

液体水素のプール沸騰特性とその促進について

Pool Boiling Characteristics of Liquid Hydrogen and Its Enhancement

◎小野 貴良¹ (静大院), 吹場 活佳¹ (静大院), 小林 弘明² (JAXA), 川島 紘毅¹ (静大院) 足立 大季³ (静大)

◎Takara ONO¹, Katsuyoshi FUKIBA¹, Hiroaki KOBAYASHI², Hiroki KAWASHIMA¹, Hiroki Adati³

¹Department of Mechanical Engineering, Graduate School of Engineering, Shizuoka University

²Japan Aerospace Exploration Agency

³Department of Mechanical Engineering, Shizuoka University

NOMENCLATURE

c	: Specific heat	[J/kg°C]
q	: Heat flux	[W/m ²]
T	: Temperature of test pipe	[°C]
t	: Time	[s]
t_c	: Chillover time	[s]
Δt	: Sampling period	[s]

Subscripts

V : 蒸気
 L : 液体

1. 序論

1.1 液体ロケットエンジンの予冷

液体燃料ロケットでは、液体酸素や液体水素が燃料として用いられる。それら極低温燃料が配管システムに導入される際、極低温燃料と常温である配管の間の大きな温度差により、燃料の急激な蒸発・沸騰が生じる。これは管予冷と呼ばれ、極低温燃料を流す際に不可避な現象である。管予冷を効率的に行うには、極低温流体の熱伝達特性の理解が必要であるが、極低温流体の沸騰実験が不足しているのが現状である。液体水素は非常に高価であり、また現在管予冷及び液体水素の充填には何時間もかかるため、管予冷時間の短縮を達成することができれば、コストの削減だけでなく、天候の急変などの不測の事態への柔軟な対応が可能となる。

1.2 低熱伝導性樹脂による伝熱促進

これまで表面性状を変化させることで熱伝達特性を改善する試みが行われてきた。例として物体表面に低熱伝導性樹脂を付加することで急冷を促進する方法が挙げ

られる。西尾ら^[1]は、銅製の伝熱表面にポリテトラフルオロエチレン (以後、PTFE と表記) 層を付加することにより、急冷が促進されることを報告している。この現象は一見 PTFE の低熱伝導性により、熱の移動が阻害されて冷却時間が長くなると思われるが、逆に冷却時間が短縮されることから「断熱層のパラドクス」と呼ばれる。

Fig. 1 に表面に低熱伝導性樹脂を付加した場合としない場合 (それぞれ(a)および(b)) の温度分布を示す。伝熱面に断熱層を設けた場合、断熱層の熱伝導率の低さにより、断熱層内部に大きな温度勾配が生じる。その結果、断熱層を付加した場合は付加していない場合と比較して表面温度 (Fig. 1 中の赤丸で囲んだ点の温度) が冷媒温度に近づき、被冷却物である金属温度より低温に保温される。後述するが、沸騰様式及び熱流束は伝熱面過熱度に依存している。熱流束が大きく効率的な熱交換が可能である核沸騰は伝熱面過熱度が小さい領域で起こる現象である。そのため、伝熱面に断熱層を設け、表面温度を低温に保温し伝熱面過熱度を小さくすることで早期に膜沸騰から核沸騰への遷移が引き起こされ、高効率な熱交換が可能となる。その結果、被冷却物が飽和温度に至る時間が短縮される。これが断熱層のパラドクスのメカニズムである。

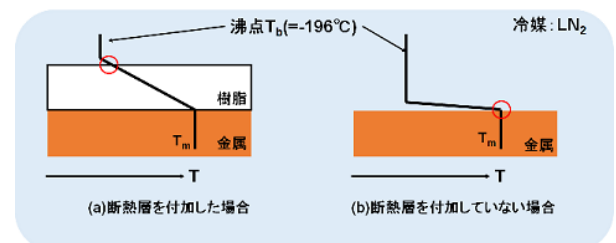


Fig. 1 Comparison in surface temperature

1.3 実験目的

伝熱促進を目的とした実験はこれまで数多く行われて

きたが、その冷媒の多くは水及び液体窒素であり、液体水素を用いた先行研究は極めて少ない。白井ら⁴は冷媒として液体水素を用いた冷却実験を行っているものの、その実験温度域は過熱度 100 K 程度であり、高温域についての実験は行われていない。これらの背景から、冷媒として液体水素を用いた沸騰伝熱実験の先行研究及び知見が不足していると言わざるを得ない。そこで本研究では液体水素の伝熱特性の取得及び改善を目的として、液体水素プール沸騰実験を行った。

