

熱交換器伝熱面に塗布した有機系収着剤の収着特性

稲葉 英男[†] 小松 富士夫[‡] 堀部 明彦[‡] 春木 直人[‡] 町田 明登[§]

Sorption Characteristics of Sorption Material Coated on Heat Transfer surface of a Heat Exchanger

Hideo INABA[†], Fujio KOMATSU[‡], Akihiko HORIBE[‡],
Naoto HARUKI[‡] and Akito MACHIDA[§]

Abstract

This paper describes sorption characteristics of organic sorbent coated on heat transfer surface of a plate-fin-tube heat exchanger. The organic sorbent is a bridged complex of sodium polyacrylate. This bridged complex containing the carboxyl group as water vapor adsorption site has a larger adsorption abilities as compared with silica gel. The experiments in which the moist air was passed into the heat exchanger coated with sorption material were conducted under various conditions of air flow rate and the temperature of brine that was the heat transfer fluid to cool the air flow in the dehumidifying process. It is found that the sorption rate of vapor is affected by the air flow rate and the brine temperature. Meanwhile, the attempt of clarifying the sorption mechanism is also conducted. Finally the average mass transfer coefficient of the organic sorbent was non-dimensionalized as a function of Reynolds number and non-dimensional temperature. In addition, it was observed that the factor which affects the sorption rate in the water vapor sorption process of the organic sorbent coated on the heat exchanger shifts from the “adsorption step” to the “sorption step”.

Key Words: Sorption, Organic sorbent, Dehumidifier, Heat exchanger, Air cycle refrigerator, Mass transfer, Moist air

記号

D	: 管径	[m]	t	: 時間	[s]
D_{aw}	: 空气中水蒸気分子拡散係数	[m ² /s]	t_{sorp}	: 収着完了時間	[s]
D_{ec}	: 空気流路断面等価円直径	[m]	u	: 流速	[m/s]
d_m	: 平均粒径	[μm]	ϕ	: 相対湿度	[%RH]
Ks	: 総括物質伝達係数	[kg/m ² s]	ν	: 動粘性係数	[m ² /s]
Ks^*	: 平均総括物質伝達係数	[kg/m ² s]	ρ_w	: 空气中水蒸気密度	[kg/m ³]
L	: 管長	[m]	添字		
m_0	: 収着剤乾燥重量	[kg]	a	: 空気側	
m_w	: 絶乾時からの収着水蒸気量	[kg]	b	: 冷却媒体 (ブライン) 側	
Δm_w	: 初期条件からの収着水蒸気量	[kg]	dp	: 露点	
Re	: レイノルズ数	[-]	e	: 収着完了時	
Sa	: 収着剤塗布量	[kg/m ²]	en	: 周囲	
Sc	: シュミット数	[-]	eq	: 平衡時	
Sh^*	: 修正シャーウッド数	[-]	in	: 入口	
T	: 温度	[°C]	ini	: 初期状態	
T^*	: 無次元温度	[-]	out	: 出口	

受付日: 2007年3月13日, 担当エディター: 瀧本 昭

[†] 岡山大学 (〒700-8530 岡山市津島中 1-1-1)

[‡] 岡山大学大学院自然科学研究科 (〒700-8530 岡山市津島中 3-1-1)

[§] 株式会社前川製作所 技術研究所 (〒302-0118 茨城県守谷市立沢 2000)

1 緒言

近年、オゾン層破壊や地球温暖化等の環境問題が、多くのメディアで取り上げられるようになり、冷凍業界においても自然冷媒への移行が急速に進んでいる。しかしながら、超低温冷凍庫等で利用される蒸気圧縮式二元冷凍システムでは、フロン冷媒の HCFC22/HFC23 に代わる代替冷媒として、自然冷媒である NH_3/CO_2 の組合せが提案されている[1]が、 -50°C 程度の低温状態では利用できず、未だ有効な代替冷媒が見つかっていない。このような背景を鑑み、著者らは空気という究極な自然冷媒を用いた冷凍システムに、有機系収着剤による水分管理を付加した除湿型空気冷凍システムを提案している[2]。

有機系収着剤は、シリカゲルのような無機系吸着剤よりも水蒸気収着量（または吸着量）が大きく、加工性、収脱着操作の繰り返しに伴う耐劣化性にも優れるため、高分子材料である収着剤へ水蒸気を収着させる新たなヒートサイクルが出現しており[3]、収着剤粒子や、様々な形状に加工した収着剤の物質伝達特性についての報告もされている。著者らはデシカントロータを想定し、パルプシートに収着剤を塗布したハニカム状エレメントに湿り空気を強制流動させた収着特性に関する研究や、粉末状の有機系収着剤を湿り空気で流動化させた収着特性に関する研究を行っており、両者とも物質伝達特性に関する無次元整理式を導出し報告している[4,5]。中野らは、アクリル酸系の高分子ゲル、A型シリカゲルおよび無機ポリマーの充填層における真空下の吸湿速度に関する実験的検討を行っており、平衡吸湿量と吸湿量の差を駆動力とした総括物質伝達係数が吸湿剤の温度に依存すること、吸湿速度は、A型シリカゲル、無機ポリマー、アクリル酸系高分子ゲルの順に遅くなることを報告している[6]。シリカゲルに代表される無機系吸着剤に関しても、ハニカム状エレメントや充填層における水蒸気物質伝達特性に関する研究が行われている[7,8]。

このように、有機系収着剤および無機系吸着剤ともに、充填層やデシカントロータを想定した基材（パルプシート等）へ塗布した収着剤（または吸着剤）の物質伝達特性に関する研究は行われているが、熱交換器の伝熱フィン部のような金属伝熱面に直接塗布した収着剤（または吸着剤）に関する物質伝達特性の研究は行われていない現状にある。本研究は、水蒸気収着物質としてポリアクリル酸系高分子架橋

