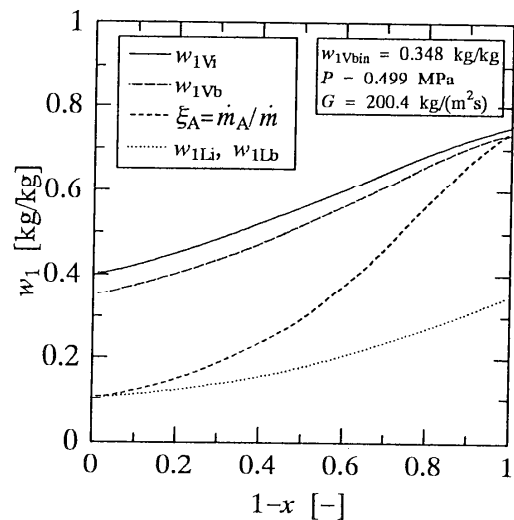


図10 低沸点成分組成の管軸方向分布

し、凝縮終了点付近で急激に減少する。一方、高沸点成分の凝縮流束  $\dot{m}_2 = \dot{m} - \dot{m}_1$  は入口近傍で非常に大きく、下流に行くにつれて減少する。また、図より、蒸気側の拡散流束  $j_{1vi}$  は流れ方向に減少すること、一方、液膜側の拡散流束  $j_{1Li}$  は流れ方向に増加し、凝縮終了点付近で急激に減少することも分かる。なお、 $j_{1vi}$  及び  $j_{1Li}$  はそれぞれ以下のように定義している。

$$j_{1vi} \equiv \beta_v (w_{1vi} - w_{1vb}) = \dot{m} w_{1vi} - \dot{m}_1 \quad (57)$$

$$j_{1Li} \equiv \beta_L (w_{1Li} - w_{1Lb}) = \dot{m}_1 - \dot{m} w_{1Li} \quad (58)$$

図10に  $1-x$  に対して、蒸気界面、蒸気バルク、

液界面及び液バルクの質量分率  $w_{1Vi}$ 、 $w_{1Vb}$ 、 $w_{1Li}$  及び  $w_{1Lb}$ 、並びに全凝縮流束に対する低沸点成分の凝縮流束の割合  $\xi_1$  を示す。 $\xi_1$  は凝縮開始点では  $w_{1Li}$  と一致し、凝縮の進行とともに  $w_{1Vi}$  に近づく。これは、物質伝達抵抗が凝縮の進行とともに蒸気相支配から液膜支配へと移行していることを示している。なお、 $w_{1Vi}$  と  $w_{1Vb}$  の差は凝縮の進行と共に小さくなる。

#### 4. 結 言

(1) 多成分混合気の凝縮の基礎理論として、3成分混合気の平板上での層流強制対流凝縮について基礎式を示し、伝熱量、凝縮量及び気液界面状態を代数的に予測する方法を説明した。なお、3成分系の層流自由対流凝縮に関しては文献(17)に実験と近似理論が示されており、より一般的な多成分混合気の伝熱特性の予測法は文献(18)及び(19)にまとめられている。

(2) 多成分混合気の管内凝縮伝熱の基礎として、水平平滑管内での2成分蒸気の凝縮特性の予測法について説明した。この場合、蒸気の物質伝達特性を実験値を参照して同定したが、現象をより厳密に解明し、より一般性のある予測法を確立するには、局所の蒸気及び液組成の測定、熱物性値の推算精度の向上などが必要である。なお、最近、3成分系の凝縮特性の予測計算法の開発が試みられている<sup>(20)</sup>。

(3) 多成分系になると純蒸気では生じない凝縮形態が表面張力の作用により出現することが観察されており<sup>(21)</sup>、特定の多成分系の実験結果から異なる条件の場合や他の多成分系の特性を予測したり、あるいは理論的取り扱いを行う場合には注意を要する。

なお、本稿で紹介した内容は多成分混合気の凝縮伝熱に関するほんの一部の成果であり、最近の研究成果を広範にレビューできなかつたことをお詫びする。

#### 文 献

- (1) 藤井・小山・五島・高松, 日冷論, 2-3, 15(1985).
- (2) 小山・藤井, 伝熱研究, 32-127, 2(1993).
- (3) 小山・藤井, 機論(B), 51-465, 1497(1985).
- (4) 小山・石橋・兪, 第33回日本伝熱シンポジウム講演論文集, III, 747(1996).
- (5) Fujii, T., Theory of Laminar Film Condensation, (1991), Springer-Verlag, New York.
- (6) Schrodt, J.T., AIChE J., 19-4, 753(1973).
- (7) Bird, R.B., Stewart, W.E. and Lightfoot, Transport Phenomena, (1960), John Wiley & Sons Inc., New York.
- (8) Krishna, R. and Standart, G.L., AIChE J., 22-2, 383(1976).
- (9) Toor, H.L., AIChE J., 10-4, 460(1964).
- (10) Stewart, W.E. and Prober, R., I & EC Fond., 3-3, 224(1963).
- (11) Webb, D.R., 7th Int. Heat Transf. Conf., Vol.5, 167(1982).
- (12) Lee, W.C. and Rose, J.W., Int. Chem., Eng. Symp. Series Condensers: Theory and Practice, No.75, 342(1983), Pergamon Press.
- (13) 藤井・上原・三原, 機論(2), 44-378, 600(1978).
- (14) 藤井・加藤, 機論(B), 46-402, 306(1980).
- (15) 原口・小山・小川・藤井, 第31回日本伝熱シンポジウム論文集, II, 742(1994).
- (16) 原口・小山・藤井, 機論(B), 60-574, 245(1994).
- (17) 藤井・小山・五島, 機論(B), 51-467, 2442(1994).
- (18) 小山・五島・藤井, 九大生研所報, 1-1, 77(1987).
- (19) 小山・五島・渡部・藤井, 九大生研所報, 1-1, 85(1987).
- (20) 張・呉・飛原・斉藤・飯島, 日本機械学会熱工学部門講演会論文集, No.95-54, 94(1995).
- (21) 長・小山・藤井, 第29回日本伝熱シンポジウム講演論文集, 744(1992).

先端半導体プロセスの数値解析

Numerical Simulation of Czochralski Processes  
for Advanced Semiconductor Materials

ウルスラ ブックル (三洋電機メカトロニクス研究所)

Ursula BÜCKLE (Sanyo Electric Co., Ltd. Mechatronics  
Research Center)

ABSTRACT

In this paper the results of a numerical parametric study on the influence of Prandtl number on heat transfer in a rotating annular cavity are presented. Through the efficient and highly accurate numerical method, successfully applied to many problems in computational fluid dynamics, it became possible to cover a wide range of fluids, starting from the low-Prandtl number fluid gallium ( $Pr=0.021$ ) and including air ( $Pr=0.71$ ) as well as water ( $Pr=9.28$ ). From the results a crucial influence of rotation effects on the dynamics of the flow and hence the heat transfer rates can be established. The representation of these findings by correlations of the type  $Nu = f(Ra, Pr)$ , may therefore be useful as first and foremost global estimation of the interactions between Prandtl number, mixed convection and heat transfer in axisymmetric flows in cylindrical geometries.

PHYSICAL AND MATHEMATICAL MODEL

A cylindrical annulus with an aspect ratio  $A$  (height/width) of 1, exposed to a temperature gradient in horizontal direction and rotating steadily at an angular frequency  $\Omega$  about the central axis (cf. figure 1.1) may be regarded as a simplified but nevertheless for the investigation of mixed convection heat transfer satisfactory representation of a real Czochralski device.

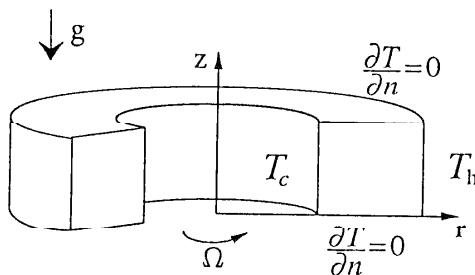


Figure 1.1: Sketch of the rotating annular cavity

The fluid flow is governed by the Navier-Stokes equations, written as generalized transport equation as follows:

$$\frac{\partial \rho \Phi}{\partial t} + \text{div} (\rho \underline{v} \Phi - \Gamma_{\Phi} \text{grad } \Phi) = s_{\Phi} \quad (1.1)$$

Relevant physical and numerical parameters as well as references containing a description of the discretization procedure and the employed numerical method, characterized by high accuracy and efficiency, can be found in [1].

RESULTS

The graphical representation of the average Nusselt number as a function of Prandtl number shown in figure 1.2 reveals the following correlations

$$Nu = 1.14 (Pr^2 Gr)^{0.128} \quad Pr < 1 \quad (1.2)$$

$$Nu = 1.14 (Pr Gr)^{0.128} \quad Pr > 1 \quad (1.3)$$

for natural convection and

$$Nu = 0.78 (Pr^2 Gr)^{0.154} \quad Pr < 1 \quad (1.4)$$

$$Nu = 3.0 (Pr^2 Gr)^{0.038} \quad Pr > 1 \quad (1.5)$$

for mixed convection, respectively. The correlations

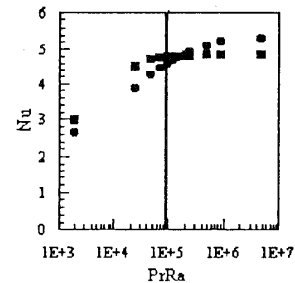


Figure 1.2: Average Nusselt number  $Nu$  vs. Prandtl · Rayleigh number  $PrRa$  ( $0.021 < Pr < 50$ ,  $Ra=10^5$ );  $\square$ : natural convection (Rossby number = 0)  $\bullet$ : mixed convection (Rossby number = 7.5)

for natural convection agree fairly well with previous studies (cf. [1]), whereas the ones for mixed convection show much stronger dependencies than proposed by other authors.

REFERENCES

[1] U. Bückle, M. Osumi and K. Suzuki. The influence of Prandtl number on mixed convection heat transfer in an annulus. *In Proceedings, 2nd Eurotherm Conference Rome, Italy, 1996.*

## ニューラルネットによる 乗員温感予測技術と空調制御への応用

A New Technology to Predict the Thermal Sensation of an Occupant  
Using a Neural Network and Its Application to the HVAC System

上田 松栄, 谷口 洋介 (株)豊田中央研究所  
Matsuei UEDA and Yosuke TANIGUCHI  
(Toyota Central R&D Labs., Inc. Reaction Dynamics Lab.)

