# ミスト化と溶液効果を利用した炭酸ガス吸収の促進機構


| メタデータ | 言語: Japanese<br>出版者:<br>公開日: 2017-12-08<br>キーワード (Ja):<br>キーワード (En):<br>作成者: 滝本, 昭, Takimoto, Akira<br>メールアドレス:<br>所属: |
| --- | --- |
| URL | https://doi.org/10.24517/00049257 |

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.

# ミスト化と溶液効果を利用した炭酸ガス吸収の促進機構

（１０６５０２０５）

平成10年度～平成12年度科学研究費補助金（基盤研究C(2)）研究成果報告書

平成13年3月

研究代表者　瀧　本　　昭
（金沢大学工学部教授）

# はしがき

本成果報告書は，平成10年から12年度の3ヶ年間にわたり，基盤研究(C)(2)として文部省科学研究費の補助を受けて行われた研究結果をまとめたものであり，その研究組織および研究経費，さらにその成果として発表された研究論文は以下のとおりである。

**研究組織**

研究代表者：　瀧本　昭（金沢大学自然科学研究科•教授）
研究分担者：　林　勇二郎（金沢大学•学長）
同　：　多田　幸生（金沢大学工学部•助教授）
同　：　松田　理（石川工業高等専門学校・助教授）

**研究経費**

| | |
|---|---|
| 平成10年度 | 1，500千円 |
| 平成11年度 | 800千円 |
| 平成12年度 | 600千円 |
| 計 | 2，900千円 |

**研究発表**

論　文

○松田・小東・瀧本「凝縮およびミスト化を利用したガス吸収の促進機構」
Thermal Science and Engineering, Vol. 8, No.-6,(2000), pp.1-10

口頭発表

○瀧本・岡　「炭酸塩水溶液の流下液膜への炭酸ガスの吸収促進」
日本伝熱学会北陸信越支部講演論文集(1999)

○瀧本・岡・八田　「ミスト化と溶液効果による$CO_2$ガス吸収の促進」
日本機械学会2000年次大会講演論文集(2000)

## 研究成果

目　次

I. 研究の目的と概要

II. 溶液を利用したガス吸収法

1．ガス吸収機構

2．ミストの発生とガス吸収の理論解析

3．数値解析

4．解析結果

III. 実験装置と方法

1．実験装置概要

2．実験方法

3．各種測定法およびデータ整理法

IV. 結果および考察

1．流下液膜へのガス吸収速度

2．凝縮液膜とミスト滴へのガス吸収速度

3．ガス回収率

V. まとめ

# I. 研究の目的と概要

温室効果ガス濃度増加に対する対策を講じなければ，2100年には地球全体の平均気温が約2℃上昇，海面が約50cm上昇することが予測されており，気候の変化，自然生態系ならびに農作物など，人類の生存基盤へのその影響は計り知れない。自然界に存在する温室効果ガスとしては、水蒸気，CO2，メタン，一酸化炭素，オゾン等があり，人為的に発生するガスには，CO2，メタン，一酸化炭素，HFC等がある．IPCC（気候変動に関する政府間パネル）の報告では，メタン，一酸化炭素，HFC等の一定量あたりの温室効果はCO2に比べてはるかに高いが，CO2の排出量は膨大であるため温暖化への寄与度は約64％を占めている．我が国においても，平成8年度のCO2の排出量は，炭素換算で3億3700万t、1人あたりの排出量は2.68tであり，前年度と比べ排出量で12%，1人当たりで10%増加しており，CO2の排出量削減が重要な課題となっている．

1997年12月には，気候変動枠組条約締約国会議（COP3）において，2008年から2012年までの間の温室効果ガスの排出量についての削減目標などを内容とした「京都議定書」が採択され，1990年比で少なくとも5%削減することとなった．各国の削減率は，日本が6%，米国が7%，EUは8%などと，締約国全体で5.2%の削減が実現できることとなったが，2010年までにこの目標値を達成するのは困難とされており，CO2削減への世界的取り組みが求められている．

このCO2濃度の増大を，いかにして食い止めるかが世界的課題であるが，1993年の世界におけるエネルギー発生は石炭などの固体源によるものが27%，石油が40%，天然ガスその他のガスによるものが23%，地熱，風力が0.4%，水力が2.5%，原子力が7%で，炭酸ガス発生を伴うエネルギー源が90%，これに対して発生を伴わない風力，水力，原子力などの合計は10に留まっている．地球温暖化の観点から，太陽発電を含めて後者のエネルギー開発に関心が寄せられるが，基本的には，現在の大量生産・大量消費エネルギー多量消費型社会から，省エネルギー・資源循環型社会への転換を第一に行わなければならない．しかし，今後もエネルギー供給源として石油，石炭，天然ガスといった化石燃料に依存せざるを得ないこと，化石燃料の埋蔵量，採取地域の偏りから，単位熱量あたりのCO2排出量の最も多い石炭への依存が高まることが予想されることから，燃焼プラントから排出されるCO2の回収・処理技術を確立しておく必要がある．

CO2の回収技術においては，現在電力会社の共同研究が行われており，吸収液によりCO2の回収を行う化学吸収法，CO2からのメタノールの合成，光合成を利用したCO2の吸収などCO2の固定技術とともに様々な研究・開発が行われている．

ガス吸収には，気相中の可溶成分が液体中に単に溶解する物理吸収と，液相中で可溶成分と液中の反応成分との間に化学反応を生じる化学吸収がある．しかし，これらは化学反応の影響を考慮した反応係数を用いることにより統一的に論じることができる．

ガス吸収速度に関係する研究は，今世紀のはじめにもいくつか発表されているが，Lewis-Whitmanの二重境膜説は物質移動係数を理論的に取り扱うために考え出された最初の吸収速度理論である．この理論は界面付近の気，液両相に，分子拡散のみで物質移動が起こる流体境膜があるというモデルであり，現在においても吸収を考える上で有用なものである．その後，静止したガスの流下液膜への吸収における物質移動速度論の研究は八田，Pigfordにより行われ，さらに，Emmert・Pigford，藤田らの研究によって実験値と理論値の比較・考察が行われている．1970年代後半から，Chung・MillsやHenstock・Hanrattyの乱流液膜を対象にした実験的研究，Yih・SeargraveやGrossmanの気流せん断力および溶解熱の影響を考慮した理論的研究，柴田・萩原・鈴木の鉛直円管内流下液膜へのガス吸収に関する数値解析などにより詳細な測定と厳密解が報告されている．また，ガス吸収の促進を目的として長崎・土方らは，スピーカにより液膜表面へ外部振動を加え，表面波の熱・物質伝達に及ぼす影響を実験的に追究した．

凝縮に関してはNusseltをはじめとして伝熱工学において多くの研究者により研究がなされ，ミストすなわち気流中の凝縮に関する研究としては，林・瀧本らの平行平板間におけるミスト発生時の熱．物質伝達についての一連の研究，小竹あるいは土方・森の強制対流下でのミスト生成についての研究，奥山．吉沢らの気相中での微粒子の生成・成長についての理論的な評価および実験的な考察がある．また，ミスト滴へのガス吸収機構においては液滴と連続層流体間の物質移動に関する研究が行われている．これに関しては化学工学の分野において数多くの研究があり，代表的な理論的研究として，液滴内の物質移動が分子拡散となるとしたNewmanの研究，液滴内に循環流がある場合のKronig・ BringやHandlos・ Baronの研究があり，総括的なものとしては城塚・村上のレビューがある．さらに，谷口・浅野は水スプレーを用いた炭酸ガスの吸収実験を行い，実験結果とNewmanの理論式がよく一致することを示した．

凝縮によるガス吸収については，野津・井上らが復水器などの凝縮水膜への炭酸ガス吸収に関する数値解析のみでありガス吸収の促進を目的としたものは現在まで行われていない。

本研究は鉛直冷却円管内の炭酸カリウム微粒子，$CO_2$ガス，水蒸気を含む混合気流を対象に，ミスト化と溶液効果を利用した新しいガス吸収法を提案し、その有効性について理論的・実験的に追究したものである．

本報告書の構成は以下の通りである。

“I. 研究の目的と概要”では，本研究の社会的意義および目的が述べられる。

“II. 凝縮過程と溶液効果を利用したガス吸収法の提案”では，本研究で提案するガス吸収機構が述べられ，次いで鉛直冷却管を対象とした熱・物質移動現象についての基礎方程式が示され，数値解析を解くための手法と解析結果が示されている．

“III. 実験装置と方法”では，本研究で用いた実験装置の概要が示され，実験方法，測定方法および結果の整理方法が述べられている．

“IV. 結果および考察”では，炭酸カリウム水溶液および水のpH変化より吸収した炭素量を求める校正曲線を作成，流下液膜の様相観察，ガス吸収実験結果について述べられている．次いで，供給微粒子として用いた炭酸カリウム微粒子の粒径，量について測定した結果，溶液効果を利用したミスト化によるカス吸収実験結果について解析値とともに考察が述べられている．最後に、流下液膜法，凝縮液膜法において溶液効果を利用した場合としない場合についてのガス回収率について総合的考察を行い，本方式の有効性について述べられいる．

“V. まとめ”では各章で述べた内容につき総括的に述べられている。

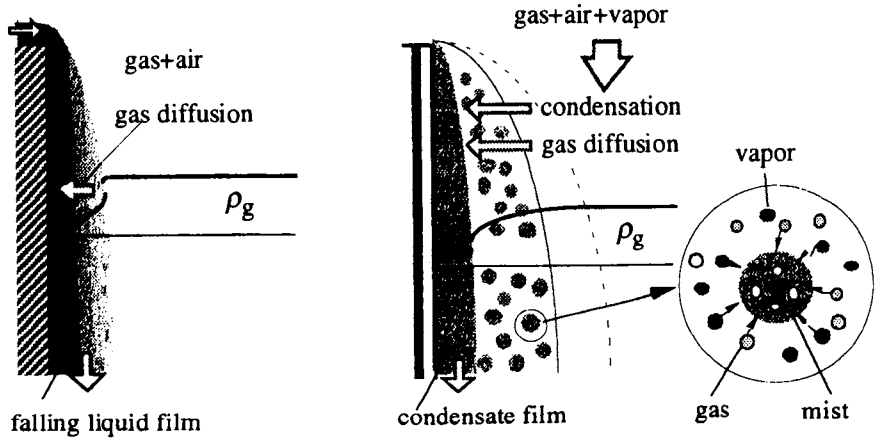
# II. 溶液を利用したガス吸収法

## 1. ガス吸収機構

ガス吸収操作は，気相と液相の溶質成分の濃度差を利用した物質移動操作であり，そのプロセスは，溶質成分が気相を拡散して気液界面まで達し，液相に溶解，移動するという三段階から成っている．この時，移動速度は，各相中での拡散速度と界面抵抗により決定されるが，一般に液相中の拡散速度は気相中に比してはるかに遅く（拡散係数で4オーダーの差），また，界面抵抗は小さな値と考えられているため，吸収速度は液相内の拡散速度に支配される．

本研究で提案する凝縮液膜法を流下液膜法と比較して図2-1に示す．ガス吸収が液相内拡散律速となる流下液膜法（a）に対して，凝縮液膜法（b）は，凝縮性気体を含む高温の混合気を冷却面と接触させ，凝縮液膜の形成と同時にガス分子を液膜表面への気相拡散輸送により吸収させる．この時，液膜表面へのガス濃度は凝縮により常に更新されるため，高いガス濃度ポテンシャルが維持される．また，ガス吸収と凝縮の速度比が一定で液膜内ガス濃度は一様分布となり，液相内の拡散輸送は無視できるため，ガス吸収は気相内ガス拡散律速となり，大幅な促進が期待される．

また，凝縮過程において気流中に熱力学的に不安定な温度・濃度共存場，すなわち平衡からずれて過飽和の状態にある場が生じると，安定系に移行する過程の一環として，気流中に含まれる塵や埃を核として生ずるミストが発生する．ミストの発生はガス吸収に対する吸収表面積の増加とガス分子の拡散距離の短縮などの二次的促進効果をもたらすことになる．さらに，溶液効果を用いることにより，吸収と同時に反応を伴う場合には，吸収された溶質成分が反応によって消失するので，その分だけ界面付近の濃度勾配が急になり，吸収速度は物理吸収の場合よりも大きくなる．




(a) Falling liquid film method　　(b) Condensate film method

図 2-1　凝縮液膜法の概念図

ミストの発生・成長とガス吸収機構

塵，埃などを核としたミストの発生は，蒸気濃度 $r_v$ が核表面の平衡蒸気濃度 $r_{vs}$ より高くなる場合に起こる．したがって，ミスト発生条件は次式で与えられる．

$$\frac{\rho_v}{\rho_{vs}} = 1$$

この条件は，凝縮過程を伴う流れ場においては，壁面での蒸気濃度勾配が平衡蒸気濃度勾配と一致する条件，すなわち

$$\frac{\partial \rho_v}{\partial r} = \frac{\partial \rho_{vsat}}{\partial r}$$

で表される．

ミスト発生後，ミスト滴は過飽和状態が存在する限り成長を続ける．また，図2-2に示すように気流中に可溶性ガスが存在する場合には，ミスト滴の成長と同時にミスト滴へのガス吸収が起こる．液滴への物質移動は，ミスト発生直後のように滴径が各分子の平均自由行程に比して無視できない場合には，液滴表面への衝突が支配的であり，その後，ミスト滴が成長するにしたがい各分子の拡散移動が支配的になると考えられる．

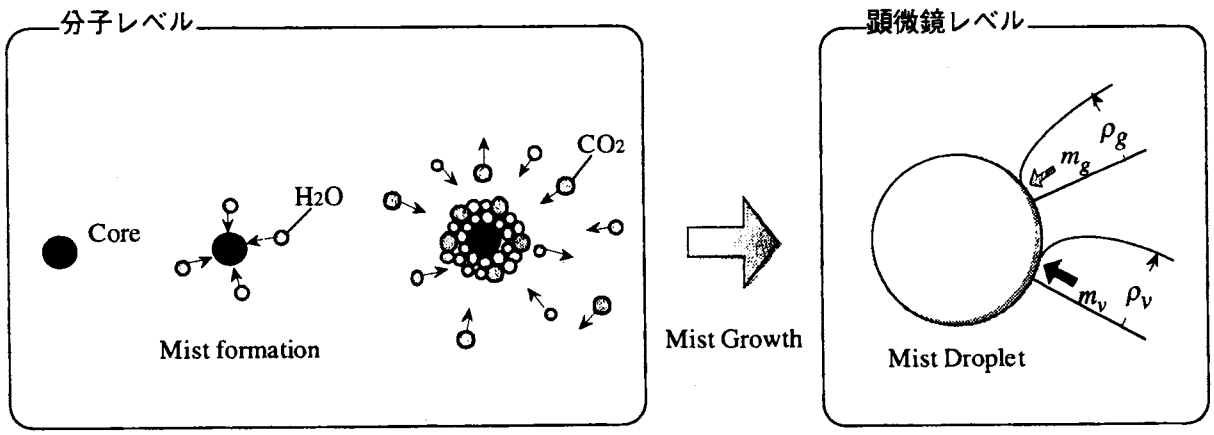



図2-2　ミスト成長とガス吸収

このような連続過程におけるミスト滴の成長速度 $\rho_v^+$ は，図2-3に示す単一液滴モデルにより，ミスト滴径の時間変化 ( dr/dq ) と関係づけて次のように表される[2-1]．

$$\rho_v^+ = 4\pi r_d^2 \rho_l f_n \left(\frac{dr_d}{d\theta}\right)$$

$$\frac{dr_d}{d\theta}=\frac{1}{\rho_l R_v T}\frac{D_v\left(p_{v\infty}-p_{vs}\right)}{\left\{\frac{D_v}{\xi}\left(\frac{2\pi}{R_v T}\right)^{1/2}+\frac{r_d}{1+\frac{l}{r_d}}\right\}}$$

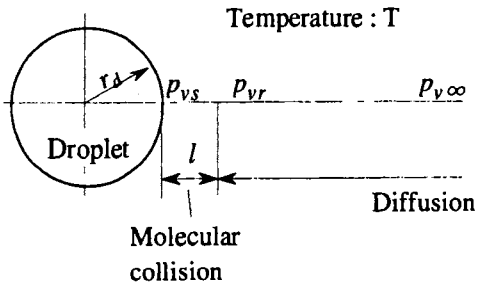



図2-3 単一液滴モデル

ここで,

Dv ：蒸気の拡散係数 m2/s　　fn ：外部核数 個/m3

l ：蒸気分子の平均自由行程 m　　pvs ：液滴表面での蒸気圧 Pa

$$l=0.709\,\nu\left(\frac{\pi}{R_v T}\right)^{1/2}\qquad p_{vs}=p_{vsat}\left(T\right)\exp\left(\frac{2\sigma}{\rho_l r_d R_v T}\right)$$

n ：動粘性係数　　pvsat：飽和蒸気圧 Pa

$r_l$ ：水の密度 kg/m3　　Rv ：蒸気の気体定数 J/(kg•K)

x ：凝縮係数 （＝1）　　s ：表面張力 N/m

一方,ミスト滴へのガス吸収は,凝縮液膜へのガス吸収と同様に液相内の拡散輸送を無視でき,気相側拡散支配となる．したがって，ミスト滴の成長モデルのような考え方もできるが，本研究では，ミスト滴へのガス吸収速度の解析に際し以下の仮定をおき，ガス吸収は分子拡散によって行われると考える．

（1）液滴界面でHenryの法則が成立する．

（2）可溶性ガスの分子衝突による移動は考えない．

この場合のガス吸収は，固体球まわりの熱移動と同様に扱うことができる．図2-4に示すような単一ミスト滴へのガス吸収を考える場合,溶質ガスについての物質保存式は定常状態で次のように与えられる．

$$\frac{D_g}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial\rho_g}{\partial r}\right)=0 \qquad (2\text{-}7)$$

境界条件は，次のように与えられる．

$$r=r_d \qquad :\rho_g=\rho_{gi} \qquad (2\text{-}8\text{-}1)$$

$$r\to\infty \qquad :\rho_g=\rho_{g\infty} \qquad (2\text{-}8\text{-}2)$$

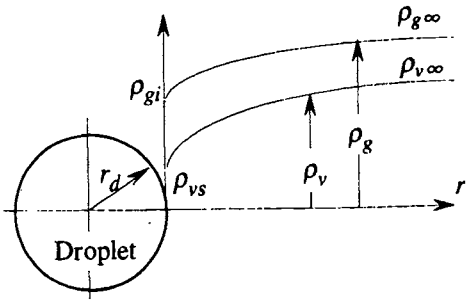



図2-4 ミスト滴まわりの蒸気・ガス濃度分布

式(2-7)を積分し，境界条件より積分定数を求めると液滴まわりの濃度分布は次式で与えられる．

$$\frac{\rho_g-\rho_{g\infty}}{\rho_{gi}-\rho_{g\infty}}=\frac{r_d}{r} \qquad (2\text{-}9)$$

一方，ミストへの単位時間，単位体積当たりのガス吸収速度 $r_g^+$ は，物質伝達率を $h_{DM}$ として次式で表される．

$$\rho_g^+ = 4\pi r_d^2 f_n \left(-D_g \frac{\partial \rho_g}{\partial r}\right)_{r=r_d} = 4\pi r_d^2 f_n h_{DM}\left(\rho_{g\infty} - \rho_{gi}\right) \qquad (2\text{-}10)$$

$h_{DM}$ は式 (2-9) と式 (2-10) より，

$$\alpha_M = \frac{D_g}{r_d} \qquad (2\text{-}11)$$

となる．さらに $\rho_g^i$ は，気液界面でのヘンリーの法則から次式で与えられる．

$$\rho_{gGi} = \frac{1}{R_g T} H \frac{\dfrac{\rho_g^+}{M_{CO2}}}{\dfrac{\rho_g^+}{M_{CO2}} + \dfrac{\rho_v^+}{M_{H2O}}} \qquad (2\text{-}12)$$

ここで，

H ；ヘンリー定数 Pa　M ；各成分の分子量 kg

Rg ；二酸化炭素のガス定数 J/kgK

式(2-12)を式(2-10)に代入し，$r_g^+$ について整理すると，

$$\frac{1}{4\pi r_d^2 f_n M_{CO2} h_{DM}} \rho_g^{+2} + \left(\frac{\rho_v^+}{4\pi r_d^2 f_n M_{H2O} h_{DM}} - \frac{\rho_{g\infty}}{M_{CO2}} + \frac{H}{M_{CO2} R_g T}\right)\rho_g^+ - \frac{\rho_{g\infty}\rho_v^+}{M_{H2O}} = 0 \qquad (2\text{-}13)$$

となる．よって，二次方程式の解の公式より，$\rho_g^+$ は次式で与えられることになる．

$$\rho_g^+ = \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A} \qquad (2\text{-}14)$$

$$A = \frac{1}{4\pi r_d^2 f_n M_{CO2} h_{DM}} \qquad (2\text{-}15\text{-}1)$$

$$B = \frac{\rho_v^+}{4\pi r_d^2 f_n M_{H2O} h_{DM}} - \frac{\rho_{g\infty}}{M_{CO2}} + \frac{H}{M_{CO2} R_g T} \qquad (2\text{-}15\text{-}2)$$

$$C = \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A} \qquad (2\text{-}15\text{-}3)$$

ここで A ～ C の定数より，$r_g^+$ が正の値になるためには，式(2-14)の平方根の前の符号がプラスにならなくてはならないので，$r_g^+$ は次式で算出されることになる．

$$C = \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A} \qquad (2\text{-}16)$$

## 2. ミストの発生とガス吸収の理論解析

### (1) 物理および座標系

鉛直冷却円管内の空気・水蒸気・CO2からなる混合気流を対象に，管内での壁面凝縮およびミスト生成とそれに伴うガス吸収について解析を行う．図2-5に解析の対象となる物理・座標系を示す。

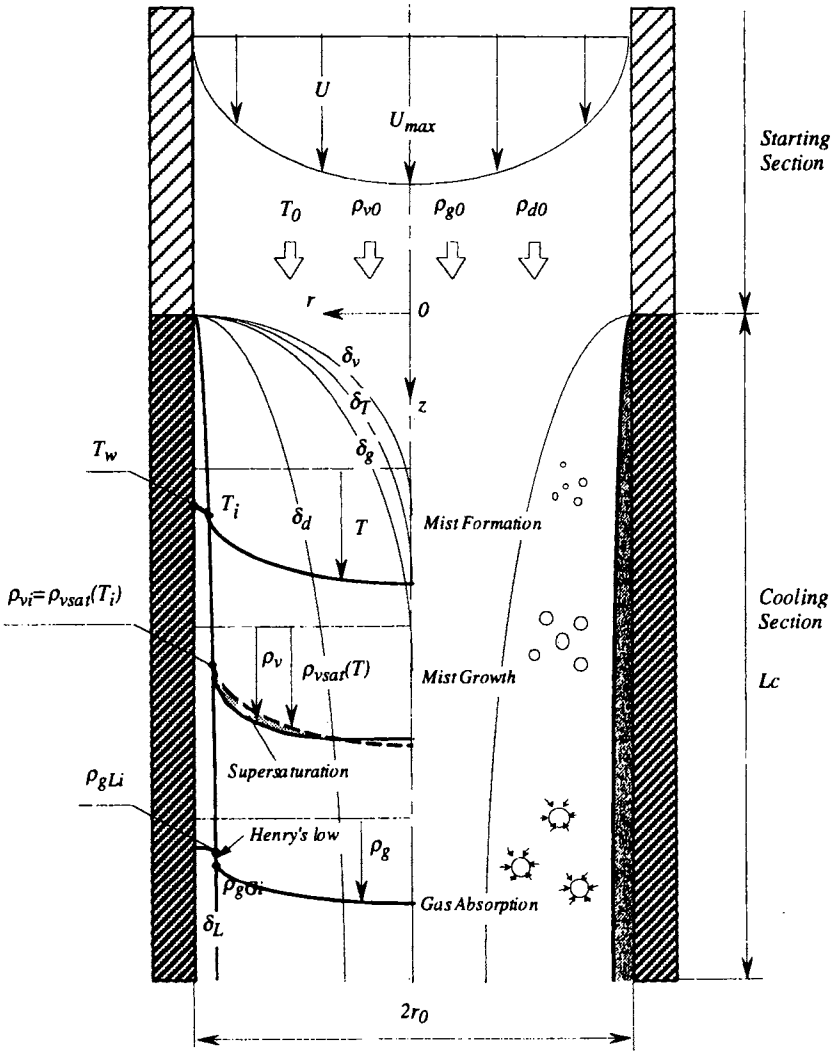



図2-5 物理および座標系

### (2) 仮定

解析に際し，以下の仮定をおく．

（1）流れは非圧縮性定常流で，境界層近似が成り立つ．

（2）物性値は管内で一定である．（流入温度と壁面温度の算術平均を代表温度とする．）

(3) 気体の濃度は，気液界面における蒸気濃度およびガス濃度を除いて，温度による影響を受けない．

(4) 冷却管入口で，流れは一様な温度，濃度（未飽和）であり，速度は十分に発達してる．

(5) 冷却管壁温は一様かつ一定である．

(6) 壁面での凝縮層は，熱的・流体力学的に気流に影響を及ぼさないものとし，その存在を無視する．

(7) ミスト滴は合体・消滅しない．

(8) ミスト滴を含む気流は分散体と見なし，気流に対するミスト滴の相対運動はない．

(9) ミスト滴の温度は気流と同一である．

(10) 外部核は管入口において球形表面が薄い液膜で覆われた微小液滴として流入する．

(11) 各位置の気液界面は，その断面の圧力における飽和状態にある．

(12) 気液界面において Henry の法則が成立する．

(13) 簡単化のために多成分拡散効果を無視する．

(14) 微粒子は直線運動で一様分布に流入する．

(3) 基礎式

以上の仮定のもと，連続の式，エネルギ収支式および物質収支式が以下のように与えられる

[混合気体についての連続の式]

$$u\frac{\partial \rho_G}{\partial z} = -\rho_v^+ - \rho_g^+ \tag{2-17}$$

[エネルギ収支式]

$$\left(\rho_G C_{pG} + \rho_d C_{pd}\right) u \frac{\partial T}{\partial z} = \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r k \frac{\partial T}{\partial r}\right) + Lv\,\rho_v^+ + T\left(C_{pG} - C_{pd}\right)\left(\rho_v^+ + \rho_g^+\right) \tag{2-18}$$

[物質収支式]

蒸気： $$\rho_G u \frac{\partial w_v}{\partial z} = \frac{D_v}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r \rho_G \frac{\partial w_v}{\partial r}\right) - \rho_v^+ + \left(\rho_v^+ + \rho_g^+\right) w_v \tag{2-19}$$

可溶性ガス（CO2）： $$\rho_G u \frac{\partial w_g}{\partial z} = \frac{D_g}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r \rho_G \frac{\partial w_g}{\partial r}\right) - \rho_g^+ + \left(\rho_v^+ + \rho_g^+\right) w_g \tag{2-20}$$

ミスト： $$u\frac{\partial \rho_d}{\partial z} = \rho_v^+ + \rho_g^+ \tag{2-21}$$

ここで流速は， $$u = 2\,u_m\left(1 - \left(\frac{r}{r_0}\right)^2\right) \tag{2-22}$$

[単位体積あたりのミスト質量 $r_d$ とミスト滴径 $r_d$ との関係 ]

$$\rho_d = \frac{4}{3}\pi\left(r_d - r_{d0}\right)^3 f_n \rho_L \tag{2-23}$$

[ ミスト成長速度 ]

$$\rho_v^+ = 4\pi r_d^2 f_n \frac{\rho_G D_v \left(w_v - w_{vs}\right)}{\left\{\frac{D_v}{\xi}\left(\frac{2\pi}{R_v T}\right)^{1/2} + \frac{r_d}{1 + l/r_d}\right\}} \tag{2-24}$$

[ ミストへのガス吸収速度 ]

$$\rho_g^+ = \frac{-B + \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A} \tag{2-25}$$

ここで,

$$A = \frac{1}{4\pi r_d^2 f_n M_{CO2} h_{DM}} \tag{2-26-a}$$

$$B = \frac{\rho_v^+}{4\pi r_d^2 f_n M_{H2O} h_{DM}} - \frac{\rho_G w_g}{M_{CO2}} + \frac{H}{M_{CO2} R_g T} \tag{2-26-b}$$

$$C = -\frac{\rho_G \rho_v^+ w_g}{M_{H2O}} \tag{2-26-c}$$

[液膜厚さの関係]

z 方向の各位置における液膜厚さは次式の関係式で与えられる.

$$\delta(n+1) = \sqrt[3]{\delta(n) + \frac{3\times\mu}{\rho_L^2 \times G} \times M_{VCZA}}$$

d= 液膜厚さ　m　　G；重力加速度　$m^2/s$

m= 水の粘性係数　Pa s

[液膜への粒子の流入量]

液膜への粒子の到達量を，粒子が直線運動で流入し，液膜への投影面積が溶解すると考えると液膜への単位面積あたりの微粒子供給量との関係は

$$\rho_{K2CO3} = m_{K2CO3} \frac{\delta(2r - \delta)}{\pi^2 r^4}$$

$m_{K2CO3}$；単位面積あたりの微粒子の供給量　　k kg/s

[ 各質量の関係 ]

各成分濃度と混合気体および流体の濃度との関係：

$$\rho_G = \rho_a + \rho_v + \rho_g\,,\quad \rho = \rho_G + \rho_d \qquad (2\text{-}27),\ (2\text{-}28)$$

質量分率の定義：

$$w_v = \frac{\rho_v}{\rho_G}\,,\quad w_g = \frac{\rho_g}{\rho_G} \qquad (2\text{-}29),\ (2\text{-}30)$$

