

博士論文

自己熱再生を用いた革新的海水
淡水化プロセスの開発

水野 寛之

1. 緒論.....	1
1. 1. 水資源問題.....	1
1. 2. 海水淡水化技術.....	3
1. 2. 1. 海水淡水化.....	3
1. 2. 2. 海水淡水化プロセス.....	3
1. 2. 3. 前処理工程.....	3
1. 2. 4. 脱塩工程.....	7
1. 2. 5. 後処理工程.....	12
1. 2. 6. 各種海水淡水化プロセスの比較.....	12
1. 3. 製塩技術.....	13
1. 4. 研究目的.....	15
2. 省エネルギーな濃縮プロセスの開発.....	21
2. 1. はじめに.....	21
2. 2. 自己熱再生に基づく蒸発法.....	24
2. 3. エネルギー消費量の計算.....	25
2. 3. 1. シミュレーション条件.....	25
2. 3. 2. シミュレーション結果、考察.....	26
2. 3. 2. 1 自己熱再生に基づく蒸発法と多段フラッシュ法の比較.....	26
2. 3. 2. 2 自己熱再生に基づく蒸発法と逆浸透膜法の比較.....	47
2. 4. まとめ.....	57
3. 省エネルギーな乾燥プロセス実現に向けた蒸発器の検討.....	62
3. 1. はじめに.....	62
3. 2. 流動層.....	68
3. 2. 1. 流動層とは.....	68
3. 2. 2. 流動粒子による区分.....	70
3. 2. 4. 最小流動化ガス速度.....	71
3. 3. 流動層蒸発器.....	75
3. 4. 流動層での海水蒸発実験.....	76
3. 4. 1. 実験装置.....	76
3. 4. 2. 実験結果と考察.....	78
3. 5. まとめ.....	81
4. 流動層内における凝集体成長・堆積挙動.....	85
4. 1. はじめに.....	85

4. 2.	凝集体成長・堆積モデルの構築	87
4. 2. 1.	凝集体の成長・堆積.....	87
4. 2. 2.	流動層内で働く力	87
4. 2. 3.	液架橋で形成された凝集体の挙動 (U_0 が U_{eq} よりも小さい場合).....	97
4. 2. 4.	液架橋で形成された凝集体の挙動 (U_0 が U_{eq} よりも大きい場合).....	100
4. 3.	流動層蒸発器での海水蒸発実験	102
4. 3. 1.	実験装置	102
4. 3. 2.	実験結果と考察.....	104
4. 3. 2. 1.	空塔速度と t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) の関係.....	104
4. 3. 2. 2.	平均粒径と t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) の関係.....	109
4. 3. 2. 3.	静止層高と t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) の関係.....	116
4. 3. 2. 4.	層内温度と t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) の関係.....	117
4. 3. 2. 5.	海水供給速度と t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) の関係.....	124
4. 3. 2. 6.	層底部に堆積した凝集体が凝集体の成長・堆積に与える影響	127
4. 4.	流動層蒸発器内における凝集体成長・堆積モデル	133
4. 5.	流動層蒸発器のスケールアップ	134
4. 6.	まとめ	136
5.	省エネルギーな乾燥プロセスの開発	140
5. 1.	はじめに.....	140
5. 2.	自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセス.....	140
5. 2. 1.	流動化ガスの種類	140
5. 2. 2.	流動化ガスとして空気を利用した自己熱再生に基づく乾燥プロセス ...	141
5. 2. 3.	流動化ガスとして過熱水蒸気を利用した自己熱再生に基づく乾燥プロセス.....	143
5. 3.	エネルギー消費量の計算	151
5. 3. 1.	シミュレーション条件.....	151
5. 3. 2.	シミュレーション結果、考察.....	152
5. 3. 2. 1.	自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセスのエネルギー消費量 (流動化ガス: 空気)	152
5. 3. 2. 2.	自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセスのエネルギー消費量 (流動化ガス: 過熱水蒸気).....	153
5. 3. 2. 3.	従来技術に基づくプロセスとの比較.....	156
5. 4.	まとめ	160
6.	省エネルギーで蒸発法のメリットを持ち排水が生じない海水淡水化プロセスの開発	162
6. 1.	はじめに.....	162

6.2	自己熱再生に基づく濃縮、乾燥プロセス	162
6.3	エネルギー消費量の計算	164
6.3.1.	自己熱再生に基づく濃縮プロセスと乾燥プロセスを組み合わせたプロセスのエネルギー消費量	164
6.3.2.	自己熱再生に基づく濃縮プロセスと乾燥プロセスを組み合わせたプロセスと既存のプロセスとの比較	166
6.4	まとめ	170
7.	結論	172
7.1.	まとめ	172
7.2.	今後の研究について	175
7.2.1.	凝集体成長・堆積モデルの精緻化	175
7.2.2.	エネルギー消費量を削減するための運転条件の最適化	175
Appendix A		177
	投稿論文	179
	著書	179
	国際学会	179
	国内学会	182
	受賞	182
	特許	183
	謝辞	184

Nomenclature

A, A_h, A_c	Surface area [m ²]
A_t	cross sectional area of bed [m ²]
Ar	Archimedes number ($= d_p^3 \rho_g (\rho_p - \rho_g) g \mu^{-2}$)[-]
B	work at blower [W]
C	work at compressor [W]
C_d, C_l, C_t	drag coefficient [-]
C_p	specific heat at constant pressure [kJ kg ⁻¹ K ⁻¹]
D	diffusion coefficient [m ² s ⁻¹]
D_b	bubble diameter [m]
D_{bm}	maximum bubble diameter [m]
D_{b0}	initial bubble diameter [m]
D_t	bed diameter [m]
d, d_h, d_s	characteristic length [m]
d_p	particle diameter [m]
d_{in}	inner diameter [m]
d_{out}	outer diameter [m]
E	work at expander [W]
F_a	total seawater feed amount [s]
F_b	force caused by bubble acting on one particle [N]
F_d	drag force [N]
F_e	Electrostatic force [N]
F_g	gravitational force [N]
F_L	liquid bridge force [N]

F_s	solid bridge force [N]
F_v	Van del Waals force [N]
G	Gibbs free energy [kJ]
g	gravitational acceleration [m s^{-2}]
H	heat at fired heater [W]
H	enthalpy [kJ]
ΔH	enthalpy change [kJ kg^{-1}]
h_h, h_c	heat transfer coefficient [$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$]
h_m	mass transfer coefficient [m s^{-1}]
K	overall heat transfer coefficient [$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$]
k, k_h, k_s	thermal conductivity [$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$]
L	latent heat [kJ kg^{-1}]
L_p	permeability coefficient [$\text{m s}^{-1} \text{kPa}^{-1}$]
l	height or length [m]
m_b	brine flow rate [kg s^{-1}] or [g s^{-1}]
m_e	evaporation rate [kg s^{-1}] or [g s^{-1}]
m_f	feed rate [kg s^{-1}], [g s^{-1}] or [g min^{-1}]
m_{\max}	mass of agglomerates accumulated at the bottom of the bed [g]
m_p	product water flow rate [kg s^{-1}] or [g s^{-1}]
Nu	Nusselt number ($= h_h d k^{-1}$) [-]
N_v	water flux [$\text{m}^3 \text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$]
ΔP_b	pressure drop in the bed [kPa]
ΔP_d	pressure drop at the distributor [kPa]

ΔP_p	pressure increase at the pump
ΔP_t	total pressure drop [kPa]
Pr	Prandtl number ($= \mu C_p k^{-1}$) [-]
Q	amount of heat [kJ] or [kW]
R	recovery ratio [-]
R_0	universal gas constant [kJ mol ⁻¹ K ⁻¹]
Re_p	particle Reynolds number ($= \rho_g U d_p \mu^{-1}$) [-]
S	entropy [kJ K ⁻¹]
Sc	Schmidt number [-]
SEC	specific energy consumption [kJ kg-water ⁻¹]
T	temperature [K]
ΔT	temperature difference [K]
T_b	bed temperature [°C]
T_c	condensation temperature [°C]
T_w	water temperature [°C]
t_a	time until the agglomerates begins to accumulate [s]
U_{eq}	fluidizing gas velocity at which the shear force caused by a bubble is equal to the liquid bridge force [m s ⁻¹]
U_g	gas velocity [m s ⁻¹]
U_{mf}	minimum fluidizing gas velocity [m s ⁻¹]
U_r	relative fluidizing gas velocity [m s ⁻¹]
U_0	superficial velocity [m s ⁻¹]
V	bubble volume [m ³]
v	growth rate [g s ⁻¹]

W	energy consumption [W] or [kW]
z	height in bed [m]
ε	voidage [-]
ε_{mf}	voidage at minimum fluidizing gas velocity [-]
η	adiabatic efficiency [-]
μ	gas viscosity [Pa s]
μ_i	chemical potential [kJ mol ⁻¹]
ν	kinetic viscosity [m ² s ⁻¹]
Π	osmotic pressure [kPa]
ρ	<i>density</i> [kg m ⁻³]
ρ_g	gas density [kg m ⁻³]
ρ_p	particle density [kg m ⁻³]
σ	surface tension [N m ⁻¹]
φ	shape factor [-]

1. 緒論

1. 1. 水資源問題

水は地球上の生命の維持、社会経済の発展に不可欠な資源である。しかしながら、世界人口の増加や新興国の工業化に伴い、水の利用が増加しており、淡水資源に関する問題が指摘され始めている。Fig. 1- 1 に世界の取水量の推移を示す^[1]。年々、取水量は増加しており 2025 年には 1970 年の取水量の 2 倍、5000 [km³ year⁻¹] を超えると予想されている。Fig. 1- 2 に示すのは、世界人口の推移 (縦軸青)^[2] と水ストレス下にある人の数 (縦軸赤)^[3]、またその割合 (実線) である。水ストレスとは、水需給がひっ迫している状態を表している。その判断として、「人口一人当たりの最大利用可能水資源量」が広く利用されており、農業、工業などで要する年間一人あたりの水資源量が 1,700 立法メートル以下の状態にある場合、水ストレス下にあると表現される^[4]。世界人口の増加とともに、水ストレスに直面する人の数も増加していき、2025 年には、世界人口の約 35%が、2050 年には約 40%が水ストレスに直面すると予想されている

そこで、これら水資源問題を解決するために海水淡水化が注目を集めている。

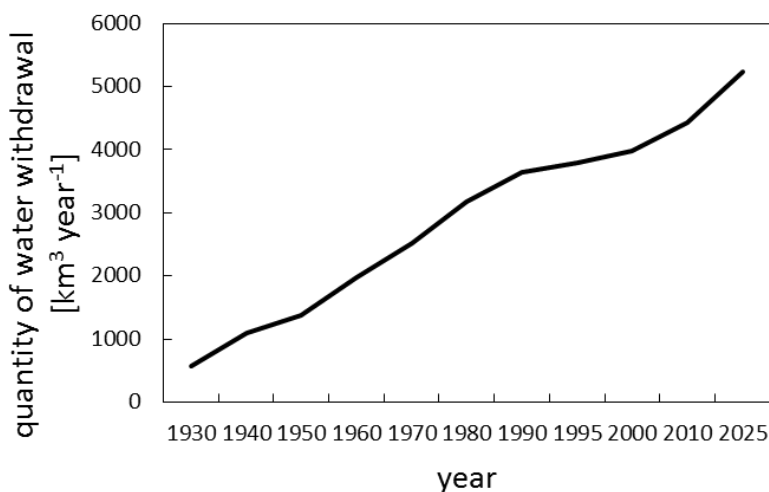


Fig. 1- 1 Dynamics of water use in the world.

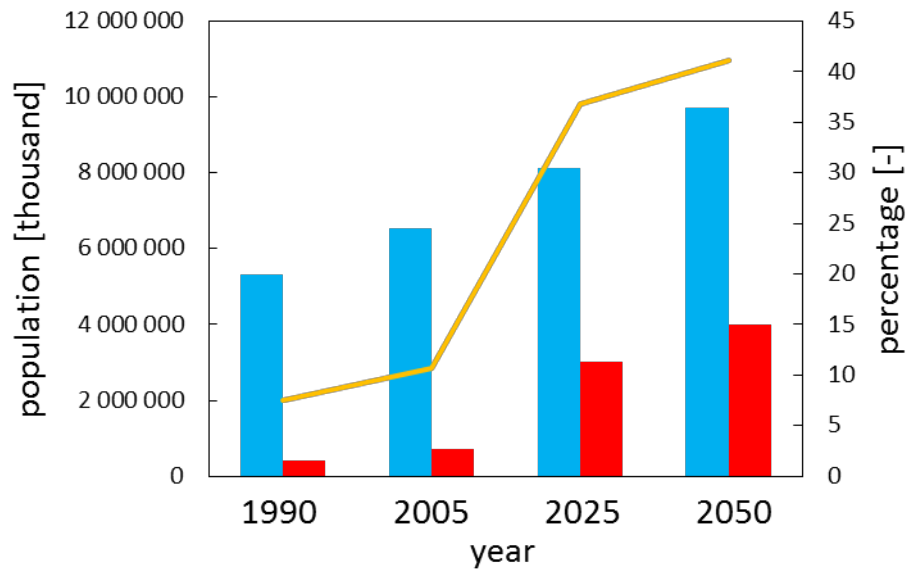


Fig. 1- 2 Population, population under water stressed conditions and the ratio in the world.

1. 2. 海水淡水化技術

1. 2. 1. 海水淡水化

地球上に存在する水のうち、約 97.5%は海水（塩分濃度が 1.5～5.0%）や汽水（塩分濃度が 0.15～1.5%）として存在している。これらは TDS (Total Dissolved Solids) が高いので、生活用水や工業用水、農業用水として利用することは難しい。これらの水を利用するためには、塩など溶存物質を取り除く技術（脱塩技術）が必要である。一般的に、飲用水では TDS は 600 以下^[5]、農業用水は 500 以下^[6]、工業用水は 10 以下^[7]が求められている。

脱塩技術は約 50 年前に西アジアの湾岸諸国で初めて導入され、それ以後造水コストの低減、エネルギーや資源の高効率化に向けて研究開発が行われてきた。2007 年現在、およそ 14,000 の海水淡水化プラントが稼働しており、一日あたり 5 千 3 百万立方メートルの淡水が生成されている。2007 年には前年に比べて設備容量が 24.5%増加した。世界人口の増加や新興国の工業化などにより、海水淡水化プロセスはますます増加すると予想されている^[8]。

1. 2. 2. 海水淡水化プロセス

海水から淡水を作るプロセスでは、海水中の懸濁物質や塩類の析出物等を取り除く前処理工程、海水から塩類を取り除く脱塩工程、そして製造した淡水の水質を調整する後処理工程に分けられる^[9]。

前処理工程では、物理的、または化学的な処理が行われる。その処理方法は、主に脱塩工程の方式により決まる。

脱塩工程では、一般に蒸発法と膜法が利用されている。蒸発法は海水を蒸発させ、発生した蒸気を冷やすことで、淡水を得る方法である。膜法は膜を通過する際の水分子と他の分子の速度差を利用して淡水を製造する方法である。

後処理工程では、腐食防止処理や、ミネラルの添加、消毒が行われる。

1. 2. 3. 前処理工程

前処理工程は、後続の脱塩工程の方式により異なる。

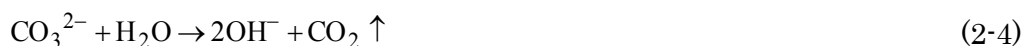
脱塩工程が蒸発法で行われる場合、伝熱管表面へのスケールやスラッジの析出を抑制するための処理が行われる。蒸発法で発生するスケールは三種類、硬質スケール、軟質スケール、スラッジ、に分類され、それぞれ以下に記載する処理が行われる (Table 1- 1) ^{[10]・[11]}。

Table 1- 1 Scale.

Classification	Constituent
Hard scale	$\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, $\text{CaSO}_4 \cdot 1/2\text{H}_2\text{O}$, CaSO_4 , $\text{Na}_2\text{SO}_4 \cdot 5\text{CaSO}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$
Soft scale	CaCO_3 , MgCO_3 , $\text{MgCO}_3 \cdot \text{XMg}(\text{OH})_2$, $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$, $\text{Mg}_3(\text{PO}_4)_2$
sludge	Fe_2O_3 , Fe_3O_4 , $\gamma\text{-FeOOH}$, CuO , $\text{Cu}(\text{OH})_2$, $\text{CaSiO}_3 \cdot$ XH_2O , $\text{MgSiO}_3 \cdot \text{XH}_2\text{O}$, SiO_2

硬質スケールは硫酸カルシウムや硫酸ナトリウム、またそれらの複塩が主成分である。濃縮とともに過飽和になり、伝熱面上に析出する。特に硫酸ナトリウムや硫酸カルシウム無水和物、硫酸カルシウム半水和物は、温度上昇とともに溶解度が減少することから、伝熱面上の過飽和度が液中よりも高くなることで析出が促進される。硬質スケールは非常に硬く、その除去はきわめて難しい。そこで、その析出を抑制するために供給液の前処理として種晶添加や Ca^{2+} の除去が行われる。運転中に避けることができなかったスケールは、運転停止中にハンマリングや希リン酸浸漬後酸洗浄し除去する。

軟質スケールは炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、水酸化マグネシウムで形成される。これらのスケールは (2-1) ~ (2-5) に示す海水中の HCO_3^- や CO_3^{2-} の加水分解にもなって生成する。



これらのスケールは硬質スケールと比較して抑制しやすい。もっとも広く利用されている前処理方法は、pH 制御法である。この方法では、供給流体に塩酸、または硫酸を添加することで、pH を低下させ、軟質スケール析出の主要因となる HCO_3^- を炭酸ガスと水に分解する。他にも、抑制剤の添加などが行われる。プラントの停止中には酸洗浄することで、析出したスケールを除去する。

スラッジは装置材料の鉄や銅などが海水中の溶存酸素により、腐食されて酸化物になり、これらが海水中の土砂分やコロイド上の有機物などに沈着して生じるものである。スラッジの抑制やその除去は比較的容易であることが知られている。プラントの運転中

には、スポンジボール洗浄や電場、磁場付与を行うことで析出を制御し、プラントの停止中には、ジェット洗浄やブラッシングで除去する。

脱塩工程として膜法（後述する逆浸透膜法）が利用されるとき、前処理として、膜表面へのファウリングを防ぐための処理が行われる。ファウリングとは、海水中の溶存物質が膜表面に沈着し、透過流束の低下などを引き起こすことである。ファウリングは大きく分けて次の 3 種類 (1) 砂や泥、微生物、及びその死骸や排せつ物など、固体微粒子によるファウリング、(2) 海水中の溶存物質が膜表面で濃縮され、濃度分極が生じることで発生する、有機物及び無機沈殿物によるファウリング、(3) 膜表面への海水中の細菌の付着や増殖で生じるバイオフィアウリングに分類される^{[1 0]、[1 2]、[1 3]}。

これらのファウリングを抑制するために、物理的、化学的、またはそれを組み合わせた処理が行われる。Table 1- 2 に逆浸透膜法で利用される前処理プロセスの例とその特徴を示す^[1 3]。海域ごとにより供給する海水の水質が異なるので、それぞれに適した前処理プロセスを選ぶ必要があるが、一般的に凝集剤を入れたのち、一段の砂ろ過を利用する方法が利用されている。凝集剤は、高分子凝集剤、硫酸、塩酸、塩化第二鉄、硫酸第二鉄などが利用される。

Table 1- 2 Pretreatment in reverse osmosis.

前処理プロセス	特徴
一段砂ろ過	<ul style="list-style-type: none"> 標準的な前処理 運転管理が容易 原水の影響を受けやすく処理水の水質が不安定 油分や有機物への対応困難
二段砂ろ過	<ul style="list-style-type: none"> 一段砂ろ過を用いた場合よりも原水の水質変動を改善 油分や有機物への対応困難
井戸取水＋砂ろ過	<ul style="list-style-type: none"> 原水が清澄で、水質が安定して高い 立地条件の影響が大きい 水量の安定確保が困難
凝集沈殿＋加圧浮上＋砂ろ過	<ul style="list-style-type: none"> 油分や有機物除去対応プロセス 凝集剤使用量が多い
膜ろ過	<ul style="list-style-type: none"> 水質が良好・安定 設備の小型化が可能 膜ファウリングによる水量不足の懸念

1. 2. 4. 脱塩工程

脱塩工程では、一般的に蒸発法、または膜法が利用されている^{[8]・[9]}。蒸発法では (1) 多段フラッシュ法(Multi-stage flash distillation, MSF)と (2) 多重効用法(Multi-effect distillation, MED)が、膜法では (3) 逆浸透膜法(Reverse osmosis, RO)と (4) 電気透析法(Electrodialysis, ED) が利用されている。

(1) 多段フラッシュ法 (MSF)

多段フラッシュ法は、予熱した海水を減圧したステージに注入してフラッシュ蒸発を起こし、発生した蒸気を冷却することで淡水を得る方法である。多段フラッシュ法は主に、貫流式とブライン循環式のプロセスに分かれる。3 段のステージで構成された貫流式多段フラッシュ法の模式図を Fig. 1- 3 に示す。海水ははじめに Stage 1 内の熱交換器に入り、Stage 1 で発生した蒸気の凝縮潜熱で予熱される。その後、Stage 2, 3 でも同様に熱交換器を通過し蒸気によって予熱される。予熱された海水は外部ヒーターによってさらに加熱される。その後、海水は、減圧された Stage 3 に供給され、海水の一部がフラッシュ蒸発を起こす。発生した蒸気は Stage 上部の熱交換器で冷却され、製品の淡水となる。残りの濃縮された海水は次の、更に減圧されている Stage 2 に入り再びフラッシュ蒸発を起こす。この操作を繰り返し、海水から淡水を製造する。海水の最高温度は 90 [°C] から 115 [°C] 程度である^[8]。海水の最高温度が 100 [°C] 以上の場合は、海水を加圧して外部ヒーター上で海水が蒸発しない条件で加熱する。海水の最高温度が高いほど、回収率 (= 海水のうち淡水として取り出す割合) を大きくすることができ、前処理の負荷や製品量に対する装置サイズを小さくすることができるが、スケール (海水中の難溶性塩類) が析出する可能性も高くなる。海水の最高温度は供給する海水の水質や、前処理の方法、求める回収率によって決まる。一般的に、多段フラッシュ法の回収率は 0.10 ~ 0.20 [-] 程度である^[9]。

Fig. 1- 4 に示すのは、ブライン再循環方式多段フラッシュ法の模式図である。このプロセスでは、貫流式では海に排出されていた、濃縮海水の一部を再利用する。貫流式のプロセスでは海水の温度変化により造水量や加熱に必要な蒸気量に変化し、運転が不安定になるが、ブライン再循環式プロセスではその変化を低減することが可能であり、外乱に対して安定した運転ができる。従って、安定性が求められる大型の装置では、ブライン循環方式が主に利用され、貫流式プロセスは運転が比較的容易である小型の装置で利用される。多段フラッシュ法のステージの数は設備コストとエネルギーコストの関係で決まる。ステージの数が多いほど、運転時に必要なエネルギー量は少なくなるが、ス

ステージの数とともに設備コストが大きくなる。実際に利用されている多段フラッシュ法のステージ数は最大 40 段程度である^[10]。

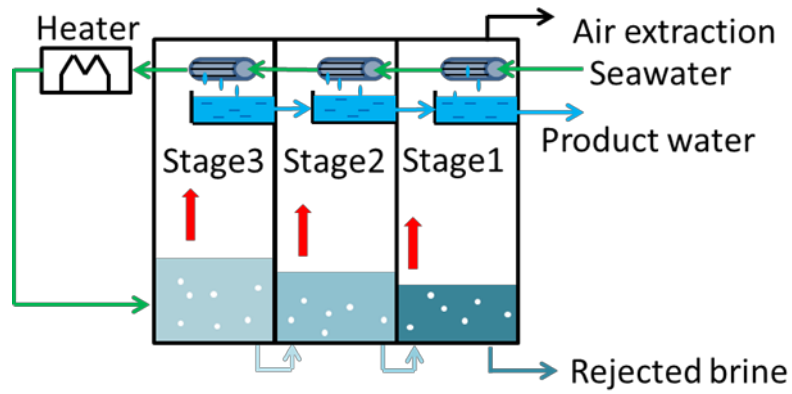


Fig. 1- 3 Schematic of once-through flash desalination plant.

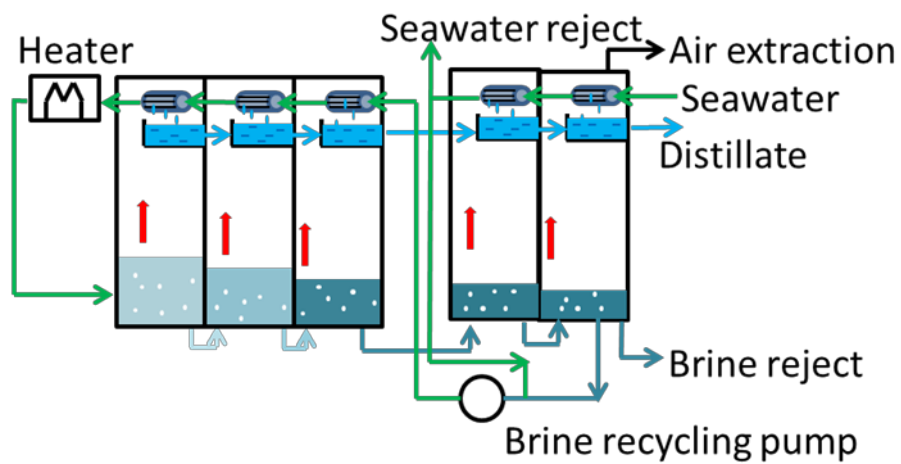


Fig. 1- 4 Schematic of flash desalination plant with brine recycling.

(2) 多重効用法 (MED)

多重効用法とは発生した蒸気を、より低圧で操作している次段の蒸発装置の加熱に使う方法である。各蒸発装置での凝縮水が製品である。 n 回繰り返したものを n 重効用と呼ぶ。理想的には n 重効用では 1 [kg] の蒸気で n [kg] の水を蒸発させることが可能である。しかし、潜熱は温度によって異なり、溶液の沸点上昇や熱損失もあるので、理想値よりも $10 - 20\%$ 低い値になる^[10]。Fig. 1-5 に多重効用法による海水淡水化装置の模式図を示す。海水は Effect 1 に供給され、熱交換器と接触し、海水の一部が蒸発する。発生した蒸気は Effect 2 の熱交換器に入り、凝縮水となる。Effect 1 で蒸発しなかった海水は Effect 2 に供給され、再び海水の一部が蒸発する。この操作を繰り返し海水から淡水を製造する。MSF と同様、回収率が大きいほど、前処理の負荷、製品量に対する装置サイズを小さくすることができる。しかしながら、回収率を極端に高くすると海水の濃縮に伴い伝熱管表面にスケールの析出が生じる。伝熱面へのスケール析出を抑制するために、MED の回収率の上限は 0.33 [-] 程度に限られている^[14]。

効用数は、多段フラッシュ法と同様、設備コストとエネルギーコストのバランスによって決まり、主に $4 - 10$ 効用のものが利用されている^[8]。

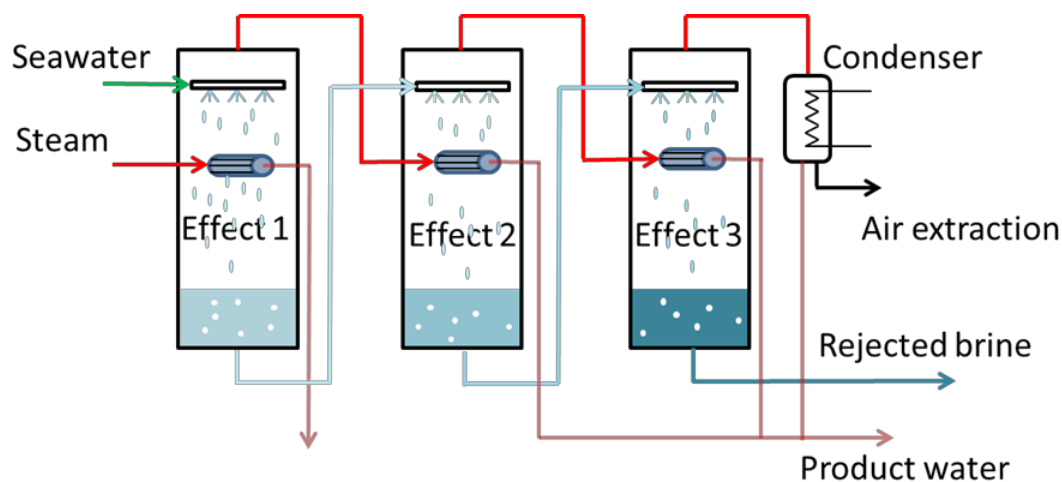


Fig. 1- 5 Schematic of multi-effect distillation.

(3) 逆浸透膜法

逆浸透膜法は 1953 年、フロリダ大学の Reid らによって提案された。半透膜を介して海水と淡水が接すると、膜の両側での化学ポテンシャルが等しくなるように、淡水側から海水側に溶媒である水が移動していく (Fig. 1-6) [15]。化学ポテンシャルは混合物質のひとつの成分の分量が変化するときの、その系におけるギブス自由エネルギーの変化量を表す。ギブスの自由エネルギー、化学ポテンシャルはそれぞれ次の式で定義されている。

$$G = H - TS \quad (2-6)$$

$$\mu_i = \left(\frac{\partial G}{\partial n_i} \right)_{T, p, n_j (i \neq j)} \quad (2-7)$$

ここで H 、 T 、 S はそれぞれエンタルピー、温度、エントロピーであり、 n_i は成分 i のモル数である。モル分率が x の理想溶液では、化学ポテンシャルは次のようにあらわされる。

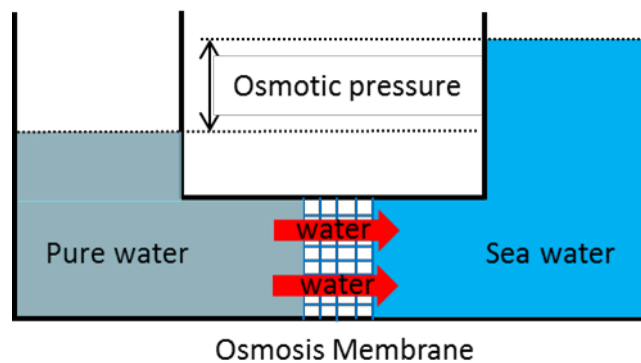


Fig. 1-6 Osmotic pressure.

$$\mu_i = \mu_i^* + R_0 T \ln x \quad (2-8)$$

ここで、 μ_i^* は純物質の化学ポテンシャル、 R_0 、 T はそれぞれ、一般気体定数、温度である。この式から、混合物は純物質よりも化学ポテンシャルが小さいことがわかる。溶媒と溶質を半透膜で隔てると、それぞれの化学ポテンシャルを等しくするために溶媒側

から溶質側へ溶媒が流入する。この溶媒の流入を止めるためには圧力が必要であり、その圧力を浸透圧 Π という。平衡状態では次の式、

$$\mu_i^*(p) = \mu_i(p + \Pi) \quad (2-9)$$

が成り立つ。通常の浸透現象では低濃度側から高濃度側へ溶媒が移動してしまうことから、海水と淡水を浸透膜で隔てると淡水側から海水側へ水が流入する。しかし、Fig. 1-7に示すように逆浸透膜法では、海水側に機械的に圧力をかけ、海水側の化学ポテンシャルを大きくすることで、海水側から淡水側へ溶媒を移動させ、淡水を製造する。

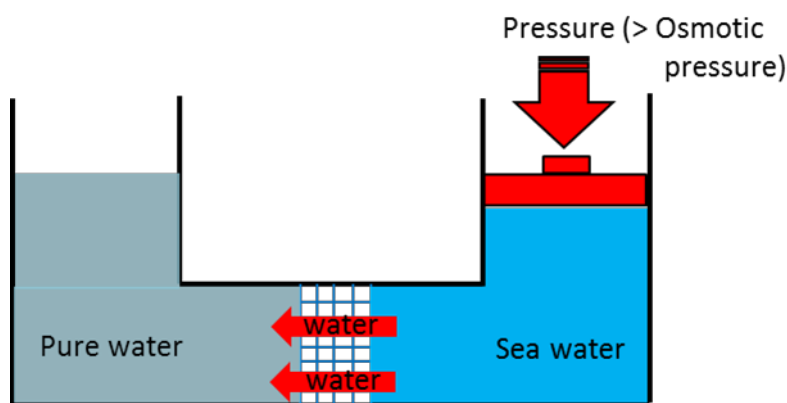


Fig. 1- 7 General schematic of a reverse osmosis.

逆浸透膜法の回収率はポンプで供給海水に印加する圧力と浸透圧の差で決まる。印加する圧力が大きいほど回収率が大きくなるが、同時に供給液側の塩分濃度が上昇し浸透圧も大きくなるので、回収率が大きくなるにつれて印加圧力の増加割合に対する回収率の増加割合は小さくなる。また、膜に物理的に印加可能な圧力は 7.0 [MPa] 程度である。したがって、ポンプで印加できる最大圧力と濃縮海水の浸透圧の関係から回収率の上限は 0.6 [-] 程度となる。実際は供給海水の水質や、前処理方法、濃縮海水の塩分濃度との兼ね合いから、0.35~0.60 [-] 程度の回収率で運用されている^[1 6]。

(4) 電気透析法

海水中の塩類は陽イオンと陰イオンに電離している。海水に電極を挿入し、電流を流すと電気泳動により、陽イオンは陰極側へ、陰イオンは陽極側へ移動する。この時、電極間に陽イオン交換膜、陰イオン交換膜を交互に配置することで、塩分濃度の濃い部分と薄い部分を作ることができ、海水から淡水を製造することができる^[8]。

1. 2. 5. 後処理工程

海水淡水化プラントで製造した淡水はミネラル保有量、アルカリ度、pH が低いのでこれらを調整する。同時に殺菌処理が行われる^[11]。

1. 2. 6. 各種海水淡水化プロセスの比較

前処理工程、後処理工程は海水の水質や要求される淡水の水質だけでなく、脱塩工程の方式に大きく依存する。つまり海水淡水化を行う上で脱塩工程の選択が非常に重要である。脱塩工程として上記に記した 4 種類、(1) 多段フラッシュ法、(2) 多重効用法、(3) 逆浸透膜法、(4) 電気透析法のそれぞれの特徴を以下 にまとめる。

(1) 多段フラッシュ法

- 2008 年において世界で 27% の設備容量を占めている^[9]
- エネルギー消費量が相対的に大きく $250 \sim 330 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ である^[9]
- 海水中の溶存物質の影響を受けにくいので、前処理の負荷が小さい
- 製品の塩分濃度が相対的に低い。多段フラッシュ法で製造した淡水の塩分濃度は TDS < 10ppm 程度であり製造した淡水は工業用水として利用することも可能である^[17]
- 濃縮海水 (排水) は温度、塩分濃度が高く、また前処理に利用した薬品が含まれているので、周辺海域に悪影響を与える
- 供給する海水のうち製品として取り出す割合 (回収率) は $0.1 \sim 0.2 [-]$ である

(2) 多重効用法

- 2008 年において世界で 9% の設備容量を占めている^[9]
- エネルギー消費量が相対的に大きく $145 \sim 390 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ である
- 海水中の溶存物質の影響を受けにくいので、前処理の負荷が小さい。しかしながら、海水は伝熱管表面で蒸発するので、多段フラッシュ法よりも高度なスケール対策が

求められる^[11]

- 製品の塩分濃度が相対的に低い。多重効用法で製造した淡水の塩分濃度は TDS < 10ppm 程度であり、製造した淡水を工業用水として利用することも可能である^[17]
- 排水の温度、塩分濃度が高く、また前処理に利用した薬品が含まれているので、周辺海域に悪影響を与える
- 供給する海水のうち製品として取り出す割合 (回収率) は 0.2~0.33 [-] である

(3) 逆浸透膜法

- 2008 年において世界で 59% の設備容量を占めている^[9]
- エネルギー消費量が相対的に小さく 9~25.2 [kJ kg-water⁻¹]である^[9]
- 海水中の溶存物質等の影響を受けやすく、前処理の負荷が蒸発法と比べて大きい⁸
- 製品の塩分濃度は TDS < 500ppm と相対的に高く、工業用水として利用するためにはさらなる処理が必要である^[17]
- 排水の塩分濃度が高く、また前処理に利用した薬品が含まれているので、周辺海域に悪影響を与える
- 供給する海水のうち製品として取り出す割合 (回収率) は 0.35~0.60 [-]である

(4) 電気透析法

- 2008 年において世界で 4%の設備容量を占めている (2008 年)^[9]
- 電気透析法のエネルギー消費量は供給海水から取り除く塩の量に比例して増加する^[8]
- 供給海水が TDS < 3000ppm の時、他のプロセスと比べて価格競争力を持つ^[8]
- 排水の塩分濃度が高く、また前処理に利用した薬品が含まれているので、周辺海域に悪影響を与える

上述したように、各海水淡水化プロセスは、長所と短所を有している。前処理、製造した淡水の塩分濃度の点では、蒸発法である多段フラッシュ法や多重効用法が優れている。しかしながら、エネルギー消費量の点では逆浸透膜法が優れている。さらにいずれのプロセスからも濃縮海水が発生し、周辺海域への影響が問題となっている。

1.3. 製塩技術

製塩プロセスでは上述した海水淡水化プロセスを利用して海水を濃縮したのち、Fig. 1-5 のように多重効用法を利用して省エネルギー化を図った晶析装置でスラリー状に

し、それを噴霧乾燥機などで蒸発させ塩を製造する^[11]。このプロセスでは、供給した海水はすべて処理されるので濃縮海水は発生しない。しかしながら、依然エネルギー消費量が大きい問題や、伝熱面にスケールが析出する問題がある。

1. 4. 研究目的

海水淡水化プロセスは今まで様々な研究が行われ、水不足の地域に淡水の供給を行ってきた。しかしながら、以下の課題が残されている。

- (1) 逆浸透膜法はエネルギー消費量が小さいので、最も広く利用されている。しかしながら、海水中の不純物の影響を受けやすいので、前処理の負荷が大きく、塩分濃度が高い地域などには不向きである。さらに、製品の塩分濃度が相対的に高く、製造した淡水を工業用水として利用するためにはさらなる処理が必要となる。
- (2) 蒸発法は海水中の物質の影響を受けにくいので、前処理の負荷が小さく、塩分濃度の高い地域でも利用することが可能である。また、製造した淡水の塩分濃度が低く、そのまま工業用水としても利用することが可能である。しかしながら、エネルギー消費量が多い。
- (3) すべての海水淡水化プロセスは供給した海水の一部を淡水として取り出し、残りは海に捨てている。濃縮海水は海水よりも塩分濃度や温度が高く、また様々な薬剤を有しているので、周辺の生態系に悪影響を与える可能性がある。製塩工業では、塩を製造するために多重効用法により省エネルギー化を図った晶析装置で濃縮海水の蒸発が行われている。しかしながら、依然、エネルギー消費量が多い問題や、伝熱面にスケールが析出するなどの問題がある。

本研究では、エネルギー消費量が小さく蒸発法のメリット（前処理の負荷が小さく製品を直接工業用水として利用することが可能）を持ち、かつ周辺海域への影響を考慮した革新的な海水淡水化プロセスを開発するために、海水淡水化プロセスをスケールの析出が起こらない濃度まで海水を蒸発させる濃縮プロセスと海水を塩と淡水に分離する乾燥プロセスに分割し、それぞれについて基礎的な研究を行う。さらにそれら二つのプロセスを組み合わせ、革新的な海水淡水化プロセスの開発を目標とする。Fig. 1- 8 に本論文の構成を示す。

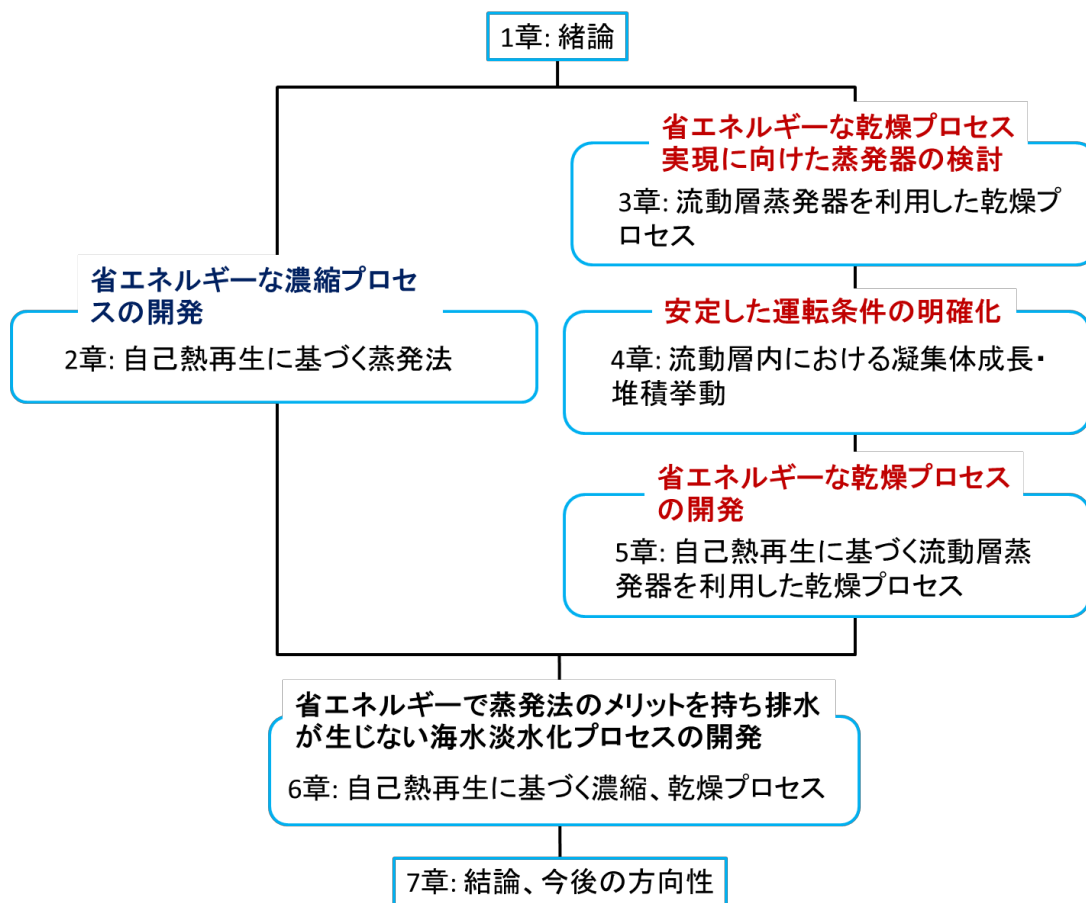


Fig. 1- 8 Structure of thesis dissertation.

2章では前処理負荷が小さく製品を直接工業用水として利用することが可能、かつ省エネルギーな濃縮プロセスを実現するために、自己熱再生に基づく蒸発法を提案する。本プロセスでは、発生した蒸気を圧縮機で熱交換に必要な温度差分断熱圧縮し、プロセス内で流体の持つすべての熱を循環させる。提案したプロセスと既存の蒸発法のエネルギー消費量を比較し、提案したプロセスの省エネルギー性について検討する。さらに運転条件がエネルギー消費量に与える影響について検討を行う。

3章では海水淡水化プロセスが与える周辺海域への影響を小さくするために、濃縮海水を処理する乾燥プロセスについて検討を行う。既存の乾燥プロセスでは多重効用法に基づく晶析装置が主に利用されている。しかしながら、エネルギー消費量が大きい問題や、伝熱面にスケールが析出するなどの問題がある。近年、省エネルギーでバイオマスや褐炭の乾燥を行うために、自己熱再生に基づく流動層を利用した乾燥プロセスが提案された。このプロセスでは、流体のすべての熱をプロセス内で循環させることで大幅な省エネルギー化を達成する。また、流動層を利用するので層から被加熱材料への良好な伝熱が期待される。さらに、流動層では加熱された流動粒子と被加熱材料が接触することで対象物が乾燥される。したがって、流動層蒸発器を海水淡水化に利用すると、海水の蒸発は加熱された流動粒子の表面で起こるので、伝熱管表面へのスケールの析出を抑制できることが考えられる。そこで本研究では省エネルギーで伝熱面へのスケール析出を抑制できる新たな乾燥プロセスを構築するために、蒸発器に流動層の利用を提案する。本章では、提案した流動層を海水の蒸発に利用することが可能であるか、また海水の蒸発が可能な場合そのスケール抑制効果を明らかにするために、流動層蒸発器を利用して実験的検討を行う。

4章では流動層蒸発器を利用した乾燥プロセスを安定的に運転することが可能な条件の明確化を行うために、流動層内に海水を供給した際の層内の流動挙動について検討を行う。流動挙動を説明する物理モデルを構築するとともに、海水蒸発実験をおこない、モデルの妥当性を評価する。

5章では省エネルギーな乾燥プロセスの開発を行うために、自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用したプロセスの提案を行う。プロセスシミュレーターを用いて、提案したプロセスのエネルギー消費量を試算するとともに、既存のプロセスと比較を行い、提案したプロセスの省エネルギー性について検討を行う。

6章では省エネルギーで蒸発法のメリットを持ち排水が生じない革新的な海水淡水化プロセスの開発を行うために、自己熱再生に基づく濃縮プロセスと自己熱再生に基づく乾燥プロセスを組み合わせたプロセスを構築する。プロセスシミュレーターを用いて

提案したプロセスと既存のプロセスのエネルギー消費量について検討する。

最後に本論文の結論と、今後の研究の方向性を7章にまとめる。

-
- [1] I. A. Shiklomanov, "Appraisal and assessment of world water resources," *Water international*, 25 (1) (2000) 11-32.
- [2] United Nations (2015) World population prospects, the 2015 Revision, United Nations, Department of Economic and Social Affairs, Population Division, <http://esa.un.org/unpd/wpp/DVD/> Accessed on September 28, 2015.
- [3] United Nations (2006) Human Development Report 2006, United Nations, Development Programme, <http://hdr.undp.org/sites/default/files/reports/267/hdr06-complete.pdf> Accessed on September 28, 2015.
- [4] A. Brown, M. D. Matlock, "A review of water scarcity indices and methodologies," *the sustainability consortium white paper*, (2011) 1-19.
- [5] World Health Organization (2008) Guidelines for drinking-water quality, Water Sanitation Health, http://www.who.int/water_sanitation_health/dwq/fulltext.pdf, Accessed on September 28, 2015.
- [6] 山脇道夫, 湊章男, 原道宏, 平井光芳, "原子力エネルギーの海水淡水化への応用 第2部 農業用水確保に向けて," *日本原子力学会誌*, 45(6) (2003) 350-358.
- [7] 田中賢次, 松井克憲, 堀孝義, 岩橋英夫, 竹内和久, 伊藤嘉晃, "世界初大型3段直列逆浸透(RO)法海水淡水化設備," *三菱重工技報*, 46(1) (2009) 13-15.
- [8] N. Voutchkov, C. Sommariva, T. Pankratz, J. Tonner (2010) Desalination Process Technology, in: Cotruvo J (ed) Desalination Technology. CRC press, Florida.
- [9] S. Lattemann, "Development of an environmental impact assessment and decision support system for seawater desalination plants," *Dissertation*, Delft University (2010).
- [10] 化学工学会編, 化学工学便覧改訂6版, (1999), 丸善.
- [11] 日本海水学会・ソルト・サイエンス研究財団編, 海水の科学と工業, (1994), 東海大学出版会.
- [12] 竹内 和久, "RO 海水淡水化の前処理とファウリング," *日本海水学会*, 63 (2009) 367-371.
- [13] 谷口雅英, "RO 膜を使った海水淡水化技術の現状と今後の展望," *日本海水学会*, 63 (2009) 214-220.