2 実験系及び実験条件

今回用いた実験装置の概観を Fig. 2 に示す。今回冷媒として液体水素（沸点-253℃）、液体窒素（沸点-196℃）を用いた。被冷却物としては銅板（縦横ともに 50 mm、厚さ 10mm）を用いた。銅板側面にはシリコンダイオード温度センサ、ステンレス製容器外壁には T 型熱電対が取り付けられている。Fig. 2 の実験装置を冷媒で満たした容器の中に沈め、プール沸騰冷却実験を行った。そしてその時の銅板および容器の温度変化の様子をそれぞれの温度センサで収録した。容器外壁に熱電対を取り付けたのは容器が銅板よりも速く冷却されていることを確認するためである。本研究の実験系を Fig. 3 に示す。再現性確認のために複数回実験を行い、サンプリング周期は 0.1 s で収録した。

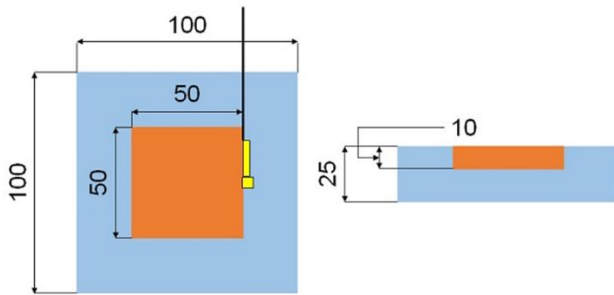


Fig. 2 Overview of experimental equipment

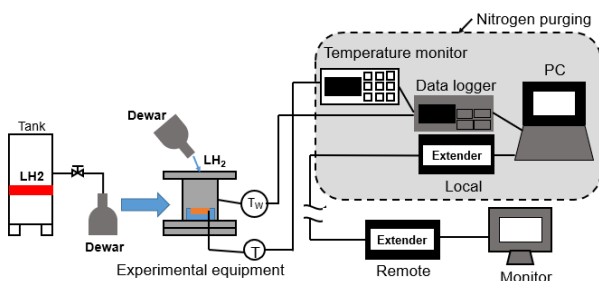


Fig. 3 Schematic diagram of experimental apparatus

3. 実験結果

3.1 LN2 及び LH2 の伝熱特性

まず、LN2 の実験結果を用いて本冷却実験の温度変化及び沸騰曲線について説明する。Fig. 4 に LN2 実験における銅板の温度変化を示す。横軸は時間、縦軸は温度センサで収録した銅板の温度である。今回の実験では LH2 実験と条件をそろえるために銅板の温度が-100℃を下回った時点をと 0 s とした。Fig. 4 を見ると、約-170℃までは温度降下が緩やかであるが、-170℃を超えるさらに冷却が進むと急激な温度降下が起こり、その後飽和温度に至ることが分かる。これは、冷却してからある温度（Fig. 4 の場合は約-170℃）に至るまでは膜沸騰が起こり、その後膜沸騰から核沸騰へ遷移するためである。膜沸騰域では、Fig. 5(a)のように銅板と LN₂ の間に蒸気膜が存在するため伝熱が阻害され、熱流束は小さくなる。一方核沸騰域では、Fig. 5(b)のように銅板表面から気泡が成長・離脱を繰り返す沸騰様式であり、気泡が離脱した場所に冷水が流れ込むために膜沸騰と比較して熱流束が大きくなる。