(4) 境界条件

$$z=0\,,\ 0<r<r_0 \quad ;\quad T=T_0\,,\ w_v = w_{v0} < w_{vsat}(T_0)\,,\ w_g = w_{g0}\,,\ \rho_d = 0\,,\ \rho_G = \rho_0\,,\ r_d = r_{d0} \qquad (2\text{-}31)$$

$$r=0\,,\ 0 \le z \le L_c \quad ;\quad \frac{\partial T}{\partial r}=0\,,\ \frac{\partial w_v}{\partial r}=0\,,\ \frac{\partial w_g}{\partial r}=0\,,\ \frac{\partial \rho_G}{\partial r}=0\,,\ \frac{\partial \rho_d}{\partial r}=0 \qquad (2\text{-}32)$$

$$r=r_0\,,\ 0 \le z \le L_c\,;\quad T=T_w\,,\ \rho_d=0\,,\ \rho_G=\rho_{Gw}=\rho_0$$

$$\rho_{gGi} = \frac{1}{R_g T} H \frac{\dfrac{\rho_g^+}{M_{CO2}}}{\dfrac{\rho_g^+}{M_{CO2}} + \dfrac{\rho_{K2CO3}}{M_{K2CO3}} + \dfrac{\rho_v^+}{M_{H2O}}}$$

(5) 管中心(r = 0 )の場合

[ エネルギ収支式 ]

管中心では，式(1-18)の 1/r を含む項が特異点をもつので，別個に考えなければならない．そこで,(dT/dr) を r について Maclaurin 展開し,(dT/dr) = 0 の条件を用いると(2-2),

$$\lim_{r\to 0} \frac{1}{r}\frac{\partial T}{\partial r} = \frac{\partial^2 T}{\partial r^2} \qquad (2\text{-}34)$$

となる．したがって，式(1-18)は r = 0 で,

$$\left(\rho_G C_{pG} + \rho_d C_{pd}\right) u \frac{\partial T}{\partial z} = 2k\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + Lv\,\rho_v^+ + T\left(C_{pG} - C_{pd}\right)\left(\rho_v^+ + \rho_g^+\right) \qquad (2\text{-}35)$$

となる．

[ 物質収支式 ]

式(2-19)を変形すると以下のようになる

$$\rho_G u \frac{\partial w_v}{\partial z} = D_v\left(\frac{\rho_G}{r} + \frac{\partial \rho_G}{\partial r}\right)\frac{\partial w_v}{\partial r} + D_v \rho_G \frac{\partial^2 w_v}{\partial r^2} - \rho_v^+ + \left(\rho_v^+ + \rho_g^+\right) w_v \qquad (2\text{-}36)$$

境界条件より $r_G / r = 0$，式(2-34)より式(2-36)は r = 0 で

$$\rho_G u \frac{\partial w_v}{\partial z} = 2\,D_v \rho_G \frac{\partial^2 w_v}{\partial r^2} - \rho_v^+ + \left(\rho_v^+ + \rho_g^+\right) w_v \qquad (2\text{-}37)$$

となる．式(2-20)についても同様．

(6) 全伝熱量，凝縮速度，ガス吸収速度

冷却壁面への伝熱量は，管内の温度勾配による顕熱移動と蒸気の壁面凝縮に伴う潜熱移動の和となり，局所熱流束 qz は次式で表される．

$$q_z = -k\left(\frac{\partial T}{\partial r}\right)_{r=r_0} + L_v m_{vz} \qquad (2\text{-}38)$$

ここで Lv，$m_{vcz}$ は凝縮潜熱および壁面への局所凝縮速度である．壁面への局所凝縮速度 $m_{vcz}$ および凝縮液への局所ガス吸収速度 $m_{gcz}$ については，物質移動速度が小さいので，熱と物質移動のアナロジーが成立するものと考え，それぞれ次のように表される．

$$m_{vcz} = -\rho_{Gw} D_v \left(\frac{\partial w_v}{\partial r}\right)_{r=r_0} \qquad m_{gcz} = -\rho_{Gw} D_g \left(\frac{\partial w_g}{\partial r}\right)_{r=r_0} \qquad (2\text{-}39), (2\text{-}40)$$

したがって，半径 $r_0$，冷却長さ $L_c$ の鉛直冷却円管内壁面への全伝熱量 $Q_w$，全凝縮速度 $M_{vc}$ および凝縮液膜への全ガス吸収速度 $M_{gcf}$ は次式で算出される．

$$Q_w = \int_0^{Lc} 2\pi r_0 q_z dz \qquad (2\text{-}41)$$

$$M_{vc} = \int_0^{Lc} 2\pi r_0 m_{vcz} dz \qquad (2\text{-}42)$$

$$M_{gcf} = \int_0^{Lc} 2\pi r_0 m_{gcz} dz \qquad (2\text{-}43)$$

一方，管内での局所的なミスト発生速度 $m_{vmz}$ およびミストへのガス吸収速度 $m_{gmz}$ は，局所値としてそれぞれ次のように表され，

$$m_{vmz} = \int_0^{r0} 2\pi r \rho_v^+ dr \qquad (2\text{-}44)$$

$$m_{gmz} = \int_0^{r0} 2\pi r \rho_g^+ dr \qquad (2\text{-}45)$$

よって，冷却管内での全ミスト発生速度 $M_{vm}$ およびミストへの全ガス吸収速度 $M_{gm}$ は次式で算出される．

$$M_{vm} = \int_0^{Lc} m_{vmz} dz \qquad (2\text{-}46)$$

$$M_{gm} = \int_0^{Lc} m_{gmz} dz \qquad (2\text{-}47)$$

## 3. 数値解析

### (1) 差分近似

前節の基礎式について，図2-6に示す差分座標系のもと陰的差分法を用いた数値解析を行う．差分格子は，計算精度の向上と計算時間の短縮のため，r 方向については壁面近傍ほど細かく分割された不等間隔格子を，z 方向については先端ほど細かく分割された不等間隔格子を用いる．

差分近似には，z 方向に前進差分，r 方向に中心差分を用いる．すなわち，f が各変数に対応するとして，各微分項は次のように表される．

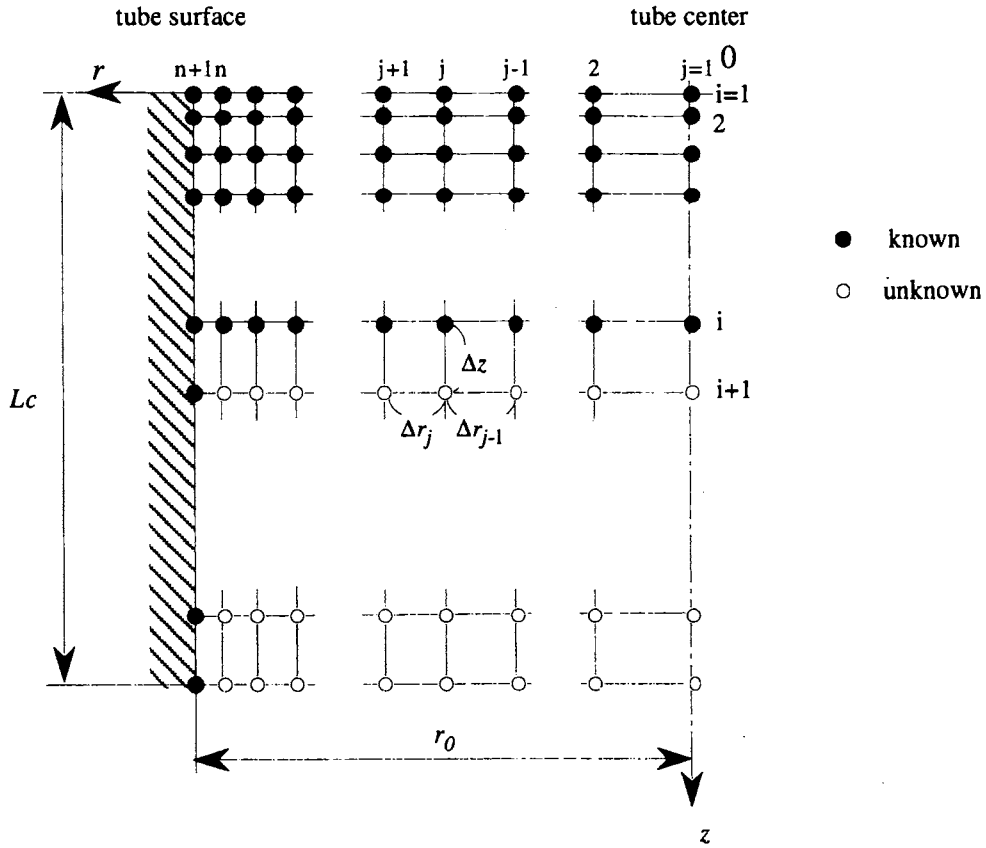



図2-6 差分座標系

$$\frac{\partial \Phi}{\partial z} = \frac{\Phi_{i+1,j} - \Phi_{i,j}}{\Delta z} \qquad (2\text{-}48\text{-}1)$$

$$\frac{\partial \Phi}{\partial r} = \Delta R_A \Phi_{i+1,j+1} - \Delta R_B \Phi_{i+1,j-1} + \Delta R_C \Phi_{i+1,j} \qquad (2\text{-}48\text{-}2)$$

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial r^2} = \Delta R_D \Phi_{i+1,j+1} + \Delta R_E \Phi_{i+1,j-1} - \Delta R_F \Phi_{i+1,j} \qquad (2\text{-}48\text{-}3)$$

ここで，

$$\Delta R_A = \frac{\Delta r_{j-1}}{\Delta r_j \left(\Delta r_j + \Delta r_{j-1}\right)}, \Delta R_B = \frac{\Delta r_j}{\Delta r_{j-1} \left(\Delta r_j + \Delta r_{j-1}\right)}, \Delta R_C = \frac{\Delta r_j - \Delta r_{j-1}}{\Delta r_j \Delta r_{j-1}} \qquad (2\text{-}49\text{-}1), (2\text{-}49\text{-}2), (2\text{-}49\text{-}3)$$

$$\Delta R_D = \frac{2}{\Delta r_j\left(\Delta r_j + \Delta r_{j\text{-}1}\right)}, \Delta R_E = \frac{2}{\Delta r_{j\text{-}1}\left(\Delta r_j + \Delta r_{j\text{-}1}\right)}, \Delta R_F = \frac{2}{\Delta r_j \Delta r_{j\text{-}1}} \qquad \text{(2-50-1), (2-50-2), (2-50-3)}$$

(2) 差分近似式

[混合気体についての連続の式]

式(2-17)に式(2-48-1)を適用して,

$$u_j \frac{\rho_{G\,i+1,j} - \rho_{G\,i,j}}{\Delta Z} = -\rho^{+}_{v\,i+1,j} - \rho^{+}_{g\,i+1,j} \qquad \text{(2-51)}$$

上式から $r_{Gi+1,j}$ が算出される.

[エネルギ収支式]

式(2-18)に式(2-48-1)～式(2-48-3)を適用すると次のようになる.

$$\left(\rho_{G\,i+1,j}\,C_{pG} + \rho_{d\,i+1,j}\,C_{pd}\right) u_j \frac{T_{i+1,j} - T_{i,j}}{\Delta z} = \frac{k}{r_j}\left(\Delta R_A\,T_{i+1,j+1} - \Delta R_B\,T_{i+1,j\text{-}1} + \Delta R_C\,T_{i+1,j}\right)$$
$$+ k\left(\Delta R_D\,T_{i+1,j+1} + \Delta R_E\,T_{i+1,j\text{-}1} - \Delta R_F\,T_{i+1,j}\right) + Lv\,\rho^{+}_{v\,i+1,j} + T_{i+1,j}\left(C_{pG} - C_{pd}\right)\left(\rho^{+}_{v\,i+1,j} + \rho^{+}_{g\,i+1,j}\right) \qquad \text{(2-52)}$$

管中心( j=1 )の場合は,

$$\left(\rho_{G\,i+1,1}\,C_{pG} + \rho_{d\,i+1,1}\,C_{pd}\right) u_1 \frac{T_{i+1,1} - T_{i,1}}{\Delta z}$$
$$= 2\,k\left(\Delta R_D\,T_{i+1,2} + \Delta R_E\,T_{i+1,0} - \Delta R_F\,T_{i+1,1}\right) + Lv\,\rho^{+}_{v\,i+1,1} + T_{i+1,1}\left(C_{pG} - C_{pd}\right)\left(\rho^{+}_{v\,i+1,1} + \rho^{+}_{g\,i+1,1}\right) \qquad \text{(2-53)}$$

ここで境界条件より, $T_{i+1,2} = T_{i+1,0}$, $Dr_1 = Dr_0$ (→ $DR_D = DR_E = 1/(Dr_1)^2$) となり, したがって式(2-53)は以下のようになる.

$$\left(\rho_{G\,i+1,1}\,C_{pG} + \rho_{d\,i+1,1}\,C_{pd}\right) u_1 \frac{T_{i+1,1} - T_{i,1}}{\Delta z}$$
$$= \frac{4\,k}{\Delta r_1^2}\left(T_{i+1,2} - T_{i+1,1}\right) + Lv\,\rho^{+}_{v\,i+1,1} + T_{i+1,1}\left(C_{pG} - C_{pd}\right)\left(\rho^{+}_{v\,i+1,1} + \rho^{+}_{g\,i+1,1}\right)$$

次に式(2-52)および式(2-54)を T について整理する.

$$A_j\,T_{i+1,j\text{-}1} + B_j\,T_{i+1,j} + C_j\,T_{i+1,j+1} = D_j \text{ (2-54)} \qquad \text{(2-55)}$$

ここで,

$$A_j = k\left(\frac{\Delta R_B}{r_j} - \Delta R_E\right) \qquad \text{(2-56-1)}$$

$$B_j = \left(\rho_{G\,i+1,j}\,C_{pG} + \rho_{d\,i+1,j}\,C_{pd}\right)\frac{u_j}{\Delta z} + k\left(\Delta R_F - \frac{\Delta R_C}{r_j}\right) \qquad \text{(2-56-2)}$$

$$C_j = -\,k\left(\frac{\Delta R_A}{r_j} + \Delta R_D\right) \qquad \text{(2-56-3)}$$

$$D_j = \left(\rho_{G\,i+1,j}\,C_p + \rho_{d\,i+1,j}\,C_{pd}\right)\frac{u_j}{\Delta z}\,T_{i,j} + Lv\,\rho^{+}_{v\,i+1,j} + \left(C_{pG} - C_{pd}\right)\left(\rho^{+}_{v\,i+1,j} + \rho^{+}_{g\,i+1,j}\right)T_{i,j} \quad (2\text{-}56\text{-}4)$$

だだし，j = 1（管中心）の場合は，

$$A_1 = 0 \quad (2\text{-}57\text{-}1)$$

$$B_1 = \left(\rho_{G\,i+1,1}\,C_{pG} + \rho_{d\,i+1,1}\,C_{pd}\right)\frac{u_1}{\Delta z} + \frac{4k}{\Delta r_1^2} \quad (2\text{-}57\text{-}2)$$

$$C_1 = -\frac{4\,k}{\Delta r_1^2} \quad (2\text{-}57\text{-}3)$$

$$D_1 = \left(\rho_{G\,i+1,1}\,C_{pG} + \rho_{d\,i+1,1}\,C_{pd}\right)\frac{u_1}{\Delta z}\,T_{i,1} + Lv\,\rho^{+}_{v\,i+1,1} + \left(C_{pG} - C_{pd}\right)\left(\rho^{+}_{v\,i+1,1} + \rho^{+}_{g\,i+1,1}\right)T_{i,1} \quad (2\text{-}57\text{-}4)$$

$$\begin{bmatrix} B_1 & C_1 & 0 & \cdots & & \cdots & 0 \\ A_2 & B_2 & C_2 & 0 & \cdots & \cdots & 0 \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & & & \vdots \\ \vdots & & & & & & \vdots \\ \vdots & & & & \ddots & \ddots & \ddots\ 0 \\ 0 & \cdots & & \cdots & 0\ A_{n-1} & B_{n-1} & C_{n-1} \\ 0 & \cdots & & \cdots & 0 & A_n & B_n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} T_{i+1,1} \\ T_{i+1,2} \\ \vdots \\ \vdots \\ T_{i+1,n-1} \\ T_{i+1,n} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} D_1 \\ D_2 \\ \vdots \\ \vdots \\ D_{n-1} \\ D_n - C_n\,T_{i+1,\,n+1} \end{bmatrix} \quad (2.59)$$

また，境界条件より，

$$T_{i+1,\,n+1} = T_w \quad (2\text{-}58)$$

いま，未知数は $T_1$ ～ $T_n$ までの n 個であるのに対し，格子点 j = 1 ～ n について，式 (2-55) より n 個の式が得られる．これらをマトリックスを用いて表すと次のようになる．(2-59) を解くことにより，$T_{i+1,j}$ の値が求められる．

[ 物質収支 ]

（蒸気）

式(2-19)に式(2-48-1)～式(2-48-3)を適用すると次のようになる．

$$\rho_{G\,i+1,j}\,u_j\,\frac{w_{v\,i+1,j} - w_{v\,i,j}}{\Delta z} =$$

$$D_v\left(\frac{\rho_{G\,i+1,j}}{r_j} + \Delta R_A\,\rho_{G\,i+1,j+1} - \Delta R_B\,\rho_{G\,i+1,j-1} + \Delta R_C\,\rho_{G\,i+1,j}\right)\left(\Delta R_A\,w_{v\,i+1,j+1} - \Delta R_B\,w_{v\,i+1,j-1} + \Delta R_C\,w_{v\,i+1,j}\right) \quad (2\text{-}60)$$

また，管中心( j=1 )の場合は，

$$\rho_{G\,i+1,1}\,u_1\,\frac{w_{v\,i+1,1} - w_{v\,i,1}}{\Delta z} =$$

$$2\,D_v\,\rho_{G\,i+1,1}\left(\Delta R_D\,w_{v\,i+1,2} + \Delta R_E\,w_{v\,i+1,0} - \Delta R_F\,w_{v\,i+1,1}\right) - \rho^{+}_{v\,i+1,1} + \left(\rho^{+}_{v\,i+1,1} + \rho^{+}_{g\,i+1,1}\right)w_{v\,i,1} \quad (2\text{-}61)$$

となる．ここで境界条件より，$w_{v\,i+1,2} = w_{v\,i+1,0}$，$D_{r1} = D_{r0}$（$\neg D_{RD} = D_{RE} = 1/(D_{r1})2$）となり，したがって式(2-61)は次のように書き換えられる．

$$\rho_{G\,i+1,1}\,u_1\,\frac{w_{v\,i+1,1} - w_{v\,i,1}}{\Delta z} = \frac{4\,D_v\,\rho_{G\,i+1,1}}{\Delta r_1^2}\left(w_{v\,i+1\,2} - w_{v\,i+1\,1}\right) - \rho^{+}_{v\,i+1,1} + \left(\rho^{+}_{v\,i+1,1} + \rho^{+}_{g\,i+1,1}\right) w_{v\,i,1} \quad (2\text{-}62)$$

次に式(2-60)および式(2-62)を wv について整理する．

$$A_j\,w_{v\,i+1,j-1} + B_j\,w_{v\,i+1,j} + C_j\,w_{v\,i+1,j+1} = D_j \quad (2\text{-}63)$$

ここで，

$$A_j = D_v\left(X_j\,\Delta R_B - \rho_{G\,i+1,j}\Delta R_E\right) \quad (2\text{-}64\text{-}1)$$

$$B_j = \frac{\rho_{G\,i+1,j}\,u_j}{\Delta z} - D_v\left(X_j\,\Delta R_C - \rho_{G\,i+1,j}\Delta R_F\right) \quad (2\text{-}64\text{-}2)$$

$$C_j = -\,D_v\left(X_j\,\Delta R_A + \rho_{G\,i+1,j}\Delta R_D\right) \quad (2\text{-}64\text{-}3)$$

$$D_j = \frac{\rho_{G\,i+1,j}\,u_j}{\Delta z}\,w_{v\,i,j} - \rho^{+}_{v\,i+1,j} + \left(\rho^{+}_{v\,i+1,j} + \rho^{+}_{g\,i+1,j}\right) w_{v\,i,j} \quad (2\text{-}64\text{-}4)$$

$$X_j = \frac{\rho_{G\,i+1,j}}{r_j} + \Delta R_A\,\rho_{G\,i+1,j+1} - \Delta R_B\,\rho_{G\,i+1,j-1} + \Delta R_C\,\rho_{G\,i+1,j} \quad (2\text{-}64\text{-}5)$$

ただし，j = 1（管中心）では，

$$A_1 = 0 \quad (2\text{-}65\text{-}1)$$

$$B_1 = \frac{\rho_{G\,i+1,1}\,u_1}{\Delta z} + \frac{4\,D_v\,\rho_{G\,i+1,1}}{\Delta r_1^2} \quad (2\text{-}65\text{-}2)$$

$$C_1 = -\,\frac{4\,D_v\,\rho_{G\,i+1,1}}{\Delta r_1^2} \quad (2\text{-}65\text{-}3)$$

$$\begin{bmatrix} B_1 & C_1 & 0 & \cdots & & \cdots & 0 \\ A_2 & B_2 & C_2 & 0 & \cdots & \cdots & 0 \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & & & \vdots \\ \vdots & & & & & & \vdots \\ \vdots & & & & \ddots & \ddots & \ddots\ 0 \\ 0 & \cdots & & \cdots & 0\ A_{n-1} & B_{n-1} & C_{n-1} \\ 0 & \cdots & & & \cdots\ 0 & A_n & B_n \end{bmatrix} \begin{bmatrix} w_{v\,i+1,1} \\ w_{v\,i+1,2} \\ \vdots \\ \\ \vdots \\ w_{v\,i+1,n-1} \\ w_{v\,i+1,n} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} D_1 \\ D_2 \\ \vdots \\ \\ \vdots \\ D_{n-1} \\ D_n - C_n\,w_{v\,i+1,n+1} \end{bmatrix} \quad (2.67)$$

$$D_1 = \frac{\rho_{G\,i+1,1}\,u_1}{\Delta z}\,w_{v\,i,1} - \rho^{+}_{v\,i+1,1} + \left(\rho^{+}_{v\,i+1,1} + \rho^{+}_{g\,i+1,1}\right) w_{v\,i,1} \quad (2\text{-}65\text{-}4)$$

また，境界条件より，

$$w_{v\,i+1,\,n+1} = w_{vw} \tag{2-66}$$

温度場の場合と同様に，式(2-63)より n 個の式が得られる．これらをマトリックスを用いて表すと次式のようになる．式(2-67) を解くことにより，$w_{v\,i+1,\,j}$ の値が求められる．

(可溶性ガス)

蒸気の場合と同様.

(ミスト)

混合気体の場合と同様.

[壁面熱・物質流束]

$$q_z = -k\left(\frac{\partial T}{\partial r}\right) = \frac{\left(\Delta r_{n-1}+\Delta r_n\right)^2 T_{i+1,\,n} - \Delta r_n^2\, T_{i+1,\,n-1}}{\Delta r_{n-1}\,\Delta r_n\left(\Delta r_{n-1}+\Delta r_n\right)} - \frac{\left(2\,\Delta r_n+\Delta r_{n-1}\right) T_{i+1,\,n+1}}{\Delta r_n\left(\Delta r_{n-1}+\Delta r_n\right)}$$

$$m_{vz} = -\rho_G D_v\left(\frac{\partial w_v}{\partial r}\right) = \rho_{G\,i+1,\,n+1} D_v\left(\frac{\left(\Delta r_{n-1}+\Delta r_n\right)^2 w_{v\,i+1,\,n} - \Delta r_n^2\, w_{v\,i+1,\,n-1}}{\Delta r_{n-1}\,\Delta r_n\left(\Delta r_{n-1}+\Delta r_n\right)} - \frac{\left(2\,\Delta r_n+\Delta r_{n-1}\right) w_{v\,i+1,\,n+1}}{\Delta r_n\left(\Delta r_{n-1}+\Delta r_n\right)}\right) \tag{2-68-2}$$

$$m_{gz} = -\rho_G D_g\left(\frac{\partial \rho_g}{\partial r}\right) = \rho_{G\,i+1,\,n+1} D_g\left(\frac{\left(\Delta r_{n-1}+\Delta r_n\right)^2 w_{g\,i+1,\,n} - \Delta r_n^2\, w_{g\,i+1,\,n-1}}{\Delta r_{n-1}\,\Delta r_n\left(\Delta r_{n-1}+\Delta r_n\right)} - \frac{\left(2\,\Delta r_n+\Delta r_{n-1}\right) w_{g\,i+1,\,n+1}}{\Delta r_n\left(\Delta r_{n-1}+\Delta r_n\right)}\right) \tag{2-68-3}$$

(3) 解法

数値解法の手順を図2-7のフローチャートと併せて示す．計算は，z = 0 の境界条件を設定し，z 方向に Dz 進んだ位置において反復計算を開始する．反復計算は以下に示す手順で行う．

(1) $r_{vA}^+ = 0$，$r_{gA}^+ = 0$ とする．

(2) 式(2-51)および同様な式から，$r_G$，$r_d$ を求め，式(2-23)より $r_d$ を算出する．

(3) 温度，蒸気濃度およびガス濃度場を解く．

(4) $w_v - w_{vs} > 0$ のミスト発生域において，式(2-24)および式(2-25)から $r_{vB}^+$，$r_{gB}^+$ を算出する．

(5) $r_v^+$，$r_g^+$ が収束しているか判定する．

収束条件 $Dr_v = |\,(r_{vA}^+ - r_{vB}^+)\,/\,r_{vA}^+\,| < 10^{-4}$ (2-69-1)

$Dr_g = |\,(r_{gA}^+ - r_{gB}^+)\,/\,r_{gA}^+\,| < 10^{-4}$ (2-69-2)

(6) 収束していれば(7)へ進み，そうでなければ $r_{vA}^+$，$r_{gA}^+$ を次のように設定し直し，(2) へ戻る．

$r_{vB}^+ > \rho_{vA}^+$ の場合：

$$\rho_{vA}^+ = \left(\rho_{vB}^+ - \rho_{vA}^+\right)\times 0.5 + \rho_{vA}^+ \tag{2-70-1}$$

$r_{vB}^{+} < r_{vA}^{+}$の場合：

$$\rho_{vA}^{+} = \left(\rho_{vB}^{+} - \rho_{vA}^{+}\right) \times 0.1 + \rho_{vA}^{+} \qquad (2\text{-}70\text{-}2)$$

$\rho_{gA}^{+}$についても同様.

（7）局所熱流束 $q_z$，局所物質流束 $m_{vcz}$・$m_{gcz}$，局所ミスト発生速度 $m_{vmz}$ およびミストへのガス吸収量の局所値 $m_{gmz}$ を求める.

（8）z が出口に達するまで，z をΔz 進めて(1)へ戻る.