-
- [1 4] R. Greffrath, Effect of Scaling on Design and Operation of Thermal Seawater Desalination Plants, in: H. Glade, J. Ulrich (eds), *Scaling in Seawater Desalination: Is Molecular Modeling the Tool to Overcome the Problem?* (2001) Shaker Verlag.
- [1 5] P. W. Atkins (1998). *Physical Chemistry*. Oxford: Oxford University Press. (千原秀昭・中村亘男(訳) (2001). アトキンス物理化学(上), 東京化学同人)
- [1 6] L. F. Greenlee, D. F. Lawler, B. D. Freeman, B. Marrot, P. Moulin, “Reverse osmosis desalination: water sources, technology, and today’s challenges,” *Water research*, 43(9) (2009) 2317–48.
- [1 7] C. Fritzmann, J. Lowenberg, T. Wintgens, T. Melin, “State-of-the-art of reverse osmosis desalination,” *Desalination*, 216 (2007) 1-76.

2. 省エネルギーな濃縮プロセスの開発

2.1. はじめに

海水淡水化プロセスでは、地球温暖化の抑制や造水コスト低減のためにエネルギー消費量の削減が求められている。そのため、蒸発法（多段フラッシュ法や多重効用法）よりもエネルギー消費量が小さい逆浸透膜法が主に利用されている^[1]。しかしながら、逆浸透膜法では前処理の負荷が蒸発法よりも大きく、また製品の塩分濃度が高いので、製品を工業用水として利用するためにはさらなる処理が必要となる^[2]。

近年、堤らはエクセルギー再生に基づき、熱プロセスにおけるエネルギー消費量を大幅に削減することが可能な自己熱再生を提案した^[3]。Fig. 2-1、Fig. 2-2 に従来から利用されている自己熱回収に基づくプロセスと、自己熱再生に基づくプロセスの、プロセスフロー図と温度熱量線図をそれぞれ示す。自己熱回収に基づくプロセスでは、プロセス流体はまず熱交換器に入り、予熱される（1 → 2）。その後ヒーターに入り、ある最高温度まで加熱されたのち（2 → 3）、ある反応器に流入する（3 → 4）。反応器から出た流体は再び熱交換器に入り、熱量の一部を交換したのち（4 → 5）、冷却器を経てもとの基準温度に戻る（5 → 6）。熱交換を行うには温度差が必要である。しかしながら自己熱回収に基づくプロセスでは、熱交換の間に、熱交換に必要な温度差を取ることができなくなり、流体の持つ熱の一部 Q_{HX} しか回収できない。したがって、コンデンサーには流体の持つ大部分の熱 Q_{cw} が捨てられるので、それと同値の熱 Q_{FH} をヒーターで加える必要がありプロセス全体のエネルギー消費量が大きくなる。一方、自己熱再生に基づくプロセスでは、プロセス流体は熱交換器を通過したのち（1 → 2）、ある反応器に入る（2 → 3）。反応器から出た流体は圧縮機に入り断熱圧縮される（3 → 4）。この時、熱交換器に必要な温度差分、断熱圧縮される。そのため、熱交換器内では流体の持つすべての熱を循環することが可能となる。熱交換器から流出した流体は、バルブで減圧されたのち（5 → 6）、圧縮機で加えられた仕事と等量の熱を冷却器で捨てる（6 → 7）。温度熱量線図は、高温流体の顕熱、潜熱はそれぞれ低温流体の顕熱、潜熱と熱交換されており、すべての熱が循環していることを示している。流体の持つすべての熱を循環再利用することができるので、自己熱再生は熱プロセスのエネルギー消費量を大幅に削減することが可能となる。自己熱再生は蒸留プロセス^{[4]・[5]・[6]・[7]}、アミンを用いた二酸化炭素回収プロセス^{[8]・[9]}、深冷分離プロセス^[10]、バイオマス乾燥プロセス^{[11]・[12]・[13]・[14]}、褐炭乾燥プロセス^{[15]・[16]・[17]} に適用され、従来プロセスと比べて大幅な省エネルギー化が可能であることが報告されている。

さらに、東京大学と新日鉄住金エンジニアリングが、新エネルギー・産業技術総合開

発機構（NEDO）の委託事業「セルロース系エタノール革新的生産システム開発事業」で、自己熱再生を適用したバイオエタノール蒸留プロセス実証実験装置をつくり、従来の蒸留プロセスに比べ消費エネルギーを 85%削減できることを実験的に実証した^[18]。

本章では前処理負荷が小さく製品を直接工業用水として利用することが可能かつ省エネルギーな濃縮プロセスを実現するために、自己熱再生に基づく蒸発法の開発を行った。提案したプロセスのエネルギー消費量を、プロセスシミュレーターを用いて試算するとともに、蒸発法として最も利用されている多段フラッシュ法のエネルギー消費量と比較を行い、提案したプロセスの省エネルギー性能について検討した。また運転条件がエネルギー消費量に与える影響について検討を行った。さらに、逆浸透膜法と提案したプロセスの特徴を比較した。

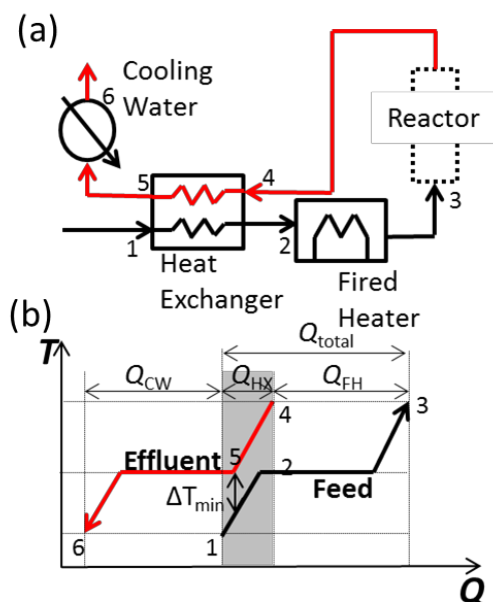


Fig. 2-1 Thermal process with a feed-effluent heat exchanger (for the vapor/liquid phase change stream): (a) flow diagram, (b) temperature heat diagram.

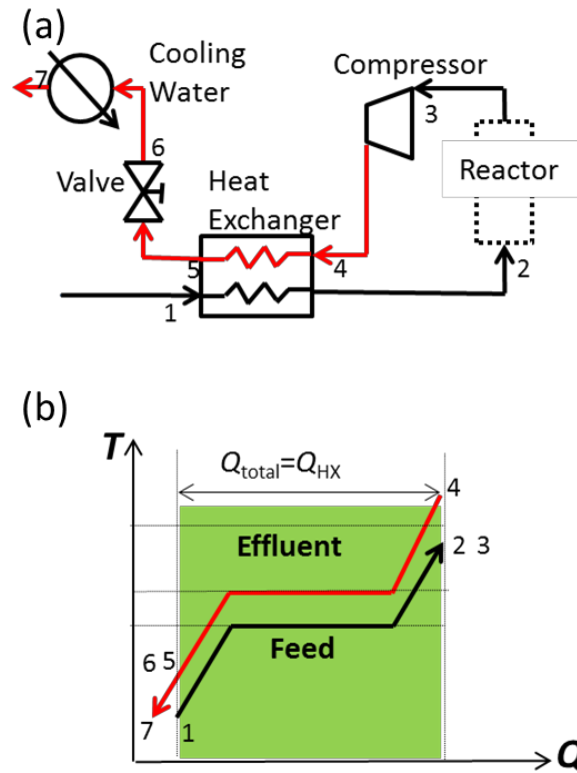


Fig. 2-2 Thermal process with a self-heat recuperation technology (for the vapor/liquid phase change stream): (a) flow diagram, (b) temperature-heat diagram.

2. 2. 自己熱再生に基づく蒸発法

Fig. 2-3 に自己熱再生を利用した蒸発法のプロセスフロー図を示す^[19]。熱交換器 (HX)、気液分離器 (S)、圧縮機 (CM)、バルブ (V)、コンデンサー (CL) で構成されている。供給された海水は二手に別れ (1 → 2, 2')、熱交換器 1, 2 でそれぞれ高温の顕熱を受け取り予熱される (2 → 3, 2' → 3')。熱交換器 3 で顕熱の一部と潜熱の熱交換を行い、供給海水の一部が蒸発する (4 → 5)。発生した蒸気は気液分離器を経た後 (5 → 6, 12)、圧縮機で熱交換に必要な温度差分断熱圧縮され (6 → 7)、熱交換器 3 で潜熱を熱交換し凝縮水となる (7 → 8)。凝縮水は顕熱を熱交換器 2 で熱交換し (8 → 9)、バルブで減圧された後、コンデンサーで冷やされもとの基準状態に戻る (9 → 10 → 11)。濃縮海水も熱交換器 1 で顕熱を交換したのち (12 → 13)、コンデンサーで冷却されもとの基準状態にもどる (13 → 14)。

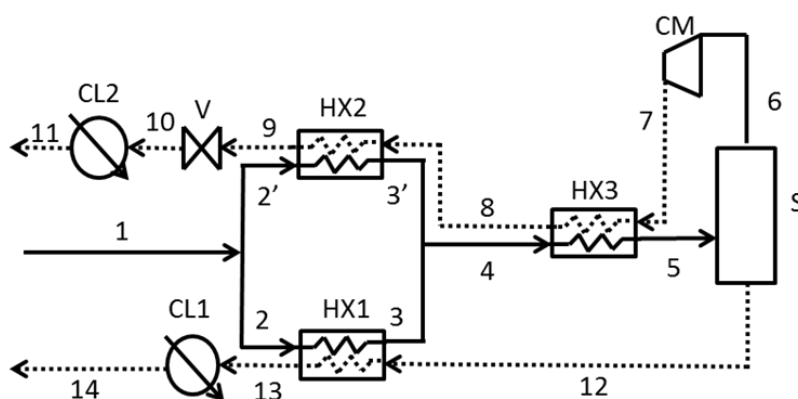


Fig. 2-3 Configuration of self-heat recuperative desalination process.

2.3. エネルギー消費量の計算

2.3.1. シミュレーション条件

自己熱再生に基づく蒸発法のエネルギー消費量をプロセスシミュレーターPro/II™ Ver. 9.0 (Invensys) を用いて計算した。プロセスへはモル基準で 99% が水 1% が塩化ナトリウムの流体を、流量 1000 [kg·mol hr⁻¹] で供給した。供給液の温度、圧力はそれぞれ 25 [°C]、101.3 [kPa] である。回収率（供給する海水のうち淡水として取り出す割合）は 0.3 [-] と仮定した。熱交換器は対向流式で最小接近温度差は 5 [K] で周囲への放熱はないものと仮定した。コンプレッサーの断熱効率は 100%、気体の状態方程式は Soave-Redlich-Kwong (SRK) で計算を行った。また、平衡は Non-Random Two-Liquid model (NRTL) で計算した。

さらに、比較のために蒸発法で最も利用されている多段フラッシュ法のエネルギー消費量を、プロセスシミュレーターを用いて試算した。供給流体の組成とその温度、圧力、周囲への放熱、平衡は上記と同様の条件で計算を行った。各ステージにある熱交換器では蒸気の凝縮潜熱を低温流体の顕熱として回収した。ステージの数は実機の値を参考にして 22 段、回収率は 0.1 [-] と仮定した。海水の最高温度は 90 [°C]、最終ステージから排出される濃縮海水の温度を 30 [°C]、各ステージでは沸点が 2.7 [°C] 下がると仮定してシミュレーションを行った。

2.3.2. シミュレーション結果、考察

2.3.2.1 自己熱再生に基づく蒸発法と多段フラッシュ法の比較

自己熱再生に基づく濃縮プロセスのシミュレーション結果を Fig. 2-4 に示す。エネルギー消費量は $70 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ となった。一方、多段フラッシュ法のシミュレーション結果を Fig. 2-5 に示す。エネルギー消費量は $325 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ となった。この値は、文献で報告されている値 $250\sim 330 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ とよく一致している^[1]。

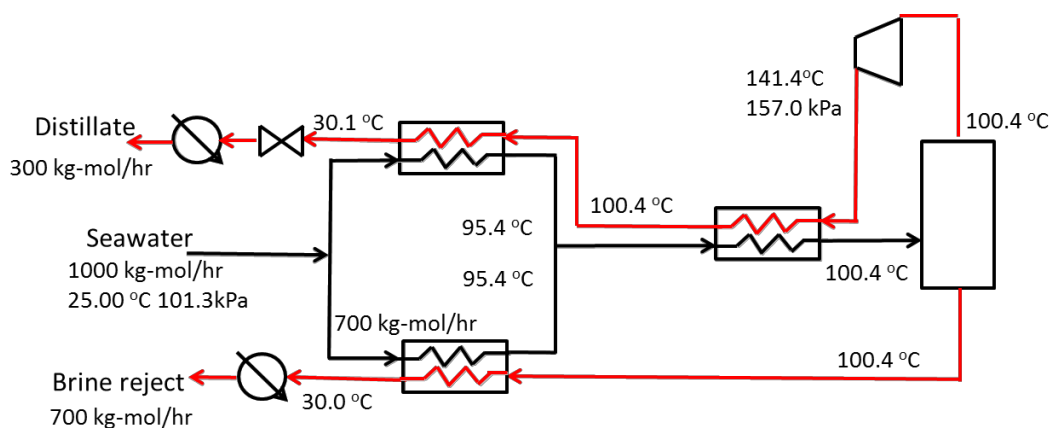


Fig. 2-4 Process image of thermal desalination based on self-heat recuperation.

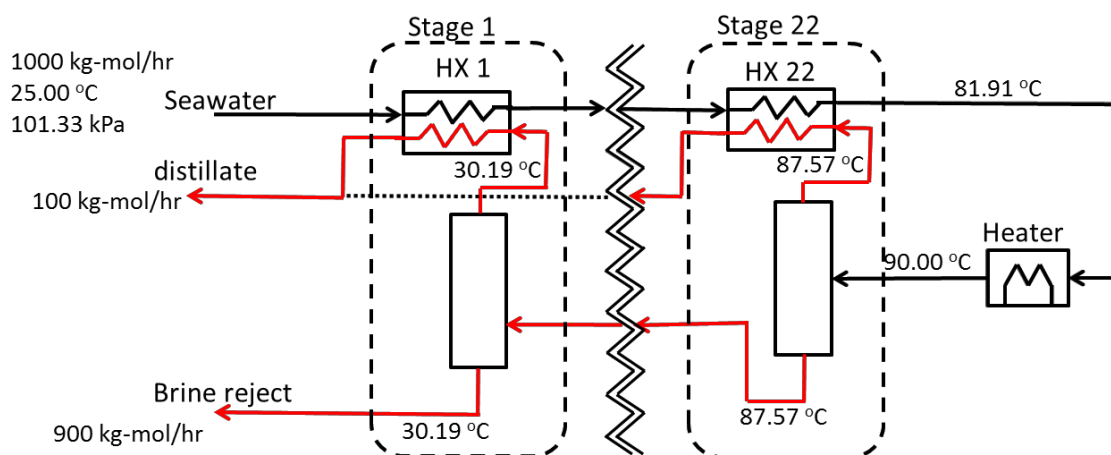


Fig. 2-5 Process image of multi-stage flash.

単位製品あたりのエネルギー消費量は自己熱再生に基づく蒸発法の方が、多段フラッシュ法より 75% 程度小さい。この理由を、温度熱量線図を用いて考察した。Fig. 2-6 に多段フラッシュ法の温度熱量線図を示す。各ステージの熱交換器で高温流体の凝縮潜熱を低温流体の顕熱と熱交換している。しかしながら、高温流体（凝縮水）の顕熱は回収されていない。したがって、系外に捨てられている熱量に等しい熱を外部ヒーターで加える必要があるので、多段フラッシュ法の単位製品あたりのエネルギー消費量は相対的に大きい。

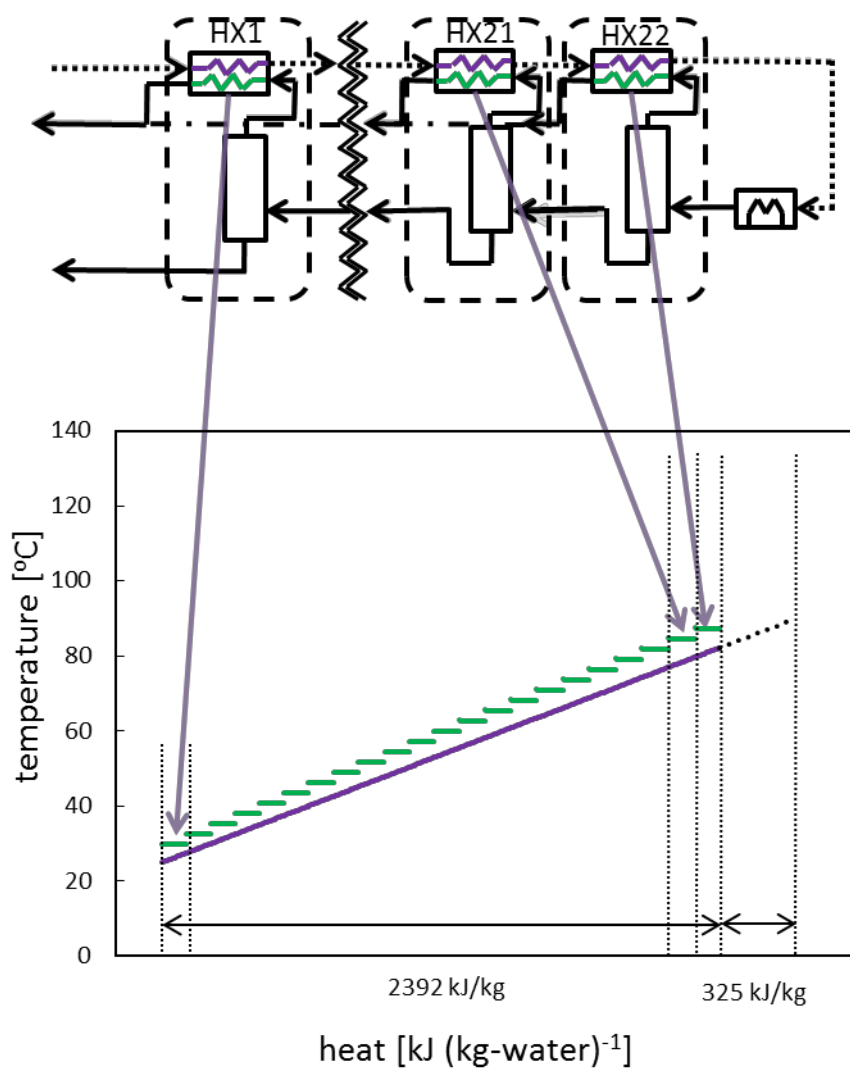


Fig. 2-6 Temperature and heat diagram of multi-stage flash.

Fig. 2-7 に自己熱再生に基づく蒸発法の温度熱量線図を示す。熱交換器 1、2 においての高温流体の与熱線と低温流体の受熱線は平行である。これは、海水と凝縮水の定圧比熱がほぼ等しいので、熱交換器 1、2 それぞれの流量を適切に分配することで、ある温度差を維持したまま高温流体の持つ熱を全て低温流体に伝えることができるためである。また、潜熱交換時にピンチポイントが生じなければ、熱交換器 1、2 における熱交換温度差は、最小接近温度差にほぼ一致する。熱交換器 3 では、蒸気の顕熱、凝縮潜熱、また凝縮水の顕熱の一部が、低温流体を沸点まで予熱するための顕熱と蒸発潜熱として利用されている。つまり、流体の熱はプロセス内ですべて循環しており、外部から加える仕事は高温流体の熱を低温流体へ熱交換するのに必要な温度差をつけるためだけに利用される。したがって、提案するプロセスの単位製品あたりのエネルギー消費量は多段フラッシュ法と比べて大幅に小さくなる。

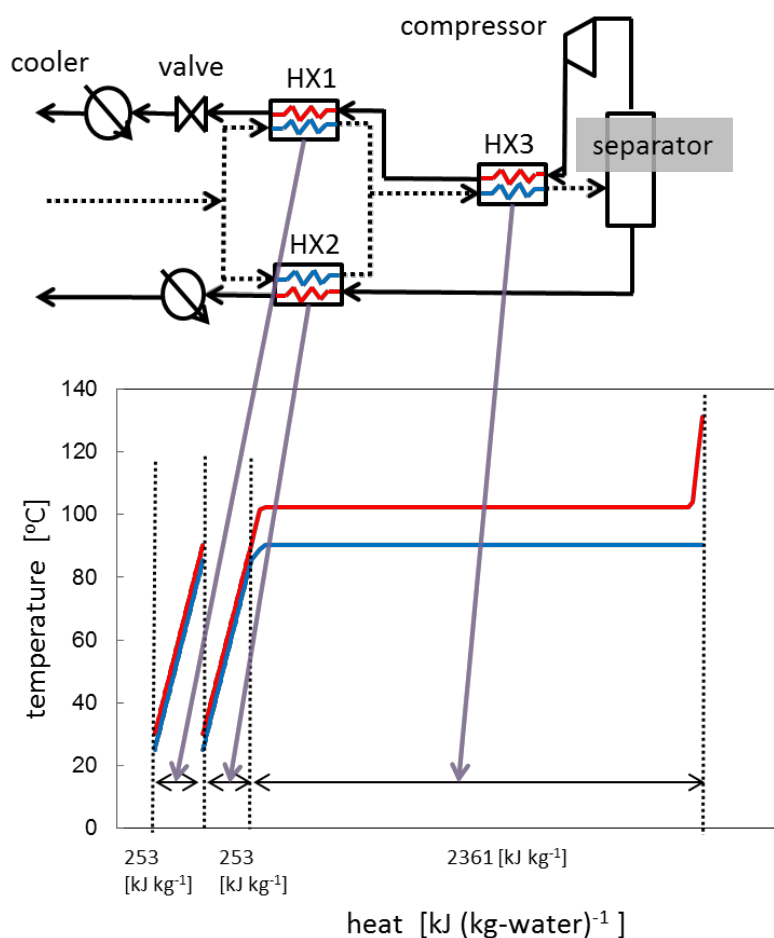


Fig. 2-7 Temperature and heat diagram of thermal process based on self-heat recuperation.

次に、自己熱再生に基づく蒸発法と多段フラッシュ法において、熱交換温度差がエネルギー消費量に与える影響をプロセスシミュレーターを用いて検討した。自己熱再生に基づく蒸発法では、最小接近温度差が変化すると、熱交換温度差も変化する。一方、多段フラッシュ法ではステージの数が増えると、熱交換温度差が変化する。Fig. 2-8に、自己熱再生に基づく蒸発法において、最小接近温度差を変化させた際のエネルギー消費量の変化を示す。熱交換温度差のみを変化させ、他は2.3.1のシミュレーション条件と同じである。この図からわかるようにエネルギー消費量は熱交換温度差に比例して変化する。

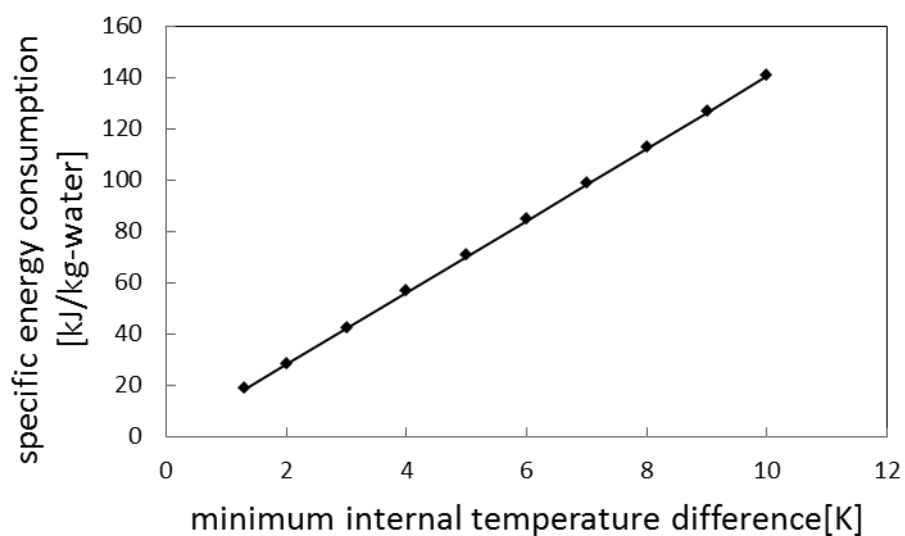


Fig. 2-8 Variation in specific energy consumption versus minimum internal temperature difference.

Fig. 2-9 に最小接近温度差 (MITD) が 5 [K]、10 [K] の時の温度熱量線図を示す。それぞれの熱交換器 1、2 では常に熱交換温度差が、それぞれの最小接近温度差とほぼ一致している (同時に熱交換時 1、2 の対数平均温度差も最小接近温度差にほぼ一致している)。

比熱 C_p [$\text{kJ kg}^{-1} \text{K}^{-1}$] の流体の温度を ΔT [K] 上昇させたときの流体のエンタルピー変化量 ΔH [kJ kg^{-1}] は次式で表される。

$$\Delta H = C_p \Delta T \quad (2-1)$$

また、圧縮機を流れる流体に働く仕事 W_c [kJ kg^{-1}] は、エネルギー保存則から、圧縮機から流出する流体のエンタルピー H_{out} [kJ kg^{-1}] と圧縮機に流入する流体のエンタルピー H_{in} [kJ kg^{-1}] を用いて次式

$$W_c = H_{\text{out}} - H_{\text{in}} \quad (2-2)$$

で表される。自己熱再生に基づく蒸発法において、最小接近温度差が変化しても、 H_{in} 、 C_p 、また高温流体が凝縮するときのエンタルピー変化量はほとんど変わらない。したがって、最小接近温度差が大きくなると、顕熱交換器 (Fig. 2-7 の HX1 と HX2) で高温流体の持つエンタルピーは (2-1) に従いその温度差 ΔT に比例して大きくなり、それに伴い、(2-2) の H_{out} 、そして W_c が大きくなる。以上より、自己熱再生に基づく蒸発法では、単位製品あたりのエネルギー消費量は Fig. 2-8 に示すように、 ΔT に比例して変化する。

次に、多段フラッシュ法で、熱交換温度差がエネルギー消費量に与える影響について考察した。多段フラッシュ法ではステージの数を変更すると熱交換温度差が変化する。Table 2-1 にステージの数が 22 段 (case 1)、40 段 (case 2) の場合の、対数平均温度差 (LMTD) [K] とエネルギー消費量 [$\text{kJ (kg-water)}^{-1}$] の関係を示す。この表から単位製品あたりのエネルギー消費量は熱交換温度差が変化しても大きく変化していないことがわかる。また、Case 2 の温度熱量線図を Fig. 2-10 に示す。多段フラッシュ法では、1 章で説明した通り、高温流体の凝縮潜熱を低温流体の顕熱として回収する。Fig. 2-6、Fig. 2-10 から、プロセス内の熱交換器で高温流体の凝縮潜熱に相当する熱量はすべて回収されていることがわかる。つまり、多段フラッシュ法では、熱回収できる上限が凝

縮潜熱相当と決まっているので、熱交換温度差はエネルギー消費量に大きな影響を与えない。ステージの数が増えることによってエネルギー消費量に多少の差が出たのは、ステージの数を多段にした方が冷却水に捨てられる凝縮水の顕熱量が微増したためである。このため低温流体の温度上昇は緩やかとなりプロセス全体での熱交換温度差は大きくなった。熱交換温度差の違いは各熱交換器での伝熱面積に影響を与える。熱交換量は次式で表される。

$$Q = KA\Delta T \quad (2-3)$$

ここで、 Q 、 K 、 A 、 ΔT はそれぞれ熱交換量 [kW]、熱通過率 [$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$]、熱交換面積 [m^2]、熱交換温度差 [K] である。通常、各熱交換器での伝熱量 Q と熱通過率 K は一定である。したがって、ステージの数が多いほど ΔT が大きくなりステージ内の伝熱面積 A を小さくすることが可能となる。

一方、ステージの数が極端に少ない場合、熱交換器で回収できる凝縮潜熱量が少なくなるので、エネルギー消費量は大幅に増加する。供給海水の最高温度、排水の温度が定まると、蒸発量（製品量）は決まる。ステージの数を1段と仮定すると、このプロセスの蒸気温度は排水の温度と等しくなり、供給海水の温度と非常に近い値になる。そのため、蒸気の凝縮潜熱を供給流体の顕熱としてすべて回収することができないので、蒸気は外部の冷却器で凝縮させる必要があり、その分余計にエネルギーを加える必要が生じる。

以上より、多段フラッシュ法では、省エネルギー化に向けて、蒸気の凝縮潜熱をすべて回収できるだけステージ数を設けることは重要であるが、熱交換温度差自体はエネルギー消費量に大きな影響を与えないことを明らかにした。

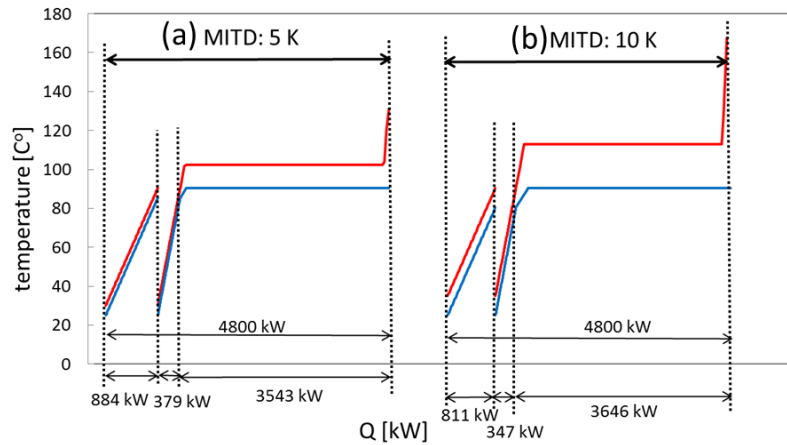


Fig. 2-9 Temperature heat diagram of thermal process based on self-heat recuperation: (a) MITD = 5 [K] (b) MITD = 10 [K].

Table 2-1 Influence of stage number on LMTD and SEC.

Case	1	2
Stage	22	40
LMTD [K]	5.3	6.2
SEC [kJ (kg-water) ⁻¹]	325	340

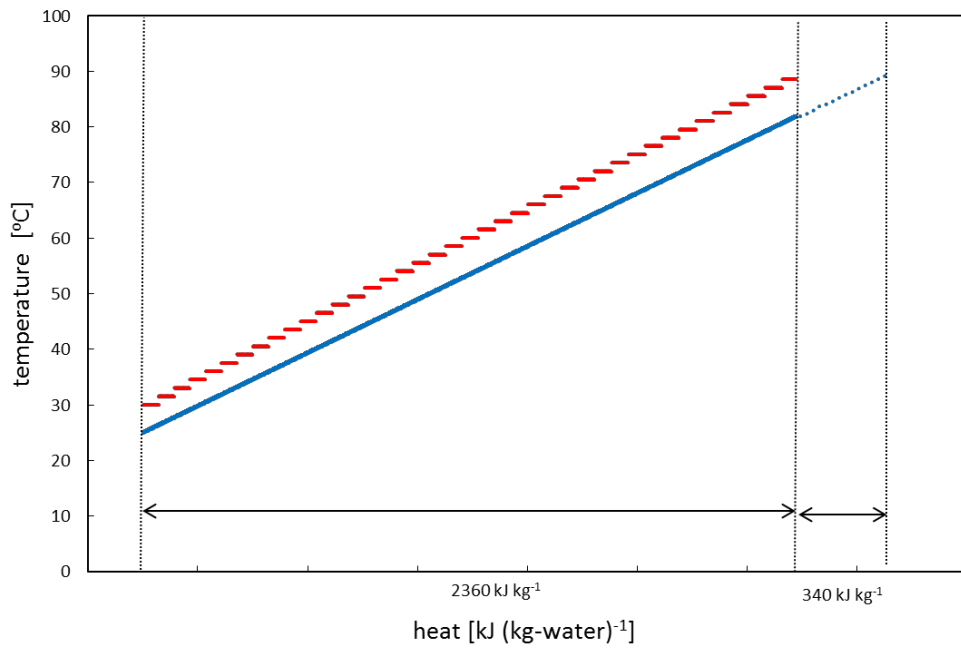


Fig. 2-10 Temperature heat diagram of multi-stage flash (stage number 40).

次に、自己熱再生に基づく蒸発法と多段フラッシュ法において、回収率が単位製品あたりのエネルギー消費量へ与える影響について検討した^[20]。自己熱再生に基づく蒸発法では、Fig. 2-7 に示すようにプロセス内ですべての熱が循環する。したがって、潜熱交換量を変えることで回収率を変化させることができる。シミュレーションではスケール（難溶性塩類）の析出は考慮せず、海水の沸点は Fig. 2-11 の実線のように変化するように、供給海水の成分を変化させた。Fig. 2-11 の青色のプロットは、回収率に対する海水の沸点上昇の文献値（実験値）である^[21]。回収率が 0.8 より低いとき、シミュレーションの値は、実験値より少し大きいですが、おおむね似た挙動をとることが確認できた。他の条件は 2. 3. 1 と同じ仮定を利用して計算した。

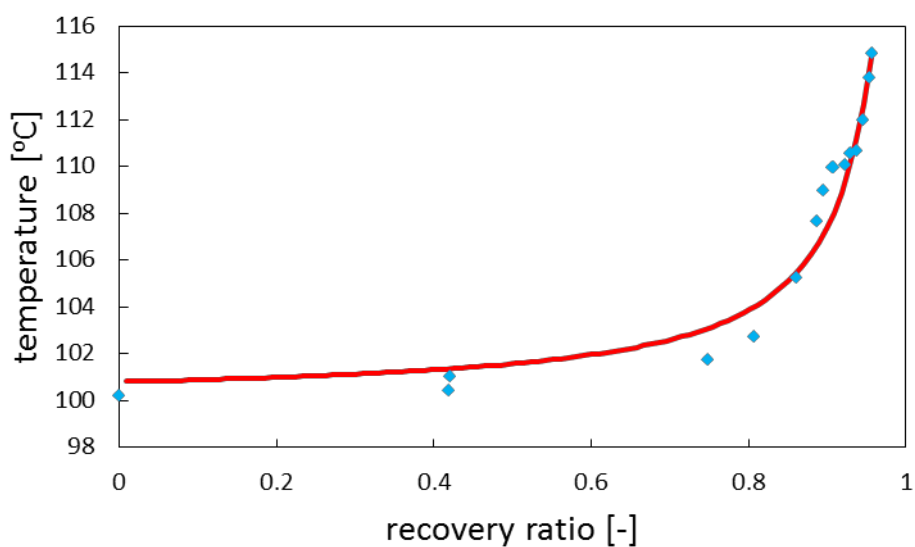


Fig. 2-11 Relationship between the boiling point and the recovery ratio.

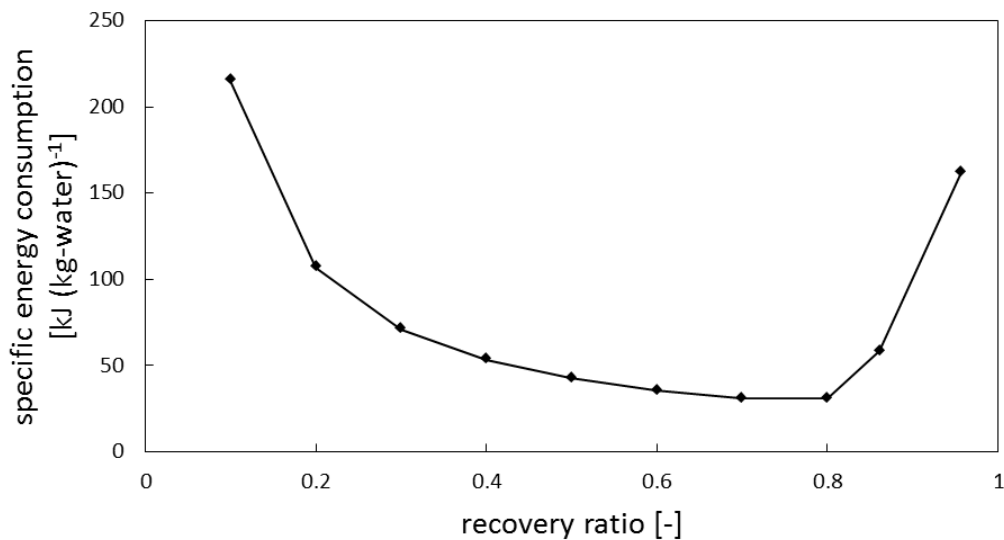


Fig. 2-12 Variation in specific energy consumption vs. recovery ratio.

Fig. 2-12 に回収率に対する単位製品あたりのエネルギー消費量の変化を示す。単位製品あたりのエネルギー消費量は、回収率が 0.8 [-] 程度までは回収率が高くなるほど減少し、それ以上では回収率が高くなるほど増加した。このように変化する原因を考察した。

Fig. 2-7 に示す熱交換器 1、2 から流出する高温流体の温度は、供給海水の温度より熱交換温度差 ΔT だけ高い。したがって、もとの基準状態まで冷却するとき冷却水に捨てられる熱量 $Q_{\text{discarded}}$ [kW] は次の式で表される (Fig. 2-13)。

$$Q_{\text{discarded}} = m_p C_p \Delta T + m_b C_p \Delta T \quad (2-4)$$

m_p 、 m_b 、 C_p はそれぞれ、製品流量 [kg s⁻¹]、濃縮海水流量 [kg s⁻¹]、定圧比熱 [kJ kg⁻¹ K⁻¹] である。ここで製品 (淡水) と濃縮海水の定圧比熱、熱交換器 1、2 での熱交換温度差 ΔT は等しいと仮定した。

(2-4) は次式

$$Q_{\text{discarded}} = (m_p + m_b) C_p \Delta T \quad (2-5)$$

に書き換えることができる。また質量保存則から

$$m_f = m_p + m_b \quad (2-6)$$

が成り立つ。 m_f は原料流量である。したがって、(2-5)、(2-6) から次式

$$Q_{\text{discarded}} = m_f C_p \Delta T \quad (2-7)$$

が成り立つ。プロセスに加えるエネルギー Q [kW] はエネルギー保存則から、 $Q_{\text{discarded}}$ と等しい。したがって、(2-7) から、自己熱再生に基づく蒸発法は回収率に関わらず単位製品あたりのエネルギー消費量がほぼ一定となることがわかる。また、単位製品あたりのエネルギー消費量は回収率 R

$$R = \frac{m_p}{m_f} \quad (2-8)$$

を用いて次式、

$$\frac{Q_{\text{discarded}}}{m_p} = \frac{m_f C_p \Delta T}{m_p} = \frac{C_p \Delta T}{R} \quad (2-9)$$

で表せられる。したがって、定圧比熱 C_p 、熱交換温度差 ΔT を一定と仮定すると、単位製品あたりのエネルギー消費量は回収率に反比例して減少する。

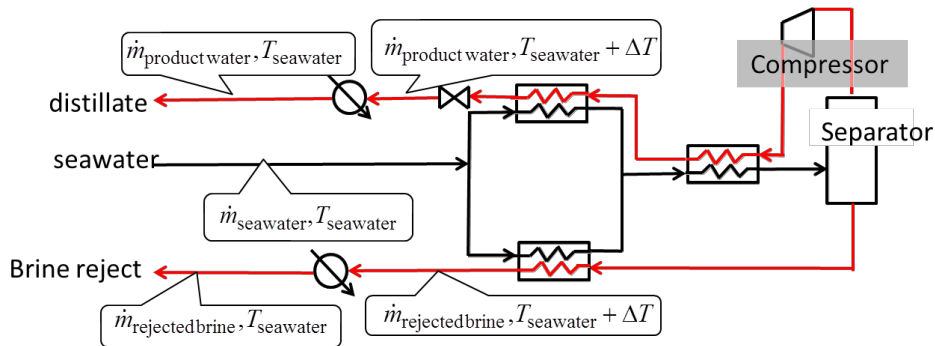


Fig. 2-13 Stream flow rate and temperature in thermal process based on self-heat recuperation.

Fig. 2-14 に回収率 R が 0.1 [-]、0.6 [-] の時の温度熱量線図を示す。回収率が 0.6 [-] の時、潜熱交換量は回収率が 0.1 [-] の時の約 6 倍であることが確認できる。また、自己熱再生に基づく蒸発法では、圧縮機動力は回収率に関わらず一定である。そのため、回収率が低い方が、圧縮機を通過する流量が少ないので、顕熱熱交換器内での凝縮温度は高くなる。

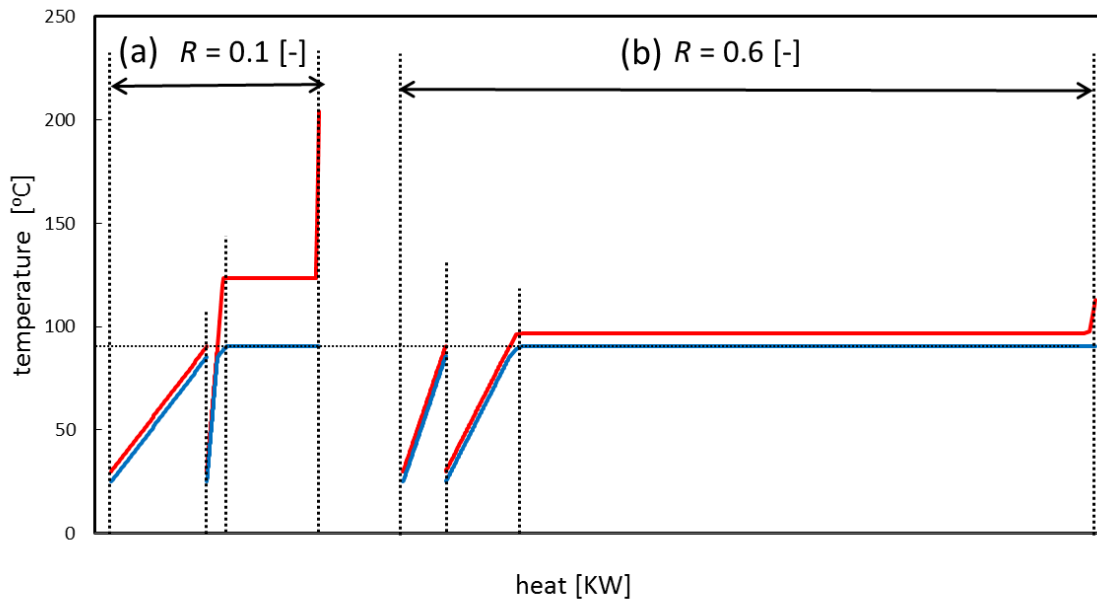


Fig. 2-14 Temperature heat diagram: (a) RR = 0.1 [-], (b) RR = 0.6 [-].

次に回収率が 0.8 [-] より高いとき、単位製品あたりのエネルギー消費量が増加した原因について検討を行う。Fig. 2-11 に示すように、回収率を高くしていくと海水の濃縮に伴い沸点が上昇する。そのため回収率を高くしていくと、ある値で、潜熱交換器内 (Fig. 2-7 の HX 3) でピンチポイントが発生する。それよりもさらに回収率を高くするためには、熱交換に必要な温度差を維持するため圧縮機で余計に昇圧する必要が生じる。したがって、海水の沸点上昇のために、自己熱再生に基づく蒸発法では単位製品あたりのエネルギー消費量は回収率に対して Fig. 2-12 のように変化する。Fig. 2-15 は回収率が 0.86 [-] の時の温度熱量線図である。沸点上昇により低温流体の温度が上昇し、潜熱交換を行う熱交換器内でピンチポイントが発生していることが確認できる。

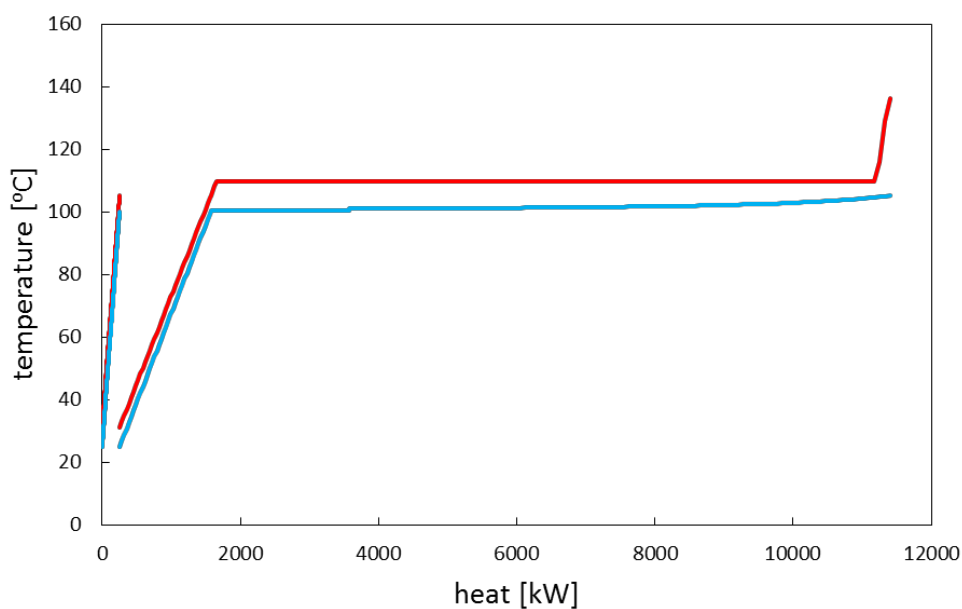


Fig. 2-15 Temperature heat diagram at RR = 0.86 [-].

