垂直管内気液固三相流の伝熱特性^{*}

Heat-Transfer Characteristics in Upward Three-Phase Flows of Gas-Liquid-Solid Mixtures

北原 博幸^{**}
KITAHARA Hiroyuki

吉田 邦夫^{**}
YOSHIDA Kunio

Abstract Heat-transfer coefficients in gas-liquid-solid three-phase flows in a 50.8mm i.d. vertical tube were measured in relation to flow patterns such as bubble, slug and penetrant flows. The gas velocity, slurry flow velocity and solid concentration were changed. The heat-transfer coefficients in the bubble and slug flow regime decreased with an increase in slurry flow velocity at low slurry flow velocity, while increased in the penetrant flow regime. The solid concentration greatly influenced the heat-transfer coefficients in all flow regimes, and the maximum value existed at a certain solid concentration.

Keywords: Heat transfer, Gas-liquid-solid three-phase flow, Flow pattern

1. はじめに

気液固三相反応器は石油の水素化分解反応器、微生物反応器や有機合成反応器として幅広く利用されているため、その流動、伝熱および物質移動に関する研究が積極的に行われ、中でも三相気泡塔や三相流動層などについては多くの研究者⁽¹⁻⁵⁾によって実験および理論的な検討が行われており、反応器の設計に必要な諸現象も次第に明らかにされつつある。一方、管型三相反応器は、単位体積当りの伝熱面積を大きく取ることができ、触媒の連続的な再精製および触媒粒子の滞在時間の調節が容易であるため、石炭液化プロセスの予熱管や炭化水素の塩素置換反応器として実用化されているものの、その設計の際に必要な流動および伝熱特性に対する情報が不足しており、明確な設計指針が無いのが現状である。

気液二相流の管壁面での伝熱係数はフローパターンの影響を受けることが知られている^(6,7)。例えばVerschoorとStemerding⁽⁶⁾は、液流速を一定に保ちガス流速を増加させると、スラグ流までは伝熱係数が増加し、その後環状流までは減少することを報告している。気液二相流中に固体粒子が混入した気液固三相流のフローパターンは著者らが前報⁽⁸⁾に報告したが、フローパターンと伝熱係数との関係については今までに何の知見も報告されていない。そこで垂直管内三相流のフローパターンと伝熱特性との関係を調べた結果を報告する。

* 1989.2.9 受付

** 東京大学工学部化学工学科

〒113 東京都文京区本郷7-3-1 TEL 03-812-2111 EXT.7349

Fig.1 Flow patterns in vertical upward flow.

2. 実験装置および方法

装置の概略は前報⁸⁾で報告した。垂直管は内径50.8mm、長さ5mでガス分散器、助走部 ($L/D=70$) および伝熱係数測定部よりなる。

伝熱係数の測定装置の詳細をFig.2に示す。長さが960mmの伝熱管を、80mmずつ12箇所に区切り、各々の箇所に取付けた熱電対の出力をコンピュータに送って解析し、各ヒータに送る電力を制御することで、軸方向の壁温を318Kに保った。また流体の温度は、伝熱管の内部に挿入した12本の熱電対の出力より求めた。

Fig.2 Schematic diagram of measuring system for heat-transfer coefficient.

混合タンク内で十分混合した水とガラス粒子を、313Kに温度制御するとともに、空気も313Kに加熱し、一緒に垂直管に供給して三相流とした。定常状態に達したのち、伝熱管の内部の流体の温度、および壁温を測定した。気泡や気体スラグの通過にともない温度が若干変動するため、各地点の温度を10秒間隔で50回測定し、その平均値をそれぞれ流体の温度、および壁温

とした。使用したガラス粒子は平均粒径が $56\mu\text{m}$ であり、スラリー中の粒子の体積分率を0から0.3に、ガスおよびスラリーの供給速度をそれぞれ0から5.0m/sおよび0.07から2.0m/sに変化させた。

12箇所の各部における伝熱係数 h_x を次式より求め、

$$h_x = \left(\frac{Q_x}{A_x \Delta T_x} - \frac{l}{k_{Cu}} \right)^{-1} \quad (1)$$

さらに、平均の伝熱係数 h を次式から算出した。

$$h = \frac{1}{L} \int_0^L h_x dx \quad (2)$$

なお、本実験では気液固三相流での応用があまり見られない環状流を除いて、固液二相流、気泡流、スラグ流および貫通流での伝熱係数を測定した。

3. 実験結果および考察

3. 1 固液二相流の場合のスラリーの流速と伝熱係数との関係

水だけを流した場合と固液二相流の場合の伝熱係数とスラリーの流速との関係をFig.3に示す。図中の破線は次式で表わされるMcAdams式から算出した水のみを流した場合の計算値である。

$$h = 0.023 \left(\frac{DU_l \rho_l}{\mu_l} \right)^{0.8} \times \left(\frac{Cp_l \mu_l}{k_l} \right)^{0.4} \left(\frac{k_l}{D} \right) \quad (3)$$

Fig.3 Relationship between heat-transfer coefficients and slurry flow velocities.