以上のように z(i) レベルの既知量を用い，z+Dz(i+1) レベルの値を z が出口に達するまで前進的に求めていく． 計算は，管直径 d = 9.09 mm，壁面温度 Tw = 3 ℃，外部核数 fn = $10^8$ 個/$m^3$ の一定もとで寸法形状(Lc)および操作条件（$T_0$，$u_m$，$r_{v0}$，$r_{g0}$）を種々変化させて行った．なお外部核数については，実験装置空気溜まり部内において，パーティクルカウンターを用いて測定した平均的な値である．また，格子間隔については，r 方向は 50 分割の不等間隔格子とし，各間隔は公比が 1.01 の等比数列となるようにした．すなわち，最も壁面寄りの格子間隔を$\Delta r_n$ とすると，各格子間隔は次式で算出される.

$$\Delta r_j = \Delta r_n \, 1.01^{(n-j)} \qquad (2\text{-}71)$$

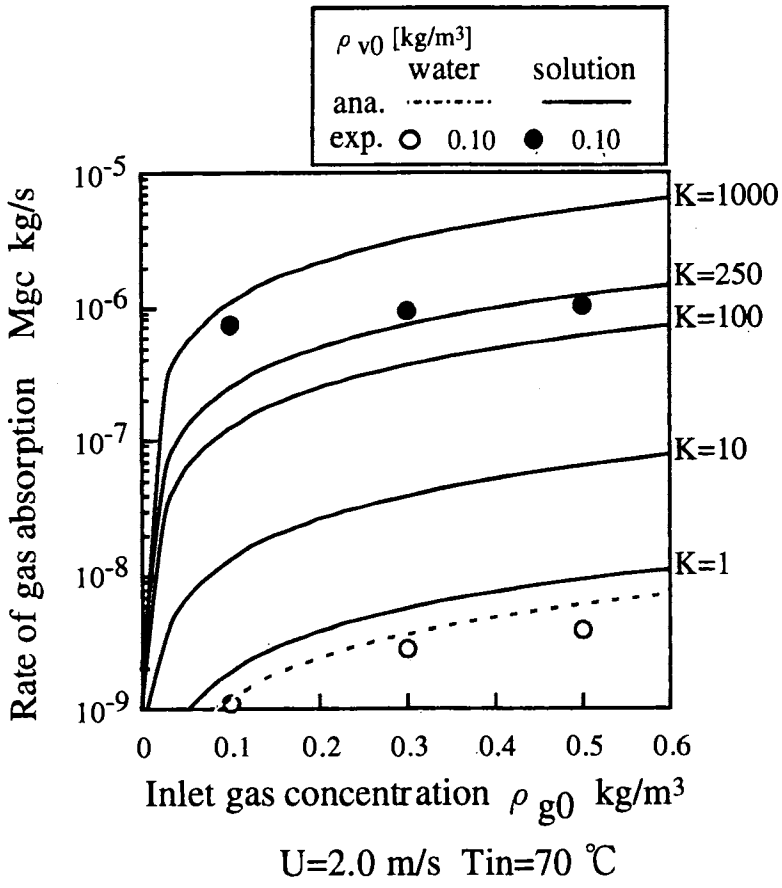
一方，z 方向は，管入口直後の初期値 $Dz_1 = 10^{-7}$ mm から Dz = 5.0 mm までは次式より算出される不等間隔格子とし，その後は Dz = 5.0 mm の等間隔格子とした.

$$\Delta z_{i+1} = 1.01 \, \Delta z_i \qquad (2\text{-}72)$$

## 4. 解析結果

溶液効果を利用した凝縮液膜法における入口ガス濃度とガス吸収速度の関係,蒸留水と比して図2-8に示す．一般に，電解質溶液へのCO2ガスのヘンリー定数は水よりも大きくなり，ガスは溶けにくくなるものの，溶液効果を利用した解析値は，蒸留水の解析値よりも大きくなりガス吸収が促進されていることがわかる．しかし，高蒸気濃度の実験値と比して，約2オーダー小さな値となった．これは，粒子の流入条件を直線運動に一様に流入すると仮定したが，解析では考慮しなかった炭酸塩微粒子，ミストの半径方向への運動による液膜への付着，溶解による液膜の濃度上昇によるガス吸収の促進が行われていることが考えられる．そこで，液膜への炭酸塩微粒子の付着量を補正し，流入粒子量に対する液膜への半径方向への運動を含めた付着量が，直線運動による粒子の付着量よりk倍多いと仮定し，補正項による実験値との比較を行った．U=2.0［m/s］，入口温度Tin=70℃，蒸気濃度が$\rho_v$=0.1［kg/m$^3$］において，ミストの発生量の少ない低蒸気濃度においては，k =10,高蒸気濃度においてk=250の時において，解析値は実験値とよく一致した．蒸気濃度の増加が，ミストの発生量，発生領域が増加させ，液膜への微粒子の溶解量が増加することを考えると,ミスト発生量の少ない低蒸気濃度においてはkの値が小さいときに一致し，蒸気濃度が高くミストの発生量が多くなるに連れkの値が増加している．kの補正により，実験値と解析値はよく一致し，本解析が妥当であることがわかる．

他の解析結果については、実験値と比較し第4章において考察する．このとき、kの値は250とした．



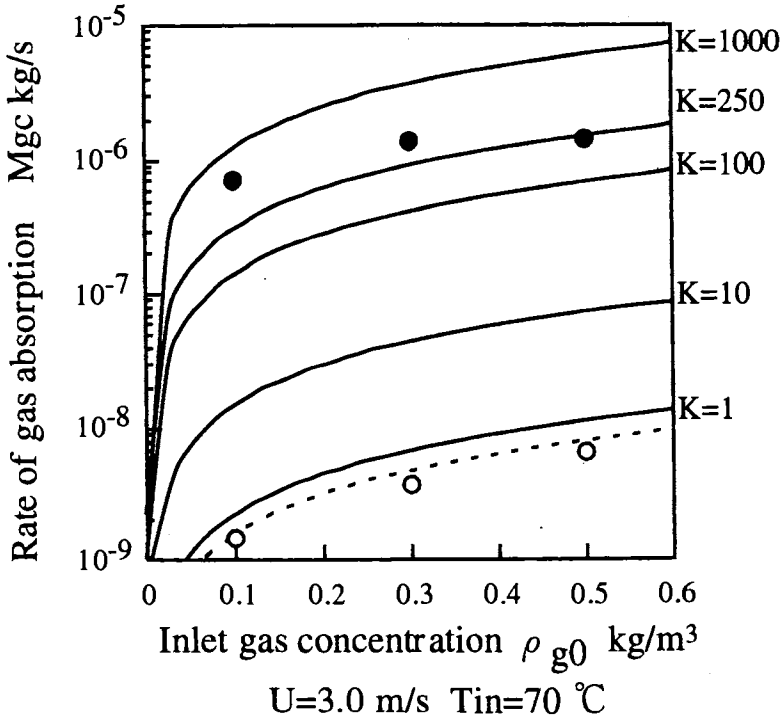




図2-8　入口ガス濃度に対するガス吸収速度

# III. 実験装置と方法

## 1. 実験装置概要

実験装置の概要図を図3-1に，実験装置全景を写真3-1に示す．装置は，混合ガスを冷却し凝縮ミスト化させガス吸収を行う実験主要部，所定の流速，温度，蒸気濃度，CO2濃度をである混合ガスを実験主要部に供給する空気系，エタノールと混入した炭酸カリウム微粒子を供給する供給系，低温の熱交換流体（ブライン）を供給する冷却系，及び各測定計に大別される．以下に各部について詳述する．

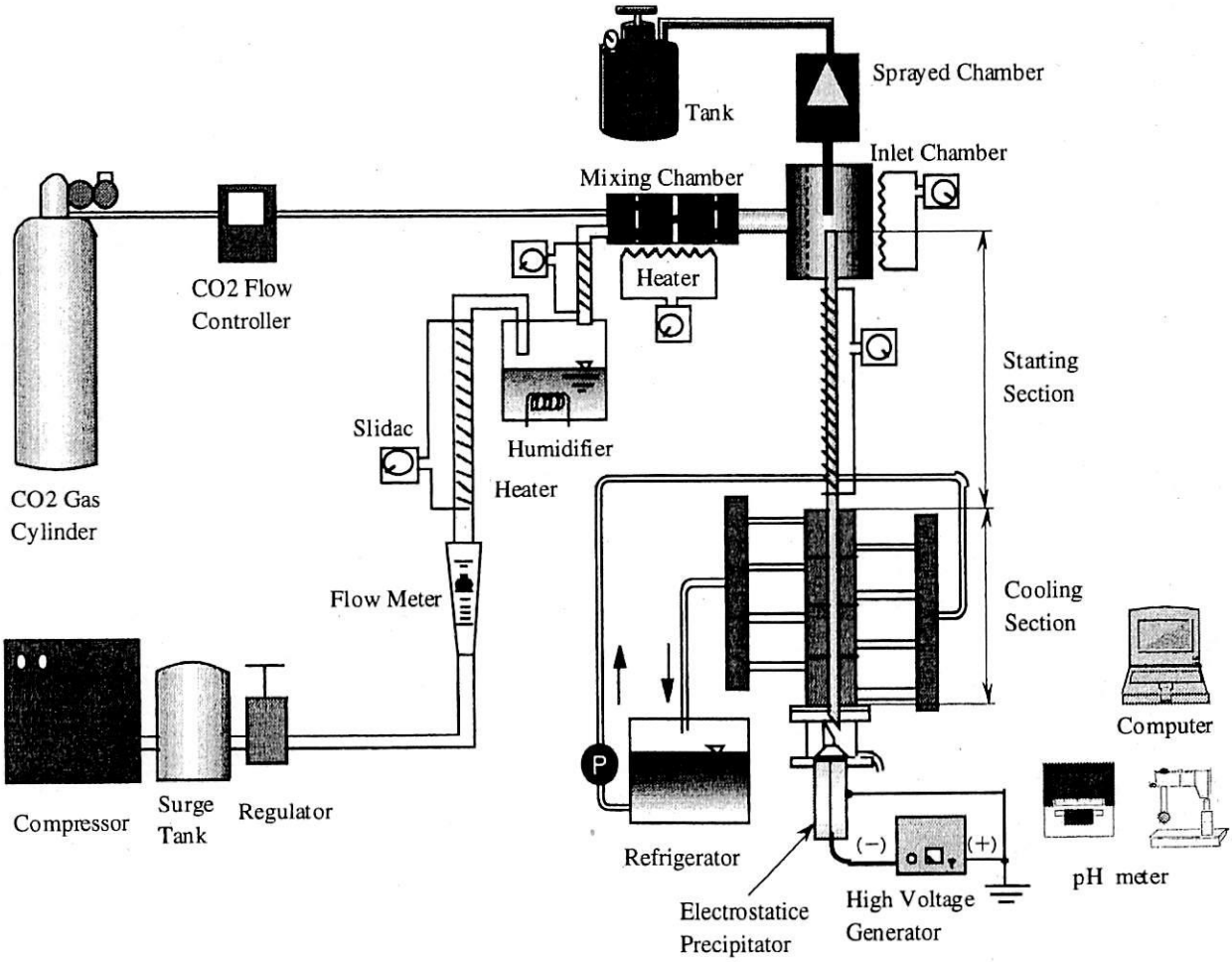



図3-1　実験装置概要図

(1) 実験装置主要部

実験主要部の概略図を図3-2に示す．実験主要部は混合ガスの流れを発達させると同時に，微粒子を供給させるために用いられたエタノールを蒸発させる助走部と，試験部入口に設置された空気溜まり部，ミストの回収を行う電気集塵装置から成る．

空気溜まり部は，両端にフランジ機構をを有する内径65mm，外径75mm，長さ140mmの銅管，アクリル製の上板および銅製の下板より形成され，高温のガスを安定して供給するために，整流板が内部に設置されている．助走部は内径8.8mm，外径9.5mmの銅管であり，試験部入口から758mmの長さである．助走部銅管外壁には，入口からmmの位置に$\phi$ 0.2mmのT型熱電対が取り付けられ，管内流の温度を一定に保つため，外壁にテープヒーター（坂口電熱株式会社)テープヒーターが巻き付けられている．内径9.5mm，外径13mm，長さ48mmのらせん溝付銅管（図3-3）により接合された試験部は，内径8.8mm，外径9.5mm長さmmのらせん溝付銅管により構成されている．冷却部は外壁に沿って設置された長さ100mmのアクリル製ブロック内を冷却系より流れるブラインが通過することにより熱交換が行われる．各ブッロク内には冷却壁面温度を測定するために，ブロック上端から10，50，90mmの位置に$\phi$ 0.2mmT型熱電対が設置されている．

電気集塵部は，図3-4おに示すように円筒型の電気集塵装置であり，上部のフランジにより試験部出口に取り付けられるようになっている．放電極は，長さ165mm，直径0.2mmのニッケル線で負極性直流型の高電圧電源の－端子に高電圧リード線を介して接続されている．集塵極は内径23.5mm，外径25.5mm，長さ170mmの銅管で，高電圧電源の＋端子とともにアースに接続されている．また，集塵極は，集塵極と放電極の微粒子を介した導電を防ぐため，集塵部入口から長さ100mmまでは高電圧リード線をつなぎ，そこからmmニクロム線をつないだ．高電圧リード線を用いる部分は，内径27.5mm，外径31.5mm，長さ100mmのアクリル管にテープヒーターを巻き付けアクリル管内が飽和蒸気により濡れるのを防いだ．また，集塵極には，温度調節器（OMURON製“TEMPERATURE CONTROLLER E5AX”に巻き付けられたテープヒーターを巻き付け，集塵極壁面を一定かつ一様な温度に加熱できるようにした．

(2) 供給系

供給系は，微粒子供給部，ノズル，エタノールと炭酸カリウム微粒子を噴霧する噴霧装置から構成される．微粒子供給部は，両端にフランジ機構を有する内径70mm，外径80mm，長さ155mmのアクリル管と，アクリル製の上下板により形成されている．円管中心部には内径8.8mm，外径9.5mm，長さ145mmの銅管が下板から50mmの位置まで伸びるように固定されている．上板には直径13mmの穴が開けられ，Oリングを介してノズルが固定されている．ノズルより供給され試験部に流入されなかった溶液は，供給部の下板に設けられた出口よりゴム管を通して回収され，再利用される．ノズルはノズル径0.05mmの穴を有し，内部にあるフィルターが炭酸カリウム微

粒子による目づまりを防ぐため，実験ごとに超音波洗浄機により洗浄を行った．5Lのタンクを有する噴霧装置（工進製“畜圧式噴霧装置”“HS-401X”）は手動により加圧し，取り付けられた圧力計により，一定の圧力により噴霧を行った．

(3) 空気系

空気系はコンプレッサー，サージタンク，減圧弁，流量調節バルブ，流量計，加湿器，CO2流量コントローラ，混合室から構成されており，コンプレッサーから吐き出された供給空気は，サージタンク，減圧弁を経た後，流量計に流入し，ここでバルブの調節により，流量が調節される．その後，供給空気はテープヒータにより巻かれた管，ボイラをを通過し，加熱・加湿されながら混合室に流入する．供給ガスとしてのCO2は，CO2ボンベから供給されたガスがレギュレータにより減圧され，その後CO2流入コントローラ（STEC製“MASS FLOW CONTROLLER“SEC-400 MARK2”，“STEC MASS FLOW SYSTEM PAC3E”）により流量を調節された後混合室へ流入する．混合室に流入した供給空気と供試ガスは，3枚の邪魔板を通過することにより混合され空気溜まり部に流入する．

(4) 冷凍系

冷却系は，冷凍機，冷却部の両側に設置されたヘッダー，冷却部まわりに設けられたアクリル製ブロックおよび流量調節バルブから構成されている．冷凍機（タイテック株式会社製“COOLINTBATH EL-15F”）により冷却されたブラインは，冷却部の両端に設置された流入側のヘッダーに供給された後，実験主要部冷却部まわりに設けられたアクリルブロックに分岐し流入する．熱交換の方式は，ブラインが管内流と反対方向に流れる交流式を用い，冷却部壁面の温度調節は，冷凍機の温度設定と各部ロック入口に設けられたバルブの開閉により行った．

(5) 測定計

測定は，供試空気の流量，主流の温度，蒸気濃度，試験部の壁面温度，凝縮量，凝縮時間，ミスト発生量，凝縮液中のCO2ガス濃度について行った．測定機器として，供試空気の流量測定には草野科学器械製作所製“フロートメーター FT-1400, FT-1600”を，凝縮液の質量測定には島津製作所製“電子上皿天秤 ED-H60”を，凝縮液内のCO2濃度測定には堀場製作所製“PHメーター F-22”を用いた．冷却管内で発生するミストの測定および，供給微粒子である炭酸カリウムの粒径測定に関するものとしては，OLYMPUS製“オリンパスシステム顕微鏡 BHSM-363MD”，ソニー製“CCDカラービデオカメラ DXC-151”，および三菱電気製“SVHSビデオカセットレコーダー HV-S62”を，ミスト流の可視化には日本科学エンジニアリング製“光ファイバー式レーザーマーキング NAL-15F”を用いた．　また，各部の温度測定にはT型熱電対を使用し，各熱電対の温度測定にはシャープ製パーソナルコンピュータ“MEBIUS”とKEYENCE社製A/D変換カードレコーダソフト“NR-250 WAVE　THERMO”を用いて計測を行った．

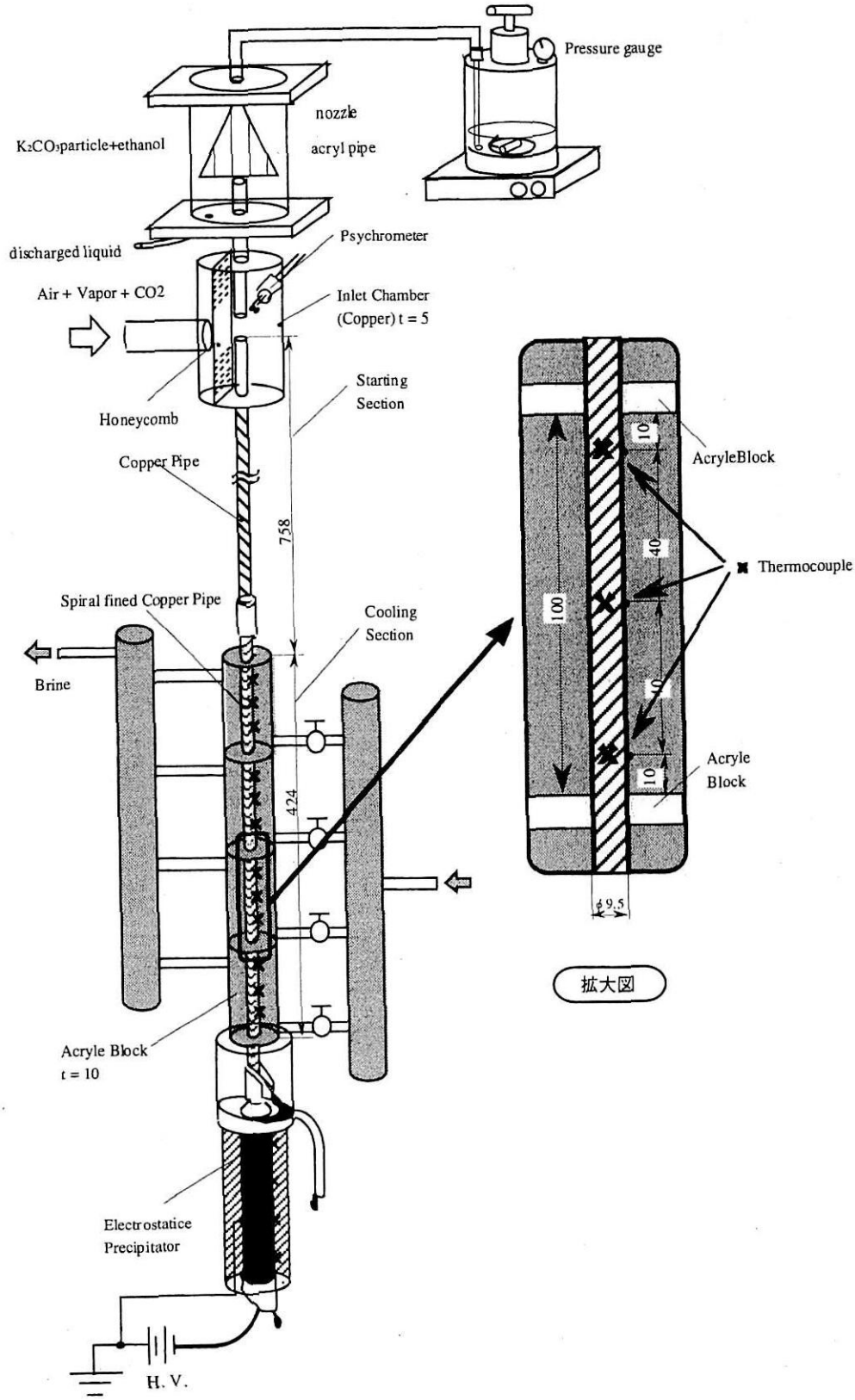
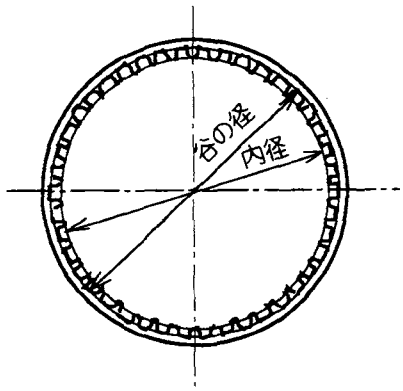
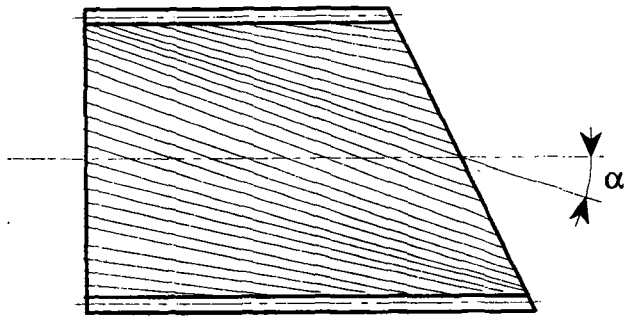
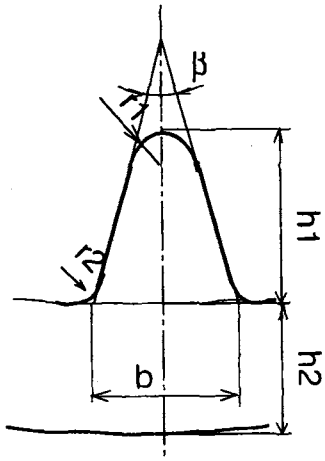

Pressure gauge
nozzle
acryl pipe
K2CO3particle+ethanol
discharged liquid
Psychrometer
Air + Vapor + CO2
Inlet Chamber
(Copper) t = 5
Starting
Section
Honeycomb
Copper Pipe
758
Spiral fined Copper Pipe
Cooling
Section
Brine
424
Acryle Block
t = 10
Electrostatice
Precipitator
H. V.
AcryleBlock
Thermocouple
Acryle
Block
拡大図

図　実験主要部概要図




溝直角断面

表3-1　溝付き管の形状寸法　単位 [mm]

| | |
|---|---|
| 外径 | 9.5 |
| 山の数 n | 60 |
| 内径 $d_1$ | 8.82 |
| 最大内径(谷の径) $d_2$ | 9.09 |
| ねじれ角 α | 18 |
| リード L (=$d_2$*π*tanα) | 87.9 |
| ピッチ p (=L/n) | 1.46 |
| h1 | 0.137 |
| h2 | 0.205 |
| r1 | 0.04 |
| r2 | 0.12 |
| β | 75 |
| b | 0.26 |

図3-3　らせん溝付管形状

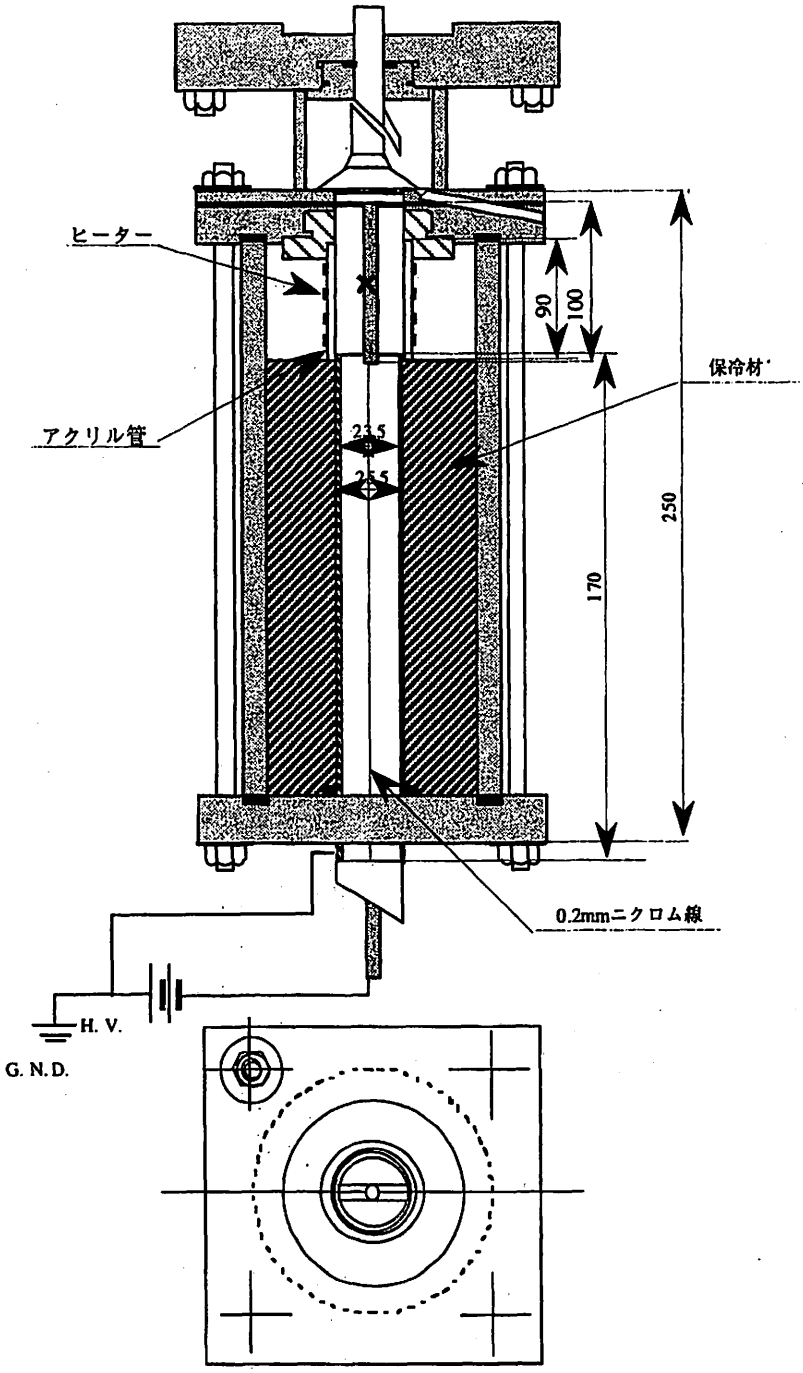



図5　電気集塵装置図

## 2 実験方法

### (1) 流下液膜へのガス吸収

実験は，供試液体として$K_2CO_3$水溶液ならびに蒸留水を用い，混合ガスの濃度，気流の速度，液膜流量，$K_2CO_3$水溶液の濃度，気流の温度を表3-2-1に示す実験条件内で種々変化させ，定常状態のもと，ガス吸収量について測定の行ったものである．

| 実験条件 | 実験範囲 |
|---|---|
| 気流速度　Um　m/s | 2.0 , 3.0 |
| 入口温度　T0　℃ | 20～80 |
| 液濃度　mol/L | 0.025,0.25,0.5 |
| 液膜流量　L/min | 2.0 |
| 入口ガス濃度 $\rho_{g0}$　vol% | 10,30,50 |

表 3-2-1　実験条件

気流速度，液膜流量，入口ガス濃度，入口温度について，流量計，流量調節バルブ，空気系に取り付けられたヒーター，CO2流量コントローラーの調整によりそれぞれ所定の条件を整え，以上の状態を各種測定器で監視し，定常状態を確認した後，実験および測定を開始した．測定は，実験主要部であるガラス管が一様に濡れた状態において液膜流量，流下液膜中ガス濃度についての測定を行った．

以下，各測定法およびデータ整理法について次節で詳述する．

(2) 各種測定法及びデータ整理法

1) 管内様相

試験部のガラス管を流れる流下液の様相について，その観察を行った．ガラス管内を一様に濡らした状態において，気流の流速を 1.0~4.5 [m/s]，液膜の流量を 0.025~0.125 [l/min]に変化させ，ファイバースコープカメラ（KEYENCE VH-5910）で観察局部の撮影，ビデオ(Mitubishi HV-S62)による録画を行い，ビデオプリンター(Sony UP-5000)により出力した．

2) pH 変化 - 炭素量校正曲線の作成

ビーカーに入れた 100ml の蒸留水に，エアポンプにより CO2 ガスを 2.0 [L/min]でバブリングして吹き込み，30，60，90，120，150 秒間ガスを吸収させた．それぞれガスが吸収された液を pH 計により pH を測定するとともに，全有機炭素系により無機炭素量を測定し，pH 変化に対する液膜へのガス吸収量を求めるの校正曲線を作成した．

炭酸カリウム水溶液に CO2 ガスをバブリングして吹き込み、ｐＨ変化が約 0.5、0.75、1.0、1.25、1.5 のガス吸収試料液を 100ｍｌずつ作成した．これらの液を 5ｍｌずつ三角フラスコに採取し蒸留水で 25ｍｌの液に希釈して、ｆ（ファクター）≒1 の塩酸によ中和滴定を行った。炭酸カリウムの中和反応は以下に示すものである。

第 1 段滴定の反応　K2CO3+HCl=KHCO3+KCL

第 2 段滴定の反応　KHCO3+HCl=KCl+H2O+CO2

この反応から試料の K2CO3，$KHCO_3$ の増減量を求め、反応により吸収された CO2 の量を算出した。

K2CO3=0.00641*2A*f　　A ：第 1 段滴定に用した塩酸の量（ml）

KHCO3=0.001001*(B-A)*f　　B-A ：第 2 段滴定に用した塩酸の量（ml）

3) 流下液膜中ガス濃度

試験円管であるガラス管全面が一様に濡れた状態のもと，蒸留水，K2CO3 水溶液を流下させ，気流速度，液膜流量，入口ガス濃度を種々変化させ，回収液のガス吸収前・後の pH 値を測定した．測定した pH の差から(2)で求めた校正曲線により次式で示すように液膜中のガス濃度 Xgf $kg/kg'_{H2O}$，Xgf $kg/kg'_{K2CO3}$ を算出した．

蒸留水　$X_{gf} = 45.861 \times \Delta pH^{4.87}$

K2CO3 水溶液　$X_{gf} = 1698.2 \times \Delta pH^{2.33}$

4) ガス吸収速度

流下液膜中ガス濃度 Xgc と液膜流量 Ml から，液膜へのガス吸収速度 Mgf kg/s が次式より算出される．

$$M_{gf} = X_{gf} Ml$$

5) K2CO3 の濃度変化によるガス吸収速度

K2CO3水溶液の濃度を，これまでの実験行っていた濃度0.25[mol/l] から0.025 [mol/l] , 0.5 [mol/l] に変化させ，濃度を変化させたときのガス吸収の促進について検討した．

6) K2CO3 の気流温度の変化によるガス吸収の促進

気流の温度を 40，60，80℃に設定し，定常状態のもとで，0.25 [mol/l] の K2CO3 水溶液によるガス吸収実験を行い，気流温度の変化によるガス吸収の促進について検討した．

7) ガス回収率

蒸留水によるガス回収率 $\eta_{fH}$ % および K2CO3 水溶液によるガス回収率 $\eta_{fK}$ % をそれぞれ次式で定義する．

$$\eta_{fH} = \frac{M_{gf}}{G_{gin}} \times 100 \qquad \text{（蒸留水）}$$

$$\eta_{fK} = \frac{M_{gf}}{G_{gin}} \times 100 \qquad \text{（K2CO3 水溶液）}$$

ここで，

Ggin ：流入ガス量 kg/s

(3) 凝縮液膜，ミストへのガス吸収

実験は，供試ガスとして二酸化炭素を用い，冷却壁面温度 Tw = 3.0 ℃ 一定のもと，気流速度，入口温度，入口蒸気濃度，入口ガス濃度，冷却部長さを表3-1に示す実験条件内で種々変化させ，定常状態のもと，凝縮量およびガス吸収量の測定を行ったものである．表3-2-2に実験条件を示す．

| 実験条件 | 実験範囲 |
|---|---|
| 気流速度 Um m/s | 2.0 , 3.0 |
| 入口温度 T0 ℃ | 60, 70, 80 |
| 壁面温度 Tw ℃ | 3.0 |
| 噴霧圧力 Ps kgf/cm$^2$ | 2.0 |
| 入口蒸気濃度 $\rho_{v0}$ kg/m$^3$ | T0=60℃：0.05,0.10<br>T0=70℃：0.05,0.075,0.1,<br>0.125, 0.15, 0.175<br>T0=80℃：0.1,0.25 |
| 入口ガス濃度 $\rho_{g0}$ kg/m$^3$ | 0.1 , 0.3 , 0.5 |

表3-2-2 実験条件

気流速度，入口温度，入口蒸気濃度，入口ガス濃度について，流量計，流量調節バルブ，空気系に取り付けられたヒーター，加湿器，CO2流量コントローラーの調整によりそれぞれ所定の条件を整え，助走部の壁温をエタノールの蒸発に伴う潜熱を考慮し，ヒーターの調整により入口温度より約25～30℃高い温度に設定した．冷却部の壁温は，ほぼ3℃になるようにブラインの温度と流量を調整した．以上の状態を各種測定器で監視し，定常状態を確認した後，実験および測定を開始した．