体に着目し、この収着剤を除湿器の金属伝熱面へ塗布することで、収脱着反応を促進させ、よりコンパクトな除湿器の開発を目的とするものである。すなわち、常温から極低温までの金属伝熱面へ直接収着剤を塗布した場合の熱・物質伝達特性を実験的に解明することである。本報告では、極低温下における収着現象を解明する第1ステップとして、熱交換器の伝熱フィン表面に塗布した収着剤の平衡収着特性、および非定常収着特性に影響を与える因子（空気流速および熱交換器伝熱面温度）について実験的に検討し、収着メカニズムを解明することを目的とする。

2 収着剤の特徴

収着剤は、カルボン酸基の、金属原子の周りに水蒸気が強く結合（物理吸着）し、この結合水（水蒸気）の周囲に水蒸気が集まることによって、架橋点を支点として、架橋体により構成される網目構造の本鎖が膨らみ、それによってできた隙間に水蒸気が毛細管力によって取り込まれ、大量の水蒸気を収着することが可能となる。その際に収着剤は、水の凝縮潜熱程度の収着熱を発生させる。このように高分子固体界面へ水蒸気が拘束される現象は、通常吸着（Adsorption）現象とは呼ばず、収着（Sorption）現象と呼んでいる[9]。

図1には、周囲温度 $T_{en} = 30^\circ\text{C}$ における相対湿度 ϕ_{en} と平均粒子径 d_m の関係を示す。なお、図中の写真は、収着剤粒子外観の電子顕微鏡写真である。図1より、相対湿度 ϕ_{en} の増加とともに平均粒子径 d_m が大きくなっており、収着によって収着剤が膨潤していることがわかる。この膨潤現象のメカニズムは図2で示す過程で進行するものと推定される[4]。収着剤が水蒸気を収着すると、収着熱の発生により収着剤内部温度が上昇し、それに伴い内部圧力が高くなる。その圧力によって、前述した架橋体により構成された網目構造の本鎖が膨らみ、膨潤現象が引き起こされているものと考えられている。

図3[5]には、A型シリカゲル、平均粒子径 $d_m = 100\ \mu\text{m}$ の粒状収着剤、そして、本実験で使用したフィン部と同材質のアルミ板に収着剤を塗布した試験片の収着等温線図を示す。なお、収着剤を塗布した試験片に関しては、低温下における平衡収着特性を把握するために、周囲温度 $T_{en} = 30^\circ\text{C}$ の他に $T_{en} = -8^\circ\text{C}$ および $T_{en} = -15^\circ\text{C}$ における収着等温線も示している。ここで縦軸は、収着または吸着した水蒸気

量 m_w を収着剤もしくは吸着剤の乾燥重量 m_0 で除した無次元収着割合 m_w/m_0 を示している。図 3 より、 $T_{en} = 30\text{ }^\circ\text{C}$ における無次元収着割合 m_w/m_0 は、全ての相対湿度領域において、シリカゲルよりも収着剤のほうが大きいことがわかる。これは前述したように、収着剤特有の膨潤現象により多くの水蒸気を収着できるからである。特に相対湿度 80 %RH 以上においては、A 型シリカゲルの 2 倍以上の水蒸気を収着することが可能であることを示している。しかしながら、周囲温度を $T_{en} = -8\text{ }^\circ\text{C}$ 以下に低下させると、無次元収着割合は低下する傾向を示している。これは、収着剤が高分子材料であることが原因であると思われる。つまり、収着の進行とともに収着剤内部の圧力が高くなっても、収着時の温度が低くなるほど、膨潤現象に大きく関わる架橋体で構成された網目構造の本鎖が硬くなるため、膨潤の度合いが小さくなり、毛細管力による水蒸気の取り込み量が少なくなることに起因しているものと思われる。このように、有機系高分子である収着剤は、温度依存性を持つ材料であることがわかる。

また、本研究ではゲル状収着剤を金属フィン表面に塗布しているが、 $T_{en} = 30\text{ }^\circ\text{C}$ における等温収着線図は粒状収着剤とほとんど変わらないことがわかる。シリカゲルなどの無機系吸着剤では、バインダによって吸着剤を充填固着させるとバインダが吸着剤の細孔を塞ぐために、平衡吸着量が低下することが報告されている[10]。このような観点からも、収着剤はシリカゲルを代表とする無機系吸着剤に変わる新しい材料として注目されている。

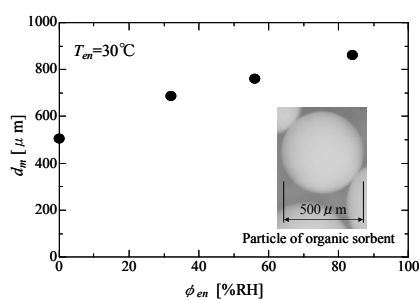


Fig. 1 Relationship between ϕ and d_m .

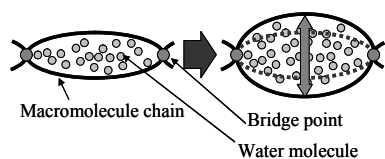


Fig. 2 Sorption mechanism.

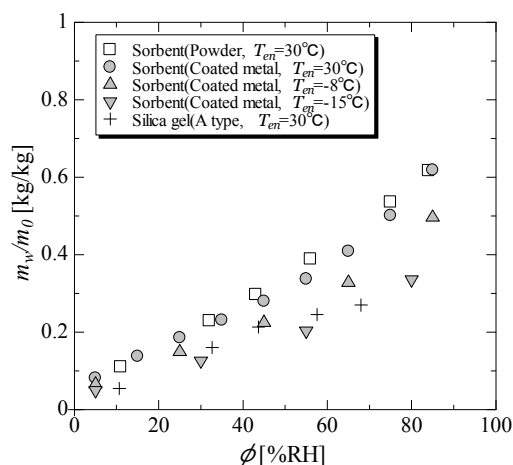


Fig. 3 Sorption isotherm.