本実験方法で、水のみの流れに対して実測値と計算値が良好に一致することが確かめられた。水にガラス粒子を混入すると、特にスラリーの流速が低い場合に伝熱係数の著しい増加がみられ、今野ら⁹⁾の $350\mu\text{m}$ のガラス球と水とのスラリーを用いた実験結果と一致した。これはスラ

リーの流速が低いほど温度境界層が厚く、粒子による伝熱面付近の液の攪乱の効果が大きく現れたためと思われる。この粒子による攪乱は軸方向のどの位置でも同じように起こり、伝熱係数は軸方向に均一化されるものと思われる。そこで伝熱管の軸方向の伝熱係数分布を調べた結果をFig.4に示す。ここで x は伝熱管入口からの距離である。水のみを流した場合に比べ粒子が混入すると、予想通りに伝熱係数の分布の均一化がみられた。

Fig.4 Changes of local heat-transfer coefficient in a liquid-solid two-phase flow.

3. 2 フローパターンと伝熱係数の関係

3. 2. 1 気泡流の場合

水の単相流、気液二相気泡流および気液固三相気泡流の場合の伝熱係数とスラリーの流速との関係をFig.5に示した。水の単相流にわずかな流速でも空気を吹き込むと植田と花岡¹⁰⁾の結果

Fig.5 Comparison of heat-transfer coefficient in three-phase bubble flow with those in single-phase flow and two-phase bubble flows.

と同様に伝熱係数が増加すること、その傾向はVerschoorとStemerding⁹⁾が報告しているように液流速が低いほど著しいことが確かめられた。また液流速が低い ($U_l \leq 0.1 \text{ m/s}$) 場合には液流速の減少とともに伝熱係数が大きくなった。これは液流速の増加とともに伝熱係数が増加するというDorrestein¹⁰⁾の管内流に関する結果や液流速の影響はほとんど無いとするFair¹²⁾やMuroyama¹³⁾の気泡塔における結果とは異なる。目視による観察では液流速が低いほど扁平な気泡のジグザグの動きが見られた。このジグザグの動きにともなう伝熱面付近の液の乱れにより伝熱が促進されたものと思われる。この気液二相気泡流中にさらに粒子を加え三相流とした場合、伝熱係数の増加がみられた。これは三相流動層に関するMuroyama¹⁴⁾やKim¹⁵⁾の研究結果と同様であり、粒子による伝熱面の攪乱効果が加わったためと考えられる。そしてこの場合も低スラリー流速の場合ほど伝熱係数の増加の傾向が著しかった。

軸方向の伝熱係数の分布を調べた結果をFig. 6に示す。水の単相流の場合と気液二相気泡流の場合を比較すると、気泡が存在することによって軸方向の伝熱係数の分布が均一化される。これは気泡による伝熱面の攪乱も粒子による攪乱の場合と同様に軸方向のどの位置でも同じように起こるためと考えられる。気液二相流に粒子を加え、気液固三相流とすると、よりいっそうの均一化がみられた。

Fig. 6 Comparison of local heat-transfer coefficient in three-phase bubble flow with those in single-phase and two-phase bubble flow.

3. 2. 2 スラグ流の場合

Fig. 7にスラグ流に於けるスラリーの流速と伝熱係数との関係を示す。スラリーの流速が0.3 m/sより低い範囲ではスラリーの流速の増加とともに伝熱係数が減少した。これは気液二相スラグ流における既往の研究結果^{7), 11), 16)}とは異なるが、スラリーの流速の増加とともに気体スラグの周りの下降流の速度が減少したためと考えられる。なお、粒子混入にともなう伝熱係数の増加もわずかに認められた。

Fig. 8に軸方向の伝熱係数分布の測定結果を示した。気泡流の場合と同様に粒子の混入にともなう軸方向の伝熱係数分布の均一化が、わずかではあるが認められた。

3. 2. 3 貫通流の場合

Fig. 9に貫通流に於けるスラリーの流速と伝熱係数との関係を示す。スラグ流の場合とは異

Fig. 7 Relationship between heat-transfer coefficient and slurry flow velocity in slug flow regime.

Fig. 8 Local heat-transfer coefficient in slug flow regime.

