

| | |
|-------------------|--|
| 氏 名 | 三 浦 隆 利 |
| 授 与 学 位 | 工 学 博 士 |
| 学 位 授 与 年 月 日 | 昭 和 5 2 年 3 月 2 5 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 (博 士 課 程) 化 学 工 学 専 攻 |
| 学 位 論 文 題 目 | 噴 霧 乾 燥 塔 内 に お け る 伝 熱 特 性 |
| 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

噴霧乾燥法は製造工業の多岐に亘って応用されている。したがって噴霧乾燥塔の設計などは、すでに完成された技術であり確立化されているように思われがちである。しかしながら噴霧乾燥の基本的技術には複雑な現象がからみ合い、多くの問題点を含み理論が実際現象を表現できず、個々の現象を単純化あるいは単一化して研究している段階である。

本研究は噴霧乾燥に関する単位操作のうち①噴射ノズルによる液体の微粒化特性、②液滴と熱風間に生じる熱および物質移動、③液滴と熱風の流動状態、そして④熱風流の物性変化について総合的に検討を加え噴霧乾燥工学を幾分でも系統だてることを目的としたものであり全篇7章より成っている。

第2章 二流体ノズルによる微粒化特性

液体を微粒化することは、液体の表面積が著しく増大するという利点があるため二相間の熱および物質移動などの促進手段として幅広い分野に応用されてきた。乾燥や燃焼などの基礎的研究となる気相中の液体 jet については、古くから理論的解析が行われている。しかし実際に用いられる噴霧器においては、液体の微粒化現象がほとんど一瞬のうちに終了してしまうので、その機構を解明し得ないのが現状である。

本研究においては、二流体ノズルによる微粒化特性を検討するためそのモデル実験として比較的簡単な装置を試作し、水中に灯油を噴出させて微粒化機構の実験的検討を行うと共に、周囲流体の密度および粘性などの影響も考慮した理論的解析とも比較・検討を行った。この際の分散相および連続相の運動方程式、連続の式およびジェット表面での境界条件はそれぞれ

$$\begin{aligned} \text{分散相 : } \quad & \partial \mathbf{u} / \partial t = -\nabla p / \rho + \mu \nabla^2 \mathbf{u} / \rho, \quad \nabla \mathbf{u} = 0 \\ & v = \partial r / \partial t, \quad \partial u / \partial r + \partial v / \partial z = 0 \\ & -(P+p) + 2\mu \partial v / \partial z = -\hat{p} - \sigma (1/R_1 + 1/R_2) \quad \text{at } r = a \\ \text{連続相 : } \quad & \partial \hat{\mathbf{u}} / \partial t + v \partial \hat{\mathbf{u}} / \partial z = -\nabla \hat{p} / \rho + \hat{\mu} \nabla^2 \hat{\mathbf{u}} / \hat{\rho}, \quad \nabla \hat{\mathbf{u}} = 0 \\ & v = \partial r / \partial t + v \partial r / \partial z \quad \text{at } r = a \end{aligned}$$

また全ての変数は一般形で $f(r, z, t) = F(r) e^{ikz+qt}$ で表わされると仮定して解くと

$Q^2 F_1 + QF_2 (F_3 + C_1 i) - x^2 (1 - x^2) (y^2 - x^2) / (y^2 + x^2) - F_4 (W_{eA} + C_2 i) = 0$
気液系の場合には周囲流体の密度および粘性の項が無視できるとして虚数項を省略したが、液一液系の場合にはこの項をも考慮に入れ実験値と関連させ次の補正を施した。

補正(1)の方法の場合 : $C_1 = -i, F_4 (W_{eA} + C_2 i) = 0.0012 Z^{-1}$

補正(2)の方法の場合 : $C_1 = (1.43 \ln Bo + 5.1) i, C_2 = 4.35 \ln Bo - 3.01$

という結果を得た。

jet 形成時の Force balance から jet 化速度 V_j は $V_j = \left\{ \frac{3}{\rho \, dn^2} (\sigma dn - g \rho dp^3 / \sigma) \right\}^{1/2}$ で与えられた。この時点における滴径は本実験および既往の研究結果と関連し $dp/dn = 1.31 (dn^2 g \rho / \sigma)^{-0.3}$ で与えられることがわかった。

ノズルに振動を与えることにより分裂長には著しい減少をみたが滴径にはさほど影響が観察されなかった。しかし滴径の均一性という結果を得、その周波数にはある範囲があると思われるその下限は Rayleigh の解析値の約 0.4 倍であった。一方その上限は jet 流速が 80 cm/s の場合に極大値をとり Rayleigh の解析値等と関連できなかつた。

