熱媒体による直接接熱

—非沸騰液-液系の場合*—

橋爪正男**・岡本速雄**

元木義和**

日本専売公社 防府製塩試験場**

1. 緒言

液-液直接接熱法による伝熱は、これに使用可能な熱媒体分散相が選定できれば従来の金属伝熱面を有する熱交換器に比較して、装置の建設費の低減、伝熱面の腐蝕や、伝熱面へのスケールの付着など、金属伝熱面によって起るトラブルが解決できて有利と考えられる。しかし直接接熱のために新たに問題点も発生するものと考えられるが、新しい型式の熱交換器として興味ある問題であるので、この種熱交換器の設計資料を得る目的で実験を行なった。著者らは既報の文献^{3,5,6-11)}を参照しながら、まず最も簡単な液-液直接接熱分散系において、下降または上昇する連続相中を分散相が滴状で重力のみで沈降接触し、なおかつ沸騰、蒸発を伴わない場合の流動と伝熱について小規模の実験装置により検討したので報告する。

連続相としては淡水を、分散相としては3塩化ディフェニールを使用した。連続分散両相の30°Cにおける代表的物性値はTable 1に示すとおりで、市販されている物質の中では比較的直接接熱法に使用する熱媒体としての性質をそなえているものと考えられる。

Table 1 Physical properties of trichlorodiphenyl and water at 30°C

Property	Unit	Trichlorodiphenyl(1)	Water (2)	Ratio (1)/(2)
Density	g/cm ³	1.386	0.996	1.392
Viscosity	g/cm·sec	0.388×10^{-3}	0.008×10^{-3}	48.45
Specific heat	kcal/kg·°C	0.296	0.9983	0.963
Thermal conductivity	kcal/m·h·°C	0.0997	0.528	0.1889
Surface tension	dyne/cm	50.0	71.18	0.703
Vapour tension	mmHg	0.003~0.001	31.8	0.276×10^{-3}
Evaporating rate	%58hr/98°C	<0.2		
Solubility		insoluble (mutually)		

* <Heat Transfer in Direct Contact with Thermal Media Case of Non-boiling in Liquid-Liquid System>

Received on September 27, 1963

** Masao Hashizume, Hayao Okamoto and Yoshikazu Motoki (Hōfu Salt Experiment Station, Japan Monopoly Corporation, Hōfu, Yamaguchi, Japan)

2. 静止連続相中への分散相の滴状分散

2.1 実験装置および方法

まず静止連続相中での滴の生成と、その自由沈降速度について Fig. 1のごとく透明アクリル板製水槽(100×200×1,250mm³)中の静止連続相上部に分散ノズルを設置し、分散相(3塩化ディフェニール)を一定水頭を保ちながら流量を測定し、ノズル流出速度を変化して分散させた。分散ノズルは真鍮製または注射針を利用加工したもので、滴の生成条件ができるだけ一定になるように分散ノズル先端角度を60度とし、数種の径のものを用いた。連続、分散両相とも常温(15±1°C)で操作した。分散状態すなわち生成滴径および沈降速度はストロボ写真上で測定するとともに沈降時の滴の運動についても観察した。

2.2 実験結果：生成滴径と沈降速度

ノズル先端流出速度と生成滴径の関係をノズル径をパラメーターに示すと Fig. 2のごとくで、ノズル径0.75mmのものでは流出速度 v_n 20cm/secまではほぼ一定径

Fig. 1 Experimental apparatus used for measuring

の滴を生成し、流出速度 v_n 20~30 cm/sec に遷移点があり、それ以上の流出速度では生成滴径は小さくなりかつ流出速度に対してほぼ一定値を示し、分散状態はノズル流出速度が遷移点より小なる場合はノズル先端で滴を生成するが流出速度が遷移点より大きくなると、ノズル端から層流または乱流の液柱が伸びその先端で滴に分裂する。ノズル径の異なるものについてもほぼ同様であるが、ノズルの径が大きくなるほど遷移点がノズル流出速度の小さい方へ移行する。この関係をノズル径と生成滴径で表示したものが Fig. 3 で生成速度大なる場合と小なる場合を点綴したものである。今ノズル端において、界面張力によって生ずる上向の力 $(\pi d_n \gamma)$ と重力によって生ずる下向きの力 $(\frac{\pi}{6} d_{th}^3 \Delta \rho \cdot g)$ が釣り合った点で滴が生成するものと考え、これを理論的な滴径 d_{th} とすると、 $d_{th} = (6 \cdot \gamma \cdot d_n / g \cdot \Delta \rho)^{1/3}$ で表示され、温度 40°C, 100°C の場合の計算値を図示すると、実線および点線のごとく温度による差の少ないことがわかる。ただし、 γ は界面張力、 g は重力の加速度、 $\Delta \rho$ は密度差である。この計算値 d_{th} と生成滴径 d との比を取ると、ノズル径 4mm 以下ではノズル流出速度大なるとき 0.82, 小なるとき 1.2 ではほぼ一定値であるが 4mm 以上では暫時小さくなる。