### 1. 技術のねらい

自動車に於て空調は快適性、安全性の面から重要な機能の一つである。しかし、これまでの空調機は温度を一定に保つことが主目的で、乗員の感覚を主体にした物はなかった。そのため、空調が欲しい時に十分効かず、また不必要な時にも空調が入ってしまうといった、不具合が生じていた。もっと人の感覚に応じた空調制御は出来ないのか?この要求を達成する為、ニューラルネット(NN)で乗員の感覚(温度感覚)を予測し、その予測温度感覚に基づいて制御する車両用空調機を試作したので報告する<sup>(1)</sup>。

### 2. 温度感覚予測手法の概要

乗員の温度感覚(温感)と顔皮膚温とに相関は有るがその関係は非線形で、解析解を得る事は難しい。他方、NNは非線形問題処理、学習機能に優れ、家電製品等に多く応用されている。そこで、測定した顔皮膚温変化と温感変化をNNで結び付ける事にした(図1)。特に、温感予測に重要な時系列データを入力として用いた事で、車両の様に環境が大きく変化する場でも精度良く温感を予測する事に成功した(図2)。

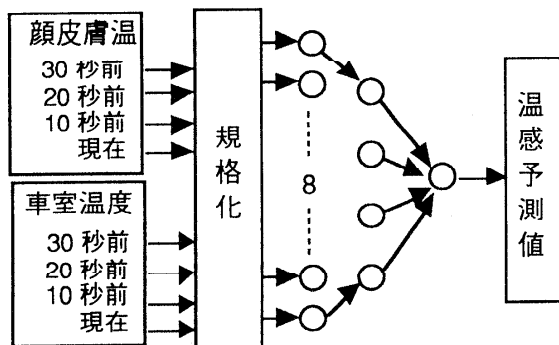


図1 NN構成

### 3. 空調の特徴

空調機が温感で制御される事により、乗員の感覚に応じた空調が実現できる。例えば、乗車前の乗員の状態が違う場合、暑い部屋に居た人には強く冷房をし、涼しい部屋にいた人には弱い冷房を施すといった、車室温一定制御では不可能な乗員の感覚に応じた空調が実現できる(図3)。その結果、従来の制御と比較して早期に快適感が得られ、それを維持する事ができるのである。

### 4. まとめ

NNの応用で乗員の温感を予測する技術が確立できた。また、この技術の応用で乗員の感覚に応じて制御できる車両用空調機が開発できた。

(1) 第73回 機械学会総会、229、(1996)

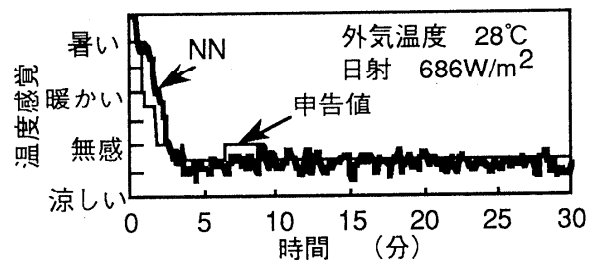


図2 温度感覚の予測

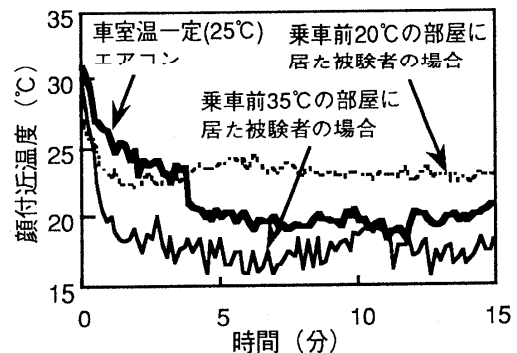


図3 空調制御への応用 (28°C、日射0W/m<sup>2</sup>)



賛助会員紹介  
 (株)日立製作所 機械研究所

Introduction of Mechanical Engineering  
 Research Laboratory, Hitachi, Ltd.

伊藤 正昭 (日立・機械研)  
 Masaaki ITOH (MERL Hitachi, Ltd.)

1. 緒言

日立製作所機械研究所は、東京の北東 70km、筑波研究学園都市の玄関口である土浦市の北端に位置し、筑波山や霞ヶ浦を眺望できる閑静な地にある。緑に囲まれている建物の外観を図 1 に示す。約 430 名の研究者を擁し、そのうち 15% が博士号を有している。当研究所は、1966 年に全社の機械技術に関する研究開発のセンターとして設立され、今年で創立 30 周年を迎えた。創立当初は産業機械、電力機器、空調機器などのエネルギー分野製品を主な研究開発対象とし、

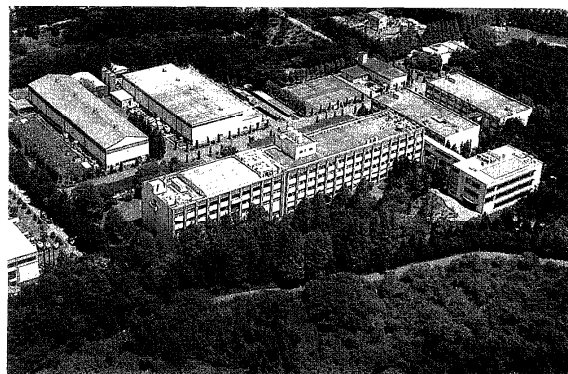


図 1 日立・機械研究所の建物外観

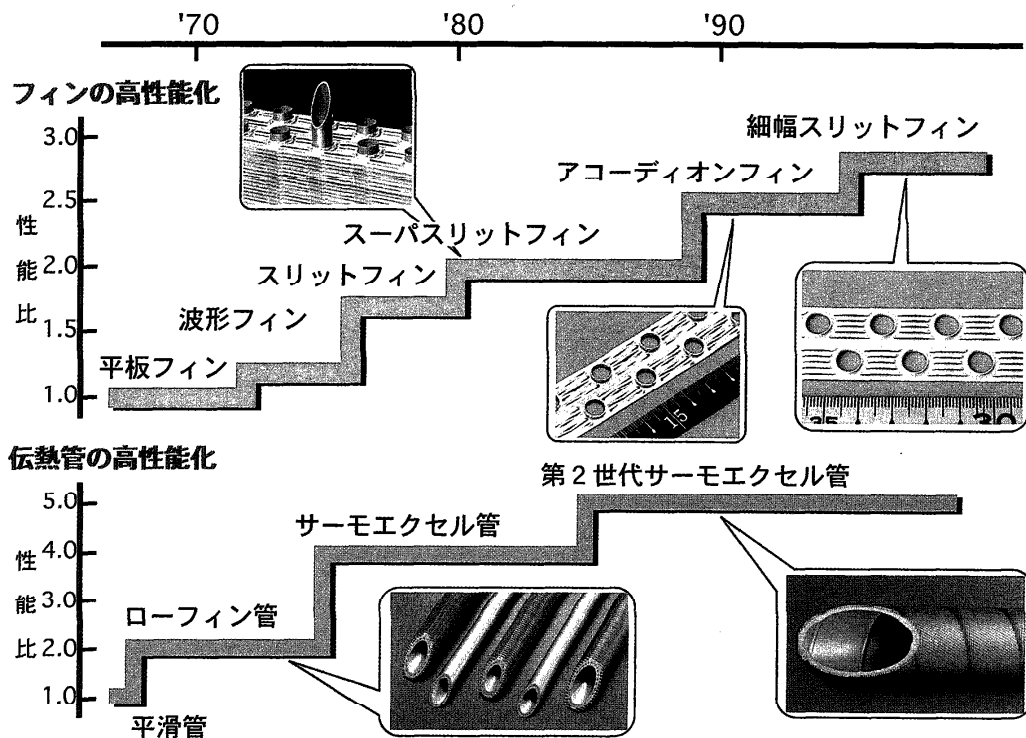


図 2 空調用熱交換器の高性能化

熱、流体、振動、強度などの、いわゆる機械基盤技術をベースとした研究が中心であった。その後、多くの新しい分野の製品が研究対象に加わり、現在では機械工学の分野のみならず、電子、物理、化学などとの境界領域に属する研究も盛んに行っている。特に、1960年代後半から始まった半導体技術が機械に与えた影響は大きく、これによってエレクトロニクスと機械が融合した機械、すなわち、ロボットや情報・端末機器に代表されるメカトロニクス分野製品の研究の割合が増えている。最近では、「夢をかたちに、感動を社会に」を合い言葉に、介護ロボットなどの医療福祉機器、廃棄物リサイクルを始めとする環境技術など社会のニーズに応える研究にも取り組んでいる。

以下に、伝熱分野での研究開発の概要といくつかの成果を紹介する。

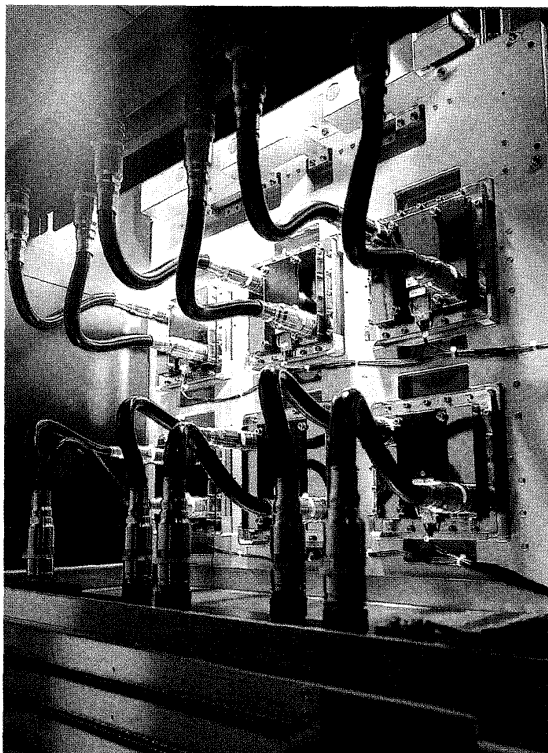


図3 超大形コンピュータの冷却構造

## 2、空調用熱交換器

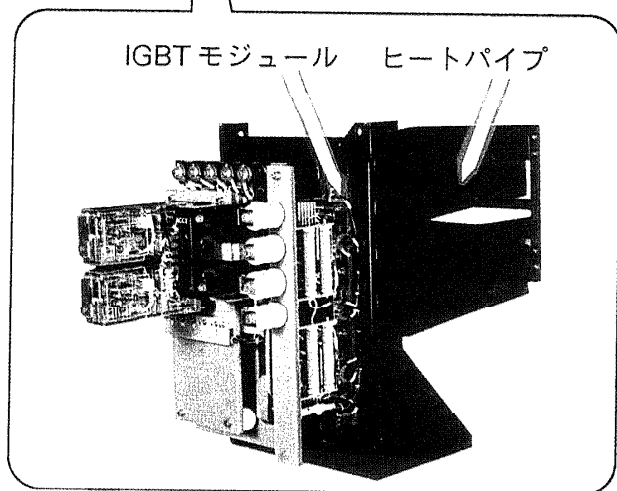
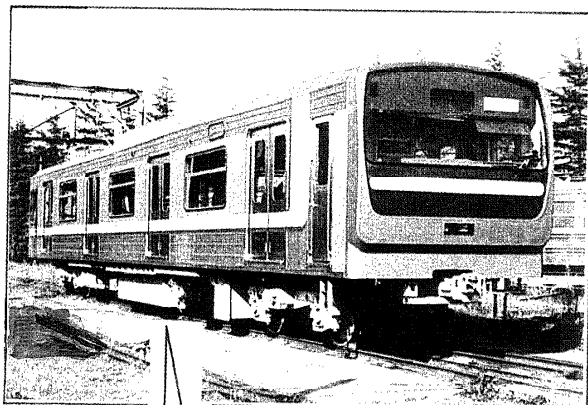
当所では、空調・冷凍の基本技術として伝熱、熱交換技術の研究開発に力を入れている。サーモエクセル管(THERMOEXCEL Tubes)に代表される高性能伝熱管の開発や、スーパスリットフィンに代表される熱交換器の開発は大きな成果である。図2に空調用熱交換器フィンの高性能化の推移と、伝熱管高性能化の推移を示す。最近では、フロン規制に端を発する代替冷媒(混合冷媒)用伝熱管の開発に力を入れている。