上記の如く外部から振動を与えた場合均一径滴の生成が期待できその観点から微粒化用空気流で液流ノズルを定常的に振動させ、その微粒化特性を実験的に検討した。液流ノズルの振動によ

って液流が気流の流域外に出ると液粒は十分微粒化されずそのまま液滴となり気流の運動エネルギーを十分利用しないことになる。しかし液流ノズルを気流ノズルの先端の中心に固定し振動がある程度抑えた場合、棚沢らの薄刃気孔を用いた二流体ノズルの場合より低い体面積平均径を得、次の実験式が求まった。

$$d_{32} = 2.45 \times 10^4 (Q_a/Q_l)^{-1.36} Q_l^{-0.89} \quad [\mu]$$

混合室の内部に溝つきコアを挿入した内部混合型ノズルを試作し微粒化特性を検討した。溝つきコアを挿入せず混合室の長さが12～34mmの長さの場合、混合室の長さによらずほぼ同様の傾向を体面積平均径に示し、コアを挿入した場合は混合室の長さが大きくなると一度環状流あるいは噴霧流になった液流をもう一度コアで収束して旋回を加えて流すことになるためコアを挿入しない場合より平均径は大きい値を示した。しかし混合室の長さが小さくなると、平均径は小さい値を得た。

第3章 加圧型ノズルによる微粒化特性

液体を微粒化した場合、液滴の平均径、粒度分布、噴霧角度や分散度などの噴霧特性が重視されてきたが噴霧流の蒸発過程を解析する際、噴霧流内に吸引される周囲空気および噴霧流の運動を考慮する必要がある。

本章では Isokinetic Probe を試作し Hollow cone nozzle によって生成される噴霧滴によって生成される噴霧滴によって同伴される気流速度を測定し液滴速度を算出した。

液滴の平均径については半径方向および噴霧軸方向について測定・算出したが、噴霧軸の中心に比較的小きな粒子が存在し、スプレー周端に近づくにつれ大きな滴程遠心力によって半径方向に拡散するため大きな粒子が存在することを観察した。一方噴霧軸上の平均滴径に関しては極小を示す噴霧軸上分布曲線が得られた。分散量分布はノズル近傍で特に、噴霧の周辺において極大をもつ曲線を得た。

噴霧流によって生じる抗力は、噴霧流全域を通じて気流に作用しこの抗力の項が運動方程式を非線形化している。したがって解析的に同伴気流速度を得るよりも利用し易い実験式を求めた方が良く、本実験範囲内で $u_x = u_{xc} \exp(-y^2/c_1 x^{c_2})$ なる式で近似できることが判明した。また噴霧圧が6atgの場合、中心軸上同伴気流速度は $u_{xc} = 1.2 \exp(-0.22\sqrt{x})$ であり、同伴空気量は $W_e = 7.27 \ln x + 0.427$ であった。

一方液滴速度は噴霧流と空気流の両者の運動量が、この両者からなる流れの全圧に等しいとして算出した。この値は各測定点を通過する滴の平均速度と考えられ、この曲線の傾向は気流の拡がりと同様である。噴霧圧は同伴気流速度には余り影響しないが、液滴速度にはノズル域で多少の変化がみられた。これらの実験結果から同伴気流速度の増大には液滴径が小さく空間中に滴の

占める密度の増加をはかり液滴流と空気流の運動量交換を効率良く行わせれば良いなどの知見を得た。

第4章 噴霧乾燥塔内における噴霧滴の蒸発特性

噴霧乾燥塔内における滴の軌跡とその滞留時間に関する知見を得ることは、噴霧乾燥塔の設計上そしてその効率良い運転操作に対して非常に重要なことになる。現在まで多くの試みが塔内の滴の軌跡の推算あるいは実験的裏付けを行うためになされてきた。しかし従来の研究は非現実的あるいは単純なモデルに基づいて行われ、乾燥過程中に生じる移動現象間の多くの複雑な相互関係を説明し得なかった。

本章では、実験の噴霧乾燥における移動現象が自由落下あるいは浮遊状態の滴からの移動現象であることを考慮し、高温上昇気流中に単一水滴（約3 mm ϕ ）を浮遊させその移動係数を求め従来の懸垂滴の結果と比較・検討し、従来の懸垂法による実験式を外挿することによりその移動現象を説明できることを確認し、次に二流体ノズルあるいは加圧型ノズルから生成した液滴群の蒸発・乾燥に着目し、滴と空気流の流動状態を考慮し空気湿度、温度および液滴温度などの逐次変化のある場合の噴霧滴の挙動の解析を試み、試作した垂直並流型噴霧乾燥塔での実験結果との比較・検討を試みた。

