

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月15日現在

機関番号：11501

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560789

研究課題名（和文） 二重螺旋型熱交換器を応用した高性能反応器の開発

研究課題名（英文） Development of Highly Performance Reactor
by Use of Double Spiral Heat Exchanger

研究代表者

栗山 雅文（KURIYAMA MASAFUMI）

山形大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：90107178

研究成果の概要（和文）：著者らが開発した二重螺旋型熱交換器を反応器に応用した。反応には2種類の加水分解反応を用いた。その結果、直管型反応器と比べて高い反応効率を有することを確認した。この原因を、流路内で生じる二次流れによる混合効果と結論付けた。

研究成果の概要（英文）：Double spiral type heat exchanger which was developed by the authors was applied to compact reactor. Two types of hydrolysis reaction were caused in passage of the heat exchanger. It was confirmed that the rate of reaction in double spiral type passage have higher value than those of the straight type reactor. This reaction enhancement was resulted from the mixing effect caused by the secondary flow.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	2,700,000	810,000	3,510,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：プロセス工学

キーワード：二重螺旋型反応器，二次流れ，反応速度，コンパクト反応器

1. 研究開始当初の背景

申請者はこれまで、潜熱蓄熱微粒子スラリーを応用した高効率コンパクト熱交換器の開発を手掛けており、2005～2006年度に科学研究費補助金・基盤研究C（課題番号17560657）「蓄熱潜熱カプセル-水系混相流を利用したマイクロ熱交換器設計に関する基礎研究」および2007～2008年度に科学研究費補助金・基盤研究C（課題番号19560751）「潜熱蓄熱微粒子スラリーを応用した高効率コンパクト熱交換器の開発」にて成果をあげ、プロセス強化の国際会議（IWP I 2008）などで報告している。その

結果、蓄熱微粒子自身の密度、熱伝導度、比熱および潜熱量などの熱物性値の推算を可能とし、これを新規に開発した二重螺旋型熱交換器に応用することで、相変化を伴わない条件に比べて2倍以上の受熱能力を有することがわかった。これは蓄熱微粒子スラリーの相変化による潜熱吸収と、螺旋型流路による二次流れの影響に起因する。この効果を利用して、二重螺旋型熱交換器を化学反応場などに応用すれば、二次流れの混合効果と化学反応による吸熱・発熱の制御が可能となり、従来の装置よりもコンパクトで能力が数倍高い化学反応気もしくは熱交換器の実現が

可能となる。

これに関する国内外の研究についてであるが、二重螺旋型の熱交換器に関する研究は極めて少なく、類似する研究例として比較的大規模なヘリカルコイルなどの曲率を有する流路を用いた熱交換器内に水などの単相流体を流した研究例が散見できるのみである。さらには、このような流路を反応器に適用した例はほとんど見受けられず、したがってコンパクトな螺旋流路内で生じる二次流れが反応効率に及ぼす影響を考察した研究例は見当たらない。

2. 研究の目的

本研究では、上述のような申請者によるこれまでの成果を基に、二重螺旋型熱交換器を発熱もしくは吸熱を伴う化学反応場に応用するとともに、その際の伝熱特性の評価を行うことにした。すなわち、曲率のある流路内を反応液が流れた際の二次流れによる混合効果を利用して、化学反応の促進と、反応時に発生あるいは吸収する反応熱の効率的な除去もしくは授与の促進を二重螺旋型熱交換器で行い、新規な化学反応場の開発を目的とした。

3. 研究の方法

申請者は、科学研究費補助金(課題番号19560751)を受けて、図1に示したような二重螺旋型熱交換器の優れた熱交換能力を明らかにしており、本研究ではこれを反応器に応用することを目的とした。しかし、この熱交換器一層では、流路長さが短く、十分な反応を起こせない場合もあると考えられる。したがって、実際に反応実験をする前に、流路面積(反応液の滞在時間)の拡大にも対応可能な装置を開発するべく、熱交換器を4層に積層した装置を用いた熱交換実験を行い、流路面積の拡大を図るとともに、熱伝達特性の定量的把握を行った。

次いで、図2に示したような装置を用いて実際に流路内で反応を起こし、流路長さおよび流路の断面積が等しい直管型反応器との

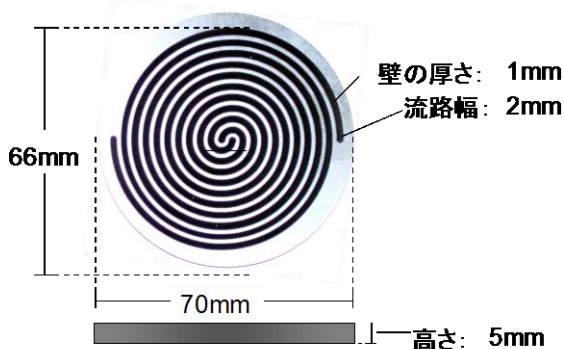


図1 二重螺旋型熱交換器

比較から、反応特性の優位性を確認した。反応系としては、実際の工業に応用しやすい、粒子析出反応解析や発熱反応の温度制御などが考えられるが、まずは第一歩として、酢酸エチルもしくは無水酢酸の加水分解反応を取り上げ、その反応率の変化を考察した。