3 実験装置および方法

図 4 は実験装置の概略を示したものである。オイルフリー型空気圧縮機①から吐出された圧縮空気は、空気冷却部②で $0\text{ }^\circ\text{C}$ 露点付近まで冷却除湿され、空気清浄部③に送られる。除湿清浄された空気は湿度・温度制御部で試験部へ供給する空気の温度および湿度に制御される。湿度制御部では、一旦膜式除湿器④にて $-30\text{ }^\circ\text{C}$ 露点程度まで乾燥させた後、気泡塔加湿器⑤に通すことで一定の湿度を供給することができる。気泡塔加湿器は、温水の満たされたステンレス製円筒容器の下方より分散板を介して空気を流入させ、空気が温水中を上昇する間に加湿される仕組みとなっており、この温水を内部に設置されている電気ヒータで加熱することにより、任意の温度の飽和湿り空気を得られる構造となっている。電気ヒータの出力は、試験部入口に設置した静電容量式湿度センサー (RH) の値で PID 制御し調整することができる。温度制御部⑥は、50 mm の断熱材で覆われたステンレス配管 (長さ 1 m×内径 50 mm)、電気ヒータおよびブライン冷却配管から構成されている。電気ヒータは円管内に設置しており、湿り空気を直接加熱する仕組みとなっている上、試験部入口に設置した直径 0.1 mm の K 型熱電対 (TC) の起電力をもとに PID 制御により電気ヒータ出力を調整することができる。またブライン冷却配管は、ステンレス配管の外側に渦巻き状に設置され、 $-5\text{ }^\circ\text{C}$ のブラインが常に供給されている。これら一連の制御操作を経て所定の温度、湿度に調整された空気は、流量調整弁にて流量を設定後、面積式流量計⑦を介して試験部⑧へと導かれる。

図5に試験部である収着剤を塗布したフィンチューブ熱交換器の概略図を示す。熱交換器の大きさは横幅 203 mm×奥行き 88 mm×高さ 81 mm であり、フィンは、厚さ約 0.3 mm のアルミニウム製で、3 mm 間隔で 26 枚、手前から奥行き方向へ設置されている。このフィン部に収着剤が約 8.2 g/m² 塗布されており、塗膜の厚みは約 10 μm である。熱交換器周囲は、湿り空気が通過する出入口部を除いた全ての周囲を厚さ 50 mm の発泡系断熱材で覆われ、その外側を厚さ 5 mm のアクリル板にて密閉されている。また、温度、湿度および流量を調節した湿り空気が通過する流路断面は 88 mm×81 mm である。

試験部出入口における空気温度は直径 1 mm の K 型熱電対にて、空気流量は面積式流量計で測定を行った。空気流速 u_a は得られた体積流量を流路断面積で除して求めた。試験部出入口絶対湿度は、1 秒毎に計測が可能な静電容量式湿度センサーと、その校正用として測定精度の高い鏡面冷却式露点計を併用し測定した露点温度から算出して求めた。その結果、絶対湿度の測定誤差は±0.1 g/kg' と、高精度でかつリアルタイムな測定が可能となった。また、伝熱管内にはブラインを供給することが可能となっており、その体積流量は、実験終了後メスシリンダで時間当たりの貯留量から求め、それを伝熱管内断面積で除してブライン管内流速 u_b とし、ブライン出入口温度は K 型熱電対で測定を行った。測定誤差は、K 型熱電対で±0.1 °C、面積式流量計でフルスケール (45m³/H) の±5% である。

実験は以下の手順によって行った。まず試験部の前処理(脱着)を行うために、所定の温度、湿度、流量(低湿度条件)に調整した空気を試験部に供給し、前処理(脱着)を開始する。出入口温度差および絶対湿度差が±0.1 g/kg' 以下であることを確認後、5 分以上経過した時点で脱着平衡に到達したとし、バルブ操作により供給空気をバイパスするとともに、試験部を密閉する。その後、迅速に供給空気の温度、湿度、流量を実験条件(高湿度条件)に調整し、供給空気の各条件が安定していることを確認後、試験部へ調整空気を、伝熱管にはブラインを供給し、収着実験を開始する。なお、この切り替えに掛かる時間は概ね 10 分前後であったが、この切替時間の影響もあり、実験結果は、図3に示した等収着量線図で読み取れる理論収着割合よりも若干低い値(93%~97%)となっている。

実験は、出入口温度差および絶対湿度差が±0.1

g/kg' 以下であることを確認後、5 分以上経過した時点で収着平衡に到達したとし、その時点で終了とした。試験部への空気温度および湿度は、データ収録システムにて 4 秒間隔で測定を行った。

初期条件から収着実験条件までの収着量 Δm_w は、測定時間毎の出入口絶対湿度差と湿潤空気の質量流量の積を積算して求めた。その収着量の熱交換器伝熱面に塗布した収着剤の乾燥重量あたりの割合を無次元収着割合 $\Delta m_w/m_0$ とした。

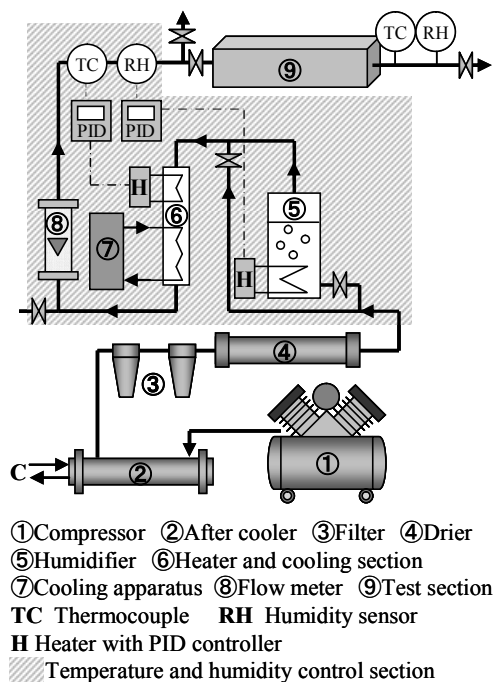


Fig. 4 Schematic diagram of experiments apparatus.