## 3、コンピュータ冷却技術

コンピュータの小形高速化が進展するに伴い、演算素子の発熱密度が高くなり、その冷却の問題は、年々難しさを増してきている。当所では、種々の規模のコンピュータを対象に、自然空冷から水冷に至る高性能冷却技術の開発を行っている。昨年発売した超大形コンピュータ MP5800では、図3に示すように、高性能熱伝導接触子により構成された高密度実装モジュールに、冷却水を流す水冷方式を採用している。上下に伸びているフレキシブルな配管の中を、冷却水が流れている。

## 4、パワーデバイス冷却技術

当所では、発電機やモータなどの大型回転機器の冷却の他、電車用 IGBT (絶縁ゲート型バイポーラ・トランジスタ) の冷却システムにも取り組んでいる。従来フロリナートを用いていたヒートパイプに水を用い、寒冷地での凍結問題を克服した結果、実用化することができた。図4にその構造を示す。パイプを途中で水平方向に曲げることにより、高さを抑え、電車の床下配置を可能にしている。



冷却システム

図4 電車用 IGBT 冷却システム

### 5、半導体製造装置

半導体の高集積化、微細化の達成のため、熱処理設備においては、熱処理温度ばらつき低減、クリーン化の向上が必須である。当所では、熱流体シミュレーション、流れ可視化実験、放射温度計測技術の研究により、新方式の縦型拡散装置を開発した。本装置の外観を図5に示す。本装置は、従来の横型装置に比較して、ウェーハ温度ばらつきを1/10に低減すると共に、ごみを含んだ外気が装置内に混入する量を1/1000に低減できるものである。

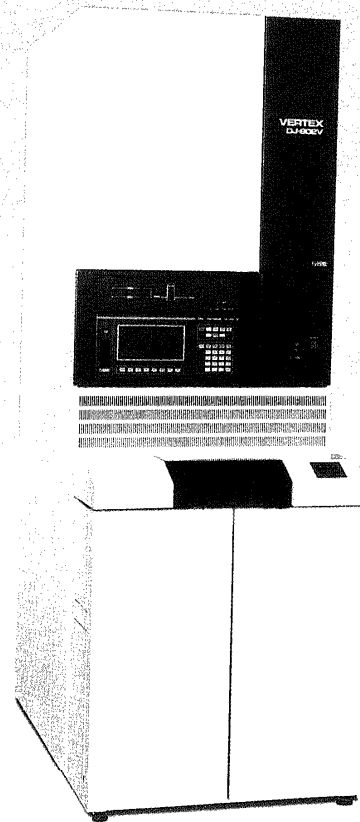


図5 縦型拡散装置の外観写真

### 6、熱・流体解析技術

当所では、複雑形状流路内の伝熱や流れを解明するために、スーパーコンピュータと有限要素法を駆使した高精度解析技術を開発してきた。その結果、開発段階での現象予測が可能となり、模型や実機を使った検証実験の手間と時間を大幅に低減させることができた。図6にスーパースリットフィンの温度分布を計算した結果を示す。最近では、ターゲットを絞り、使い勝手を向上させた専用ソフトの開発にも力を入れている。今後は、流体音響や対流伝熱・輻射共有場などの解析の実用化をめざし、実環境に近い複合現象の解析へと展開する予定である。

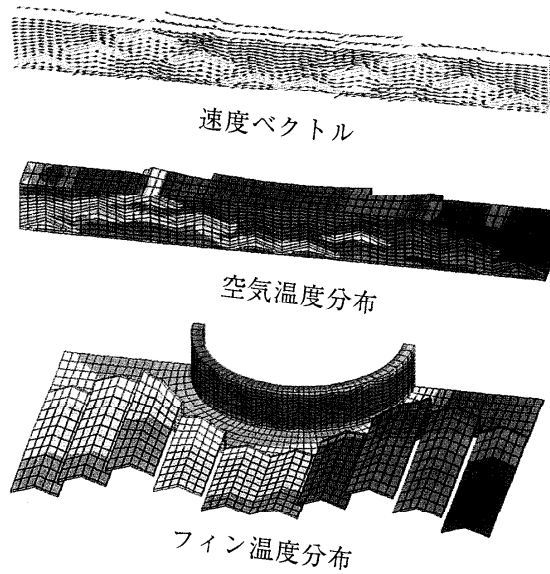


図6 スーパスリットフィン熱流動解析結果

## 7、結言

当所では、伝熱に関して、概略以上のような研究開発を行っている。なお、製品分野別の研究室組織とは別に、熱工学とか流体工学などの技術分野別の研究会組織があり、横の連絡を密に保つと共に、技術の維持、向上を図っている。

当所における日本伝熱学会の会員数は、10名程度と推定している。なお、賛助会員の代表者は、畑田敏夫主管研究員で、連絡先は、次の通りである。

郵便番号 300 茨城県土浦市神立町 502

(株)日立製作所 機械研究所

電話 0298-32-4111 内 6051

青木成文先生を偲んで

Condolence to the late Doctor Shigebumi Aoki

越後 亮三 (東京工業大学工学部機械科学科)  
有富 正憲 (東京工業大学原子炉工学研究所)  
Ryozo ECHIGO (Faculty of Engineering, Tokyo  
Institute of Technology)  
and Masanori ARITOMI (Research Laboratory for Nuclear  
Reactors, Tokyo Institute of Technology)

去る5月10日の朝、普段どおりの時を過ごしておられた青木先生が突如胸部の異常を訴えられ、そのまま不帰の客となられました。故人となられた先生の追悼文を美辞麗句で飾り、卓事を強調すると草葉の陰からまたまたお叱りを受けそうな予感がします。先生は助教授時代を中心に思い出すままに書かせていただき、お人柄を偲んでみたいと思います。

私は学生時代に指導教官としてご薫陶いただいた先生は故あって6人にもものぼります。最初の学部卒業研究の実質的な指導教官が当時助教授に昇進されて間もない青木先生でした。その頃、機械工学科蒸気実験室に助教授の青木先生が2人おられました。「せいぶん」さんとの愛称をご本人が好まれたか否かはいまとなっては知る由もありませんが、話す側にはいつも親しみが込められていました。私は何故か青木先生にはよく叱られました。最初のは卒業研究について間もない頃、自分としては卒論の研究課題であった「液体金属を用いた伝熱実験」に興味を持ち、平均的な学生以上に励んでいるつもりでしたが「卒業する意志があるのか」と大変にきついお達しがありました。あまりに身に覚えがなかったのですが後に「せいぶん」式指導法のひとつであったと理解しています。つまりひとの口を媒介にしてきついお達しをされることが大変多かった。東京大学博士在学中には「あのような研究をしていてまとまるかな」とか、九州大学赴任時には「伝熱研究の盛んな大学へ行って務まるかな」とお叱りとも励ましとも採れるようなお達しをいただいた。媒介役は時として友人レベルであったり、はたまたご長老の先生までありと様々であった。逆に私も知らないうちに媒介役を務めていたことがあった。

2人目の指導教官は修士課程の指導教官の川下研介先生で、いまも90歳以上の長寿を保っておられます。青木先生にとっても恩師にあたるので、「せいぶん」先生は私の指導教官であると同時に恐れ多いことですが兄弟子でもあります。川下先生は知る人ぞ知る天衣無縫のお人柄で、青木先生は長年助手

として仕えられ、戦後の貧しい苦しい時代も重なって筆舌に尽くせぬご苦勞をされたやに聞いています。川下先生の最終講義は本館11番講義室とよばれた通称階段教室でとりおこなわれ、百以上もある座席はほぼ満員であった。講義内容は漫談、艶談まであるなごやかで、華やいだものであった。司会を務められた「せいぶん」先生が講義の終わりにされた挨拶のことばが途切れ始めたかと思うと、青木先生の顔面は溢れる涙にかきくれ、頭をうなだれて立つのがやっとの「せいぶん」先生の両の肩は恩師川下教授の二の腕で支えられていました。恩師に対するここまで高まる情感を後にも先にも私は見たことがない。生あるもの同士の別れをこれほどに慈しまれた青木先生の胸中は思えばかつてあまりある。ましてや恩師より先だたれる不幸を気にされているやも知れませんが、川下先生には「せいぶん」先生が冥土に旅立たれたことを伏せてあります。安らかにおやすみください。(越後)

先生が長年その発展に尽力を注がれていた3年毎に開催される「放射性物質の輸送に関する国際会議(PATRAM)」が、1992年9月に横浜で開催された際に、その発展のために設定した賞が好評であったことから、一昨年、先生が叙勲された折りにその賞の恒久化の財源にしてほしいと醸金されました。このことは、昨年12月にラスベガスで開催されたPATRAMで承認され、2月末に授賞者が決定しましたので、楯を製作し4月19日にできあがりしました。そこで先生に電話でお伝えしました。最近会議も少なくなり山歩き機会が少ないので、皆に逢いたい旨のお話しでありました。その時の先生はお元気であり、このように早く旅立たれるなど夢想だにしませんでしたので、日本の授賞者の楯を電力中央研究所の先生が親しい方に預かってもらいますからご覧下さいとお願いし、5月31日に先生が若かれし頃の教え子による先生を囲む会を企画しました。今から考えますとすぐでも持参してお見せすれば良かったと後悔しており、楽しみにされていた

先生を囲む会が先生の旅立ちに間に合わなかったことが呉々も残念でたまりません。私は日本学術振興会の論文博士支援事業のため5月6日からボンベイのバーバー原子力センターに出張しており、12日に帰宅してはじめて、家族から先生の訃報を聞きました。しかし、3週間前のお元気なお声からすぐには信じられませんでした。

私は、昭和45年4月に大学院へ入学して以来26年間先生には公私共お世話になってきました。先生との思い出を書き留め、お人柄を偲ばせていただきます。

先生の研究に対するお考えは、常に目的意識と何を解明するのかについての考えを確立し、信念を持って取り組むことが基本でした。しかし、その中にも他人の意見に耳を傾けられる心の余裕を持つ柔軟性は失ってはいけないうことでした。この教訓は、研究ばかりでなく対外的な仕事を遂行する上でも役に立っております。

先生は、責任感が強く、几帳面であり、物事を公平に判断して対処する性格の持ち主でありました。頑固な面もおありになり自分で納得できないと行動しませんし、他人任せに仕事をすることができませんでした。また、新しいものに積極的に取り込まれ、原子炉工学研究所で最初にワープロを購入し、自分自身で操作されたのは先生でした。若い人の考えを聞く耳は常に持っておられましたが、照れ屋な性格からでしょうか、我々の考えに賛同されれば、前面に出るのではなく陰に回って支援して下さることが多かったと記憶しております。

青木先生は、若い頃から激務をこなされてきたため、東京工業大学に在職中に腎臓を病まれ、はじめは週2回、その後週3回人工透析治療を行われるようになりました。辛かったと思いますが、先生の不屈