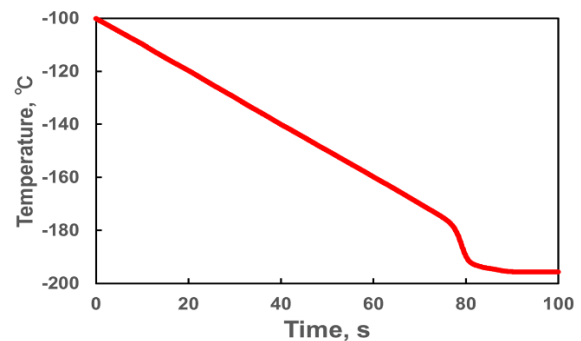


Fig. 4 Temperature change of copper plate (LN2)

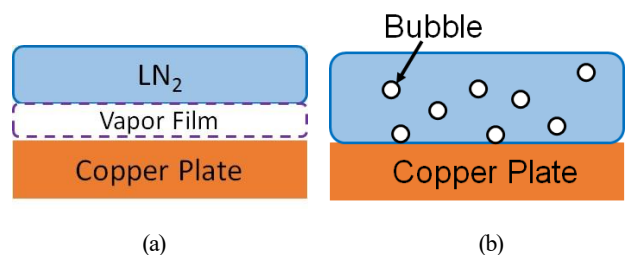


Fig. 5 Boiling style (a) Film boiling (b) Nucleate boiling

次に沸騰曲線の算出方法について説明する。沸騰曲線は横軸が銅板温度と飽和温度の差である過熱度、縦軸が熱流束のグラフであり、熱流束は次の式(1)で求められる。

$$q = -\frac{mc}{A} \frac{dT}{dt} \quad (1)$$

本研究は冷却実験であり、放熱を正の値で表すためにマ

イナスが付いている点には注意する。また本研究では式(1)中の温度微分を、次の式(2)のように前後一点の温度データを用いた中心差分で算出する。

$$\frac{dT}{dt} = \frac{T_{n+1} - T_{n-1}}{2\Delta t} \quad (2)$$

以上の処理を行い、Fig. 4 のデータから算出した沸騰曲線が次の Fig. 6 である。本研究は冷却実験であるため、時間軸は Fig. 6 の右から左に進行することに留意する。Fig. 6 から、膜沸騰域では温度の低下とともに熱流束が減少していき、ある温度で極小値をとることが分かる。この極小値をとる点は極小熱流束点 (MHF 点) と呼ばれる。MHF 点を超えると、膜沸騰から核沸騰への遷移が起こり、熱流束はある温度で極大値をとる。この極大値をとる点を限界熱流束点 (CHF 点) と呼ぶ。CHF 点を超えると核沸騰域となり、再び温度の減少とともに熱流束は減少していき、飽和温度に至る。また、先述したように、膜沸騰域と比較して核沸騰域の熱流束が大きくなっていることが分かる。したがって今回の研究目的である予冷時間削減の観点で考えると、この核沸騰をより高温域で引き起こすことが重要である。

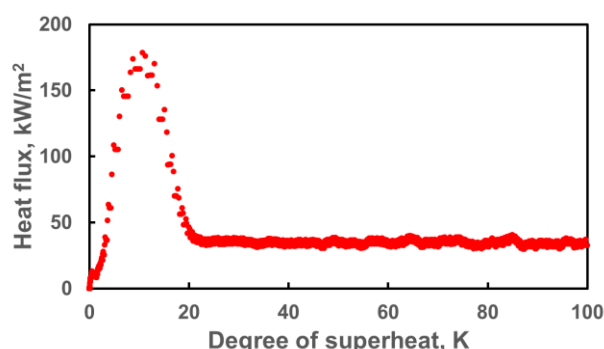


Fig. 6 Boiling curve (LN2)

ここで、冷却時間の定義について述べる。本研究では、冷却時間を単位時間当たりの温度減少が 0.1 °C 以下になるまでの時間、すなわち式(2)の中心差分で求めた値が 0.1 °C/s 以上になるまでの時間を冷却時間として定義した。その結果、銅板単体の場合の冷却時間は 83.7 s と求めた。

次に、LH2 実験と LN2 実験の温度変化及び沸騰曲線の比較を行う。Fig. 7 は両沸騰実験の温度変化を示したものである。液体水素実験では収録機器の乱れによるデータの欠如が存在するため、複数回の実験結果から求めた近似曲線で補完を行った。Fig. 7 より、膜沸騰域における温度降下を比較すると液体水素実験のほうが大きいこと、