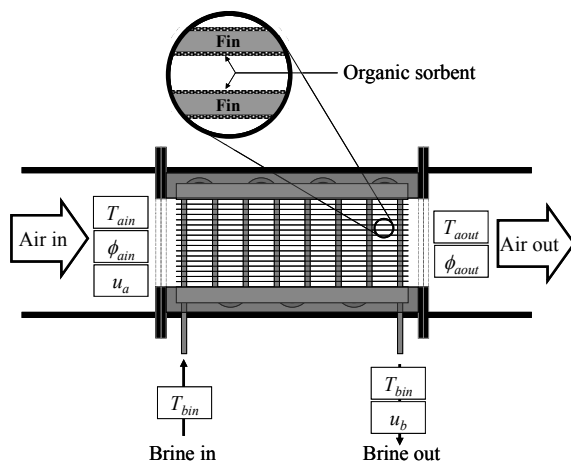


Fig. 5 Detail of test section.

4 実験結果と考察

4.1 熱交換器に塗布した収着剤の収着特性

図6は、空気温度 $T_{aini}=20\text{ }^{\circ}\text{C}$ および相対湿度 $\phi_{aini}=2\text{ \%RH}$ で前処理(脱着)を行い、伝熱管にはブラインを供給せずに、空気温度 $T_{aini}=20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、および相対湿度 $\phi_{aini}=58\text{ \%RH}$ の湿り空気を流速 $u_a=0.7\text{ m/s}$ で試験部に供給した場合における、出入口空気温度 T_{ain} , T_{aout} 、相対湿度 ϕ_{ain} , ϕ_{aout} 、および無次元収着割合 $\Delta m_w/m_0$ の経時変化を示したものである。出口空気相対湿度 ϕ_{aout} は、実験開始 $t=300$ 秒後まで急激に上昇し、その後、緩やかにその上昇割合が減少して実験開始 $t=1200$ 秒後には入口相対湿度に漸近する。無次元収着割合 $\Delta m_w/m_0$ は、出口空気相対湿度 ϕ_{aout} の経時変化に対応するように、実験初期に大きく増加した後、時間の経過とともにその増加割合を減少させ、実験開始 $t=1200$ 秒後にはほぼ一定値となり、収着平衡に到達する。この無次元収着割合 $\Delta m_w/m_0$ の変化挙動は、次のように説明できる。収着現象は、熱交換器に塗布された収着剤と供給される湿り空気との水蒸気濃度差が起動力となるため、水蒸気濃度差が最大となる実験開始直後に収着反応が急速に進行する。その後、収着反応の進行とともに水蒸気収着量が増大し、収着剤内部の水蒸気濃度が上昇することで、供給される湿り空気との水蒸気濃度差が小さくなり、水蒸気移動量(収着量)が減少し、最終的には収着完了状態に至る。出口空気温度 T_{aout} は、実験開始直後に約 $24\text{ }^{\circ}\text{C}$ と大きく上昇した後、緩やかに減少し、収着平衡となる $t=1200$ 秒後には入口空気温度 T_{ain} にほぼ一致する。この出口空気温度 T_{aout} の挙動は、前述した出口空気相対湿度 ϕ_{aout} や熱交換器へ塗布した収着剤への無次元収着割合 $\Delta m_w/m_0$ の経時変化と密接に関連しており、水蒸気収着量の大きい実験開始初期においては、大きな収着熱が発生するため、出口空気温度 T_{aout} の上昇割合も大きくなる。水蒸気収着量の減少に伴い収着による発熱量が減少し、出口空気温度 T_{aout} の上昇割合も小さくなり、収着平衡となる収着完了時においては収着熱の発生がなくなるため、出口空気温度 T_{aout} は入口空気温度 T_{ain} にほぼ一致することになる。

図7は、図6と同様な前処理条件および実験条件でかつ、冷却媒体であるブラインを空気温度と同一の $T_{bin}=20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、 $u_b=0.5\text{ m/s}$ で伝熱管に供給した場合における、出入口空気温度 T_{ain} , T_{aout} 、相対湿度 ϕ_{ain} , ϕ_{aout} 、ブライン出口温度 T_{bout} および無次元収着割合

$\Delta m_w/m_0$ の経時変化を示したものである。冷却媒体であるブラインを供給し伝熱管を冷却すると、実験開始直後に発生する収着熱は速やかに除去されるため、出口空気温度 T_{aout} の上昇は約 $21.5\text{ }^{\circ}\text{C}$ と冷却を行わない場合と比較して小さい値を示し、ブライン出口温度 T_{bout} も急激に上昇していることが確認できる。さらに、この冷却効果により出口空気相対湿度 ϕ_{aout} および出口空気温度 T_{aout} が、ブラインを供給しない場合よりも短い時間でそれぞれの入口側に漸近している上、表1に示したように収着完了時間 t_{sorp} も短くなっており、熱交換器を冷却することにより収着反応が促進されていることがわかる。ここで、収着完了時間 t_{sorp} は収着完了時無次元収着割合 $(\Delta m_w/m_0)_e$ の 90% に到達した時間と定義した。なお、このときの収着完了時無次元収着割合 $(\Delta m_w/m_0)_e$ は、両者とも 0.26 であった。

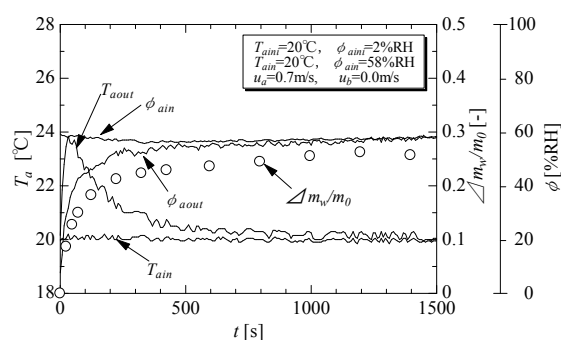


Fig. 6 Time histories of measured T_{ain} , T_{aout} , ϕ_{ain} , ϕ_{aout} , $\Delta m_w/m_0$ without cooling ($u_a=0.7\text{ m/s}$).