測定は，供給粒子量，凝縮量，凝縮液中ガス濃度，ミスト発生量および回収されたミスト中のガス濃度についての測定を行った．

以下，各測定法およびデータ整理法について次節で詳述する．

(4) 各種測定法及びデータ整理法

1) 供給微粒子数の測定

微粒子の供給は，畜圧式噴霧器により，容器内圧力を2.0 kg / cm2 に加圧して一定に保ち，0.05 mm 径のノズルにより行った．微粒子混合液（エタノール＋炭酸カリウム微粒子）の試験部への供給において，微小液滴のみを供給するため微粒子供給部の銅管部より100mm高い位置での噴霧を行った．

供給された微粒子は試験部出口において，シャッター機構を有する微粒子捕集装置（図3-5）により回収した．シャッター機構はアクリル円管（内径 60 mm，外径 80 mm，長さ 870 mm），スライドガラスを乗せるためのステージ，およびカメラのレリーズに接続されたプラスチック板（17 mm × 30 mm）より構成させており，レリーズを操作することにより，任意の露出時間を与えられるようになっている．

スライドガラス（図 3-6）に捕集された微粒子を顕微鏡により 1000 倍に拡大して観察を行い，ビデオに録画した．録画された画像を画像処理および，ビデオプリンターに印刷し，コピーにより拡大することにより，供給された微粒子の数および粒径を測定した．

ここで，炭酸カリウム微粒子を含むエタノールの混合液は次のようにして作成した．

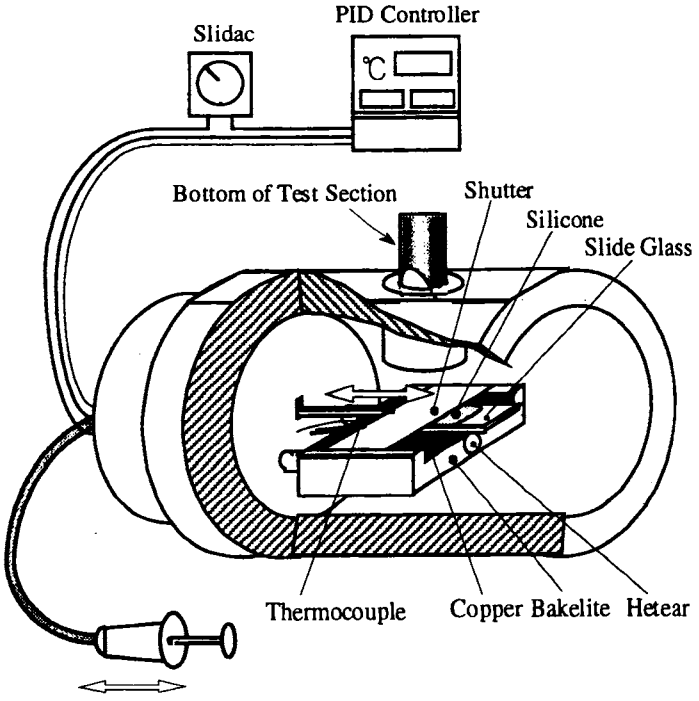



図3-5 サンプリング装置

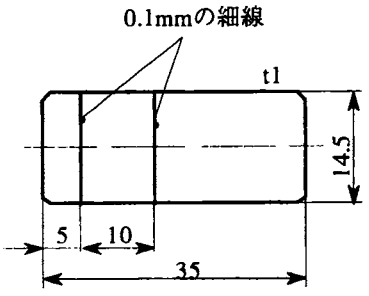



図3-6 スライドガラス

炭酸カリウムとエタノールを含む混合液の作成

すり鉢に炭酸カリウム粉末を入れ、エタノールを加えてよくすり潰してた．これによりできた白濁したエタノール＋炭酸カリウムの混合液を１ｌのビーカーに入れ、粒子を沈殿させる．沈澱後の上澄み液をさらにフィルターを用いてろ過を行い炭酸カリウム微粒子を含むエタノール混合液を作成した．フィルターにより，1.2μm以下粒子のみを捕集することができた．

エタノールは炭酸カリウムは空気中において潮解性を示すため，供給においては湿り空気を含む試験部への供給には不溶性のエタノールとともに噴霧することにより炭酸カリウムの気流中での溶解を防ぐため用いた．

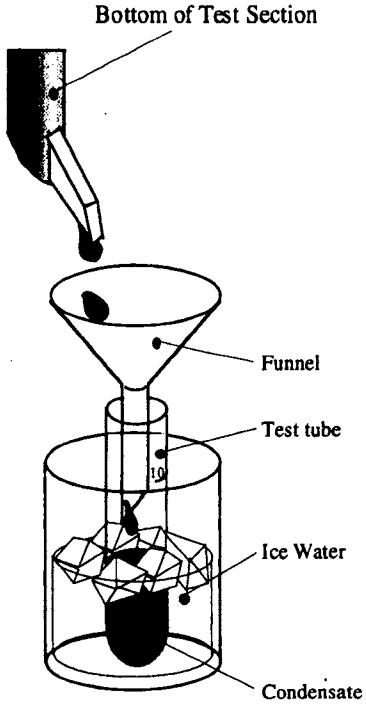


図3-7　凝縮液回収法

2)　凝縮液の回収

凝縮液の回収の概略図を図3-7に示す．回収は，氷水に浸された試験管を，試験部出口からの流出気体が試験管内に流入しないような位置に設置して行った．その際，ストップウォッチを用いて採取時間ｔｓを測定した．採取された凝縮液の質量Wv kgは電子上皿天秤を用いて測定した．

3)　凝縮速度

測定された凝縮液質量と採取時間より，壁面凝縮速度Mvc kg/sを次式より算出した．

$$M_{vc} = \frac{W_v}{t}$$

4)　凝縮液中ガス濃度

ガスを流入せず，炭酸塩微粒子供給を行ったガス吸収前の凝縮液，各ガス濃度においてガス吸収を行った凝縮液の採取を試験部出口で行い，採取液のpH値をpHメーターによりを測定した．ガス吸収前後のpH値の差ｘを求め，次式に示すpH変化-炭素量校正曲線より，凝縮液中ガス濃度Xgc kg/kg'$_{K2CO3}$を求めた．

$$X_{gc} = 1698.2 \times \Delta pH^{2.33}$$

5)　ガス吸収速度

凝縮液中ガス濃度Xgcと凝縮速度Mvc から，液膜へのガス吸収速度Mgc kg/sが次式より算出される．

$$M_{gcf} = X_{gc} M_{vc}$$

6) ミストの回収

ミストの回収は，試験部出口に取り付けられた電気集塵装置により行った．回収の手順は以下の通りである．

①内部を乾燥させた電気集塵装置を試験部出口に取り付ける．

②所定の電圧（5kV）をかける．放電が不安定なときは電圧を一時的に低くし，調整を行う．

③アクリル管に取り付けたヒーターの温度を試験部出口温度より約5℃高い温度に設定し，アクリル管内の凝縮を防ぐ．

④電気集塵部より流出してくる凝縮液を採取し，その採取時間t1sをストップウォッチを用いて測定する．

⑤電子上皿天秤を用いて，採取した回収液の質量Wm1kgを測定する．

⑥回収液をpH計を用いて測定し，pHを記録する．この時，回収液は少量のため，蒸留水による希釈を行った．

⑦一度，電気集塵装置を取り外し，管内を乾燥させた後，再び試験部出口に電気集塵装置に取り付け電圧をかけない状態で凝縮し電気集塵装置から流出する凝縮液を回収し，採取時間t2s，及びその質量Wm2kgを測定する．（f）と同様にpHの測定を行った．

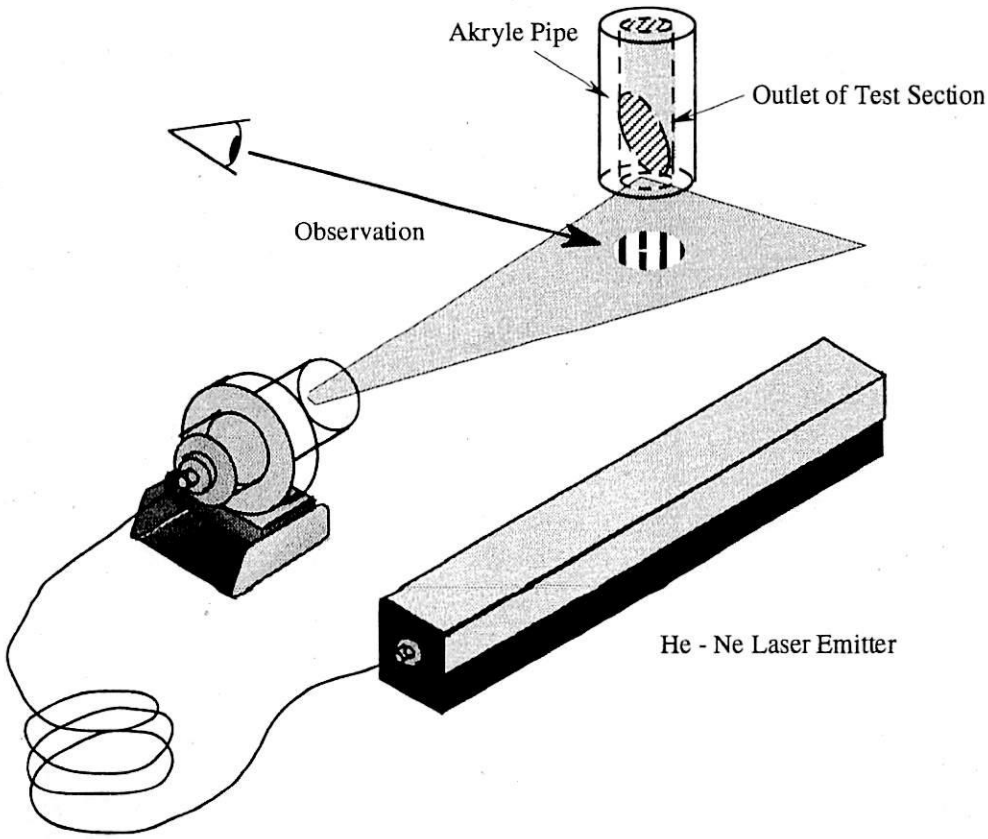



図3-8 ミスト発生観察概略図

ミスト測定中は，集塵極内でスパークが生じると温度測定装置に異常が生じるため，定常状態になってからは温度測定は中断した．

7) ミスト発生速度

ミスト発生測定の概略図を図3-8に示す．ミストの発生は，He-Neレーザーのスリット光を試験部出口より流出してくる気流に照射し，ミストの発生を確認した．

測定された回収液の質量，電気集塵極内の凝縮液の質量，及びそれぞれの採取時間からミスト発生速度を次式で求めた．

$$M_{vm} = \frac{W_{m1}}{t_1} - \frac{W_{m2}}{t_2}$$

8) ミスト滴中ガス濃度

ミスト滴中ガス濃度は，pH値を校正曲線より校正を行い，電気集塵を行った回収液のCO2吸収量から，集塵極内凝縮液のCO2吸収量の差を求めることによりミスト滴中ガス濃度Xgmを求めた．

$$X_{gm} = X_{gm1} - X_{gm2}$$

9) ミストへのガス吸収速度

測定されたミスト滴中ガス濃度Xgm及びミスト発生速度mvmから，冷却管内でのミストへのガス吸収速度Mgmを次式より算出した．

$$M_{gm} = X_{gm} M_{vm}$$

10) ガス回収率

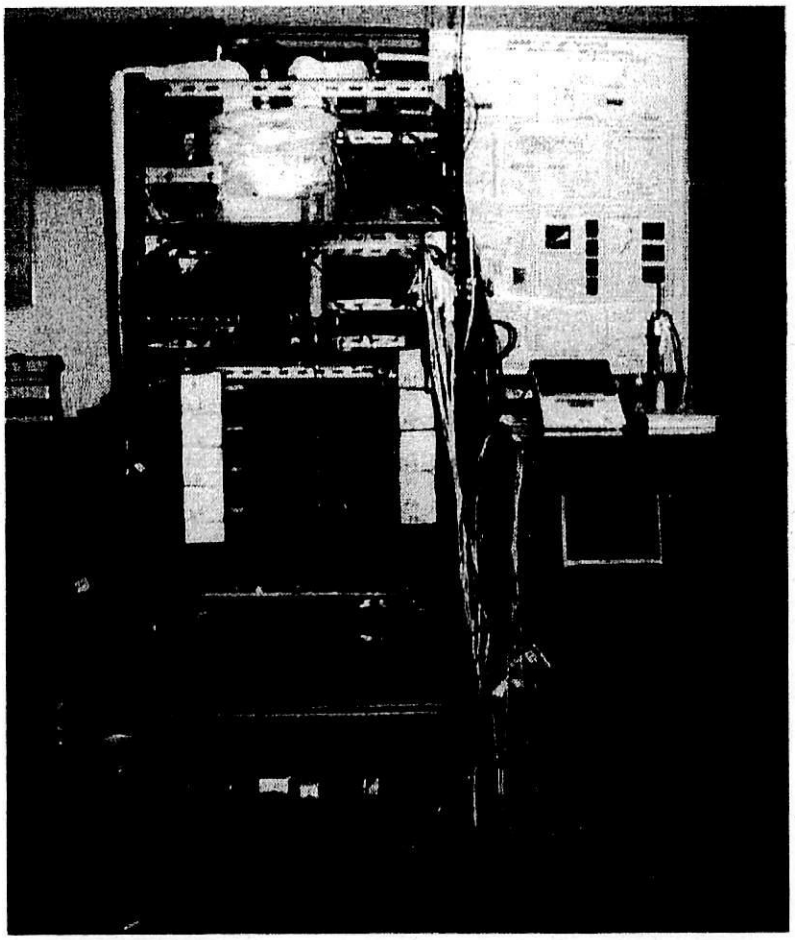
凝縮液膜によるガス回収率$\eta_c$%およびミストによるガス回収率$\eta_m$%をそれぞれ次式で定義する．

$$\eta_c = \frac{M_{gcf}}{G_{gin}} \times 100 \qquad \text{(凝縮液膜)}$$

$$\eta_m = \frac{M_{gm}}{G_{gin}} \times 100 \qquad \text{(ミスト)}$$

ここで，

Ggin ：流入ガス量 kg/s



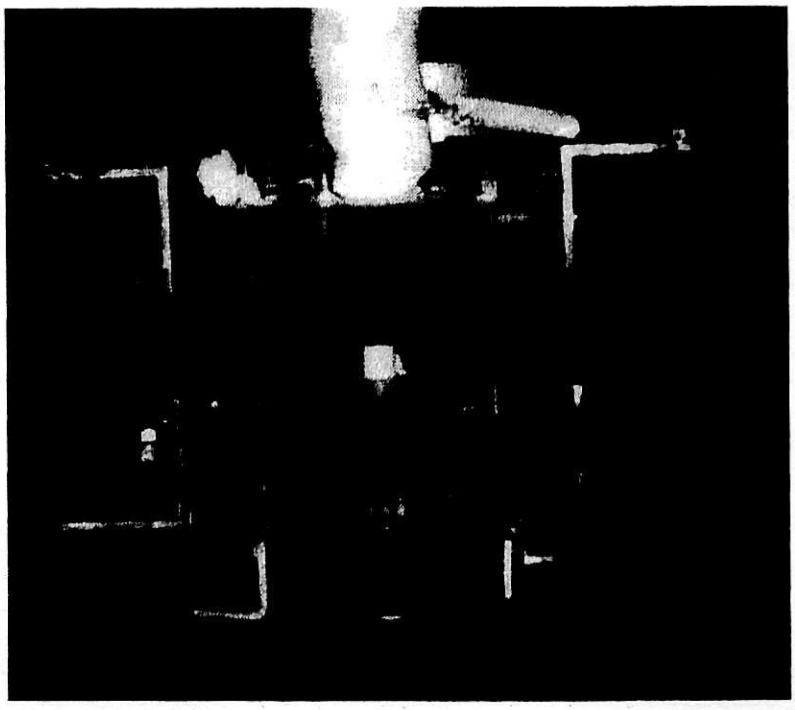


写真 1　実験装置概要

# IV. 結果および考察

## 1. 流下液膜へのガス吸収

### (1) 流下液膜様相

流下液膜法は液相拡散律速となるガス吸収法であり，液膜表面にできる波立ちが特徴である．吸収量増加のため，流下液膜法において，この表面の波立ちは吸収を促進させる重要な要素である．本実験では，ガス吸収を行う試験主要部がガラス管であるため，その液膜様相が確認できる．そこで，流下液膜の液膜様相が液流量の増加に伴いどのような波形をするか観察を行った．

実験は管内を一度完全にぬらした状態にして，気流速度，液流量を変化させて観察を行った．これにより，管内には濡れない位置（ドライパッチ）は存在しなかった．管内を濡らさない状態において，気流速度，液流量を増加させると，螺旋状に液が管内を流れはじめ，気流速度を増加させることによって，その螺旋状の液は結合し，管内を一様に濡らし流れる様相を示した．気流速度の増加により，気流の液膜に対するせん断力が増加することにより液膜は結合していると考えられる．

ガス吸収は管内が一様に濡れ，波立ちが生じるところで行うため，管内が完全に濡れている場合の上部より約150mmの位置に注目し，流速を2.0［m/s］，液流量を0.05，0.10，0.15，0.20［L/min］に種々変化させ観察を行った．流下様相は，液流量の増加によりA，B，Cの3つのパターンに分けられることができた．この様相を写真4-1-1，4-1-2，4-1-3，および波形分布図を図4-1-1に示す．

[Aパターン]

波が1つ周期的に発生する．振幅は小さいものである．これらの波は左右同時に発生するものではなく，周期的に時間をおいて発生していた．この時液流量は0.025L/min］であった．

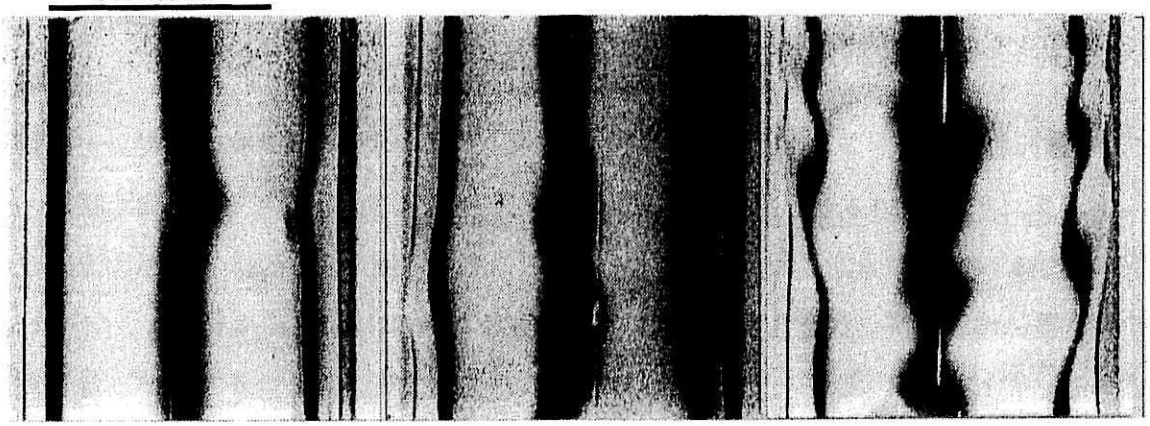
[Bパターン]

波が2～3個早い周期で現れ，振幅はAよりも大きいものである．この時液流量は0.075L/min］であった．

[Cパターン]

波が多く早い周期で現れ，波形は複雑なものとなる．波の振幅は大きく，波長も長いものとなった．静止画像において，4この波が確認された．液膜の厚さも他の2つに比べ厚いものである．この時の液流量は010［L/min］であった．

管内様相



MI 0.05 [l/min] u 1.0 [m/s]　　MI 0.05 [l/min] u 2.0 [m/s]　　MI 0.10 [l/min] u 2.0 [m/s]

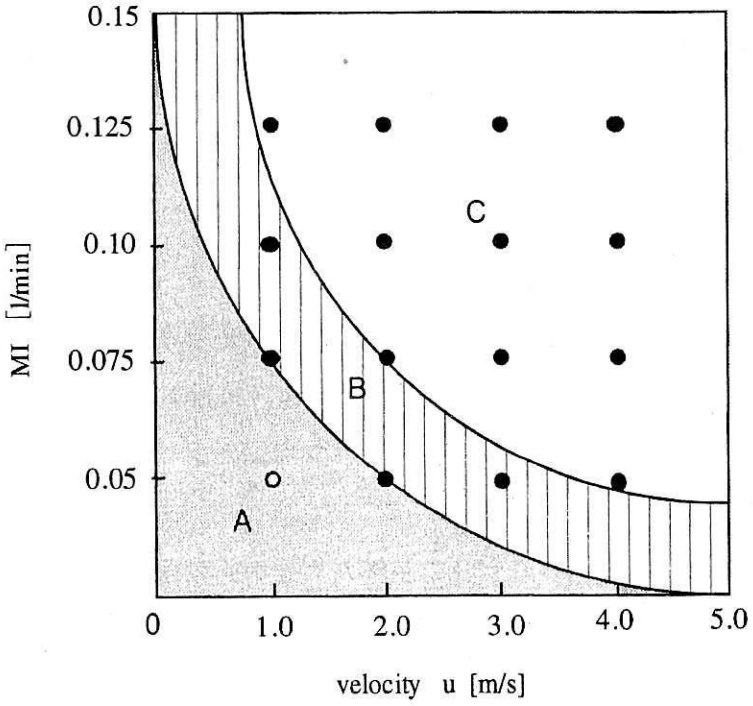



図4-1-1　管内流の波状パターン

(2)ガス吸収速度

本節においては，流下液膜へのガス吸収について，蒸留水および炭酸カリウム水溶液のガス吸収前後のpH変化，流下液膜中のガス濃度およびガス吸収速度について入口ガス濃度，気流速度，液膜流量をそれぞれ変化させた結果から検討する．さらに，溶液の濃度，温度に対する吸収量についてもpH値より検討する．

1）pH変化

蒸留水，炭酸カリウム水溶液における入口ガス濃度に対するガス吸収前・後の液膜のpHの関係を，液膜流量をパラメータとして，各気流速度における結果を図4-1-2に示す．蒸留水，炭酸カリウム水溶液とも入口ガス濃度の増加に伴いpHは減少し，液膜流量が少ないほどガス吸収後pHが小さいことが分かる．これは，液膜流量の低下により気流と液膜の接触時間が長くなるためガス吸収量が増加することによると考えられる．また，入口ガス濃度の増加に伴いpHは低下するものの入口ガス濃度の高いところの方が低いところと比較して吸収後のpHの低下の傾きが小さい．

次に，蒸留水，炭酸カリウム水溶液における気流速度とガス吸収後のpHの関係について液膜流量をパラメータとして各ガス濃度ごとに図4-1-3に示す．蒸留水，炭酸カリウム水溶液ともに，各ガス濃度において，気流速度の増加に関係なく，吸収後のpHはほぼ一定な値を示しており，気流速度はガス吸収に無関係であることが分かる．これは，円管層流条件下において物質伝達率は気流速度に関係なく一定であることによると考えられる．

2）流下液膜中ガス濃度

蒸留水，炭酸カリウム水溶液における入口ガス濃度に対する液膜ガス濃度の関係を，液膜流量をパラメータとして各気流速度における結果を図4-1-4に示す．入口ガス濃度の増加に伴い流下液膜中ガス濃度は増加し，比例関係であることが分かる．また，pH変化と同様に液膜流量の低下に伴い液膜ガス濃度は高い．

蒸留水，炭酸カリウム水溶液の各ガス濃度における炭素濃度を比較すると，炭酸カリウム水溶液の方が約1オーダー吸収量が増加していることが分かる．pHの変化量には大きな差が生じないものの，液膜ガス濃度に約1オーダーの差が生じるのは同じpH変化に対して溶液の方が炭素吸収量が多いためである．これは,pH変化-炭素量校正曲線の傾きの差から明らかである．

3）ガス吸収速度

蒸留水，炭酸カリウム水溶液における入口ガス濃度に対するガス吸収速度の関係について液膜流量をパラメータとして各流速について図4-1-5に示す．蒸留水，炭酸カリウム水溶液とも入口ガス濃度の増加に伴いガス吸収速度は増加していることが分かる．また，液膜流量は吸収速度に無関係にほぼ一定であることが分かる．これは，液膜流量の低下は液膜中ガス濃度の増加をもた

らすが，ガス吸収速度は液膜中ガス濃度と液膜流量の積により与えられるためトータルのガス吸収速度としては液膜流量によらずガス吸収速度は一定な値を示している．蒸留水と炭酸カリウム水溶液とのガス吸収速度を比較すると，溶液の使用により約1オーダーの吸収量の増加が生じており，これより溶液効果によるガス吸収の促進が明らかにされた．

4）気流温度とガス吸収後pHの関係

気流温度を40，60，80℃に変化させた時の各流速に対するガス吸収後のpHの関係を液膜流量をパラメーターとして図4-1-6に示す．各流速に対して温度を変化させてもガス吸収後のpHは約10.5～11のほぼ一定の値を示し，ガス吸収に気流温度は無関係であることが分かる．

5）溶液濃度とガス吸収後pHの関係

常温における気流速度とガス吸収後のpHの関係を液膜流量をパラメーターとして入口ガス濃度は一定のもと（$\rho_{g0}$=0.5486 [kg/m$^3$]），液膜濃度を変化させた実験結果を図4-1-7に示す．各プロット点におけるpH値を比較すると，液膜濃度が高いほどガス吸収後のpHも高いことが分かる．これは，液膜濃度が高くなるほど，吸収前pHも高くなるが，液膜へのガス吸収量は変わらないため，吸収前pHの増加に伴い吸収後のpHも増加していると考えられる．したがって，液膜濃度は流下液膜へのガス吸収量に大きな影響を及ぼさないと考えられる．