の闘魂により人工透析を行う中で、伝熱を中心とする我が国の軽水炉の安全性の向上、高速増殖炉や新型転換炉の開発や放射性物質の安全輸送の確立などの面で尽力され続けました。最近では、原子力エネルギーが一般国民の理解を得ることに関心を向けられており、特に、原子力発電所の真実の姿を国民や小中学生に理解してもらう活動をなされておりました。一方、気さくに若者の中に飛び込み、一緒に仕事をするのが大好きで、旅立たれる10日前、即ち、5月1日からオー・シー・エル(株)の非常勤顧問となられ、放射性物質の安全輸送のために若手を育てる仕事に情熱を注がれておりました。

先生は、芸術をこよなく愛され、余暇を見つけては読書をしたり、絵を描いたり、版画を作られて楽しんでおりました。海外出張された際にも、写真撮影はもとより、気に入った風景などがあるとデッサンして、帰国後に写真を焼き付けられたり、キャンバスに向かったり、版画を彫ったりされておりました。特に、ヨーロッパの風景が大好きで版画の作品を沢山作られました。停年退官の折には、ご自身が特に気に入った絵画と版画の作品を1点づつ複製され、記念品とされたのは印象に残っております。また、諸先輩に伺った話では、若い頃の先生は、トランプのブリッジを学生達と一緒に楽しんだり、学生達と一緒にお酒を飲みに行ったりしていたそうです。お酒の量は余り沢山飲まれませんでした。お酒を飲む雰囲気が好きで、我々学生をリラックスさせるため、進んで余興を興じられました。

最後に、青木先生は正四位の叙位が授けられ、6月12日に奥様に叙位の伝達式がありましたことを記し、筆を置かせて戴きます。先生、安らかにおやすみください。(有富)

## 青木成文先生の思い出

*Memories of Professor Shigebumi Aoki*

井上 晃 (東京工業大学)

*Akira INOUE (Tokyo Institute of Technology)*

恩師であり、東京工業大学名誉教授の青木成文先生が、平成8年5月8日朝9時半頃、急性心筋梗塞で逝かれました。行年74歳でした。

東工大を定年退官された頃から、透析治療のため毎週病院に通われ、また、一昨年暮れに下血され、その後、数ヶ月入院治療されてきましたが、徐々に快方に向かわれて、最近では会議に出られるくらい元気になりましたので、久しぶりに青木研のOBで、先生を囲んだ会を準備し、ご案内をお届けしたばかりでしたので、本当に残念です。ただ、ほとんど苦しみも無く、逝かれたことが、唯一の慰めです。

青木先生は、終戦の年の昭和20年に、東京工大機械工学科を卒業され、そのまま機械工学科の助手に奉職され、約10年間、博士論文となる高速気流の熱流動研究と液体金属の伝熱流動など、当時としては、先駆的な研究をされてこられました。

昭和31年は原子力基本法が制定され、日本の原子力開発がスタートした年ですが、先生は、この年、設立間もない原子炉研究施設に招かれ、助教授に就任されておられますので、まさに日本の原子力開発の黎明期に、少壮気鋭の研究者かつ指導者として、原子炉の熱流動研究と新しく構築されていく原子炉安全工学分野の研究に取り掛かれたわけです。

昭和39年4月研究施設が原子炉工学研究所に昇格するとともにその原子炉工学部門の教授に昇進され、爾来、昭和58年定年で退職されるまでの20数年間、実に超多忙な日々を過ごされました。

大学においては、日本における軽水炉や新型炉開発における伝熱流動上の問題をいち早く取り上げられました。原子炉の定常時・異常な過渡時、および、

事故時に生じる基礎現象の解明、すなわち、定常から高速過渡時の沸騰伝熱や限界熱流束、気液二相流の研究を指導されました。この間、昭和50-52年と56-57年の2回にわたり、原子炉工学研究所所長および大学評議員として、原子炉研および東工大の発展に尽力されました。

一方、学外においては、原子力への明るい希望と期待に膨らんでいた、いい時期でありましたが、そのかわり、原子力技術の導入にあたり、その基盤技術の確立に、各種研究委員会の設立、国の規制や基準の整備の委員会に、さらに、急速に導入されはじめた軽水炉の安全審査に、と超多忙な日々を過ごされました。私共も昭和40年過ぎたあたりから、先生がお忙しく、もう少し大学に居られたらを思っていた時期がありましたが、この間、原子炉安全委員会の原子力発電技術顧問会、安全専門審査会および原子炉安全基準部会の委員として、導入された軽水炉の応力腐食問題などの技術課題を克服する一方で、我が国における原子炉の自主開発路線を強力に進められ、国産動力炉、特に、新型転換炉“ふげん”さらに、高速増殖炉“常陽”や“文殊”などの自主開発炉の研究委員会や安全審査に尽力されました。

1960年代の中頃に、軽水炉の緊急炉心冷却装置の炉心冷却性能への疑念が、米国の模擬実験で指摘されて、我が国でも実機規模の大型装置による軽水炉の安全性研究が、強力に進められました。原研のLOCA(冷却材喪失事故)研究委員会や大型再冠水効果研究委員会では委員長として、計画、実施、および、評価など、研究の開始から終わりまで携わってこられました。

さらに、先生のご専門から少し離れた分野ですが、最近、マスコミに注目されてきた「使用済み核燃料の安全輸送」に関して、すでに、昭和40年に機械学会で調査委員会を組織したのをはじめ、輸送容器の開発、その各種安全性試験、輸送方法の確立および法規制の整備など、ほとんどすべてに関わられました。

定年後の1992年に横浜で開催された、第10回「放射性物質の輸送に関する国際会議」では、会長としてたづさわ、同時に、「放射性物質輸送のすべて」(日刊工業新聞)という輸送の基礎、規則、安全管理、輸送容器の設計と試験、各種放射性物質の輸送、事故と緊急対策、安全評価、リスク評価などを記した、世界的に類のない貴重な本を執筆され、図表の作成からレイアウトまで、すべて自分でされて出版されています。

我々弟子から見ると、普段は心やさしい先生でしたが、研究室での先生は、研究に対する心がまえや姿勢に関しては、厳しく妥協を許さない頑固さがありました。卒業研究で、1週間程徹夜して、ふらふらで纏めたものを、もう少し進めれば、さらに、良くなるとして、若いからもう1-2日徹夜しても、死にやせん！と、ぎりぎりの努力を尽くす事を要求されました。

青木先生が、研究に対して言われた事で印象に残った言葉を、一つを紹介します。

“研究を極めるのは、富士山の頂上を目指すことと似ている。研究者にもいろいろいる。急な険しい道を一直線に登って、一気に頂上を極めるもの、周りの景色を見ながら、回り道して、こつこつ登っていくものもいる。苦勞して一気に頂上を極めるのもすばらしいが、回り道しながら、こつこつ登る奴は、時間はかかるが、一気に登る奴には、決して、経験出来ない、岩陰ひっそりと咲いている美しい花に遭遇することができるのだ。”

派手なスマートさはないが、地道な研究者をよく評価しておられたと思います。

先生のお人柄を反映して、研究室は自由な和気藹々とした雰囲気、学問・研究ができる環境を用意

して下さいました。私共は、先生の子供のような無邪気な部分と人情味豊かな人柄と江戸っ子の正義感に惹かれて、先生の周りに集まり、軽妙な話に魅了されたものでした。

“江戸っ子”の部分は、先生が電気新聞のコラム欄に、頼まれて又自主的に、よく原子力への意見や提案を書かれましたが、それらは、合理性をもった科学技術者の心眼をもった見解で貫かれており、行政にも、電力業界のにも、マスコミにも、また、原子力の賛成・反対の両者にも、表裏なく公明正大な意見を述べておられることからもうかがえます。

これらのことは、“物言わぬは腹ふくる業とかや”で始まる、現代版“徒然草”であり、ユーモアあふれる“ことわざ”が、随所にちりばめられた、含蓄のあるエネルギー誌本である「恵値流技 四方山断」(電気協会)からも伺えます。

東工大を定年退官された頃から、毎週2回、そして、最近では週3回も透析のため、病院に通う生活をされておられました。透析に行かれた日は、声もでないくらい疲労されておられましたが、それでも、原子力やエネルギー開発への意見をマスコミ、新聞紙上に述べられたり、前記のユニークな本や随筆集を出されたり、まさに、身体がぼろぼろになっても、原子力開発への意欲は最後まで持ち続けておられました。

日本の原子力の黎明期から、発展、成熟期の現在まで、一貫して先導的にかかわりあって来られました。環境へのインパクトが少ない人類の貴重なエネルギー源として、原子力の未来を確信しておられるが故に、その安全性に厳しい目を向けられ、正常な発展を願って、暖かく見守られておられました原子力の先導者の一人を失いましたが、そのご意志は、しっかりと引き継いで参りたいと念じております。

先生のご冥福を、衷心からお祈り致します。



## 行事カレンダー

	開催日	行 事 名	会 場 (開催地)	問 合 せ 先	掲 載 号
1996年					
7月	29(月) ～31(水)	第28回乱流シンポジウム 第7回計算流体シンポジウム 第1回環境流体シンポジウム	工学院大学 (東京)	(社) 日本流体力学会 Tel: 03-3714-0427, Fax: 03-3714-0434	Vol.35, No.136
8月	9(金)	平成8年度日本伝熱学会関東支部・講演会	東京農工大学 (東京)	東京農工大学工学部 望 月 貞 成 Tel&Fax. 0423-88-7088	Vol.35, No.138
10月	7(月) ～11(金)	4th International Symposium on Heat Transfer with Exhibition	(Beijing, China)		Vol.34, No.135
	18(金)	日本伝熱学会関西支部講演討論会	京都大学 (京都)	京都大学工学部 中 部 主 敬 Tel: 075-753-5251, Fax: 075-753-5851	Vol.35, No.138
	20(日) ～23(水)	3rd KSME/JSME Thermal Engineering Conference	(韓国, 慶州)	九州大学機能物質科学研究所 藤 井 正 夫 Tel: 092-573-9611, Fax: 092-592-0211 大阪大学工学部 高 城 敏 美 Tel&Fax: 06-879-7311	Vol.34, No.135
11月	27(水) ～29(金)	第17回日本熱物性シンポジウム	通産省工業技術院 (茨城)	日本熱物性シンポジウム実行委員会 Tel: 0298-54-4166, Fax: 0298-54-4039	Vol.35, No.138
	27(水) ～29(金)	第34回燃焼シンポジウム	広島国際会議場 (広島)	第34回燃焼シンポジウム事務局 Tel: 0824-24-7563(広安), 7558(滝) Fax: 0824-22-7193	Vol.35, No.138
12月	1(日) ～5(木)	分子スケール/ミクロスケール伝熱の材料 プロセスその他の分野への応用に関する国 際シンポジウム	横浜シンポジア (神奈川)		Vol.34, No.135
1997年					
2月	2(日) ～7(金)	The 1st Pacific Symposium on Flow Visualization and Image Processing	(Hawaii, USA)	<a href="http://www.cc.tuat.ac.jp/psfvip-1/">http://www.cc.tuat.ac.jp/psfvip-1/</a>	Vol.35, No.136
6月	2(月) ～6(金)	The 4th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics	(ベルギー, ブリュッセル)	東京工業大学工学部 黒 崎 委 夫 Tel: 03-5734-2540, Fax: 03-5734-2945	Vol.34, No.135
	16(月) ～19(木)	International Symposium on Heat Transfer Enhancement and Energy Conservation	(中国, 広州)	九州大学機能物質科学研究所 本 田 博 司 Tel: 092-583-7787, Fax: 092-583-7882	Vol.35, No.138
7月	28(月) ～8/1(金)	3rd International Thermal Energy Congress	(Kitakyushu)	Congress Secretary/ 3rd ITEC Ms H. Okabe (AINEC Co., Ltd.) Tel: 092-852-1575, Fax: 092-845-5135 E-mail: ainec@jms09.jeton.or.jp	Vol.35, No.138
9月	8(月) ～11(木)	Eleventh Symposium on Turbulent Shear Flows	(Grenoble, France)		Vol.35, No.138
	30(火) ～10/4(土)	8th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal-Hydraulics	国立京都国際会館 (京都)	東京電力(株)原子力研究所 滝 沢 昭 彦 Tel: 045-585-8946, Fax: 045-585-8958 E-mail: nereth-8@rd.tepco.co.jp <a href="http://www.rd.tepco.co.jp/nereth-8/">http://www.rd.tepco.co.jp/nereth-8/</a>	Vol.35, No.137