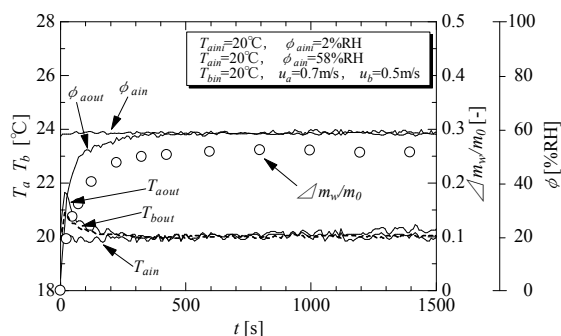


Fig. 7 Time histories of measured T_{ain} , T_{aout} , T_{bout} , ϕ_{ain} , ϕ_{aout} , $\Delta m_w/m_0$ with cooling ($u_a=0.7\text{ m/s}$).

Table 1 Sorption time results for cooling.

	Without cooling	Cooling
t_{sorp} [s]	528	216

4.2 空気流速の収着特性に及ぼす影響

図8は、図7の前処理条件および実験条件の中で、湿潤空気の流速を $u_a=1.0$ m/s に変化させた場合における、出入口空気温度 T_{ain} , T_{aout} , 相対湿度 ϕ_{ain} , ϕ_{aout} , ブライン出口温度 T_{bout} および無次元収着割合 $\Delta m_w/m_0$ の経時変化を示したものである。また表2には、収着完了時間 t_{sorp} を、空気流速 $u_a=0.5$ m/s の結果と併せて示す。

図8と図7比較すると、空気流速 u_a の増加によって、出口空気温度 T_{aout} および相対湿度 ϕ_{aout} が入口側のそれに漸近するまでの時間が短縮され、それに伴い、表2に示したように、収着完了時無次元収着割合 $(\Delta m_w/m_0)_e$ が同等であるにもかかわらず、収着完了時間 t_{sorp} は空気流速 u_a が大きいほど短くなっていることがわかる。これは、湿り空気流速の増加によって、供給湿り空気と収着剤との濃度境界層が薄くなること、供給される湿り空気の単位時間当たりの水蒸気量が増加することにより生じていると思われる。

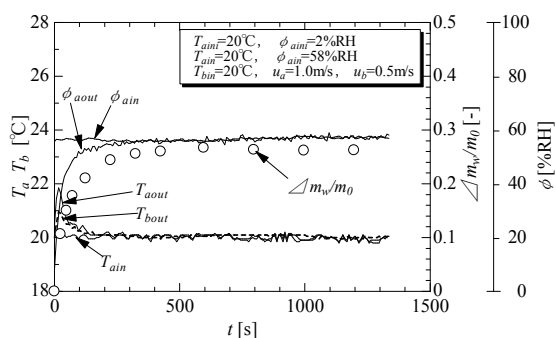


Fig. 8 Time histories of measured T_{ain} , T_{aout} , T_{bout} , ϕ_{ain} , ϕ_{aout} , $\Delta m_w/m_0$ with cooling ($u_a=1.0$ m/s).

Table 2 Influence of u_a on sorption time.

u_a [m/s]	0.5	0.7	1.0
t_{sorp} [s]	408	216	192
$(\Delta m_w/m_0)_e$ [-]	0.26	0.26	0.26

4.3 ブライン冷却温度の収着特性に及ぼす影響

図9は、図7の前処理条件および実験条件の中で、冷却媒体であるブラインの温度を $T_{bin}=16$ °C に変化させた場合における、出入口空気温度 T_{ain} , T_{aout} , 相対湿度 ϕ_{ain} , ϕ_{aout} , ブライン出入口温度 T_{bin} , T_{bout} および無次元収着割合 $\Delta m_w/m_0$ の経時変化を示したものである。また表3には、ブライン入口温度 T_{bin} をパラメータとした実験結果について、収着完了時出口空気相対湿度 $(\phi_{aout})_e$, 収着完了時無次元収着割合

$(\Delta m_w/m_0)_e$ および収着完了時間 t_{sorp} を示す。

図9より、供給する湿り空気温度 T_{ain} よりも低いブラインを伝熱管に供給すると、試験部の収着剤温度が供給湿り空気温度 T_{ain} より低下し、収着時における相対湿度が上昇するため、単位時間当たりに収着する水蒸気量が増加する。そのため一瞬ではあるが、急激に出口空気温度 T_{aout} およびブライン出口温度 T_{bout} が上昇する。その後、ブラインによる冷却効果により出口空気温度 T_{aout} は急激に低下し、入口空気温度 T_{ain} よりも低い $T_{aout}=16.5$ °C を示し、収着平衡に達する。出口相対湿度 ϕ_{aout} は、前述した実験結果と同様に実験開始直後に急激に上昇し、収着完了時には入口空気相対湿度 ϕ_{ain} よりも高い約 73 %RH で平衡に達する。これは、前述したようにブラインによる冷却によって試験部内での供給湿り空気温度が低下し、収着時における相対湿度が上昇するためである。従って、供給湿り空気相対湿度 $\phi_{ain}=58$ %RH であるが、収着反応時における相対湿度は約 73 %RH と増加したために、収着完了時無次元収着割合 $(\Delta m_w/m_0)_e$ も 20 °C のブラインで冷却した場合と比較して、約 1.5 倍に増加している。また表3に示すように、ブライン入口温度 T_{bin} が低いほど収着完了時出口相対湿度 $(\phi_{aout})_e$ が大きく、実験開始時の試験部における相対湿度 ϕ_{ain} との差が大きくなるため、収着完了時無次元収着割合 $(\Delta m_w/m_0)_e$ も増加している。それに伴い、収着完了時間 t_{sorp} も増加する。

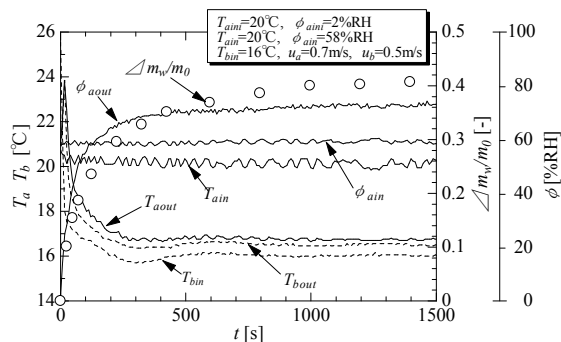


Fig. 9 Time histories of measured T_{ain} , T_{aout} , T_{bout} , ϕ_{ain} , ϕ_{aout} , $\Delta m_w/m_0$ with cooling ($T_{bin}=16$ °C).