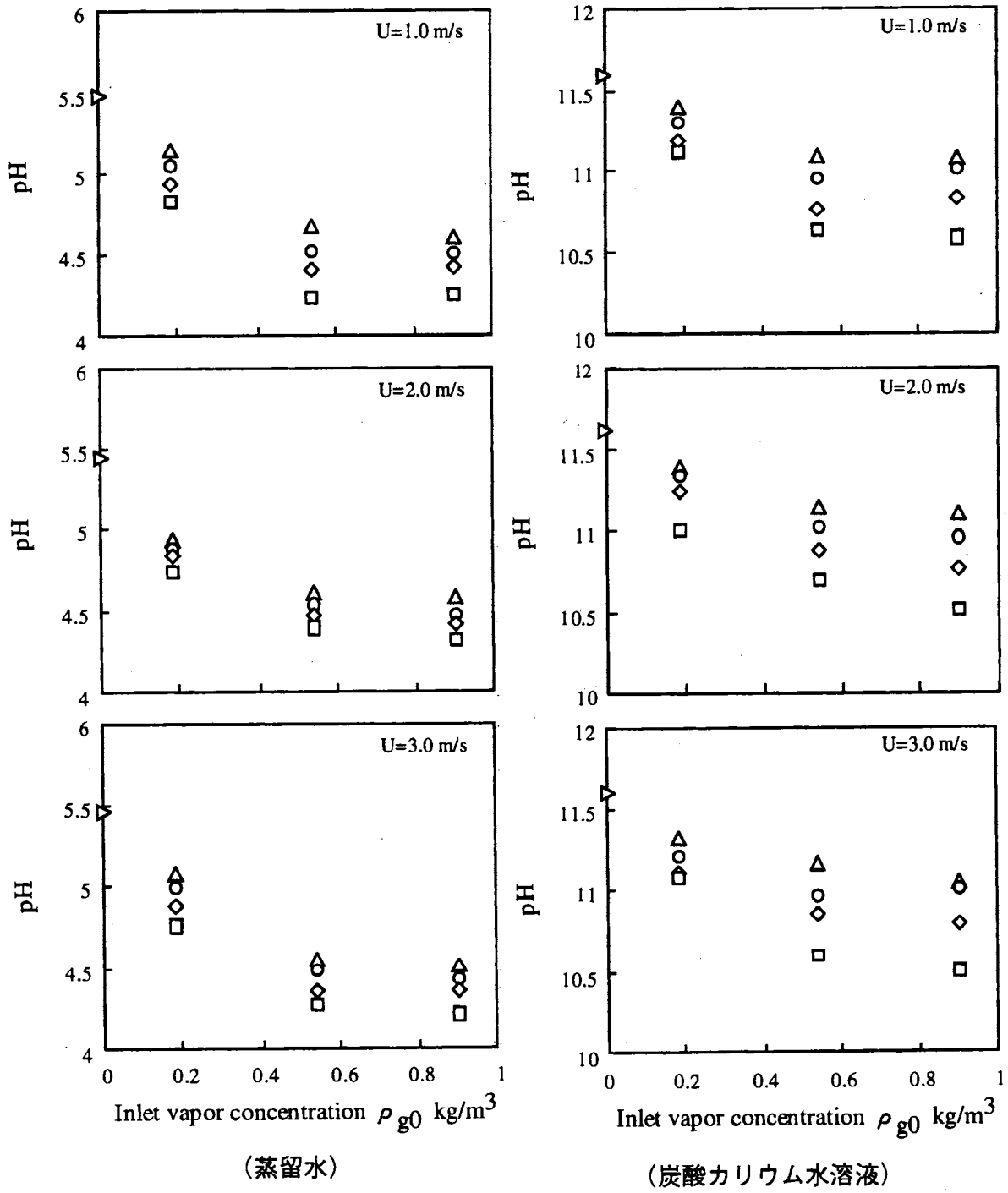



図4-1-2　入口ガス濃度と流下液膜のpH変化の関係

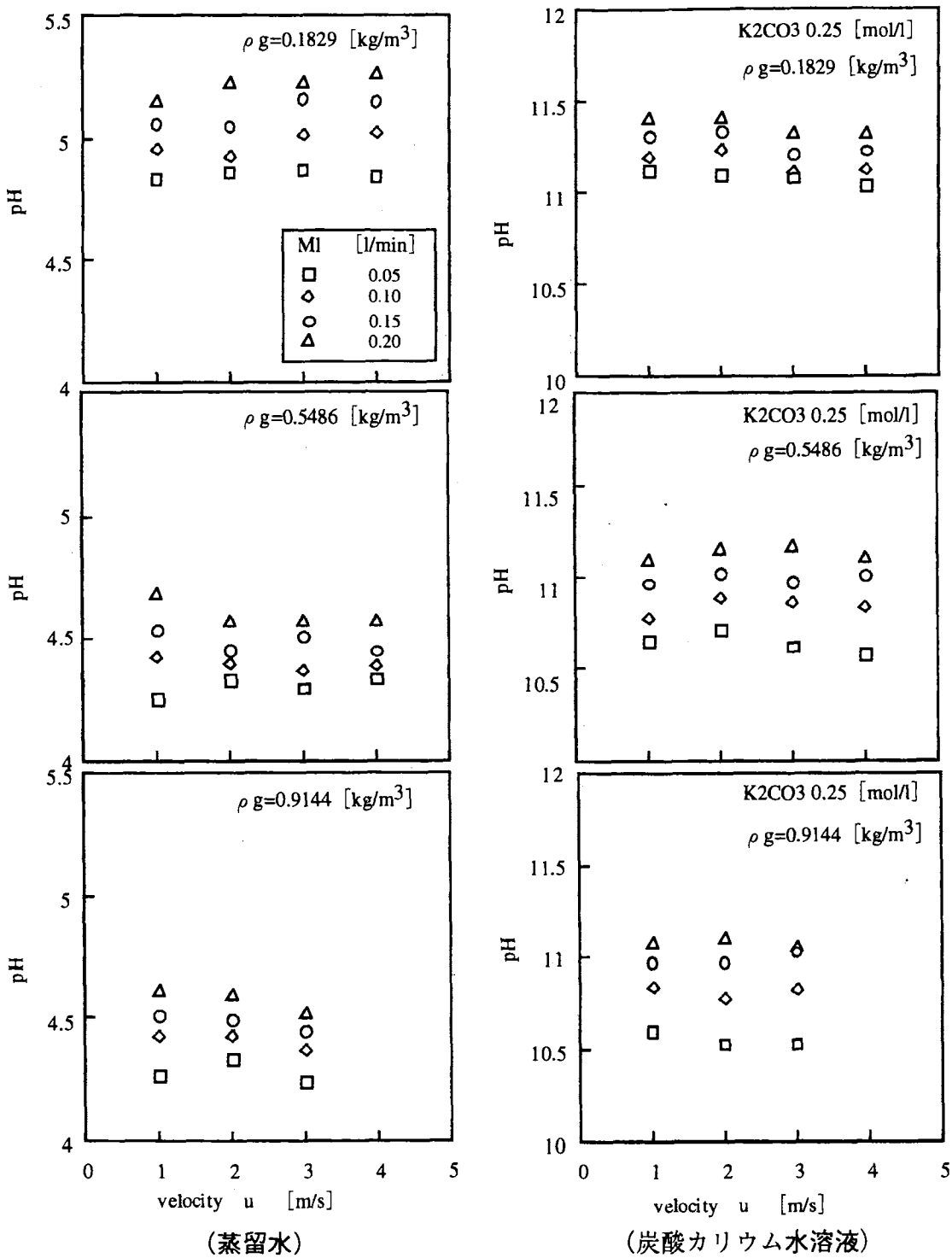



図4-1-3 流速とpHの関係

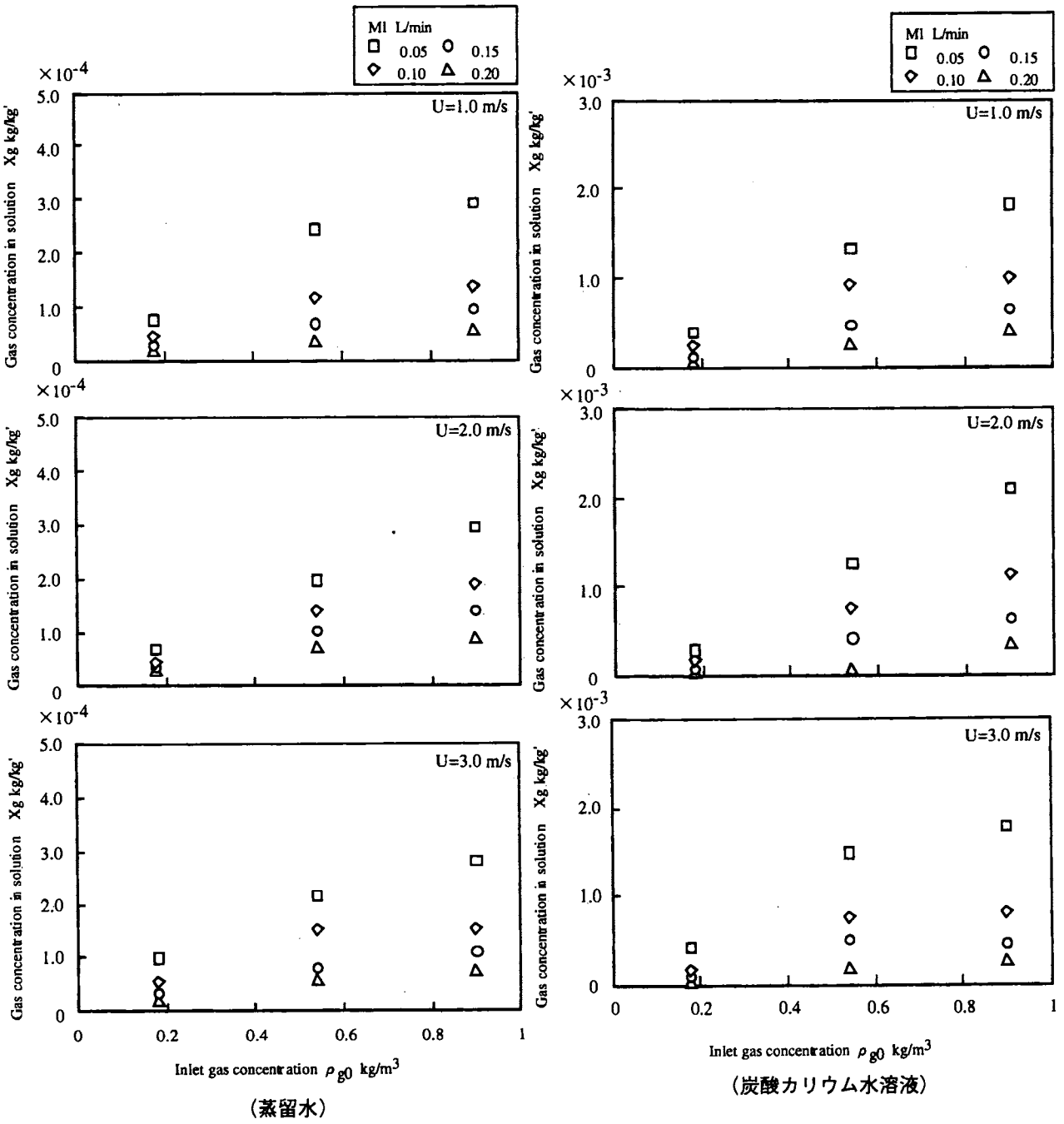



図4-1-4　流下液中ガス濃度

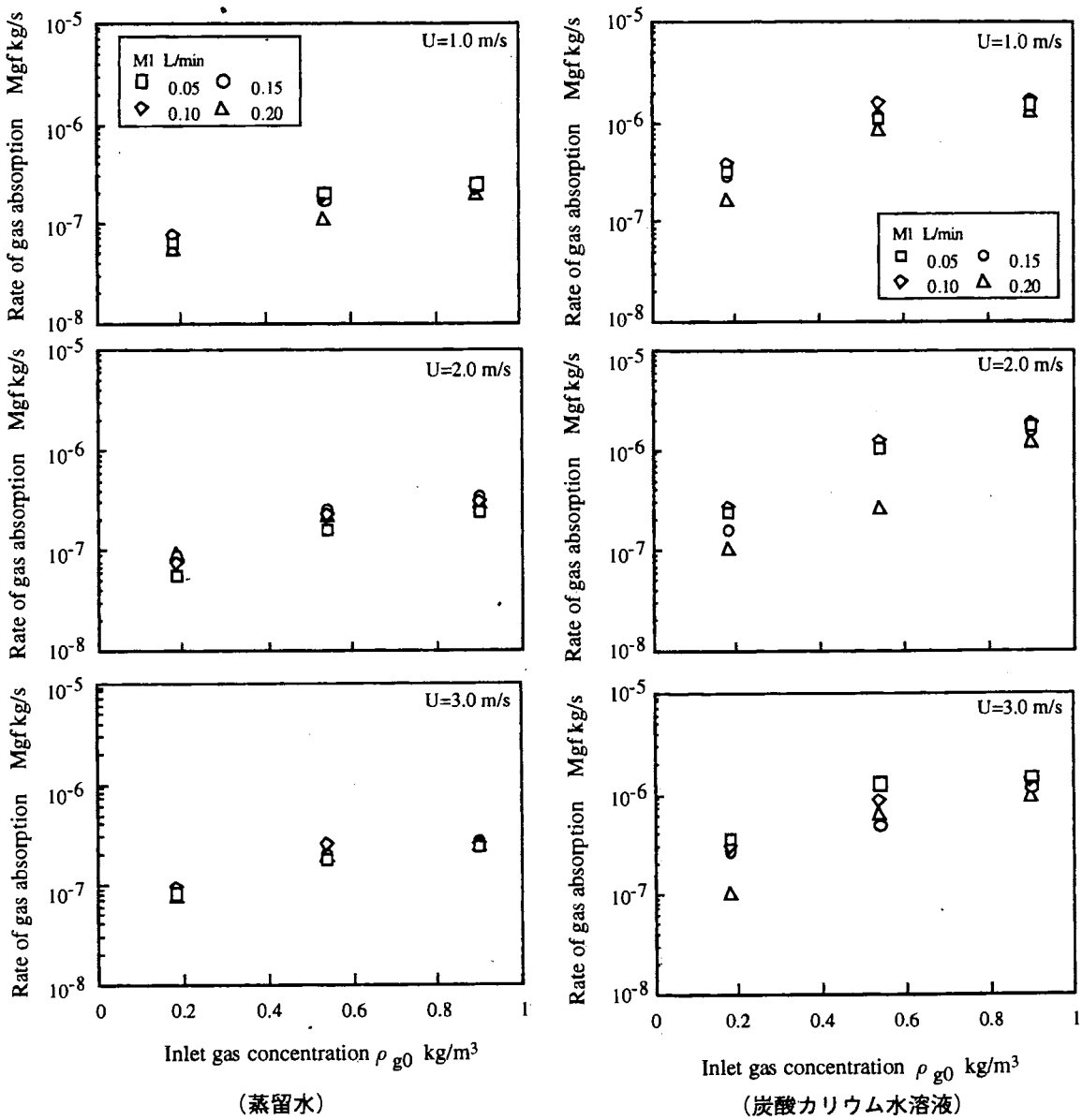
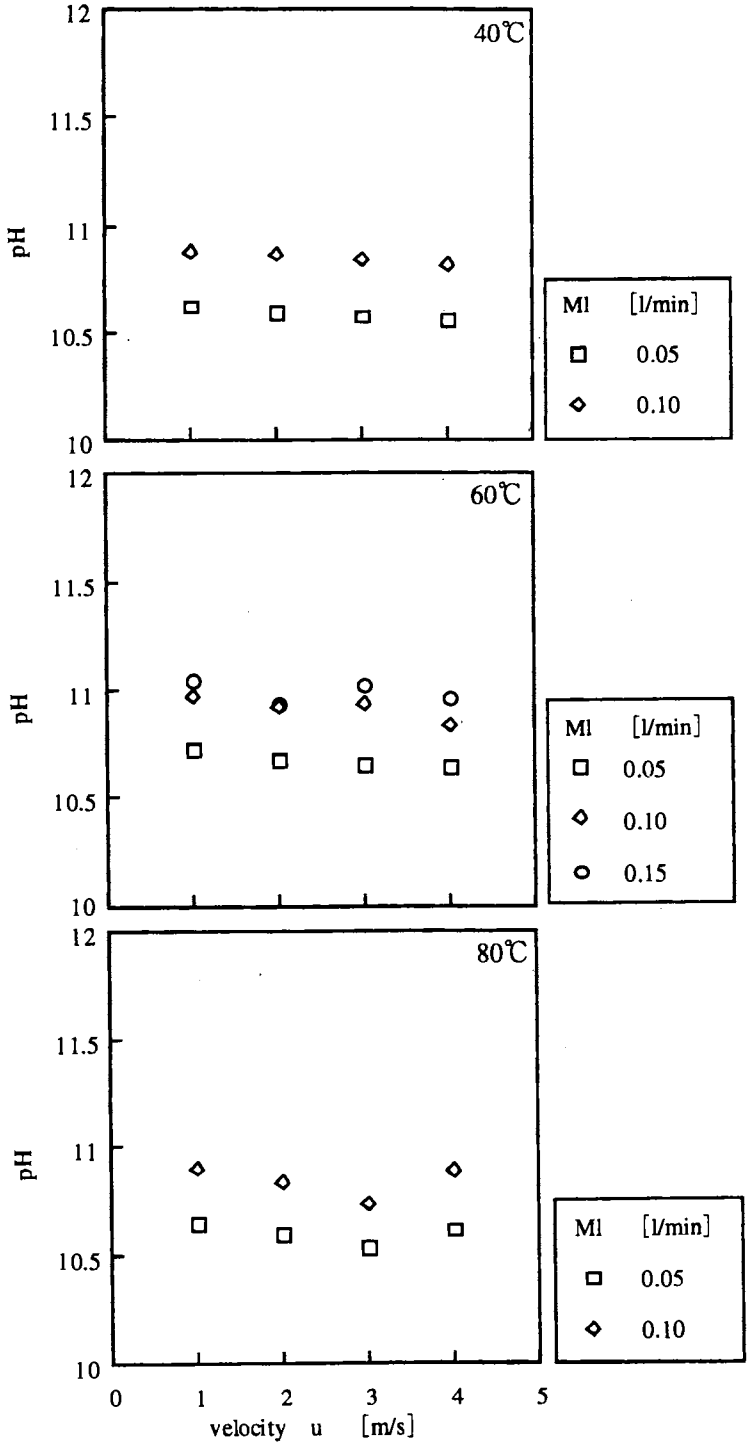



図4-1-5 流下液膜へのガス吸収速度




( $\rho_{g0}$=0.5486 [kg/m$^3$] , K2CO3 0.25 [mol/l] )

図4-1-6 温度変化による流速とガス吸収後のpHの関係
(炭酸カリウム水溶液)

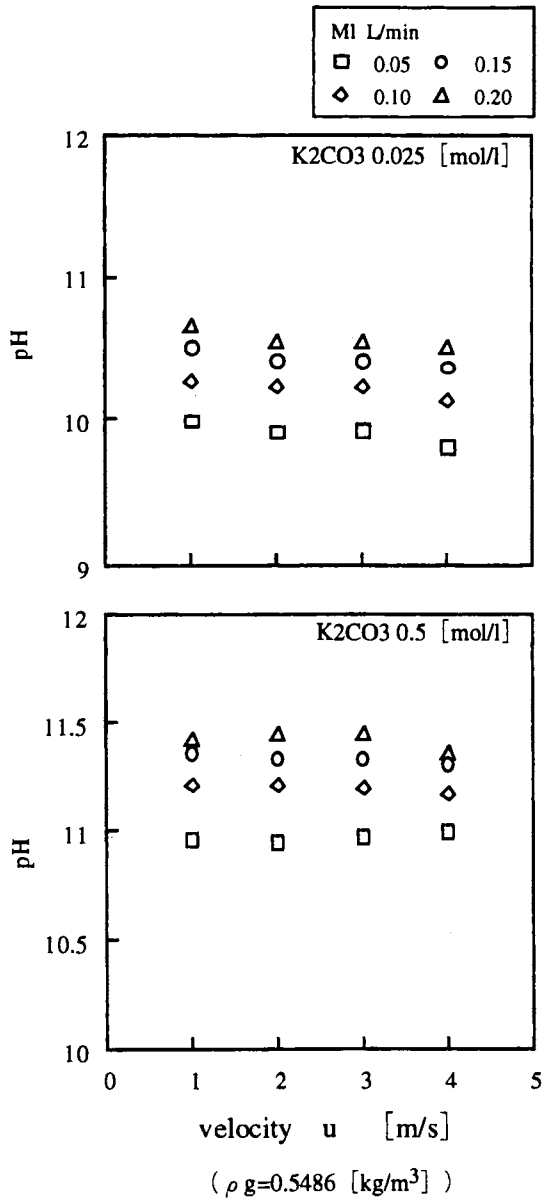



図4-1-7 溶液濃度と流速に対するガス吸収後pHの関係
(炭酸カリウム水溶液)

## 2． 凝縮液膜とミスト滴へのガス吸収

### (1) 基礎データ

本節では，試験部出口での速度・温度分布，および試験部壁面の温度分布を示し，試験円管内の流れと温度場について検討する．

1) 試験部出口の速度分布

管内平均流速が1.5～3.5 m/s となる流量を試験部に供給し，試験部出口での速度分布を測定した結果を図4-2-1 に示す．なお，供試流体には室温の空気を用いた．実験結果は，実線で表される理論値とほぼ一致しており，管内の流れが十分に発達していることが確認された．

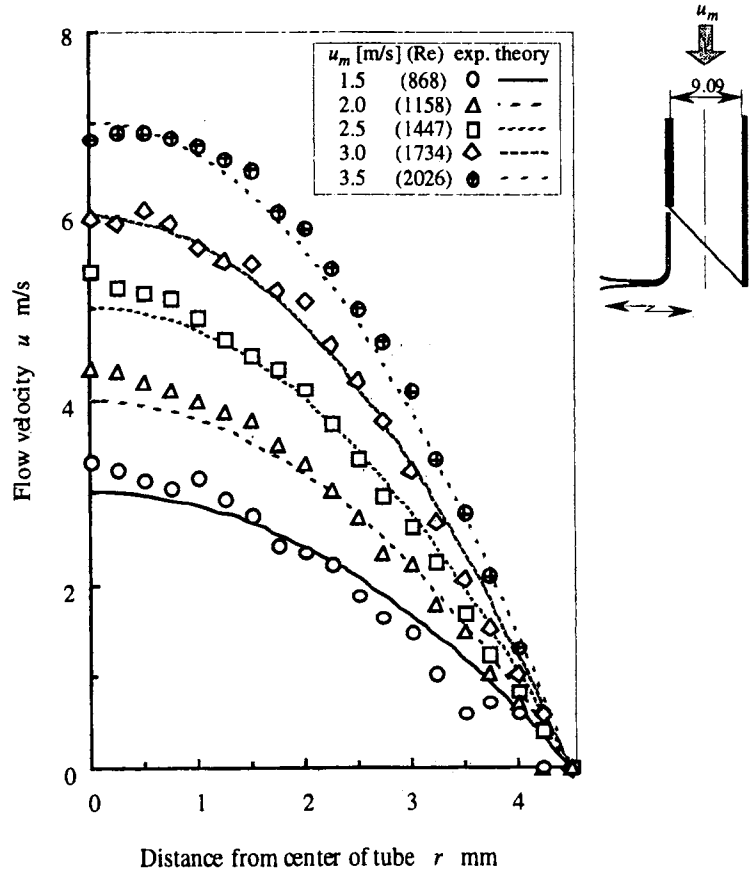



図4-2-1 試験部出口速度分布

2) 試験部の壁面温度分布

入口温度，平均流速，および入口蒸気濃度を変化させ，試験部壁面の温度を測定した結果を，冷却部長さ別に図 4-2-2(a)に示す．縦軸は試験円管入口からの距離であり，図中網掛けの部分が冷却部である．助走部（加熱部）は入口温度から±5 ℃ 以内に保たれているが，冷却部は助走部の影響を受けるため，冷却開始点直後ほど温度が高くなっている．また蒸気濃度が増加した場合にも，凝縮に伴う潜熱の放出により，冷却壁面温度が上昇している．これら壁面温度の上昇は，加熱壁面との温度差および流入蒸気量が多量なことから致し方ないものと考え，このような壁面温度状態のもとで実験を行った．

3) 試験部出口の温度分布

平均流速，入口温度，および冷却部長さを変化させ，試験部出口において温度分布を測定した結果を，流速別に図 4-2-3(a), (b)に示す．なお，供試流体には空気を用い，湿度は非常に乾いた状態（rv0 = 0.01 kg/m3 程度）であった．実験結果は実線で表される解析結果とほぼ一致しており，管内の温度場が理想的な層流強制対流場になっていることが確認された．

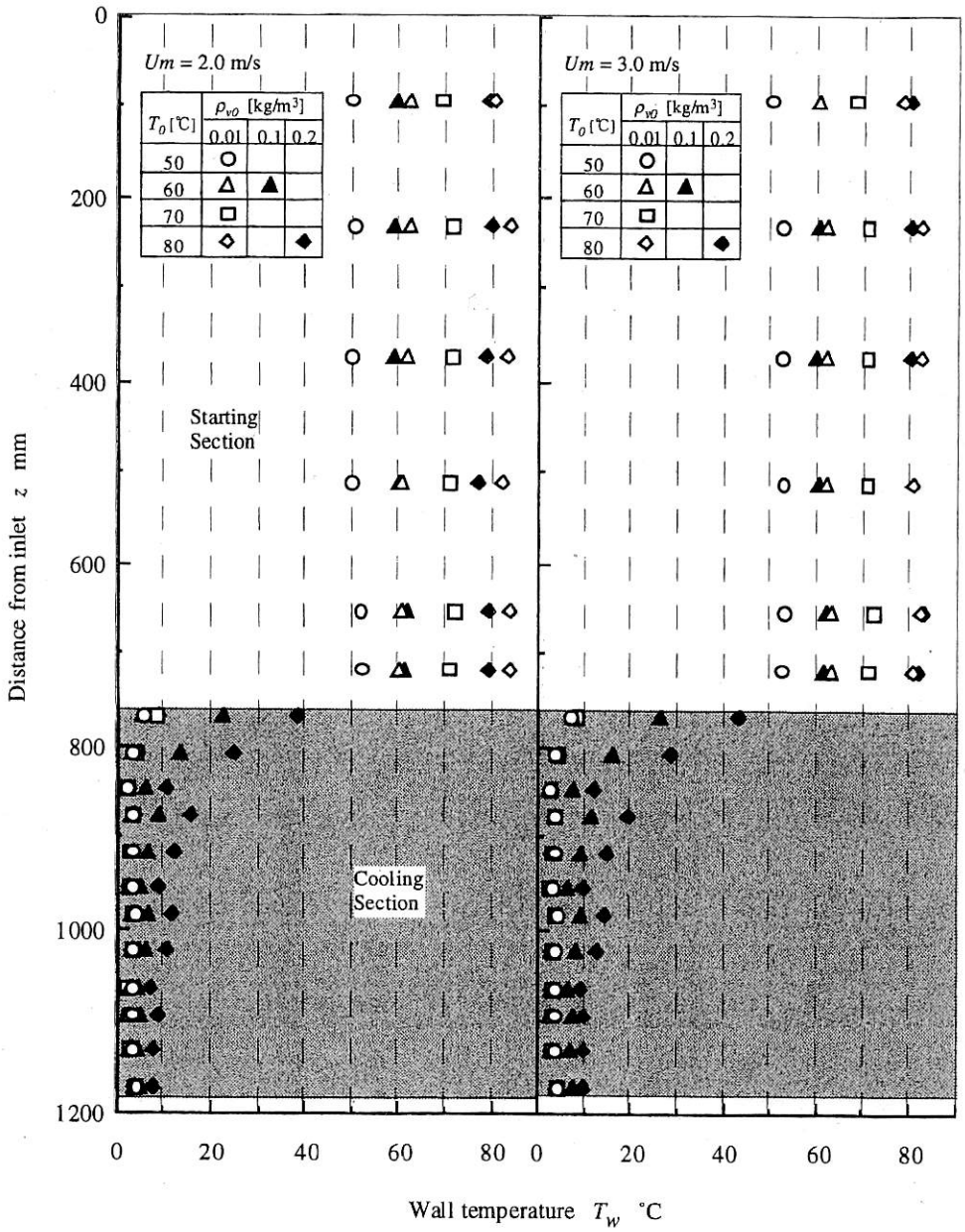



図4-2 -2 試験部壁面温度分布（ $Lc$ =400 mm ）

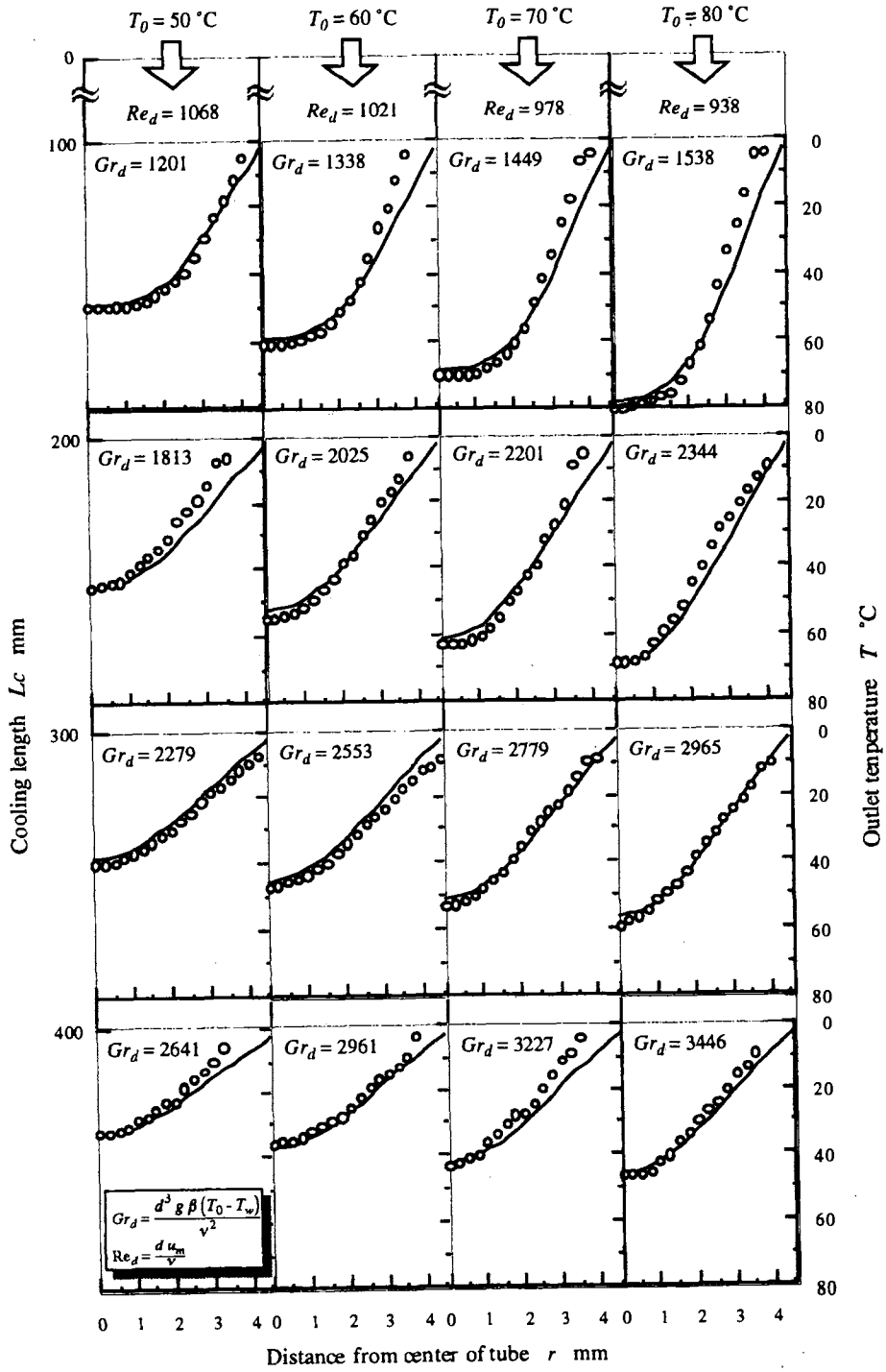



図4-2-3(a)　試験部出口温度分布（$u_m$ = 2.0 m/s, $T_w$ = 3 °C）

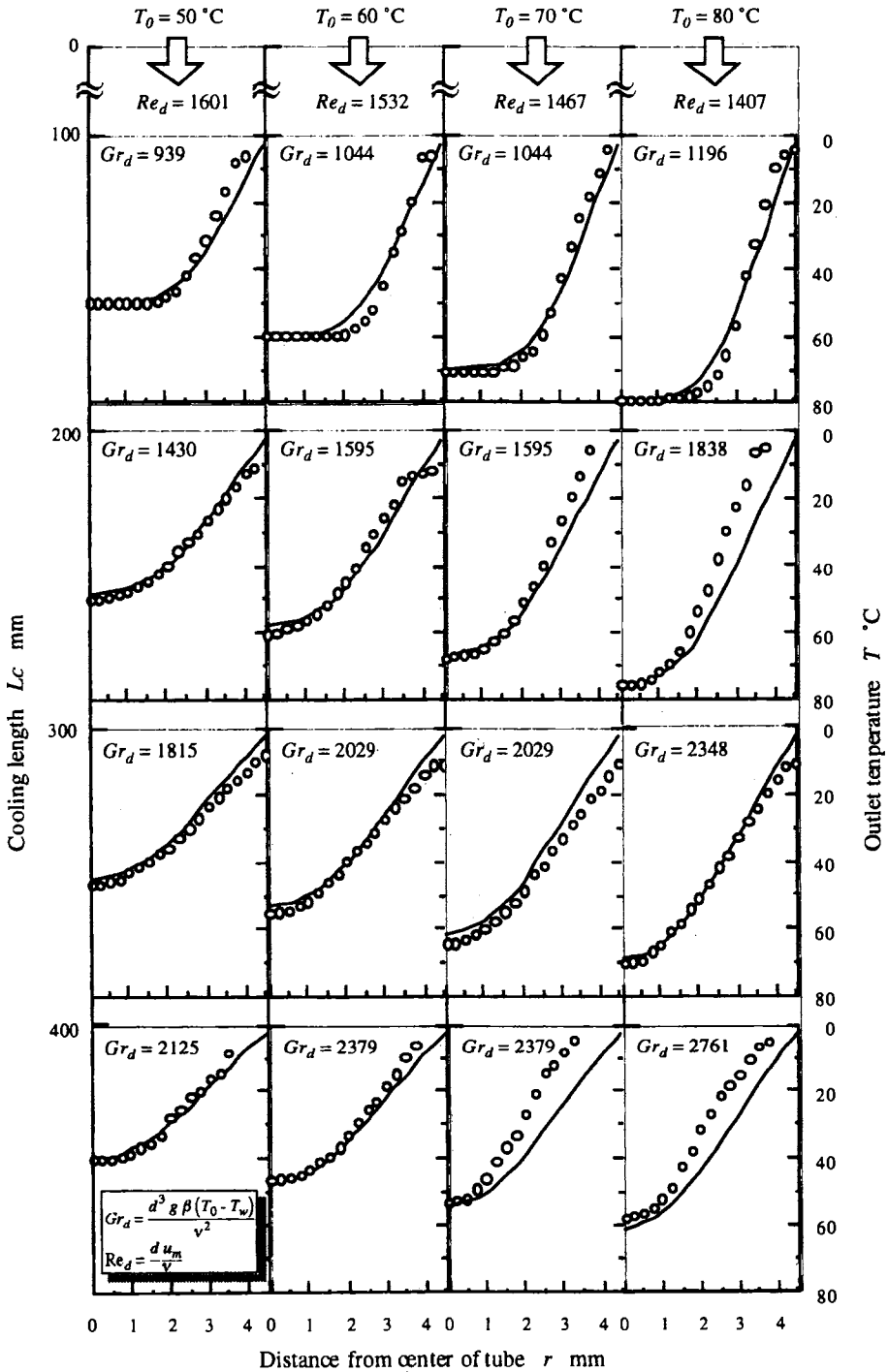



図4-2-3(b) 試験部出口温度分布 ( $u_m$ = 3.0 m/s, $T_w$ = 3 °C )