本解析では、この現象を解析するに際し次の仮定を設けた。

- ①乾燥塔内各断面において spray は均一に分散しているとした。
- ②実際の塔内では滴同志が密集した状態で蒸発・乾燥が進行しているが、この移動を Ranz-Marshall の式から得られる係数で代表させた。
- ③粒径分布は室温でノズル直下約1.5 cmの所で採取したもので代表させ総個数は棚沢らの式から誘導した。噴霧滴はノズル直下1.5 cmの点を通過後、凝集および再分裂を生じない。
- ④乾燥塔内の熱風流を一様な速度分布とし熱損失を無視した。
- ⑤二流体ノズルの場合ノズル出口において液滴と空気 jet 速度とは等しいと仮定した。加圧型ノズルのこれらの特性は第3章に従った。

噴霧流の流動状態をノズル域と終末速度域との2つに分け、ノズル域では jet 流によるまき込み流により熱風が噴霧流内に導入され蒸発が生じると考察し上記の仮定を考慮し、運動方程式および物性変化式等を連立し逐次計算することによりこの計算値と噴霧軸方向の空気流の温度および湿度分布の実験値とのある程度の一致をみた。さらに任意の液滴径における液滴温度の計算値はノズル近傍で液滴径により多少差が生じた、実験値は熱電対に連続的に付着する水滴の平均温度を示し、この値に計算値が漸近していくのが判明した。

第5章 塔内における周囲滴の存在を考慮した場合の噴霧滴の蒸発特性

噴霧乾燥塔内で密集した状態で進行する滴群からの蒸発速度の評価およびコアンダ効果によって生じる逆混合流，粒子の塔壁付着，塔型式および塔容積などの装置特性からの熱損失の評価をし，実際現象に即したモデル化を解析にあたって行う必要がある。

本章では，滴群からの移動現象の基礎的研究として水滴およびガラス球を3種の配列状態で懸垂し，水滴からの蒸発実験を行い単一滴の場合の熱および物質移動係数 (Nu_0 or Sh_0) と比較，検討し次の実験式を得た。

$$\begin{aligned} \text{直列配置の場合} \quad b/dg < 2 \quad Nu/Nu_0 &= 0.71 (b/dg)^{1/4} \cdot (dp/dg)^{1/6} + 0.07 \\ b/dg > 2 \quad Nu/Nu_0 &= 0.42 (b/dg)^{1/8} + 0.41 \end{aligned}$$

$$\text{並列配置の場合} \quad Nu/Nu_0 \doteq 1$$

$$\begin{aligned} \text{千鳥型配置の場合} \quad dp/B < 2 \quad Nu/Nu_0 &\doteq 1 \\ dp/B > 4 \quad Nu/Nu_0 &\doteq 0.57 \end{aligned}$$

第4章の解析の際に更に半径方向の滴速度成分も考慮し，滴が半径方向に拡散するとした場合，滞留時間の増加のため蒸発量が多くなり若干の気流温度の減少そして気流湿度の増加という結果を得た。

上記の滴群からの熱および物質移動係数が噴霧乾燥塔内の伝熱特性に適用できるか否かを第4章で述べた解析法に修正を加え，更に熱損失をも考慮し，第4章における計算値より一層実験値と一致することが判明した。熱損失は蒸発量に比例するとした場合および距離の関数とした場合の2通りで計算を行ったのであるが，両者とも定性的には同様の傾向を示したが，距離の関数として実験値と相関した方が乾燥塔の伝熱特性をうまく説明し得た。

次に噴霧乾燥塔内における噴霧滴の蒸発過程における粒度分布の変化に関する知見を得るため evaporation Index Y_i を導入すると任意の点での体面積平均径 d_{pi} は $(d_{pi}/d_{po})^3 = f(Y_i)$ なる式で表わされることが判明した。

第6章 固形分を含む噴霧滴の乾燥特性

固形分を含む噴霧滴の乾燥は初期においては恒率乾燥であり次第に減率へと移行する。この乾燥機構の変化は滴表面への結晶析出あるいは皮膜の生成にあると考えられる。

本章では固形分を含む噴霧滴の乾燥が結晶析出の瞬間に行われなくなると仮定し，塔内滞在時間が結晶析出時間に達した時点でその群の滴からの熱および物質移動を停止させ，乾燥空気の色度および湿度そして溶液濃度の変化を求めた。解析の際結晶析出時間は従来の研究に従い，更に第5章における周囲滴の存在および熱損失をも考慮することにより実験値とはほぼ一致するという