さらに、Fig. 2-16 に回収率と圧縮機動力の関係を示す。この図からも、前述したように、沸点上昇がほとんど生じない回収率 0.8 [-] までは圧縮機動力が一定であり、回収率がそれ以上では回収率が高くなるに伴い圧縮機動力が増加していることが確認できる。

次に、回収率とエネルギー消費量の関係に最小接近温度差が与える影響について検討を行った。Fig. 2-17 に最小接近温度差 (MITD) が (a) 5 [K] (青色のドット) と、(b) 20 [K] (赤色のドット) の場合の回収率とエネルギー消費量の関係を示す。回収率、最小接近温度差以外の条件は 2. 3. 1 と同様の仮定で計算した。沸点上昇がほとんど生じない回収率 0.8 [-] 以下の条件では、単位製品あたりのエネルギー消費量は最小接近温度差が 5 [K] の結果よりも 20 [K] の場合の方が 4 倍程度大きい。これは、前述したように、エネルギー消費量は熱交換温度差に比例して変化するためである。回収率が 0.8 [-] 以上では、熱交換温度差が 20 [K] の場合の方が、単位製品あたりのエネルギー消費量の増加割合は小さい。これは、Fig. 2-18 に示すように最小接近温度差が大きい方が、もともと潜熱交換の際の熱交換温度差が大きく、沸点上昇に伴い増加する圧縮機動力が小さいためである。Fig. 2-18 は各回収率での圧縮機動力を回収率が 0.1 [-] の時の圧縮機動力で割った、無次元エネルギー消費量と回収率の関係を示す。青色、赤色のプロットは最小接近温度差が 5 [K]、20 [K] の時の結果である。

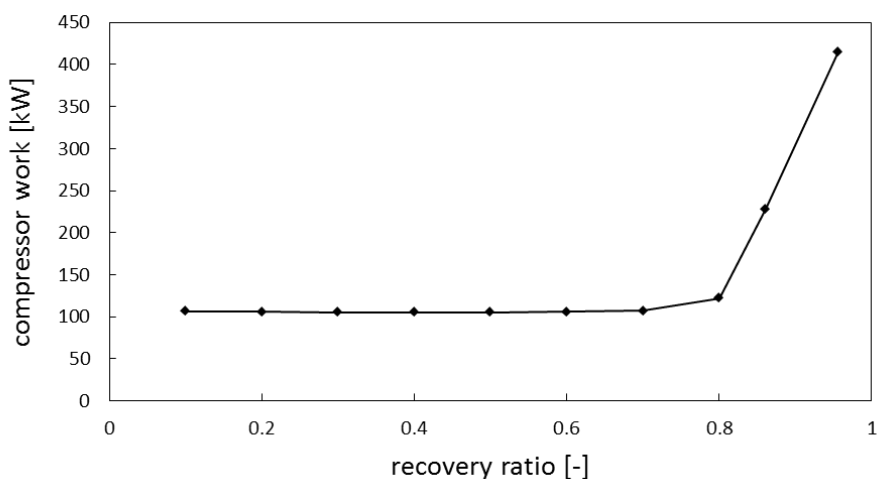


Fig. 2-16 Variation in compressor work vs. recovery ratio.

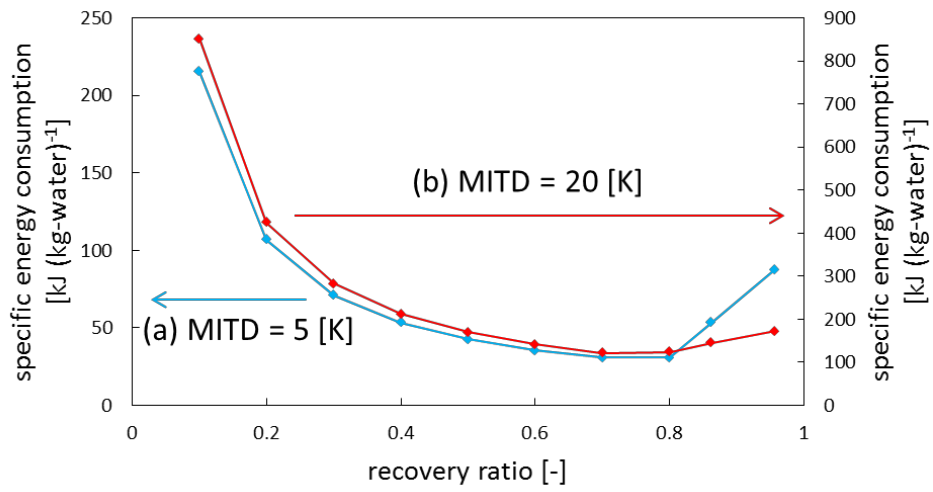


Fig. 2-17 Variation in specific energy consumption vs. recovery ratio: (a) MITD = 5 [K], (b) MITD = 20 [K].

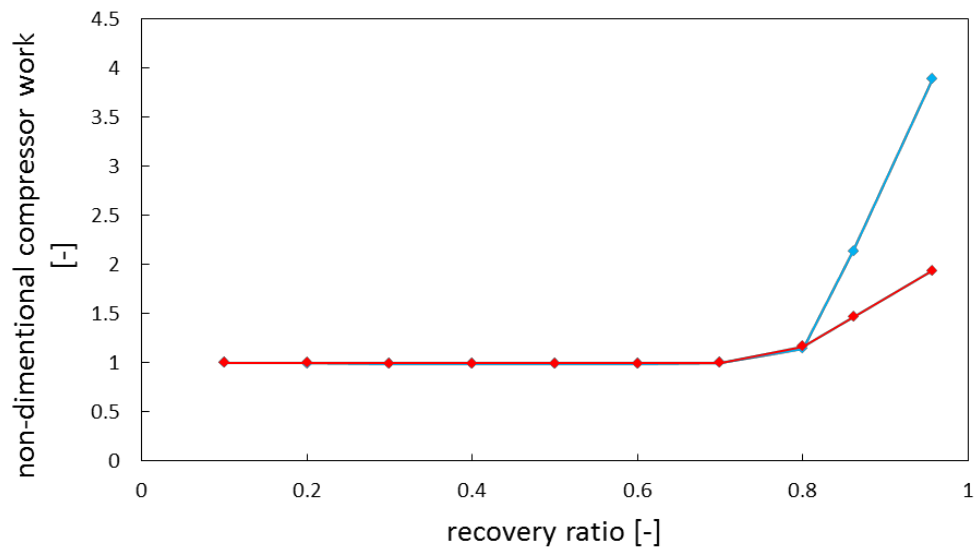


Fig. 2-18 Relationship between non-dimensional compressor work and recovery ratio.

次に、多段フラッシュ法における、回収率とエネルギー消費量の関係について検討を行った。

多段フラッシュ法では、海水を予熱し、その顕熱を利用して海水を蒸発させる。そこで、回収率 $R[-]$ は次式で計算できる。

$$R = \sum \frac{C_{p,i}(T_i - T_{i+1})}{L_i} \quad (2-10)$$

ここで、下付き文字 i はステージの番号を表しており、 $C_{p,i}$ と L_i は i 番目のステージにおける流体の定圧比熱 [$\text{kJ kg}^{-1} \text{K}^{-1}$] と蒸発潜熱 [kJ kg^{-1}] である。 T_i は i 番目のステージに入る海水の温度 [K]、 T_{i+1} は i 番目のステージを出る海水の温度 [K] である。各ステージにおける定圧比熱と潜熱がほぼ一定と考えると、回収率は、海水の最高温度と海水の排水温度の差に比例して変化する。そこで、プロセスシミュレーターで海水の最高温度と回収率の関係を計算した。海水の最高温度は水の臨界温度 (約 $374 [^{\circ}\text{C}]$) 付近の $370 [^{\circ}\text{C}]$ まで変化させた。また海水を加圧するためのポンプ動力は考慮せず、ほかの条件は 2.3.1 と同様の仮定でシミュレーションを行った。シミュレーションの結果、Fig. 2-19 に示すように回収率は海水の最高温度に比例して変化した。

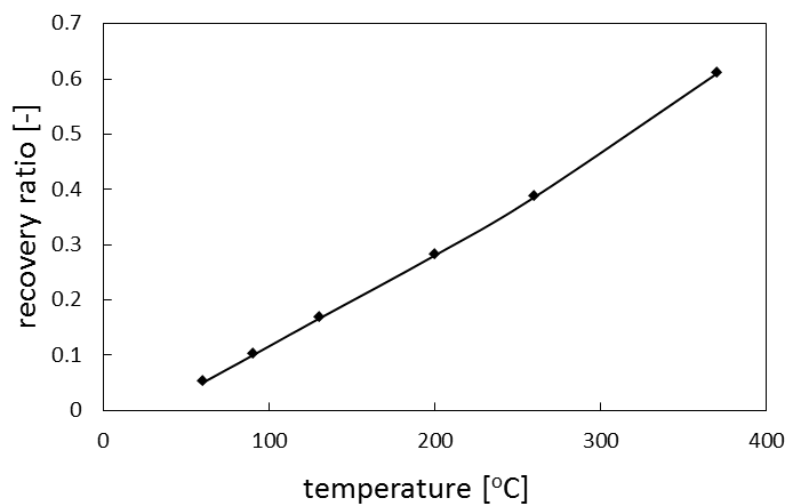


Fig. 2-19 Variation in recovery ratio vs. temperature.

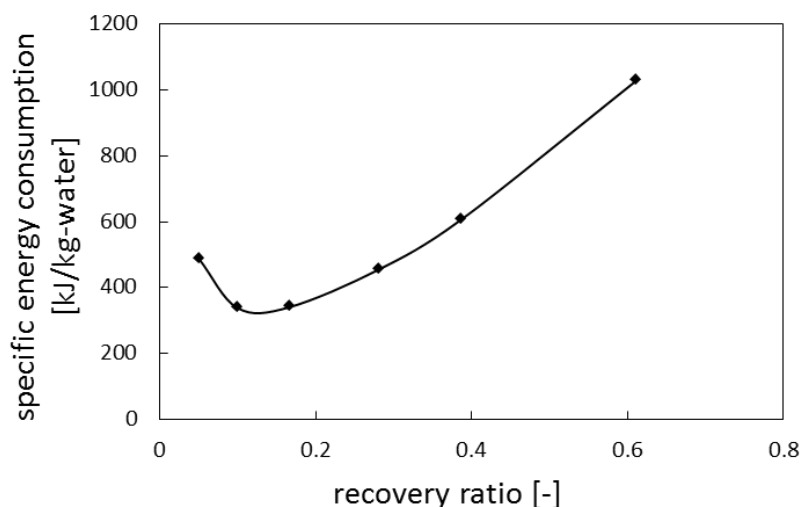


Fig. 2-20 Variation in specific energy consumption vs. recovery ratio.

Fig. 2-20 に回収率とエネルギー消費量の関係を示す。回収率が 0.16 [-] までは回収率が大きくなるほど、単位製品あたりのエネルギー消費量は減少し、回収率が 0.16 [-] 以上では回収率が大きくなるに連れ、単位製品あたりのエネルギー消費量も増加した。これは、回収率を変化させた際、加えるエネルギー量と製品の量の増加割合が異なるためである。Fig. 2-21 に回収率に対する外部ヒーターで加える熱量（青線）と製品流量（赤線）の変化を示す。回収率に対して、製品流量は比例して増加する。一方、外部ヒーターで加える熱量は回収率が高いほど増加割合が大きくなる。多段フラッシュ法で回収率を大きくするためには海水の最高温度を高くする必要があるが、熱交換器で回収される熱量は蒸気の潜熱だけで顕熱は回収されていない。そのため、回収率を大きくするほど、回収できない顕熱量が増加するので、外部から加えるエネルギーは増加する。したがって、製品流量と加えるエネルギーの関係から単位製品あたりのエネルギー消費量は Fig. 2-20 のように変化する。

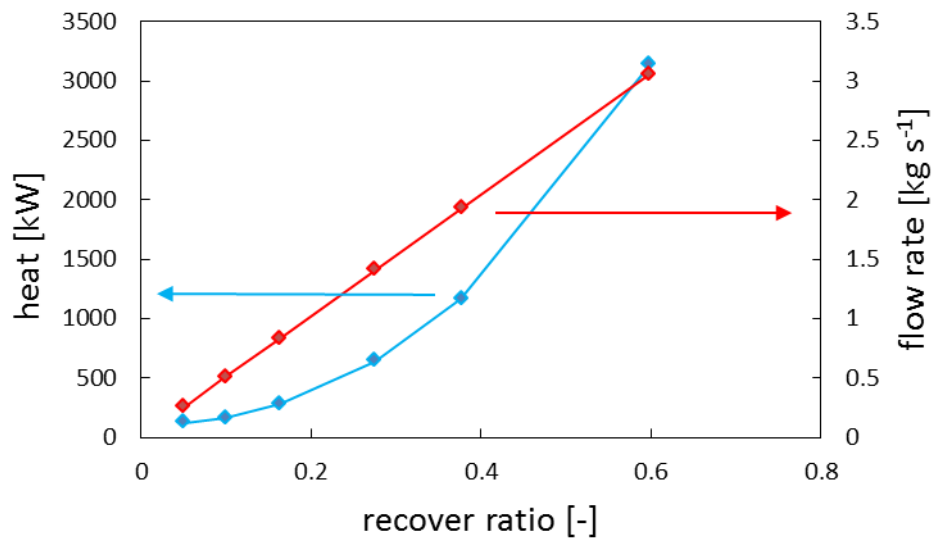


Fig. 2-21 Heat and flow rate vs. recovery ratio.

また、断熱効率が自己熱再生に基づく蒸発法のエネルギー消費量に与える影響について検討を行った。圧縮機の断熱効率は次の式で定義される。

$$\eta_c = \frac{H_{2s} - H_1}{H_2 - H_1} \quad (2-11)$$

ここで、 H は流体のエンタルピーを表し、各添え字は Fig. 2-22 のエンタルピーエントロピー線図の各位置を表している。

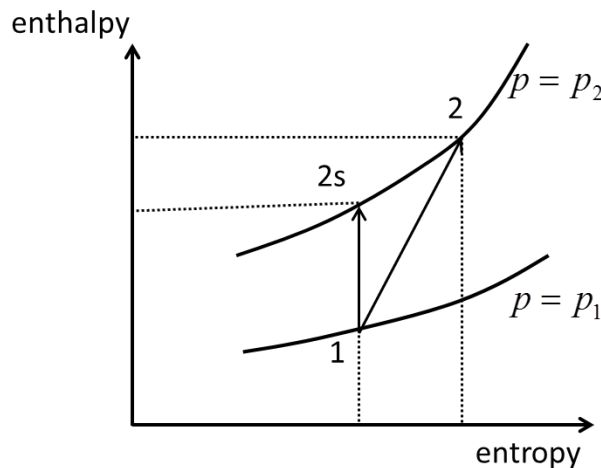


Fig. 2-22 Enthalpy-entropy diagram of a compressor.

圧縮機に流入する流体は圧力 p_1 から p_2 に昇圧される。断熱効率が 100% の時、エントロピーは生成しないため、エンタルピーは添え字 1 から添え字 2s まで変化する。しかしながら、実際はエントロピー生成が生じるので添え字 1 から添え字 2 まで変化する。これは加えた仕事の一部が熱になり、断熱効率が 100% の場合より余分にエネルギーが必要となることを意味している。

2. 3. 1 の条件で、断熱効率のみを変化させてシミュレーションを行った。Fig. 2-23 に断熱効率と単位製品あたりのエネルギー消費量の関係を示す。断熱効率が 40% 以上のとき、断熱効率はエネルギー消費量にほとんど影響を与えず、それ以下では断熱効率が低下するに従い単位製品あたりのエネルギー消費量が増加した。この原因について考察を行った。

Fig. 2-24 に断熱効率が (a) 100%、(b) 60%、(c) 20% の時の自己熱再生に基づく蒸

発法の温度熱量線図を示す。断熱効率が 100%、60% の温度熱量線図を比べると、ピンチポイントは顕熱交換を行う熱交換器 (HX1 と HX2) で生じていることがわかる。そのため、これらのプロセスでは圧縮機で加える圧縮機動力は等しいので単位製品あたりのエネルギー消費量は変化しない。また、加える圧縮機動力が等しいので、潜熱交換器における高温流体の凝縮温度は、断熱効率が低いほど、Fig. 2-24 に示すように低くなる。つまり、断熱効率が低下すると高温流体の凝縮温度も低下するが、その時の凝縮温度と低温流体間の温度差が最小接近温度差よりも大きいと、圧縮機で余計に昇圧する必要がなく、単位製品あたりのエネルギー消費量は変化しない。断熱効率が 20% の場合、Fig. 2-24 から確認できるように潜熱交換時 (HX3) にピンチポイントが発生した。これは、断熱効率の低下に伴い高温流体の凝縮温度が低下したので、潜熱交換時に熱交換に必要な熱交換温度差を取ることができず、圧縮機で余計に圧縮する必要があることを意味する。したがって、Fig. 2-23 に示すように、ある断熱効率よりも小さいと単位製品あたりのエネルギー消費量は断熱効率が小さくなるに従い大きくなる。

以上より、自己熱再生に基づく蒸発法では、ピンチポイントの発生場所により、断熱効率がエネルギー消費量に影響を与える場合と与えない場合があることがわかった。2.3.1 の条件では断熱効率が 40% 以上では、断熱効率はエネルギー消費量に影響を与えないことが明らかとなった。

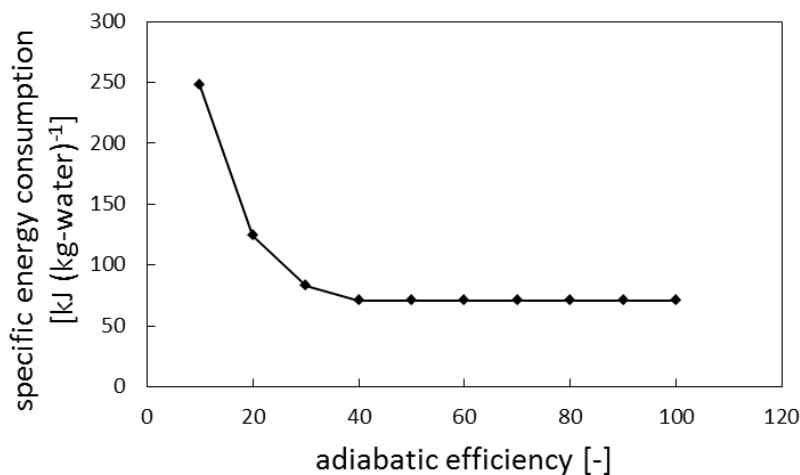


Fig. 2-23 Variation in specific energy consumption vs. adiabatic efficiency.

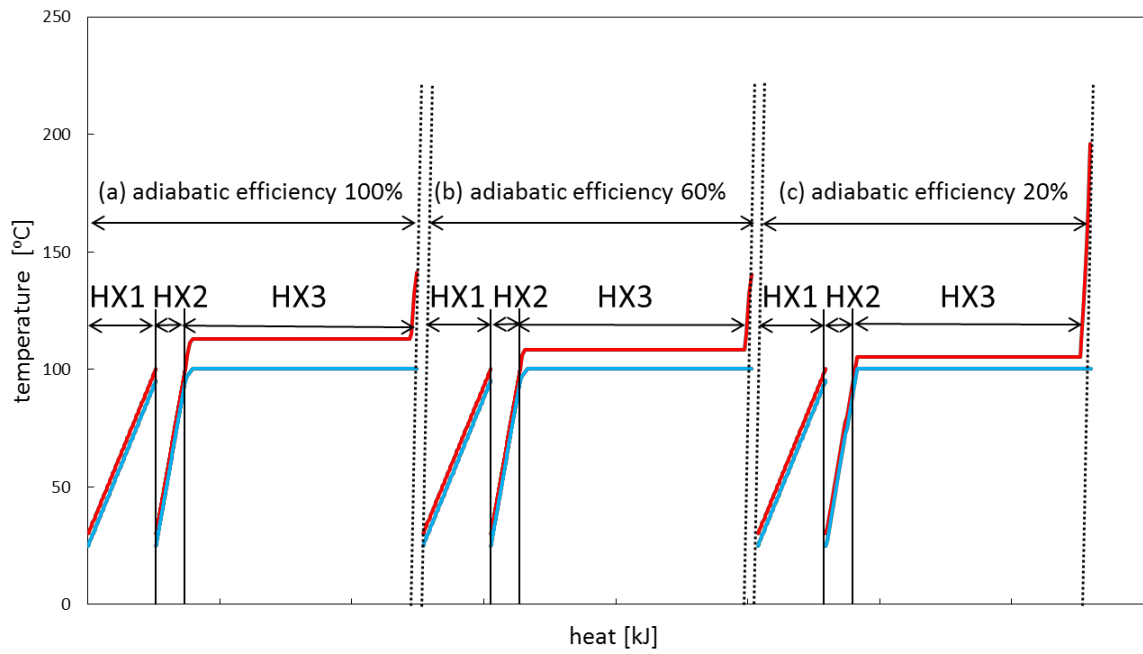


Fig. 2-24 Temperature heat diagram: adiabatic efficiency = (a) 100%, (b) 60%, (c) 20%.

2.3.2.2 自己熱再生に基づく蒸発法と逆浸透膜法の比較

2.3.2.1.の結果から、自己熱再生に基づく蒸発法は既存の蒸発法（多段フラッシュ法）と比べてエネルギー消費量を大幅に削減できることを明らかにした。一方、省エネルギーな海水淡水化プロセスとして逆浸透膜法も利用されている。

逆浸透膜法は、1章で説明したように、海水と淡水を逆浸透膜で隔て海水側に浸透圧よりも大きい圧力をかけることで海水側から淡水側へ水分子を移動させ淡水を製造する方法である。逆浸透膜法の単位製品あたりのエネルギー消費量は次式で表される^[22]。

$$\frac{W}{m_p} = \frac{\Delta P}{R} \quad (2-12)$$

ここで、 W はポンプ動力 [kW]、 m_p は製品流量 [kg s⁻¹]、 R は回収率 [-]、 ΔP はポンプを流入、流出する流体の圧力差 [kPa] である。回収率 R は次のように表される。

$$R = \frac{N_v \rho A}{m_f} \quad (2-13)$$

ここで、 ρ は透過水の密度 [kg m⁻³]、 A は総膜面積 [m²]である。 N_v は体積流量[m³ m⁻² s⁻¹] で次式

$$N_v = L_p(\Delta p - \Delta \pi) \quad (2-14)$$

で表される。ここで、 L_p は純水透過係数 [m s⁻¹ Pa⁻¹]、 Δp 、 $\Delta \pi$ はそれぞれ逆浸透膜両側の差圧 [kPa]、浸透圧の差 [kPa] を示している。(2-13)、(2-14) から、海水側に加える圧力が大きいほど、体積流束、つまり回収率が大きくなることが予想される。しかしながら、ポンプで印加する圧力が大きいと、RO膜やその支持膜が圧力によって押しつぶされ L_p が低下する^[23]。さらに、回収率が大きいほど海水が濃縮され、原料側の浸透圧が大きくなる (Fig. 2-25)。したがって、ポンプで印加する圧力を大きくしても N_v は比例して増加はせず、逆浸透膜法における回収率と単位製品あたりの関係は Fig. 2-26 のようになると報告されている^[24]。回収率が 0.5 [-] 以下のとき、回収率が大きくなるに従い、単位製品あたりのエネルギー消費量は減少する。一方、回収率が 0.5 [-] よりも大きい場合、回収率が大きくなるに従い単位製品あたりのエネルギー消費量は増

加する。逆浸透膜法の回収率の上限は、膜の物理的な耐久性や濃度分極によるスケール析出の点によって決まる。

逆浸透膜法の単位製品あたりのエネルギー消費量は $16 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ 程度である。一方、自己熱再生に基づく蒸発法では、回収率 $R=0.3 [-]$ 、熱交換温度差 $\Delta T=5 \text{ [K]}$ のとき、単位製品あたりのエネルギー消費量は 70 [kJ] である。 $R=0.3 [-]$ のとき、熱交換温度差を $\Delta T=1.3 \text{ [K]}$ 程度まで小さくすると単位製品あたりのエネルギー消費量を逆浸透膜法と同等になる。また、Fig. 2-12 に示すように、自己熱再生に基づく蒸発法では、回収率が大きいほど単位製品あたりのエネルギー消費量は減少する。Semiat らは海水の最高温度が $70 \text{ [}^\circ\text{C]}$ となるように減圧して運用すると、スケールの析出なく蒸発法の回収率を $0.5 [-]$ まで高めることができると報告している^[25]。この時、熱交換温度差を 2.0 [K] まで下げると、自己熱再生に基づく海水淡水化プロセスの単位製品あたりのエネルギー消費量は逆浸透膜法とほぼ一致する。これらの熱交換温度差は小さいが、実際の海水淡水化プラントでは、熱交換温度差を 1.3 [K] 程度でも運用されている^[26]。また、空気から酸素などを製造する深冷分離プロセスや天然ガス処理プラントでは 1.0 [K] 程度で熱交換されている^{[27],[28]}。したがって、適切に熱交換器を設計することで、逆浸透膜法とほぼ同等のエネルギー消費量となる自己熱再生に基づく海水淡水化プロセスを実現することは可能であると考えられる。Fig. 2-27 に最小接近温度差が 5 [K] 、 2 [K] の自己熱再生に基づく蒸発法、逆浸透膜法、多段フラッシュ法の単位製品あたりのエネルギー消費量と回収率の関係を示す。実線は、実機で一般に運用されている回収率を示し、点線は、スケールの析出などを考慮する必要があることを示している。この図から、自己熱再生に基づく海水淡水化プロセスは、既存の蒸発法である多段フラッシュ法と比べてエネルギー消費量が非常に小さく、省エネルギーと考えられている逆浸透膜法と同等のエネルギー消費量であることがわかる。

蒸発法は、1章で述べたように逆浸透膜法と比べて原料水の水質の影響を受けにくくまた、製品の塩分濃度が低いという特徴を有する。そこでそれらの特徴について検討を行った。

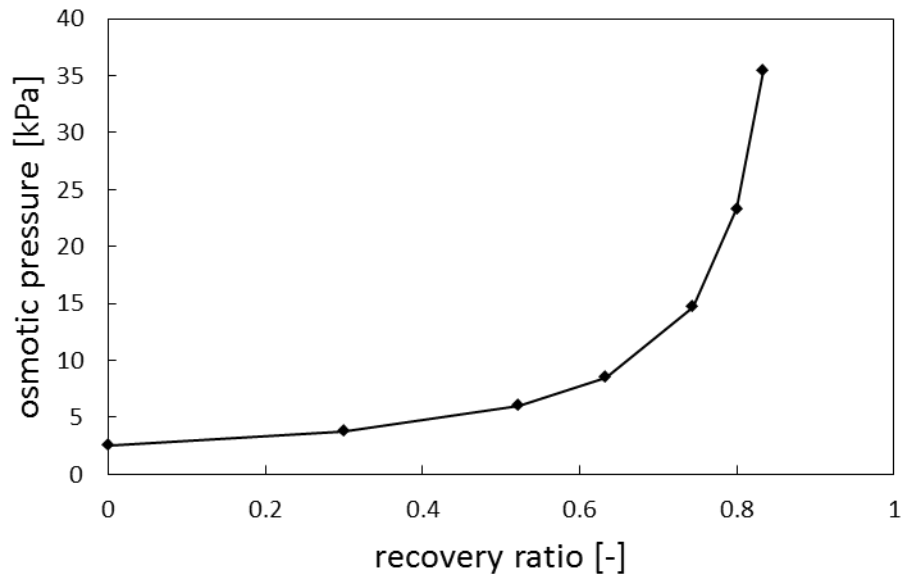


Fig. 2- 25 Variation in osmotic pressure vs. recovery ratio.

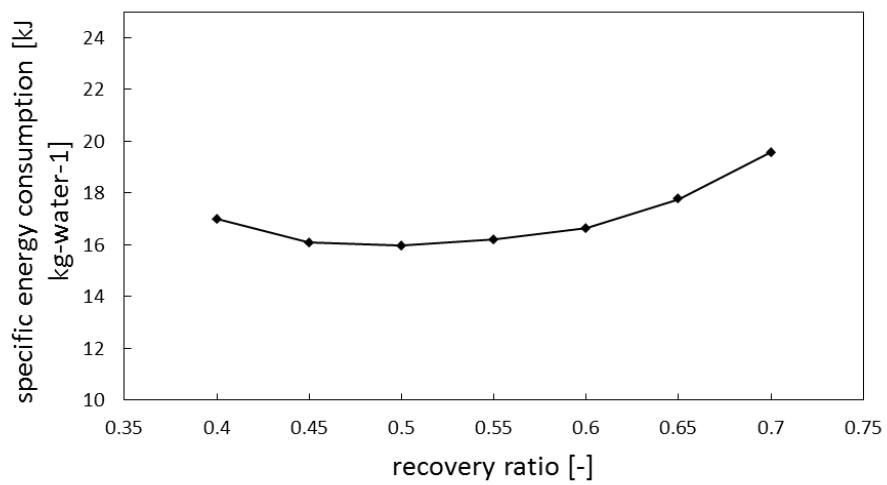


Fig. 2- 26 Variation in specific energy consumption vs. recovery ratio.

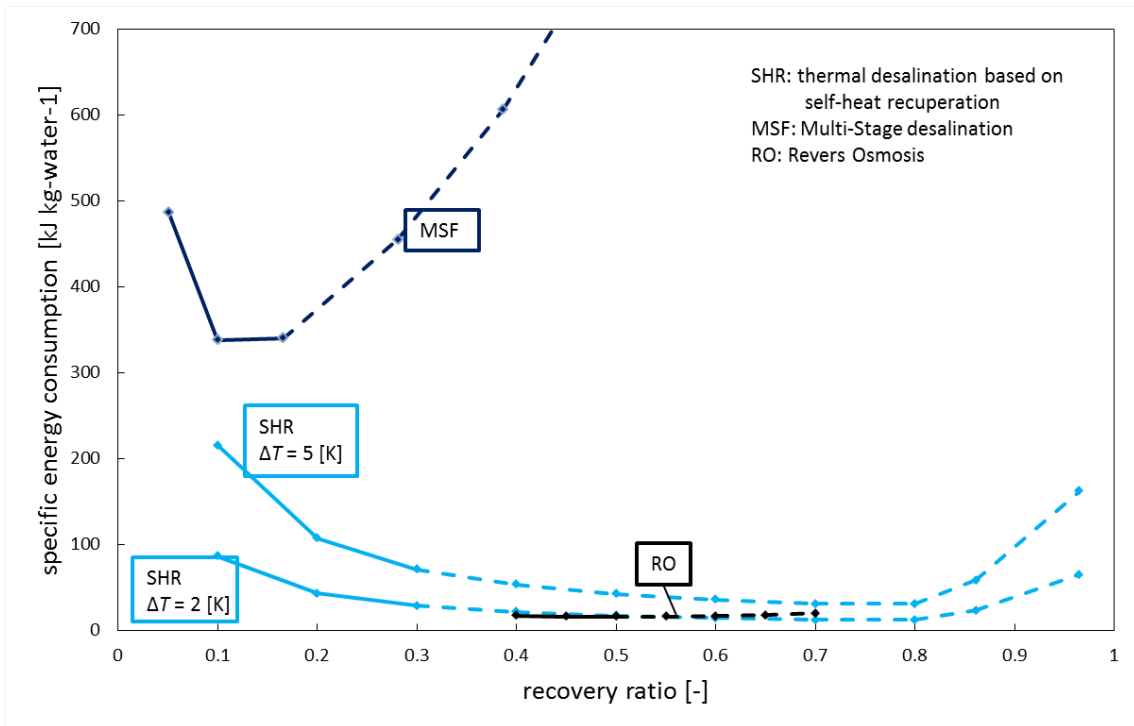


Fig. 2- 27 Summary of the relationship between specific energy consumption vs. recovery ratio.

Fig. 2- 28 に原料海水の塩分濃度に対する造水コストの変化を示す^[29]。逆浸透膜法では原料海水の塩分濃度が大きくなるに従い造水コストが上昇する。これは供給する海水の塩分濃度が高いほど海水の浸透圧が上昇しポンプ動力が増加したり、前処理の負荷が増加したりするためである。一方、蒸発法では原料水の塩分濃度にほとんど影響を受けない。したがって、原料水の塩分濃度が高い場合、蒸発法が主に利用される。世界の淡水化工業における原料水の割合を Fig. 2- 29 に示す^[1]。原料として海水が最も利用されており全体の 63%、次に汽水が利用されており 19%程度である。海水、汽水それぞれにおける淡水化プロセスごとの割合を Fig. 2- 30、Fig. 2- 31 に示す^[1]。これらの図からわかるように、塩分濃度が低い汽水を原料とする場合、膜法が主に利用され、塩分濃度が高い海水を原料とすると蒸発法の割合が大きくなる。また、大規模な河川が少なく気温が高い海域、紅海やペルシャ湾、では海水の塩分濃度が特に高い。この海域における海水淡水化プロセスの設備容量の割合を Fig. 2- 32、Fig. 2- 33 に示す^[1]。これらの地域では、淡水化の大部分が蒸発法によって行われていることがわかる。したがって、自己熱再生に基づく蒸発法は、塩分濃度が高い海域で特に競争力を持つと考えられる。

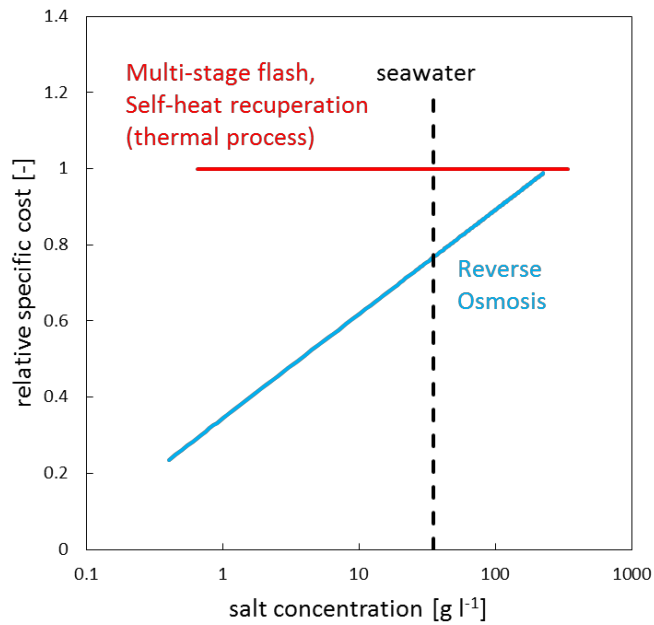


Fig. 2- 28 Relative water production cost of thermal process and reverse osmosis.

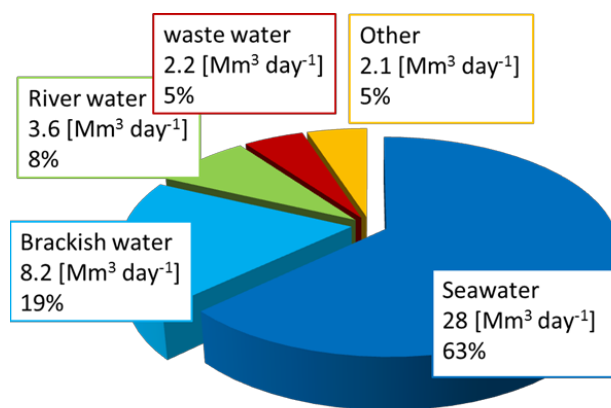


Fig. 2- 29 Global desalination capacity by source water type.

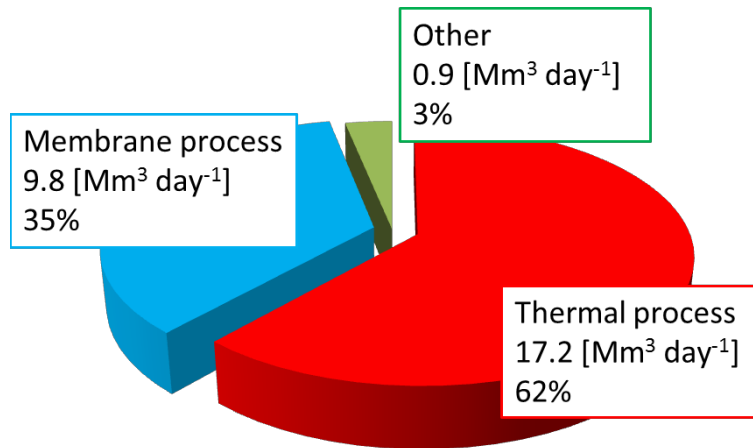


Fig. 2- 30 Global seawater desalination capacity by process.

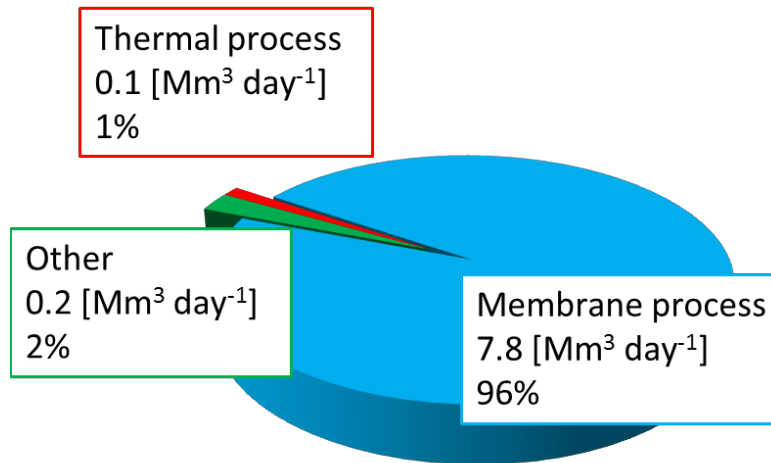


Fig. 2- 31 Global brackish water desalination capacity by process.

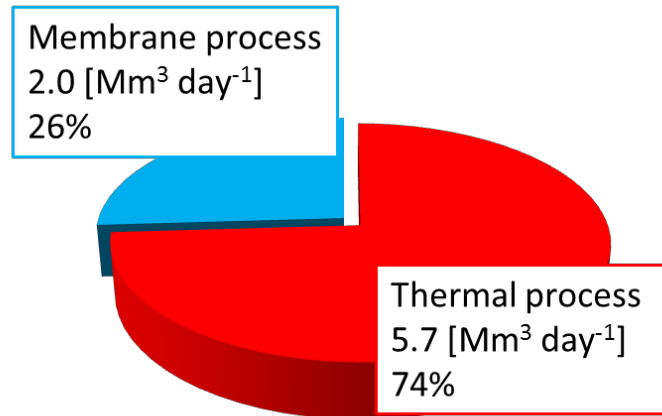


Fig. 2- 32 Seawater desalination capacity by process in Red sea.

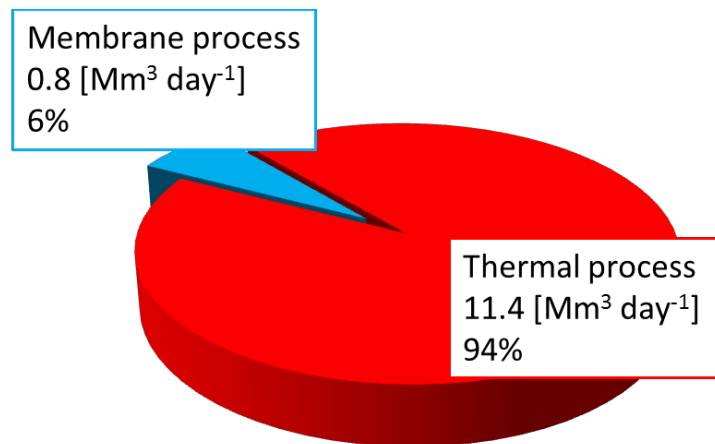


Fig. 2- 33 Seawater desalination capacity by process in Arabian gulf.

また、上述したように蒸発法のメリットの一つに製品の塩分濃度が低く、工業用水として利用することが可能な点が挙げられる。製造した淡水を工業用水として利用するためには、塩分濃度が 10ppm 以下であることが求められている^[30]。逆浸透膜法で製造した淡水の塩分濃度は一般に 500ppm 程度なので、逆浸透膜法で製造した淡水を工業用水として利用するためには、膜モジュールを多段にする必要がある。Fig. 2-34 に、製造した淡水を工業用水として利用するために膜モジュールを 3 段にした逆浸透膜法のプロセスフロー図を示す^[30]。TDS (total dissolved solids) が 29,500ppm の海水を一段目の逆浸透膜で TDS が 135ppm の透過水と濃縮海水に分離する。透過水をさらに逆浸透膜で 2 回処理することで、TDS が 5.5ppm の淡水を製造する。このプロセス全体での回収率は 0.40 で、単位製品あたりのエネルギー消費量を、(2-12) を用いて計算すると 18.5 [kJ kg-water⁻¹] となる。

膜モジュール 1 段目における単位製品あたりのエネルギー消費量 (1 段目のポンプで加えた仕事を透過水量で割った値) は 14.6 [kJ kg-water⁻¹] である。したがって、膜モジュールを 3 段にしてもエネルギー消費量は 1 段のプロセスの 1.3 倍程度で、膜モジュールの数に比例して増加するわけではない。これは、1 段目の膜モジュールを透過した水の塩分濃度は低いのでその浸透圧も低くなり、2 段目、3 段目の膜モジュールでのポンプ動力が小さくなるためである。一方、建設コストは膜モジュールを増加させた分増加する。一般に、蒸発法のような化学プラント建設工事の分野では、イニシャルコストはプラント規模の 0.6 乗に比例するという経験則が知られている^[31]。これは、プラントの規模が大きいかほど表面積・体積比率が小さくなるので容量の増加に対する装置の原材料費等の増加割合が小さくなるためである。一方、逆浸透膜法では、海水と淡水の分離は膜表面で生じる。そのため、蒸発法ほどスケールメリットを得ることができない。したがって、製造した淡水を工業用水として利用するためには、自己熱再生に基づく蒸発法の方がより導入しやすいと考えられる。

以上より、自己熱再生に基づく蒸発法は逆浸透膜法と同等のエネルギー消費量で運用することが可能であり、特に、塩分濃度が高い海域での利用や製品を工業用水などとして利用する場合に大きな優位性があると考えられる。

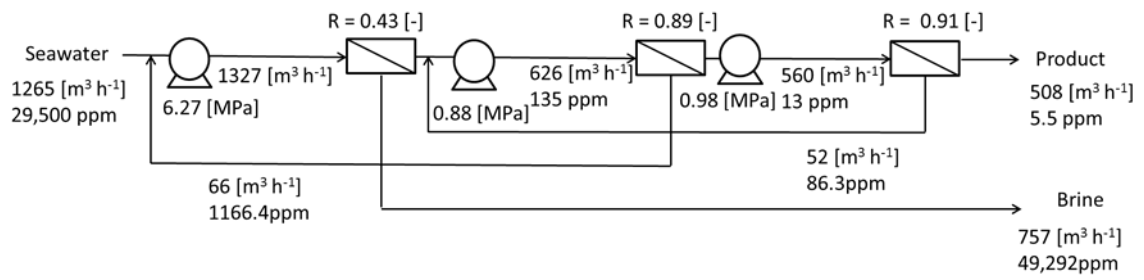


Fig. 2- 34 Process configuration of triple pass RO seawater desalination plant.

2.4. まとめ

本章では、前処理負荷が小さく、製品を直接工業用水として利用することができるほど塩分濃度が低く、さらに省エネルギーな濃縮プロセスを実現するために、自己熱再生に基づく蒸発法の提案を行った。本プロセスでは、圧縮機を用いて流体の持つ熱をすべてプロセス内で循環させる。提案したプロセスのエネルギー消費量を、プロセスシミュレーターを用いて試算するとともに、蒸発法として最も利用されている多段フラッシュ法のエネルギー消費量と比較を行い、提案したプロセスの省エネルギー性能について検討を行った。また、熱交換温度差、回収率、断熱効率がプロセス全体のエネルギー消費量に与える影響を考察した。

シミュレーションの結果、提案したプロセスの単位製品あたりのエネルギー消費量は $70 \text{ [kJ (kg-water)}^{-1}]$ 、多段フラッシュ法では $325 \text{ [kJ (kg-water)}^{-1}]$ となり、提案したプロセスの単位製品あたりのエネルギー消費量は多段フラッシュ法と比較して $1/4$ 程度になることを明らかにした。これは、提案したプロセスでは流体の熱は熱交換によりすべて循環するので、外部から加える仕事は、熱交換に必要な温度差をつけるためだけに利用されるが、多段フラッシュ法では、高温流体の熱の一部しか回収されておらず、外部から供給する熱を低温流体の加熱にも利用する必要があるためである。

次に、熱交換温度差がエネルギー消費量に与える影響について検討を行った。自己熱再生に基づくプロセスでは、流体の熱がすべて循環しているので、熱交換温度差に比例してエネルギー消費量は変化した。一方、多段フラッシュ法では、熱交換量の上限は蒸気の凝縮潜熱分なので、熱交換温度差が変化しても、エネルギー消費量はほとんど変化しないことを明らかにした。

さらに、回収率（供給する海水のうち淡水として取り出す割合）がエネルギー消費量に与える影響を検討した。自己熱再生に基づく蒸発法では、単位製品あたりのエネルギー消費量は、回収率が 0.8 程度までは回収率が高いほど減少し、回収率がそれ以上では増加した。本プロセスでは、すべての熱がプロセス内で循環するので回収率に関わらず加える圧縮機動力は一定となる。したがって、回収率が大きくなるに従い製品流量も増加するので単位製品あたりのエネルギー消費量は減少する。回収率が 0.8 より高い場合、海水の沸点上昇によって低温流体の蒸発温度が高くなるので、熱交換に必要な温度差を維持するために圧力比が大きくなり、結果的に単位製品あたりのエネルギー消費量は増加する。多段フラッシュ法では、回収率を大きくすると単位製品あたりのエネルギー消費量も増加した。これは、回収率を高くするためには海水の最高温度を上げる必要がありそれに伴い、回収できない顕熱が増加するからである。

また、自己熱再生に基づく蒸発法において、断熱効率がエネルギー消費量に与える影響について検討した。シミュレーションの結果、ピンチポイントの発生場所により断熱効率がプロセス全体のエネルギー消費量に与える影響は変化した。潜熱交換を行う熱交換器でピンチポイントが発生すると、断熱効率が低くなるに従い高温流体の凝縮温度が低下するので圧縮機動力は増加する。一方、ピンチポイントが顕熱交換を行う熱交換器で発生する場合、圧縮機動力は断熱効率に関わらず一定となり、エネルギー消費量は変化しない。

最後に、自己熱再生に基づく蒸発法と逆浸透膜法の比較を行った。提案したプロセスの熱交換温度差を 2 [K] 程度にすることで、省エネルギーと考えられている逆浸透膜法とほぼ同等のエネルギー消費量になることを明らかにした。また蒸発法の特徴として、逆浸透膜法と比べて原料水の水質の影響を受けにくく、また製品の塩分濃度が低い点が挙げられる。したがって、自己熱再生に基づく蒸発法は逆浸透膜法と同等のエネルギー消費量で運用することが可能であり、特に、塩分濃度が高い海域での利用や製品を工業用水などとして利用する場合に大きな優位性があると考えられる。

-
- [1] S. Lattemann, "Development of an environmental impact assessment and decision support system for seawater desalination plants," *Dissertation Delft University* (2010).
- [2] 田中賢次, 松井克憲, 堀孝義, 岩橋英夫, 竹内和久, 伊藤嘉晃, "世界初大型 3 段直列逆浸透(RO)法海水淡水化設備," *三菱重工技報*, 46(1) (2009) 13-15.
- [3] Y. Kansha, N. Tsuru, K. Sato, C. Fushimi, A. Tsutsumi, "Self-Heat Recuperation Technology for Energy Saving in Chemical Processes," *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 48 (2009) 7682-7686.
- [4] Y. Kansha, N. Tsuru, C. Fushimi, A. Tsutsumi, "Integrated Process Module for Distillation Processes Based on Self-Heat Recuperation Technology," *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 43 (6) (2010) 502-507.
- [5] Y. Kansha, N. Tsuru, C. Fushimi, K. Shimogawara, A. Tsutsumi, "An Innovative Modularity of Heat Circulation for Fractional Distillation," *Chemical Engineering Science*, 65 (1) (2010) 330-334.
- [6] Y. Kansha, N. Tsuru, C. Fushimi, A. Tsutsumi, "New Design Methodology Based on Self-Heat Recuperation for Production by Azeotropic Distillation," *Energy and Fuels*, 24 (11) (2010) 6099-6102.
- [7] K. Matsuda, K. Kawazuishi, Y. Kansha, C. Fushimi, M. Nagao, H. Kunikiyo, F. Masuda, A. Tsutsumi, "Advanced Energy Saving in Distillation Process with Self-Heat Recuperation Technology," *Energy*, 36 (8) (2011) 4640-4645.
- [8] A. Kishimoto, Y. Kansha, C. Fushimi, A. Tsutsumi, "Exergy Recuperative CO₂ Gas Separation in Post-Combustion Capture," *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 50 (2011) 10128-10135.
- [9] A. Kishimoto, Y. Kansha, C. Fushimi, A. Tsutsumi, "Exergy Recuperative CO₂ Gas Separation in Pre-Combustion Capture," *Clean Technologies and Environmental Policy*, 14 (3) (2012) 465-474.
- [10] Y. Kansha, A. Kishimoto, T. Nakagawa, A. Tsutsumi, "A Novel Cryogenic Air Separation Process Based on Self-Heat Recuperation," *Separation and Purification Technology*, 77 (3) (2011) 389-396.
- [11] M. Aziz, C. Fushimi, Y. Kansha, K. Mochidzuki, S. Kaneko, A. Tsutsumi, K.