## 平成8年度日本伝熱学会関東支部・講演会ご案内

平成8年度日本伝熱学会関東支部・講演会を下記のように開催しますので、多数ご参加下さいますようご案内申し上げます。

年月日：平成8年8月9日（金） 午後3時～5時

場所：東京農工大学工学部11号館5階大会議室

（東京都小金井市中町：JR中央線東小金井駅下車徒歩10分）

講演者：Prof. W.-J. Yang, University of Michigan

講演題目：Micro-Boiling Phenomena on Copper-Graphite Composite Surfaces

参加費：無料

なお、講演終了後 Prof. W.-J. Yang を囲んで懇親会（会費1,000円）を予定しています。

参加ご希望の方（講演会、懇親会）は下記に8月7日（水）までにお申し込み下さい。

申し込み先（問い合わせ先）：東京農工大学工学部 機械システム工学科

望月貞成 Tel/FAX: 0423-88-7088, e-mail: motizuki@cc.tuat.ac.jp

学会連絡先：関東支部事務局 工業技術院機械技術研究所 バイオメカニクス研究室

山田幸生 Tel: 0298-58-7055, FAX: 0298-58-7291, e-mail: yamada@mel.go.jp

## 日本伝熱学会関西支部講演討論会の御案内

日時：平成8年10月18日（金） 13:00～17:00

場所：京都大学工学部機械工学科 機械系大会議室（335室）

〒606-01 京都市左京区吉田本町

行き方：1. JR京都駅→（地下鉄）→烏丸駅→（市バス201または203系統）→百万遍下車

または、JR京都駅→（市バス206系統）→東一条下車

2. 阪急河原町駅→（市バス201, 11, 31系統）→東一条下車

3. 京阪三条駅→（市バス11系統）→東一条下車

講演題目および講演者：

1. Progress in the Development of Turbulence Modelling ~ Non-Linear Eddy Viscosity Models and Second-Moment Closures（仮題）

Brian E. Launder (Professor, UMIST: University of Manchester Institute of Science and Technology, United Kingdom)

2. Turbulence Models of Unsteady Flow and Related Heat Transfer（仮題）

Kemal Hanjalic (Professor, Delft University of Technology, Netherland)

問い合わせ先：京都大学工学部機械工学科 中部主敬

Tel. 075-753-5251 / Fax. 075-753-5851

E-mail: nakabe@htrans.mech.kyoto-u.ac.jp

## 北海道伝熱セミナー' 96

寒冷地のアトリウム（高さ約 40m）を有する建物を快適に、しかも安全に保つ最新の技術・装置などを事  
前に見学し、講演会で理解を深めてから、討論を行う形式の伝熱セミナーを企画いたしました。奮ってご参  
加下さい。

※開催日、場所：平成 8 年 7 月 22 日（月）、サッポロファクトリー  
（札幌市中央区北 2 東 4、電話 011-207-5000）

1. 見学会：14 時～15 時 参加費無料  
集合場所：ファクトリー煙突広場（アトリウム西側の高い煙突前）
2. 講演会：15 時～17 時 30 分 参加費無料  
講演会場：ファクトリー内会議室（三条館 4 階フォーラム）

講演題目および講師

- (1) 「アトリウム内の熱の流れと日射」 絵内 正道 (北海道大学)
- (2) 「札幌ファクトリーのガスタービンコージェネレーションシステム」  
塚田 亮 (北海道ガス(株))
- (3) 「建築の防災と熱・火災気流解析」 長谷見 雄二 (建築研究所)

3. 懇親会：18 時～ 会費（3 千円）  
懇親会会場：ファクトリー内ビアケラーサッポロ（VIP ルーム）

※参加申込み方法：下記の申込用紙に必要事項を記入し、FAX または郵送して下さい。複数で参加される  
場合は、ご面倒でも、申込用紙をコピーし、一人一枚ずつ記入し、お送り下さい。各行事とも定員がありま  
すので、早めに、お申し込み下さい。なお、懇親会会費は当日会場で申し受けます。

※参加申込み締切日：7 月 15 日（月）

※郵送先・セミナー問い合わせ先：

〒060 札幌市北区北 13 西 8 北海道大学工学部 図形科学講座 早坂洋史  
（電話：011-706-6784、FAX: 011-706-7123、E-mail: haya94@E3.hines.hokudai.ac.jp）

----- (切り取り) -----

北海道大学工学部 図形科学講座 早坂洋史 行（FAX: 011-706-7123）

### 北海道伝熱セミナー' 96 参加申し込み

※どちらかに○を付けて、出欠を明記して下さい。

1. 見学会（出席・欠席）
2. 講演会（出席・欠席）
3. 懇親会（出席・欠席）

ご氏名（ふりがな）：

ご所属名（役職（学年））：

ご連絡先 〒

（住所・電話）：☎

東海支部企画

第 7 回 東 海 伝 熱 セ ミ ナ ー

” 熱流体工学 — 基礎と応用の最前線 — ”

日本伝熱学会東海支部では、標記のセミナーを下記の通り開催いたします。奮ってご参加下さいますよう、ご案内申し上げます。

1. 日時：平成 8 年 8 月 22 日 (木)～23 日 (金) 1泊 2日
2. 場所：愛知県労働者研修センター 〒489 瀬戸市川平町 7 8 番地  
TEL (0561)48-2611 FAX (0561)48-3146  
交通：JR 中央線定光寺駅あるいは愛知環状鉄道中水野駅より車で 8 分  
(両駅よりマイクロバスによる送迎があります。時刻等の詳細は申込受付後にお知らせ致します。駐車所も完備。)
3. 参加費：一般 13,000 円 学生 8,000 円  
(宿泊、食事及び懇親会費を含みます。参加費は当日受付にて集めさせていただきます。)
4. 定員：50 名 (申込先着順により、満員になり次第締め切らせて頂きます。)
5. 申込：「東海伝熱セミナー参加申し込み」と題記した用紙に、申込者氏名 (ふりがな)、所属、役職等、連絡先住所、電話および FAX 番号、E-mail アドレスをご記入の上、下記申込先まで郵送または FAX して下さい。E-mail による申込みも受け付けます。なお、参加申込後の取り消しはご遠慮下さい。

〒464-01 名古屋市千種区不老町 名古屋大学工学部機械工学教室  
廣田 真史 TEL: (052)789-2702 FAX: (052)789-2703  
E-mail: hirota@mech.nagoya-u.ac.jp

6. 申込締切：平成 8 年 7 月 31 日 (水)

7. 日程：

8 月 22 日 (木)

- 12:00～13:00 受付  
13:00～13:10 開会挨拶  
13:10～14:00 話題提供 1 自動車の空力性能の解析技術  
トヨタ自動車第 1 車両研究部熱流体 主担当員 伊藤 晋吾  
14:00～14:50 話題提供 2 自動車用熱交換器の開発の現状  
日本電装冷暖房技術 3 部 次長 大原 敏夫  
15:00～15:50 話題提供 3 製氷機開発とその周辺技術—伝熱を中心にして—  
ホシザキ電機鳥根・製氷機工場製氷機開発係 係長 三成 勝信  
15:50～17:00 特別講演 製品開発における伝熱工学の役割  
愛知工業大学機械工学科 教授 中原 崇文  
18:00～20:00 懇親会

8 月 23 日 (金)

- 9:00～9:55 話題提供 4 Gas Cleaning utilizing Non-thermal Discharge Plasma  
豊橋技術科学大学エコロジー工学系 教授 水野 彰  
9:55～10:50 話題提供 5 気液二相乱流に関する研究の現状と展望  
京都大学原子核工学専攻 助教授 片岡 勲  
11:00～11:55 話題提供 6 流体相変化の分子動力学  
名古屋大学応用物理学専攻 助教授 松本 充弘  
11:55～12:00 閉会挨拶

中国四国研究グループ企画  
第8回中四国伝熱セミナー

日本伝熱学会中国四国研究グループでは、標記のセミナー（一泊二日）を下記のように計画致しました。奮ってご参加下さいますようお願い申し上げます。

主催：日本伝熱学会中国四国研究グループ，中国四国熱科学・工学研究会

協賛：日本機械学会中国四国支部，中国地区化学工学懇話会

日時：平成8年8月29日（木）～30日（金），一泊二日

場所：KKR 広島（白鳥会館）

〒730 広島市中区東白鳥町 19-65 TEL：082-221-3736

参加費：一般 15,000 円，学生 7,000 円

（宿泊，食事，懇親会費を含みます。参加費は当日受付にて集めます。）

定員：70名

日程：

8月29日（木）セッションⅠ 数値熱流体の新しい潮流

1. 分子動力学法によるナノ細孔内吸着現象の解析  
吉岡朋久（広島大学）
2. ボルツマン方程式の確率解法と熱流動工学問題への適用  
村松壽晴（動力炉・核燃料開発事業団）
3. 電子機器の熱設計への流体解析技術の応用（節点法の応用）  
石塚 勝（東芝）
4. 数値解法CIP法の広がりとその応用分野  
矢部 孝（東京工業大学）

8月30日（金）セッションⅡ 夢のある原子力

1. 核エネルギー利用の展望  
菊地義弘（広島大学）
2. 沸騰水型原子力発電技術の現状  
米本 武（中国電力）
3. 高速増殖実証炉の熱流動課題  
山本一彦（日本原子力発電）
4. 核融合実験炉の実現を目指して-ITER計画の現状  
関 昌弘（日本原子力研究所）

申込期限：平成8年8月9日（金）

申込先：〒739 東広島市鏡山1-4-1

広島大学工学部第一類熱工学研究室内

第8回中四国伝熱セミナー準備委員会事務局

FAX：0824-22-7193（共通）

連絡先：

TEL：0824-24-7560（菊地） 又は TEL：0824-24-7561（鈴木）

E-mail：hero@mec.hiroshima-u.ac.jp

## 第17回日本熱物性シンポジウム開催案内

(第32回熱測定討論会との Joint Meeting)