Table 3 Influence of θ_{bin} on $(\phi_{out})_e$, $(\Delta m_w/m_0)_e$ and t_{sorp} .

θ_{bin} [°C]	14	16	18	20
$(\phi_{aout})_e$ [%RH]	81.8	73.2	66.5	58.0
$(\Delta m_w/m_0)_e$ [-]	0.49	0.41	0.32	0.26
t_{sorp} [s]	712	508	364	216

4.4 熱交換器に塗布した収着剤の収着時物質伝達特性

図1および図2で述べたように、収着剤の水蒸気収着過程は、シリカゲル等の無機系吸着剤の吸着メカニズムに収着剤特有の膨潤+毛管凝縮が加わったものと考えている。本研究では、この過程の水蒸気収着メカニズムを物質伝達の観点からどのように進行しているか検討し、図10に示すような過程で進行しているものと推定した。

収着剤が水蒸気を取り込む初期段階においては、無機系吸着剤と同様な吸着メカニズムで水蒸気を取り込むため、図10に示すような記号A(収着剤層表面における流体境界膜での水蒸気物質移動)、記号B(収着剤層内の細孔での水蒸気拡散)、記号C(収着剤層表面への吸着)の過程がシリーズに進行していく。その後、吸着サイトが飽和に達するにつれ、記号D(収着剤が膨潤するとともにその隙間への水蒸気拡散と毛管凝縮)の過程が進行するものと考えている。

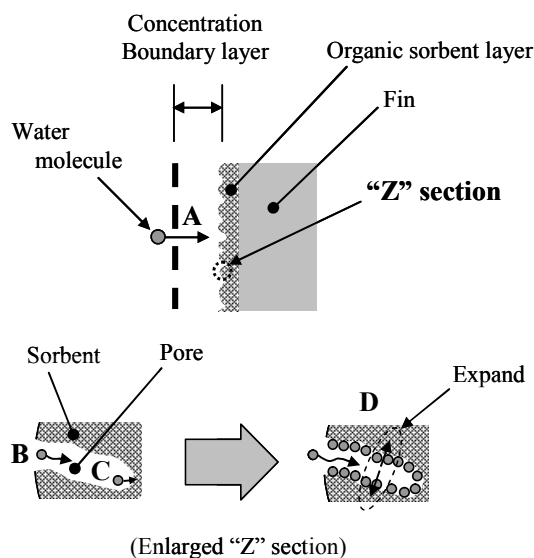


Fig. 10 Sorption mechanism.

次に、熱交換器に塗布した収着剤の収着時物質伝達特性を考察するために、従来から提案[11]されている吸着速度を総括的に取り扱う方法により式(1)を定義し、総括物質伝達係数 K_s を導出した。

$$\frac{d(\Delta m_w / m_0)}{dt} = \frac{1}{Sa} \cdot K_s \cdot [(\Delta m_w / m_0)_{eq} - (\Delta m_w / m_0)] \quad (1)$$

ここで、平衡時無次元収着割合 $(\Delta m_w / m_0)_{eq}$ は、収

着完了時無次元収着割合の90%と定義した。また、式(1)で算出した総括物質伝達係数 K_s は、収着剤を塗布した熱交換器部全体を対象としたものである。

図11には、図6の結果より式(1)で算出した収着時の総括物質伝達係数 K_s の経時変化を示す。また比較のために、温度および湿度条件を同等とし、空気流速 u_a を0.5 m/s, 0.9 m/sに変化させて行った実験における収着時総括物質伝達係数 K_s の経時変化も示している。図11より、空気流速 u_a が変化しても、熱交換器の金属フィン表面に塗布した収着剤の総括物質伝達係数 K_s は、実験開始直後にほとんど変化のない領域が存在し、その後緩やかに減少、そして再び変化がほとんどない領域を示す過程を経ることがわかる。代表的な無機系吸着剤であるシリカゲルの水蒸気吸着過程では、前述した田中らが、シリカゲルエレメントの総括物質移動係数を実験により求め、水蒸気濃度差と吸着速度の関係は一次近似されるとしている[7]。言い換えれば、傾きにあたる総括物質伝達係数 K_s は、記号A~Cの過程において一定値を示し、総括物質伝達係数 K_s が大きく変化する本研究に用いた収着剤とは水蒸気を取り込む過程が異なっている。

前述したように、式(1)で算出した総括物質伝達係数 K_s は、収着剤が塗布されている熱交換器全体を対象としたものである。そのため、図11において、実験開始直後の一定領域およびその後緩やかに減少する領域では、収着現象の進行が空気流れ方向によって大きく異なり、収着水分量の分布が形成されているため、記号A~Dまでの過程が混在している。しかしながら、総括物質伝達係数 K_s が緩やかに減少後再び一定値を示す領域では、その後収着終了まで一定値を示すことから、収着水分量の分布は残っているものの、図10に示したメカニズムがシリーズに進行することから考えれば、熱交換器に塗布されている収着剤全体が記号Dの過程にあるといえる。また、空気流速 u_a が大きいほどその領域に到達するまでの時間が短くなっている。これは、空気流速 u_a の増加に伴い、単位時間当たりに試験部へ供給される水蒸気量が増加するため、収着剤が記号Dのみの過程で水蒸気が収着されるまでの時間が短くなるからである。さらに、空気流速 u_a が増加するほど供給湿り空気と収着剤との濃度境界層が薄くなることから記号Aの過程を促進させる要因となり、結果として熱交換器に塗布されている収着剤全体が記号Dの過程に移行するまでの時間が短くなるものと思われる。