-
- Matsumoto, “Innovative Energy-Efficient Biomass Drying Based on Self-Heat Recuperation Technology,” *Chemical Engineering and Technology*, 34 (7) (2011) 1095-1103.
- [1 2] Y. Liu, M. Aziz, C. Fushimi, Y. Kansha, K. Mochidzuki, S. Kaneko, A. Tsutsumi, “Exergy Analysis of Biomass Drying Based on Self-Heat Recuperation Technology and Its Application to Industry: A Simulation and Experimental Study,” *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 51 (30) (2012) 9997-10007.
- [1 3] Y. Liu, M. Aziz, Y. Kansha, S. Bhattacharya, A. Tsutsumi, “Application of the Self-Heat Recuperation Technology for Energy Saving in Biomass Drying System,” *Fuel Processing Technology*, 117 (2014) 66-74.
- [1 4] Y. Liu, J. Peng, Y. Kansha, M. Ishizuka, A. Tsutsumi, D. Jia, X. T. Bi, C. J. Lim, S. Sokhansanj “Novel fluidized bed dryer for biomass drying,” *Fuel, Processing Technology*, 122 (2014) 170-175.
- [1 5] C. Fushimi, Y. Kansha, M. Aziz, K. Mochidzuki, S. Kaneko, A. Tsutsumi, K. Matsumoto, “Novel Drying Process Based on Self-Heat Recuperation Technology,” *Drying Technology*, 29 (1) (2010) 105-110.
- [1 6] M. Aziz, Y. Kansha, A. Kishimoto, Y. Kotani, Y. Liu, A. Tsutsumi “Advanced Energy Saving in Low Rank Coal Drying Based on Self-Heat Recuperation Technology,” *Fuel Processing Technology*, 104 (2012) 16-22.
- [1 7] Y. Liu, M. Aziz, Y. Kansha, A. Tsutsumi, “A novel exergy recuperative drying module and its application for energy-saving drying with superheated steam,” *Chemical Engineering Science*, 100 (2013) 392-401.
- [1 8] 新日鉄住金エンジニアリングニュースリリース(2012) バイオエタノール製造コストを大幅削減！～自己熱再生理論を用いた省エネ蒸留プロセス実証試験～, 新日鉄住金エンジニアリング,
<http://www.eng.nssmc.com/news/detail/131>, Accessed on September 29, 2015.
- [1 9] H. Mizuno, Y. Kansha, A. Kishimoto, A. Tsutsumi, “Thermal seawater desalination process based on self-heat recuperation,” *Clean Technology and Environmental Policy*, 15 (2013) 765-769.
- [2 0] H. Mizuno, Y. Kansha, A. Kishimoto, A. Tsutsumi, “Thermal desalination process based on self-heat recuperation,” *Chemical Engineering Transactions*,

29 (2012) 379-384.

- [2 1] 財団法人塩事業センター編,海水と製塩-データブック,(2006), 財団法人塩事業センター.
- [2 2] 化学工学会編, 化学工学便覧改訂 6 版, (1999), 丸善.
- [2 3] 谷口雅英, “RO 膜を使った海水淡水化技術の現状と今後の展望,” 日本海水学会, 63 (2009) 214-220.
- [2 4] M. Wilf, K. Klinko, “Optimization of seawater RO systems design,” *Desalination*, 138 (2001) 299-306.
- [2 5] UNESCO-EOLSS Waste MULTI-EFFECT DISTILLATION (MED), UNESCO, <http://www.eolss.net/Sample-Chapters/C07/E6-144-44-00.pdf>, Accessed on November 30, 2015.
- [2 6] M. A. Darwish, F. Al Asfour, N. Al-Najem, “Energy consumption in equivalent work by different desalination methods: case study for Kuwait,” *Desalination*, 152 (2002) 83-92.
- [2 7] 野一色公二, 寺田進, 後藤正宏, “天然ガス処理プラント用高圧大型 ALEX の開発,” *神戸製鋼技報*, 53(2) (2003) 28-31.
- [2 8] Visit member’s room – 会員企業訪問記- 大陽日酸 (株) 筑波研究所, つくばサイエンス・アカデミー, <http://www.science-academy.jp/visit/0004.html>, Accessed on November 30, 2015.
- [2 9] C. Fritzmann, J. Lowenberg, T. Wintgens, T. Melin, “State-of-the-art of reverse osmosis desalination,” *Desalination*, 216 (2007) 1-76.
- [3 0] 田中賢次, 松井克憲, 堀孝義, 岩橋英夫, 竹内和久, 伊藤嘉晃, “世界初大型 3 段直列逆浸透(RO)法海水淡水化設備,” *三菱重工技報*, 46(1) (2009) 13-15.
- [3 1] 環境省 (2006) 廃棄物処理施設建設工事等の入札・契約の手引き, 環境省大臣官房廃棄物・リサイクル対策部, <http://www.env.go.jp/press/files/jp/8285.pdf>, Accessed on November 25, 2015.

3. 省エネルギーな乾燥プロセス実現に向けた蒸発器の検討

3.1. はじめに

海水淡水化プロセスは供給する海水を真水と濃縮海水に分けることで淡水を製造する。したがって、海水淡水化プロセスでは通常、濃縮海水が周辺海域へ排出される。濃縮海水は周囲の海水よりも高い塩分濃度、また蒸発法では高い温度で排出される。さらに、前処理で利用した薬剤も濃縮海水に伴って流出する。これらは、周辺海域への生態に悪影響を与えると指摘されており、実際、キプロスや、アラブ首長国連邦にある海水淡水化プロセスなどでは、排水口周辺で、棘皮動物が観察されなくなった事例や、マングローブが根絶した事例が報告されている^[1]。そこで、濃縮海水の排出に関する規制が行われている^[2]。アメリカ、オーストラリア、日本、アラブ首長国連邦、オマーンなどでは、排水口から一定距離離れた地点の海水の塩分濃度が基準の塩分濃度上昇範囲内であることが求められている。たとえばオーストラリアのゴールドコーストでは、排水口から 120 [m] 離れた地点の塩分濃度の上昇が、周辺海域の塩分濃度と比べて 0.2%以下であることが求められている。

環境問題への意識の高まりから、近年、これらの規制がさらに厳しくなることが予想されており、濃縮海水が排出されないプロセスが大きな注目を集めている^[3, 4, 5]。

濃縮海水の排出をなくすためには、回収率を高める必要がある。2章の結果から、提案した自己熱再生に基づく蒸発法は、既存の蒸発法と異なり回収率が高くてもエネルギー消費量が非常に小さいことがわかった。したがって、回収率が大きい自己熱再生に基づく蒸発法は、エネルギー消費量の点、また周辺海域への負荷低減の点から優れていると考えられる。しかしながら、蒸発法では、回収率を高めると伝熱管表面へのスケール析出が問題となる^{[1], [6]}。スケールとは海水中に含まれる塩類の析出物の総称で、伝熱面に析出することで伝熱を阻害する。Fig. 3-1 に大気圧下で海水を蒸発させた際の塩類の析出量と、濃縮海水の比重の関係を示す^[7]。海水の体積を半分程度まで濃縮すると、炭酸カルシウムが析出し始め、30%程度まで濃縮すると硫酸カルシウム、10%程度まで濃縮すると塩化ナトリウムや塩化マグネシウムなどのにがり成分が析出し始める。Table 3-1 に熱交換器に利用される金属ならびに、海水淡水化プロセスで発生するスケールの熱伝導率を示す。スケールの熱伝導率は銅や鉄、アルミニウム、鋼などの金属と比べて一桁から二桁程度小さいことがわかる。また、流下膜式蒸発器における熱通過率 K [$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$] は次式、

$$K = \frac{1}{\frac{1}{h_h} + \frac{d_h}{k_h} + \frac{d_s}{k_s} + \frac{1}{h_c}} \quad (3-1)$$

で表される。 h_h 、 h_c はそれぞれ、蒸気膜側、水膜側の熱伝達率 [$\text{W m}^{-2} \text{K}^{-1}$]、 d_h 、 d_s は伝熱管、スケールの厚さ [m]、 k_h 、 k_s は伝熱管、スケールの熱伝導率 [$\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$] である。各パラメータを Table 3-2 のように仮定し、スケールの厚さと熱通過率の関係を計算した。その結果を Fig. 3-2 に示す。伝熱面にスケールが 0.1 [mm] 析出すると熱通過率は 40%程度低下し、スケールが 1 [mm] 析出すると 85%程度低下する。これは伝熱管表面にスケールが 1 [mm] 析出しても元の伝熱量を維持するためには、熱交換温度差を 6.6 倍つけなくてはならないことを意味しており、伝熱面へのスケールの析出は熱交換に大きな影響を与えることがわかる。

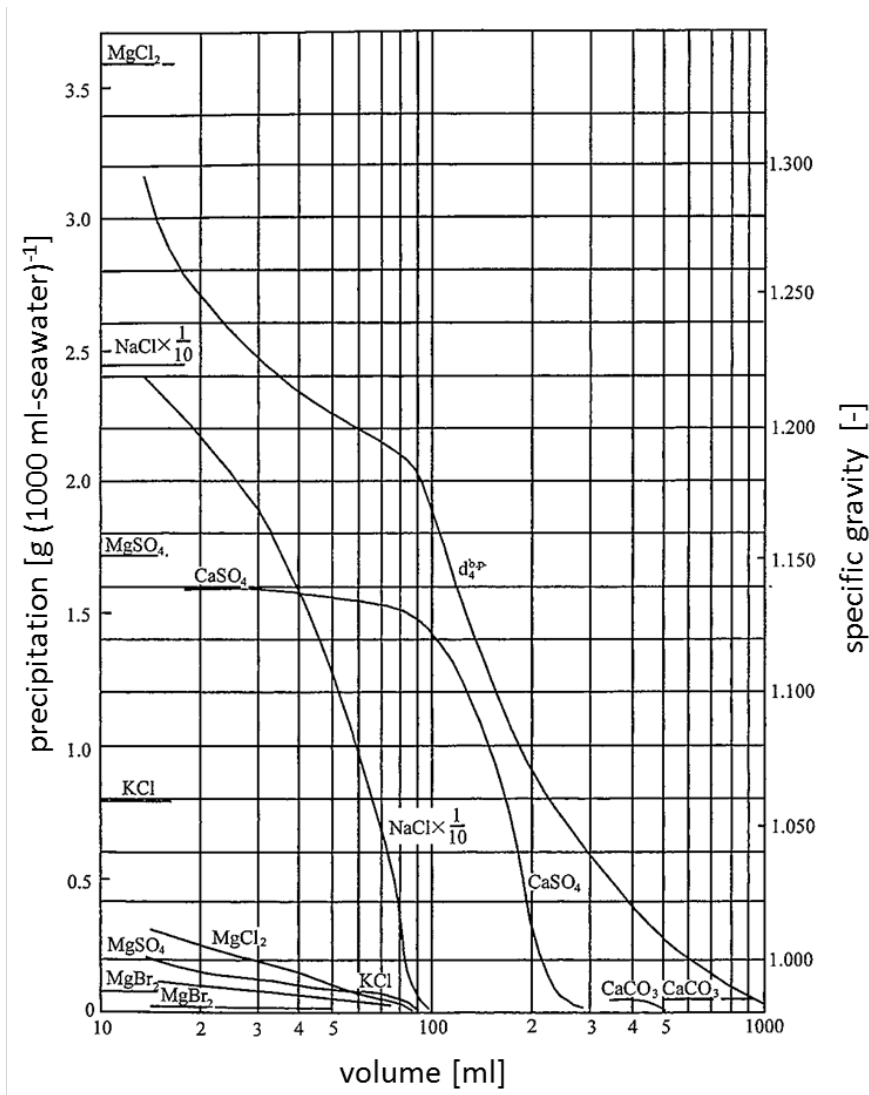


Fig. 3- 1 Seawater concentration under atmospheric pressure^[7].

Table 3- 1 Thermal conductivity.

Material	Thermal conductivity [W m ⁻¹ K ⁻¹]
Copper	383
Iron	80.2
Aluminum	198
Steel	15.1
Calcium sulfate scale	0.6 ~ 2.3
Carbonate scale	0.5 ~ 0.7
Silicate scale	0.2 ~ 0.7

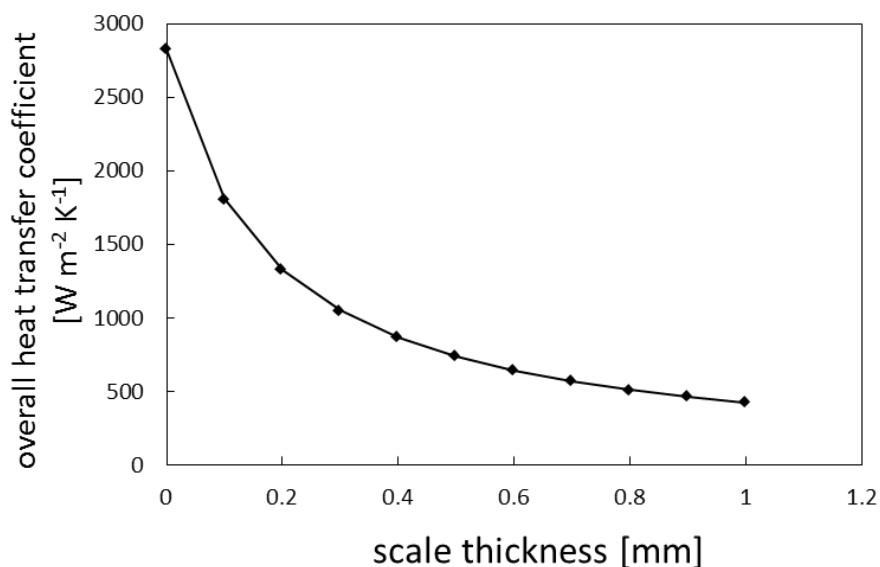


Fig. 3- 2 Relationship between scale thickness and overall heat transfer coefficient.

Table 3- 2 Parameters for the calculation of overall heat transfer coefficient.

symbol	Value
h_h (heat transfer coefficient [W m ⁻² K ⁻¹])	1.0×10^4
h_c (heat transfer coefficient [W m ⁻² K ⁻¹])	1.0×10^4
d_h (thickness[m])	2.0×10^{-3}
d_s (thickness [m])	1.0×10^{-3}
k_h (thermal conductivity [W m ⁻¹ K ⁻¹])	13.0
k_s (thermal conductivity [W m ⁻¹ K ⁻¹])	0.5

従来から利用されている蒸発法では、これらのスケールをアルカリスケールと、硫酸カルシウムスケールの2種類に区別し、抑制対策が行われてきた。アルカリスケールの析出原因は次の3点、海水の濃縮によるスケール成分濃度の増大、液温上昇によるスケール成分の飽和溶解度の減少、温度上昇によるスケール成分の化学平衡の変化、が考え

られている^[8]。3番目の原因はアルカリスケール特有のものであり、海水の温度などが変化することで炭酸物質の化学平衡が変わることにより生じる。通常の海水では炭酸物質の約85%は炭酸水素イオンとして存在している。海水を過熱すると炭酸水素イオンが次式のように反応し、炭酸イオンに変化する。



発生した炭酸イオンが海水中のカルシウムイオンと反応し、炭酸カルシウムの飽和溶解度を超えることで析出すると考えられている。



アルカリスケールは炭酸塩が反応することで生成するので、その抑制方法としてpH制御法が一般に利用されている。供給する海水に前もって酸を添加することで、次式のように炭酸水素イオンを分解する。



また、抑制剤を供給海水に添加する方法も利用されている^{[9]、[10]}。

硫酸カルシウムの形態は、結晶水の数により、二水塩、半水塩、無水塩の三種類をとる。水溶液中での硫酸カルシウムの飽和溶解度は共存塩類の影響を大きく受け、また、温度によって変化する^[11]。二水塩の場合、海水温度によらずほぼ一定の析出限界濃度を示す。一方、無水塩と半水塩は海水温度が大きいほど、析出限界濃度は低下する。二水塩、半水塩、無水塩のどれが析出するかは、様々な要因が影響し正確に予測することは困難であるが、多段フラッシュ蒸発器では半水塩の析出が、多重効用缶では無水塩の析出が生じやすいと報告されている^[8]。硫酸カルシウムのスケール抑制方法としては、海水中に核となる物質を前もって添加することで伝熱管表面へのスケールを析出させにくくする種晶添加法や抑制剤添加法などが利用されている^[12]。しかしながら、これらの方法ではスケールの析出を完全に抑制することは難しく、温度と濃度比を硫酸カルシウムの析出限界内に維持するという方法によってスケールの析出を回避している。

以上のように、既存のプロセスでは、伝熱管表面へのスケール析出を抑制するために、

スケールが全く析出しない条件で運転が行われている。したがって、溶媒が必要なので、従来から利用されている蒸発法の回収率の上限は安全率も考慮し、0.33 程度である^[13]。

製塩産業では、濃縮した海水を多重効用法によって省エネルギー化を図った晶析装置で海水を蒸発させ海水から塩を製造している。しかしながら、依然、エネルギー消費量が大きい問題や、上述した伝熱面へスケールが析出する問題がある。

近年、省エネルギーでバイオマスや褐炭の乾燥を行うために、自己熱再生に基づく流動層を利用した乾燥プロセスが提案されている^{[14], [15]}。このプロセスでは、流体のすべての熱をプロセス内で循環させることで大幅な省エネルギー化を達成する。また、流動層を利用するので層から被加熱材料への良好な伝熱が期待される。さらに、流動層では加熱された流動粒子と被加熱材料が接触することで対象物が乾燥される。したがって、流動層蒸発器を海水淡水化に利用すると、海水の蒸発は加熱された流動粒子の表面で起こるので、伝熱管表面にスケールの析出が生じず、伝熱の低下を抑制できることが考えられる。

本研究では省エネルギーで伝熱面へのスケール析出を抑制することが可能な革新的な乾燥プロセスを構築するために、蒸発器に流動層の利用を考案した。本章では提案した流動層を海水の蒸発に利用することが可能であるか、同時に海水の蒸発が可能な場合、そのスケール抑制効果について検討するために、流動層蒸発器で実験的検討を行った。

3.2. 流動層

3.2.1. 流動層とは

流動層とは、固体粒子の詰まった筒の底部から流体を吹き込み、固体を液体のように振舞わせる(流動化させる)装置である^[16]。流動状態は流体の空塔速度 (= 全流量 / 容器水平断面積) によっていくつかに分類される。Fig. 3-3 に空塔速度変化に伴う流動状態の遷移についてまとめる^{[17][18][19]}。

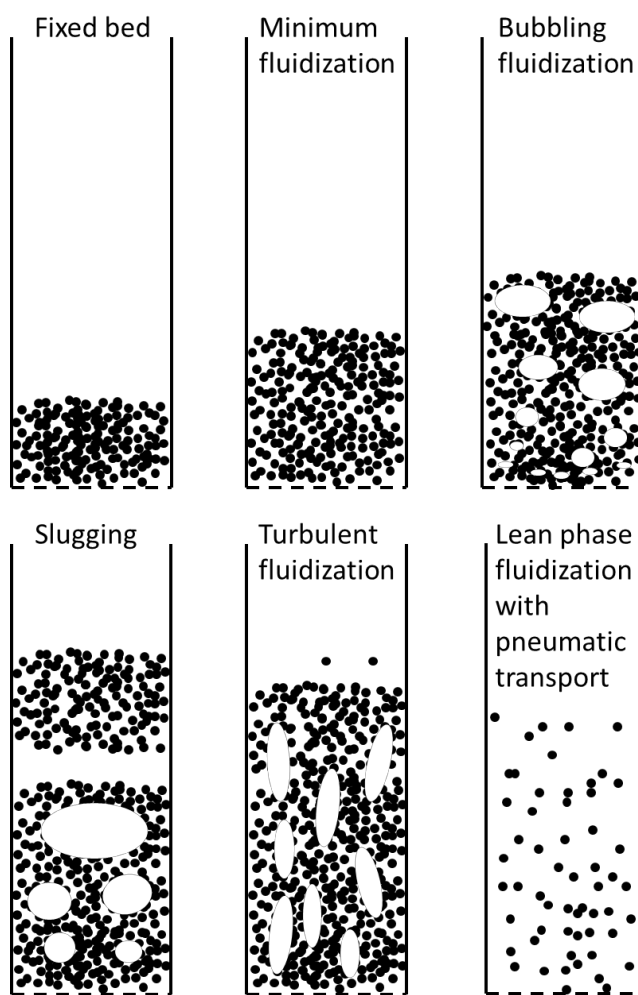


Fig. 3-3 Variation of fluidization regimes.

空塔速度が非常に小さい領域では、供給された流体は粒子間の空隙を流れるだけであり、その粒子層は静止状態を保つ。この状態を固定層と呼ぶ。空塔速度がある値を超えると粒子層は静止状態を維持することができなくなり、固体粒子は運動を始める。この状態を均一流動化状態、また流動化が開始する速度を最小流動化速度と呼ぶ。さらにガス速度を上げていくと、層内に気泡が形成され管内を上昇する。この気泡により粒子の混合は促進され、良好な混合状態が形成される。この状態を気泡流動化状態と呼ぶ。さらにガス速度を大きくすると、生成した気泡が塔径に近い大きさまで成長しスラッキング状態を引き起こし、さらにガス速度を大きくすると、層表面から飛び出した固体粒子は流体に同伴されて系外に輸送され、層内はさらに乱れた乱入同状態に移行し、その後、高速流動化状態、希薄輸送状態へと遷移する。流動層は、熱容量の大きい粒子が激しく運動しているので、熱の移動速度が速く、大規模な装置にしても、一定温度となりやすい特徴を持つ。そのため、褐炭やバイオマスの乾燥、ごみの焼却などに利用されている。

Veenmanらは海水淡水化に流動層を組み合わせたプロセスを報告している^{[20] [21]}。このプロセスは多段フラッシュ法のステージを縦方向に積み上げた構造をしており、各ステージの熱交換器を流れる低温流体に流動粒子(球形の金属)を混合し、供給液で流動化させる。供給流体に流動粒子を入れる目的は、伝熱管表面へのスケール析出の抑制と、伝熱促進のためである。スケールが析出しても液体中の流動粒子の接触によって、伝熱管表面の汚れを除去する^{[22] [23]}。また、流動粒子が存在することで、温度境界層が薄くなり、熱伝達率も向上する^{[22] [23] [24] [25]}。しかしながら、このプロセスでは流動流体として海水を使用するので、供給液の水分をすべて蒸発させることは難しく、濃縮海水が排出されないプロセスを構築することは困難である。

3. 2. 2. 流動粒子による区分

流動層で利用される粒子は、Fig. 3- 4 に示す Geldart の分類で表現される^[26]。粒子の密度が一定のとき、粒子径が小さい順に、C 粒子、A 粒子、B 粒子、そして D 粒子と分類される。A 粒子は、流動化しやすい比較的小さな粒子である。均一流動化状態が存在し、また気泡の分裂と合体の頻度が高いという特徴を持つ。B 粒子は、流動化しやすい比較的大きな粒子である。B 粒子は、A 粒子と異なり、均一流動状態を持たず、空塔速度が最小流動化ガス速度を超えるとすみやかに気泡流動化状態となる。また、気泡の分裂より合体の頻度が高い。C 粒子は粒子付着性が大きく、ガスが吹き抜けるチャネリング状態をとりやすい。したがって、流動化させることが A 粒子や B 粒子よりも困難である。D 粒子は B 粒子よりも大きい粒子群である。層内での圧力損失が小さく、流動層よりも噴流層（層の中心を、ガスが一部の粒子を伴い上昇し、周囲の粒子はその周りを下降する）が形成されやすい。

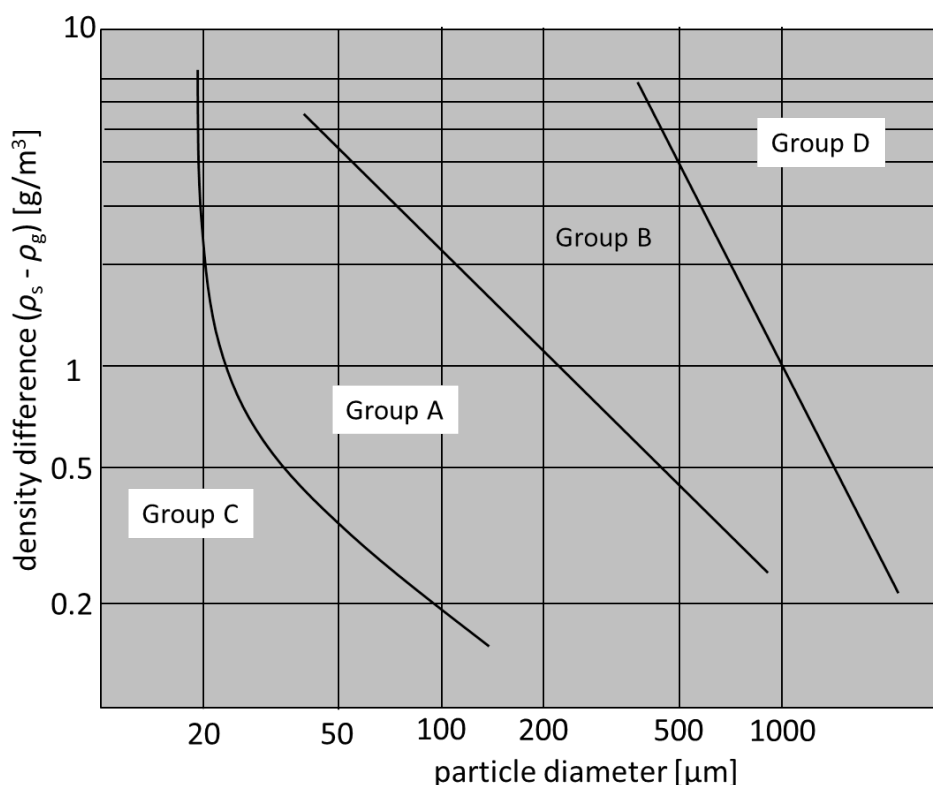


Fig. 3- 4 Geldart's classification.

3.2.4. 最小流動化ガス速度

最小流動化ガス速度は固定層での圧力損失、流動層での圧力損失をそれぞれ計算し、それらが等しい時の空塔速度として計算される^[18]。固定層は多数の微細な流路(流路モデル)または、等球粒子の集合体(抗力モデル)として単純化して考えることができる。抗力モデルでは、個々の粒子に働く抗力を計算することで固定層の圧力損失を推算する。流体中の粒子による流体抗力 F_d [N]は次式で表される。

$$F_d = C_d \frac{\pi d_p^2}{4\phi} \frac{\rho_g U^2}{2} \quad (3-5)$$

ここで、 C_d は流体抵抗係数 [-]、 d_p は粒子径 [m]、 ϕ は粒子形状係数 [-]、 ρ_g はガス密度 [kg m^{-3}]、 U は粒子と流体の相対速度 [m s^{-1}]である。層流条件での流体抵抗係数 C_l 、乱流条件での流体抵抗係数 C_t はそれぞれ次式で見積もることができる。

$$C_l = \frac{24}{\text{Re}_p} \quad (3-6)$$

$$C_t = 0.44 \quad (3-7)$$

ここで、 Re_p は粒子レイノルズ数で、次式、

$$\text{Re}_p = \frac{\rho_g U d_p}{\mu} \quad (3-8)$$

で定義されている。 μ は気体の粘性係数 [$\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$]である。(3-5)、(3-6)より、層流の時の流体抗力は次式となる。

$$F_d = \frac{12\pi\mu d_p U}{\phi} \quad (3-9)$$

(3-9)より、層流条件で、流体抗力はガス速度に比例すると考えられる。

同様に乱流条件では(3-5)、(3-7)より流体抗力はガス速度の2乗に比例すると考えられる。従って、固定層の抵抗を層流域、乱流域の流体抗力の和と考えると次式が成り立つ。

$$\frac{\Delta p}{l} = C_1 U + C_2 U^2 \quad (3-10)$$

ここで、 l は層高、 C_1 、 C_2 はそれぞれある定数である。Ergun は、多くの実験データから層流から乱流まで、静止粉体層の層全体の圧力損失を推算できる式を次のように提案した^[27]。

$$\frac{\Delta p}{l} = 150 \frac{(1-\varepsilon)^2 \mu}{\phi^2 \varepsilon^3 d_p^2} U + 1.75 \frac{(1-\varepsilon) \rho_g}{\phi \varepsilon^3 d_p} U^2 \quad (3-11)$$

ここで ε は空隙率 [-]である($(1-\varepsilon)$ は充填率を表す)。一方、層全体が流動状態にあるとき、力のつり合いから次の関係式が成り立つ。

$$\frac{\Delta P}{l} = (1-\varepsilon)(\rho_p - \rho_g)g \quad (3-12)$$

ここで、 ρ_p は粒子の密度 [kg m^3]である。最小流動化ガス速度 U_{mf} [m s^{-1}]は固定層、流動層での圧損が等しいときの空塔速度なので、(3-11)、(3-12)を等値し、無次元数で整理すると、次のレイノルズ数に関する2次方程式が得られる。

$$1.75a \text{Re}_{mf}^2 + 150b \text{Re}_{mf} - Ar = 0 \quad (3-13)$$

ここで、 a 、 b 、 Ar はそれぞれ以下のようになる。

$$a = \frac{1}{\phi \varepsilon_{mf}^3} \quad (3-14)$$

$$b = \frac{1 - \varepsilon_{mf}}{\phi^2 \varepsilon_{mf}^3} \quad (3-15)$$

$$Ar = \frac{d_p^3 \rho_g (\rho_p - \rho_g) g}{\mu^2} \quad (3-16)$$

(3-13)を Re_{mf} について解くと、次のようになる。

$$Re_{mf} = \sqrt{C_3^2 + C_4 Ar} - C_3 \quad (3-17)$$

C_3 、 C_4 はそれぞれ以下で与えられる。

$$C_3 = \frac{42.857b}{a} \quad (3-18)$$

$$C_4 = \frac{0.571}{a} \quad (3-19)$$

(3-17)の右辺の値を、(3-14)、(3-15)、(3-16)、(3-18)、(3-19)を用いて計算し、(3-8)に代入することで、 U_{mf} が計算できる。つまり、粒子やガスの物性値、粉体の充填条件や装置条件などによって規定される層平均の空隙率 ϵ_{mf} が与えられると、 U_{mf} は計算することができる。しかし、 ϵ_{mf} は予測することが難しく、直接実測するか、既往の実測値から近似的に評価しなくてはならない。また、形状係数 ϕ [-]も評価は困難である。そこで、Wen Yu らは、134の文献から ϵ_{mf} と ϕ の関係を調べ

$$C_3 = 33.7 \quad (3-18')$$

$$C_4 = 0.0408 \quad (3-19')$$

で近似し、標準偏差 34%で U_{mf} を推算できる式を提案した^[28]。Wen Yu らが提出した式は U_{mf} の推算式として最も広く利用されている。

また、最小流動化ガス速度は、実験では空塔速度に対する層内の圧力損失の変化から

計測する。Fig. 3-5 に圧力損失計測の一例を示す。流動化ガス速度が遅い領域では固定層が形成されており、層内の圧力損失は空塔速度に比例して変化する。一方、流動化状態では層内の圧力損失はほぼ一定となる。Fig. 3-5 のように、これらの直線の交点から最小流動化ガス速度は見積もられる。

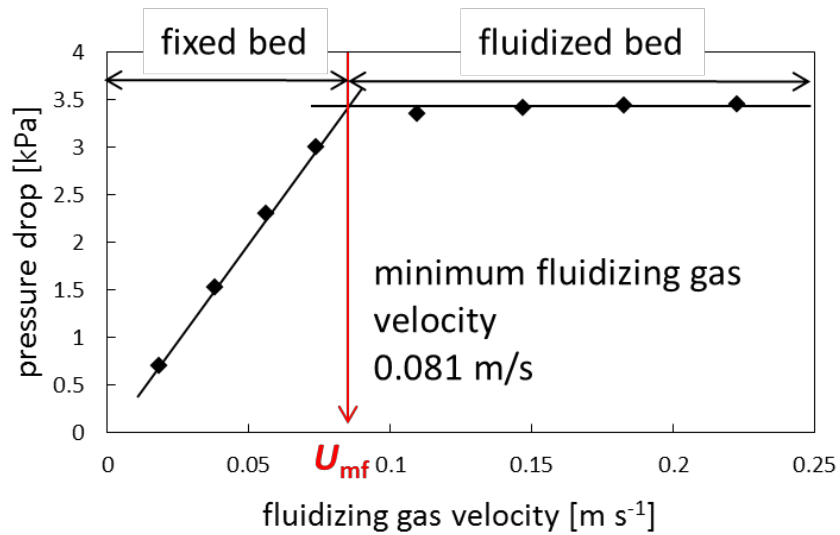


Fig. 3- 5 Variation in pressure drop vs. fluidizing gas velocity.

3. 3. 流動層蒸発器

エネルギー消費量が小さく、伝熱面へのスケール析出を抑制できる乾燥プロセスを実現するために、蒸発器に流動層の利用を提案した。Fig. 3- 6 に流動層蒸発器の模式図を示す^[29]。固体粒子は層内に挿入された伝熱管によって加熱されるとともに層底部から供給されるガスによって流動化される。海水は層上部から供給され、加熱された流動粒子と接触する。

この装置では、熱容量の大きい微細な粒子が流動化しているので、海水を供給しても、粒子と接触することで、素早く蒸発させることが可能であると考えられる。また、海水の蒸発は、加熱された流動粒子の表面でおこるので、伝熱管表面にスケールの析出が生じにくいと考えられる。仮に伝熱管表面にスケールが析出したとしても、流動粒子によって削り取られると予想される。したがって、流動層蒸発器は伝熱管表面へのスケール析出を抑制することが可能であると考えられる。

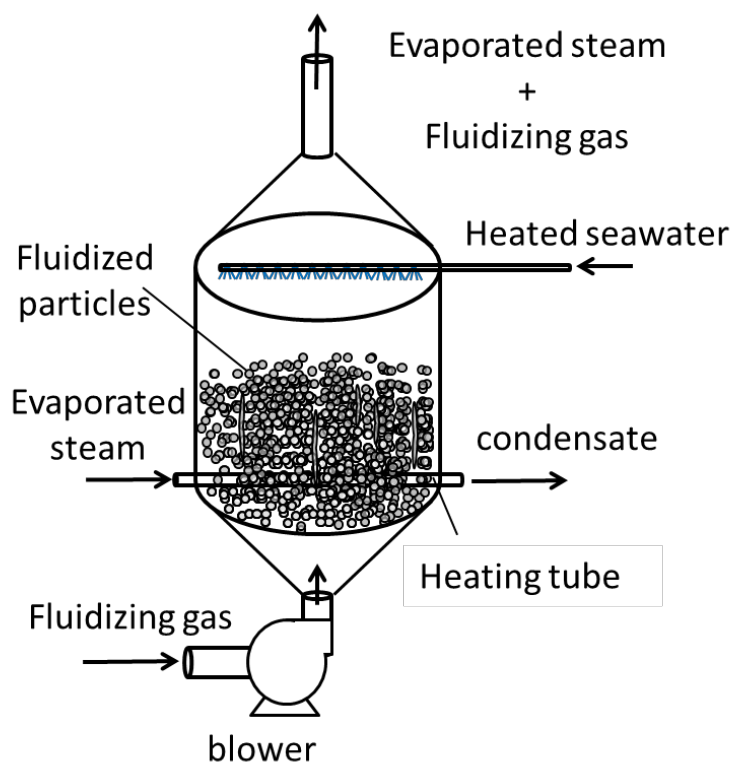


Fig. 3- 6 Schematic diagram of the proposed fluidized bed evaporator.

3. 4. 流動層での海水蒸発実験

3. 4. 1. 実験装置

流動層を海水の蒸発に利用することが可能であるか、また海水の蒸発が可能な場合、伝熱面へのスケール析出を抑制することが可能であるか、を検討するために、流動層蒸発器を作製し海水蒸発実験をおこなった。Fig. 3-7 に実験装置の写真とその模式図を示す。流動層は、外部から流動層内部が観察できるようにガラスで作成した(桐山製作所製)。層高、内径はそれぞれ 500 [mm]、89 [mm]である。流動層には温度計などを挿入するポートを、5 [mm]、15 [mm]、25 [mm]、35 [mm]、45 [mm] の各高さに 2 個ずつ、計 10 個用意した。流動層に備え付けた各高さのポートから K 型熱電対を挿入し、それぞれの高さにおける温度を計測した。粒子の支持板(流動化ガスの分散板)として、細孔の大きさが 100~160 [μm] の桐山製作所製ガラスフィルター(型式 No. 1)を利用した。また分散板の直前に圧力センサー(横河電機製高精度小形圧力センサー 型式 FP101A-C31-L20A*B/VT)を取り付け流動層での圧力損失の変化を計測した。ロガーはキーエンス製 TR-V550 を利用しサンプリング周波数 1 [Hz] でデータ収集を行った。流動粒子はガラスビーズを利用し(ポッターズバロティニー製 J-54、平均粒径 334 [μm]、密度 2.5 [g cm^{-3}]、静止層高が 250 [mm] になるように層内に充填した。また、流動化ガスとして乾燥空気を利用し、空等速度 0.27 [m s^{-1}] で層内に供給した。本実験装置の最小流動化ガス速度は予備実験の結果(Fig. 3-5) 8.1 [cm s^{-1}] である。供給液として Table 3-3 に示す模擬海水を使用し^[30]、内径が 1.6 [mm] のシリコンチューブ(マスターフレックス製シリコンチューブ 型式 96400-14)を装着したチュービングポンプ(マスターフレックス製 型式 07528-10)を用いて、流速 10 [g min^{-1}] で層内に供給した。流動層は潜熱交換器として利用するので、海水は層内供給前に 98 [$^{\circ}\text{C}$] に設定したオイルバス(東京硝子器械株式会社製、型式 FOB-240D)で予熱した。海水を蒸発させるための熱量を供給するために直径 16 [mm]、長さ 200 [mm] のステンレス製のカートリッジヒーターを層内に挿入した。同時に、このカートリッジヒーターで層内の温度が 140 [$^{\circ}\text{C}$] となるように制御した。海水蒸発実験をおこなう前に、ヒーターは紙やすり(600、2000 グリッド)で磨いたのち、アセトン、硫酸、蒸留水でヒーター表面を処理した。海水蒸発実験時の流動層の挙動は外部からビデオカメラで撮影した。実験前後のヒーター表面の状態を比較するために、海水蒸発実験前後でヒーターの写真を撮影した。同時に、海水蒸発実験前後のヒーターの重さを計測し、スケールの析出量を計測した。さらに、既存の蒸発法における、海水の蒸発に伴う伝熱管表面へのスケール析出を確認するために、ビーカーに 500 [ml] の模擬海水を注ぎ、その中にヒーターを浸して、海水蒸発実験をおこなった。

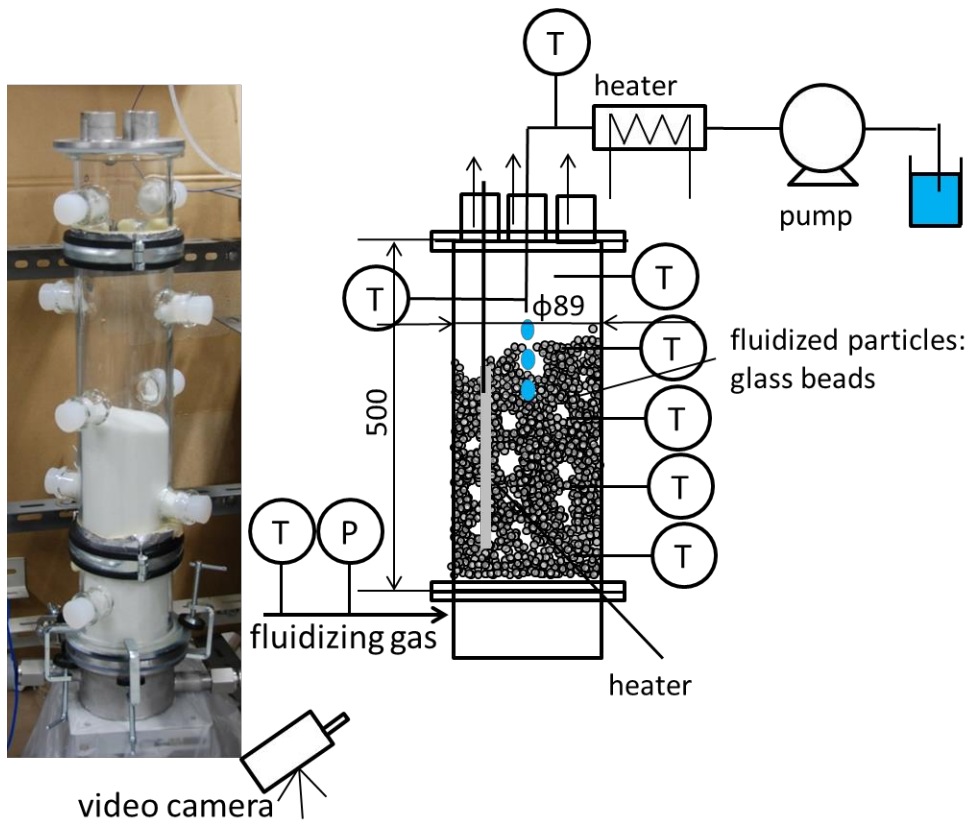


Fig. 3- 7 Experimental setup.

Table 3- 3 Formula for artificial seawater.

Composition	Mass [g]
Distilled water	1000
NaCl	23.9
Na ₂ SO ₄	4.01
KCl	0.677
NaHCO ₃	0.196
KBr	0.098
MgCl ₂ 6H ₂ O	10.8
CaCl ₂ 2H ₂ O	1.52

3. 4. 2. 実験結果と考察

流動層を蒸発器として利用することが可能であるか明らかにするために、ヒーターを層内に挿入せず常温の流動層に海水を注入する実験と、140 [°C] に加熱した流動層に海水を注入する実験を行った。常温の流動層に海水を注入する実験では、Fig. 3- 8 に示すように非流動化が生じた。この図から、層の上部は流動化していないが、層底部は流動化が持続していることがわかる。これは、海水を層上部から供給したために層上部の粒子は凝集し非流動化が生じたが、層底部では供給した海水の影響がなかったため非流動化が生じなかったのだと考えられる。一方、層内温度が 140 [°C] の海水蒸発実験では上述の実験と等量の海水を供給しても流動化は持続した。これは、供給した水分の大部分は蒸発したことを示唆していると考えられる。したがって、流動層は海水の蒸発に利用することが可能であると考えられる。

次に、流動層蒸発器のスケール抑制効果について検討を行った。

Fig. 3- 9 に既存の蒸発法を模擬し、伝熱管表面で海水を蒸発させた実験前後のヒーター表面の写真を示す。上段は実験前、下段は実験後である。この写真から、実験後の伝熱管表面は塩類で覆われていることが確認できる。また、ヒーターの質量は、実験前が 188.3 [g] であったのに対し、実験後は 201.5 [g] となり、13.2 [g] 増加した。

Fig. 3- 10 に流動層蒸発器で 500 [ml] の海水を蒸発させた実験前後のヒーター表面の写真を示す。上段、下段はそれぞれ実験前、実験後である。この写真から、伝熱管表面にはスケールはほとんど析出していないことがわかる。実際、実験前後のヒーターの質量は、実験前が 188.4 [g]、実験後が 188.5 [g]であり、ほとんど変化しなかった。



Fig. 3- 8 Defluidization.

Before experiment (188.3 g)



After experiment (201.5 g)



Fig. 3- 9 Pictures of heat before and after 500 ml seawater evaporation in beaker.

Before experiment (188.4 g)



After experiment (188.5 g)



Fig. 3- 10 Pictures of heater before and after 500 ml seawater evaporation in fluidized bed.

上述の実験では 500 [ml]の海水を蒸発し、伝熱面へのスケール析出を評価した。さらに 1000 [ml]、1500 [ml] の海水を蒸発させた際の伝熱面へのスケール析出挙動について検討を行った。500 [ml] の海水が蒸発したのち、海水の供給、ヒーターの加熱を止め、ヒーターを流動層から取り出しその質量を計測した。その後、ヒーターを再び流動層に取り付け、粒子を加熱した。層内温度が 140 [°C] に達したのち、海水の供給を再開した。海水蒸発実験は同じ条件で 2 回行った。Fig. 3- 11 にスケール析出量と供給海水量の関係を示す。海水供給量を増やしてもヒーターへのスケール析出量はほとんど変化しなかった。500 [ml] の海水を蒸発させた直後にヒーターの質量が増加しているのは、ヒーターの導線を保護している熱収縮チューブに流動粒子が付着したためである。Fig.

3- 12 に流動層型蒸発器で海水を蒸発させた場合と、海水で満たしたビーカーにヒーターを浸し蒸発実験をおこなった場合（四角マーカー）の海水蒸発量とスケール析出量の関係を示す。海水に浸されたヒーターは海水の蒸発量が増加するに従い、ヒーターへのスケール析出量が増加していくが、流動層蒸発器内のヒーターの質量はほとんど変化しなかった。以上の結果から、流動層蒸発器は伝熱管表面へのスケール析出を抑制できることが明らかとなった。

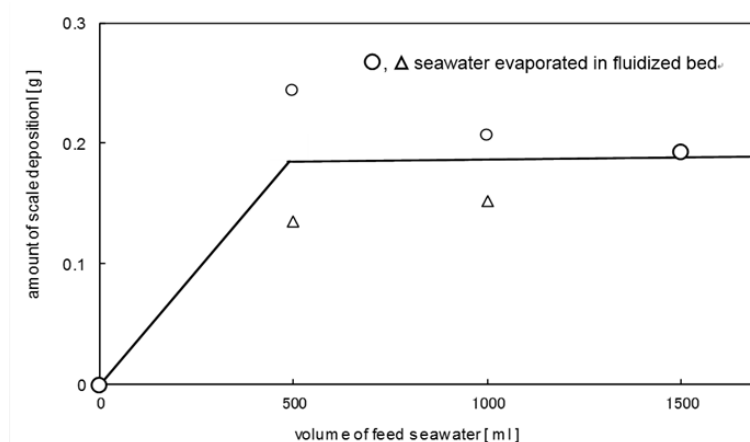


Fig. 3- 11 Amount of scale deposition vs. volume of feed seawater in fluidized bed.