(2) 冷却管内での凝縮およびミスト生成

本研究で提案する凝縮液膜法は，蒸気の凝縮によって形成される凝縮液膜およびミストに溶質ガス成分を吸収させるものである．よって，そのガス吸収速度は，凝縮速度およびミスト発生速度に大きな影響を受ける．そこで，冷却管内で発生するミストの性状，壁面凝縮速度およびミスト発生速度について，流速，入口温度，入口蒸気濃度および冷却部長さの影響を検討する．

1）ミストの発生と性状

図4-2-4に，冷却部長さが400 mmの場合のミスト発生条件を入口蒸気濃度と温度との関係で示す．図中の細線は入口温度に対する飽和蒸気濃度であり，細い破線および太い破線は管全体壁面近傍でのミスト発生（壁面発生条件）および管出口断面全域でのミスト発生条件（断面発生条件）をそれぞれ示す．図中網掛けの領域がミスト発生可能域である．これより，ミストの壁面発生条件は流速に無関係に温度と濃度の関係で与えられるが，断面発生条件は流速が速くなるほど，また入口温度が低くなるほど厳しくなる（飽和条件に近づく）ことがわかる．このことは流れと関係する管内温度・濃度境界層の発達によるものである．また，図中のプロット点は，レーザー法による観察結果であり，壁面発生条件とほぼ一致している．

また，図中の写真は，平均流速が3 m/sの場合のミスト流をレーザー法により可視化し，デジタルカメラ（Kodak “EOS•DCS 5”）により撮影したものであり，蒸気濃度の増加と入口温度の低下によりミストが濃くなっていく様相が見られる．

次に，ミスト発生条件の冷却部長さに対する関係を図4-2-5に示す．壁面発生条件は流れ方向に対して無関係であるが，断面発生条件は管内の温度・濃度境界層の発達に関係して冷却部長さが短くなるほど厳しくなる．また，観察結果はほぼ壁面発生条件と一致しているが，冷却部長さの減少に伴い壁面発生条件との差が若干大きくなる傾向が見られる．これについては，冷却部長さの減少に伴い，冷却管入口直後の壁面温度の高い領域の冷却壁面全体に占める割合が増加する結果，冷却壁面の平均温度が高くなることなどによるものと考えられる．また，図中の写真より，冷却部長さの増加に伴いミストが濃くなっていく様相が確認され，さらに流速に対しても，流速の低下によりミストが濃くなる様相が見られる．

なお，以後の実験におけるミスト発生の有無はこれらの実験で得られた結果を用いて判断することにした．

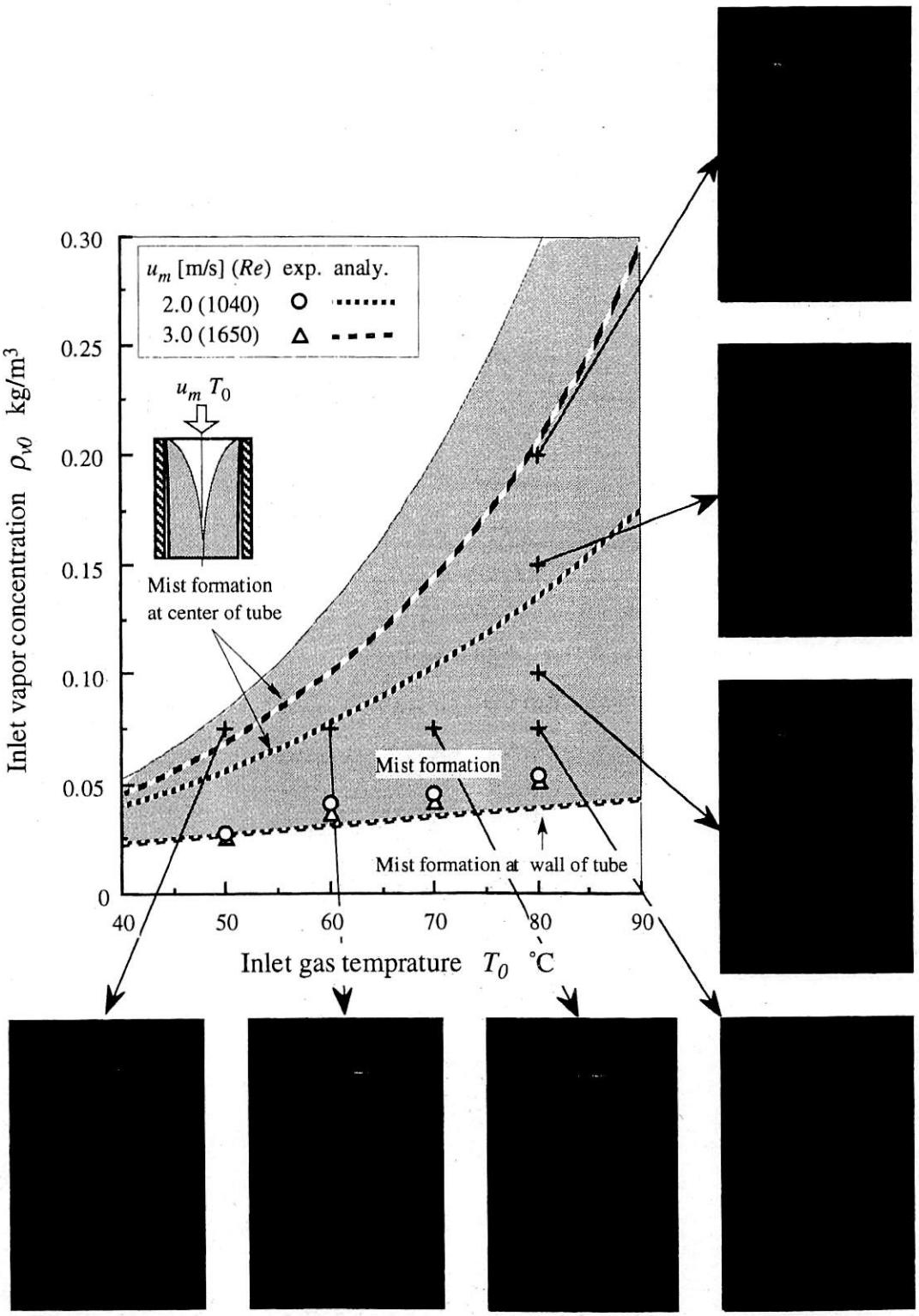
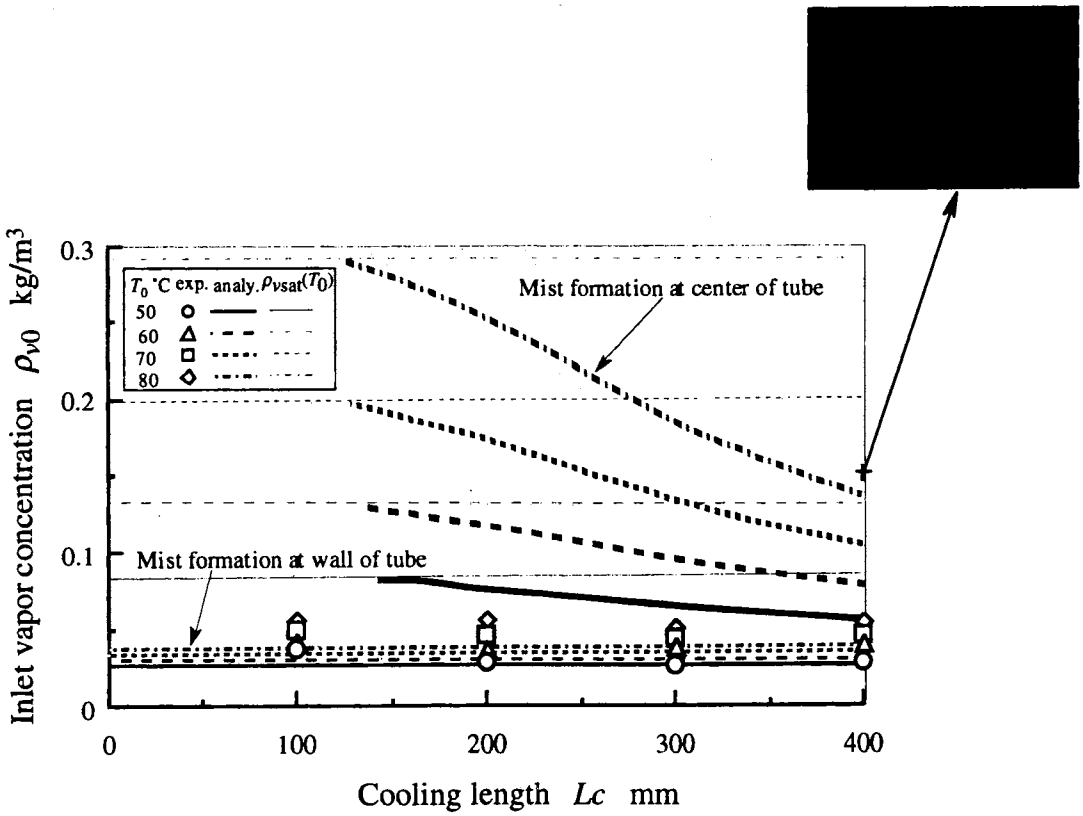
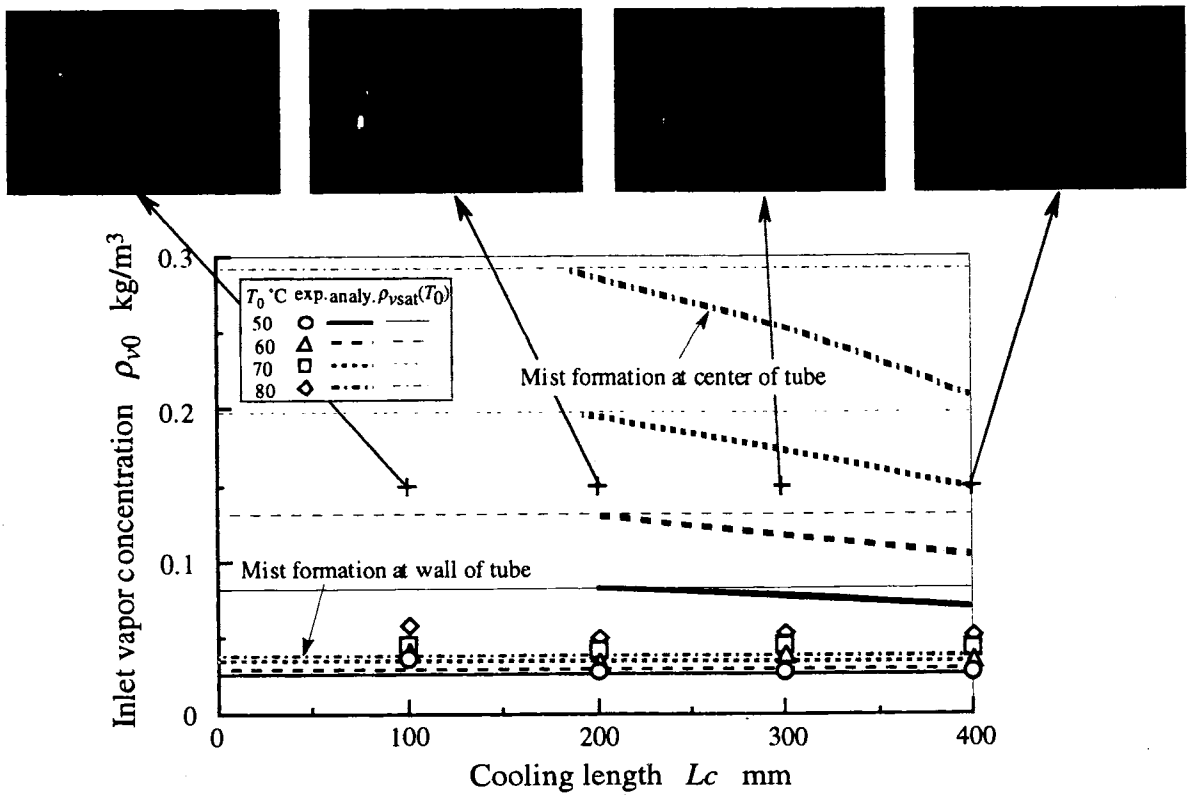



図4-2-4　ミスト発生条件

( $Lc$ = 400 mm, $d$ = 9.09 mm, $Tw$ = 3 °C )




( a ) $u_m = 2$ m/s




( b ) $u_m = 3$ m/s

図4-2-5　ミスト発生条件の冷却部長さに対する変化

2) 壁面凝縮速度とミスト発生速度

図4-2-6に，冷却部長さが400mmの場合の壁面凝縮速度およびミスト発生速度についての結果を示す．なお，図中のミスト発生速度についての実験結果および壁面凝縮速度とミスト発生速度についての解析結果は，供試流体中に可溶性ガスを含まない状態での結果であり，壁面凝縮速度の実験結果については，供試ガス濃度が 0.1, 0.3, 0.5 kg/m3 の場合の平均値である．壁面凝縮速度 Mvc については，入口蒸気濃度の増加に伴い増加するが，ミスト発生量が比較的少ないためミスト化による影響が現れず，入口ガス温度に対して無関係にほぼ一本の線となっている．実験値は解析値より若干高い値を示しているが，ほぼ一致している．なお，両者の差異については，

(1) 水の大きい表面張力ため凝縮形態が完全な膜状ではなく滴状化している．

(2) 液膜の存在により流れが加速される．

(3) 発生したミスト滴が液膜に捕集される．

(4) 解析では，拡散に基ずく半径方向の流れによる蒸気の取り込みを考慮していない．

(5) 凝縮液膜へのエタノールの混入

ことなどによるものと考えられる．

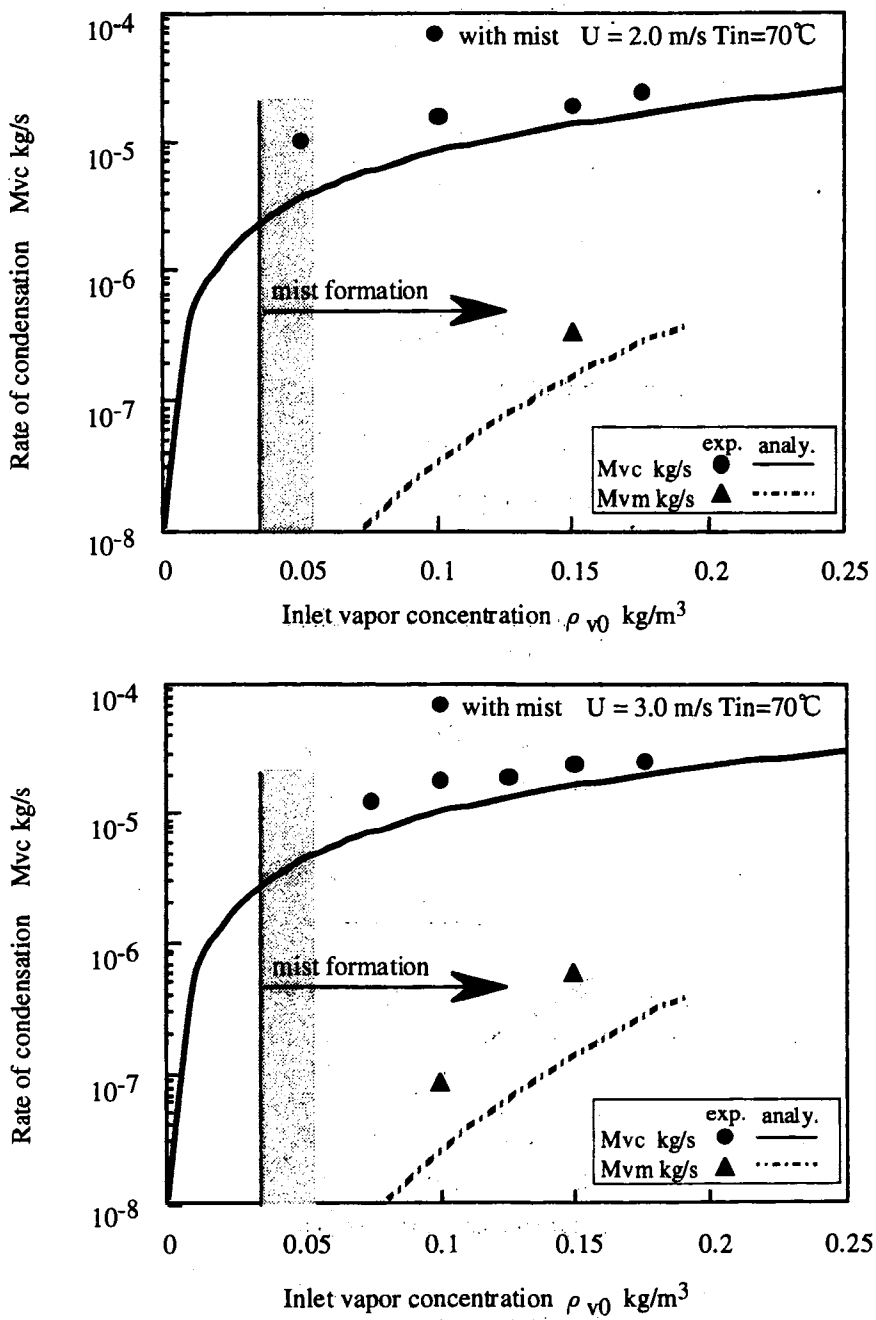



図4-2-6 入口蒸気濃度と凝縮速度の関係

(3) 炭酸塩微粒子の粒度分布

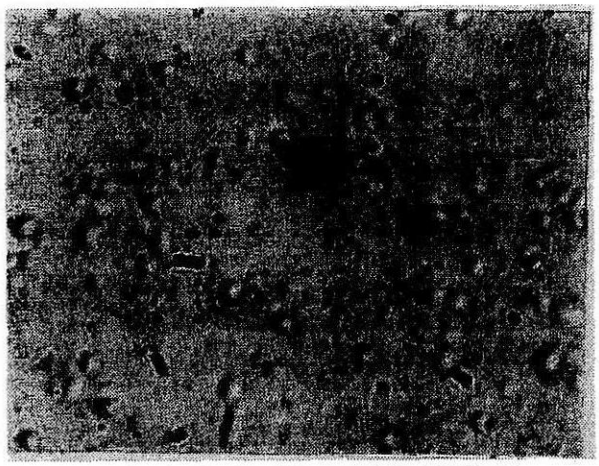
凝縮液膜法によるガス吸収の促進においては，液膜をいかに炭酸塩水溶液とするか，すなわち，水蒸気分子の冷却面への付着により形成される水膜へ炭酸塩微粒子をいかに供給するかが重要なポイントとなる。固体微粒子の壁面への供給は粒径に関係し，微小粒子では拡散輸送が，大型粒子では慣性衝突輸送が効果的である。本研究では，流れ場における蒸気濃度が温度に対する平衡蒸気濃度より高い状態，すなわち，熱的不安定場を形成し，気流中に懸濁した炭酸塩微粒子を外部核としてミストを発生させ，肥大化・溶解した水溶液ミスト滴を慣性支配により壁面に形成された液膜へ付着させ，溶液化することになる。

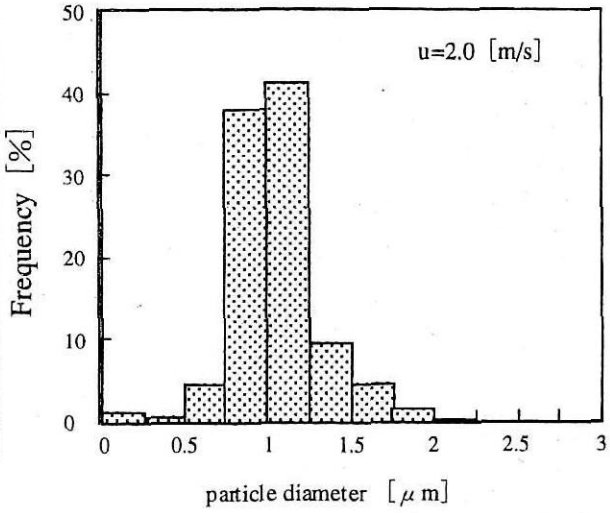
従って，まず，本実験において使用した炭酸カリウム微粒子群の試験部へ流入する数および粒径分布について測定を行った。測定は，試験冷却部を取り外した助走管部を用いて，その出口においてサンプリング法により微粒子群を捕獲し，顕微鏡による画像分析により粒子度数および数密度を求めたものである。図4-2-7に炭酸カリウム微粒子の粒径と度数分布の測定結果を示す．画像写真に示すように，粒子数は露出時間3secでおよそ400個程度であり，流速増加にともない若干増加する傾向を示す．なお，顕微鏡観察では1000倍に拡大しているが，観察不可能なさらに微小な粒子の存在も考えらる。また，微粒子径については，度数分布図に示すように，0.5～1.5 $\mu$ mの粒子が最も多い分散体特有の対数正規分布を呈し，流速の増加とともに，粒径の小さい粒子が増加している。

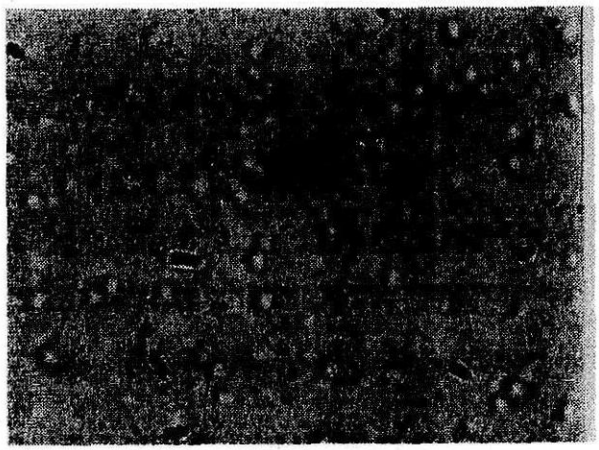
凝縮液膜に溶解した炭酸カリウム微粒子は高濃度のアルカリ溶液となる（pH約11）．吸収後の溶液においても，低ガス濃度にいてはアルカリ性を示すことは予想され，ガス吸収後の溶液に溶解した$CO_2$ガスの濃度の測定にはpH計を用いること要求され，溶液のpH変化より校正曲線を用いて凝縮液中ガス濃度を求めた．したがって，pHの変化はガス吸収量と深く関係している．

図4-2-8に入口温度70℃，蒸気濃度0.1，0.15［kg/m$^3$］，流速2.0，3.0［m/s］における入口ガス濃度とガス吸収前・後のpHについての結果を示す．

ガス吸収前におけるpHは高濃度アルカリ溶液のため，約pH11という値を示すものの，ガス吸収後のpHは，ガス濃度が0.1［kg/m$^3$］においては約7.0と中性の溶液になっており，ガス吸収における化学反応は十分速やかに行われ，アルカリ溶液に対する弱酸の反応が終了していることが分かる．また，反応は低ガス濃度，つまりガス濃度が0.1［kg/m$^3$］までの反応が急峻であり，ガス濃度が高くなるに連れてその傾きは小さくなっており，反応が緩やかになっている．つまり，反応は低ガス濃度領域において最も進行しており，ガス濃度が増加しても弱酸とアルカリ溶液の反応が終了してしまうと，その後の反応速度は遅くなるため，ガス吸収において，溶液の反応量に対するピーク値の存在，つまり吸収液が飽和状態になることが考えられる．





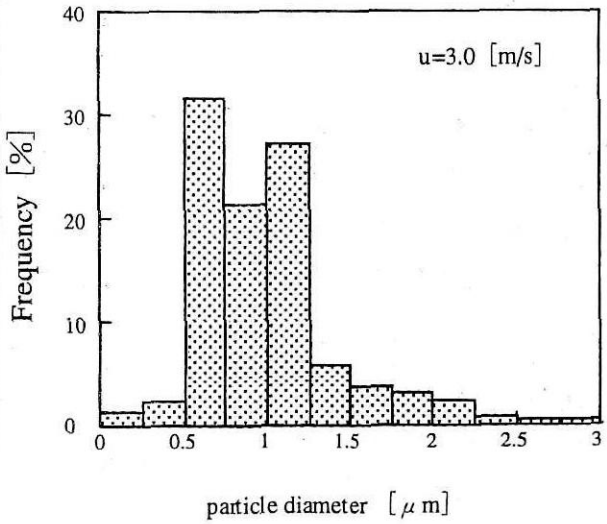
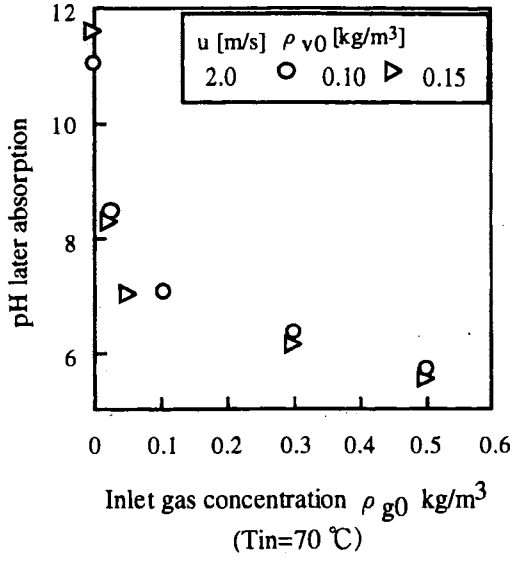



図4-2-7　炭酸カリウム微粒子の粒径と分布の関係



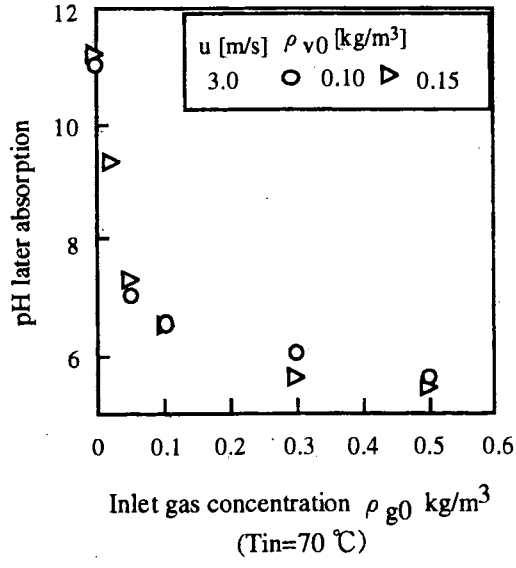




図4-2-8　入口ガス濃度とガス吸収後pHの関係

### (4) ガス吸収速度

ガス吸収速度は，凝縮液中ガス濃度と凝縮速度および，ミスト滴中ガス濃度とミスト発生速度の積により与えられる．本節では，まず凝縮液液，ミスト滴中ガス濃度についての結果を示し，次いで壁面凝縮液膜およびミストへのガス吸収速度について入口蒸気濃度，入口温度，流速の影響を検討する．

#### 1）凝縮液中ガス濃度

凝縮液およびミスト滴中のガス濃度と入口ガス濃度との関係について，入口温度ごとに入口蒸気濃度をパラメータとして，図4-2-9，4-2-10に示す．解析値は蒸気濃度が0.1［kg/m³］のものである．凝縮液中ガス濃度は，入口ガス濃度に比例し，入口温度，流速に無関係であることが分かる．実験値は解析値と比して，低ガス濃度では一致しているが，ガス濃度が高くなるに伴って差が生じており，入口ガス濃度の増加に比例して増加する傾向が見られる．これは，先に述べた，CO2ガスと炭酸塩水溶液との反応によるものと考えられる．pH変化でも分かるように，吸収液は低ガス濃度において急速に反応が進み，ガス濃度が増加するに伴い反応は遅くなるため，ガス濃度の増加に伴い解析値との差が大きくなると考えられる．また，実験結果は蒸気濃度が増加するに伴って凝縮液中ガス濃度も増加する傾向を示している．特に，蒸気濃度が低い（0.05，0.075［kg/m³］）時の，凝縮液中ガス濃度は，低い値を示しており，蒸気濃度が高い（0.10，0.15［kg/m³］）時と比して1オーダー近くの濃度差が生じた．この時，試験部出口におけるミストの発生をレーザー光線を照射し確認したが，ミストの発生量は僅かであり，このミストの発生量が凝縮液中のガス濃度に大きく影響していることが考えられる．蒸気濃度の増加は，ミスト発生による円管内でのミスト，供給微粒子の複雑な運動によって，凝縮液膜への供給微粒子およびミストの付着量を増加させ，凝縮液は高濃度アルカリ溶液となるため反応できるガス分子量が増加し凝縮液中のガス濃度が増加すると考えられる．さらに，入口蒸気濃度の増加は壁面への凝縮量を増加させるため，凝縮液は出口に向かうに従って液膜表面には波立ちが生じる．これは，液膜へのガス吸収面積を増加させるほか，炭酸塩微粒子を核として発生し，成長と共にアルカリ水溶液となったミストを液膜に捕集するため，液膜の溶液濃度を高め，ガス分子の液膜への吸収を促進させていると考えられる．