- 開催期間：平成8年11月27日(水)～29日(金)
- 会場：通産省工業技術院筑波研究センター共用講堂，〒305 つくば市東1-1-4, Tel: 0298-52-4897
- 講演申込締切：平成8年6月28日(金)，論文原稿締切：平成8年9月13日(金)，  
予約参加申込締切：平成8年10月29日(火)
- 講演申込及び参加申込先：〒305 つくば市梅園1-1-4，計量研究所熱物性部低温計測研究室気付，  
第17回日本熱物性シンポジウム実行委員会  
(E-mail: netsujs@nrlm.go.jp, Fax: 0298-54-4039, Tel: 0298-54-4166)

### 研究発表の内容

熱または物質の移動現象，エネルギー変換と平衡状態を対象とする応用科学，工学または工業において必要な物性データの測定，推算，評価，収集，普及など，熱物性及びその関連領域を扱ったもの。具体的には，固体・液体・気体を問わず，あらゆる物質または材料の下記の Keywords を主とする物性データ，測定，測定法および測定機器，物性値の理論，推算，シミュレーション，データベース，評価，並びにこれらの周辺問題。

### 参加費(予約/当日)

正会員・共催学会員 4,000円/5,000円，協賛学会員 5,000円/6,000円，  
学生 2,500円/3,500円，非会員 6,000円/7,000円

### 講演論文集代金(予約/当日)

正会員・共催学会員 4,000円/5,000円，その他 5,000円/6,000円

## INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON HEAT TRANSFER ENHANCEMENT AND ENERGY CONSERVATION

開催日時 1997年6月16日-19日  
場 所 中国 広州市  
主 催 華南理工大学，China Energy Resources Institute

### International Scientific Committee

Chairman Ying-Ke Tan, South China University of Technology, China  
Co-Chairman R. F. Boehm, University of Nevada in Las Vegas, USA  
日本：藤井哲(東亜大)，土方邦夫(東工大)，本田博司(九大)

### 日 程

- ・1996年7月31日 アブストラクト締切(約500語、3部提出)
- ・1996年8月20日 アブストラクト受理通知
- ・1996年10月20日 論文締切
- ・1996年12月20日 論文受理通知

より詳しくは伝熱研究ホームページ <http://htsj.mes.titech.ac.jp/htsj.html> をご覧下さい。

### アブストラクトおよび論文送付先

〒816 春日市春日公園6-1  
九州大学 機能物質科学研究所 本田博司  
Tel: 092-583-7787 Fax: 092-583-7882 e-mail: hhonda@cm.kyushu-u.ac.jp

3rd INTERNATIONAL  
**THERMAL ENERGY CONGRESS**

Kitakyushu, July 28-August 1, 1997

Hosted by: International Scientific Committee

**Congress Chairmen**

*T. Ito Kyushu University, Fukuoka Japan E. Bilgen Ecole Polytechnique, Montreal Canada*

**Topics**

• Thermodynamics • Heat and Mass Transfer • Energy Conversion • Environment Protection • Energy Systems, Optimisation and Control • New and Renewable Energies • Energy Economics • Experimental Techniques

**Submission of Papers**

Three copies of papers, maximum 6 single-spaced A4 pages should be submitted to the Congress Secretary prior to December 1, 1996 for review. Notification of acceptance will be mailed by January 15, 1997. Author with paper accepted for presentation is requested to submit a manuscript on mat by February 28, 1997 for inclusion in the Congress Proceedings, which will be available at the Congress.

**Fees**

The registration fee of the Congress is 50,000 ¥. This covers a set of the Congress Proceedings, refreshments and receptions.

**For all Correspondence**

Ms H. Okabe

Congress Secretary/ 3rd ITEC

AINEC Co., Ltd.

2408 Hyatt Residential Suites Fukuoka 2

1-3-70 Momochihama, Sawaraku

Fukuoka, 814 Japan

TEL: 81-92-852-1575

FAX: 81-92-845-5135

e-mail: ainec@jms09.jeton.or.jp

(社) 日本機械学会 熱工学・流体工学・計算力学部門合同企画 講習会

**A Special Seminar: Present Status and Future Directions of Modeling  
Complex Turbulent Flow and Heat Transfer**

講 師 B. E. Launder (UMIST, Fellow of Royal Society)

S. Banerjee (UC Santa Barbara, Fellow of American Nuclear Society)

協 賛 日本伝熱学会ほか 14 学協会

協 力 東京大学工学部乱流工学ラボ

日 時 平成8年10月14日(月), 15日(火) 9:30~17:30

会 場 東京大学山上会館 大会議室(東京都文京区本郷7-3-1, 電話(03)3812-2111)

定 員 98名, 申込み先着順により定員になり次第, 締切ります。

聴講料 会員 25 000 円(協賛学会会員を含む, 学生員 10 000 円), 会員外 35 000 円(一般学生 15 000 円)。  
いずれも教材1冊分代金を含みます。

申込方法 申込者1名につき日本機械学会「行事」申込書(会誌2月号告112ページ, コピー可)1枚に必要事項を記入し, 代金を添えて日本機械学会までお申込みください。

問合せ先 東京大学大学院工学系研究科機械工学専攻 笠木 伸英

〒113 東京都文京区本郷7-3-1, 電話(03)3812-2111, Fax(03)5800-6999

インターネット <http://www.thtlab.t.u-tokyo.ac.jp/News/ted9647.html>

日本混相流学会混相流レクチャーシリーズ

「基礎から最前線まで」第16回

**「離散粒子シミュレーション入門 (パソコン実習付き)」**

(すぐに役立つ粒子運動の実践的解析)

インターネット <http://www-mupf.meim.eng.osaka-u.ac.jp/jsmf-lec.html>

日時：平成8年9月24日(火) 10時～17時

会場：大阪電気通信大学 寝屋川キャンパス情報処理教育センター第4演習室

〒572 大阪府寝屋川市初町18-8 (Tel. 0720-24-1131)

**演題・講師**

1. 「混相流における離散粒子シミュレーションの現状と展望」 辻 裕 (大阪大学)

2. 「離散粒子シミュレーションの基礎」 辻 裕 (大阪大学)

3. 「離散要素法の基礎」 田中敏嗣 (大阪大学)

4. 「離散要素法による粒子シミュレーションの実習」 川口寿裕 (大阪大学)

離散要素法についての解説の後、パソコン実習室ですべての受講者の方にプログラムを動かして粒子運動の数値解析技術を習得して戴きます。受講者全員に簡単な離散要素法による粒子運動解析プログラムを配布いたします。

**参加費** 会員 (協賛学協会会員を含む) 20,000円, 非会員 30,000円, 学生・院生 5,000円  
(プログラムフロッピーとテキスト代含む)

**申込先** 〒554 大阪市此花区春日出中2-14-9 (株) 学術出版印刷内

日本混相流学会企画運営委員会 (Tel. 06-466-1588 Fax. 06-463-2522)

E-mail: [lecture@sernews1.nucleng.kyoto-u.ac.jp](mailto:lecture@sernews1.nucleng.kyoto-u.ac.jp))

**申し込み締切** 9月17日(火)

**問合せ先** 〒606-01京都市左京区吉田本町 京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻

片岡 勲 (Tel. 075-753-5823 Fax. 075-753-5845)

E-mail: [karaoka@sernews1.nucleng.kyoto-u.ac.jp](mailto:karaoka@sernews1.nucleng.kyoto-u.ac.jp))

### 第34回燃焼シンポジウム

主 催	日本燃焼学会
共 催	日本学術会議熱工学研究連絡委員会, 日本伝熱学会 ほか
開 催 日	平成8年11月27日(水)～29日(金)
会 場	広島国際会議場 (平和記念公園内)
講演申込締切日	平成8年 7月12日(金)
講演原稿提出締切日	平成8年 9月20日(金)
参加事前申込締切日	平成8年10月25日(金)

講演申込み方法や原稿の提出先、シンポジウム参加申込み方法等の詳細については、下記シンポジウム事務局へお問い合わせ下さい。

第34回燃焼シンポジウム事務局  
〒739 東広島市鏡山1-4-1  
広島大学工学部第一類内  
電話：0824-24-7563 (広安), 7558 (滝)  
FAX：0824-22-7193



## CALL FOR PAPERS

**ELEVENTH SYMPOSIUM ON TURBULENT SHEAR FLOWS**

Institut National Polytechnique

Université Joseph Fourier

Grenoble, France

September 8-11, 1997

The Eleventh Symposium on Turbulent Shear Flows aims to advance understanding of the physics of turbulent motion and capabilities for predicting momentum, heat and mass transport processes in turbulent shear flows.

Approximately 30 technical sessions are planned. Contributed papers are invited on original work in the following general areas:

- Fundamentals:* Measurements, numerical simulations, theories and concepts that illuminate the nature of turbulence.  
*Turbulence Models:* Developments in single and two-point closures; large-eddy and other numerical models.  
*Experimental Techniques:* Improved experimental methods for single and multi-phase turbulent flows.  
*Computation Techniques:* Advances in computation methods for single and multi-phase turbulent flows.  
*Heat and Mass Transfer:* Developments in scalar modeling; related measurements and computations.  
*Chemical Reactions:* Developments in modeling of turbulent flames and other reacting flows; related experiments and computations.  
*Geophysical Flows:* Modeling, computation and measurement in the natural environment.  
*Applications:* Contributions to applied turbulent flows, including those concerned with internal and external aerodynamics, climate control in buildings, automobiles, electronic-packaging, gas turbines and internal combustion engines, chemical and metallurgical processes, nuclear and wind engineering.

**Abstracts**

Paper selection will be based upon a review of **extended abstracts of no more than 1000 words** which should be double-spaced and state clearly the purpose, results and conclusions of the work with supporting figures as appropriate. Five copies of the abstract should be mailed (**ABSTRACTS SENT BY FAX WILL NOT BE ACCEPTED**) to:

Professor F. M. Schmidt  
 Secretary, Turbulent Shear Flows  
 Department of Mechanical Engineering  
 The Pennsylvania State University  
 University Park, PA 16802 USA  
 814-865-2072; FAX 814-863-4848

**Deadlines**

Final date for receipt of abstracts: November 15, 1996  
 Authors informed concerning acceptance: March 15, 1997  
 Final date for receipt of camera-ready manuscript: May 15, 1997

**11TH SYMPOSIUM PAPERS COMMITTEE:**

**M. Lesieur, Chairman**  
 Laboratoire des Ecoulements  
 Géophysiques et Industriels  
 Institut Universitaire de France  
 B.P. 53  
 38 041 Grenoble cedex 9, France  
 33-76 82 50 19  
 FAX 33-76 82 52 71

**G. Binder**  
 Laboratoire des Ecoulements  
 Géophysiques et Industriels  
 Centre National de la Recherche  
 Scientifique  
 B.P. 53  
 38 041 Grenoble cedex 9, France  
 33-76 82 50 45  
 FAX 33-76 82 52 71

**B. E. Launder**  
 Department of Mechanical  
 Engineering  
 UMIST  
 Manchester, M60 1QD, UK  
 44-161-200-3701  
 FAX 44-161-200-3723

**J. H. Whitelaw**  
 Department of Mechanical  
 Engineering  
 Imperial College  
 London, SW7 2BX, UK  
 44-171-594-7028  
 FAX 44-171-589-3905