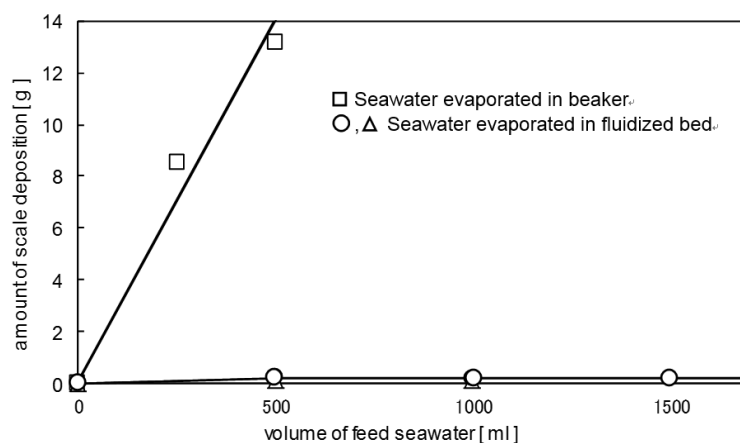


Fig. 3- 12 Amount of scale deposition vs. volume of feed seawater in beaker and fluidized bed.

3.5. まとめ

本章では、海水淡水化プロセスによる周辺海域への影響を少なくするために、濃縮海水が排出されない海水淡水化プロセスについて検討を行った。濃縮海水を排出させないためには供給する海水を全て蒸発させる必要がある。しかしながら、従来から利用されている蒸発法では、伝熱管表面にスケールが析出するので、回収率を大きくすることができない。また、製塩工程などで利用されている乾燥プロセスはエネルギー消費量が大きい問題や、蒸発法同様、伝熱面にスケールが析出する問題がある。そこで、流動層蒸発器を利用した新たな海水乾燥プロセスを提案した。粒子は、層底部から流入するガスによって流動化され、層内に挿入された伝熱管によって加熱される。海水は層上部から供給され、加熱された流動粒子と接触する。

流動層を海水の蒸発に利用することが可能であるか、また海水の蒸発が可能な場合、伝熱面へのスケール析出を抑制することが可能であるか、を検討するために、流動層蒸発器を作製し海水蒸発実験をおこなった。実験の結果、流動層は海水の蒸発器として利用することが可能であり、さらに既存の蒸発器とは異なり、伝熱管表面へのスケール析出を抑制できることを確認した。

以上より、蒸発器に流動層を利用することで伝熱面へのスケール析出を抑制できる新たな乾燥プロセスを実現できると考えられる。

-
- [1] 日本海水学会・ソルト・サイエンス研究財団編, 海水の科学と工業, (1994), 東海大学出版会.
- [2] S. A. Jenkins, J. Paduan, P. Roberts, D. Schlenk, J. Weis, "Management of Brine Discharges to Coastal Waters; Recommendations of a Science Advisory Panel," Southern California coastal water research project technical report, 694 (2012).
- [3] M. M. Nederlof, J. A. M. van Paassen, R. Jong, "Nanofiltration concentrate disposal: experiences in The Netherlands," *Desalination*, 178 (2005) 303-312.
- [4] A. Neilly, V. Jegatheesan, L. Shu, "Evaluating the potential for zero discharge from reverse osmosis using integrated processes – A review," *Desalination and Water Treatment*, 11 (2009) 58-65.
- [5] S. O. Odu, A. G. J. van der Ham, S. Metz, S. R. A. Kersten, "Design of a process for supercritical water desalination with zero liquid discharge," *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 54 (20) (2015) 5527-5535.
- [6] N. M. Wade, "A review of scale control methods," *Desalination*, 31 (1979) 309-320.
- [7] 財団法人塩事業センター編, 海水と製塩-データブック, (2006), 財団法人塩事業センター.
- [8] 和泉健吉, "多段フラッシュ蒸発式海水淡水化装置におけるスケールの生成と防止," *日本海水学会誌*, 39(6) (1986) 371-392.
- [9] A. M. Shams El Din, M. E. El-Dahshan, R. A. Mohammed, "Inhibition of the thermal decomposition of HCO_3^- - a novel approach to the problem of alkaline scale formation in seawater desalination plants," *Desalination*, 142 (2002) 151-159.
- [10] D. Hasson, D. Bramson, B. Limoni-Relis, R. Semiat, "Influence of the flow system on the inhibitory action of CaCO_3 scale prevention additives," *Desalination*, 108 (1996) 67-79.
- [11] R. Greffrath, *Scaling in Seawater Desalination: Is Molecular Modeling the Tool to Overcome the Problem?*, (2001) Shaker Verlag.
- [12] Z. Amjad, "Calcium Sulfate Dihydrate (Gypsum) Scale Formation on Heat Exchanger Surfaces: The Influence of Scale Inhibitors," *Journal of Colloid and Interface Science*, 123(2) (1987) 523-536.

-
- [1 3] Martin's Marine Engineering, Effect of Scaling on Design and Operation of Thermal Seawater Desalination Plants,
<http://www.dieselduck.net/machine/05%20steam/2002%20FWG%20and%20Scaling.pdf> Accessed on Jan. 26, 2013.
- [1 4] M. Aziz, Y. Kansha, A. Kishimoto, Y. Kotani, Y. Liu, A. Tsutsumi "Advanced energy saving in low rank coal drying based on self-heat recuperation technology," *Fuel Processing Technology*, 104 (2012) 16-22.
- [1 5] Y. Liu, M. Aziz, Y. Kansha, S. Bhattacharya, A. Tsutsumi, "Application of the self-heat recuperation technology for energy saving in biomass drying system," *Fuel Processing Technology*, 117 (2014) 66-74.
- [1 6] 化学工学会編, 流動層, (1992), 槇書店.
- [1 7] D. Kunii, O. Levenspiel, Fluidization Engineering second edition, (1991), Butterworth-Heinemann.
- [1 8] 日本粉体工業技術協会編, 流動層ハンドブック, (1999), 培風館.
- [1 9] 千葉忠俊他, 流動層概論, (1996), 朝倉書店.
- [2 0] A. W. Veenman, "The MSF/FBE: an improved multi-stage flash distillation process," *Desalination*, 19 (1976) 1-14.
- [2 1] J. A. M. Meijer, G. M. Van Rosmalen, "Scale inhibition of calcium sulphate by a fluidized bed," *Desalination*, 34 (1980) 217-232.
- [2 2] H. K. Kang, B. C. Lee, S. W. Ahn, J. W. Choi, S. H. An, "Numerical and experimental analyses of anti-fouling and heat transfer in the heat exchanger with circulating fluidized bed," *the Canadian journal of chemical engineering*, 89 (2011) 240-253.
- [2 3] Z. Libin, L. Xiulun "A study on boiling heat transfer in three-phase circulating fluidized bed," *Chemical Engineering Journal*, 78 (2000) 217-223.
- [2 4] M. Arumemi-Ikhide, K. Sefiane, G. Duursma, D. Glass, "Investigation of flowboiling in circulating three-phase fluidised bed Part I: Experiments and results," *Chemical Engineering Science*, 63 (2008) 881-895.
- [2 5] W. Jianping, Z. Huai, L. Xiulun, "Performance of a new vapor-liquid-solid three-phase circulating fluidized bed evaporator," *Chemical Engineering and processing*, 43 (2004) 49-56.
- [2 6] D. Geldart, "Types of gas fluidization," *powder technology*, 7 (1973) 285-292.

-
- [2 7] S. Ergun, "Fluid flow through packed columns," *Journal of Chemical Engineering Progress*, 48(2) (1952) 89-94.
- [2 8] C. Y. Wen, Y. H. Yu, "Mechanics of fluidization," *the chemical engineering progress symposium series*, 162 (1966) 100-111.
- [2 9] H. Mizuno, Y. Kansha, M. Ishizuka, A. Tsutsumi, "A novel thermal desalination process using fluidized bed," *Chemical engineering transactions*, 39 (2014) 181-186.
- [3 0] D.R. Kester, I.W. Duedall, D.N. Connors, R.M. Pytkowicz, "Preparation of artificial seawater," *Limnol. Oceanogr*, 12 (1967) 176-179.

4. 流動層内における凝集体成長・堆積挙動

4.1. はじめに

3章では流動層を蒸発器として利用することで伝熱管表面へのスケール析出を抑制できることを確認した。そこで、流動層蒸発器を連続かつ安定的に運転することで、エネルギー消費量が小さく、伝熱面にスケールが析出しない革新的な乾燥プロセスの実現が期待される。しかしながら、流動層に付着性物質（液体やアルカリ成分など）が存在すると、流動粒子の凝集・堆積が生じ、最終的に、層全体の流動化が停止する非流動化を引き起こす可能性がある。非流動化が生じると伝熱、蒸発速度が低下し、省エネルギーな乾燥プロセスを構築することが困難になる。実際、3章で作製した流動層で海水蒸発実験を行うと、層底部に凝集体が堆積することを確認した（Fig. 4-1）。そこで、流動層を安定的に蒸発器として利用するためには層内の凝集体成長・堆積のメカニズムを明らかにすることが重要だと考えられる。

流動層内における流動粒子の凝集に関する研究は今までもおこなわれてきた。Maらは流動層蒸発器に塩分を含む溶質を供給し、塩分濃度、層内温度、空塔速度、層高、流動粒子の種類が凝集に与える影響について検討を行ってきた^[1]。Arenaらは流動層にプラスチック廃棄物を供給し、廃棄物の供給速度、空塔速度、流動粒子の大きさが流動状態に与える影響について検討を行ってきた^[2]。他にも流動層内に、わら^{[3],[4]}、アルカリ金属を含んだ試料^{[5],[6],[7]}、液体試料^{[8],[9],[10],[11]}を供給した際の流動挙動に関する検討が行われてきた。

本研究では、これらの結果を受け、安定した運用が可能な流動層蒸発器の運転条件を明らかにするために、凝集体成長・堆積モデルの構築を行った。さらに、流動層で海水蒸発実験を行い、構築したモデルの妥当性について検討を行った。また、提案したモデルと実験から、流動層を蒸発器として運転することが可能な条件を導出した。

近年、コンピューター性能の上昇に伴い、数値シミュレーションを利用した流動層の研究が盛んに行われている^{[12],[13],[14]}。最も広く利用されている粉体シミュレーション手法の一つに離散要素法（DEM）がある。DEMは解析の対象を自由に運動できる球などの集合体としてモデル化し、要素間の接触を考慮して各時刻におけるそれぞれの要素の運動を逐次追跡、解析する手法である。DEMなどのシミュレーション手法を利用すると、実験装置を作製する必要がないので、時間的、コスト的にメリットがある。また粒子一つ一つの挙動を観察することが可能である。しかしながら、コンピューターの計算処理能力の点からDEMでは計算粒子数の上限が数10万個程度と少なく、3次元流動層での粒子の挙動を表現することが難しい。さらに、層内に固相、液相、気相が存

在し、同時にスケールの析出が生じる条件では、流動層内の挙動を計算することが困難である^[16]。

本研究では流動層蒸発器を海水の蒸発に利用できる条件を明らかにするためにモデルの構築を行うので、実際に3次元の流動層蒸発器を作製し、層内で海水蒸発実験を行い、現象論的なアプローチによってモデルの構築を行った。



Accumulated agglomerates

Fig. 4- 1 Agglomerates accumulation.

4. 2. 凝集体成長・堆積モデルの構築

4. 2. 1. 凝集体の成長・堆積

Fig. 3-7 で示した流動層蒸発器で模擬海水を蒸発させる実験を行ったところ、流動層底部に凝集体が堆積した。モデル化のために、実験を子細に観察し、この過程は以下 4 つの段階で生じると仮定した。

- (1) 層内に供給する液体は凝集体を形成する
- (2) 凝集体は層内で流動化され、同時に熱を受け取り、凝集体内の水分が蒸発する
- (3) 水溶液中の溶質が粒子間に析出する
- (4) 溶質の析出によって形成された凝集体が層底部に堆積する

以上の過程では、流動層内で働く力が凝集体の成長・堆積に大きく影響すると考えられる。そこで、層内で働く力について検討を行った。

4. 2. 2. 流動層内で働く力

流動層内で働く力は付着力として、次の 4 種類、ファンデルワールス力、静電気力、液架橋力、固体架橋力が考えられる。また、分離力として次の 3 種類、重力、流動化ガスによる流体抗力、気泡の上昇によるせん断力が考えられる。

それぞれの力は以下のように計算した。

二つの球形粒子間に働くファンデルワールス力 F_v [N] は次式で表される^[15]。

$$F_v = \frac{A}{12z^2} d_p \quad (4-1)$$

ここで、 A 、 z 、 d_p はそれぞれハマーカ一定数 [J]、粒子間の距離 [m]、そして粒子の平均粒径 [m] である。

空間に二つの帯電粒子が存在するとき、二つの粒子間に働く静電気力 F_e [N] は次の式で表される^[15]。

$$F_e = \frac{\pi\sigma_1\sigma_2}{4\epsilon_r\epsilon_0} \times \frac{d_p^4}{(z+d_p)^2} \quad (4-2)$$

ここで、 σ_1 、 σ_2 はそれぞれの粒子の表面電荷密度 [C m⁻²]。 ϵ_r 、 ϵ_0 は、比誘電率 [-]、真空の誘電率 [C² J m⁻¹] である。

二粒子間に働く液架橋力 F_L [N] は、重力の影響を考慮せず、また接触角を 0° とすると次式で表される^[16]。

$$F_L = 2\pi R_2 \sigma + \pi R_2^2 \Delta P \quad (4-3)$$

ここで、 R_2 は Fig. 4-2 に示す二粒子間液架橋の最狭部の半径 [m]、 σ は表面張力 [N m^{-1}]、 ΔP は液架橋内の負圧 [kPa] で、次の Young-Laplace 式

$$\Delta P = \sigma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \quad (4-4)$$

で表される。ここで、 R_1 、 R_2 はそれぞれ次式、

$$R_1 = \left\{ 1 + \left(\frac{dY}{dX} \right)^2 \right\}^{3/2} / \left(\frac{d^2Y}{dX^2} \right) \quad (4-5)$$

$$R_2 = Y \left\{ 1 + \left(\frac{dY}{dX} \right)^2 \right\}^{1/2} \quad (4-6)$$

で計算される。(4-3) は数値的に解くことが可能であり、標準偏差 5.2% 以内で F_L を推算できると報告されている^[17]。遠藤らは数値解析から (4-3) で求める液架橋力は、Fig. 4-2 に示す、最狭部の半径 R_2 、粒子間間隙 H の関数で、次式

$$F_L = 2\pi d_p \sigma \quad (4-7)$$

で示す最大値を持つことを明らかにした^{[18][19]}。 $d_p = 2r_0$ である。本研究では、(4-7) を利用して F_L を計算した。

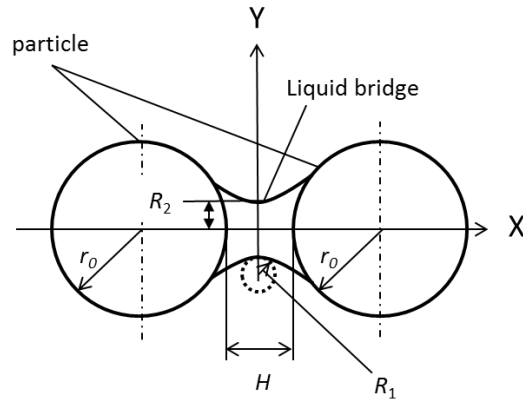


Fig. 4- 2 Liquid bridge between two spheres.

固体架橋力 F_S [N]は次式で求められる。

$$F_S = \frac{\pi d_p^2}{4} \sigma_{neck} \quad (4-8)$$

ここで、 σ_{neck} は引張強さ [N m⁻²] である。しかしながら、 σ_{neck} の値は評価することが難しい。遠藤らは海水中の塩類が形成する固体架橋力の大きさは、(4-7) で求めた液架橋力よりも 1 桁から 2 桁大きいと報告している^[19]。したがって、本研究では、固体架橋力は次式

$$F_S = 100F_L \quad (4-9)$$

を用いて計算した。

重力 F_g [N]は次の式で表される。

$$F_g = \frac{\pi \rho_p g d_p^3}{6} \quad (4-10)$$

ここで、 ρ_p 、 g はそれぞれ、粒子の密度 [kg m⁻³]、重力加速度 [m s⁻²] である。

流動化ガスによって粒子に働く流体抗力 F_d [N] の計算には次の式が提出されている^{[20]・[21]・[22]}。

$$F_d = C_d \left(\frac{\pi d_p^2}{4\phi} \right) \frac{\rho_g U_r^2}{2} \quad (4-11)$$

ここで、 ϕ 、 ρ_g 、 U_r はそれぞれ、形状係数 [-]、気体の密度 [kg m^{-3}]、粒子と流動化ガスの相対速度 [m s^{-1}] である。 C_d は抵抗係数 [-] で次の式で記述される。

$$C_d = \frac{24}{\text{Re}_p} \quad (\text{Re}_p < 5.76) \quad (4-12)$$

Re_p は粒子レイノルズ数 [-] で次のように定義されている。

$$\text{Re}_p = \frac{\rho_g U_r d_p}{\mu} \quad (4-13)$$

ここで、 μ は気体の粘度 [Pa s] である。また、 U_r [m s^{-1}] は次の式で計算できる。

$$U_r = (1-a)U_g \quad (4-14)$$

この式で、 a はガス速度に対する粒子速度の割合 [-] である。層内の空隙を流れるガス速度 U_g [m s^{-1}] は次の式で表される。

$$U_g = \frac{U_0}{(1-\varepsilon)} \quad (4-15)$$

ここで、 U_0 、 ε はそれぞれ空塔速度 [m s^{-1}]、ボイド率 [-] である。

流動層は気泡層とエマルジョン層の 2 つから構成されるという二相説で考えられている^[23]。このモデルでは、層を流動化開始状態を保つのに必要なガスはエマルジョン層を流れ、それ以外は気泡となって層内を上昇する。そこで、気泡によって働く力は流動層状態に大きな影響を与えると考え、以下のモデルで気泡の上昇による力を検討した。気泡の上昇による力（せん断力）は気泡が流動層内を上昇するとき、気泡周囲にある粒

子 $N[-]$ 個に浮力 $F[\text{N}]$ が均等に働くと考えた(Fig. 4-3)。層内を上昇する単一気泡の速度 $U_{b\infty} [\text{m s}^{-1}]$ は次の式で表されることが実験的に確認されている^[24]。

$$U_{b\infty} = 0.711\sqrt{gD_b} \quad (4-16)$$

ここで、 $D_b [\text{m}]$ は気泡の直径である。この式は流動層内の気泡は層高に関わらず一定の速度を持つことを示している。したがって、気泡の浮力は粒子に働くせん断力と釣り合っていると考えられる。Fig. 4-3 に示す関係から、粒子一つに働く気泡の上昇によるせん断力 $F_b [\text{N}]$ は次の式で表される。

$$F_b = \frac{F}{N} \quad (4-17)$$

ここで、 $F[\text{N}]$ 、 $N[-]$ はそれぞれ、浮力、気泡の周りに存在する粒子の量である。浮力は次式で表される。

$$F = (1-\varepsilon)\rho_p gV \quad (4-18)$$

ここで、 V は気泡の体積 $[\text{m}^3]$ である。

粒子の周りに存在する粒子の個数 N は、幾何学的な計算から

$$N = \frac{\pi D_b^3}{d_p^3} \quad (4-19)$$

とあらわされる。気泡径の推算式は以下のように与えられている^[25]。

$$D_b = D_{bm} - (D_{bm} - D_{b0}) \exp\left(-\frac{0.3z}{D_t}\right) \quad (4-20)$$

ここで、 $D_{bm} [\text{m}]$ 、 $D_{b0} [\text{m}]$ 、 $z [\text{m}]$ 、 $D_t [\text{m}]$ はそれぞれ、最大到達可能気泡径、生成気

泡径、層高、流動層の直径である。 D_{bm} [m] は気泡間距離が $4D_b$ 以上になるとそれ以上気泡の合体は起こらないという考えに基づいて得られる気泡径で、次式で表される^[25]。

$$D_{bm} = 0.59g^{-0.2}[(U_0 - U_{mf})A_t]^{0.4} \quad (4-21)$$

ここで、 U_{mf} [$m\ s^{-1}$]、 A_t [m^2]は、最小流動化速度、層の断面積である。また多孔板上の生成気泡径の計算式は、次式

$$D_{b0} = 0.376(U_0 - U_{mf})^2 \quad (4-22)$$

で表される。最小流動化ガス速度は Fig. 3-5 に示す実験によって決定した。

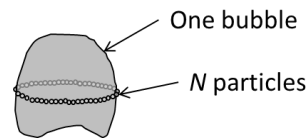


Fig. 4- 3 Schematic of N particles around bubble.

以上の7つの力を計算した結果を Fig. 4-4 に示す。また、計算に利用した値を Table 4-1 に示す。液架橋力を計算するときを利用した表面張力の値は、100 [°C] の純水の飽和溶液の値を利用している。Table 4-2 に純水と、3.5%海水の表面張力の各温度での値を示す。この表からわかるように相対誤差は1%程度なので、表面張力に純水の値を利用しても結果への影響は小さいと考えられる。Fig. 4-4 は、流動層内で働く力は、液架橋力、固体架橋力、また気泡の上昇によるせん断力（以下、気泡のせん断力と表現）が支配的であり、ファンデルワールス力、静電気力、重力、流体抗力の影響は非常に小さいことを示している。静電気力は、空気中の放電限界を 3.0×10^6 [V m⁻¹] とした時の粒子の最大表面電荷密度を利用して計算した。一方、流動層内に液を供給すると、層内の粒子にほとんど電荷はたまらないと報告されている^[26]。したがって、実際の静電気力は Fig. 4-4 で示した値よりも小さいと予想される。

層内に供給した液体は、流動化している粒子と接触し、まず液架橋により凝集体を形成する。そこで、液架橋によって生じた凝集体成長・堆積挙動を明らかにするために、液架橋力と気泡のせん断力について検討を行った。

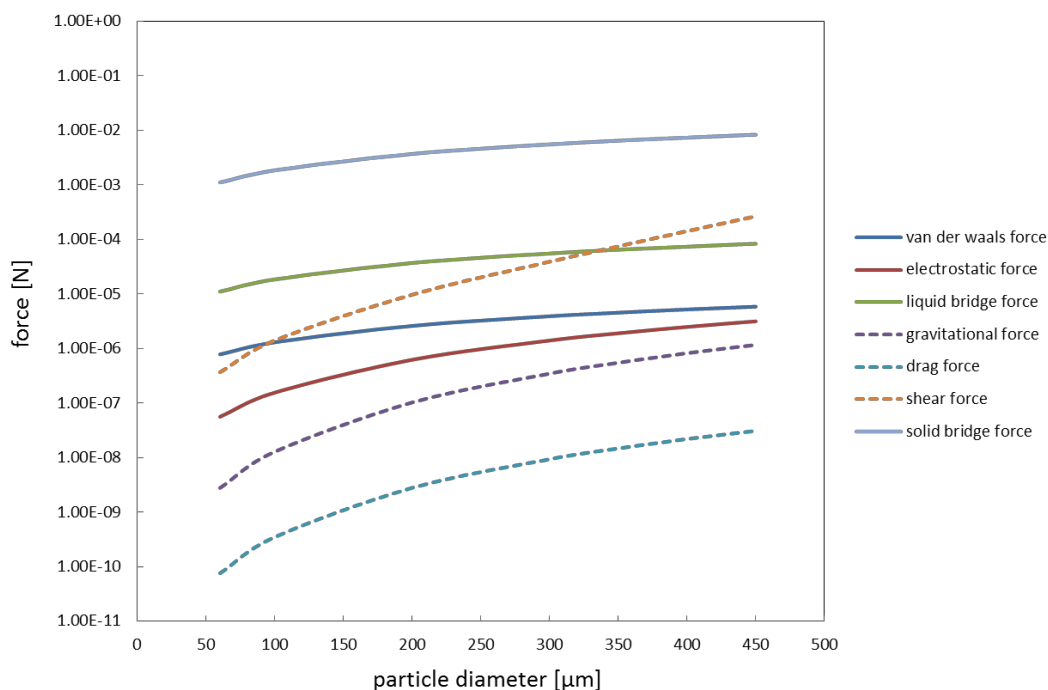


Fig. 4-4 Summary of forces working in fluidized bed.

Table 4- 1 Parameters for the calculation of forces.

symbol	Value
A (Hamaker coefficient [-])	5.00×10^{-20}
z (particle surface distance [m])	4.00×10^{-10}
σ_c (surface charge density [C/m ²])	26.5×10^{-6}
ϵ_r (relative permittivity [-])	1.00
ϵ_0 (vacuum permittivity [F/m])	8.85×10^{-12}
σ (surface tension [N/m])	5.89×10^{-2}
ρ_p (particle density [kg/m ³])	2.50×10^3
g (gravitational acceleration [m/s ²])	9.81
ρ_f (gas density [kg/m ³])	0.842
A_t (cross sectional area of bed [m ²])	6.22×10^{-3}
μ (gas viscosity [Pa·s])	2.37×10^{-5}
ϵ, ϵ_{mf} (voidage [-])	0.5
F_s (Solid bridge force [N])	$100 F_L^{-1}$
au_g (particle velocity [m/s])	$0.5u_g$
U_0	$2.5 U_{mf}$

Table 4- 2 Surface tension.

	0 [°C]	10 [°C]	20 [°C]	30 [°C]
Water	75.62	74.23	72.75	71.20
3.5% Seawater	76.41	74.97	73.53	72.09
Relative error [%]	1.03	0.99	1.06	1.23

Fig. 4- 5 に液架橋力と気泡のせん断力の大きさの関係を示す。実線は液架橋力、点線は各空塔速度における気泡のせん断力である。空塔速度 U_0 は $U_0 = 0.13, 0.15, 0.20, 0.26$ [m/s] を代入して計算し、それ以外の値は Table 4- 1 と同じ仮定で計算した。空塔速度が速いほど、また層高が高いほど気泡のせん断力も大きくなった。これは、空塔速度が速いほど、また層高が高いほど、気泡が大きくなり、その際、気泡周囲に存在する粒子の個数 $N[-]$ の増加割合よりも、浮力 F [N] の増加割合の方が大きくなるためである。各空塔速度における気泡のせん断力は、層高 10 [mm] ごとに計算し、層底部から静止層高までの算術平均として計算した。さらに、液架橋力と気泡のせん断力が釣り合う時の空塔速度を U_{eq} と定義した。Fig. 4- 5 の計算条件では $U_{eq} = 0.18$ [m s⁻¹] となっ

た。したがって、凝集体は空塔速度の大きさによって2通りの挙動を示すと考えられる。 U_0 が U_{eq} よりも小さいとき、気泡のせん断力よりも液架橋力の方が大きいので、凝集体は破碎されない(Fig. 4-6 上段)。 U_0 が U_{eq} よりも大きいとき、気泡のせん断力は液架橋力よりも大きいので、Fig. 4-7のように気泡によって液架橋により生じた凝集体は破碎され、小さくなる(Fig. 4-6 下段)。そこで、各条件下において、液架橋で形成された凝集体の挙動について検討を行った。

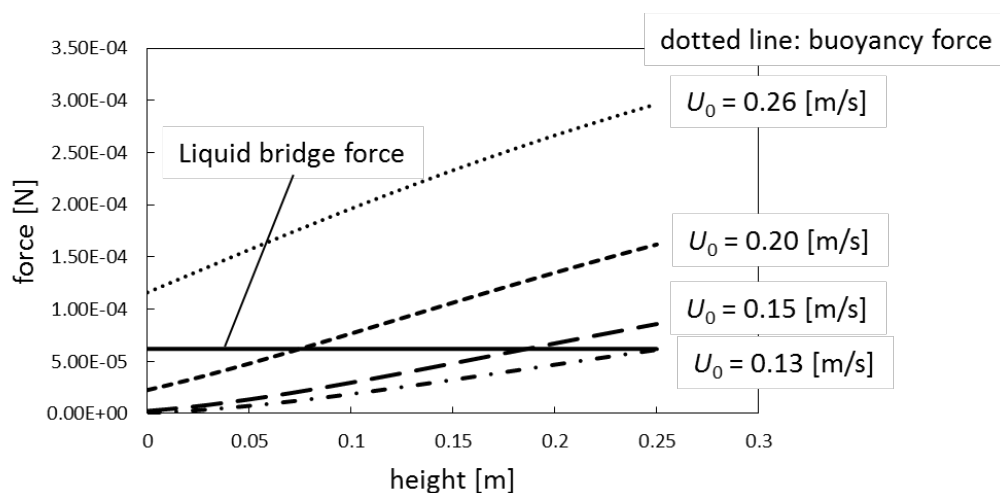


Fig. 4-5 Calculated forces caused by liquid bridge and fluidizing gas.

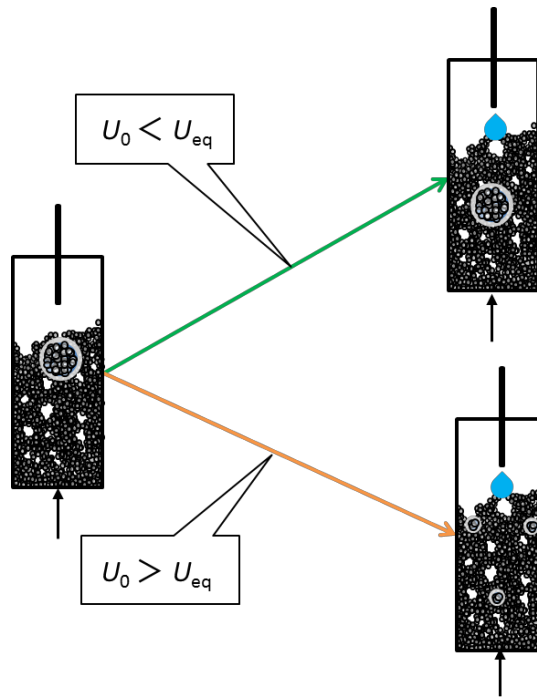


Fig. 4- 6 Agglomerate behavior due to fluidizing gas.

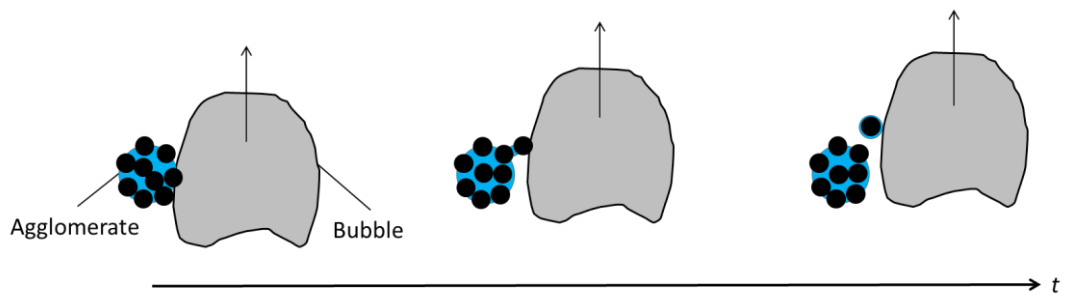


Fig. 4- 7 Schematic of the shearing force working on an agglomerate.

4. 2. 3. 液架橋で形成された凝集体の挙動 (U_0 が U_{eq} よりも小さい場合)

凝集体の層内での挙動について、二成分系の流動層から検討を行った。流動層内に存在する二種類の粒子の密度、または平均粒径が異なると、セグレーションが生じることがある^{[27]、[28]}。この現象は粒子の偏析と呼ばれ、運転条件によって分離が促進される領域と混合が促進される領域に分かれる。沈降する傾向のある粒子、浮上する傾向のある粒子はそれぞれ、沈降性粒子(Jetsam)、浮上性粒子(Flotsam)と呼ばれる。Fig. 4- 8 に空塔速度に対する、沈降性粒子と浮上性粒子の混合度 M (Mixing index) [-] の変化を示す^[29]。混合度 M は (fraction of jetsam in the top portion of the bed) / (fraction in a well-mixed bed) として定義されている。

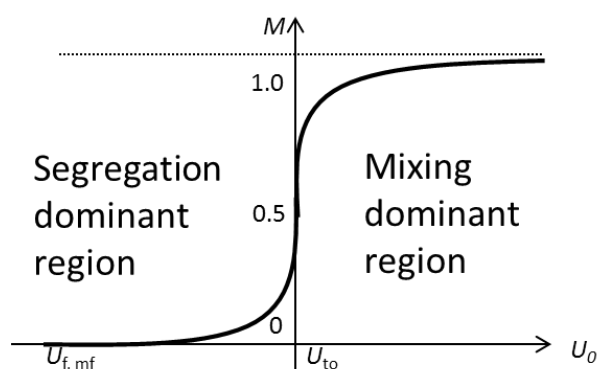


Fig. 4- 8 Variation in mixing index vs. fluidizing gas velocity.

空塔速度が最小流動化ガス速度付近では二種類の粒子は分離が支配的となり、空塔速度が大きくなるに従い混合が促進される。ここで、ある空塔速度から急激に混合が良好になる点が存在する。この速度はテイクオーバー速度 (take over velocity) と呼ばれる。つまり、空塔速度がテイクオーバー速度よりも小さい場合、沈降性粒子は主に層底部に堆積する。テイクオーバー速度の計算式として、Rice らは次式を提案した^[30]。

$$U_0 = (U_{jetsam, mf} \times U_{flotsam, mf})^{0.5} \times (2R_a)^{-0.2} \quad (4-23)$$

ここで、 $U_{jetsam, mf}$ [$m s^{-1}$]、 $U_{flotsam, mf}$ [$m s^{-1}$]はそれぞれ、沈降性粒子の最小流動化ガス速度、浮上性粒子の最小流動化ガス速度である。 R_a [-]は流動層のアスペクト比である。本実験では、沈降性粒子は凝集体、浮上性粒子はガラスビーズ、またアスペクト比は 2.8 [-] (= 層高 / 直径 = 250 / 89) である。ガラスビーズの最小流動化速度は Fig. 3-5 の結果を利用した。凝集体は液架橋で形成されているので、最小流動化ガス速度を実験

的に求めることが難しい。そこで、(3-8)、(3-16)、(3-17)、(3-18')、(3-19)を利用して計算した。これらの式を利用するためには、凝集体の直径が必要である。その値は実験によって見積もった。Fig. 4- 9 に示すようにガラスビーズをステンレスバットに入れ、蒸留水を滴下し、その質量と形成された凝集体の質量の関係を調べた。滴下した液体の質量と、形成された凝集体の質量の関係を Fig. 4- 10 に示す。この図から、滴下した液体の質量と形成された凝集体の質量の間には以下の比例関係があることが分かった。

$$M = 6.24m \quad (4-24)$$

ここで、 m [g] は滴下した液体の質量、 M [g] は形成された凝集体の質量である。本実験装置で使用しているチューブ（シリコンチューブ内径 1.6 [mm]）から滴下された液滴の 5 個の平均値は 0.0611 [g] であった。凝集体の形状を球と仮定すると、上述の式から凝集体の直径は 7.12 [mm] となる。この値を利用して、凝集体の最小流動化ガス速度を計算し、テイクオーバー速度 U_{to} を計算すると、 $U_{to} = 0.30$ [m/s] となる。この値は、液架橋力と気泡のせん断力が等しくなる時の空塔速度 U_{eq} (= 0.18 [m/s]) よりも大きい。したがって、凝集体が破碎されない場合、凝集体は層内で浮遊せず、流動層底部に堆積すると予想される。



Fig. 4- 9 Liquid drop experiment on particles.

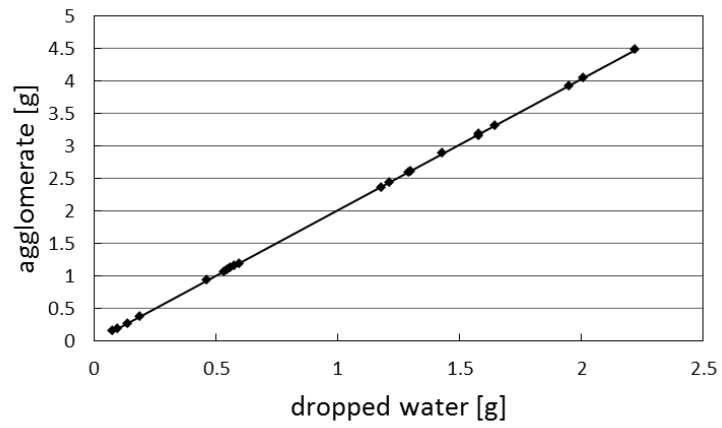


Fig. 4- 10 Relationship between mass of agglomerate and mass of dropped water.

4. 2. 4. 液架橋で形成された凝集体の挙動 (U_0 が U_{eq} よりも大きい場合)

空塔速度 U_0 が U_{eq} よりも大きい、つまり液架橋によって形成された凝集体が気泡のせん断力によって破碎されると予想した条件下での凝集体は以下のように成長・堆積すると考えた。

1. 流動層内に存在する水分量 w [g] は液架橋によって凝集体を形成する
2. 凝集体は、液架橋によって形成された凝集体と、液架橋または固体架橋によって形成された凝集体が接触することで成長する
3. 凝集体の成長速度 v [g s^{-1}] は層内に存在する水分量 w [g] に比例する
4. 水溶液中の溶質の析出によって生じる固体架橋は破碎されない
5. 流動層底部に堆積する凝集体の大きさ m_{\max} [g] は空塔速度に比例する
6. 蒸発速度 m_e [g s^{-1}] は層内に存在する水分量 w [g] と層内温度と受熱流体温度の差 ΔT [K] に比例する

仮定 3 より以下の式が成り立つ。

$$v = k_1 w \quad (4-25)$$

ここで、 k_1 は比例定数で [s^{-1}] の単位を持つ。

また仮定 3、5 より凝集体の最大質量は次の式で表すことができる。

$$m_{\max} = v \times t_a \quad (4-26)$$

ここで、 t_a [s] は層内に溶液を供給し始めてから凝集体が層底部に堆積するまでにかかる時間として定義する。したがって、(4-25)、(4-26)より次の式が成り立つ。

$$t_a = \frac{m_{\max}}{v} = \frac{m_{\max}}{k_1 w} \quad (4-27)$$

さらに仮定 6 より蒸発速度は次の式で表される。

$$m_e = k_2 w \Delta T \quad (4-28)$$

ここで、 $k_2 [1 \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-1}]$ は比例定数である。

また質量保存則より、層内に存在する水分量は次の式で計算することができる。

$$\frac{dw}{dt} = m_f - m_e = m_f - k_2 w \Delta T \quad (4-29)$$

ここで、 $m_f [\text{g s}^{-1}]$ は溶液供給速度である。

(4-29) を解くと、層内の水分量 $w [\text{g}]$ は次式で表される。

$$w = \frac{m_f}{k_2 \Delta T} [1 - \exp(-k_2 \Delta T t)] \quad (4-30)$$

したがって、溶液を供給してから、凝集体が堆積するまでの時間 $t_a [\text{s}]$ は (4-27)、(4-30) から次式で表される。

$$t_a = \frac{m_{\max}}{k_1 w} (U_0 - U_{\text{eq}}) = \frac{m_{\max}}{k_1} \frac{k_2 \Delta T}{[1 - \exp(-k_2 \Delta T t)]} \quad (4-31)$$

さらに、凝集体が堆積するまでに層内に供給した溶液の量を $F_a [\text{g}]$ とすると、 F_a は質量保存則から次式であらわされる。

$$F_a = m_f \times t_a = \frac{m_{\max}}{k_1} \frac{k_2 \Delta T}{[1 - \exp(-k_2 \Delta T t)]} \quad (4-32)$$

(4-31)、(4-32) を実験結果と比較し、提案したモデルの妥当性について検討を行った。

4. 3. 流動層蒸発器での海水蒸発実験

4. 3. 1. 実験装置

Fig. 3-7 に示す実験装置を利用して海水蒸発実験をおこなった。流動化ガス速度、海水供給速度、層内温度、静止層高、平均粒径はそれぞれ実験条件に合わせて変更した。

凝集体の堆積は、流動層内の圧力損失の変化を計測することで検出した。Fig. 4- 11 に流動層内の圧力損失の時間変化を示す。層内部への海水の供給は 60 [s] で開始した。海水供給直後には流動層内の圧力損失はほぼ一定である。しかしある時間を過ぎると流動層内部の圧力損失が減少し始めた。また、ビデオカメラの映像と比べると、この時間は凝集体の堆積が開始する時間とほぼ一致した。これは、凝集体が堆積していない場合、層内の圧力損失は粒子の全質量とほぼ一致するが、凝集体が層底部に堆積すると、流動粒子の一部が分散板で支えられ、流動化ガスが支える粒子量が減少するためだと考えられる(Fig. 4- 12)。従って、海水の供給から凝集体の堆積が開始するまでの時間 t_a [s] は、流動層内に海水の供給を開始した時間から、流動層内の圧力損失が低下し始めるまでの時間として評価した。

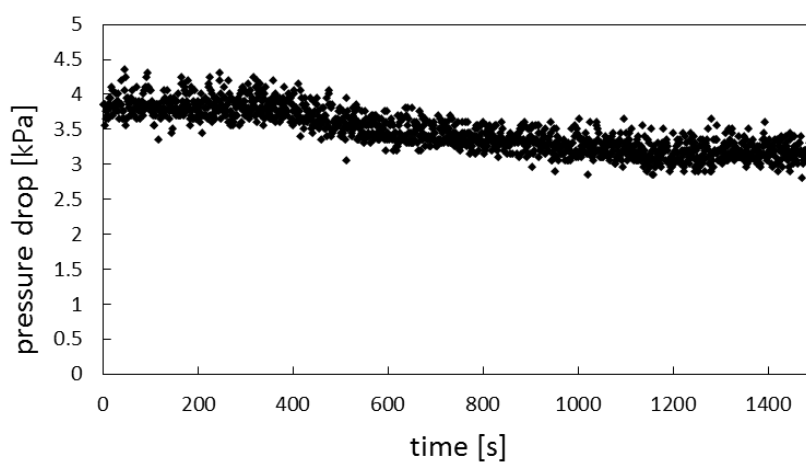


Fig. 4- 11 Variation in pressure drop vs. time.

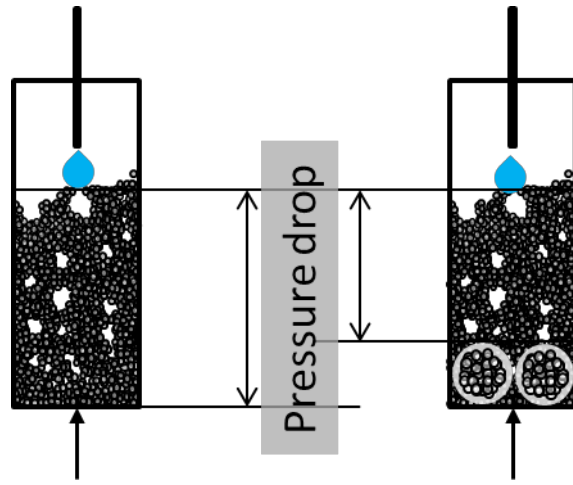


Fig. 4- 12 Pressure drop in fluidized bed.

4.3.2. 実験結果と考察

4.3.2.1 空塔速度と t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) の関係

Fig. 4-13 に空塔速度を変えた際の圧力損失と時間変化の図を示す。左上から空塔速度 U_0 が、0.13 [m/s]、0.15 [m/s]、0.20 [m/s]、0.26 [m/s] の時の結果である。層内へ海水の供給は 60 [s] の時点で開始した。また、層内の温度は 140 [°C] となるように制御し、海水供給速度は 10 [g min⁻¹] と設定した。凝集体の堆積が開始するまでの時間 (層内の圧力損失が低下し始めるまでの時間) t_a は 4.3.1 で説明したように、圧力-時間プロットから求めた (Fig. 4-13)。この図から、空塔速度が異なると、 t_a も変化することがわかる。そこで、空塔速度のみを変えた海水蒸発実験を繰り返し、各空塔速度に対する t_a を Fig. 4-14 にプロットした。 U_0 が大きくなるに従い t_a は増加し、特に U_0 が 0.18 [m s⁻¹] 付近から急激に増加した。この値は、力のバランスから導いた、液架橋力と気泡のせん断力が等しくなる空塔速度 U_{eq} [m/s] とよく一致している。

さらに、実験結果では、 U_0 が U_{eq} 以下の時 t_a は非常に小さい。これは、4.2.3 で導いた、 U_0 が U_{eq} 以下の場合、凝集体は速やかに層底部に堆積するという、モデルから導かれた結果と一致している。

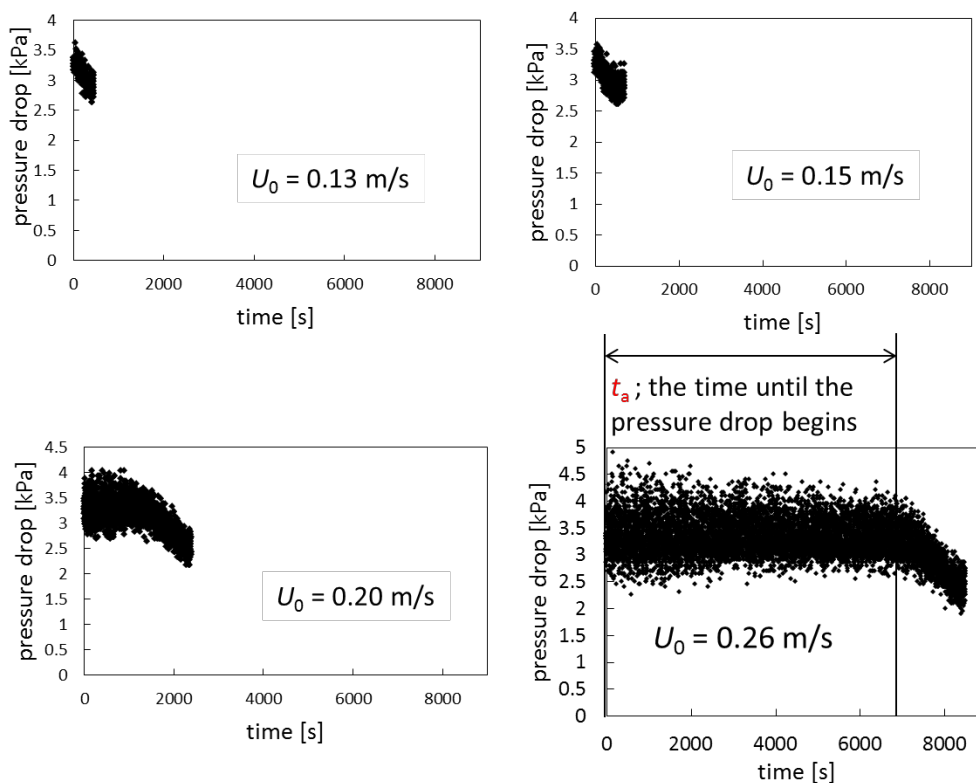


Fig. 4-13 Pressure drop vs. time plots at different fluidizing gas velocity.

