

氏 名	かわ 河	むら 村	ふみ 文	お 雄
授 与 学 位	工	学	博	士
学位授与年月日	昭和51年3月25日			
学位授与の根拠法規	学位規則第5条第1項			
研究科，専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 化学工学専攻（博士課程）			
学 位 論 文 題 目	結霜をともなう混合ガスの分離過程における熱伝達			
指 導 教 官	東北大学教授	大谷	茂盛	
論 文 審 査 委 員	東北大学教授	大谷	茂盛	東北大学教授 前田 四郎
	東北大学教授	只木	楨力	東北大学教授 斎藤正三郎

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 緒 論

化学工学においては分離プロセスは極めて重要な地位を占めている。分離操作には種々の場合があり、それぞれに対していろいろな方法が考案されている。気体混合物の分離には第3物質を利用するガス吸収あるいは吸着などの単位操作が一般に行なわれているが、特殊な場合の一つとして凝固点の違いを利用して混合ガス中のある成分を霜状析出物として取り出し分離、精製を行なう方法がある。この結霜現象を利用した最近の例としてはウランの遠心分離法による濃縮過程において235リッチのUF₆を分離する際コールドトラップを用いて捕集する場合などに応用され工業的には注目を浴びている分野の一つである。

しかしこのような結霜現象は相変化を伴う熱と物質の同時移動現象でありさらにそれら移動過程には析出物の性状が複雑に影響する。しかも混合ガスの場合には扱うガスの種類や条件によって析出物が気体から液体を通らず直接固体を生成するいわゆる昇華の場合や、あるいは気体から液体の過程を通り生成する凝縮・凝固の場合があるなど、その実験および解析にあたっては多くの困難を伴うのが常である。

結霜過程を扱った従来の研究は自然対流および強制対流下の両方とも大部分は混合ガス系として空気・水蒸気系を取扱ったいわゆる「霜」の場合で、例えば強制対流下の水平平板上での結霜過程について報告を行なった山川らの研究など約30編の報告がある。

しかしながら空気・水蒸気系以外の系の混合ガスの結霜現象を扱った研究は極めて少なく、窒素・二酸化炭素系において強制対流下で実験を行なったReidらの研究など数編を数えるにすぎない。しかもこれらの研究は装置上および測定上の問題点を含んでおり精度的にも十分といえるものは少なく、この様な混合ガスの系の場合における結霜時の熱および物質移動機構に関してはいまだ十分な説明がなされているとはいえない。

本論文では結霜をとまなう場合の混合ガスの分離過程における熱伝達機構および物質移動機構を解明する目的で、空気・六フッ化硫黄(SF_6)系あるいは空気・二酸化炭素(CO_2)系の混合ガスを冷却した水平平板上に流しその面上に SF_6 あるいは CO_2 を析出させ、その際の析出層の状態、析出量、析出層の厚さ、密度、析出層・気流間の局所熱伝達係数および析出層の有効熱伝導度などを実験的に求め検討を行なった。さらに物質移動が熱伝達におよぼす影響についての若干の理論的考察、および既往のモデルによる析出層の有効熱伝導度の推算の適否等についても検討を行なった。

第2章 実験装置・測定方法および実験条件

結霜現象を実験的に検討するにあたって、析出現象が非常に緩慢ではあるが時間とともに変化して行くこと、強制対流下の場合には場所的にも析出層の性状は大きくことなること、さらに精度や信頼性の高いデータが得られるようになど考慮し装置および測定方法の全般にわたって検討を行なった。また本実験では同伴ガスとして空気を使用した。が、 SF_6 または CO_2 の析出層を析出させる際同時に水の霜が出来ることのないよう混合ガス中の水分を十分除去することが必要であるので脱湿装置に十分留意した。測定にあたっては固体の熱伝導度測定法の一つである比較法の原理を応用した。すなわち伝熱板には厚いステンレススチール板を標準板として用い、その面上に析出層を霜状に形成させた。析出層・気流間の局所熱伝達係数 h などの局所の諸量の測定は助走区間を実験的に検討した結果、気流も十分発達し熱的に定常状態となっている地点で行なった。