一方，ミスト滴中ガス濃度においても，凝縮液中のガス濃度と同様に入口ガス濃度増加に伴いミスト滴中ガス濃度は増加している．また，入口温度の上昇に伴い，ミスト滴中ガス濃度の増加は増加している．これは，気流中に発生するミストは入口温度の増加により，ミストへのガス溶解度が低下しガス吸収量が低下するが，ミスト滴への炭酸塩微粒子の溶解度が増加すること，ミストが核にできる粒子数が増加するため，ミスト滴へのガス濃度が増加していると考えられる．

図4-2-11に入口蒸気濃度に対する凝縮液中のガス濃度の関係を入口ガス濃度をパラメータとして流速別に示す．解析値は各流速において，入口ガス濃度が0.3［kg/m³］の時のものである．実験値と解析値は異なる傾向を示しており，実験値は蒸気濃度の増加に伴い凝縮液中のガス濃度も増加しているが，解析値においては減少している．これは，解析の際に微粒子流入数をk倍し，流入粒子数を補正したが，この時のkの値は蒸気濃度の高いところにおいて一致するよう定めたものであり，蒸気濃度が低い場合を考慮していないため，流入粒子量に対して，凝縮量の少ない低蒸気濃度においては，凝縮液は高濃度のアルカリ溶液になり，吸収するCO2ガスの量も多くなっているためと考えられる．また，実験値において，流速3.0［m/s］における，蒸気濃度が0.1，0.125，0.15［kg/m³］と0.175［kg/m³］を比較すると蒸気濃度が低い0.1，0.125，0.15［kg/m³］の方が，凝縮液中ガス濃度は大きくなっている．流速2.0［m/s］の時においても，蒸気濃度が0.15［kg/m³］の方が0.175［kg/m³］における濃度より高い値を示した．これより，蒸気濃度の増加により凝縮液中のガス濃度も増加し，蒸気濃度の高いところで極値が存在することがわかる．これは，蒸気濃度の増加による過飽和度の増加が，ミストの発生量，ミスト滴径，発生領域を増加させ，これによる粒子の慣性の増加が凝縮液膜へのミスト，炭酸塩微粒子のの付着量を減少させていることが考えられる．解析結果において，微粒子の液膜への付着量をk倍したように，炭酸塩微粒子，それを核として成長したミスト滴は慣性を受けるが，さらに半径方向への複雑な運動を行いこれが液膜の濃度を高めていることが推測される．したがって，慣性の増加は半径方向への微粒子，ミスト滴の付着量の減少は液膜の濃度を低下させることが考えられる．このことは，試験部出口でのレーザー光線の照射観察において，ミスト発生様相違いから慣性の違いを推測するものである．また，蒸気濃度増加による凝縮量の増加は，液膜の溶液濃度を低下させる．さらに，試験部下端部においては，ミストの成長による滴径の拡大と，そのミストの液膜への付着より液濃度はさらに低下することが考えられる．液膜へ付着するミストは気流中でガス吸収を行うが，下端部に行くほど気流のガス濃度が低下すること，気流の温度が高いため，ミストへのガス溶解度が低下しガス吸収量は少ないことより，液膜へ付着するミストのガス濃度は低いことが予想され，試験部の下端部における液膜濃度の低下が推測される．

凝縮液膜法において，液濃度は重要なパラメータと考えられ，高濃度のアルカリ溶液でも試験部内では十分に反応が行われることはpH値の変化よりわかる．したがって，液膜の濃度の低下はガス吸収の低下に関わり，ミスト化は液膜の濃度増加に大きな影響を与えていると考えられる．

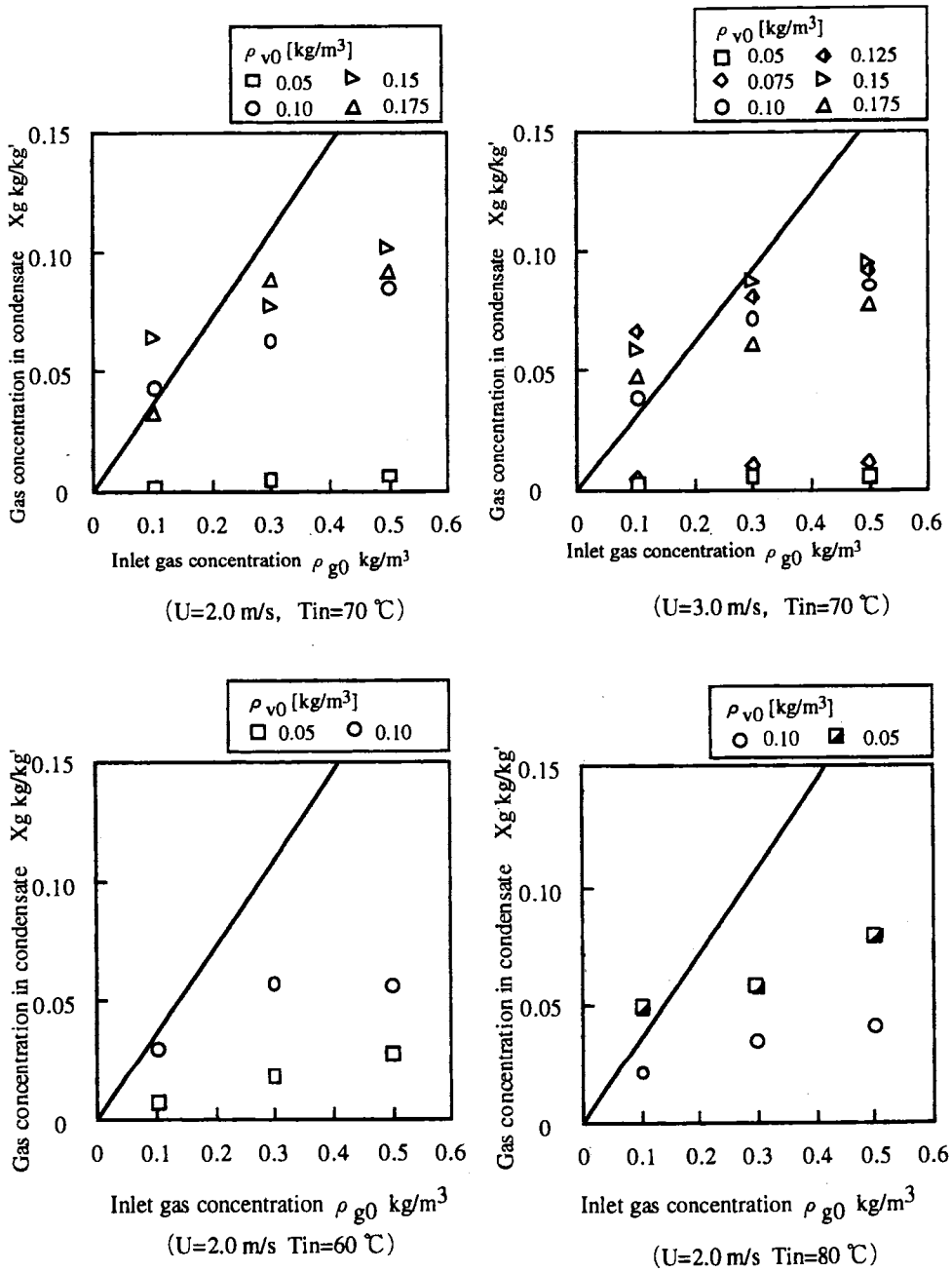



図4-2-9　入口ガス濃度と凝縮液中ガス濃度の関係

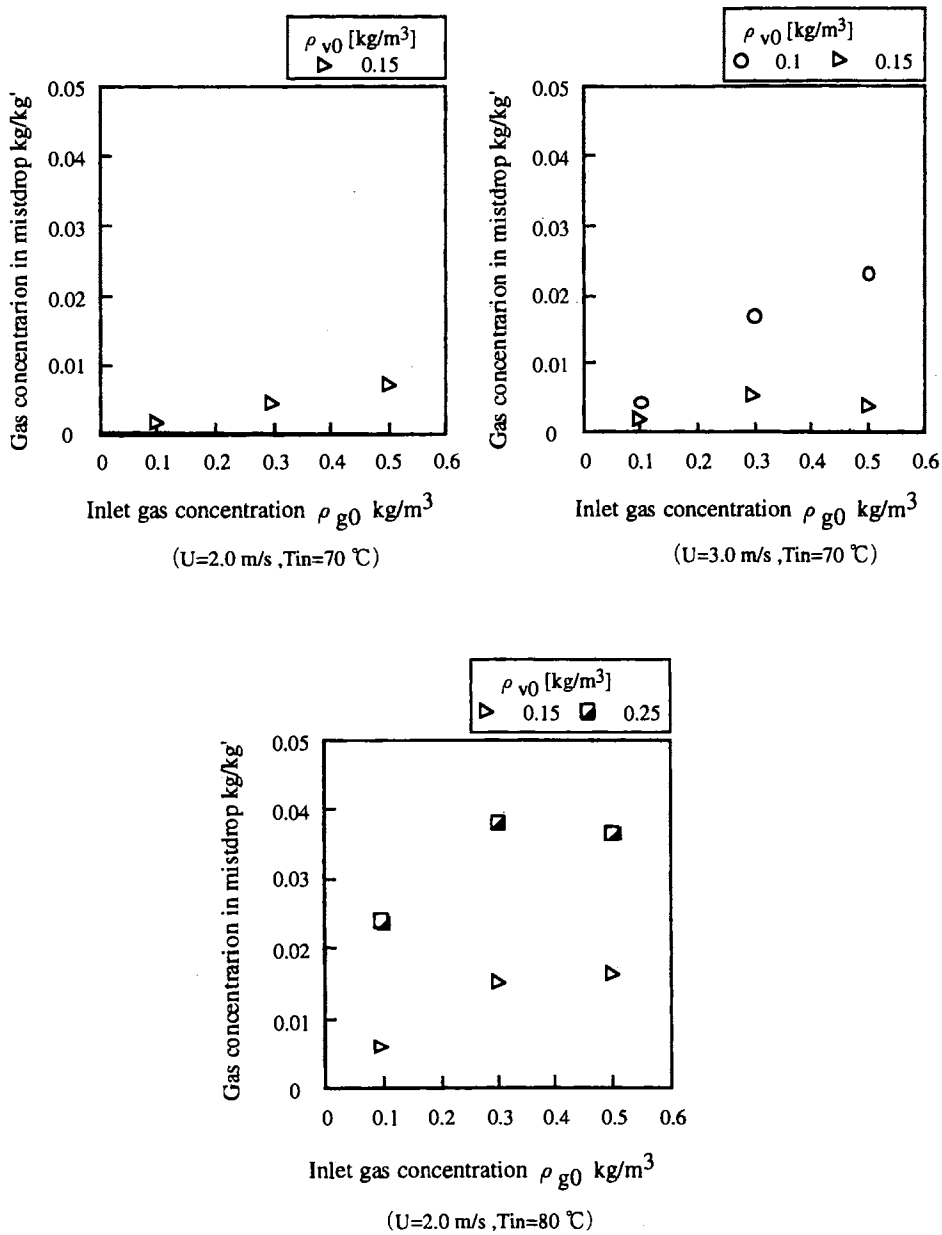
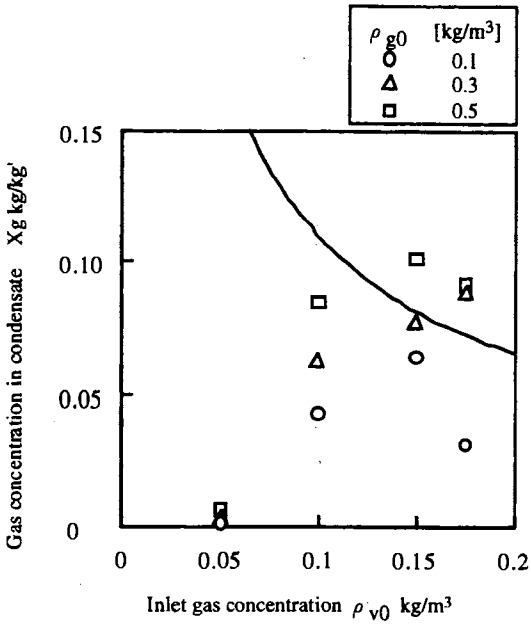
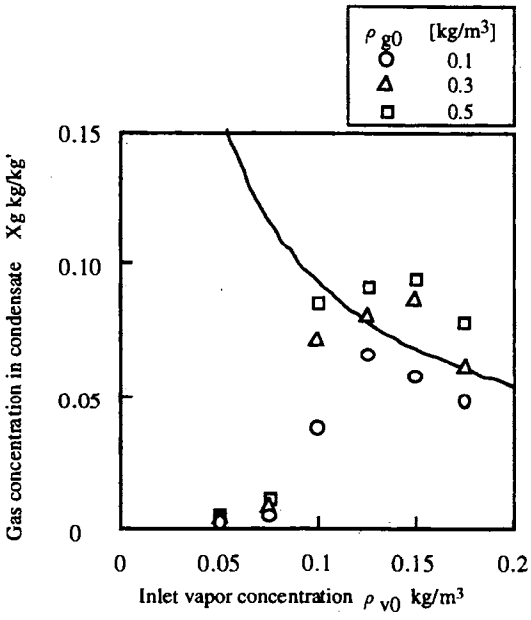



図4-2-10 入口ガス濃度とミスト滴中ガス濃度の関係




(U=2.0 m/s, Tin=70 ℃)




(U=3.0 m/s, Tin=70 ℃)

図4-2-11 入口蒸気濃度と凝縮液中ガス濃度の関係

2) ガス吸収速度

凝縮液膜へのガス吸収速度と入口ガス濃度の関係について，入口温度ごとに入口蒸気濃度をパラメータとして図4-2-12に示す．入口温度が70℃の時においては，各流速について示す．ガス吸収速度は入口ガス濃度の増加に伴い増加する傾向を示す．実験値は解析値よりも若干大きく，ほぼ一致している．入口蒸気濃度が低い条件においては，ミスト発生量が少ないため，ミスト化の効果が得られず，ガス吸収速度は低い値を示していることが考えられる．

図4-2-13に凝縮液膜へのガス吸収速度と平均流速の関係について，入口蒸気濃度をパラメータとして示す．凝縮液膜へのガス吸収速度は流速の増加に伴い増加する．これは，流速の増加により物質伝達率が向上するためである．

図4-2-14に凝縮液膜へのガス吸収速度と入口温度の関係を，入口蒸気濃度をパラメータとして示す．ミスト化の効果がない低蒸気濃度においては，実験値の値にばらつきがあるものの，解析値と実験値は高蒸気濃度においてほぼ一致し，ガス吸収速度は入口温度に無関係であることが分かる．

図4-2-15に入口蒸気濃度とガス吸収速度の関係を，入口ガス濃度をパラメータとして示す．解析値は入口ガス濃度が0.3［kg/m$^3$］のときのものである．実験値，解析値とも入口蒸気濃度の増加により，ガス吸収速度が増加しているが定性的に一致していない．実験値は入口蒸気濃度が低いときガス吸収速度は小さな値を示し，蒸気濃度の増加に伴い急激に吸収速度が増加し．その後蒸気濃度の増加しても，ほぼ一定の値を示していることが分かる．これは，先に述べたようにミスト化の効果によるものと推測される．成長したミストが液膜に付着することにより，液膜の濃度は低下する．これによって，ガスの吸収量も低下することが考えられる．したがって，現在の装置形状，つまり冷却部長さを変化させることによりガス吸収量が増加することが予想される．

図4-2-16にミストへのガス吸収速度と入口ガス濃度の関係について，入口蒸気濃度をパラメータとして示す．入口温度が70℃の時においては，流速別に示す．実験値に，若干のばらつきがあるものの，ミストへのガス吸収速度は凝縮液膜へのガス吸収速度と同様に入口ガス濃度，入口蒸気濃度の増加に伴い増加する傾向を示す．ミストへのガス吸収速度が凝縮液膜と比べて3オーダー近く小さい要因としては，ミストが気流中の凝縮であるため，ガスのミストへの溶解度が小さいこと，ミストの凝縮量が少ないこと，気流中のガス濃度減少などが考えられる．

ミストによるガス吸収量は小さいものの，ミスト化による微粒子，ミストの液膜付着が溶液効果によるガス吸収を促進させている．

次に，流下液膜法によるガス吸収速度と凝縮液膜法によるガス吸収速度を比較するために，凝縮液膜と同一液膜流量における，流下液膜による入口ガス濃度とガス吸収速度の関係について入口蒸気濃度をパラメータとして図4-2-17に示す．ガス吸収速度は入口ガス濃度の増加に伴い増加

しているが，凝縮液膜法によるガス吸収速度と比して，流下液膜によるガス吸収速度は1オーダー近く低いことがわかる．

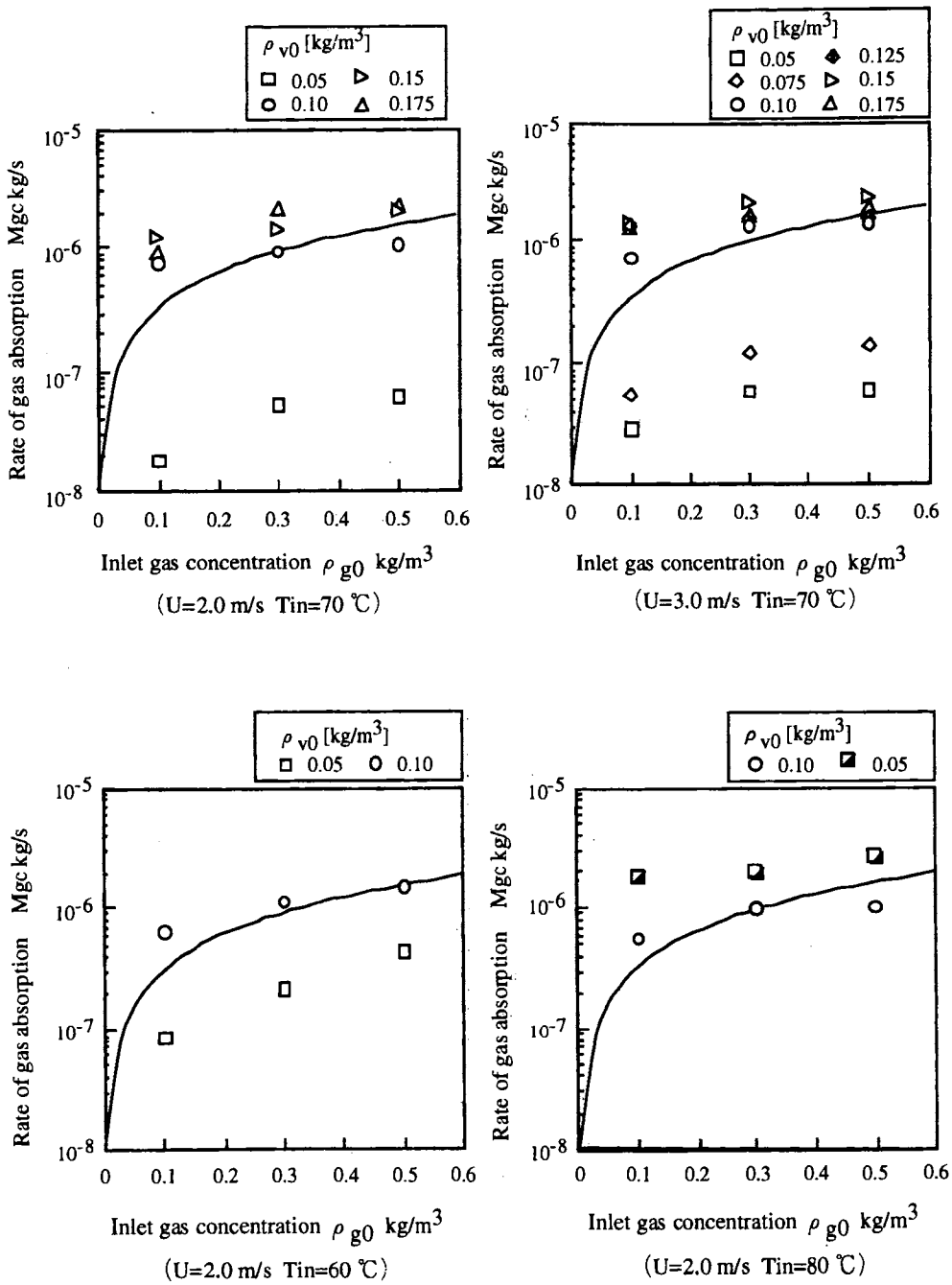
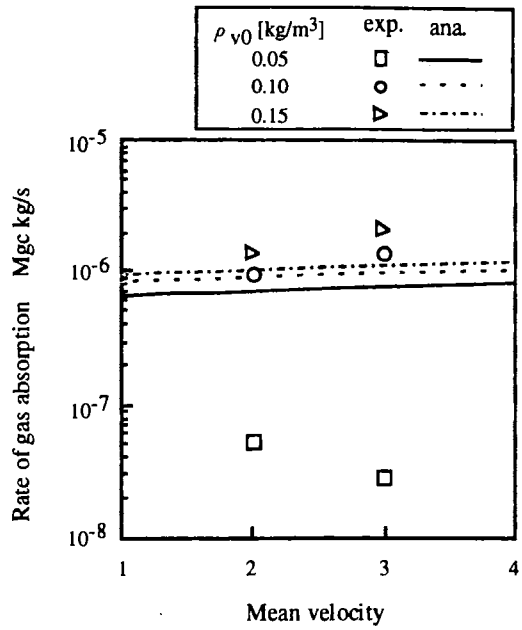
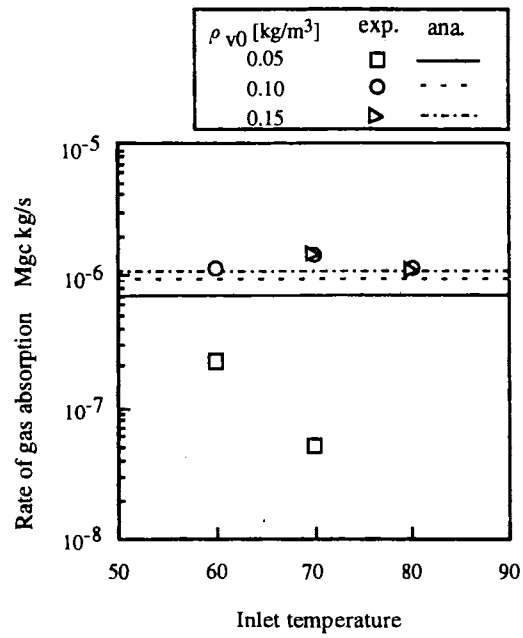



図4-2-12 入口ガス濃度とガス吸収速度の関係



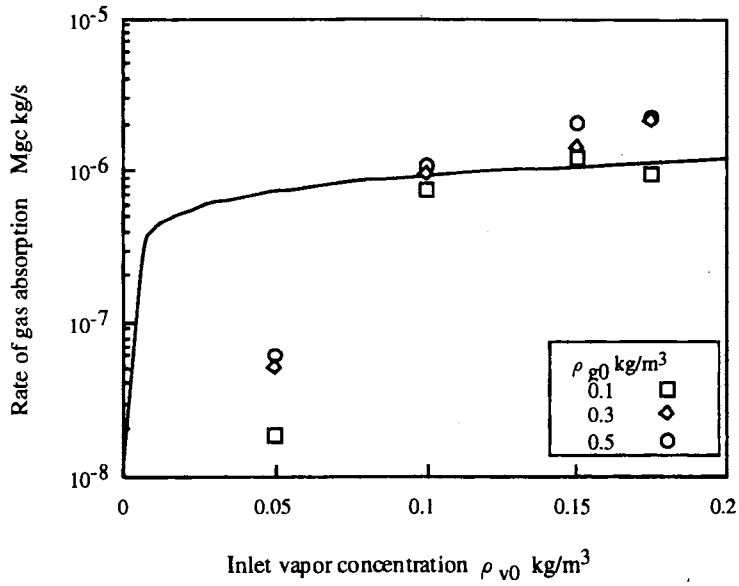

(Tin=70℃, ρ g=0.3kg/m$^3$)

図4-2-13 平均流速とガス吸収速度の関係

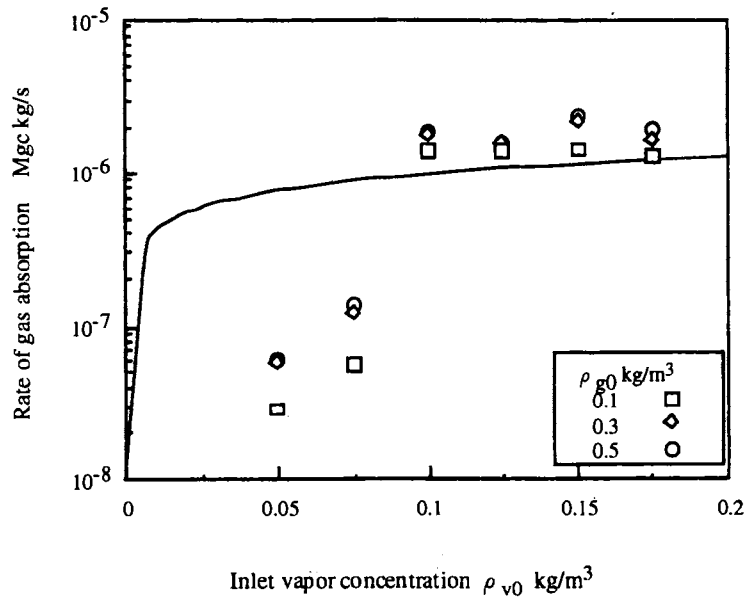



(U=2.0m/s, ρ g=0.3kg/m$^3$)

図4-2-14 入口温度とガス吸収速度の関係




(U=2.0 m/s Tin=70 ℃)




(U=3.0 m/s Tin=70 ℃)

図4-2-15　入口蒸気濃度とガス吸収速度の関係

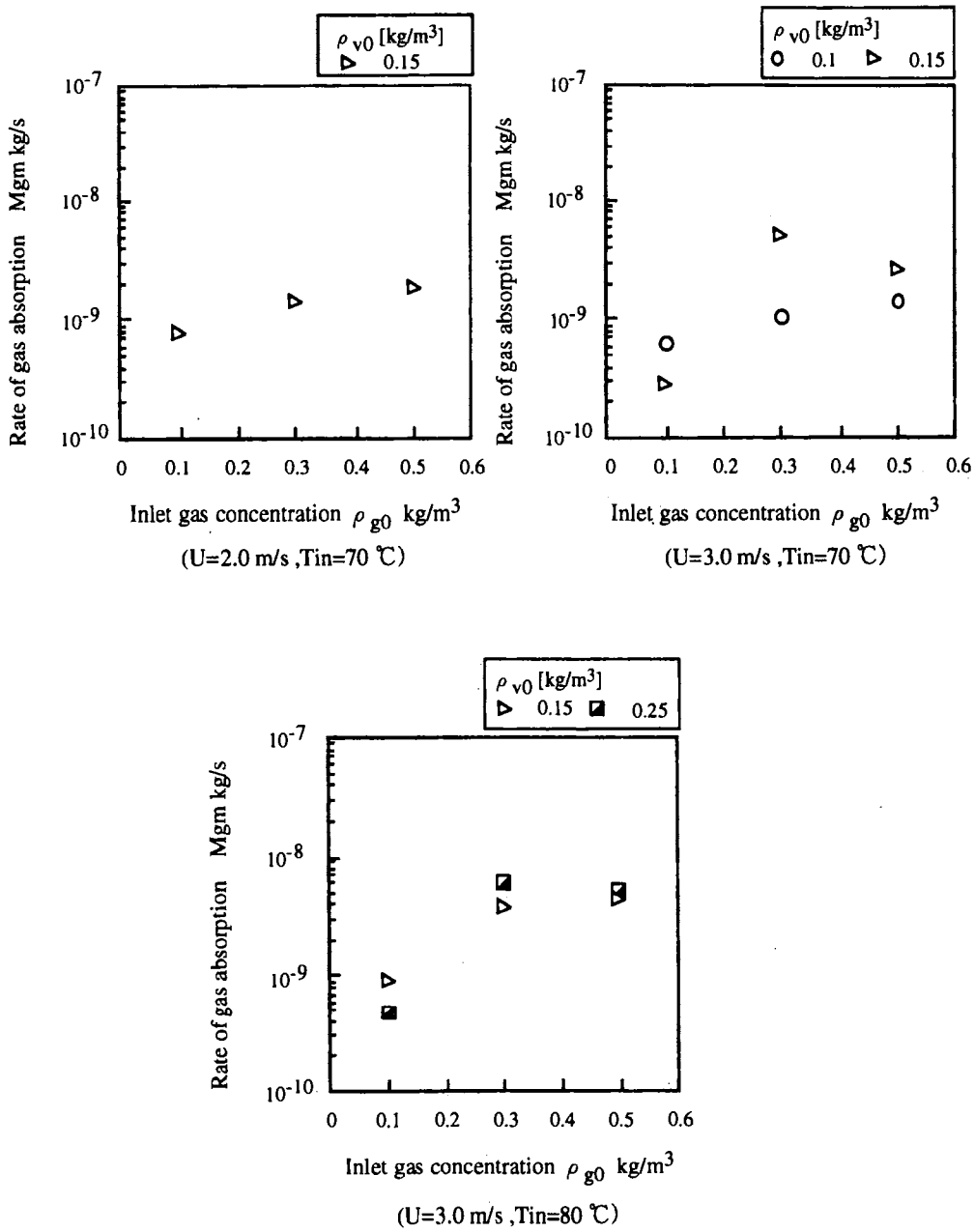



図4-2-16　入口ガス濃度とミストへのガス吸収速度の関係

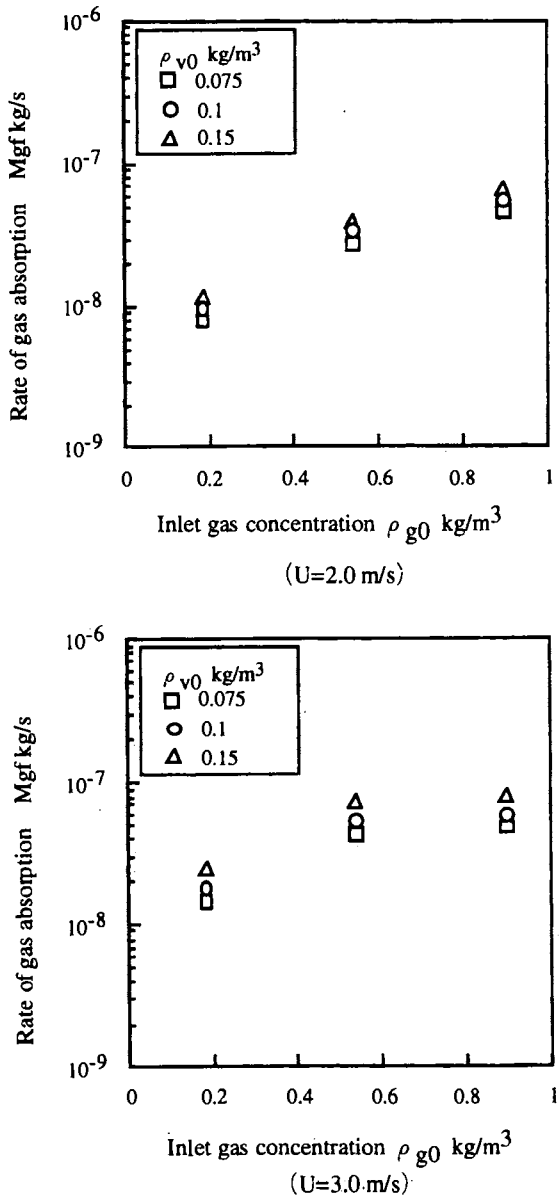



図4-2-17　同一液流量における流下液膜のガス吸収速度

## 3． ガス回収率

本節ではガス回収率について，溶液効果を利用した流下液膜法，凝縮液膜法の実験結果について述べ，さらに，水における流下液膜，凝縮液膜についての回収率と比較を行い，ガス吸収における溶液効果についてガス回収率に注目し検討する．