また、LH2 実験のほうが LN2 実験と比較して冷却時間に占める膜沸騰域の割合が大きいことが分かる。それぞれの冷却時間を求めたところ、液体水素が 138 s、液体窒素が 83.7 s という結果になった。

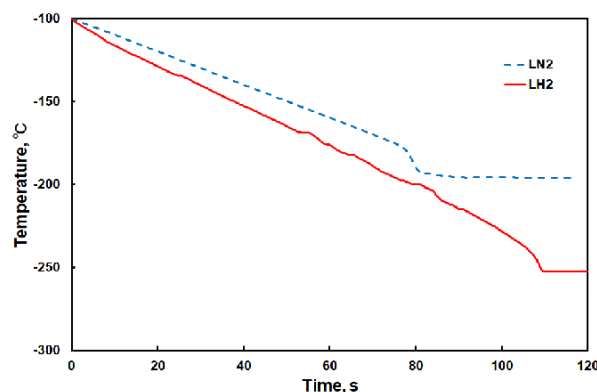


Fig. 7 Temperature change of copper plate (LH2, LN2)

Fig. 8 は Fig. 7 から求めた沸騰曲線を示している。液体水素実験の沸騰曲線は乱れが大きく若干分かりにくい、液体水素のほうが液体窒素よりも僅かに CHF 点過熱度、CHF の値ともに小さいという結果となった。一方で膜沸騰域における熱流束は若干液体水素のほうが大きく、両者の MHF 点過熱度がほぼ等しいという結果も得られた。

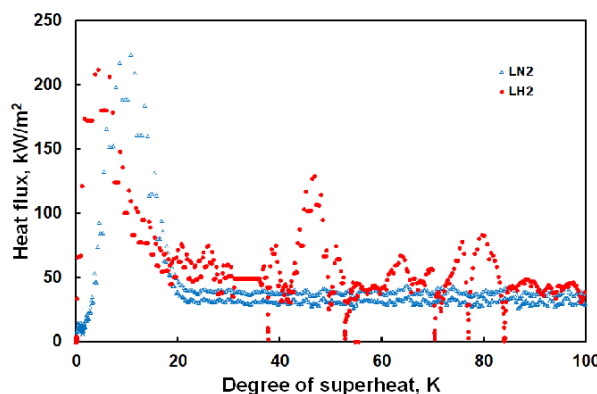


Fig. 8 Boiling curve (LH2, LN2)

3.2 極小熱流束

先述の通り、熱伝達率が小さな膜沸騰から大きな核沸騰への遷移の開始点である MHF 点温度は、予冷促進の観点に立つと非常に重要である。MHF 点に対応する過熱度 ΔT_{qmin} に対応する過熱度を求める式として Berenson^[3] は次式を提案した。

$$\frac{\Delta T_{qmin} \lambda_{vm}}{L \rho_{vm}} = 0.127 \left[\frac{g(\rho_L - \rho_V)}{\rho_L + \rho_V} \right]^{2/3} \left[\frac{\sigma}{g(\rho_L - \rho_V)} \right]^{1/2} \left[\frac{\mu_{vm}}{g(\rho_L - \rho_V)} \right]^{1/3} \quad (3)$$

ここで、 Vm は蒸気膜平均温度における物性値であり、 σ は表面張力である。式(3)に LH2 及び LN2 の物性値^{[4],[5],[6]}を代入することで MHF 点過熱度をそれぞれ求めると、液体水素が 22.4 K、液体窒素 49.6 K となった。一方、Fig. 8 を確認すると、液体水素が 18.9 K、液体窒素が 22.0 K となった。液体水素と液体窒素の MHF 点過熱度の大小関係は一致した。一方、液体水素については予測式と実験結果の誤差が小さかったのに対し液体窒素では実験結果が予測式の 2 倍以上と誤差が大きくなった。ここで、予測式において液体窒素が液体水素の値と比較し大きくなった理由を考える。次の Table 1 は式(3)の各項に対して比を求めたものである。各項は ΔT_{qmin} と比例関係にあるため各項の比をすべて掛け合わせると液体窒素の液体水素に対する ΔT_{qmin} の比 2.22 と一致する。ただし、 λ_{vm} に関しては式(3)を確認すると唯一 ΔT_{qmin} と同じく左辺の分子に存在するため反比例となる。したがって、 λ_{vm} に関しては各項の比を掛け合わせるときに Table 1 中の 0.43 ではなくその逆数 2.32 を掛け合わせなければ結果が 2.22 に一致しない点には注意が必要である。Table 1 を確認すると、蒸気膜平均温度における密度の項 ρ_{vm} が最も影響を与えていることが分かる。水素と窒素の物性値を比較すると圧倒的に窒素のほうが大きく、これにより重力の影響、また濡れ性などの違いにより窒素のほうが MHF 点過熱度が大きくなったと考えられるが詳細は不明である。