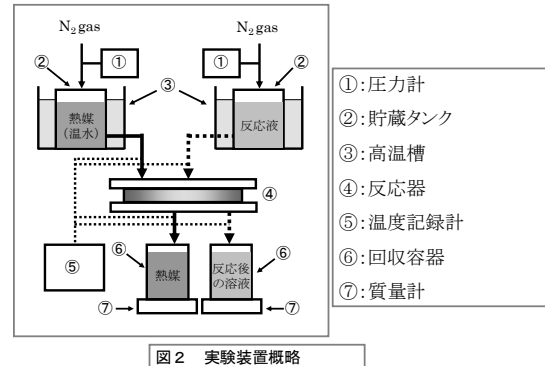


図2 実験装置概略

4. 研究成果

2009年度には、本研究の基礎となる2重螺旋型熱交換器の積層化を行った。すなわち、熱交換器1段では流路が比較的短く、反応するに十分な滞在時間が得られない可能性があるため、4層の積層構造とすることで滞在時間の延長を図った。この測定においては、これまでに実績のある蓄熱微粒子スラリーを用いて熱交換実験を行い、伝熱特性に及ぼす積層化の影響を考察した。その結果、ここでは図示しないが、4層に重ねることで流路長さを4倍に延長し、装置内滞在時間の延長とさらなる高流速条件下での操作が可能となった。

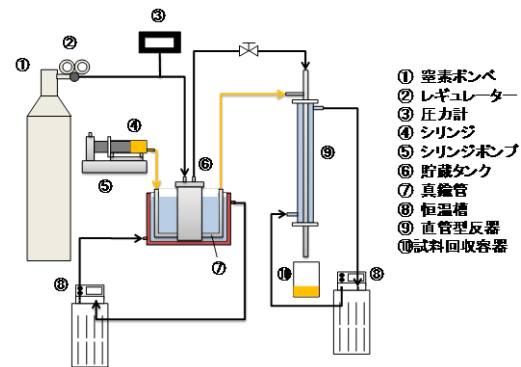


図3 直管型反応器の実験装置概略

2010年度には、2重螺旋型流路の反応器としての優位性を確認する第一歩として、酢酸エチルの加水分解反応を流路内で生じさせた。さらに、図3のように、流路断面積および流路長さが螺旋流路と等しい直管型反応器も別に作製し、双方の反応率を比較考察した。結果の一例を図4に示したが、レイノルズ数すなわち流速がある程度大きい領域において、二重渦巻き型反応器の反応率が直管型の値よりも大きいことがわかる。これは、流路が曲率を有することに起因して流路内

で生じる、主流方向とは別の速度ベクトルを持つ二次流れの影響と考えられる。これに関して、曲率を有する流路内で二次流れが発生する条件について既往の研究を調べたところ、本研究の装置条件ではレイノルズ数が70程度を超えると発生し始めることがわかった。このことから、本研究で確認された反応率の向上は、直管型反応器では発生しない二次流れによるものと結論付けた。なお、これらの測定は、流路内で熱交換しない条件すなわち反応液が所定の温度となるようにして行った。具体的には、2重螺旋型反応器の場合には反応液と同じ温度の水をもう一方の流路に向流で流し、直管型反応器の場合には反応液と同じ温度の水を反応管周囲のジャケットに向流で流すことで、双方の反応器共に液温が等温になるようにした。

2011年度にはまず、さらなる実測値の蓄積を目的として、より反応が迅速に進むと思われる無水酢酸の加水分解反応を取り上げ、二重渦巻き型反応器と直管型反応器の反応率と流速の関係、特に2次流れが生じる高いレイノルズ数域で測定した。その結果を図5に示した。塗りつぶしのプロットが直管型反応器、白抜きのものが二重螺旋型反応器の結果であるが、図から明らかなように、無水酢