前述のように混合ガス系の結霜実験においては気流中の水分が測定値に大きな影響をおよぼす

と考えられる。このため気流中の水分の除去について十分考慮し、その影響についても実験的に検討を行なった。その結果、本実験で用いた脱湿装置で得られる乾装空気を用いても水分の影響はほとんどないことを確認した。

第 3 章 空気・六フッ化硫黄系および空気・二酸化炭素系における析出層の性状

本章では本実験で求めた空気・ SF_6 系および空気・ CO_2 系での析出層の状態、物質移動量、析出層の厚さおよび析出層の密度について検討を行なった。

その結果、写真観察によると両系とも析出層の状態は初期段階では急激な変化をみせるが、30～40分を経過するとその変化はゆるやかになる。析出層表面は平坦ではなく凸凹をもっており混合ガス系の種類によりその性状はかなりことなっている。 SF_6 系では菱形断面の性状の結晶であり、 CO_2 系では六角盤状の結晶の析出層である。

物質移動量、すなわち析出量は両系とも実験を行なった2時間程度までは時間の経過とともにほぼ一定の割合で増加するという同一の傾向を示した。また Re 数、すなわち気流速度が大きいほど物質移動量は多くなり、濃度の低い場合はその量は少なくなる。さらに混合ガス中の SF_6 あるいは CO_2 ガスが伝熱面にどの程度の割合で析出するのかをみるため捕集率についても検討した。

析出層厚さは両系とも時間の経過とともに厚くなって行き、やがてその増加率は減少し一定値に近づく傾向がみられた。また濃度が低い場合は厚さはうすくなっている。気流速度の影響についてはあまり明確ではないが SF_6 系と CO_2 系とでは両系で析出層の結晶の性状がかなり異なるため違った傾向を示した。しかしながら全般的にみて両系とも厚さはそれほど違わない値を示しており物性の違いの影響は厚さには顕著にあらわれなかったものと思われる。

析出層密度は両系とも時間の経過とともに増加しその増加率は一定(SF_6 系)かやや減少(CO_2 系)する傾向を示し、 Re 数が大きいほど密度は大きく、濃度の低い場合は密度の小さい析出層ができる。また写真撮影および析出量、析出層厚さ、析出層密度の経時変化より SF_6 や CO_2 は析出層表面だけでなく層内部でも析出していることが推察される。

第 4 章 空気・六フッ化硫黄系および空気・二酸化炭素系における熱移動速度 および析出層表面の熱伝達係数

本章では熱流束、熱伝達係数など熱的測定の結果についてのべた。両系とも熱流束は Re 数が大きいほど大きい値を示し、その絶対値は時間とともに減少し各々の条件下でそれぞれ一定値に近づく傾向がみられた。濃度が低い場合は潜熱移動量が減少するため熱流束は若干少なくなっている。

熱伝達係数 h の値は両系とも Re 数が大きいほど大きい値を示し、実験開始後約40分を経過

すると時間による変化が少なく各 Re 数でそれぞれほぼ一定値を示した。また h の値は両系ではほぼ同程度の値を示した。

熱伝達係数 h は物質移動および析出層表面の粗さの影響を受け単純伝熱（熱移動のみ）の場合にくらべ 1.5 ～ 2 倍程度大きい値を示した。なお熱的測定の健全性を確認するため単純伝熱の場合の実験も行ない既往の式とよく一致することを確認した。物質移動の h におよぼす影響をみるため析出層存在下で物質移動のおきない状態での実験を行ない（すなわち同じ表面粗さの状態）で、 h はかなり大きくなることがわかった。その結果、物質移動及び析出層表面の粗さのそれぞれの影響を Nu 数対 Re 数の線図中に定量的に示した。また物質移動のある場合、境界層内で SF_6 や CO_2 が凝固し、潜熱を放出し、境界層内温度勾配が急になるため h が大きくなると考え、これを層表面近傍での気流の温度分布の測定を行なうことにより実験的に裏付けた。

第 5 章 物質移動をともなう層流熱伝達の理論的考察

伝熱過程で物質移動が存在する場合、熱伝達係数 h が大きくなるのか小さくなるのかは興味ある問題である。本実験によれば空気・ SF_6 系および空気・ CO_2 系の結霜現象においては物質移動が存在する場合、それが無い場合にくらべ h は大きくなるという結果が得られた。そこで本章では物質移動の熱伝達係数におよぼす影響について理論的に考察を行なった。