なり、液流速が低いほど小さな伝熱係数を示した。これは気液二相チャーン流に関する既往の研究結果¹⁶⁾と同様な結果である。貫通流では、液の供給速度が低いほどガスの吹き抜けが起きやすくなる。ガスが吹き抜けている場合には壁面付近の下降流の速度が小さくなるため液流速の減少とともに伝熱係数の低下が見られたものと思われる。なお粒子を混入し三相流とすると他のフローパターンの場合と同様に伝熱係数の増加が認められた。

Fig. 10に貫通流での軸方向の伝熱係数の分布を示す。スラグ流の場合と同様に、粒子混入にともなう均一化がわずかにみられた。

3. 3 ガス流速増加にともなうフローパターンと伝熱係数の変化

スラリー中の粒子の体積分率を0.1、スラリーの流速を0.1および1.0m/sの一定に保ち、ガスの供給速度を増加させた場合のフローパターンと伝熱係数の変化をFig. 11に示す。スラリーの流速が高い場合は、ガスの供給速度の増加にともない伝熱係数が増加するが、スラリーの流速が低い場合は、スラグ流までは伝熱係数が増加し、貫通流で減少した。スラリーの流速が低い場合、気泡および気体スラグの周りに液の下降流ができる。特にスラグ流の場合、ガス流速が高いほど下降流で覆われる面積が広くなり、伝熱係数が大きくなったものと推察される。貫通流では、ガス流速が大きいほどガスの吹き抜けが起こり、壁面での液の速度が減少して、次

Fig.9 Relationship between heat-transfer coefficient and slurry flow velocity in the regime of penetrant flow.

Fig.10 Local heat-transfer coefficient in the regime of penetrant flow.

Fig.11 Changes of heat-transfer coefficients with gas velocity and flow patterns.

第に下降流がみられなくなる。このためガス流速の増加とともに伝熱係数が減少したものと考えられる。なおスラリーの流速が高い場合は下降流が観察されず、気体スラグの周りのスラリーは速度の変動があるものの常に上昇していた。上昇速度はガス流速の増加とともに高くなるため、ガス流速の増加とともに伝熱係数が増加したものと思われる。

例えば、ガスの供給速度が0.1m/sの場合、スラリーの流速が0.1m/sでも1.0m/sでも伝熱係数がほぼ等しいことは、工業装置でスラリーの供給速度を低く抑えて動力消費を減少させ、かつ滞在時間を長く取れることを意味する。そこで、スラリー流速が低い場合でのフローパターンと伝熱係数との関係を重視し、スラリーの流速を0.1m/sと低く保ち、スラリー中の粒子の体積分率を0、0.1および0.3とした場合に得た伝熱係数とガス流速との関係をFig.12に示す。どの粒子濃度の場合にも、スラグ流まではガスの供給速度の増加とともに伝熱係数が増加し、貫通流では減少することがわかった。

Fig.12 Changes of heat-transfer coefficient with solid concentration at $U_l=0.1\text{m/s}$.

3. 4 粒子濃度と伝熱係数の関係

Fig.13に各フローパターンでの伝熱係数と粒子濃度との関係を示す。ここで、図中の破線はMcAdams式より求めた値である。ただし、スラリーの物性値はよく用いられている次式^{17),18)}から求めた。

$$\rho = \phi \rho_p + (1 - \phi) \rho_l \quad (4)$$

$$Cp = wCp_p + (1 - w) Cp_l \quad (5)$$

$$k = k_l \frac{2k_l + k_p - 2\phi(k_l - k_p)}{2k_l + k_p + \phi(k_l - k_p)} \quad (6)$$

$$\mu = \mu_l (1 + 2.5\phi + 10.05\phi^2 + 0.00273e^{16.6\phi}) \quad (7)$$

Fig.13 Relationship between heat-transfer coefficient and solid concentration.

いずれのフローパターンの場合も、粒子濃度の変化により伝熱係数が極大値を示す。粒子の混入の影響は三相流動層でMuroyamaら¹⁴⁾が報告した伝熱面付近の液の攪乱にもとづく伝熱促進効果とMichaelとReichert¹⁹⁾が報告したスラリーの見かけの粘度の増加にともなう伝熱抑制効果が考えられる。前者は粒子濃度にほぼ比例して増加するが、後者は(7)式に示したスラリーの粘度の実験式に従い、粒子濃度の増加とともに指数関数的に増加すると考えられる。低粒子濃度では前者が大きく、また高粒子濃度では後者が前者よりも大きくなり、伝熱係数が極大値を示したものと推察される。また貫通流およびスラグ流に比べ気泡流では、粒子濃度が伝熱係数に及ぼす影響が大きいが、気泡流では前2者に比べて温度境界層が厚いため粒子による液の攪乱効果が顕著にみられたためと思われる。