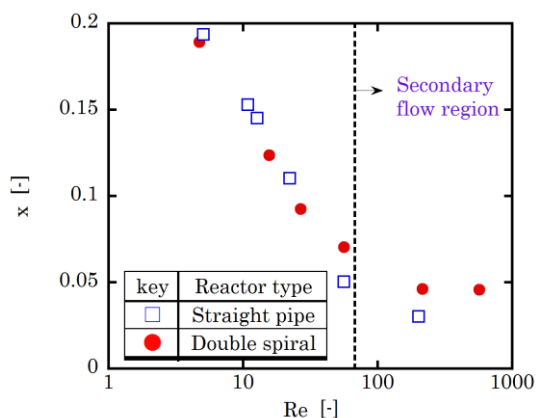


図4 Reと反応率の関係

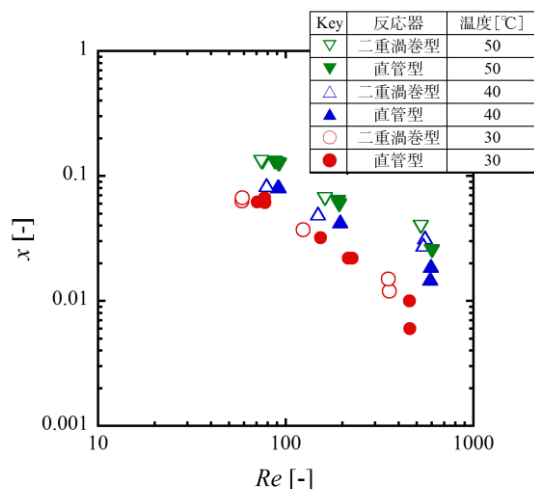


図5 レイノルズ数と反応率の関係

酸の加水分解反応では、2010年度に行った酢酸エチルの加水分解反応と比べて二次流れによる効果が現れにくく、高レイノルズ数域において若干の二次流れの効果が認められるにすぎない。この原因として、無水酢酸の水との混合性が酢酸エチルのそれと比べて極めて悪いことが挙げられる。すなわち、無水酢酸が水層に注入されると、一見油滴のような状態となり、その界面でのみ加水分解反応が進行する。したがって、酢酸エチルのように水との混合性がよい液体同士の反応と比べて無水酢酸の加水分解反応には二次流れによる混合性の違いが明確に現れなかったものと考えられる。

また、2011年度には、反応器流路内で熱交換しながら反応が進行する系での測定も行った。すなわち、反応液が所定の低温で反応器に流入し、別の流路に流した温水によって加熱されながら反応が進行する実験を行った。この時の反応率の測定結果の一例を図6に示した。この結果は、反応液の反応器入り口温度を25°Cと固定し、反応器出口温度が55°Cになるように、もう一方の流路に流す温水の温度と反応液の流速を調節した時のもので、反応液の入り口と出口の平均温度は40°Cである。したがって、図中には熱交換なし(反応液温度が40°C一定)の場合の二重螺旋型反応器および直管型反応器の結果も示してある。図の横軸は反応器内滞在時間、すなわち反応時間であり、時間が短いほど装置内を流れる流速が大きいことを意味する。熱交換なしの条件では、流速が極めて早い条件、すなわち滞在時間が短い条件で、二次流れの影響により直管型反応器の反応率よりも大きい値を取るが、滞在時間が増加すると共に流速が遅くなると二次流れも発生し難くなるので両者の差は小さくなる。これに対して、熱交換をさせた条件を見ると、熱交換をさせなかった条件と比べて若干ではあるが反応率が増大していることがわかる。これについて、反応速度解析の結果から考察すると、反

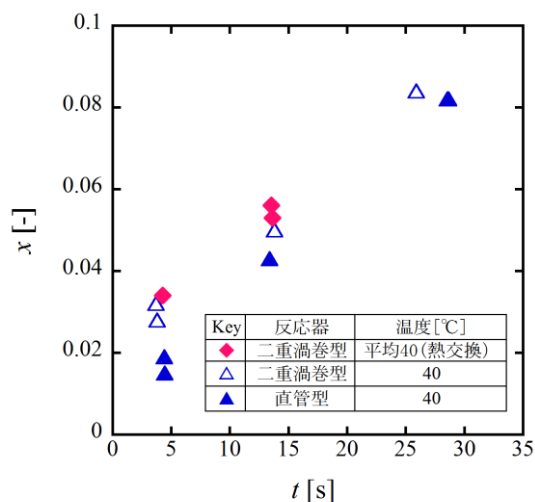


図6 熱交換条件と等温条件の比較

応速度定数は温度の増加と共に指数関数的に増加することが知られており、本反応系においても二重螺旋型（熱交換なし）、直管型に加えて、予備実験で行ったバッチ式反応器での結果も同様に反応速度定数の指数関数的増加が確認出来た。熱交換を伴う二重螺旋型反応器では、入り口温度が 25℃と低いものの、反応器内を流れるにつれて温度が 40℃を超え、最終的に 55℃で系外に排出される。この場合の反応速度定数は 25℃から 55℃までの間に指数関数的に増加するので、これを積分平均すれば、40℃一定の時の反応速度定数と比べて大きな値を取ることが予測できる。この、反応速度定数の大小が、熱交換を伴う場合と熱交換なしの場合の反応率の大小の差に直接反映されたため、図 6 のような結果になったものと考えられる。

以上の結果を総括すると、作製した二重螺旋型流路を反応器に適用すれば、流路内で二次流れは発生する条件下において若干の反応促進を実現できる。さらに二重螺旋型反応器の使用と共に流路内で熱交換を起こすことで、さらなる反応促進効果を得ることが可能である。これらのことから、二重螺旋型流路はコンパクトで高効率な反応装置として応用できる可能性を十分に有していることがわかった。

5. 主な発表論文等

〔学会発表〕（計 1 件）

門叶秀樹，原田英二，栗山雅文，「積層した二重渦巻き型コンパクト反応器の熱伝達特性」，化学工学会第 41 回秋季大会，2009. 9. 17，広島大学（広島県東広島市）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

栗山 雅文 (KURIYAMA MASAFUMI)
山形大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号：90107178

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：