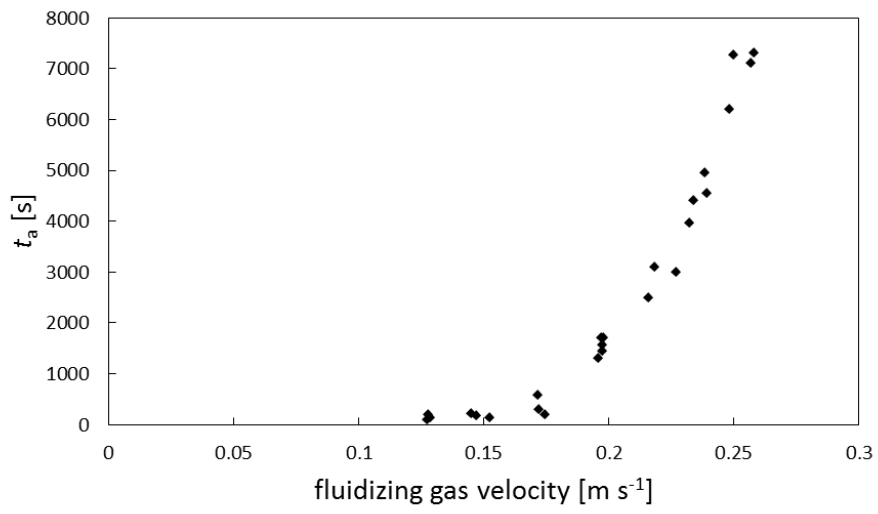


Fig. 4- 14 t_a vs. fluidizing gas velocity plots.

この実験では U_0 [m/s] が U_{eq} [m/s] より大きくても凝集体の堆積は生じた。そこで、空塔速度と海水蒸発実験後に流動層底部に堆積した凝集体の質量の関係について検討した。

海水蒸発実験後に生成した凝集体の質量を計測するために、実験後にガラス製流動層の一番下のポートより上に存在する粒子、一番下のポートより下に存在する粒子をそれぞれ回収し、それらをメッシュ幅 5 cm の金属網を利用して直径が 5 cm 以上の凝集体を取り出した。その後、視覚的に大きい粒子をそれぞれ 20 個回収し、それらの質量を計測した。計測結果を Fig. 4-15 に示す。青色は、一番下のポートより上、一番下のポートより下に存在した粒子のうち、質量を計測した粒子の上位 1 番目から 10 番目までの粒子の質量を平均した値(20 個の粒子の平均質量)、赤色は、一番下のポートより上、一番下のポートより下に存在した粒子のうち、質量を計測した粒子の上位 2 番目から 11 番目までの粒子の質量の平均値、緑色は一番下のポートより上、一番下のポートより下に存在する粒子のうち、質量を計測した粒子の上位 3 番目から 12 番目までの粒子の平均質量である。赤色の結果、緑色の結果は似た傾向を示すのに対し、青色の結果はそれらから大きく外れた。これは、流動層底部に堆積した凝集体で最も大きいものは、他の凝集体と異なるメカニズムで生じたためだと考えられる。そこで、計測した粒子 20 個のうち 2 番目から 11 番目までの平均値を、海水蒸発実験後の凝集体の質量として考え検討を行った。

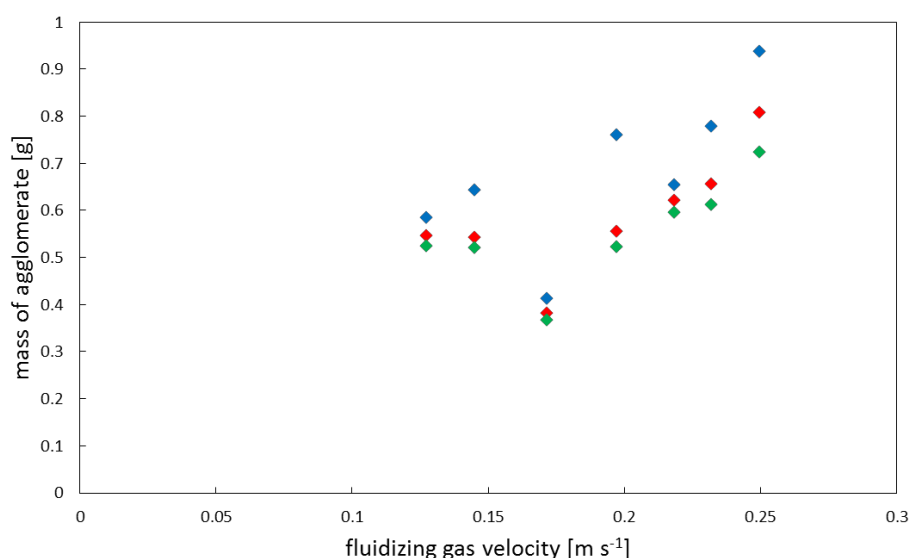


Fig. 4-15 Relationship between mass of agglomerate and fluidizing gas velocity.

Fig. 4-16 は空塔速度の異なる海水蒸発実験において、一番下のポートより上部にある粒子層に存在する凝集体の上位 2 番目から 11 番目の粒子群の質量平均（丸マーカー）と、一番下のポートより下部にある粒子内に存在する凝集体の上位 2 番目から 11 番目の粒子群の平均質量（三角マーカー）の各空塔速度に対する値を示す。この図から、ポート 1 より上部に存在する凝集体より、層底部に堆積している凝集体の方が、質量が大きいことがわかった。これは、凝集体は層内を浮遊している間に成長し、その質量が流動化ガスが支えられる質量を超えることで層底部に堆積し始めることを示唆していると考えられる。さらに、Fig. 4-17 に、各空塔速度に対する、凝集体の質量のプロット、及びに $U_0 = U_{eq}$ の値を示す。各プロットは、それぞれの空塔速度における、ポート 1 より下部に堆積した凝集体の上位 2 番目から 11 番目の粒子群の平均質量である。この図は、 U_0 が U_{eq} 以下の時、凝集体の大きさはほぼ一定であることを示している。これは、4.2.3 で導いた、 U_0 が U_{eq} よりも小さいときは凝集体は破碎されない、というモデルとよく一致している。この図では、 $U_0 = 0.17$ [m s⁻¹] 付近に、 U_{eq} 以下でも破碎されたと考えられるプロットがある。これは、 U_{eq} を求める際、層高さ方向の平均値で計算したため、層上部では液架橋力以上の気泡のせん断力も凝集体に働き、凝集体が破碎されたためだと考えられる。 U_0 が U_{eq} よりも大きい場合、層底部に堆積した凝集体の平均質量は空塔速度に比例して増加している。これは、流動化ガスの大きさに比例して、流動化ガスが浮遊させることができる凝集体の重さが増したためだと考えられる。この時、流動化ガス速度が支えることができる凝集体の質量の閾値を予測することは非常に難しい。流動層底部に堆積した凝集体の直径、密度から最小流動化ガス速度を計算し、(4-23) を用いてテイクオーバー速度を計算すると、空塔速度よりも大きい値となる。これは、テイクオーバー速度は、Fig. 4-8 に示すように、ミキシングインデックス $M = 0.5$ [-] となるときの空塔速度である。そのため、テイクオーバー速度より小さい空塔速度でも、層底部に凝集体の堆積が生じる。また、層内の流動挙動は非常に複雑であり、(4-23) は±15%の誤差で推算できると報告されている。したがって、各空塔速度における、流動層底部に堆積する凝集体の質量は、実験的に見積もる必要があると考えられる。また、Fig. 4-17 から、4.2.4 の凝集体成長モデルにおける仮定 5 (流動層底部に堆積する凝集体の大きさ m_{max} [g] は空塔速度に比例する) は妥当であると考えられる。

以上より、空塔速度を変えた海水蒸発実験の結果は凝集体の成長・堆積モデルから導いた結果とよく一致していると考えられる。

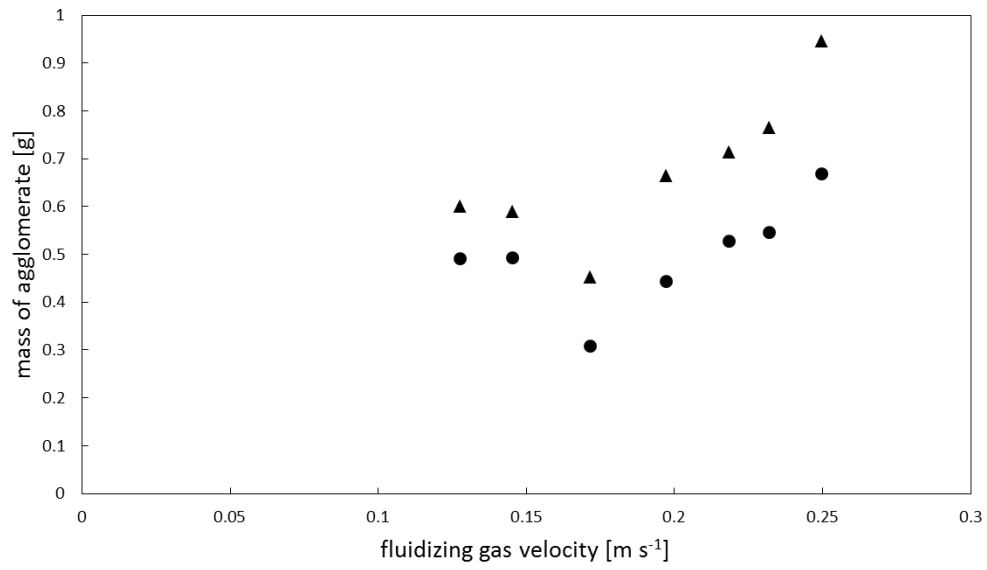


Fig. 4- 16 Relationship between average mass of 2nd to 11th largest agglomerates and fluidizing gas velocity.

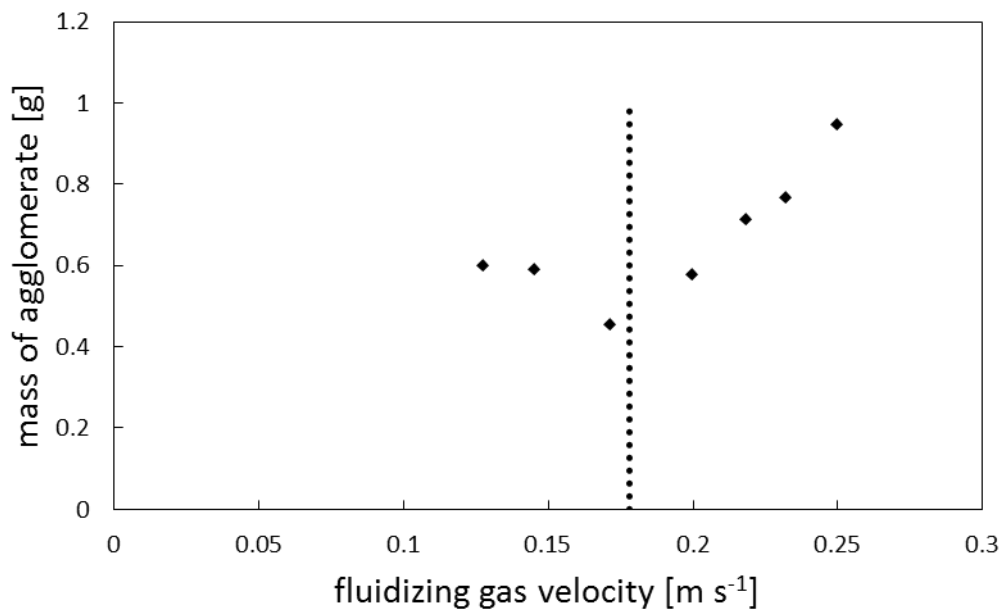


Fig. 4- 17 Mass of agglomerate vs. fluidizing gas velocity plots including $U_0 = U_{eq}$ line.

4.3.2.2 平均粒径と t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) の関係

平均粒径が t_a に与える影響について検討を行うために、粒子を変えて空塔速度 U_0 [m s^{-1}] と t_a [s] の関係について実験的に検討した。使用した粒子は平均粒径が 196 [μm] (型番 J = 80)、262 [μm] (型番 J = 60)、344 [μm] (型番 J = 54) のポッターズバロテューニ製ガラスビーズである。これらの粒子はいずれも Fig. 3-4 に示す Geldart の B 粒子に分類される。

Fig. 4-18 に U_0 [m/s] を変化させた際の t_a [s] の変化を示す。青色のプロットは、平均粒径が 196 [μm] のガラスビーズを使用した際の結果、緑色のプロットは平均粒径が 262 [μm] のガラスビーズを利用した際の結果、また赤色プロットは Fig. 4-14 の結果を再掲したものである。Fig. 4-18 は、空塔速度一定のとき、平均粒径が小さいほど t_a が大きくなることを示している。この理由を 4.2 で構築した凝集体成長・堆積モデルから考察を行う。

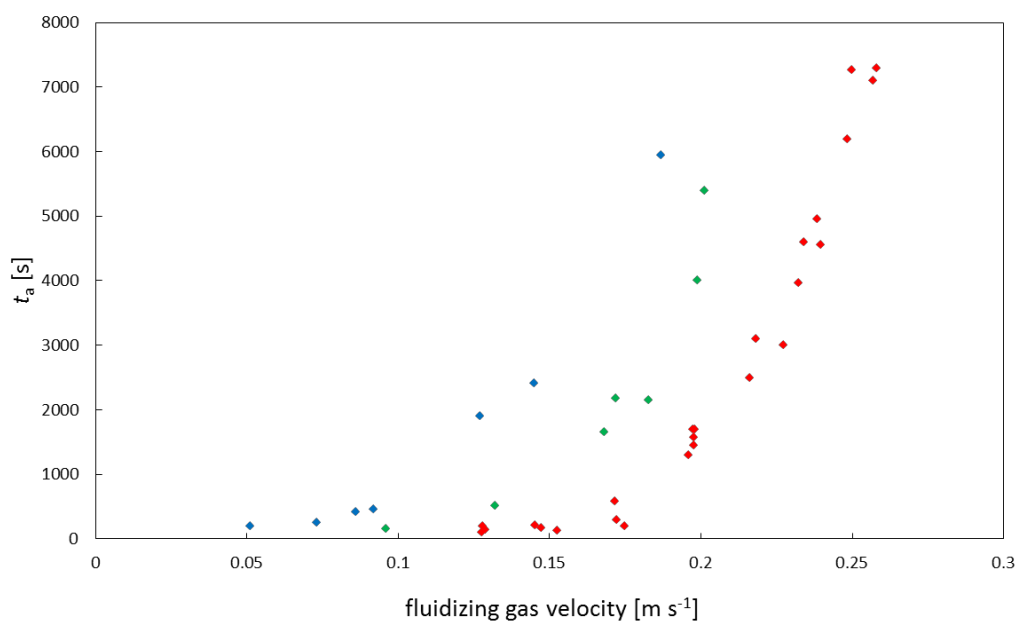


Fig. 4-18 t_a vs. fluidizing gas velocity plots at different particle diameter.

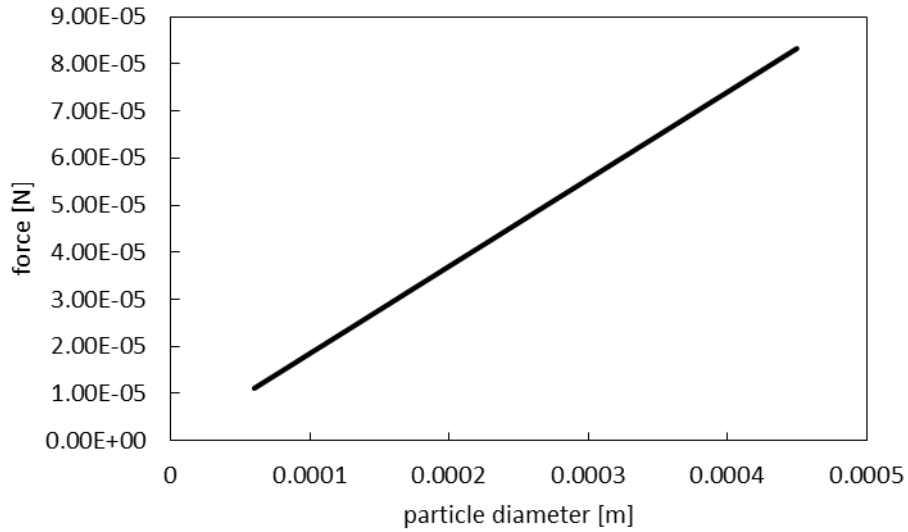


Fig. 4- 19 Variation in liquid bridge force vs. particle diameter.

流動粒子の平均粒径が変化すると層内で働く力の大きさが変化する。液架橋力は(4-7)より、Fig. 4- 19 のように変化する。気泡の上昇によるせん断力 F_b [N] は(4-17)~(4-22) から次式、

$$F_b = \frac{F}{N} = \frac{(1-\varepsilon_{mf})\rho_p g \left[\frac{4}{3}\pi \left(\frac{D_b}{2} \right)^3 \right]}{\frac{\pi D_b}{d_p}} = \frac{(1-\varepsilon_{mf})\rho_p g D_b^2 d_p}{6} = C \times D_b^2 d_p \quad (4-33)$$

のように計算される。(4-33) の C は定数なので、 F_b [N] は気泡径 D_b [m]、平均粒径 d_b [m] の関数となる。また、 D_b [m] は(4-20) から、空塔速度 U_0 、最小流動化ガス速度 U_{mf} [m]、層高 z [m] の関数となる。最小流動化ガス速度は(3-8)、(3-16)、(3-17)、(3-18)、(3-19) より平均粒径に対して Fig. 4- 20 ように変化する。 d_p [m] が大きくなるに従い U_{mf} [m] も大きくなる。

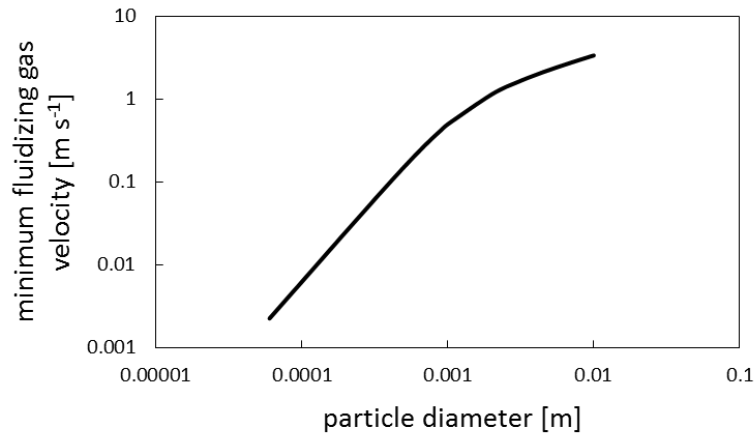


Fig. 4- 20 Variation in minimum fluidizing gas velocity vs. particle diameter.

Fig. 4- 20 の結果を利用して、気泡径の平均粒径に対する変化を計算した (Fig. 4- 21)。層高は $z = 0.13$ [m] で計算し、青色の実線は $U_0 = 0.15$ [m/s] の結果、赤色の実線は $U_0 = 0.25$ [m/s] の結果である。空塔速度 U_0 [m/s] が大きいほど、また、平均粒径が小さいほど気泡径 D_b [m] は大きくなる。これは Fig. 4- 20 からわかるように、気泡径が大きいほど、最小流動化ガス速度が大きくなるので、粒子の空隙間を流れる流体の量が大きくなり、気泡になる流量が減少したためだと考えられる。Fig. 4- 22、Fig. 4- 23、Fig. 4- 24 にそれぞれ、 F と d_p 、 N と d_p 、 F_b と d_p の相関を示す。また Table 4- 3 に利用したパラメーターの値を示す。Fig. 4- 24 から、空塔速度 U_0 [m/s] が大きいほど、 F_b [N] が大きくなることがわかった。また、平均粒径 $d_p = 60$ [μm] から 450 [μm] の範囲で、単位粒子に働く気泡のせん断力は極値を持つことが明らかとなった。これは、Fig. 4- 22、Fig. 4- 23 が示すように、気泡のせん断力は空塔速度 U_0 [m/s] が一定の時、 d_p が大きくなるに従い、ほぼ比例して F が減少していくが、 N の減少割合は、 d_p が小さいときに大きく、 d_p が大きくなると小さくなるためである。以上の結果を用いて、液架橋力と気泡のせん断力が等しくなる空塔速度 U_{eq} [m/s] と平均粒径 d_0 [μm] の相関について検討した。各空塔速度における気泡のせん断力は、層高 10 [mm] ごとに計算し、層底部から静止層高までの算術平均として求めた。また各粒子の最小流動化ガス速度は実験によって取得した。

Fig. 4- 25 に流動化粒子の平均粒径 d_p [μm] の変化に伴う U_{eq} [m/s] の変化を示す。平均粒径が小さいほど、凝集体を破碎するのに必要な空塔速度 U_{eq} [m/s] は小さくなった。この結果は、平均粒径が小さいほど t_a が大きくなる Fig. 4- 18 と同様の傾向が得られた。Fig. 4- 26 に Fig. 4- 18 の結果に各平均粒径における U_{eq} の値を載せた図を示す。

空塔速度に対して、 t_a が急激に増加する空塔速度は、平均粒径 $d_p = 344$ [μm]のときはよく一致しているが、平均粒径が小さくなるにつれて計算によって得られた U_{eq} は過大に評価されていることがわかる。これは、平均粒径が小さくなったことで、流動粒子の挙動が Geldart の A 粒子に近づき、層内での気泡の振舞いに変化したためだと考えられる。

以上の結果より、平均粒径を変えた実験は、凝集体の成長・堆積モデルから得られた結果と同様の傾向を示したが、平均粒径が $d_p = 196$ [μm]、 262 [μm] の条件では、 U_{eq} が過大に評価されているので、凝集体の成長・堆積挙動をより正確に予測するためには、粒子径の影響をより正確に組み込む必要があることがわかった。

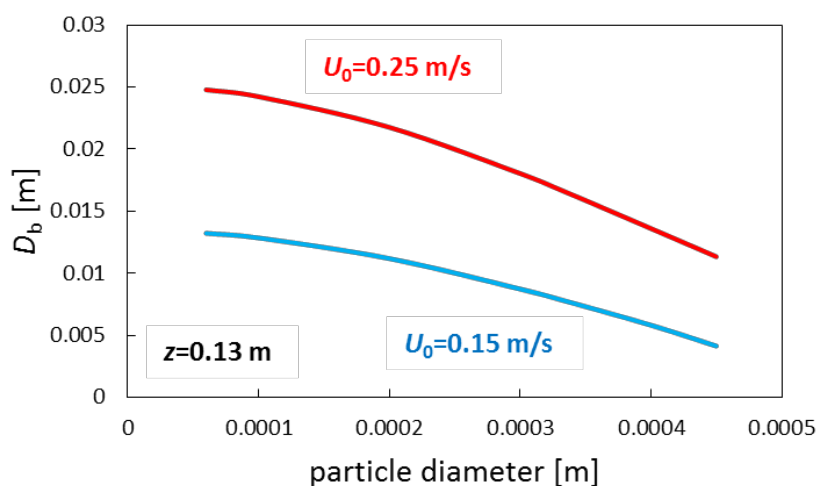


Fig. 4- 21 Variation in D_b vs. particle diameter at fluidizing gas velocity of 0.25 and 0.15 m/s.

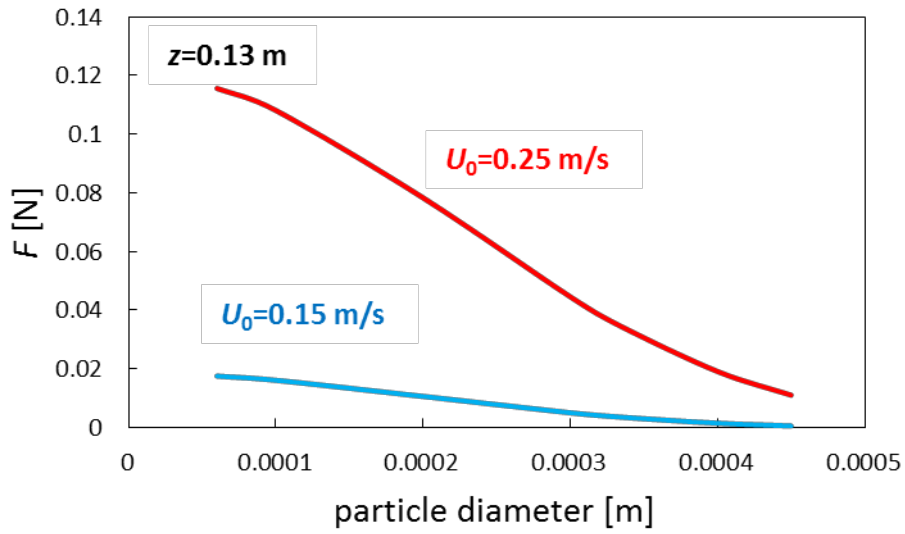


Fig. 4- 22 Variation in F vs. particle diameter at fluidizing gas velocity of 0.25 and 0.15 m/s.

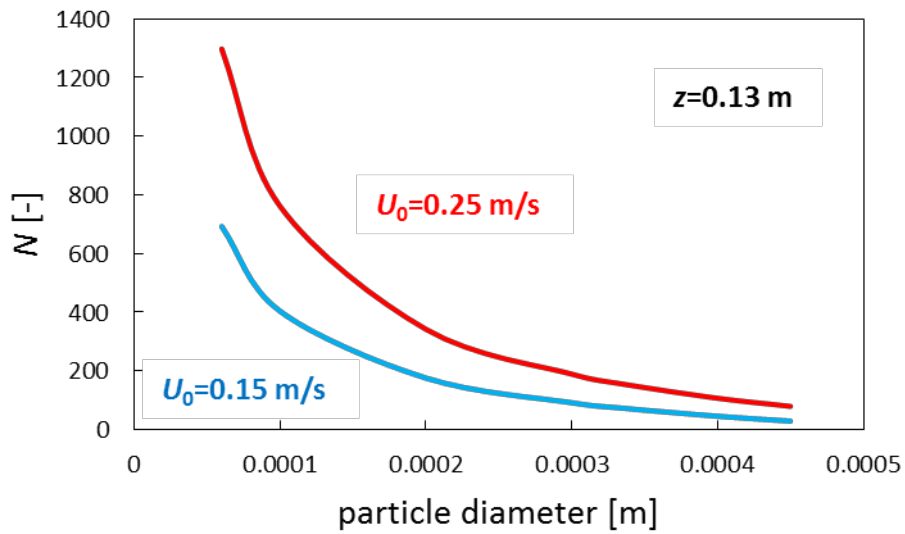


Fig. 4- 23 Variation in N vs. particle diameter at fluidizing gas velocity of 0.25 and 0.15 m/s.

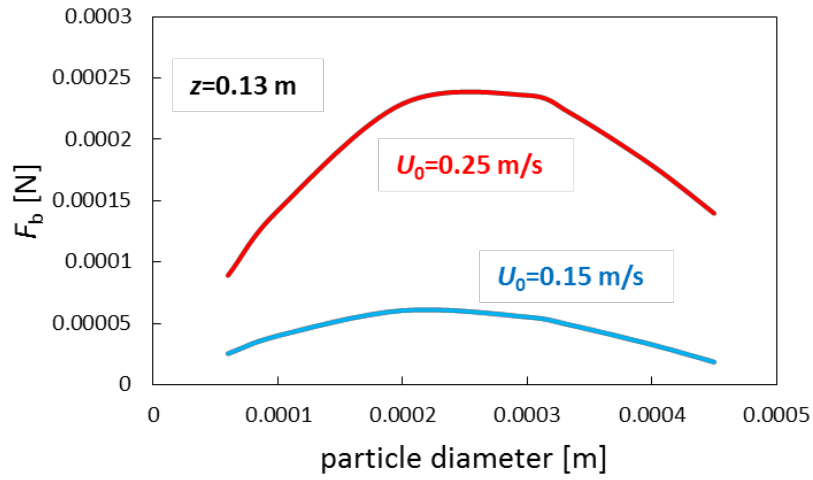


Fig. 4- 24 Variation in F_b vs. particle diameter at fluidizing gas velocity of 0.25 and 0.15 m/s.

Table 4- 3 Parameters for the calculation of F , N and F_b .

symbol	Value
ρ_f (gas density [kg/m^3])	0.842
ρ_p (particle density [kg/m^3])	2.50×10^3
g (gravitational acceleration [m/s^2])	9.81
μ (gas viscosity [$\text{Pa} \cdot \text{s}$])	2.37×10^{-5}
A_t (cross sectional area of bed [m^2])	6.22×10^{-3}
D_t (bed diameter [m])	89×10^{-3}
ε_{mf} (voidage [-])	0.41

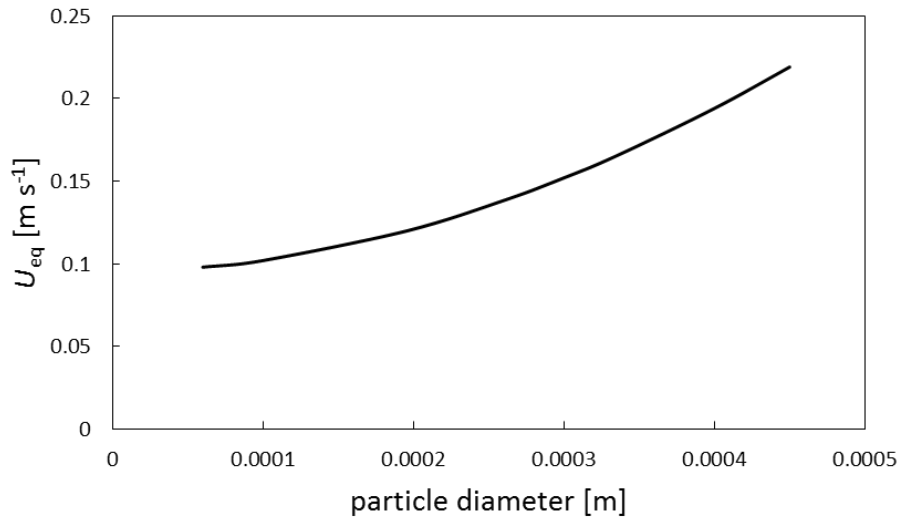


Fig. 4- 25 Variation in U_{eq} vs. particle diameter.

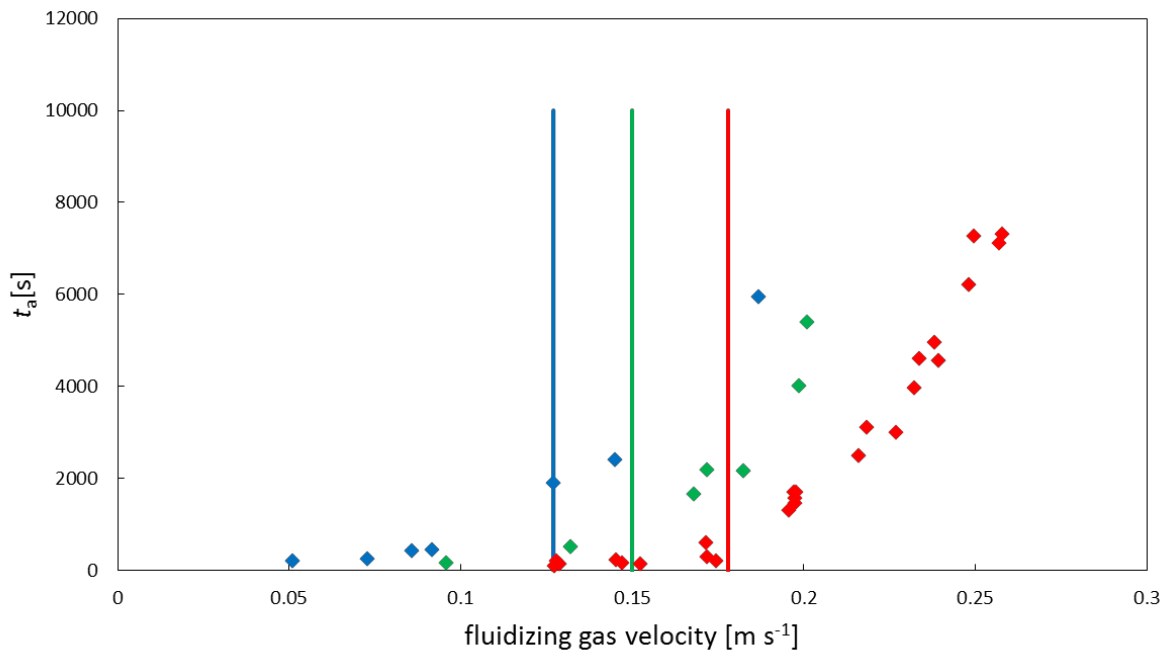


Fig. 4- 26 t_a vs. fluidizing gas velocity plots including $U_0 = U_{eq}$ lines.

4.3.2.3 静止層高と t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) の関係

流動層の高さが t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) に与える影響を検討するために流動層の静止層高を 250 [mm] から 325 [mm] に変更し、海水蒸発実験をおこなった。ほかの実験条件は、粒子の平均粒径 334 [μm]、海水供給速度 10 [g min^{-1}]、空塔速度 0.2 [m s^{-1}] である。静止層高が 250 [mm] の実験結果 6 回の平均 t_a は 1583 [s] であった。一方、静止層高が 325 [mm] の海水蒸発実験 2 回の平均 t_a は 2690 [s] となり、静止層高が高い方が t_a は大きくなった。これは、Fig. 4-5 に示すように静止層高が高い方が、気泡のせん断応力が大きくなるためだと考えられる。したがって、静止層高が t_a に与える影響は、提案した凝集体の成長・堆積モデルによって説明することが可能であることが明らかとなった。

4. 3. 2. 4 層内温度と t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) の関係

流動層内の温度を変えて実験を行い、層内温度 T_b [°C] が t_a に与える影響を検討した。Fig. 4- 27 に体積流量 $V=55$ [l min⁻¹]、 $m_f=10$ [g min⁻¹] で層内に海水を供給した際の、 t_a と T_b の関係について示す。 T_b が増加するに従い t_a も大きくなった。また、Fig. 4- 28 に V が一定の時の、 U_0 と層内温度 T_b の関係を示す。層内温度が高いほど気体の体積は大きくなるので、 U_0 は温度とともに増加する。

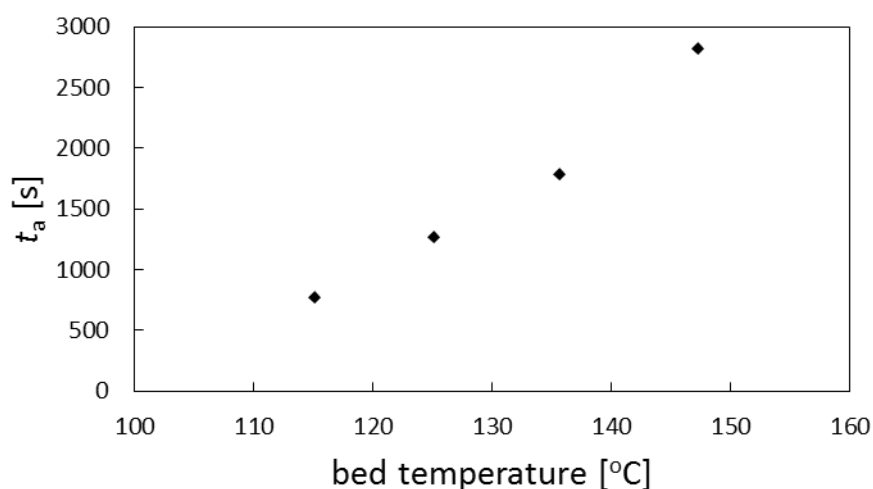


Fig. 4- 27 t_a vs. bed temperature plots at constant volume flow rate.

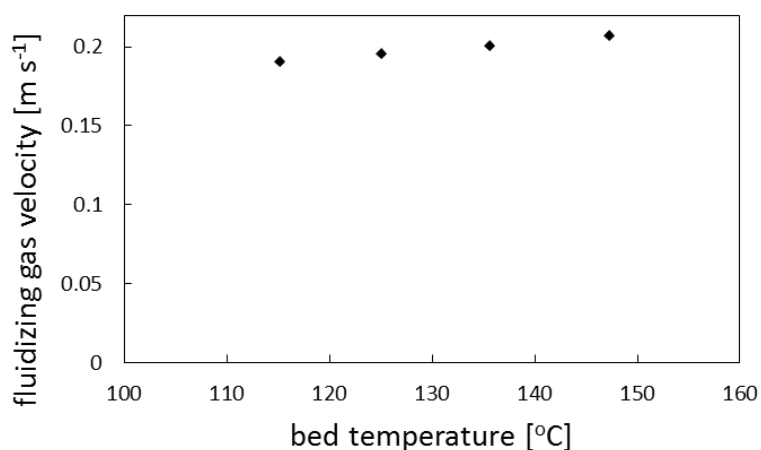


Fig. 4- 28 Variation in fluidizing gas velocity vs. bed temperature at constant volume flow rate.

しかしながら、これらの図から、 T_b の変化に伴う t_a の変化に比べて、 T_b の変化に伴う U_0 の変化は小さいことがわかる。そこで、本実験で得た実験結果を、層内温度が一定の時の t_a - U_0 線図(Fig. 4-14) に重ね合せた(Fig. 4-29)。赤色のプロットは層内温度が 140 [°C] になるように制御したときの結果、青色のプロットは層内温度を変化させた際の結果である。海水供給速度 m_f はともに 10 [g min⁻¹] である。この図から、赤色のプロットの U_0 に対する t_a の傾きは、青色のプロットの U_0 に対する t_a の傾きの方が大きいことがわかる。したがって、 T_b は U_0 を変化させるだけでなく、 T_b そのものが t_a に影響を与えていると考えられる。そこで、各 T_b で U_0 が 0.2 [m s⁻¹] となるように V を調整し、海水蒸発実験を行った。Fig. 4-30 に t_a と T_b の関係を示す。上記の予想通り、空塔速度が一定の場合でも t_a は一定とはならず、 T_b の増加に伴い t_a も大きくなった。

この結果を、構築した凝集体成長・堆積モデルを用いて考察した。凝集体の堆積が開始するまでの時間 t_a は 4.2.4. で、次式で計算できると導かれた。

$$t_a = \frac{m_{\max}}{k_1 w} (U_0 - U_{\text{eq}}) = \frac{m_{\max}}{k_1} \frac{k_2 \Delta T}{[1 - \exp(-k_2 \Delta T t)]} \quad (4-31)$$

ここで、層内の水分量を表す w ($= [1 - \exp(-k_2 \Delta T t)] k_2^{-1} \Delta T^{-1}$) は、時間の関数であり、Fig. 4-31 のように変化する。各点線は異なる熱交換温度差の時の結果を示しており、縦軸は $\Delta T = 5$ [K] で t [s] が十分大きいときの水分量で規格化している。この図から、層内の水分量はある時間がたつと定常となることがわかる。定常状態に達するまでの時間を評価するために、 $U_0 = 0.2$ [m s⁻¹]、層内温度が室温 (24.3 °C)、海水を $m_f = 10$ [g min⁻¹] で供給した際に、流動化が停止するまでにかかる時間を実験的に計測した。実験の結果、115 [s] で層底部に凝集体が堆積し始め、180 [s] には粒子層上部の流動化が停止した(非流動化)。Fig. 4-32 にその時の写真を示す。層底部には凝集体が堆積し、また層上部は部分的に非流動化が生じていることが確認できる。Fig. 4-30 の実験では、Fig. 4-32 で示すような非流動化は生じなかった。したがって、180 [s] に達する前に、層内の水分量は定常状態に達しており、 t_a を求めるための (4-31) は近似的に次式 (4-31') で計算できると考えられる。

$$t_a = \frac{m_{\max}}{k_1} \frac{k_2 \Delta T}{m_f} \quad (4-31')$$

また、本実験では、 U_0 は一定となるように実験をおこなったので、4.2.4.の仮定5より m_{\max} は一定となる。さらに層内への海水供給速度 m_f [g min^{-1}] も一定である。したがって、(4-31') は次式のように書き換えられる。

$$t_a = k_3 \Delta T \quad (4-31'')$$

ここで、 k_3 は比例定数で [s K^{-1}] の単位を持つ。この式から、 t_a は ΔT に比例すると予想される。

Fig. 4-30 の結果を用いて、Fig. 4-33 に熱交換温度差に対する、 t_a の変化を示す。熱交換温度差は、流動層の温度 T_b と水の蒸発温度 100 [$^{\circ}\text{C}$] の差で評価した。この図から、実験結果は (4-31'') とよく一致していることがわかる。図上の直線が原点を通過しないのは、形成された凝集体が層底部に堆積するまでにある時間が必要だからである。本実験では、加熱された流動層に、上部から海水を供給した。したがって、流動層の上部に形成された凝集体が層底部に堆積するには、流動層内を下降する必要がある。気泡流動層内では、気泡はウェイクとともに層内を上昇し、粒子を持ち上げる^[27]。ウェイクとは、気泡の底部に形成された粒子層領域であり、気泡とウェイクを合わせるとほぼ球状になる。層内の粒子は、気泡の上昇に伴う粒子の上昇を打ち消すように落下し、層内で循環流が形成される。したがって、沈降性粒子は気泡が通過するとともに層内を下降する。谷本らは、気泡が一個通過したとき、沈降性粒子の気泡断面積あたりの平均落下距離 Y_s は次式で評価できると報告した^[31]。

$$Y_s = 0.6 \left(\frac{\rho_J}{\rho_F} \right) \left(\frac{d_J}{d_F} \right)^{1/3} \quad (4-34)$$

ここで、 ρ_J 、 ρ_F はそれぞれ沈降性粒子、浮上性粒子の密度、 d_J 、 d_F はそれぞれ、沈降性粒子、浮上性粒子の粒子径を示す。したがって、(4-34) と気泡頻度の積から、形成された凝集体が層底部に堆積するまでの値を推算できる。しかしながら、気泡の頻度は粒子の大きさ、分散板からの高さ、ガス速度、など様々な運転条件の影響を受けるので、推算することが難しい^[32]。そのため、凝集体が層底部に堆積するまでの時間は、現状、実験的に見積もる必要があると考えられる。

さらに、凝集体の堆積が生じるまでに供給する海水量 F_a について検討を行った。4.2.

4. から F_a は(4-32)で計算できると導かれた。このとき、上記の実験条件で F_a は

$$F_a = m_f k_3 \Delta T = k_4 \Delta T \quad (4-32')$$

と書き換えることが可能であり、 ΔT に比例すると予想される。Fig. 4- 34 に F_a と ΔT の関係を示す。この図も、実験結果は構築した凝集体成長・体積モデルとよく一致していることを示している。

以上より、構築した凝集体の成長・堆積モデルは海水蒸発実験における層内の温度の影響をよく表現できていることが明らかとなった。

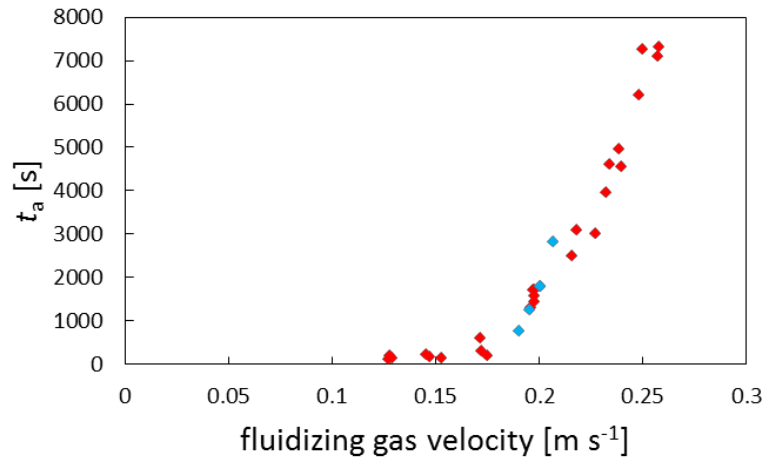


Fig. 4- 29 t_a vs. fluidizing gas velocity plots.

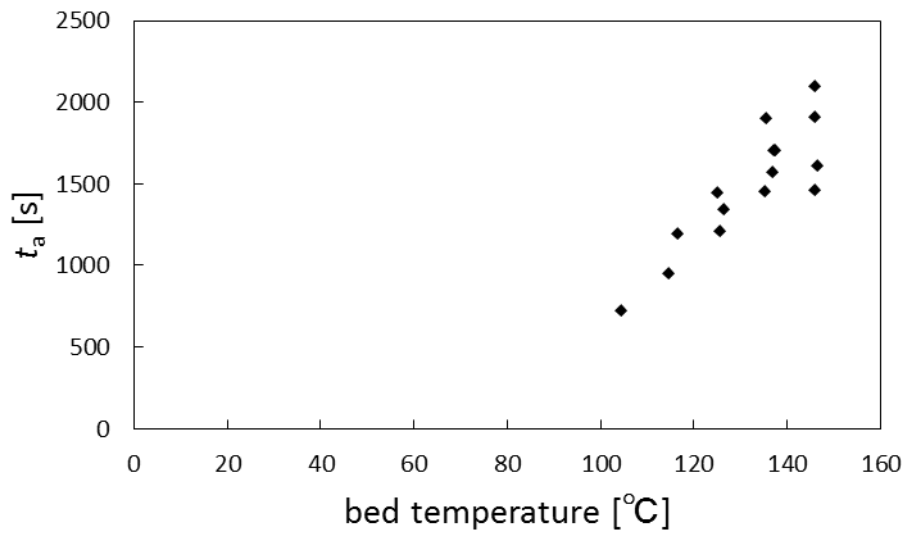


Fig. 4- 30 t_a vs. bed temperature plots at constant fluidizing gas velocity.

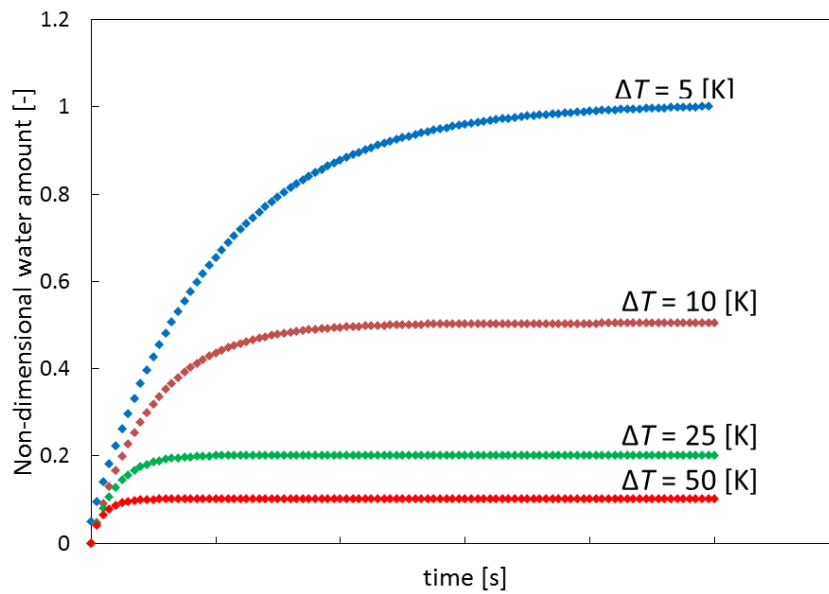


Fig. 4- 31 Variation in non-dimensional water amount vs. time.