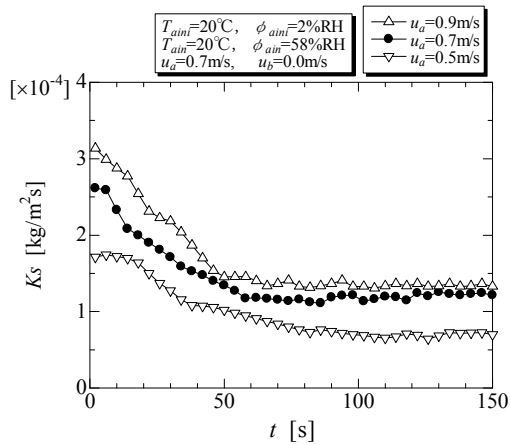


Fig. 11 Time histories of K_s without cooling.

4.5 水蒸気の収着による物質伝達特性の整理

前述した種々の実験データより、熱交換器伝熱面に塗布した収着剤の水蒸気収着に関する無次元整理式の誘導を行う。本収着現象は非定常状態で推移することより、収着剤が水蒸気の収着開始から収着完了までの全過程を時空的に平均化し、式(2)に示す平均総括物質伝達係数 K_s^* を定義し、実験データの整理を試みた。

$$K_s^* = \frac{1}{i} \sum_{n=1}^i (K_{s_i}) \quad (2)$$

ここで、 i : 時間刻みの数である。

式(2)で得られた平均総括物質伝達係数 K_s^* を無次元化するにあたり、拡散流束と総括物質流束の比で示される修正シャーウッド数 Sh^* を式(3)で定義した。

$$Sh^* = \frac{K_s^* \cdot D_{ec}}{D_{aw} \cdot \rho_w} \quad (3)$$

ここで、 D_{ec} : 空気流路断面の等価円直径、 D_{aw} : 空気と水蒸気の分子拡散係数[12]、 ρ_w : 空気中水蒸気密度である。

次に、修正シャーウッド数 Sh^* に影響を及ぼす諸因子の無次元数の誘導を次元解析や前述の諸因子の実験結果より行う。はじめに、収着剤の水蒸気拡散輸送に関する空気流れ状態の無次元量として、空気流速 u_a より求めた空気代表流速 u_{ac} を用いたレイノルズ数 Re を採用した。

$$Re = \frac{u_{ac} D_{ec}}{\nu} \quad (4)$$

次に、収着剤を塗布した熱交換器を冷却するブライン入口温度 T_{bin} の無次元量として、供給空気の露点温度 T_{dp} を基準とした無次元温度 T^* を式(5)に定義した。この無次元温度 T^* は、供給空気の露点温度を基準としたブライン冷却温度と空気供給温度の比を表した冷却温度比であり、熱交換器に塗布されている収着剤の温度依存性を示すものである。この無次元温度 T^* を採用した理由は、図3の収着等温線からもわかるように、収着剤は温度依存性の強い材料であり、水蒸気収着に伴う収着剤自体の膨潤作用や細孔内の拡散現象などが影響されていると判断したことによる。

$$T^* = \frac{T_{ain} - T_{dp}}{T_{bin} - T_{dp}} \quad (5)$$

なお、空気の物性値としてのシュミット数 Sc は、従来の例[13]を参考として、修正シャーウッド数 Sh^* に対して 1/3 乗に比例するものとした。

図12は、湿り空気供給条件 ($T_{ain} = 20^\circ\text{C}$, $\phi_{ain} = 58\%RH$) およびブライン冷却条件 $T_{bin} = 20^\circ\text{C}$ の下で、修正シャーウッド数 $Sh^*/Sc^{1/3}$ とレイノルズ数 Re の関係を両対数グラフに示したものである。○および実線はブラインによる冷却を実施した場合、●および波線は、ブラインによる冷却を実施しない場合を示している。レイノルズ数 Re の増加に伴い、ブライン冷却の有無にかかわらず修正シャーウッド数 $Sh^*/Sc^{1/3}$ は増加の傾向を示している。この傾向は空気流速 u_a の増大に伴う境界層厚さの減少や、単位時間当たりの湿り空気量の増大による収着反応促進効果などが要因となり、平均総括物質伝達係数 K_s^* が増大していることを意味している。また、ブライン冷却を実施しないほうが勾配が大きくなっており、空気量増大による平均総括物質伝達係数 K_s^* の増加割合が大きくなっている。これは、ブラインによる冷却を実施することで、湿り空気量の増大による収着反応促進効果が小さくなっていることを意味しており、ブラインによる冷却が、収着反応を促進させる効果があることを示唆している。

図13は、湿り空気供給条件 ($T_{ain} = 20^\circ\text{C}$) の下で、修正シャーウッド数 $Sh^*/Sc^{1/3}$ と無次元温度 T^* の関係

を両対数グラフに示したものである。この無次元温度 T^* は、前述の式(3)における、水蒸気収着に伴う収着剤自体の膨潤作用や細孔内の拡散現象などの温度依存性を主に示すものである。図 13 より、無次元温度 T^* の指数が-0.87 と大きいことから、内部拡散に関連する高分子収着剤の材料や膨潤現象などの温度依存性は、かなり強いことが理解できる。また、レイノルズ数 Re が変化してもその傾きが同等であることから、本実験範囲においては、レイノルズ数 Re が変化しても無次元温度 T^* と修正シャーウッド数 $Sh^*/Sc^{1/3}$ の関係は変わらないことがわかる。

以上の結果を最小二乗法にて、次式に示す修正シャーウッド数 Sh^* に関する無次元整理式を、熱交換器をブラインで冷却しない場合、および冷却した場合について誘導した。