Table 1 Comparison of degree of superheat at MHF point

	$\left[\frac{g(\rho_L - \rho_V)}{\rho_L + \rho_V} \right]^2$	$\left[\frac{\sigma}{g(\rho_L - \rho_V)} \right]^1$	$\left[\frac{\mu_{vm}}{g(\rho_L - \rho_V)} \right]^1$	L	ρ_{vm}	λ_{vm}	ΔT_{qmin}
LN ₂	4.54	1.07 $\times 10^{-3}$	8.83 $\times 10^{-4}$	1.99 $\times 10^5$	3.3 4	7.29 $\times 10^{-3}$	49.6
LH ₂	4.47	1.62 $\times 10^{-3}$	1.20 $\times 10^{-3}$	4.49 $\times 10^5$	0.7 65	1.69 $\times 10^{-2}$	22.4
Rat io	1.01	0.658	0.737	0.44 3	4.3 7	0.43	2.22

3.3 極大熱流束

CHF 点（バーンアウト点）における熱流束は設計上の安全限界にかかわる重要な指標の 1 つとなっているバーンアウト発生発生モデルに基づいて、多くの CHF を予測する式が提案されているが、ここではその中の代表的なものを挙げる。

Rohsenow-Griffith の式^[7]

$$\frac{q_{CHF}}{L \rho_V} = 43.6 \left[\frac{\rho_L - \rho_V}{\rho_L} \right]^{0.6} \quad (4)$$

Zuber の式^[8]

$$\frac{q_{CHF}}{L \rho_V} = 0.138 \left[\frac{\sigma g(\rho_L - \rho_V)}{\rho_V^2} \right]^{1/4} \left[\frac{\rho_L + \rho_V}{\rho_L} \right]^{1/2} \quad (5)$$

Chang の式^[9]

$$\frac{q_{CHF}}{L \rho_V} = 0.262 \left[\frac{\sigma g(\rho_L - \rho_V)}{\rho_V^2} \right]^{1/4} \left[\frac{\rho_L + \rho_V}{\rho_L} \right]^{1/2} \quad (6)$$

Kutateladze の式^[10]

$$\frac{q_{CHF}}{L \rho_V} = 0.16 \left[\frac{\sigma g(\rho_L - \rho_V)}{\rho_V^2} \right]^{1/4} \quad (7)$$

次の Table 2 は式(4)から式(7)に従ってそれぞれの熱流束を求めた結果を示したものである。Table 2 には Fig. 8 から確認した液体水素、液体窒素の CHF の実験値も示している。どの予測式についても液体水素の CHF が液体窒素の CHF よりも小さくなるという実験結果とは一致するものの、それぞれの誤差の大きさには大きな開きが存在した。今回求めた 4 つの予測式の中で、Rohsenow-Griffith の式が圧倒的に実験値との誤差が大きくなった。そこで 4 つの式を確認すると、式(4)のみ表面張力及び重力の項が存在しない。従って表面張力及び重力の影響により Rohsenow-Griffith の式と実験結果の誤差が大きくなったと考えられる。本実験では、液体水素においては Zuber の式、液体窒素においては Kutateladze の式が最も実験値との誤差が小さくなった。

Table 2 Prediction of CHF

	Experimental result	Rohsenow- Griffith	Zuber	Chang	Kutateladze
LH2	215.0	2.33 $\times 10^5$	73.0	138.6	84.0
LN2	223.0	3.81 $\times 10^5$	167.9	318.7	194.1