Fig. 4- 32 Defluidization.

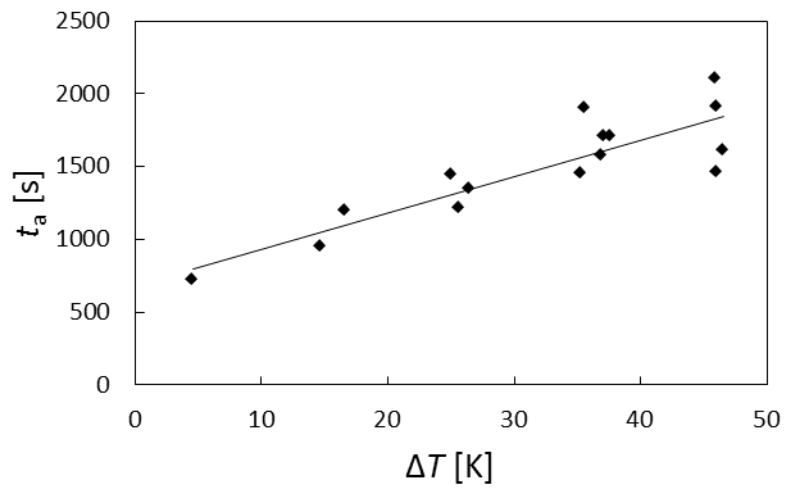


Fig. 4- 33 t_a vs. ΔT plots.

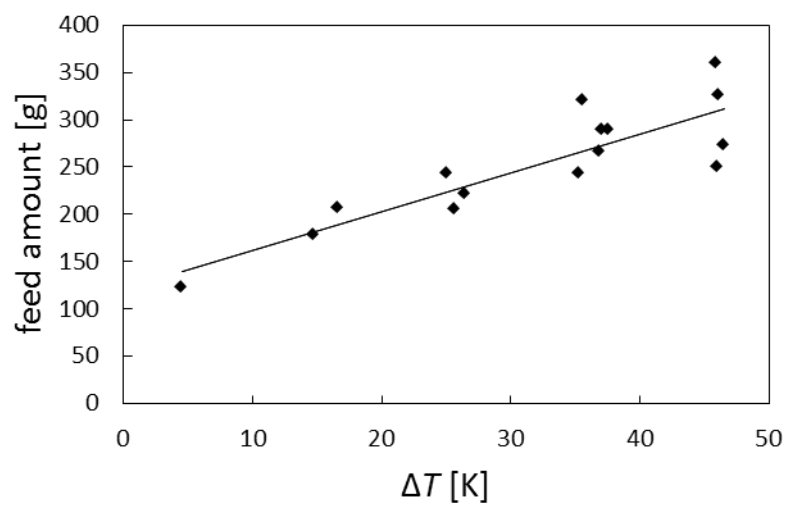


Fig. 4- 34 Feed amount vs. ΔT plots.

4. 3. 2. 5 海水供給速度と t_a (凝集体が層底部に堆積するまでの時間) の関係

海水供給速度 m_f が t_a に与える影響について検討した。海水供給速度はチュービングポンプの回転数を変えることで変更した。Fig. 4-35 に凝集体が堆積し始めるまでの時間 t_a [s] と海水供給速度 m_f [g min⁻¹] の関係を示す。空塔速度 U_0 は 0.2 [m s⁻¹]、層内温度 T_b は 140 [°C] となるように設定した。 U_0 が大きいほど、 t_a は反比例して減少した。

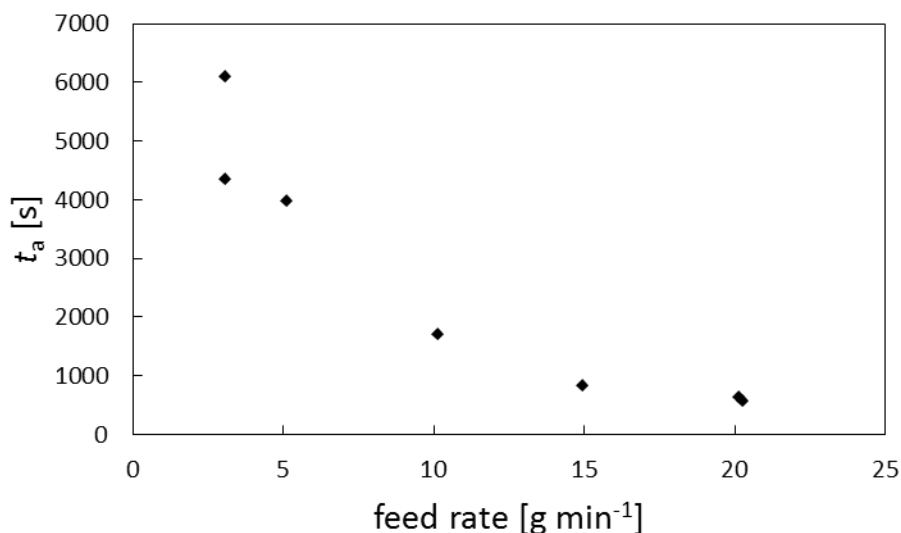


Fig. 4-35 t_a vs. feed rate plots.

Fig. 4-35 の結果を、構築した凝集体成長・堆積モデルで考察した。

凝集体の堆積が開始するまでの時間 t_a は 4.2.4. で、次式で計算できると導かれた。

$$t_a = \frac{m_{\max}}{k_1 w} (U_0 - U_{\text{eq}}) = \frac{m_{\max}}{k_1} \frac{k_2 \Delta T}{[1 - \exp(-k_2 \Delta T t)]} \quad (4-31)$$

4. 3. 2. 4. と同様、本実験では、Fig. 4-32 の層上部に示すような非流動化は発生しなかった。また、Fig. 4-35 の実験で層内へ供給した海水量は、Fig. 4-32 に示す常温の流動層に海水を供給した実験と比べて 10 倍以上である。したがって、層内の水分量は定常状態に達しており、 t_a を求めるための(4-31) は、近似的に (4-31') で計算できると考えられる。本実験では、 U_0 を一定にしているので、 m_{\max} は一定となる。また T_b は一定なので受熱流体と流動層の温度差 ΔT も一定となる。したがって、(4-31') は (4-31'') に書き換えられる。

$$t_a = \frac{m_{\max}}{k_1} \frac{k_2 \Delta T}{m_f} = \frac{k_5}{m_f} \quad (4-31''')$$

ここで、 k_5 は比例定数で $[\text{s min g}^{-1}]$ の単位を持つ。(4-31''')から、 t_a は m_f に反比例すると予想される。

Fig. 4- 35 から海水供給速度を変化させた実験は (4-31''') とよく一致していることがわかる。

さらに、(4-31''')から凝集体の堆積が生じるまでに供給する海水量 F_a について検討した。 F_a は (4-31''') とその定義から次式、

$$F_a = m_f \times t_a = m_f \times \frac{k_5}{m_f} = k_5 \quad (4-32'')$$

となる。したがって、凝集体が堆積するまでに層内に供給される海水量 F_a は海水供給速度 m_f に関わらず、一定値を示すと予想される。

Fig. 4- 36 に、実験より取得した F_a と m_f の関係を示す。(4-32'')と異なり、 F_a は m_f に対して負の傾きを持っている。これは、モデルを構築する際の仮定 4 (水溶液中の溶質の析出によって生じる固体架橋は破碎されない) が実際と異なり、固体架橋は分離力によって少しずつ破碎されたことを示唆していると考えられる。 m_f が小さいほど F が増加したのは、 m_f が小さいほど t_a が長くなり、その分固体架橋が破碎され、凝集体の成長が遅くなったためだと考えられる。したがって、固体架橋破碎も考慮することにより正確な物理モデルを構築することが可能となると考えられる。

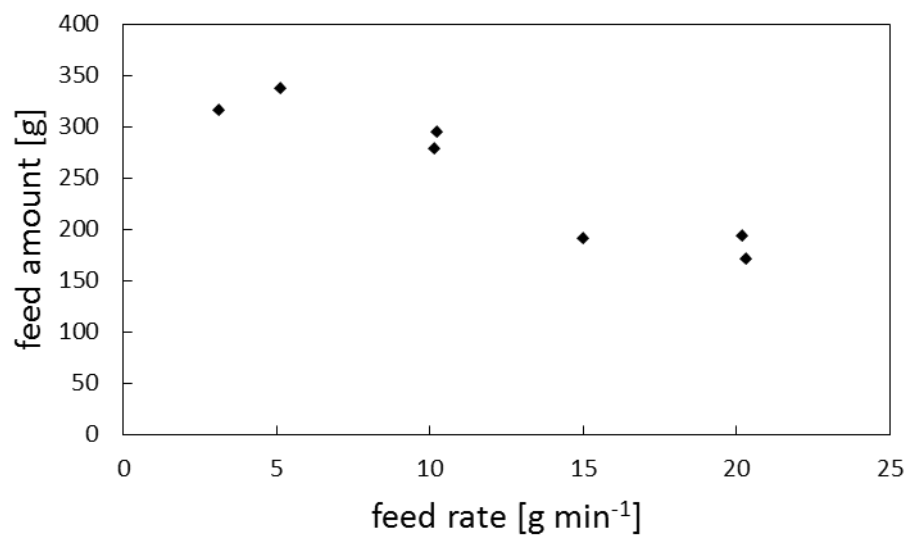


Fig. 4- 36 Feed amount and feed rate plots.

4.3.2.6 層底部に堆積した凝集体が凝集体の成長・堆積に与える影響

層底部に凝集体が堆積した後の、凝集体の振舞いについて検討を行った。
今までの実験では、流動層底部に凝集体が 4 [cm] 程度堆積したら、海水の供給を停止し、実験を終了した。そこで、凝集体が堆積した後も海水を供給し続けた場合の層内の凝集体の成長・堆積挙動について検討した。

Fig. 4- 37 に実験結果の一例を示す。 $U_0 = 0.14$ [m s⁻¹]、 $m_f = 9.9$ [g min⁻¹]、 $T_b = 136$ [°C]、海水を 1000 [g] 供給した。2200 [s] 近傍で、層内の圧力損失は減少したが、その圧力損失の低下は停止し再び層内の圧損は一定となった。これは、凝集体が一定量たまると、凝集体の堆積は継続しないことを示しており、この現象は、流動層外部からの観察でも確認した。

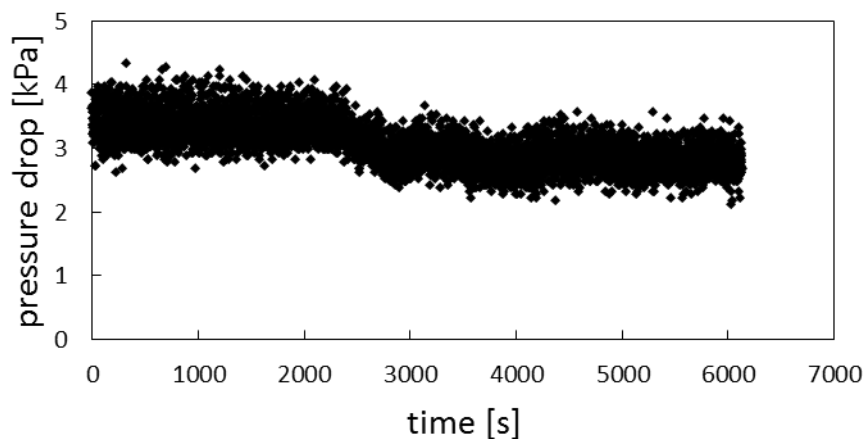


Fig. 4- 37 Pressure drop vs. time plots.

これは層底部に堆積した凝集体が原因だと考えられる。そこで、模擬凝集体を分散板上に敷き詰め、空塔速度 $U_0 = 0.2 \text{ [m s}^{-1}\text{]}$ 、海水供給速度 $m_f = 10 \text{ [g min}^{-1}\text{]}$ 、層内温度 $T_b = 140 \text{ [}^\circ\text{C]}$ で海水蒸発実験を行った。模擬凝集体はガラス球を使用し、Fig. 4-38 のよう
にあらかじめ層底部から 40 [mm] の高さまで積み上げた。ガラス球の直径は、7.0 [mm]、24.6 [mm] の二種類を利用した。Fig. 4-39 に層底部に 7.0 [mm] のガラス球を敷き詰めたときの層内圧力損失の時間変化の図、Fig. 4-40 に層底部に 24.6 [mm] のガラス球を敷き詰めたときの図、また Fig. 4-41 に模擬凝集体を層底部に設置しなかった場合の図を示す。Fig. 4-41 の実験では、層内の圧力損失は 1750 [s] 付近で減少し始めた。一方、層底部に模擬凝集体を設置した場合は、1750 [s] を超えても、層内の圧力損失は一定の値を示し続けた。Fig. 4-39、Fig. 4-40 にみられる海水供給直後に生じた層内の圧力損失の低下は、架橋により形成された凝集体が、ガラス球直上のデッドスペースに堆積したためだと考えられる。これらの結果は、流動層底部に凝集体がある量堆積すると、凝集体の堆積が持続しない Fig. 4-37 の結果と一致している。したがって、流動層底部に凝集体が堆積することで t_a が大きくなったと考えられる。

さらに、この結果を、構築した凝集体の成長・堆積モデルを用いて考察した。流動層底部に凝集体が存在しない運転条件では、Fig. 4-42 に示すように、流動化ガスはガラスフィルターによって均一に分散され初期気泡径は相対的に小さいが、凝集体が層底部に堆積すると、Fig. 4-43 に示すように、分散板上のガスが癒合し、見かけの初期気泡径が大きくなると予想される。そこで、初期気泡径と気泡のせん断力の関係について検討した。Fig. 4-44 に構築したモデルから導かれた計算結果を示す。初期気泡径が大きくなるに従い、層内で働くせん断力は増加する。気泡のせん断力が大きくなるに従い t_a [s] は増加するので、構築したモデルから導かれた結果は実験結果と一致する。

以上から、ある量の凝集体が堆積したのち海水の注入を続けても凝集体が増加しなかったのは、凝集体それ自身が堆積したためであることを、模擬凝集体を用いた実験から明らかにした。また、凝集体の存在によって t_a [s] が大きくなったのは、構築したモデルを使った考察から、初期気泡径が癒合し気泡のせん断力が大きくなったためだと考えられる。

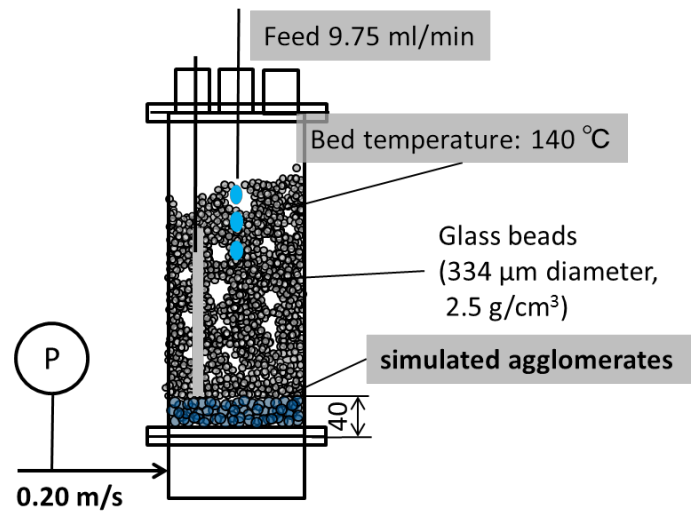


Fig. 4- 38 Experimental setup.

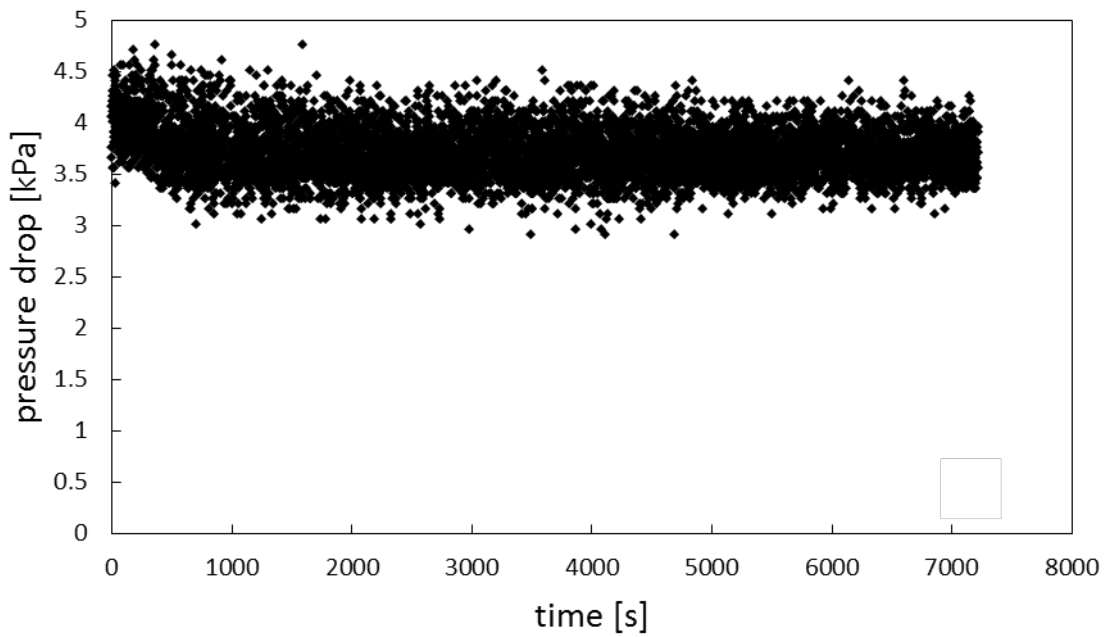


Fig. 4- 39 Pressure drop vs. time plots (7 mm glass beads were set at the bottom of the bed).

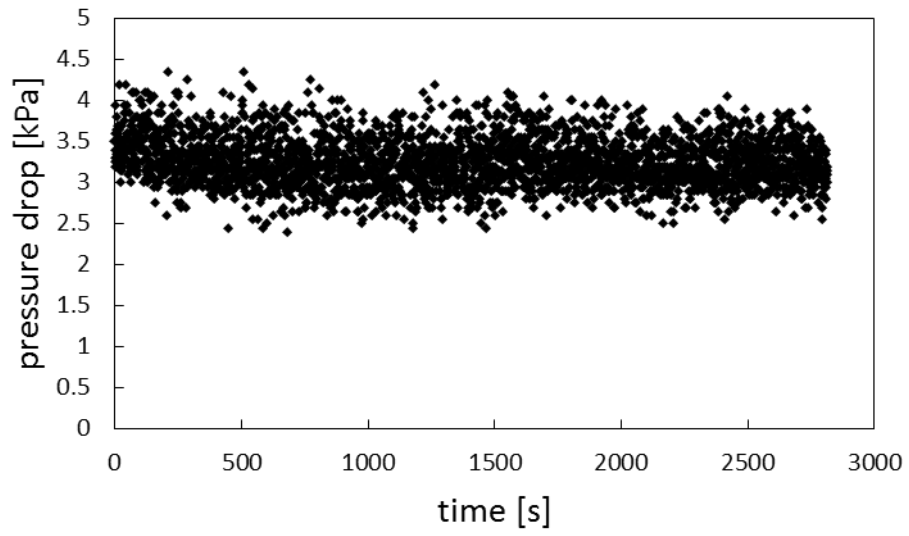


Fig. 4- 40 Pressure drop vs. time plots (24.6 mm glass beads were set at the bottom of the bed).

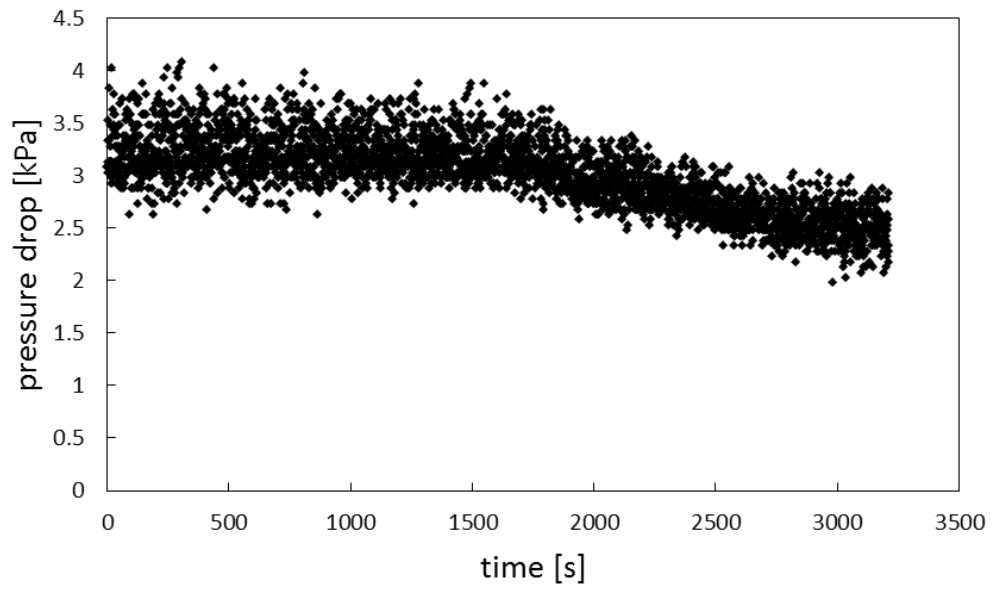


Fig. 4- 41 Pressure drop vs. time plots.

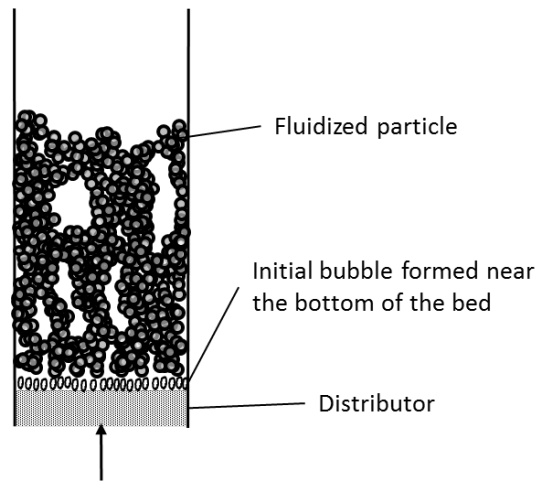


Fig. 4- 42 Schematic diagram of initial bubble without accumulated agglomerates.

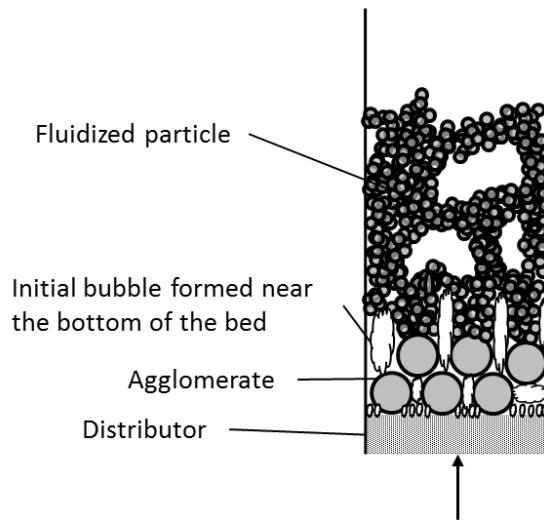


Fig. 4- 43 Schematic diagram of initial bubble with accumulated agglomerates.

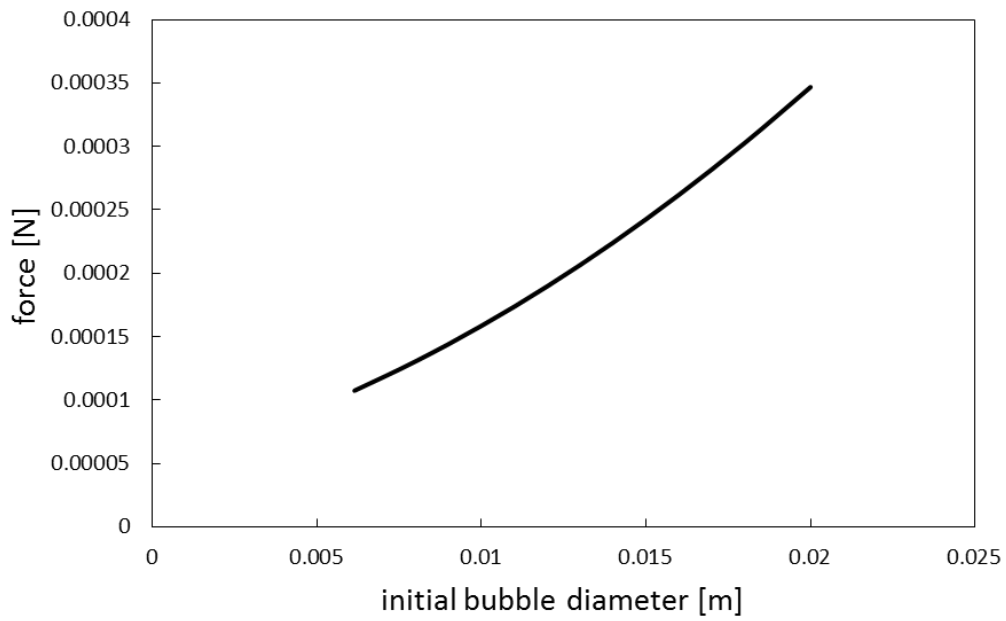


Fig. 4- 44 Variation in shear force vs. initial bubble diameter.

4. 4. 流動層蒸発器内における凝集体成長・堆積モデル

4. 2 で構築した凝集体成長・堆積モデルは 4. 3 の実験によってその妥当性が示された。Fig. 4- 45 に構築したモデルを模式的に説明する。流動層内に液体を供給すると液架橋により凝集体が形成される。凝集体へは、主に液架橋力と気泡のせん断力が働き、それらの大きさから、凝集体の振舞いに変化する。液架橋力よりも気泡のせん断力の方が小さい場合、凝集体は破碎されない。またその時の空塔速度がテイクオーバー速度よりも遅い場合、凝集体は速やかに流動層底部に堆積する。液架橋力よりも気泡のせん断力の方が大きい場合、液架橋によって形成された凝集体は破碎され、流動層内に浮遊する。破碎された凝集体は、他の凝集体と接触し、大きくなるとともに、層内で熱を受け取り、粒子間で固体架橋を形成する。凝集体の大きさが、流動化ガスによって支えられることが可能な大きさを超えると、流動層底部に堆積する。また、凝集体が堆積しても、層上部の流動化は持続した。従って、層底部に堆積した凝集体をバッチ的、または連続的に回収することで、流動層蒸発器を連続運転することが可能であると考えられる。

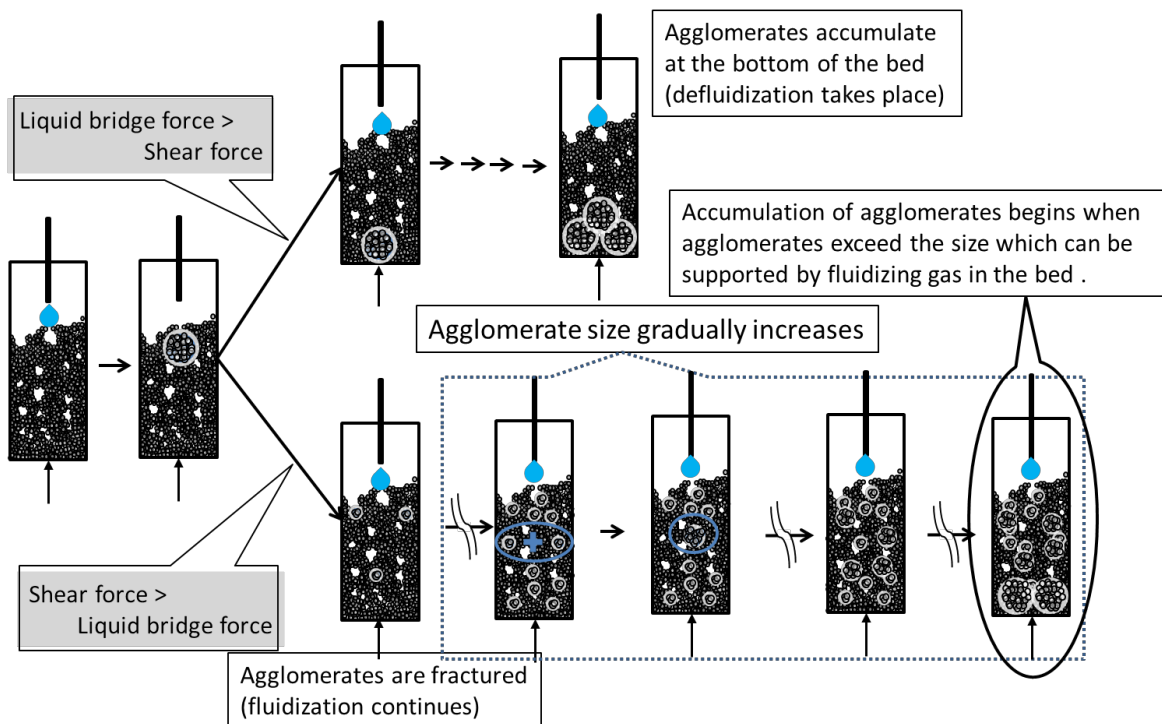


Fig. 4- 45 Agglomerates growth and accumulation model.

4. 5. 流動層蒸発器のスケールアップ

実験室スケールの装置を工業的な規模で利用するためには、装置のスケールを大きくする必要がある。しかしながら、装置のスケールを大きくすると、小型の装置と同じ条件で運転したとしても温度、濃度分布が生じるなど、想定外の現象が起こることがある。そこで、小型の装置と同じ挙動を、大型の装置で実現するための設計基準を取得する、スケールアップが工業化に向けて重要となる。

スケールアップを行う手法として、主に相似則を利用する方法が利用されている^[3 3]。まず小規模の実験装置を作製し、供給流体の物性やプロセスの基礎データを収集する。次に小型の装置と相似な大型の装置を作製し、実験をおこなう。そこで、小型の装置、大型の装置、それぞれで得られたデータの差を確認し、スケール効果を支配する因子を特定する。スケール効果とは、物体の代表寸法が変化した場合、これに作用する各種影響や物体そのものの特性が変化する現象である。ここで得られた知見に基づいて、大型の装置での構造、運転条件を決定する。

本研究で提案した流動層蒸発器は、層内が気泡の挙動によって支配される気泡流動化状態になっている。気泡流動層での気泡の挙動は、堀尾らが提案した、スケール効果も考慮に入れた幾何学的相似則によって評価される^[2 7]。大型装置の空塔速度、最小流動化ガス速度をそれぞれ U_0^0 、 U_{mf}^0 、装置の縮尺を m とすると、次式

$$U_0 - U_{mf} = \sqrt{m} (U_0^0 - U_{mf}^0) \quad (4-35)$$

を満たすとき、軸方向の気泡の生成、合体、上昇過程が相似になる。また、半径方向の粒子の混合はペクレ数から評価が可能であると報告されている^[2 3]。ペクレ数は次式、

$$Pe_r = \frac{(U_0 - U_{mf}) l_{mf}}{E_r} \quad (4-36)$$

で表される。 l_{mf} は $U_0 = U_{mf}$ 時の層高、 E_r は半径方向への拡散係数である。小型の装置と、大型の装置で Pe_r が等しくなるように設計することで、半径方向の気泡の挙動を等しくすることが可能となる。

また、一般的な気泡流動層の特徴として、気泡流動層では熱容量の大きい流動粒子が流動化ガスにより激しく混合することで、層内の温度、濃度分布が均一になりやすく大

規模な装置に適していることが知られている^[27]。

一方、本研究では流動層蒸発器に海水を供給する。ここで、スケールアップした蒸発器でも本実験と同様に一か所から海水を供給すると、局所的に非流動化が生じ、安定した海水の蒸発が困難になることが予想される。

以上より、相似則を利用することで、本研究で提案した流動層蒸発器のスケールアップを効率的に行うことが可能であると考えられるが、同時に海水の供給方法について検討を行う必要があると考えられる。

4. 6. まとめ

本章では、流動層蒸発器の連続、安定的な運転条件の解明を行うために、流動層内での凝集体の成長・堆積モデルの構築を行った。さらに、実験にて、構築したモデルの妥当性について検討を行った。

凝集体の成長・堆積モデルを構築するために層内で働く力について検討を行い、付着力として液架橋力と固体架橋力、分離力として気泡のせん断力が支配的となることを明らかにした。そこで、第一に、流動層内に液体を供給した直後の凝集体の振舞いを検討するために、液架橋力と気泡のせん断力の2力について検討を行った。

気泡のせん断力は層高と空塔速度の関数となる。そこで、各空塔速度における気泡のせん断力は、層底部から静止層高までの算術平均として評価し、また、液架橋力と気泡のせん断力が等しくなる時の空塔速度を U_{eq} [m s^{-1}] と定義した。そして空塔速度 U_0 [m s^{-1}] が U_{eq} よりも小さい場合と大きい場合のそれぞれにおいて、凝集体の挙動を考察した。

U_0 が U_{eq} よりも小さいときの凝集体の挙動は、二成分系流動層内における沈降性粒子として評価した。二成分系流動層ではテイクオーバー速度 U_{to} [m s^{-1}] を閾値として、混合が促進される領域と、分離が促進される領域に分かれる。本流動層の条件では、 U_{to} は U_{eq} よりも大きくなるので、空塔速度 U_0 が U_{eq} よりも小さい条件では、凝集体は破碎されずすみやかに流動層底部に堆積することが、構築したモデルから示唆された。

U_0 が U_{eq} よりも大きい条件では、物理的な仮定から、凝集体成長・堆積モデルを構築した。そしてモデルから導いた、溶液の供給開始時間から凝集体の堆積が開始するまでの時間 t_a [s] と、凝集体が堆積するまでに供給する液量 F [ml] を実験結果と比較した。

空塔速度 (0.13~0.26 [m s^{-1}])、静止層高 (250、325 [mm])、海水供給速度 (3.1~20 [g min^{-1}])、層内温度 (24~147 [$^{\circ}\text{C}$]) を変えて流動層で海水蒸発実験を行った結果、実験結果は構築したモデルとよく一致した。さらに、分散板が流動状態に与える影響、及び堆積した凝集体と空塔速度の関係も構築したモデルによって説明することが可能であることを明らかにした。以上より、提案した凝集体の成長・堆積モデルの妥当性が示された。さらに、本実験の条件では、4. 3. 3. 5 で行った、室温の流動層に海水を供給する実験を除き、流動層を蒸発器として、つまり乾燥プロセスに利用することが可能であることを確認した。

-
- [1] J. Ma, D. Liu, Z. Chen, X. Chen, "Agglomeration characteristics during fluidized bed combustion of salty waste water," *Powder Technology*, 253 (2014) 537-547.
- [2] U. Arena, M. L. Mastellone, "Defluidization phenomena during the pyrolysis of two plastic wastes," *Chemical Engineering Science*, 55 (2000) 2849-2860.
- [3] P. Chaivatamaset, P. Sricharoon, S. Tia, B. Bilitewski, "The characteristics of bed agglomeration/defluidization in fluidized bed firing palm fruit bunch and rice straw," *Applied Thermal Engineering*, 70 (2014) 737-747.
- [4] W. Lin, K. Dam-Johansen, F. Frandsen, "Agglomeration in bio-fuel fired fluidized bed combustors," *Chemical Engineering Journal*, 96 (2003) 171-185.
- [5] C. L. Lin, T. H. Peng, W. J. Wang, "Effect of particle size distribution on agglomeration/defluidization during fluidized bed combustion," *Powder Technology*, 207 (2011) 290-295.
- [6] C. L. Lin, M. Y. Wey, C. Y. Lu "Prediction of defluidization time of alkali composition at various operating conditions during incineration," *Powder Technology*, 161 (2006) 150-157.
- [7] Y. Zhong , Z. Wang, Z. Guo, Q. Tang, "Prevention of agglomeration/defluidization in fluidized bed reduction of Fe_2O_3 by CO: The role of magnesium and calcium oxide," *Powder Technology*, 241 (2013) 142-148.
- [8] J. P. K. Seville, R. Clift, "The effect of thin liquid layers on fluidization characteristics," *Powder Technology*, 37 (1984) 117-129.
- [9] J. Gomez-Hernandez, A. Soria-Verdugo, J. V. Briongos, D. Santana, "Fluidized bed with a rotating distributor operated under defluidization condition," *Chemical Engineering Journal*, 195 (2012) 198-207.
- [10] L. J. McLaughlin, M. J. Rhodes, "Prediction of fluidized bed behavior in the presence of liquid bridges," *Powder Technology*, 114 (2001) 213-223.
- [11] P. C. Wright, J. A. Raper, "Role of liquid bridge forces in cohesive fluidization," *Institution of Chemical Engineers*, 76 (1998) 753-760.
- [12] Y. Tsuji, T. Kawaguchi, T. Tanaka, "Discrete particle simulation of two-dimensional fluidized bed," *Powder Technology*, 77 (1993) 79-87.
- [13] K. D. Kafui, C. Thornton, M. J. Adams, "Discrete particle-continuum fluid

modelling of gas-solid fluidized beds,” *Chemical Engineering Science*, 57 (2002) 2395-2410.

- [1 4] 酒井幹夫編, 粉体の数値シミュレーション, (2012), 丸善出版.
- [1 5] 粉体工学会編, 粉体の基礎物性, (2005), 日本興業新聞社.
- [1 6] N. Mitarai, F. Nori, “Wet granular materials,” *Advances in Physics*, 55 (2006) 1-45.
- [1 7] C. D. Willett, M. J. Adams, S. A. Jonson, J. P. K. Seville, “Capillary Bridges between Two Spherical Bodies,” *Langmuir*, 16 (2000) 9396-9405.
- [1 8] J. P. K. Seville, C. D. Willett, P. C. Knight, “Interparticle forces in fluidization: a review,” *Powder Technology*, 113 (2000) 261-268.
- [1 9] 遠藤禎行, 向阪保雄, 鬼東秀則, “架橋液乾燥後に形成される塩類の固体架橋による付着力,” *化学工学論文集*, 20 (1994) 542-548.
- [2 0] Y. T. Makkawi, P. C. Wright, “The voidage function and effective drag force for fluidized beds,” *Chemical Engineering Science*, 58 (2003) 2035-2051.
- [2 1] R. Di Gelice, “The voidage function for fluid—particle interaction systems,” *Internationa Journal of Multiphase flow*, 20 (1994) 153-159.
- [2 2] J.M. Dallavalle, (1948). *Micrometrics: The technology of fine particles (2nd ed.)*. London: Pitman.
- [2 3] 千葉忠俊, 吉田邦夫編, 流動層概論, (1996), 朝倉書店.
- [2 4] R. M. Davies, G. Taylor, “The mechanics of large bubbles rising through extended liquids and through liquids in tubes,” *Proceedings of the Royal Society of London*, 200(1062) (1950) 375-390.
- [2 5] 化学工学会編, 化学工学の進歩 26 流動層, (1992), 槇書店.
- [2 6] 鈴木輝夫, “粉体プロセスにおける静電気の計測と制御,” *粉体工学会誌*, 38 (2001) 514-505.
- [2 7] 日本粉体工業技術協会編, 流動層ハンドブック, (1999), 培風館.
- [2 8] D. Geldart, J. Baeyens, D. J. Pope, P. Van de wijer, “Segregation in beds of large particles at high velocities,” *Powder Technology*, 30 (1981) 195-205.
- [2 9] A. W. Nienow, P. N. Rowe, L. Y. L. Cheung, “A quantitative analysis of the mixing of two segregating powders of different density in a gas-fluidised bed,” *Powder Technology*, 20 (1978) 89-97.
- [3 0] R. W. Rice, J. F. JR. Brainovich, “Mixing/segregation in two-and three

dimensional fluidized beds: binary systems of equidensity spherical particles,”
AIChE Journal, 32 (1) (1986) 7-16.

[^{3 1}] H. Tanimoto, S. Chiba, T. Chiba, H. Kobayashi, “Jetsam descent induced by a
single bubble passage in three-dimensional gas-fluidized beds,” *Journal of
Chemical Engineering of Japan*, 14 (1981) 273-276.

[^{3 2}] D. Kunii, O. Levenspiel, *Fluidization Engineering* second edition, (1991),
Butterworth-Heinemann.

[^{3 3}] 化学工学会編, 第 3 版 化学工学 -解説と演習-, (2006), 槇書店.

5. 省エネルギーな乾燥プロセスの開発

5.1はじめに

3章では省エネルギー、かつ伝熱面へのスケール析出を抑制できる乾燥プロセスを構築するために、海水の蒸発に流動層の利用を考案し、流動層を蒸発器として利用することが可能なこと、また流動層蒸発器がもつスケール抑制効果を実験的に確認した。4章では流動層蒸発器を用いた乾燥プロセスを連続、安定的に運転できる条件の明確化を行うために、流動層内における凝集体の成長・堆積挙動について検討を行った。本章では海水淡水化プロセスにおける乾燥プロセスの省エネルギー化を行うために、自己熱再生に基づく流動層を利用した乾燥プロセスを構築し、その省エネルギー性について検討した。

自己熱再生と流動層を組み合わせたプロセスは Aziz や Liu らが、褐炭の乾燥^{[1]・[2]}やバイオマスの乾燥^{[3]・[4]}に適用し、従来プロセスに比べ、1/6～1/12程度までエネルギー消費量を削減できると報告している。これらのプロセスでは、固形試料を流動層に挿入し、試料中の水分を蒸発させる。流動層を利用する理由は、層から固形試料への良好な伝熱が期待できるからである。水分は固形試料の中に存在するので、液架橋による粒子の凝集や非流動化の可能性は低く、発生蒸気と流動化ガスの比を比較的大きくすることが可能である。一方、本研究で提案するプロセスでは、流動層蒸発器に溶質を供給し、その溶媒を蒸発させる。流動層内に溶質を供給するので、流動層で固体中の水分を蒸発させるプロセスと比較して、非流動化が生じる可能性が相対的に高い。そのため、良好な流動化を維持するために発生蒸気と流動化ガスの流量比は小さい条件で運転する必要がある。また、固体中の水分を蒸発させるプロセスでは結合水の存在を考慮する必要があり、溶質の水分を蒸発させるプロセスでは沸点上昇や架橋の影響を考慮する必要がある。このように流動層蒸発器で被加熱材料が異なると、プロセスの構成や安定な運転に必要な運転条件などが変化するので、その省エネルギー性も変化すると考えられる。

本章では、省エネルギーで排水が生じない海水淡水化プロセスを構築するために、自己熱再生に基づく流動層を利用した乾燥プロセスを構築した。また、提案したプロセスの省エネルギー性について検討を行った。

5.2自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセス

5.2.1. 流動化ガスの種類

流動層を蒸発器として利用する際、様々な気体を流動化ガスとして利用することが可能である。一般に、空気や過熱水蒸気が利用されている^{[5]・[8]}。本節では、流動化ガス

として空気、過熱水蒸気を利用した自己熱再生に基づく乾燥プロセスについて検討を行った。

5.2.2. 流動化ガスとして空気を利用した自己熱再生に基づく乾燥プロセス

流動化ガスとして空気を利用した自己熱再生に基づく乾燥プロセスの模式図を Fig. 5-1 に示す。海水は、まず顕熱交換器に入り予熱される (1 → 2)。その後、加熱された海水は空気で流動化されている流動層蒸発器に入り蒸発する (2 → 3)。蒸気と流動化ガス (空気) は圧縮機で熱交換に必要な温度差分断熱圧縮され流動層で蒸気の凝縮潜熱を熱交換する (3 → 4 → 5)。流動化ガス (空気) は気液分離器で分離され、圧縮機で加えられた圧力は膨張器で回収される (5 → 6)。その後、流動化に必要な仕事をブロアーで与えられたのち、再び層内に供給される (6 → 7 → 3)。気液分離器から流出した凝縮液は顕熱交換器で供給液を予熱したのち、バルブ、冷却器で基準状態に戻る (5 → 8 → 9)。このプロセスでは、層底部に堆積した凝集体と塩を連続、またはバッチで回収する (3 → 10)。同時に、取り出した粒子量と等量の流動粒子をヒーターで層内温度まで加熱したのち流動層蒸発器内に供給する (11 → 3)。

単位製品あたりのエネルギー消費量は次式で計算できる。

$$\frac{W}{m_p} = \frac{C+B+H-E}{m_p} \quad (5-1)$$

各パラメーターを Table 5-1 に示す。

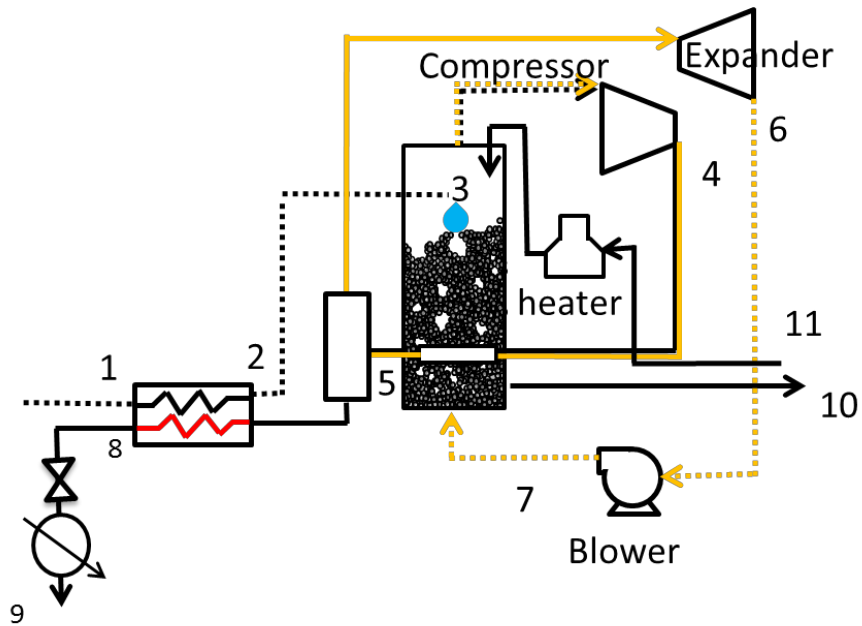


Fig. 5- 1 Schematic configuration of self-heat recuperative seawater desalination process using fluidized bed (fluidizing gas: air).