**ADVISORY COMMITTEE:**

R. J. Adrian, USA  
 H. Andersson, Norway  
 F. Anselmet, France  
 R. A. Antonia, Australia  
 B. Aupoix, France  
 G. Bergeles, Greece  
 J. P. Bertoglio, France  
 R. W. Bilger, Australia  
 J. P. Bonnet, France  
 J. G. Brasseur, USA  
 S. Candel, France  
 I. P. Castro, UK  
 J. M. Chomaz, France  
 M. P. Escudier, UK

J. F. Foss, USA  
 R. Friedrich, Germany  
 T. Gatski, USA  
 W. K. George, USA  
 S. E. Gutmark, USA  
 H. Ha Minh, France  
 K. Hanjalic, USA  
 T. J. Hanratty, USA  
 M. Heitor, Portugal  
 K. Hishida, Japan  
 J.A.C. Humphrey, USA  
 F. Hussain, USA  
 A. Johansson, UK  
 J. Jovanovich, Germany

N. Kasagi, Japan  
 J. Kim, USA  
 T. Kobayashi, Japan  
 S. Komori, Japan  
 D. Laurence, France  
 M. A. Leschziner, UK  
 J. Magnaudet, France  
 O. Metais, France  
 Y. Nagano, Japan  
 F. Nieuwstadt, Germany  
 W. Nitsche, Germany  
 M. Oberlack, Germany  
 W. C. Reynolds, USA  
 W. Rodi, Germany

G.-X. Shen, Beijing, China  
 R. L. Simpson, USA  
 A. J. Smits, USA  
 R. M. C. So, Hong Kong  
 M. Sokolov, Israel  
 M. Sommerfeld, Germany  
 J. Sommeria, France  
 C. G. Speziale, USA  
 H. J. Sung, South Korea  
 K. Suzuki, Japan  
 A. M. K. P. Taylor, UK  
 M. Wolfshtein, Israel  
 J. Wyngaard, USA

**LOCAL ARRANGEMENTS COMMITTEE: G. Binder, Chairman**

日本伝熱学会編

# 『環境と省エネルギーのためのエネルギー新技術大系』 発刊のお知らせ

◆発刊日／平成8年8月30日予定 ◆予定価格：58,500円（税別）／会員価格：40,000円（税別）  
◆体裁／B5版上製約900頁 ◆発行／(株)エヌ・ティー・エス

◆監 修／黒崎 晏夫

◆編集幹事／土方 邦夫

◆編集委員（五十音順）

大竹 一友／曾田 正浩／二階 勲／西尾 茂文／福迫 尚一郎  
水野 彰／横山 宏／渡辺 健次

## ◆目次◆

### 第1編 基礎編

第1章／環境調和型熱エネルギー技術の基礎

第2章／環境調和型熱エネルギー変換

第3章／高効率エネルギー移動・制御

第4章／エネルギー貯蔵

### 第2編 機器・技術編

第1章／省エネルギー・環境調和の基礎

第2章／環境調和型エネルギー変換

第3章／高効率エネルギー移動・制御

第4章／貯蔵

### 第3編 実例応用編

第1章／プラント施設

第2章／発電施設

第3章／地域熱供給施設

第4章／エネルギー貯蔵施設

第5章／建築エネルギーシステム

第6章／新しい動き

## ◆出版の主旨◆

■これまで熱工学は、熱効率の向上とエネルギーの有効利用を主な目標と考え、その成果が省エネルギーに大きく貢献してきた。しかし、今日の環境問題においては、短期的・局地的視野での経済効果では問題が解決できない。したがって熱工学の役割は従来のように効率向上のみでは許されず、長期的・地球的視野から環境問題を捉えた新しい技術の構築が重要な課題となっている。

このような状況下で、これまでに築いてきた省エネルギー技術を基盤として環境問題を考えに入れた伝熱技術を集大成した本書を出版することは、社団法人として新しい歩みを始めた日本伝熱学会の次の世代に対して果たすべき役目であると考えている。

本書は、一般書店、生協では取り扱っておりませんので、ご購入・お問い合わせについては直接下記の出版社にご連絡ください。なお、1カ月間無料の試読もできるとのことです。学会の会員は割引価格の対象となりますので、お申し込みにあたっては必ず日本伝熱学会の会員である旨をお告げください。また、売り上げの一部は印税として学会の収入になりますので、この点からもよろしくご協力のほどお願いいたします。

## ◆問い合わせ・申込先◆

〒113 東京都文京区湯島2-16-16 (株)エヌ・ティー・エス 営業部

TEL 03-3814-3511 FAX 03-3812-7737

30

# 「伝熱研究」原稿の書き方

伝熱 太郎 (伝熱大学)

(1行)  
(2行)  
(3行)  
(4行)  
(5行)  
(6行)  
(7行)  
(8行)  
42 mm

## 1. 「伝熱研究」用原稿の標準形式

用紙サイズ：A4 縦長 (210mm×297mm), 横書き  
 余白サイズ：上余白 30 mm, ト余白 30 mm  
 左余白 20 mm, 右余白 20 mm  
 コ ラ ム：2 段組とします。  
 1 コラム長 80 mm, コラム間隔 10 mm  
 活字サイズ：10 ポイント (10×0.3514=3.514 mm) の  
 全角文字を標準とします。英文字・  
 数字には半角文字が好ましい。  
 1 行の字数：1 段あたり23文字程度  
 行 送 り：15ポイント (15×0.3514=5.271 mm)  
 1 頁あたり45行となります。

15 ポイント行間  
 15 ポイント行間

題目の部分は、編集委員会で作成いたしますので、8行の空白 (=42 mm) を用意しておいてください。また、表題・氏名・所属の和文および英文は別紙にご用意下さい。なお、2 頁目以降は、最初の行から 2 段組で本文をお書きください。

## 2. 「伝熱研究」用原稿作成上の注意

- (1) 印刷は原稿からそのままオフセット印刷で行いますので、この点を考慮の上、写真・図表等には特に注意して鮮明なものをご使用ください。
- (2) 原稿枚数は原則として最大10枚 (図表込み) を越えないでください。
- (3) 原稿は出力フォーマットに従って作成の上編集委員会までご送付ください。
- (4) 図表は、原稿内に直接張り込んでください。
- (5) 原稿の頁数は各頁の上すみに青鉛筆で薄く1/8, 2/8のように記入してください。
- (6) 本手引きの各種寸法及び文字数等は、お手持ちのワープロの機能によっては、必ずしもこれらを満足できないかもしれません。このような場合には適宜これにできるだけ近くなるように、原稿をおつくりくださいますようお願い申し上げます。
- (7) 本文の体裁・項目の分け方などは、自由にお書きください。

22.5 ポイント行間あるいは半行を挿入  
 22.5 ポイント行間あるいは半行を挿入

### その他の事項

・可能ならば、字体に関しては、本文には明朝体を使用し、見出しにはゴシック体を使用してください。

20

20

30

## 「伝熱研究」会告の書き方

印刷は原稿からそのままオフセット印刷を行いますので、鮮明な原稿にして下さい。大きさは、この外枠に入るように縦 115 mm 以内横 170 mm 以内に収まるようにして下さい。この範囲に入らないものは、「伝熱研究」原稿の書き方に従って下さい。

170 mm

115 mm

## 事務局からの連絡

### 1. 学会案内と入会手続きについて

#### 【目的】

本会は、伝熱に関する学理技術の進展と知識の普及、会員相互及び国際的な交流を図ることを目的としています。

#### 【会計年度】

会計年度は、毎年4月1日に始まり翌年3月31日までです。(但し、「伝熱研究」の巻と表紙の色は1月号から10月号までの一年間同じです)

#### 【会員の種別と会費】

会員種別	資格	会費(年額)
正会員	伝熱に関する学識経験を有する者で、本会の目的に賛同して入会した個人	8,000円
賛助会員	本会の目的に賛同し、本会の事業を援助する法人またはその事業所、あるいは個人	1口 30,000円
学生会員	高専、短大、大学の学部および大学院に在学中の学生で、本会の目的に賛同して入会した個人	4,000円
名誉会員	本会に特に功労のあった者で、総会において推薦された者	0円
推薦会員	本会の発展に寄与することが期待できる者で、当該年度の総会において推薦された者	0円

#### 【会員の特典】

会員は本会の活動に参加でき、次の特典があります。

- 「伝熱研究、THERMAL SCIENCE AND ENGINEERING」を郵送します。  
(本年度発行予定：4月号、7月号、10月号、1月号)  
・正会員、学生会員、名誉会員、推薦会員に1冊送付  
・賛助会員に口数分の冊数送付
- 「日本伝熱シンポジウム講演論文集」を無料でさしあげます。  
・正・学生・名誉・推薦の各会員に1部、賛助会員に口数分の部数  
(但し、伝熱シンポジウム開催の前年度の3月25日までに前年度分までの会費を納入した会員に限る)

#### 【入会手続き】

正会員または学生会員への入会の際は、入会申込用紙にご記入の上、事務局宛にファックスまたは郵送で送り、郵便振替にて当該年度会費をお支払い下さい。賛助会員への入会の際は、入会申込用紙にご記入の上、事務局宛にファックスまたは郵送でお送り下さい。必要があれば本会の内容、会則、入会手続き等についてご説明します。賛助会員への申込みは何口でも可能です。

#### (注 意)

- ・申込用紙には氏名を明瞭に記入し、難読文字にはJISコードのご指示をお願いします。
- ・会費納入時の郵便振替用紙には、会員名(必要に応じてフリガナを付す)を必ず記入して下さい。会社名のみ記載の場合、入金の手続きができず、会費未納のままとなります。
- ・学生会員への入会申込においては、指導教官による在学証明(署名・捺印)が必要です。

### 2. 会員の方々へ

#### 【会員増加と賛助会員口数増加のお願い】

個人会員と賛助会員の増加が検討されています。会員の皆様におかれましても、できる限り周囲の関連の方々や団体に入会をお誘い下さるようお願いいたします。また、賛助会員への入会申込み受付におきまして、A(3口)、B(2口)、C(1口)と分けております。現賛助会員におかれましても、できる限り口数の増加をお願いいたします。

#### 【会費納入について】

会費は当該年度内に納入してください。請求書はお申し出のない限り特に発行しません。会費納入状況は事務局にお問い合わせ下さい。会費納入には折込みの郵便振替用紙をご利用下さい。その他の送金方法で手数料が必要な場合には、送金額から減額します。フリガナ名の検索によって入金の手続き処理を行っておりますので会社名のみで会員名の記載がない場合には未納扱いになります。

#### 【変更届について】

##### (勤務先、住所、通信先等の変更)

勤務先、住所、通信先等に変更が生じた場合には、巻末の「変更届用紙」にて速やかに事務局へお知らせ下さい。通信先の変更届がない場合には、郵送物が会員に確実に届かず、あるいは宛名不明により以降の郵送が継続できなくなります。また、再発送が可能な場合にもその費用をご負担頂くこととなります。

##### (賛助会員の代表者変更)

賛助会員の場合には、必要に応じて代表者を変更できます。

##### (学生会員から正会員への変更)

学生会員が社会人になられた場合には、会費が変わりますので正会員(正会員)への変更届を速やかにご提出下さい。このことにつきましては、指導教官の方々からもご指導をお願いします。