本実験のような結霜を伴う層流熱伝達を二次元層流境界層近似を用いて簡略化し境界層内の温度分布、濃度分布を求めた。さらに実験事実をふまえ境界層内で温度と濃度の平衡関係が成立していると仮定し、平衡関係を用いて単純伝熱の場合の温度分布と物質移動のみの場合の濃度分布を相互に修正する計算を行なって物質移動の存在する場合の温度分布を求めた。そして物質移動が存在しない場合の温度分布と比較したところ壁面での温度勾配が物質移動の存在する場合、急になるという結果がえられ、実験でえられた h が大きくなるという結果を半定量的に裏付けることができた。

第 6 章 霜状析出層の有効熱伝導度

結霜過程において伝熱面に堆積した析出層は熱抵抗となるため熱移動を大きく支配する。このため混合ガスの分離過程などの装置設計にあたっては析出層の有効熱伝導度を的確に把握することは極めて重要なことである。

析出層の有効熱伝導度 λ_f を実測し、析出層の性状をあらわすと考えられる析出層の密度 ρ_f で整理した。その結果 λ_f は ρ_f の増加とともに増加しているが実験条件の違いによりかなりのバラツキを生じ単に ρ_f のみの関数でないことが示された。

析出層は固体の SF_6 （あるいは CO_2 ）と空気から構成される一種の充填層であり熱移動の大部分は固体部でおきていると考えられる。このため、これら析出層の有効熱伝導度を的確に把握する

にはSF₆あるいはCO₂の固体そのものの熱伝導度を知ることが不可欠である。しかしながらこれら固体の熱伝導度の値については文献値がほとんど見当たらないので比較法を用いて熱伝導度の測定を行なった。

そこでこれらの値を用いて、大谷・山川が先に提出した空気・水蒸気系の霜層における λ_f の推算法、いわゆる氷柱モデルが本研究における系に対しても適用できるか検討を行なった。その結果、モデルでの伝導伝熱に対する補正項 α_0 を考慮することにより本実験のような混合ガス系に対しても比較的よい推算が可能であることがわかった。

第7章 総 括

結論として本論文を要約した。

審査結果の要旨

混合ガスの分離に、凝固点の違いを利用してある成分を霜状析出物として取出す方法があり、近年ウランの遠心分離法による濃縮過程にも応用され注目を浴びている。かかる結霜現象は熱と物質の同時移動現象であり、さらに析出物の性状が複雑にからみあい、従来は空気・水蒸気系の実験が大部分であり、他の系についての研究例は極めて少ない。本論文は空気・六フッ化硫黄系および空気・二酸化炭素系をえらび、結霜をともなう場合の混合ガスの分離過程における熱伝達および物質移動機構を解明する目的で行った強制対流下における基礎的研究をまとめたもので、全編7章よりなる。

第1章は緒論であり、本研究の目的を述べている。

第2章では比較法の原理を利用して局所の熱流束などを精度よく測定できる装置について説明し、さらに諸実測値に悪影響を与える空気中の水分の除去にとくに意をもちいている。

第3章では霜状析出層を写真観察すると共に、析出層の厚さ、密度などの性状および物質移動量の経時変化を実測し、諸条件との関係を明らかにしている。

第4章では局所熱流束および霜層表面の熱伝達係数など熱的測定結果について述べている。熱伝達係数は単純熱伝達の場合に比較して1.5～2倍程度大きい値を示しているが、それにおよぼす霜層表面の粗さの影響および物質移動による影響を実験的にそれぞれ分割して明示している。

第5章では前章における熱伝達係数が物質移動の存在のために大きくなる理由を理論的に考察し、境界層内の温度勾配を計算して実測値と比較して良い一致をみている。

第6章では霜状析出層の有効熱伝導度について述べている。六フッ化硫黄および二酸化炭素の固体そのものの熱伝導度を別にあらたに測定し、氷柱モデルをもちいてそれぞれの析出層の有効熱伝導度を推算し、実測値と比較すると共に、第3章の写真観察の結果と関連して考察している。

第7章は結論である。

以上要するに本論文は混合ガスの分離過程における結霜伝熱の機構を明らかにしたもので、化学工学ならびに伝熱工学の発展に寄与するところ少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。