結果を得た。

このような微小噴霧滴 (約 $30 \mu\phi$) の乾燥では、乾燥塔内に 0.2 秒程度の滞在時間であっても、従来の懸垂系による比較的大きな滴 (約 $1.6 \text{ mm}\phi$) で 420 秒位の乾燥時間を要した場合と類似した現象を呈した。

固形分を含む噴霧滴の体面積平均径の推移は小滴でも固形分を含み蒸発・消滅なしと仮定すると任意の点での滴の数は初期の場合と同一視されるので $(dp_i/dp_0)^3 = C_1 - C_2 Y_i$ という関係が得られる。しかし物性の相違等から曲線は乾燥材料により異なる曲線を得た。

第 7 章 結 論

本章は結論であり、研究結果を総括した。

記号の説明

| | |
|--|--|
| b : 滴表面間距離 | V : ジェット速度 |
| B : 千鳥型配置における上流側滴の表面間距離 | W_{eA} : 周囲流体側 Weber 数 |
| Bo : ボンド数 | x : ka |
| dg : 上流側の滴径 | y : $x^2 + Q/2Z$ |
| dn : ノズル径 | Y_i : $\frac{dp_i}{P_f} \cdot \Delta\theta \cdot Sh$ |
| dp : 滴径 | Z : Ohnesorge 数 |
| $F_1 \sim F_4$: 第一種および第二種の変形ベッセル関数を含む関係式 | <ギリシャ文字> |
| k : 波数 | ρ, μ, σ : 液の密度, 粘度, 表面張力 |
| p : 圧力 | θ : 時間 |
| Q : 乱れの無次元成長速度, $q\sqrt{2\rho a^3/\sigma}$ | $\Delta\theta$: $9\mu a\theta/\rho dp_0^2$ |
| u : 速度 | |

審 査 結 果 の 要 旨

液状原料から一挙に粒・粉状物質を製造することができる噴霧乾燥法は食品、洗剤、肥料および薬品工業などの方面で広く用いられている方法であり、また近年は工場廃液や尿処理の面でも注目をあびている。しかし噴霧乾燥は高濃度・高粘度液体の輸送およびその微粒化、液滴と熱風間における熱および物質移動、滴と熱風の混相流動および固・気系分離など多くの単位操作を包含しており、経験的な手法にたよる面が多い。

本論文は噴霧乾燥の系統的な解析を目的として、滴群の生成から蒸発・乾燥にいたるまでの過程を噴霧流の流動挙動および塔内における熱風流の物性変化をも考慮に入れて解析した基礎的研究の成果をまとめたもので、全篇7章よりなる。

第1章は緒論であり、本研究の動機とその目的を明らかにしている。

第2章では周囲流体の密度および粘度の項を考慮して液体の微粒化機構を論じ、液柱分裂の解析に2個の修正係数をBond数と相関して導入し、分裂長および滴径に関してほぼ満足な推算を可能にしている。さらに外部混合型二流体式噴霧の場合、液流ノズルを振動させることにより、従来の実験値より小さい平均径の滴を得ている。

第3章では噴霧滴群により同伴される気流速度を等速吸引法により測定し、液滴速度を算出している。同時に液滴の分散状態および滴径分布などをも実測し、伝熱特性解析のための資料を得ている。

第4章および5章では試作した垂直並流型乾燥塔において、二流体式および加圧式ノズルを用いて実験を行い、同時に空気温度、湿度および液滴温度等が逐次変化する場合の噴霧滴の蒸発特性を解析している。とくに第5章では塔内における周囲滴の干渉効果および塔壁からの熱損失をも考慮に入れ、より実際の現象に則した解析を行い、実測値と比較し良好な一致をみている。さらにEvaporation Indexなる新しい概念を導入することにより、蒸発過程における噴霧滴の体面積平均径の時間的変化を推算できることを提唱している。

第6章では固形分をふくむ噴霧滴の乾燥特性について述べている。恒率乾燥から減率への移行は結晶が析出しはじめたときであるとして解析し、かかる場合も前章の手法が適用できることを明らかにしている。

第7章は結論である。

以上要するに、本論文は多くの単位操作の組合せである噴霧乾燥を微粒化から乾燥特性にいたるまで、系統的に解析したものであり、噴霧乾燥における設計ならびに操作上重要な知見を多数提供しており、化学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。