次に滴径と静止沈降速度との関係を示すと Fig. 4 のごとく、滴径 4mm までは径と共に沈降速度が増大するが、それ以上ではほぼ一定値となる。この現象は滴径 4mm 以上になると沈降時における液滴の変形および振動が顕著になり、滴の沈降軌跡がジグザグするためのものであり、滴径 4mm 以下では滴形は比較的球形に近くほぼ直線的な沈降軌跡を示した。今アレンおよびニュートンの法則に従って沈降する場合を仮定して、これを図中に示すと実線のごとく球形固体の沈降状態と異なることがわかるが、滴径 4mm 以下ではアレンの法則に近い運動をすることがわかる。

3. 熱交換器における流動と伝熱

3.1 実験装置および方法

連続相中を分散相が滴群で重力のみで沈降接触しながら、なおかつ沸騰、蒸発を伴わない熱交換器における流動状態と伝熱については、Fig. 5 に示すごとく内径 D 65mm, 有効長 1,975mm の耐熱ガラス製熱交換器⑦, 連続相, 分散相のそれぞれの貯槽⑩⑪, 循環ポンプ②⑪, 冷却器⑬⑭, 加熱器④⑬, 流量測定用オリフィス⑤⑭, 分離器⑨および分散ノズル⑩から成る。分散ノズルはその先端を滴生成条件ができるだけ一定になるごとく鋭角にしてある。分散ノズルは径 1.5, 4.0, 6.0mm の3種類のを製作使用した。各部の温度計⑥⑦⑧⑬⑭は 1/10°C 目盛の棒状温度計であり、分散相の流量測定に

Fig. 2 Effect of tip velocity on drop diameter

Fig. 3 Effect of nozzle diameter on drop diameter

Fig. 4 Comparison of experimental data with Allen's and Newton's formula

① tank	③ pump	⑤ cooler
④ heater	⑧ orifice	⑥ thermometer
⑦ Liquid-Liquid contacting column	⑨ thermometer	
⑩ separator	⑪ tank	⑫ pump
⑬ cooler	⑭ heater	⑮ orifice
⑯ nozzle disc	⑰ thermometer	⑱ thermometer

Fig. 5 Experimental apparatus used for measuring flow and heat transfer

Fig. 6 Relation between hold up and flow rates of dispersed phase and continuous phase

はオリフィス⑧とさらに熱交換器出口においてメスリ
ンダーとストップウォッチとで実測した。

実験は両相が向流する場合と、並流する場合を考え、
両相の流量を設定して加熱器、冷却器を使用して温度を
調節するとともに熱交換器下部に設けた分散相溜の中の
界面レベルを一定にするようにバルブを調節し、各部の
状態が定常に達するのをまってから温度の測定を行ない
熱収支を求めた。一方、一条件の測定終了時に分散相入
口、出口のコックを同時に閉じて、熱交換器の有効容積

Fig. 7 Hold up vs. ratio of flow rate

内に滞留する分散相の量を測定した。

3.2 実験結果

3.2.1 連続、分散両相流量とホールドアップの関係

熱交換器の有効容積に対する分散相滞留量の割合を百
分率で表わし、これをホールドアップと称し、ホールド
アップ $H\%$ と両相の流量との関係を示すと Fig. 6 のご
とくなる。向流の場合ホールドアップは分散相の流量が
小さい間は連続相流量の増加とともにわずかながら増大す
るが、分散相の流量が大きくなるにつれ増大率は大きく
なり、かつ連続、分散両相の流量がある限度以上ではホ
ールドアップは急激に増加し、さらに両相流量が増加す
ると分散相は連続相に伴流されて、いわゆる溢流状態と
なる。一方両相が並流する場合に Fig. 6 の連続相の流
量零の線より左側に示してある通りでホールドアップは
連続相流量の増加とともにわずかに減少し、その極限は
ホールドアップ零に収束する。また分散相の流量変化に
対してホールドアップはほぼ比例的に増大した。