(1) 溶液効果を利用した流下液膜によるガス回収率

流下液膜における入口ガス濃度とガス回収率の関係について液膜流量をパラメータとして図4-2-18に示す．実験値にばらつきがあるが，ガス回収率は液膜流量に対して無関係であり，ガス濃度の増加に対しほぼ一定な値を示している．また，流速が低いほどガス回収率が高いことが分かる．これは，流速の低下によって，気流ガスが流下液膜との接触時間が長くなるためガス吸収量が増加し，ガス回収率が増加するためと考えれられる．

流下液膜おける，液膜流量とガス回収率の関係について，入口ガス濃度をパラメータにして図4-2-19に示す．液膜流量の増加に伴いガス回収率は若干低下する傾向を示す．これは，液流量の増加に伴う気流速度の増加がガス回収率を低下させていると推測される．実験値にばらつきはあるものの，入口ガス濃度はガス回収率に無関係であることがわかる．また，入口ガス濃度とガス回収率の関係と同様に，流速が増加するに伴って，ガス回収率は低下している．

(2) 溶液効果を利用した凝縮液膜およびミストによるガス回収率

入口ガス濃度とガス回収率の関係について入口蒸気濃度をパラメーターとして，各流速について図4-2-20に示す．解析値は各流速において，蒸気濃度が0.1kg/m$^3$］の時のものであり，入口ガス濃度が高いときは実権値と一致する傾向を示すが，入口ガス濃度が低いとき（0.1［kg/m$^3$］まで）は大きな差が生じている．また，入口ガス濃度が低いときは，ガス濃度の増加に対しガス回収率に極値が存在し，入口ガス濃度増加に伴い（0.1［kg/m$^3$］以上），ガス回収率は低下する傾向を示していることが分かる．これは，4-2-1で示したpHとガス濃度の関係から分かるように，ガス吸収は低ガス濃度において反応が最も進行するためであると考えられる．一方，ガス回収率に極値を示すことは，液膜の更新性，液膜内のpH分布量などに関係する最適値を示唆している．

入口蒸気濃度とガス回収率の関係について，入口ガス濃度をパラメータとして図4-2-21に示す．解析値は入口ガス濃度が0.3［kg/m$^3$］の時，入口蒸気濃度を変化させたものである．解析値は，入口蒸気濃度の増加に伴い増加しているが，実験値においては蒸気濃度の増加に伴いガス回収率が増加し，蒸気濃度が約0.15［kg/m$^3$］において極値を示している．蒸気濃度の増加によるガス回収率の増加は凝縮速度の増加による．流速の変化によるガス回収率を比較すると，流速が低い方が定性的に回収率が高いことがわかる．これは，先に述べたように，低流速の方がミストによる慣

性の影響を受けず供給微粒子，ミストの液膜への付着を促進させるためである．

高温における（Tin=80℃）入口蒸気濃度とガス回収率の関係を，入口ガス濃度と入口蒸気濃度をそれぞれパラメータとして図4-2-22に示す．解析値は蒸気濃度が0.1［kg/m³］のときのものである．入口ガス濃度の増加に伴いガス回収率が低下しており，実験値と解析値は一致を見せなかった．

図4-2-23，4-2-24に入口ガス濃度とミスト滴へのガス回収率の関係を入口蒸気濃度をパラメータとして流速別に関係を示す．実験値には，ばらつきが見られるが，凝縮液膜のガス回収率と同様にガス濃度の増加に伴いガス回収率は低下していることが分かる．高温時においては入口ガス濃度の増加とガス回収率の関係には定性的な傾向は見られず，ガス回収率が入口温度が70℃の時より高い値を示すのは先にも述べたように，温度増加による炭酸カリウムのミスト滴への溶解度が増加するためであると考えられる．ミスト回収実験においてこのような誤差が生じるのは次のようなことが考えられる．

(1) 回収量が少なく，誘電性物質を含むミストの回収は，集塵電極内での粒子の再飛散を招き，回収が困難である．

(2) 蒸留水による希釈による誤差．

(3) 集塵電極の電極間での放電が，試験部出口において，蒸発したエタノールに引火し，ミストの消滅が行われた．

凝縮液膜とミスト滴のガス回収率について，入口蒸気濃度とガス回収率の関係を入口ガス濃度をパラメータとして図4-2-25に示す．凝縮液，ミスト滴共に入口蒸気濃度の増加に伴いガス回収率は増加している．また，ミストによるガス回収率は凝縮液膜と比して約2.5オーダー小さいことが分かる．これは，ミストが気流中の凝縮であるため，ミストへのガスの溶解度が低いこと，ミストの発生量が絶対量として少ないこと，気流中のガス濃度の低下が考えられる．しかし，このミストの発生により，凝縮液膜へのガス吸収が促進されているため，ミスト自体のガス回収率低いものの，ガス吸収の促進に大きな影響を与えていることが考えられる．

(3)溶液効果について，同一液膜流量の流下液膜法によるガス回収率と水によるガス回収率との比較を行いその有効性について検討を行った．

図4-2-26に同一液膜流量での凝縮液膜法と流下液膜法について液膜流量とガス回収率の関係を入口ガス濃度をパラメータとして示す．液膜流量の増加に伴い，いずれの場合においてもガス回収率は増加している．溶液効果を利用した凝縮液膜法が最も高い値を示し，次いで流下液膜法，水による凝縮液膜法，流下液膜法の順に回収率が示されている．溶液効果を利用した凝縮液膜法は凝縮速度とガス吸収速度の関係と同様に液膜流量が増加するに伴い急激にガス回収率は増加し，その後緩やかな増加をしていることがわかる．これは，先に述べたように，ミストの発生に関係していると考えられる．また，溶液効果を利用することにより約3オーダーの回収率が向上しており溶液効果の有効性が明らかとなった．

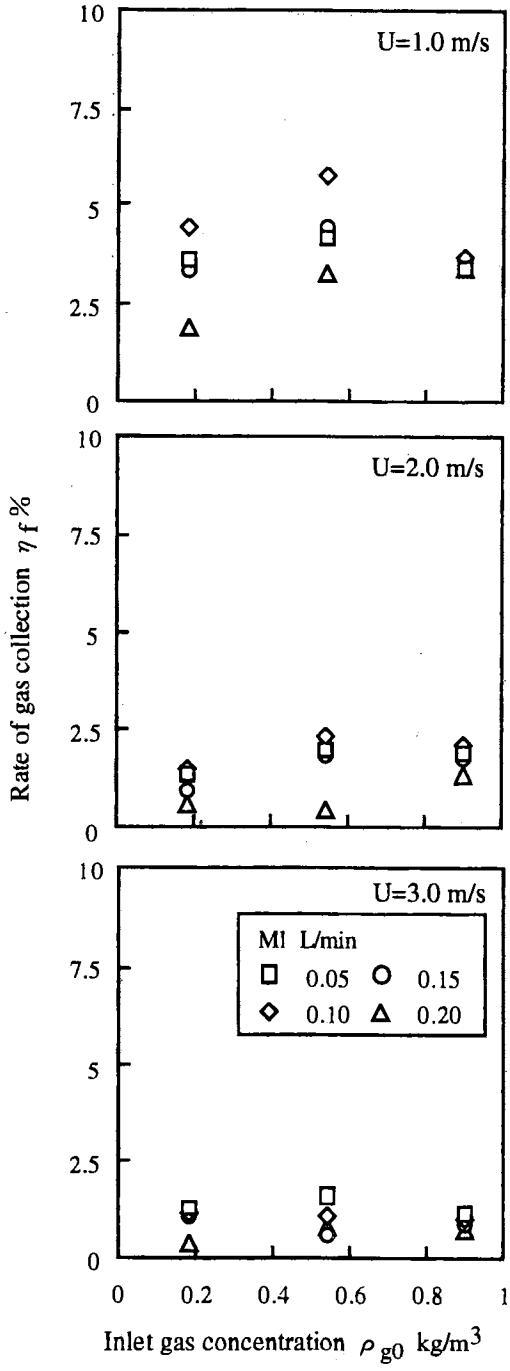



図4-2-18　入口ガス濃度とガス回収率の関係
（流下液膜法）

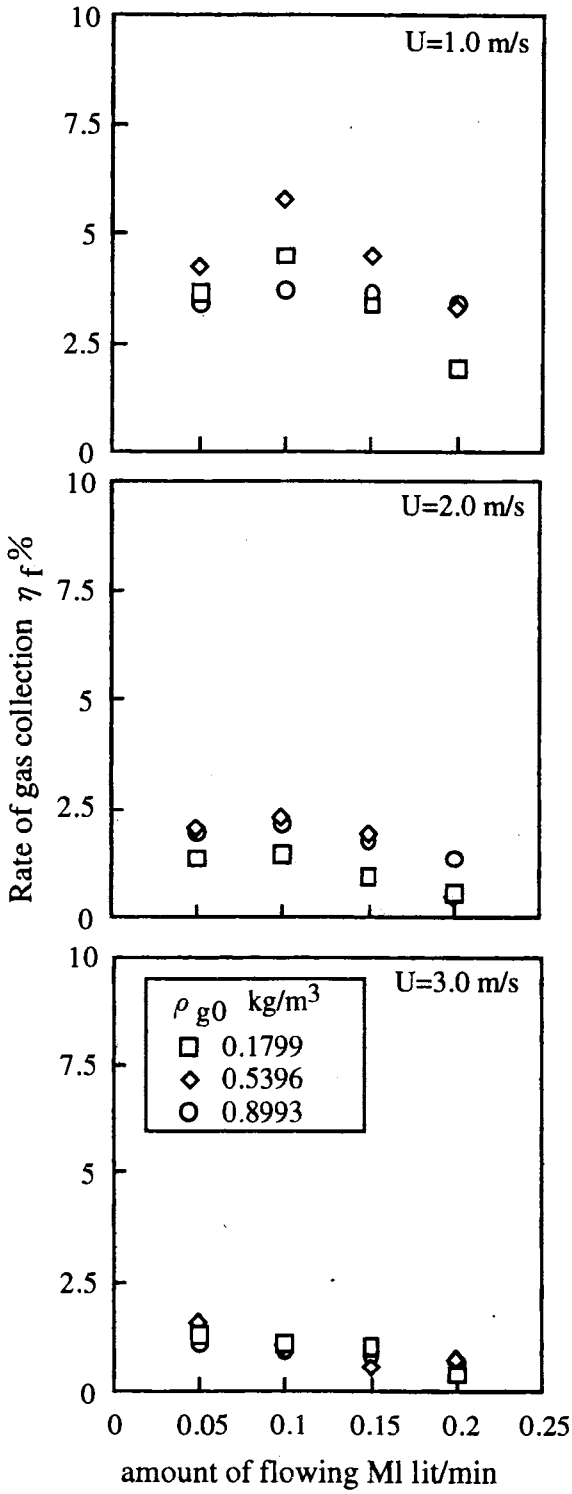
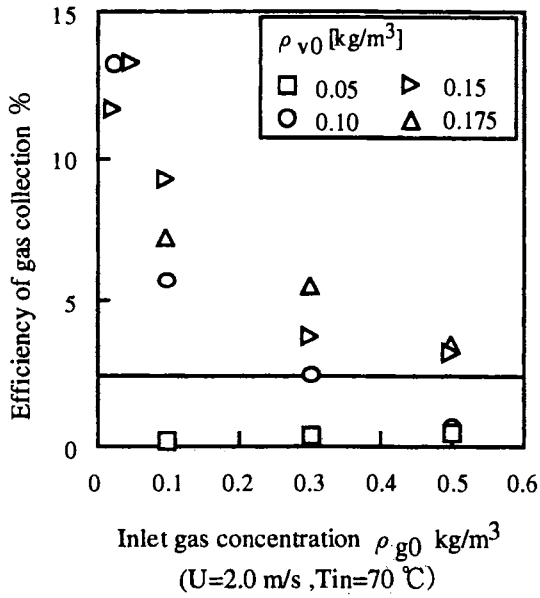



図4-19　液膜流量とガス回収率の関係（流下液膜）



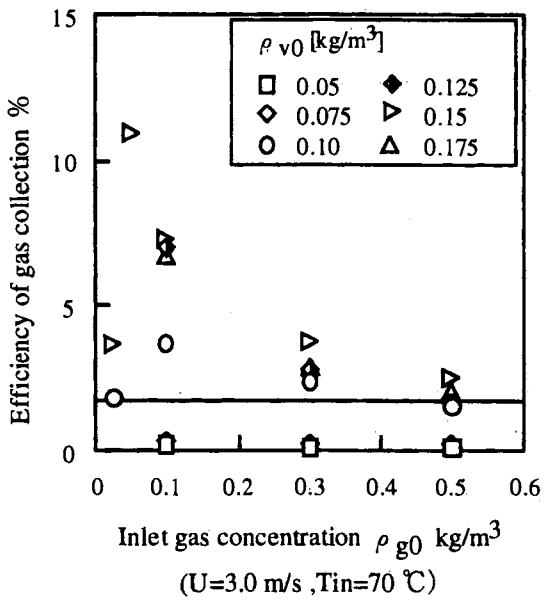
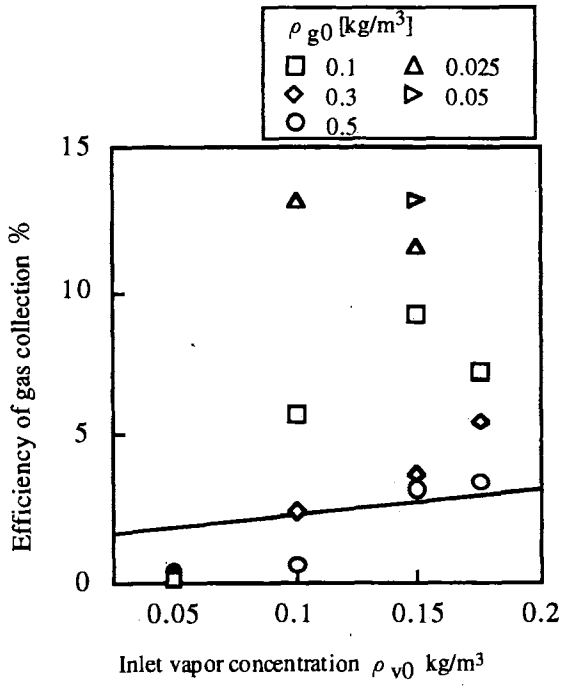
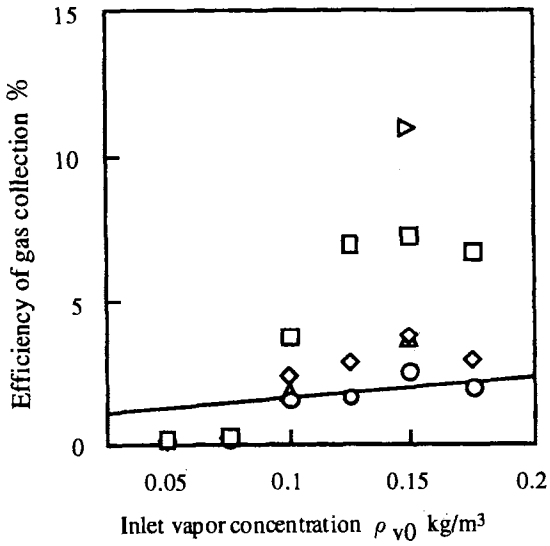




図4-2-20　入口ガス濃度とガス回収率の関係
（凝縮液膜法）




(U=2.0 m/s ,Tin=70 ℃)




(U=3.0 m/s ,Tin=70 ℃)

図4-2-21　入口蒸気濃度とガス回収率の関係

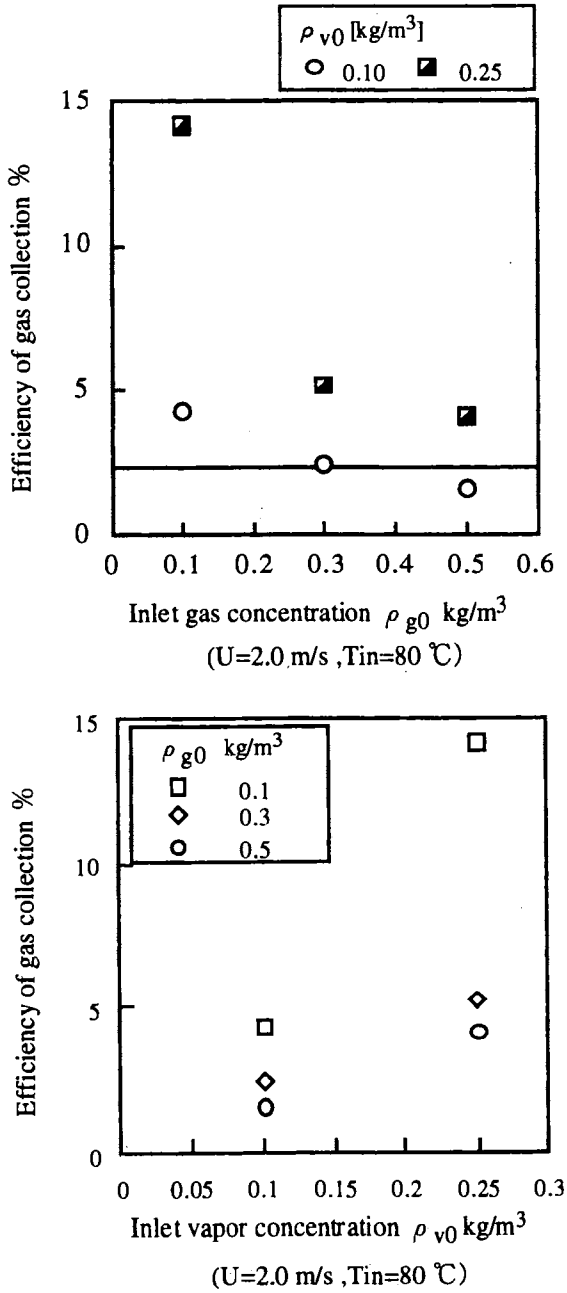



図4-2-22　入口ガス濃度とガス回収率の関係

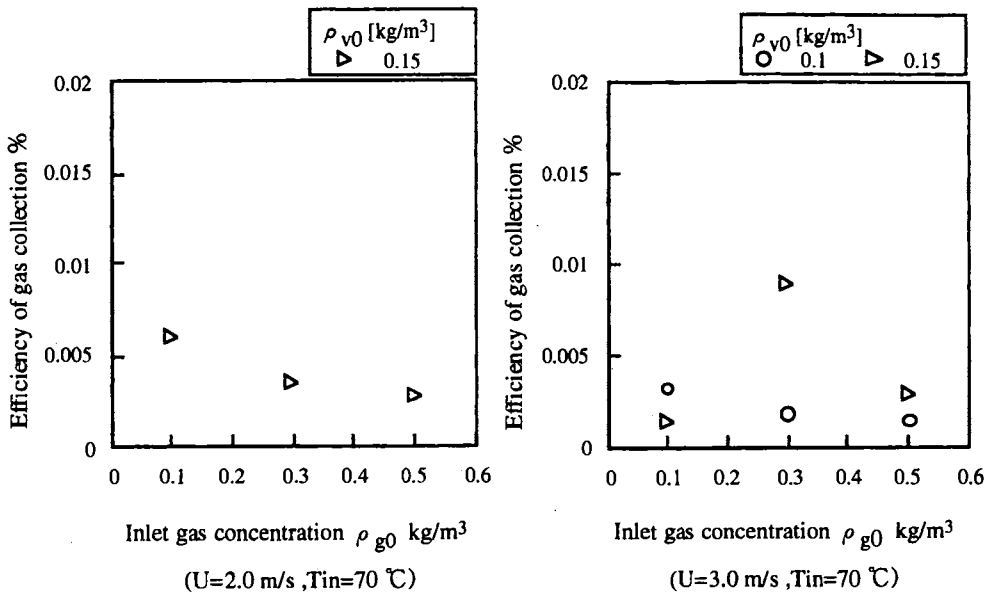



図4-2-23　流速変化によるミストへのガス回収率の関係

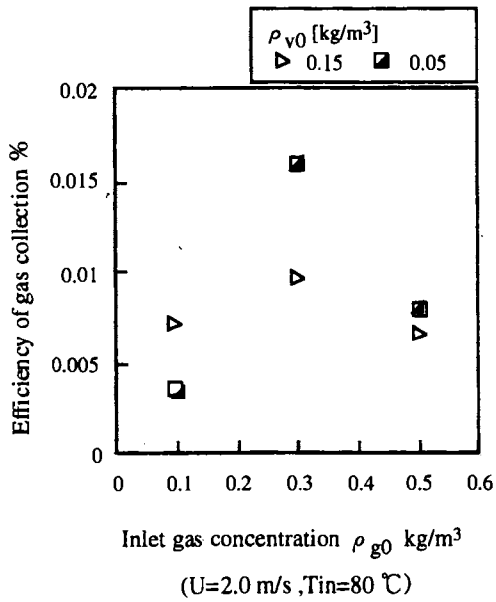
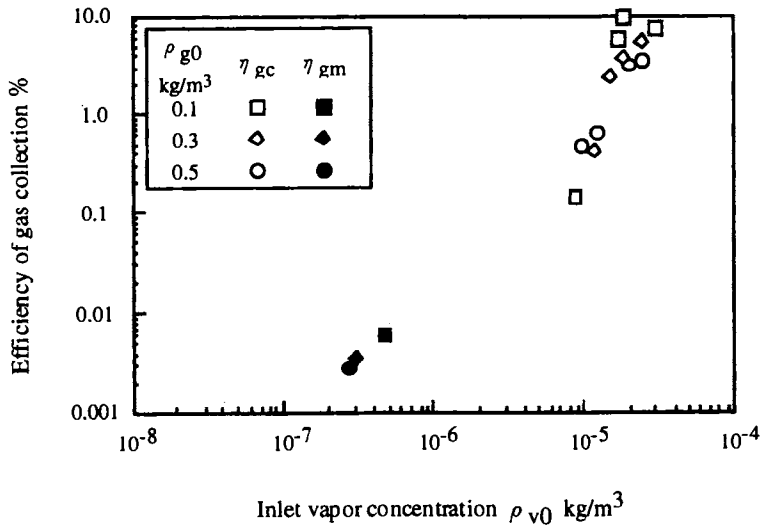



図4-2-24温度変化によるミストへのガス回収率の関係



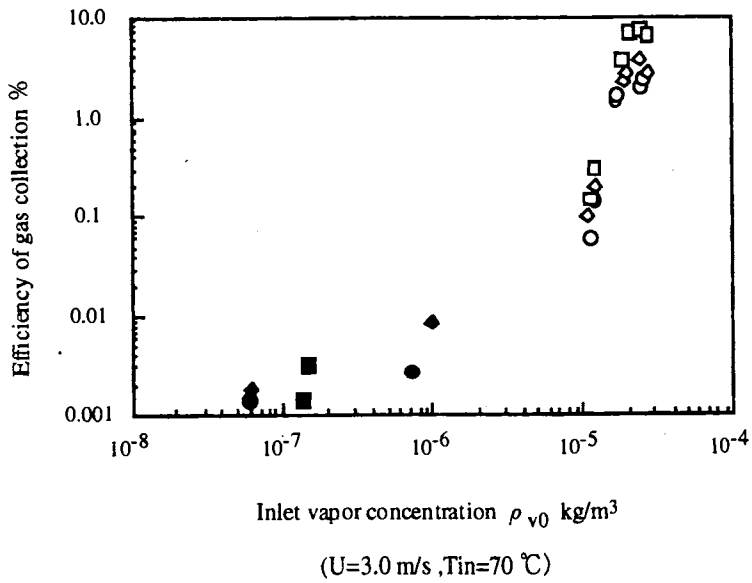




図4-2-25 凝縮液膜，ミストのガス回収率の関係

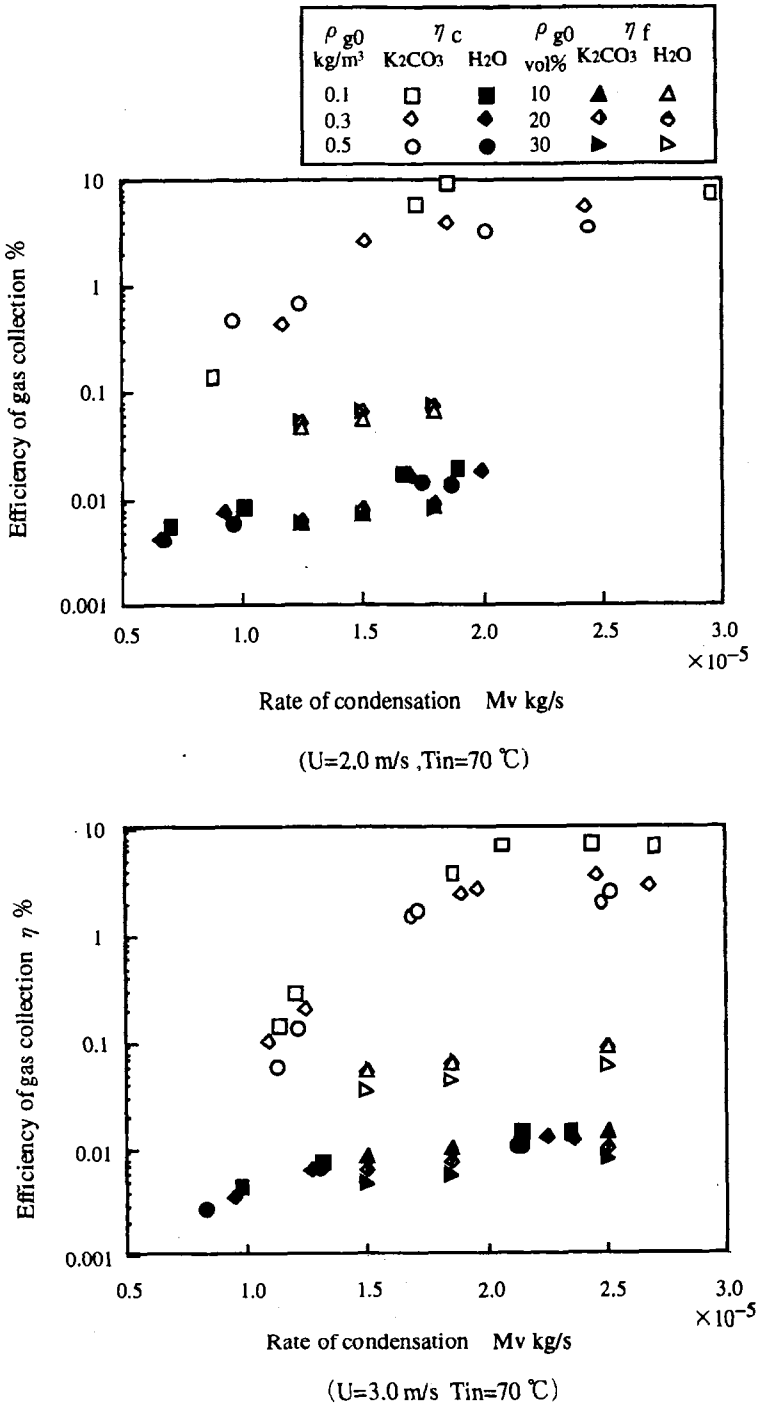



図4-2-26 凝縮液膜，流下液膜ガス回収率

# V. まとめ

可溶性ガス，凝縮性気体，炭酸塩微粒子を含む混合気において，凝縮，ミスト化および溶液効果を利用したガス吸収法について実験的・理論的に追求を行った．具体的には鉛直冷却円管内の空気・水蒸気・CO2ガスおよび炭酸カリウム微粒子を含む混合気流を対象に理論解析ならびに凝縮・ミストによるガス回収実験を行い以下の結論を得た．

(1) 同一液膜流量下での流下液膜法によるガス吸収と比較して溶液効果を利用した凝縮液膜法によるガス吸収逃す回収率は約3オーダーの向上を示し，溶液効果の有効性が明らかとなった．

(2) 溶液効果は蒸気濃度の増加，すなわちミストの発生量と深く関係し，ミスト発生量の増加によりガス吸収量は増加する．

(3) 鉛直円管内における溶液効果によるガス吸収の促進が，微粒子供給が直線運動の仮定のもと，補正係数を考慮することにより明らかにされた．