4. 結論

垂直管内気液固三相流のフローパターンと伝熱係数との関係を調べた。各フローパターンでスラリーの流速と伝熱係数との関係は異なり、貫通流では、スラリーの流速の増加とともに伝熱係数が増加するが、気泡流やスラグ流ではスラリーの流速が低い範囲では逆に減少した。また、工業装置でみられるような0.1m/s程度のスラリーの流速の場合には、ガス流速の増加とともに伝熱係数が極大値を示し、この極大値はスラグ流から貫通流への遷移の際にみられることが判った。さらに、どのフローパターンでも粒子濃度の増加にともない伝熱係数が極大値を示し、気泡流の場合は、特にその傾向がはっきり現われることが判った。

記 号

A_s : 伝熱管の各分割域の伝熱面積	[m ²]	U_g : ガスの供給速度	[m/s]
C_p : 比熱	[J/kgK]	U_l : 液またはスラリーの供給速度	[m/s]
D : 伝熱管の内径	[m]	w : スラリー中の粒子の重量分率	[-]
d_p : 平均粒径	[m]	x : 伝熱管の軸方向距離	[m]
h : 伝熱係数	[W/m ² K]	μ : 粘度	[Pas]
h_s : 局所伝熱係数	[W/m ² K]	ρ : 密度	[kg/m ³]
k : 熱伝導度	[W/mK]	ϕ : スラリー中の粒子の体積分率	[-]
L : 伝熱管の長さ	[m]		
l : 伝熱管の内面と熱電対との距離	[m]	添 字	
Q_s : 各分割域の加熱量	[W]	C_u : 伝熱管	
ΔT_s : 各分割域の流体と伝熱面との温度差	[K]	l : 液またはスラリー	
		p : 粒子	

参考文献

- (1) Tsutsumi, A. et al.: *Sadhana*, Vol. 10, 247-259 (1987).
- (2) Kim, Y. H., Tsutsumi, A. and Yoshida, K.: *Sadhana*, Vol. 10, 261-268 (1987).
- (3) Kato, Y. et al.: *Powder Technology*, Vol. 28, No. 2, 173-179 (1981).
- (4) Michelsen, M. L. and Ostergaard, K.: *Chem. Eng. J.*, Vol. 1, No. 1, 37-46 (1970).
- (5) Deckwer, W.-D. et al.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, Vol. 19, No. 4, 699-708 (1980).
- (6) Verschoor, H. and Stermerding, S.: *Proc. Gen. Discuss. Heat Trans., Inst. Mech. Eng., London & ASME*, 201-203 (1951).
- (7) Groothuis, H. and Hendal, W. P.: *Chem. Eng. Sci.*, Vol. 11, No. 3, 212-220 (1959).
- (8) 北原博幸、吉田邦夫、混相流、Vol. 3, No. 2, 145-154 (1989).
- (9) 今野辰洋ほか 4 名：化学工学論文集、Vol. 6, No. 3, 308-310 (1980).
- (10) 植田辰洋、花岡正紀：日本機械学会論文集、Vol. 33, No. 248, 619-625 (1967).
- (11) Dorresteyn, W. R.: *Proc. Fourth Int. Heat Transfer Conf., Paris-Versailles*, B5.9 (1970).
- (12) Fair, J. R., Lambright, A. J. and Andersen, J. W.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, Vol. 1, No. 1, 33-36 (1962).
- (13) Muroyama, K., Fukuma, M. and Yasunishi, A.: *Can. J. Chem. Eng.*, Vol. 62, No. 2, 199-208 (1984).
- (14) Muroyama, K., Fukuma, M. and Yasunishi, A.: *Can. J. Chem. Eng.*, Vol. 64, No. 3, 409-418 (1986).
- (15) Kim, S. D., Kang, Y. and Kwon, H. K.: *AIChE J.*, Vol. 32, No. 8, 1397-1400 (1986).
- (16) Tos, O., Bwts, R. C. and Charles, M. E.: *Can. J. Chem. Eng.*, Vol. 62, No. 2, 194-198 (1984).
- (17) Thomas, D. G.: *J. Colloid Sci.*, Vol. 20, 267-273 (1965).
- (18) Thomas, D. G.: *AIChE J.*, Vol. 6, No. 4, 631-639 (1960).
- (19) Michael, R. and Richert, K. H.: *Can. J. Chem. Eng.*, Vol. 59, No. 5, 602-605 (1981).