今ホールドアップと両相流量間の関係を両対数
方眼紙上で縦軸に連続相の流量 V_c に対するホールドア
ップ H の比 $H \times 10^4 / V_c$ を、横軸に両相の流量比 $V_c \rho_c /$
 $V_d \rho_d$ を取り、分散相の流量をパラメーターとして示す
と Fig. 7 のごとくで、両相が向流し、なおかつ流量が
大きくホールドアップが急激に増加する部分を除けば、
各パラメーターごとに直線で表示でき、 φ_I および φ_{II} を
それぞれ係数および指数とするとホールドアップと両相
流量との間には

$$H \times 10^4 / V_c = \varphi_I \cdot (V_c \rho_c / V_d \rho_d)^{\varphi_{II}} \quad (1)$$

の数式関係が成立する。

今係数 φ_I および指数 φ_{II} をそれぞれ分散相流量の関
係で表示すると Fig. 8 のごとく、係数 φ_I 、指数 φ_{II} と
も、向流並流の両領域で直線関係を示し、係数 φ_I は、

Fig. 8 Effect of dispersed phase's flow rate on coefficient φ_I and exponent φ_{II} of hold up formula (2, 3)

向流の場合 $\varphi_I = 0.99 + 0.13 \times 10^4 V_D$ 、並流の場合 $\varphi_I = 1$ であり、指数 φ_{II} は、向流の場合 $\varphi_{II} = 0.81$ 、並流の場合 $\varphi_{II} = 1.17$ となった。したがって求めた係数および指数を前述のホールドアップと流量の関係式に代入すると
向流の場合： $H = (0.99 + 0.13 \times 10^4 V_D)$

$$(V_c \rho_c / V_D \rho_D)^{0.81} \cdot V_c / 10^4 \quad (2)$$

$$\text{並流の場合：} H = (V_c \rho_c / V_D \rho_D)^{1.17} \cdot V_c / 10^4 \quad (3)$$

で表示できた。ただし上式は本実験に使用した熱交換器の筒径 $D = 65 \text{ mm}$ 、ノズル径 $d_n = 4 \text{ mm}$ の場合で熱交換筒径の影響については考慮していないが、ノズル径 $d_n = 1.5 \text{ mm}$ および $d_n = 6.0 \text{ mm}$ の場合もほぼ同様な結果を得た。また液温度を変化しても、本実験の範囲ではほぼ同一の傾向を示した。

3.2.2 容量伝熱係数

熱交換器の有効容積 1 m^3 、有効温度差 1°C 、時間 1 hr 当りの伝熱量を容量伝熱係数 K_v とし、これが熱交換器のどの部分でも同一値であると仮定して向流の場合を次式で算出した。

$$K_v = 2.3 \log(t_{D1} - t_{c2} / t_{D2} - t_{c1}) \cdot c_p \rho_D V_D (t_{D1} - t_{D2}) / (t_{D1} - t_{c2} - t_{D2} + t_{c1}) \cdot L \quad (4)$$

ただし、並流の場合は上式中の c_1 を c_2 に、 c_2 を c_1 に書きかえるものとする。この場合の端効果（熱媒の温度測定位置よりノズル端に達するまでの温度降下の全温度降下に対する比）について測定したところ 10% 以下であった。本実験においてはノズル取付管内外側の流速の違いことから、この部分での伝熱量は僅少であることが求められ、その大部分はノズルおよび液滴の生成時に起ると考えられるので、この影響も含めて取り扱うことにした。

容量伝熱係数 K_v とホールドアップ H の関係を普通目盛方眼紙上にプロットすると Fig. 9 のごとくで相当のバラツキがあるが原点を通る 1 本の直線で表示された。したがって、分散相入口温度 $t_{D1} = 60^\circ \text{C}$ 、温度差 $\Delta t = t_{D1} - t_{c1} = 10^\circ \text{C}$ の条件で、向流の場合、並流の場合のそれぞれについて、これを前項のホールドアップと同

Fig. 9 Effect of hold up on volumetric heat transfer coefficient

Fig. 10 Volumetric heat transfer rate vs. ratio of flow rate

様に K_v/V_c と $V_c \rho_c / V_D \rho_D$ を求め対数方眼紙上にプロットすると Fig. 10 のごとく直線関係が認められ両者の関係は次式で表示できた。

$$K_v/V_c = 0.47 (V_c \rho_c / V_D \rho_D)^{-0.852} \quad [\text{kcal/l} \cdot \text{m} \cdot ^\circ \text{C}] \quad (5)$$

したがって、ホールドアップと流量の関係式と容量伝熱係数と流量の関係式よりホールドアップと容量伝熱係数および流量との関係を求めることができる。これらの要因間の関係は実験範囲の温度、温度差およびノズル径ではほぼ同一な傾向を示した。