3.4 熱伝達率

ここでは、液体水素と液体窒素の熱伝達率に関して考察を行う。次の Fig. 9 は熱流束を過熱度で除すことで Fig. 8 から作成した熱伝達率と過熱度の関係を示したものである。なお Fig. 9 において過熱度が小さな領域では熱流束の分母に存在する過熱度の影響で誤差が大きくなるた

め熱伝達率が $10 \text{ kW/m}^2\text{K}$ までの範囲のみを示している。Fig. 9 を確認すると、膜沸騰域で液体窒素と液体水素の熱伝達率が一致しているように見える。そこで過熱度が 20 K 以上、熱伝達率が $2 \text{ kW/m}^2\text{K}$ 以内の範囲を拡大したグラフが Fig. 10 である。Fig. 10 から、確かに膜沸騰域における熱流束の一致が見られた。一方、核沸騰域では熱伝達率の一致が見られなかった。この熱伝達率の一致、不一致の違いは、膜沸騰と核沸騰の沸騰様式の違いによるものだと考えられる。Fig. 5 に示した通り、膜沸騰は伝熱面ではなく蒸気膜を介して伝熱が行われる沸騰様式である。膜沸騰域では冷媒と伝熱面が直接接触しないため、その熱伝達率は冷媒に依存しない。一方核沸騰域では伝熱面から気泡が成長・離脱を繰り返す沸騰様式であり、冷媒と伝熱面が直接接触している。したがって熱伝達率は密度や濡れ性など、物性の違いにより異なる値を取ると考えられる。

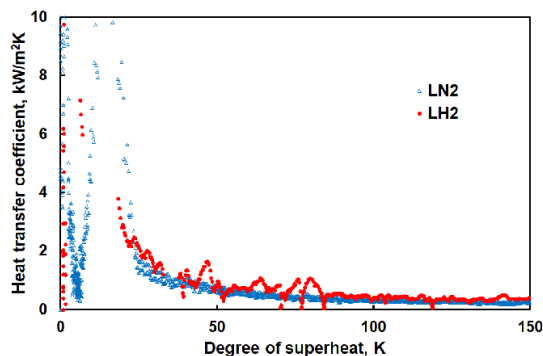


Fig. 9 Heat transfer coefficient (LH2, LN2)

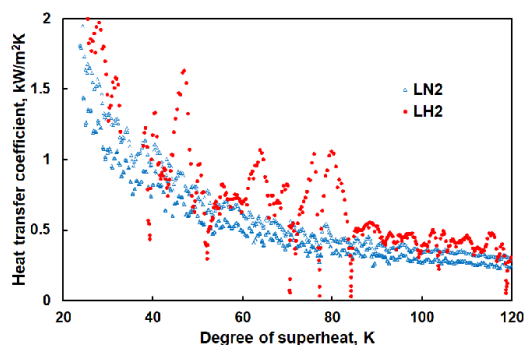


Fig. 10 Heat transfer coefficient (film boiling)

3.5 LH2 沸騰伝熱実験の伝熱促進

本研究では、伝熱面性状を変化させて伝熱性能を改善することを目的とした LH2 実験は行うことができなかったが、得られた Fig. 7, Fig. 8 の温度変化及び沸騰曲線から LH2 実験における伝熱性能を改善する方法として断熱

層のパラドクスを提案する。Fig. 11, Fig. 12 は著者が以前行った被冷却物として銅板（縦横 50 mm 、厚さ 6 mm ）を用い、銅板表面に厚さ 0.05 mm の PTFE を付加した場合の LN2 冷却実験における温度変化及び沸騰曲線である。比較対象として Bare として銅板に何も付加していない場合の実験結果も併せて載せてある。この実験では銅板温度が 0°C を下回った瞬間を 0 s とした。Fig. 11 から、銅板単体の場合は冷却時間が 138.6 s 、PTFE を付加した場合は 61.8 s と 55.4% の冷却時間削減を達成できたことが分かる。Fig. 12 を確認すると、PTFE は MHF を高温側に移行させ、銅板単体が膜沸騰の温度域（過熱度約 20 K 以上）における伝熱性能を改善させるという利点があることがわかる。一方、核沸騰域においてはその低い熱伝導率により伝熱が阻害されてしまうため伝熱性能が低下するという欠点もある。したがって断熱層のパラドクスを利用して伝熱性能を改善する手法は沸騰現象に占める膜沸騰域の占める割合が大きいほど大きな伝熱性能改善が期待できる。先述した通り、液体水素の MHF 点過熱度は 18.9 K であった。本研究の応用である管予冷を考えた場合、配管の温度を常温から液体水素温度まで冷却する必要がある。すなわち約 300 K 冷却する必要がある、その冷却沸騰現象に占める膜沸騰温度域 281.1 K は 93.7% である。したがって液体水素冷却実験は膜沸騰域が支配的な沸騰現象であるため、断熱層のパラドクスを利用することで大きな伝熱性能改善が期待できる。