##### (変更届提出上の注意)

会員データを変更する際の誤りを防ぐため、変更届は必ず書面にて会員自身もしくは代理と認められる方がご提出下さるようお願いいたします。

#### 【退会届について】

退会を希望される方は、退会日付けを記した書面にて退会届(郵便振替用紙に記載可)を提出し、未納会費を納入して下さい。会員登録を抹消します。

#### 【会費を長期滞納されている方へ】

長期間、会費を滞納されている会員の方々には、至急納入をお願いします。特に、平成6年度以降の会費未納の方には「伝熱研究・THERMAL SCIENCE AND ENGINEERING」の送付を停止しており、近く退会処分が理事会で決定されます。

### 3. 事務局について

次の業務を下記の事務局で行っております。

#### 事務局

##### (業務内容)

- 入会届、変更届、退会届の受付
- 会費納入の受付、会費徴収等
- 会員、非会員からの問い合わせに対する対応、連絡等
- 伝熱シンポジウム終了後の「講演論文集」の注文受付、新入会員への「伝熱研究・THERMAL SCIENCE AND ENGINEERING」発送、その他刊行物の発送
- その他必要な業務

##### (所在地)

〒113 東京都文京区湯島2-16-16

社団法人日本伝熱学会

TEL/FAX: 03-5689-3401

(土日、祝祭日を除く、午前9時～午後5時)

##### (注 意)

- 事務局への連絡、お問い合わせには、電話によらずできるだけ郵便振替用紙の通信覧やファックス等の書面にてお願いします。
- 学会事務の統括と上記以外の事務は、下記にて行なっております。

〒152 東京都目黒区大岡山2-12-1 東京工業大学 工学部  
機械科学科 斎藤彬夫  
TEL:03-5734-2167, 3308 FAX:03-5734-2167, 2893



日本伝熱学会正会員・学生会員入会申込み・変更届用紙

- (右の該当に○を記入) 1. 正会員・学生会員入会申込書  
 2. 変更届 (書面による届出のみ受付)  
 (注意) ・楷書体で明瞭に記入  
 ・氏名にふりがなを付す  
 ・通信文は余白に記入  
 ・申込み時に郵便振替にて会費納入

0	申込年月日	1	9	9	年	月	日
1	会員資格	正・学					
2	氏名						
3	ふりがな						
4	生年月日	1	9	年	月	日	
5	名称						
6	〒	-					
7	勤務先						
8	所在地						
9	TEL						
10	FAX						
11	〒	-					
12	自宅						
13	住所						
14	TEL						
15	TEL						
16	通信先**	勤務先・自宅					
17	学位						
18	最終出身校						
19	卒業年次	T・S・H					
20	専門分野	← (下記の専門分野の番号)					
21	学生会員の場合: 指導教官名***	印					

- 専門分野  
 1: 自然対流 2: 強制対流 3: 熱伝導 4: 凝結 5: 沸騰・蒸発 6: 混相流  
 7: 物質移動 8: 反応・燃焼 9: 放射 10: 熱物性 11: 熱交換器 12: 流動層  
 13: 蓄熱 14: 冷凍・空調 15: 内燃機関 16: ガソリン 17: 蒸気機関 18: 原子力  
 19: 太陽熱 20: 環境 21: その他 ( )  
 例: 電子機器の冷却、生体伝熱、分子動力学等  
 \*) 学生会員入会申込者は学校名、学部、学科、研究室名、学年 (M2, D3など) を記す。  
 \*\*) 郵送物発送先として通信先を必ず記入する。  
 \*\*\*) 学生会員入会申込者は、指導教官の署名・捺印を受ける。

日本伝熱学会 賛助会員新規入会申込み届用紙

0	申込年月日	1	9	9	年	月	日
---	-------	---	---	---	---	---	---

※ご記入に際しての注意  
 日本伝熱学会からの郵送物は代表者にお送りしておりますので、代表者の所属に変更がありましたら、書面にて事務局宛ご連絡下さるようお願いいたします。

1	会員資格	賛助会員					
2	代表者氏名						
3	ふりがな						
4	名称 (所属)						
5	代表者	-					
6	〒	-					
7	所在地						
8	勤務先						
9	TEL						
10	FAX						
11	口数	口					

日本伝熱学会入会のご案内

- 本学会の会計年度は毎年4月1日から翌年3月末日までです。
- 賛助会員の会費は1口30,000円/年で、申し込みは何口でも結構です。申し込み口数により、次のように分けております。  
 A (3口)、B (2口)、C (1口)
- 会員になりますと「伝熱研究」をお申し込み口数1口につき1部お送りします。「日本伝熱シンポジウム講演論文集」等をお申し込み口数1口につき1部無料でさしあげます。  
 この伝熱研究は通常、年4回(4、7、10、1月号)発行しております。  
 但し、日本伝熱シンポジウム講演論文集につきましては、前年度の会費を年度末までに完納された会員に限り当該年度のものを無料ですしあげます。  
 尚、年度途中でご入会の方には残部の都合でお送りできない場合がありますので、あらかじめご承知おき下さい。
- 本学会では、事務作業簡素化のために会費の領収書の発行は郵便振替や銀行振込の控えをあてています。簡単な書式の領収書をご用意できますが、それ以外の場合には貴社ご指定の書式をご送付下さいますようお願いいたします。  
 申込書送付先: 〒113 東京都文京区番島 2-16-16  
 社団法人日本伝熱学会事務局 TEL, FAX: 03-5689-3401  
 会費の払込先:  
 (1) 郵便振替の場合 - 郵便振替口座 00160-4-14749 社団法人日本伝熱学会  
 (2) 銀行振込の場合 - 第一勧業銀行 大塚山支店 普通預金口座 145-1517941  
 社団法人日本伝熱学会  
 (3) 現金書留の場合 - 上記の事務局宛に御送金下さい。

### 複写をされる方に

本誌に掲載された著作物を複写したい方は、著作権者から複写権の委託を受けている次の団体から許諾を受けて下さい。

学協会著作権協議会内日本複写権センター支部  
〒107 東京都港区赤坂 9-6-42-704  
Phone 03-3475-4621/5618  
Fax 03-3403-1738

#### Notice about photocopying

In the U.S.A., authorization to photocopy items for internal or personal use, or the internal or personal use of specific clients, is granted by [copyright owner's name], provided that designated fees are paid directly to Copyright Clearance Center. For those organizations that have been granted a photocopy license by CCC a separate system of payment has been arranged.

Copyright Clearance Center 27, Congress St.  
Salem, MA 01970  
Phone (508)744-3350  
Fax (508)741-2318

**伝 熱 研 究**

ISSN 0910-7851

(Journal of The Heat Transfer Society of Japan)

Vol.35, No.138

1996年7月発行

THERMAL SCIENCE AND ENGINEERING

ISSN 0918-9963

Vol.4, No.3

July, 1996

発行所 **社団法人 日 本 伝 熱 学 会**

〒113 東京都文京区湯島2-16-16

電話 03(5689)3401

Fax. 03(5689)3401

郵便振替 00160-4-14749

Published by

The Heat Transfer Society of Japan

16-16, Yushima 2-chome, Bunkyo-ku,

Tokyo-113, Japan

Phone, Fax: +81-3-5689-3401



# 伝熱研究 VOL. 35, NO. 138

会長就任にあたって	越後亮三 (東京工業大学工学部, (併) 京都大学大学院エネルギー科学研究科) .....	1
会長退任にあたって	相原利雄 (東北大学流体科学研究所) .....	3
<b>〈顕彰〉</b>		
名誉会員の顕彰	副会長 斎藤彬夫 (東京工業大学) .....	4
<b>〈第8回日本伝熱学会賞〉</b>		
第8回日本伝熱学会賞の報告	第34期日本伝熱学会賞表彰選考委員会主査 林勇二郎 (金沢大学) .....	5
第8回日本伝熱学会学術賞を受賞して	伊藤 猛宏, 久保田裕巳 (九州大学) .....	7
日本伝熱学会学術賞を受賞して	土方邦夫 (東京工業大学) .....	9
第8回日本伝熱学会技術賞を受賞して	小澤由行, 谷野正幸, 守屋充, 関義輝 (高砂熱学工業株式会社), 成田勝彦 (東京電力株式会社) .....	11
<b>〈随想〉</b>		
近代史から見た原子力オプション	杉山憲一郎 (北海道大学) .....	13
<b>〈第33回日本伝熱シンポジウム〉</b>		
第33回日本伝熱シンポジウムを振り返って	準備委員長 前川博, 準備委員 小林睦夫 (新潟大学) .....	16
<b>〈小特集：多成分系の伝熱〉</b>		
小特集「多成分系の伝熱」にあたって	第34期編集委員会 青木和夫 (長岡技術科学大学), 長坂雄次 (慶應義塾大学) .....	17
合金の凝固	鈴木俊夫 (東京大学大学院工学研究科金属工学専攻) .....	18
多成分系の熱物性 — 流体の輸送性質を中心に —	長坂雄次 (慶應義塾大学理工学部) .....	26
混合液体の沸騰熱伝達	吉田駿, 森英夫 (九州大学工学部機械エネルギー工学科) .....	34
多成分系の拡散	荻野文丸 (京都大学大学院工学研究科化学工学専攻) .....	41
多成分系の凝固	林勇二郎 (金沢大学) .....	46
多成分系の相平衡	石崎幸三 (長岡技術科学大学) .....	54
多成分系の昇華	青木和夫 (長岡技術科学大学) .....	59
多成分混合冷媒の凝縮伝熱	小山繁 (九州大学機能物質科学研究所) .....	65
<b>〈研究トピックス〉</b>		
先端半導体プロセスの数値解析	ウルスラ・ブッケル (三洋電機メカトロニクス研究所) .....	73
ニューラルネットによる乗員温感予測技術と空調制御への応用	上田松栄, 谷口洋介 (柳豊田中央研究所) .....	74
<b>〈賛助会員紹介〉</b>		
賛助会員紹介 (株)日立製作所機械研究所	伊藤正昭 (日立・機械研) .....	75
<b>〈故青木成文先生を偲んで〉</b>		
青木成文先生を偲んで	越後亮三 (東京工業大学工学部機械科学科), 有富正憲 (東京工業大学原子炉工学研究所) .....	79
青木成文先生の思い出	井上晃 (東京工業大学) .....	81

## THERMAL SCIENCE AND ENGINEERING Vol.4, No.3

1. Numerical Analysis for Thermal Waves in Gas Generated by Impulsive Heating of a Boundary Surface (in Japanese)	1
Utsumi T. & Kunugi T.	
2. Molecular Dynamics Study on Thermal Expansion of Solid (in Japanese)	9
Ichimura S. & Iwaki T.	
3. Numerical Analyses of Buoyancy-Driven Flow with Properties that Depend on the Local Temperature (in Japanese)	17
Sakamoto Y., Kunugi T. & Ichimiya K.	
4. Laser Spectroscopic Diagnostics of Laser-Ablation Processes Used for Thin Film Deposition	27
Okada T., Nakata Y., Soumagne G., Kaibara H. & Maeda M.	
5. Effect of condensation on shock wave propagation and reflection at wedge surface in the low-temperature R-134a vapor (in Japanese)	35
Maeno K., Nozawa H., Nishimori Y. & Kamiya T.	