3.2.3 無次元項による整理

以上に述べた液-液分散系におけるごとく、その界面における熱交換であるところの流体内の熱流を体系的に調らべるには、流動の摩擦抵抗の機構に伝熱を組み合わせその間の密接な相関性について探究しなければならない

い。

まずこのような伝熱において重要な要因は両相間の温度 1°C において 1hr に両相の界面積 1m^2 から移動する熱量 α (総括伝熱係数) である。今両相の温度 t_D, t_c , 伝熱面積 F , 単位時間の伝熱量 Q とすると, $Q = \alpha F (t_D - t_c)$ となる。この α は実際は滴の部分および熱交換器の各部分で同一でないが, 熱交換器内のどの部分でも均一な値になるものと仮定した。 α は一般に種々のファクターによって変化するものであるが, 次元解析の適用により伝熱を特長づける無次元数の間に次の関係が存在することが明らかにされている。ただし l_n/l_0 は幾何学的寸法比である。

$$Nu = \phi(Re, Pr, l_n/l_0) \quad (6)$$

今連続相中を分散相が滴状で沈降および上昇する場合の滴ならびに滴の周囲の流動については, すでに液-液抽

Fig. 11 Nusselt No. vs. Reynolds No.

Fig. 12^{*} Prandtl No. vs. Nu/Re^2

出における物質移動の研究^{1,2,4)} に伴う観測および解析がなされて, 滴内部に循環の存在することが認められている。本報告のごとく界面における物質移動を伴わない分散相を使用した場合にも, 滴の周囲は滴の沈降により生ずる層流境界層が発生する。一方滴内部にも沈降により誘起される循環流が発生するものとし, 界面近傍に生ずる境界抵抗が伝熱に影響あるものと考え, 滴内外のそれぞれの境界係数を α_D, α_c とすると, α との間には $1/\alpha = 1/\alpha_D + 1/\alpha_c$ の関係が生じて α を二つの要因に分解することができる。 α_D, α_c については連続相中を互に干渉しないで滴が沈降するときの値が実験的に求められている¹⁰⁾。これらの結果からの試算の検討で, 伝熱におよぼす効果は α_D が支配的であることが認められ, また本報のごとき熱交換器においても全く同様に分散相側境界抵抗が伝熱に対して支配的と考えられたので, 本報告の淡水-3塩化ディフェニール系のごとき連続相側境界係数に対し, 分散相側のそれが小さく, 伝熱抵抗として支配的である系においてはヌセルト数 Nu を総括伝熱係数 α を使用した $\alpha d/\lambda_D$ で表し, レイノルズ数 Re およびプラントル数 Pr は分散相基準の物性値 (物性定数の温度としては分散相に対して $t_{D1} + t_{D2}/2$, 連続相に対して $t_{c1} + t_{c2}/2$ を使用した) で表示したものを使用することにした。これら無次元項の算出にあたって, 温度差は対数平均温度差, 流速としては滴の沈降における相対

Fig. 13 Nusselt No. vs. $Re^2 \cdot Pr^1$

Table 2 Densities and interfacial tensions of dispersion system vs. temperature

Temp. [°C]	Density [g/cm ³]			Surface tension		Interfacial tension [g/sec ²]
	ρ_D	ρ_c	$\Delta\rho = \rho_D - \rho_c$	γ_D	γ_c	
30	1.386	0.996	0.390	50.0	71.8	21.8
40	1.375	0.992	0.383	48.1	69.4	21.3
60	1.356	0.983	0.373	46.0	66.0	20.0
80	1.336	0.972	0.364	43.3	62.5	19.2
100	1.317	0.958	0.359	40.1	58.8	18.7

$$d_{ih} = k^{1/3}(\gamma/\Delta\rho)^{1/3} \text{ where } k \text{ const.}$$

速度を用い、伝熱面積は滴径とホールドアップから算出した。滴径については3塩化ディフェニールと淡水との密度差($\rho_D - \rho_c$)および界面張力 γ の温度に対する変化がTable 2から生成滴径にほとんど影響しないことがわかるので、前項で観測した常温における実験値から他の温度の場合を推定した。伝熱量は分散相の流量と、その温度降下から求めたものを使用した。Fig. 11はヌッセルト数 Nu とレイノルズ数 Re の関係を分散相の入口温度(プラントル数)をパラメーターとして示したもので勾配2の直線群として表示されることがわかった。次にヌッセルト数をレイノルズ数の平方で除したもの Nu/Re^2 とプラントル数の関係を見るとFig. 12のごとく勾配2の一直線となる。したがって両対数方眼紙上でヌッセルト数 Nu を縦軸にレイノルズ数とプラントル数の積の平方 $(Re \cdot Pr)^2$ を横軸に取って整理すると、Fig. 13のごとく勾配1の一直線上で±35%の範囲にプロットできヌッセルト数が次式で表示できることがわかった。