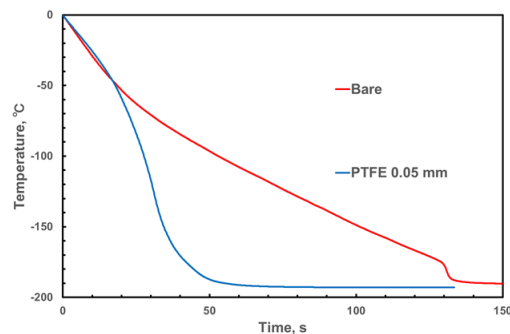


Fig. 11 Temperature change of copper plate with PTFE

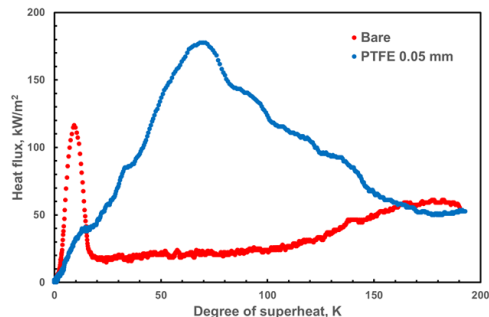


Fig. 12 Boiling curve of copper plate with PTFE

結言

- (1) 液体水素の MHF 点過熱度は 18.9 K となり、液体水素の 22.0 K と大きな差はなかった。
- (2) MHF 点過熱度, CHF の値の予測式は存在するものの、実験結果とよく一致するものは少なかった。
- (3) 膜沸騰域における液体水素及び液体窒素の熱伝達率はよく一致する。

液体水素沸騰伝熱現象において、支配的な沸騰様式は膜沸騰であるため断熱層のパラドクスによる大きな伝熱性能改善効果が期待できる。

REFERENCES

- [1] 西尾 茂文, 芹沢 良洋, 「表菌付加層の熱伝導性を利用した極小熱流束点温度の制御」, 日本機械学会論文集 (B 編) 53 巻 487 号, pp1061-1064.
- [2] Yasuyuki Shirai, Hideki Tatsumoto, Masahiro Shiotsu, Koichi Hata, Hiroaki Kobayashi, Yoshihiro Naruo, Yoshifumi Inatani, Boiling heat transfer from a horizontal flat plate in a pool of liquid hydrogen, Cryogenics 50 (2010) 410–416.
- [3] Berenson, P.J.: Trans. ASME, J. Heat Transfer, C83(1961), p.351.
- [4] 日本機械学会, 伝熱工学資料 改訂第 4 版, 1986.
- [5] 大陽日酸株式会社 産業ガス窒素 N₂
<https://www.tn-sanso.co.jp/jp/business/gas/products/n2.html>
- [6] 一般財団法人エンジニアリング協会 WE-NET Home Page/水素の物性
<https://www.ena.or.jp/WE-NET/phs/butsu.html>
- [7] Rohsenow, W.M. and Griffith, P.: Chem. Engng. Progr. Symp., 52-1(1956), p.47.
- [8] Zuber, N.: AECU-4439(thesis)(1959).
- [9] Chang, Y.P. and Snyder, N.W.: Chem. Engng. Progr. Symp., 56-30(1960), p.25.
- [10] Kutateladze, S.S.: Zh. Tekh. Fiz., 20(1950), p.1389