<冷却なし>

$$Sh^* = 3.78 \times 10^{-6} (Re)^{1.75} (Sc)^{1/3} \quad (6)$$

平均偏差：±13.7%

適用範囲： $Re=192 \sim 425$, $Sc=0.59$

<冷却有り>

$$Sh^* = 5.37 \times 10^{-4} (Re)^{0.75} (T^*)^{-0.87} (Sc)^{1/3} \quad (7)$$

平均偏差：±10.2%

適用範囲： $Re=190 \sim 386$, $T^*=1.0 \sim 4.5$, $Sc=0.59$

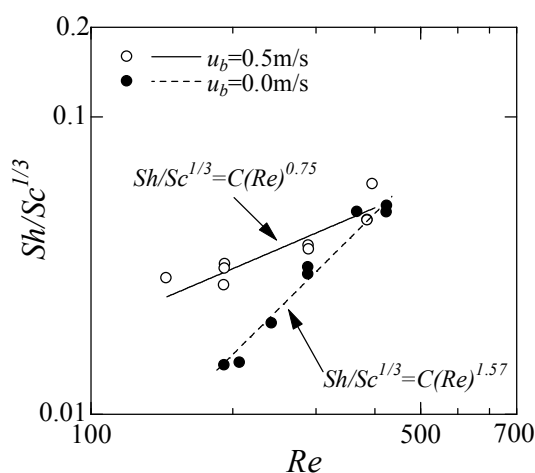


Fig. 12 Relationship between $Sh^*/Sc^{1/3}$ and Re ($T^*=1.0 \sim 1.2$).

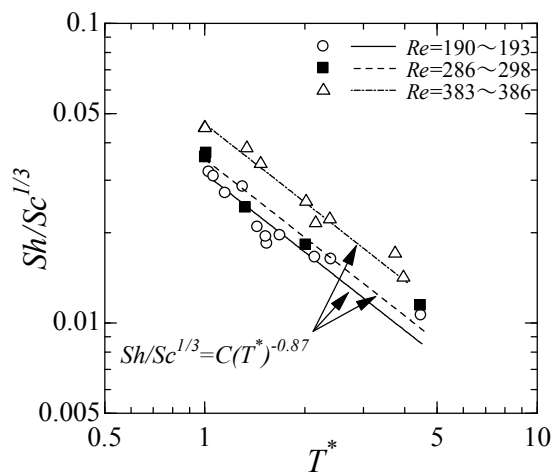


Fig. 13 Relationship between $Sh^*/Sc^{1/3}$ and T^* ($u_b=0.5$ m/s).

5 結 言

ポリアクリル酸系高分子架橋体構造である収着剤を熱交換器伝熱面に塗布した収着剤の平衡収着特性、そして、常温下における非定常収着物質移動特性に影響を与える因子（空気流速および熱交換器冷却温度）についての基礎データの収集とその収着特性を実験的に検討し、以下の結果を得た。

- (1) 有機系高分子である収着剤は、周囲温度が低下するほど無次元収着割合が低下することを確認し、温度依存性を持つ材料であることがわかった。
- (2) フィンチューブ熱交換器伝熱面にポリアクリル酸系収着剤を塗布した場合においても、粒状収着剤とほぼ同等の平衡収着特性を示すことが明らかとなった。
- (3) フィンチューブ熱交換器伝熱面に塗布した収着剤の非定常時収着特性に及ぼす供給湿り空気流速、冷却温度の影響について実験的検討を行い、平均総括物質伝達係数に及ぼす効果について定量的に明らかにした。さらに、フィンチューブ熱交換器に塗布した収着剤の平均総括物質伝達係数に関する無次元式の誘導を行った。

参考文献

- [1] 飛原英治, “自然作動冷媒新技術の動向”, 日本機械学会熱工学部門講演会論文集, 141 (2001).
- [2] 石塚信哉, 鈴木啓之, 町田明登, 寒風沢敏和,

- “高分子収着剤による除湿型高性能空気冷凍システムの研究開発”, 日本冷凍空調学会年次大会講演論文集, A301, 東京 (2005).
- [3] Inaba H., Heat and Mass Transfer Characteristics of New Adsorption Polymers for Advanced Adsorption Cycle, *Thermal Sci. Eng.*, **6-1** (1998), 11-18.
- [4] 稲葉英男, 木田貴久, 堀部明彦, 金田淳, “有機系収着剤を塗布したハニカム状収着エレメントの収着特性”, *日本機械学会論文集*, **66-652**, B (2000), 3204-3211.
- [5] 稲葉英男, 木田貴久, 堀部明彦, 亀田澄広, 岡本民雄, 徐貞均, “湿り空気による粉末状有機系収着剤流動層の水蒸気収着特性”, *日本機械学会論文集*, **67-660**, B (2001), 2105-2112.
- [6] 中野義夫, 山本隆史, 鈴木治久, 下辻俊雄, 清田佳美, “高分子ゲルの吸湿特性”, *高分子論文集*, **46-11** (1989), 715-721.
- [7] 田中宏史, 白石啓一, 宮武修, “除湿エレメント内の熱と物質の同時移動に関する研究”, *九大生科研報*, **80-39** (1986), 39-49.
- [8] 渡辺藤雄, 渡部義人, 勝山仁之, 小塚淳, 架谷昌信, “充填層型水蒸気吸着ヒートポンプの吸・脱着に伴う発・吸熱特性”, *化学工学論文集*, **19-1** (1993), 83-90.
- [9] 高分子学会編, 高分子と水 (1995), 1-5, 共立出版.
- [10] 森英男, 濱本芳徳, 吉田駿, 米丸晃, “水蒸気吸着充てん層内の熱および物質の移動に関する実験的研究”, *日本機械学会論文集*, **66-649**, B (2000), 2463-2470.
- [11] 柳井弘, 吸着工学要論 (1977), 59-60, 共立出版.
- [12] 関信弘, 伝熱工学 (1988), 186, 森北出版.
- [13] Ergun S., Fluid Flow through Packed Columns, *Chemical Engineering Progress*, **48-2** (1952), 89-94.