$$Nu = 10^{-7} Re^2 Pr^2 \quad (7)$$

Nomenclature

A : section area of column	[m ²]	t : temperature	[°C]
c_p : specific heat	[kcal/kg·°C]	v : velocity	[cm/sec]
d : drop diameter	[mm]	V : flow rate	[l/m ² ·hr]
d_{th} : theoretical drop diameter	[mm]	α : heat transfer coefficient	[kcal/m ² ·hr·°C]
d_n : nozzle diameter	[mm]	γ : interfacial tension	[g/sec ²]
F : heat transfer area	[m ²]	Δ : difference	[—]
g : gravitational acceleration	[cm/sec ²]	η : viscosity	[g/cm·sec]
H : hold up	[%]	λ : thermal conductivity	[kcal/m·hr·°C]
K_v : volumetric heat transfer coefficient	[kcal/m ³ ·hr·°C]	ρ : density	[kg/m ³]
L : effective length	[m]	φ_1, φ_2 : coefficient, exponent	[—]
l_n/l_0 : ratio of geometric sizes	[—]	ϕ : function	
Nu : Nusselt number	[—]	Subscript	
Pr : Prandtl number	[—]	c : continuous phase side	
Re : Reynolds number	[—]	D : dispersion phase side	
		1, 2: inlet side, outlet side	

Literature cited

- 1) Fujinawa, K. et al.: *Kagaku Kōgaku (Chem. Eng., Japan)*, 21, 215 (1957)
- 2) Fujinawa, K. and Nakaike, Y.: *ibid.*, 22, 540 (1958)
- 3) Garwin, L. and Smith, B. D.: *Chem. Eng. Prog.*, 49, No. 11, 591 (1953)
- 4) Hirata, M. and Hayakawa, T.: *Kagaku Kōgaku (Chem. Eng., Japan)*, 21, 215 (1957)
- 5) McDowell, R. V. and Myers, J. E.: *A. I. Ch. E. Journal*, 2, 384 (1956)
- 6) Nakada, T.: *Reports of the Faculty of Science and Engineering, Chuo University* D-24, No. 91 (1962)
- 7) Thomson, W. S. et al.: *Saline Water Research and Development Progress Report*, No. 66 (1962)
- 8) Umano, S. and Nakano, Y.: *Tōkyō Kōgyō Shikensho Hōkoku (Govt. Chem. Ind. Research Inst. Tōkyō Japan)* 54, No. 9, 268 (1959)
- 9) Umano, S. and Nakano, Y.: *ibid.*, 54, No. 9, 289 (1959)
- 10) Umano, S. and Nakano, Y.: *ibid.*, 57, No. 12, 583 (1962)
- 11) Yamagata, K.: *Trans. J. S. M. E.*, 9, No. 37, II-133 (1943)

4. 結 論

液-液直接接触分散系において、下降または上昇する連続相(淡水)中を分散相(3塩化ディフェニール)が滴状で重力のみで沈降接触し、なお沸騰を伴わない場合の流動と伝熱を有効径65mm、有効長1,975mmの熱交換筒を使用して実験した。ホールドアップと各流量との関係は両相が向流する場合または並流する場合について次のごとくであった。

$$H = (0.99 + 0.13 \times 10^4 V_D) (V_c \rho_c / V_D \rho_D)^{0.81} V_c \cdot 10^{-4}$$

$$H = (V_c \rho_c / V_D \rho_D)^{1.17} V_c \cdot 10^{-4}$$

また熱交換筒のどの部分でも伝熱速度が均一であると仮定して求めた容量伝熱係数と流量との関係は

$$K_v / V_c = 0.47 (V_c \rho_c / V_D \rho_D)^{-0.852}$$

で表示できた。以上の流動と伝熱速度との関係を分散相の物性値基準の無次元項で整理し、ヌッセルト数、レイノルズ数、プラントル数の間に次の関係を得た。

$$Nu = 10^{-7} Re^2 Pr^2$$

SPEED SPEED SPEED

SPEED SPEED SPEED

SPEED SPEED SPEED

SPEED SPEED SPEED

SPEED SPEED SPEED