Table 5- 1 Parameters of the proposed process.

symbol	
W	Energy consumption [W]
m_p	Product water flow rate [g/s]
C	Work at compressor [W]
B	Work at Blower [W]
H	Heat at fired heater [W]
E	Work at expander [W]

5. 2. 3. 流動化ガスとして過熱水蒸気を利用した自己熱再生に基づく乾燥プロセス

Fig. 5- 2 に流動化ガスとして過熱水蒸気を利用した自己熱再生に基づく流動層を利用した乾燥プロセスの模式図を示す。海水は顕熱交換器で予熱されたのち、流動層蒸発器に流入する (1 → 2 → 3)。海水は加熱された流動粒子と接触して蒸発し、蒸気は流動化ガスとともに層外に排出される。ここで、発生した蒸気分の流量は圧縮機へ (3 → 4 → 5)、流動化ガス分の流量はブロアーへ流入する (3 → 6 → 7)。ブロアーから流出した流体は再び流動層内に流動化ガスとして供給される (7 → 3)。圧縮機から排出された流体は流動層蒸発器内の熱交換器で冷却され、凝縮水となる (5 → 8)。凝縮水は顕熱交換器を経たのちバルブと冷却器でもとの温度圧力状態に戻る (8 → 9 → 10)。

本プロセスのエネルギー消費量は、次式で表される。

$$\frac{W}{m_p} = \frac{C + B + H}{m_p} \quad (5-2)$$

各パラメーターは Table 5-1 と同様である。

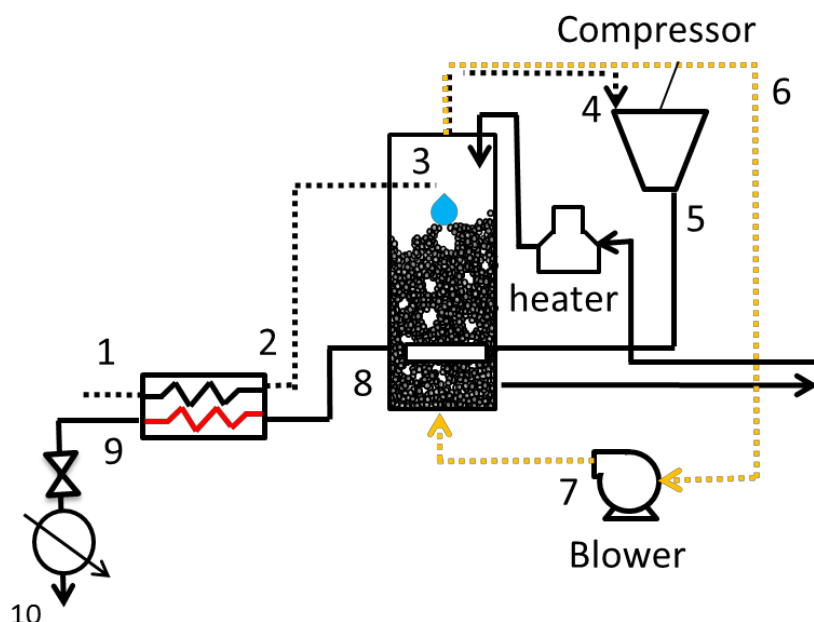


Fig. 5- 2 Schematic configuration of self-heat recuperative seawater desalination process using fluidized bed (fluidizing gas: steam).

流動化ガスとして空気を利用した流動層蒸発器は3、4章で運転が可能なことを確認している。本節では、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用しても流動層を蒸発器として運用することが可能か検討するために、過熱水蒸気雰囲気中における伝熱速度、及び物質移動速度について考察した。さらに、過熱水蒸気を利用した流動層蒸発器で実験的な検討も行った。

直径 d [m] の水滴を温度 T [°C] の過熱水蒸気流れ中に置いた時、伝熱速度は、物質移動が律速とならない場合、次式で表される。

$$Q = h_h (T - T_w) \quad (5-3)$$

ここで Q 、 h_h 、 T_w はそれぞれ伝熱速度 [$\text{kJ h}^{-1} \text{m}^{-2}$]、水滴表面のガス側熱伝達率 [$\text{kJ h}^{-1} \text{m}^{-2} \text{K}^{-1}$]、水滴の温度 [°C] である。

熱伝達率は次式から推算することができる。

$$Nu = \frac{h_h d}{k} \quad (5-4)$$

ここで、 Nu 、 d 、 k はそれぞれ、ヌセルト数 [-]、代表長さ [m]、流体の熱伝導率 [$\text{J m}^{-1} \text{s}^{-1} \text{K}^{-1}$] である。球体が一様な流れの中に置かれた際の対流伝熱に関する式は、Ranz Marshall によって次式が提案されている。

$$Nu = 2 + 0.6 Re_p^{1/2} Pr^{1/3} \quad (5-5)$$

ここで、 Re_p 、 Pr はそれぞれ、粒子レイノルズ数 [-]、プラントル数 [-] を表しており、 Re_p は以下の式で定義されている。

$$Re_p = \frac{vd}{\nu} \quad (5-6)$$

ここで、 v 、 d 、 ν はそれぞれ、流速 [m s^{-1}]、代表長さ [m]、流体の動粘度 [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$] である。そこで、(5-3)~(5-6) から、球体を過熱水蒸気中に置いた際の伝熱速度を計算し

た。代入した値を Table 5- 2 にまとめる。計算の結果、 $Q = 0.81 \text{ [kJ m}^{-2} \text{ s}^{-1}]$ となった。

Table 5- 2 Parameters for the heat transfer rate calculation.

symbol	Value
d (particle diameter [m])	0.01
T (bed temperature [°C])	140
T_w (liquid temperature [°C])	100
v (velocity [m/s])	0.2
ν (kinetic viscosity [m ² /s])	2.53×10^{-5}
k (thermal conductivity [J / (m ² s K)])	2.80×10^{-2}
Pr (Prandtl number [-])	0.980

次に、伝熱が律速とならない場合の、物質移動に伴う伝熱量を試算した。
物質移動に伴う伝熱量は次の式で求められる。

$$Q = h_m(\rho_w - \rho)L \quad (5-7)$$

ここで、 h_m 、 ρ_w 、 ρ 、 L はそれぞれ、物質伝達率 [m s^{-1}]、水滴表面での質量濃度 [kg m^{-3}]、主流での質量濃度 [kg m^{-3}]、蒸発潜熱 [kJ kg-water^{-1}]である。

物質伝達率 h_m [m s^{-1}]は次式で推算することが可能である。

$$Sh = \frac{h_m d}{D} \quad (5-8)$$

ここで、 Sh 、 d 、 D はそれぞれシャーウッド数 [-]、代表長さ [m]、拡散係数 [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$]である。球体が一様な流体にさらされているとき、シャーウッド数は次式で推算される^[6]。

$$Sh = 2 + 0.6 \text{Re}_p^{1/2} \text{Sc}^{1/3} \quad (5-9)$$

Sc はシュミット数 [-] で、次の式、

$$Sc = \frac{\nu}{D} \quad (5-10)$$

で定義されている。また、拡散係数の推算には次式を用いた^[7]。

$$D = 0.1883 \times 10^{-4} \times \frac{(T^3 2/M)^{1/2}}{p \sigma^2 \Omega} \quad (5-11)$$

ここで p は圧力 [kPa]、 σ は物質固有の値 [10^{-10} m]、 M は分子量 [g mol^{-1}]である。 Ω は拡散に関する還元衝突積分と呼ばれ、基準化温度 T_N の関数として計算される。 Ω 、 T_N はそれぞれ次式で計算される^[7]。

$$\Omega = \frac{1.06036}{T_N^{0.1561}} + \frac{0.19300}{\exp(0.4763 T_N)} + \frac{1.03587}{\exp(1.5299 T_N)} + \frac{1.76474}{\exp(3.8941 T_N)} \quad (5-12)$$

$$T_N = \frac{kT}{\varepsilon} \quad (5-13)$$

ここで T_N を求める際に使用する k/ε も物質固有の値である。

以上の式から、球体を過熱水蒸気中に置いた際の伝熱速度を計算した。

使用した値を Table 5-3 にまとめる。計算の結果、 $Q = 3.32 \text{ [kJ m}^{-2} \text{ s}^{-1}]$ となった。

これらの結果は、過熱水蒸気下で、蒸発実験をおこなった場合も伝熱が律速となり、乾燥空気を利用した場合と同様の蒸発挙動を示すと示唆している。

実際、Stokic らは流動層蒸発器で、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用しても、空気を利用した場合と同様の乾燥挙動を示すことを報告している^[8]。

Table 5-3 Parameters for the mass transfer rate calculation.

symbol	Value
d (particle diameter [m])	0.01
T (bed temperature [°C])	140
T_w (liquid temperature [°C])	100
v (velocity [m/s])	0.2
ν (kinetic viscosity [m ² /s])	2.53×10^{-5}
k (thermal conductivity [J / (m ² s K)])	2.80×10^{-2}
Pr (Prandtl number [-])	0.980
ρ_w (mass concentration on the surface of waterdrop [kg/m ³])	0.590
ρ (mass concentration of the main stream [kg/m ³])	0.529
L_w (latent heat [kJ/kg])	2.26×10^3
p (pressure [kPa])	101
σ ([10 ⁻¹⁰ m])	2.64
M (molecular weight [kg/kmol])	18
T_N ([-])	0.511

さらに、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用しても、流動層で海水の蒸発が可能なことを実験的に確かめるために、Fig. 3-7 に示した装置を利用して海水蒸発実験をおこなった。

流動化ガスとして利用する過熱水蒸気は大阪電機工業株式会社製ボイラー（型式 OSG-150T）で発生させ、レギュレーター（株式会社 ヨシタケ製 型式 GD-6N）、流量調整バルブ、流量計（EMERSON 製 型式 3051SFC）を通過したのち、ヒーターで予熱し、流動層内に供給した。

Fig. 5-3 に過熱水蒸気で、海水蒸発実験をおこなった際の層内圧力損失の時間変化を示す。流動粒子の直径は 334 [μm]、層内温度は 140 [$^{\circ}\text{C}$]、海水供給速度は 10 [g min^{-1}]、空塔速度は 0.28 [m s^{-1}]である。層内への海水の供給は 60 [s] で開始した。海水供給直後には流動層内の圧力損失はほぼ一定である。しかしある時間を過ぎると流動層内部の圧力損失が減少し始めた。また、ビデオカメラの映像と比較すると、この時間は凝集体の堆積が開始する時間とほぼ一致した。これは流動化ガスとして空気を利用した場合と同じ挙動である。この結果は、過熱水蒸気を利用しても流動層蒸発器は海水乾燥プロセスとして利用することが可能であることを示唆している。また、空塔速度と圧力損失の減少が開始するまでの時間（凝集体が堆積し始めるまでの時間） t_a [s] は、Fig. 5-3 から $t_a = 2460$ [s] と求まった。Fig. 5-4 に流動化ガスとして空気を利用した場合と過熱水蒸気を利用した場合それぞれの U_0 と t_a の関係を示す。過熱水蒸気を利用したほうが乾燥空気を利用した場合よりも t_a が小さくなった。この理由を 4 章で構築した凝集体成長・堆積モデルから考察した。Fig. 5-5 にそれぞれの流動化ガスで空塔速度 U_0 と気泡のせん断力の大きさ F_b [N] の関係を示す。計算に利用した値は Table 5-4 に示す。この図から気泡の上昇によるせん断力は、乾燥空気を利用する場合よりも過熱水蒸気を利用した方が小さいことがわかる。従って、凝集体の成長は過熱水蒸気を利用した方が早くなり、Fig. 5-4 のように凝集体が堆積し始めるまでの時間 t_a が短くなったと考えられる。

本実験から、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用しても海水の蒸発は可能であり、4 章で構築した凝集体成長・堆積モデルで説明することが可能であることが明らかとなった。

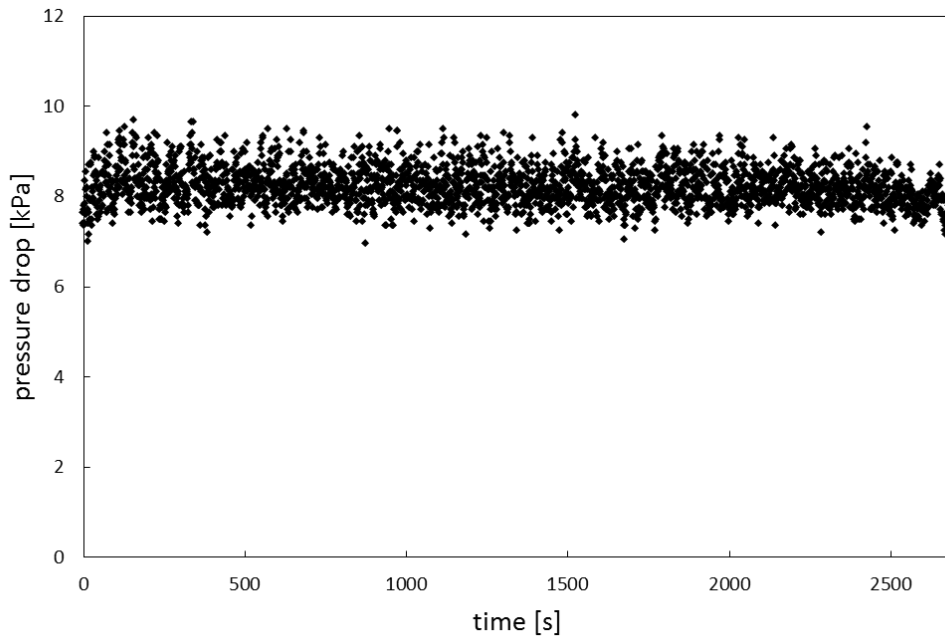


Fig. 5- 3 Pressure drop vs. time plots.

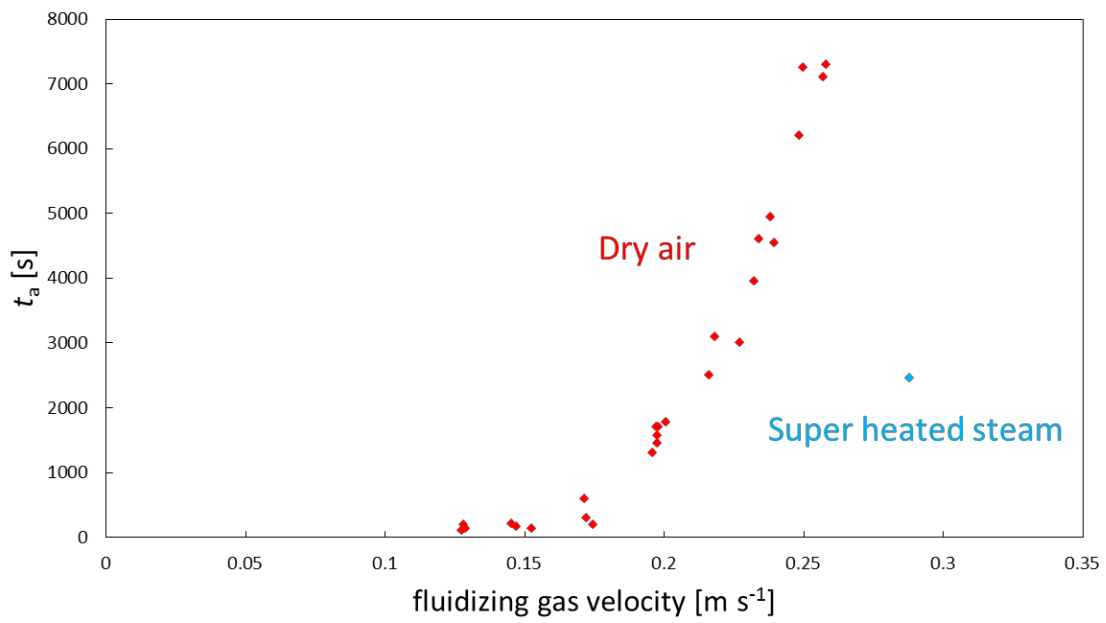


Fig. 5- 4 t_a vs. fluidizing gas velocity plots.

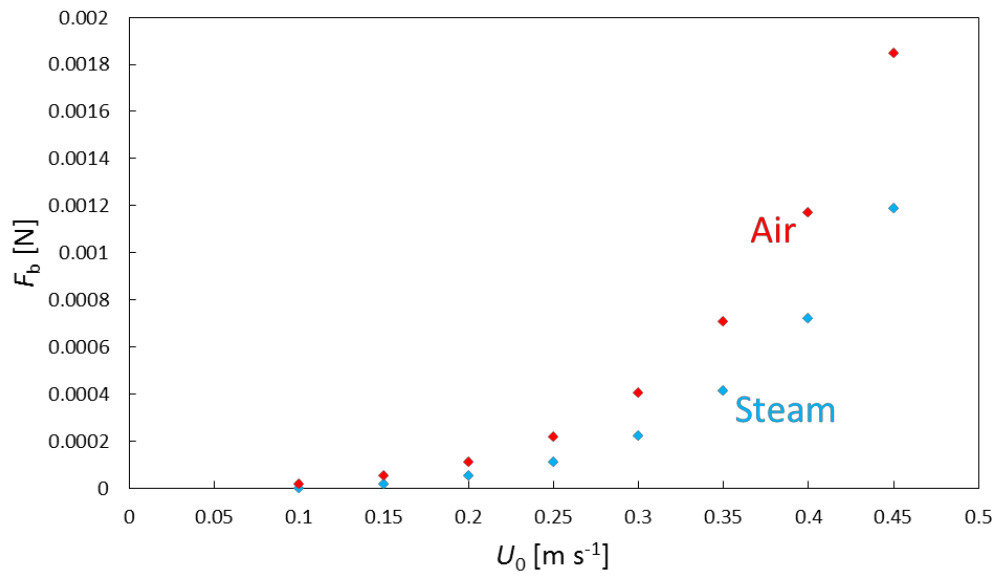


Fig. 5- 5 Variation in force vs. fluidizing gas velocity.

Table 5- 4 Parameters for the calculation of shear force.

symbol	Value (Air)	Value (Steam)
d_0 (particle diameter [m])	3.34×10^{-4}	
ρ_f (gas density [kg/m ³])	0.842	0.529
μ (gas viscosity [Pa·s])	2.37×10^{-5}	1.38×10^{-5}
ρ_p (particle density [kg/m ³])	2.50×10^3	
A_t (cross sectional area of bed [m ²])	6.22×10^{-3}	
D_t (bed diameter [m])	8.90×10^{-2}	
ϵ_{mf} (voidage [-])	0.41	
g (gravitational acceleration [m/s ²])	9.81	

5.3 エネルギー消費量の計算

5.3.1. シミュレーション条件

自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセスのエネルギー消費量をプロセスシミュレーター Pro/IITM Ver. 9.0 (Invensys) を利用し、以下の仮定に基づき計算した。

プロセスへ供給する流体の組成は、回収率に対する沸点変化が Fig. 2-11 のように変化するように仮定した。供給液の温度、圧力はそれぞれ 25 [°C]、101.3 [kPa] である。顕熱交換器は対向流式で、熱交換温度差は 5 [K]、また、流動層内における熱交換温度差は 10 [K] と仮定した。シミュレーションでは放熱、流体と固体を移動させるための仕事は考慮しなかった。凝集体の回収速度、流動粒子の供給速度は $m_{\max} t_a^{-1}$ で計算し、 m_{\max} の大きさは実験値を利用した。ブローア動力は流動層内で生じる全圧力損失 ΔP_t を与える動力として次のように計算した。

$$\Delta P_t = \Delta P_b + \Delta P_d \quad (5-14)$$

ここで、 ΔP_b 、 ΔP_d はそれぞれ、流動層での圧力損失、分散板での圧力損失である。

流動層での圧力損失は力のバランスから次式で計算できる。

$$\Delta P_b = (1 - \varepsilon_{mf}) (\rho_p - \rho_g) h g \quad (5-15)$$

ここで、 ε_{mf} [-]、 ρ_p [kg m⁻³]、 ρ_g [kg m⁻³]、 h [m]、 g [m s⁻²] はそれぞれ、最小流動化ガス速度の時の空隙率、粒子の密度、流動化ガスの密度、層高、重力加速度である。流動化ガスを均一に層内に供給するためには、分散板での圧力損失を、流動層の圧力変動に比べ十分大きくする必要がある。しかし、圧力損失を過大にすると、ガス供給の動力が大きくなってしまう。良好な流動化を行うためには、分散板での圧力損失は経験則から、流動層での圧力損失の 0.2 ~ 0.4 倍程度が適切であると報告されている^[9]。そこで本シミュレーションでは、分散板での圧力損失は次式で計算した。

$$\Delta P_d = 0.4 \Delta P_b \quad (5-16)$$

5.3.2. シミュレーション結果、考察

5.3.2.1. 自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセスのエネルギー消費量（流動化ガス：空気）

層内温度 $T_b = 140$ [°C]、空塔速度 $U_0 = 0.20$ [m s⁻¹]、流動層内への海水供給速度 $m_f = 10$ [g min⁻¹] として 5.2.2. で構築したプロセスのエネルギー消費量を計算した。計算に利用した他のパラメーターを Table 5-5 に示す。

シミュレーションの結果、単位製品あたりのエネルギー消費量は 2734 [kJ kg-water⁻¹] 以上となり、非常に大きな値となった。これは、流動化ガスである空気が蒸気と混ざったために蒸気分圧が低下し、プロセス内で熱を循環させるのに必要な圧力比が大きくなったためである。高温流体が 100 [°C] の蒸気のみである場合、仮に圧力比を 5 [-] で昇圧すると、高温流体の凝縮温度は 152.3 [°C] となる。しかしながら、高温流体に空気が混ざると、蒸気分圧が低下し、それに伴い凝縮温度も低下する。上記の流量の仮定では、圧力比を 5 [-] とした場合、凝縮温度は 98 [°C] となり、高温流体の温度の方が層内温度よりも低くなり熱交換ができなくなる。本シミュレーションの条件で、蒸気-空気流体中の蒸気が 150 [°C] で凝縮するように圧力比を設定すると、海水の蒸発に必要な潜熱を全て高温流体の顕熱で与えることが必要となった。そのため、プロセス内で熱は循環せず、エネルギー消費量は非常に大きくなった。また、本シミュレーションにおけるエネルギー消費量が、水の蒸発潜熱（約 2300 [kJ kg-water⁻¹]) よりも大きいのは、潜熱交換器における高温流体の最低温度を 150 [°C] と仮定したために、余計にエネルギーを加える必要があるためである。

Table 5-5 Parameters for the simulation.

symbol	Value
ϵ_{mf} (voidage [-])	0.41
ρ_p (particle density [kg/m ³])	2.50×10^3
ρ_g (gas density [kg/m ³])	0.842
h (bed height [m])	0.25
g (gravitational acceleration [m/s ²])	9.81
t_d (the time until the pressure drop begins to decrease [s])	1700
m_{agg} (mass of accumulated agglomerates [g])	0.6
A_t (cross sectional area of bed [m ²])	6.22×10^{-3}

5.3.2.2. 自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセスのエネルギー消費量 (流動化ガス: 過熱水蒸気)

層内温度 $T_b = 140$ [°C]、空塔速度 $U_0 = 0.28$ [m s⁻¹]、流動層内への海水供給速度 $m_f = 10$ [g min⁻¹]、として 5.2.3 で構築したプロセスのエネルギー消費量を計算した。過熱水蒸気の空塔速度は、空塔速度と最小流動化ガス速度の比が空気を利用した場合と同じになるように設定した。計算に利用した他のパラメーターを Table 5-6 に示す。

シミュレーションの結果、単位製品あたりのエネルギー消費量は 423 [kJ kg-water⁻¹] となった。この値は、流動化ガスとして空気を利用した場合の 15%程度である。これは、潜熱交換器に流入する高温流体が蒸気だけなので、分圧の低下による凝縮温度の低下が生じず、圧縮機動力が相対的に小さくなったためである。

さらに、流動層型蒸発器での熱交換温度差を小さくした場合のエネルギー消費量への影響を検討した。海水の沸点の上限は約 120 [°C] であり、また流動層蒸発器では伝熱面積を大きくとることができるので熱交換温度差を小さくすることが可能である。そこで、蒸気の凝縮温度 $T_c = 125$ [°C]、層内温度 $T_b = 120$ [°C] と仮定し (熱交換温度差が 5 [K]) エネルギー消費量を試算した。シミュレーションの結果、単位製品あたりのエネルギー消費量は 217 [kJ kg-water⁻¹] となった。この値は、上述の $T_b = 140$ [°C]、 $T_c = 150$ [°C] のシミュレーションと比べてエネルギー消費量が半分程度である。Fig. 5-6、Fig. 5-7 にそれぞれ $T_c = 150$ [°C]、 $T_b = 140$ [°C] のプロセスにおける温度熱量線図と $T_c = 125$ [°C]、 $T_b = 120$ [°C] のプロセスにおける温度熱量線図を示す。この図を見ると分かるように、 $T_c = 125$ [°C]、 $T_b = 120$ [°C] のプロセスの方が、より多くの熱がプロセス内で循環しており、冷却器で捨てられる熱量 Q が小さくなっていることがわかる。

以上よりエネルギー消費量が小さいプロセスを実現するためには、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用するのが望ましく、流動層蒸発器における熱交換温度差を小さくすることが重要であることがわかった。

Table 5- 6 Parameters for the simulation.

symbol	Value
ϵ_{mf} (voidage [-])	0.41
ρ_p (particle density [kg/m ³])	2.50×10^3
ρ_g (gas density [kg/m ³])	0.529
h (bed height [m])	0.25
g (gravitational acceleration [m/s ²])	9.81
t_o (the time until the pressure drop begins to decrease [s])	2460
m_{agg} (mass of accumulated agglomerates [g])	3.3
A_t (cross sectional area of bed [m ²])	6.22×10^{-3}

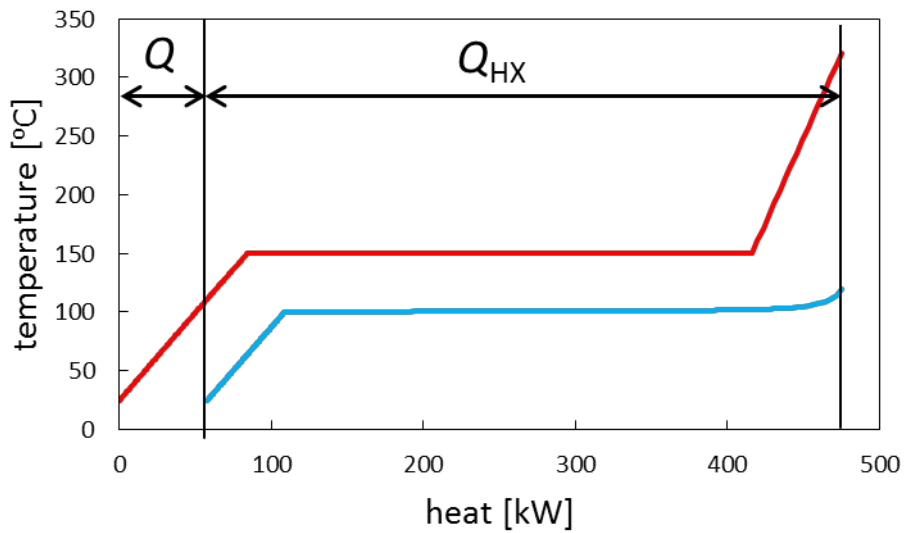


Fig. 5- 6 Temperature heat diagram of thermal process based on self-heat recuperation at $T_c = 150$ [°C] and $T_b = 140$ [°C].

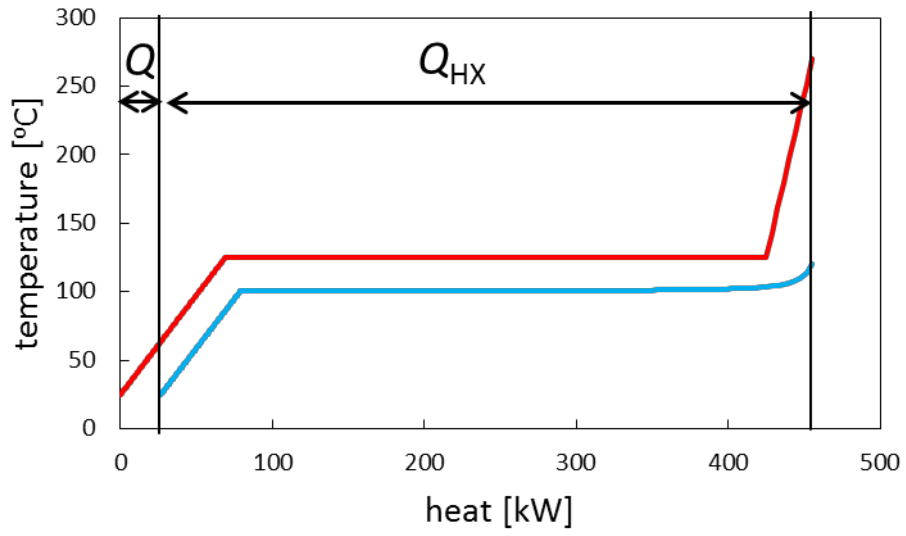


Fig. 5- 7 Temperature heat diagram of thermal process based on self-heat recuperation at $T_c = 125$ [°C] and $T_b = 120$ [°C].

5.3.2.3. 従来技術に基づくプロセスとの比較

提案した乾燥プロセスの省エネルギー性を明らかにするために、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用した自己熱再生に基づく乾燥プロセスと従来技術に基づく乾燥プロセス2種類（自己熱回収に基づく流動層蒸発器を利用したプロセスと多重効用法に基づくプロセス）のエネルギー消費量の比較を行った。

Fig. 5-8 に自己熱回収に基づく流動層を利用したプロセスの模式図を示す。海水は顕熱交換器で予熱されたのち、流動層蒸発器に流入する（1 → 2 → 3）。ここで、海水は流動化している加熱された粒子と接触することで蒸発し、流動化ガスとして利用されている蒸気とともに層外に排出される。このうち、発生した蒸気分の流量は顕熱交換器を経たのちバルブ、冷却器で元の基準状態に戻る（3 → 4 → 5 → 6）。流動化ガス分の流量はブロアーを通過したのち、再び流動層内に供給される（3 → 7 → 8 → 3）。本プロセスでは、流動層内に設置されたヒーターで熱を与える。また、回収した塩（3 → 9）と等量の流動粒子を層内に供給する（10 → 3）。

シミュレーションは5.3.1. 並びに、5.3.2.2. と同じ仮定で行った。シミュレーションの結果、自己熱回収に基づく流動層蒸発器を利用したプロセスでは、ヒーターで加えた熱量は365 [kW]、ブロアー動力は8.82 [kW]、粒子の加熱に利用した熱量 1.84×10^{-4} [W]、製品流量は0.16 [kg s⁻¹]となり、単位製品あたりのエネルギー消費量は2343 [kJ kg-water⁻¹] となった。 $T_b = 140$ [°C]、 $T_c = 150$ [°C] と仮定した自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用したプロセスでは圧縮機動力58.7 [kW]、ブロアー動力8.82 [kW]、粒子の加熱に利用した熱量 1.84×10^{-4} [W]、製品流量0.16 [kg s⁻¹] となり、単位製品あたりのエネルギー消費量は423 [kJ kg-water⁻¹] となった。また、 $T_b = 120$ [°C]、 $T_c = 125$ [°C] と仮定した場合の圧縮機動力、ブロアー動力、粒子の加熱に利用した熱量、製品流量はそれぞれ、26.5 [kW]、8.82 [kW]、 1.84×10^{-4} [W]、0.16 [kg s⁻¹] であり、単位製品あたりのエネルギー消費量は217 [kJ kg-water⁻¹] となった。したがって、自己熱再生に基づく流動層蒸発器を用いた海水淡水化プロセスの方が従来プロセスよりもエネルギー消費量を5/6 ~ 9/10程度削減できる。

この理由を温度熱量線図から考察した。Fig. 5-7 に $T_b = 120$ [°C]、 $T_c = 125$ [°C] の流動化ガスとして過熱水蒸気を利用した自己熱再生に基づく乾燥プロセスの温度熱量線図が示されている。この図は、低温流体の蒸発潜熱は高温流体の凝縮潜熱で賄われており、大部分の熱が循環していることを示している。Fig. 5-9 に自己熱回収に基づく流動層を利用した乾燥プロセスの温度熱量線図を示す。このプロセスでは、高温流体の凝縮潜熱を一部回収できるが、沸点と凝縮点が等しいため、低温流体の蒸発には利用する

ことができず、外部から蒸発潜熱に等しい熱量を与える必要がある。

以上より、提案したプロセスでは、プロセスの持つ熱の大部分を循環することができるので、従来型のプロセスと比べて単位製品あたりのエネルギー消費量を大幅に削減することが可能となる。

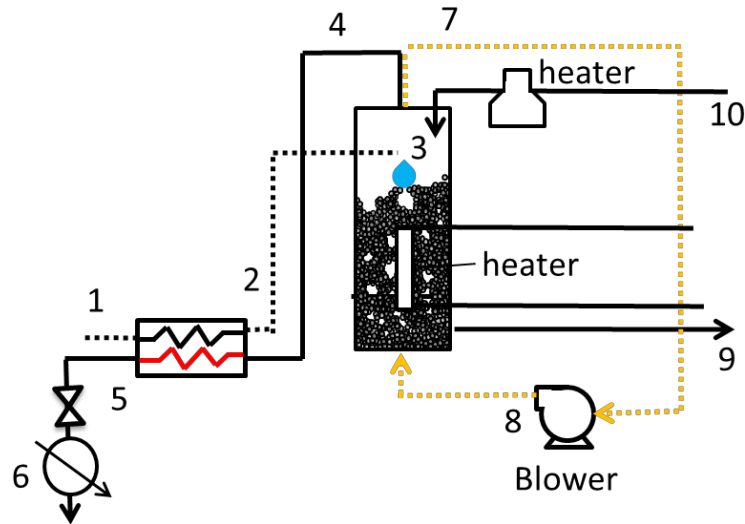


Fig. 5- 8 Schematic diagram of thermal process based on heat recovery.

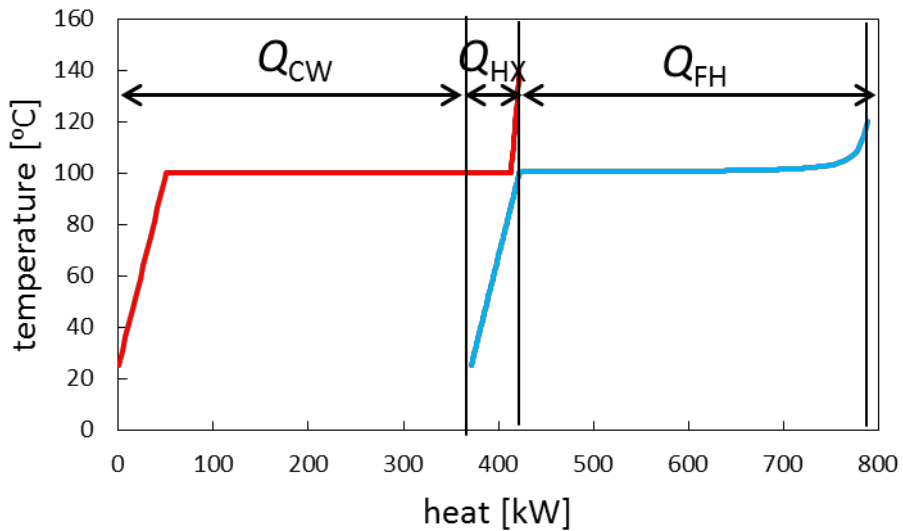


Fig. 5- 9 Temperature heat diagram of thermal process based on heat recovery.

さらに、製塩工業などで利用されている多重効用法に基づく乾燥プロセスとエネルギー消費量の比較を行った。その模式図を Fig. 5- 10 に示す。多重効用法に基づくプロセスは複数の効用（蒸発缶）から構成される。海水は顕熱交換器で温められたのち、1 番目の効用缶で外部から供給された熱源蒸気で蒸発する。発生した蒸気は次の効用内の溶液の蒸発に利用され、これを順次繰り返す。効用数が n 個の場合、熱損失などがない理想的な状態を仮定すると熱源蒸気の n 倍の蒸気を生成することができる。

プロセスシミュレーターを利用して単位製品あたりのエネルギー消費量を試算した。供給する流体の組成は、回収率に対する沸点変化が Fig. 2-11 のように変化するように仮定した。熱交換器での熱交換温度差は 5 [K]、効用缶の数は 4 個、海水の最高温度は 115 [°C]、各効用缶で温度が 5 [K] 低下するように圧力を設定した。気液平衡は NRTL で計算した。シミュレーションの結果、単位製品あたりのエネルギー消費量は 663 [kJ kg-water⁻¹] となった。この値が、熱回収に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセスよりも小さいのは、蒸気の潜熱も一部回収しているため、また流動化に必要なブローア一動力が必要ないためである。一方、多重効用法に基づくプロセスでは伝熱管表面で海水の蒸発が生じるので、流動層蒸発器を利用したプロセスよりも伝熱面へのスケール析出が生じやすく、3. 1 で述べたようにスケールの析出に伴いエネルギー消費量が増加すると考えられる。

提案したプロセスと多重効用法に基づくプロセスのエネルギー消費量を比較した。提案した乾燥プロセスの単位製品あたりのエネルギー消費量は、前述したように、蒸気の凝縮温度、層内温度をそれぞれ 125 [°C]、120 [°C] と仮定した場合、217 [kJ kg-water⁻¹] となった。したがって、提案したプロセスのエネルギー消費量は多重効用法を利用した乾燥プロセスと比べて 70% 程度エネルギー消費量を削減することが可能である。この理由を、温度熱量線図を用いて考察した。Fig. 5- 11 に多重効用法に基づくプロセスの温度熱量線図を示す。この図から、顕熱交換器と 2, 3, 4 番目の効用缶では高温流体と低温流体で熱交換が行われているが、1 番目の効用缶では外部から加えたエネルギーで海水が蒸発していることがわかる。一方、提案したプロセスでは Fig. 5- 7 からわかるように、流体の熱がすべて循環している。したがって、提案したプロセスは、多重効用法に基づくプロセスよりも大幅にエネルギー消費量を削減することが可能となる。

以上より、提案したプロセスは、自己熱回収に基づく流動層蒸発器を利用したプロセスと比べてエネルギー消費量の点で、多重効用法を利用したプロセスと比べてエネルギー消費量と伝熱面へのスケール析出を抑制できる点で優れていることが明らかとなった。

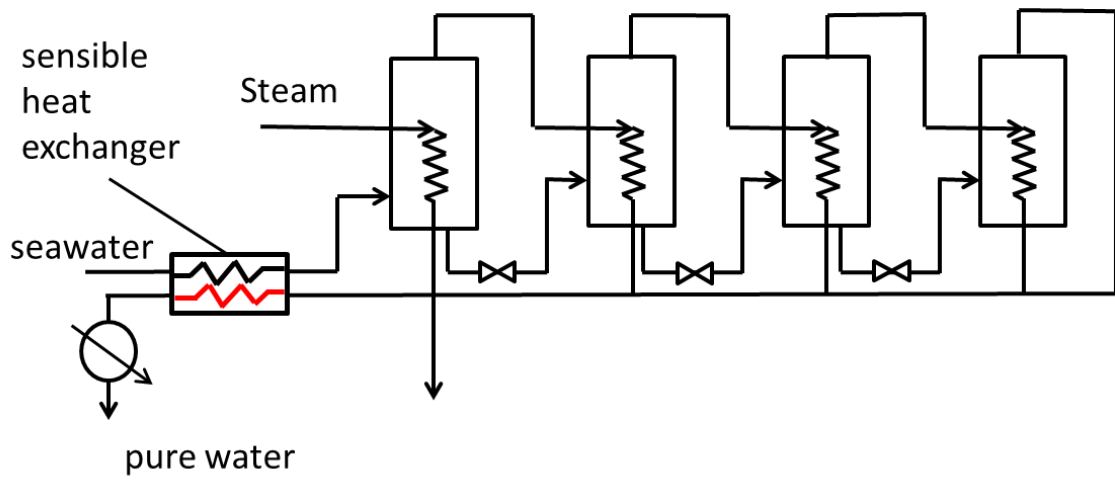


Fig. 5- 10 Schematics of multi-effect distillation.

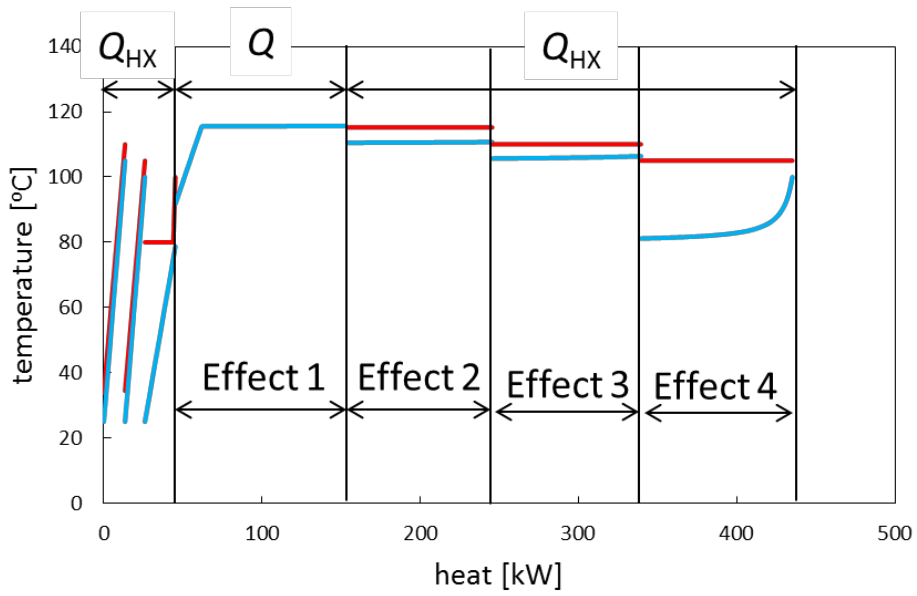


Fig. 5- 11 Temperature heat diagram of multi-effect distillation.

5.4 まとめ

本章では、省エネルギーで濃縮海水（排水）が発生しないプロセスを実現するために、自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセスの提案を行い、その省エネルギー性について検討を行った。提案したプロセスでは、ブロアーで流動化ガスを層内に供給するとともに、発生した蒸気を圧縮機で昇温、昇圧し、流体の持つ熱をプロセス内で循環させる。流動化ガスとして空気または過熱水蒸気を利用し、各プロセスのエネルギー消費量を計算した。

シミュレーションから、流動化ガスとして空気を利用すると流動化ガスとして過熱水蒸気を利用する場合と比べてエネルギー消費量が非常に大きくなることがわかった。これは、流動化ガスとして空気を利用すると、海水由来の蒸気と流動化ガスである空気が混ざるので、蒸気分圧が小さくなり、その分圧縮機動力が増加するためである。一方、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用すると、蒸気分圧は低下せず、省エネルギーで乾燥プロセスを運用することが可能となる。したがって、エネルギー消費量が小さいプロセスを実現するためには、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用するのが望ましいことが明らかとなった。同時に、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用しても、流動層で海水の蒸発が可能であることを理論的な考察と実験から確認した。

次に、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用した自己熱再生に基づく流動層蒸発器を用いた海水淡水化プロセスと従来プロセス（自己熱回収に基づく流動層蒸発器を用いた海水淡水化プロセス）のエネルギー消費量を比較した。シミュレーションの結果、提案したプロセスの単位製品あたりのエネルギー消費量は $217 \sim 423 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ 、従来プロセスでは $2343 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ となり、提案したプロセスの単位製品あたりのエネルギー消費量は従来プロセスの $1/6 \sim 1/10$ 程度となった。これは、提案するプロセスでは大部分の熱が熱交換により循環するが、従来プロセスでは高温流体の一部しか熱交換されず、低温流体の加熱に大量のエネルギーが必要となるからである。

また、多重効用法に基づく乾燥プロセスと単位製品あたりのエネルギー消費量を比較した。その結果、自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセスは、伝熱面へのスケール析出を抑制しながらエネルギー消費量を 70% 近く削減できることを明らかにした。

以上のシミュレーション、実験から、自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用した乾燥プロセスは、前処理の負荷が小さく製品を直接工業用水として利用することが可能であり、かつエネルギー消費量が小さく、周辺海域への影響を考慮した革新的な海水淡水化プロセスの実現に大きく貢献すると考えられる。

-
- [1] Y. Liu, M. Aziz, Y. Kansha, A. Tsutsumi, "A novel exergy recuperative drying module and its application for energy-saving drying with superheated steam," *Chemical Engineering Science*, 100 (2013) 392-401.
- [2] M. Aziz, Y. Kansha, A. Kishimoto, Y. Kotani, Y. Liu, A. Tsutsumi "Advanced energy saving in low rank coal drying based on self-heat recuperation technology," *Fuel Processing Technology*, 104 (2012) 16-22.
- [3] Y. Liu, M. Aziz, Y. Kansha, S. Bhattacharya, A. Tsutsumi, "Application of the self-heat recuperation technology for energy saving in biomass drying system," *Fuel Processing Technology*, 117 (2014) 66-74.
- [4] Y. Liu, J. Peng, Y. Kansha, M. Ishizuka, A. Tsutsumi, D. Jia, X. T. Bi, C. J. Lim, S. Sokhansanj, "Novel fluidized bed dryer for biomass drying," *Fuel Processing Technology*, 122 (2014) 170-175.
- [5] Y. Tatemoto, S. Yano, T. Takeshita, K. Noda, N. Komatsu, "Effect of fluidizing particle on drying characteristics of porous materials in superheated steam fluidized bed under reduced pressure," *Drying Technology*, 26 (2001) 168-175.
- [6] D. Kunii, O. Levenspiel, (1990). *Fluidization Engineering second edition*. Oxford: Butterworth Heinemann.
- [7] 化学工学会編, 化学工学便覧改訂 6 版, (1999), 丸善.
- [8] D. Stokie, M. W. Woo, S. Bhattacharya, "Comparison of superheated steam and air fluidized bed drying characteristics of Victorian brown coals," *Energy Fuels*, 27(11) (2013) 6598-6606.
- [9] 日本粉体工業技術協会編, 流動層ハンドブック, (1999), 培風館.

6. 省エネルギーで蒸発法のメリットを持ち排水が生じない海水淡水

水化プロセスの開発

6.1 はじめに

2章では省エネルギーな濃縮プロセスを構築するために、自己熱再生に基づく蒸発法について検討を行った。5章では省エネルギーな乾燥プロセスを構築するために自己熱再生に基づく流動層蒸発器について検討を行った。本章では、省エネルギーで蒸発法のメリットを持ち排水が生じない革新的な海水淡水化プロセスを実現するために、自己熱再生に基づく濃縮プロセスと自己熱再生に基づく乾燥プロセスを組み合わせたプロセスを構築しその省エネルギー性能について検討を行った。

6.2 自己熱再生に基づく濃縮、乾燥プロセス

省エネルギーなプロセスを構築するために自己熱再生に基づく濃縮プロセスと自己熱再生に基づく乾燥プロセスを組み合わせた新たなプロセスを構築した。Fig. 6-1 に構築したモデルの模式図を示す。海水は顕熱交換器に入り予熱される (1→2)。その後、加熱された流体は1つ目の蒸発器に入り、スケールの析出が生じない回収率まで蒸発する (2 → 3)。発生した蒸気は気液分離器 (S1) で濃縮液と分離され、圧縮機 1 (C1) で熱交換に必要な温度差分圧縮される (3 → 4 → 5)。気液分離器 (S1) で分離された濃縮液は過熱水蒸気で流動化されている流動層型蒸発器に入り蒸発する (6 → 7)。加熱された流動粒子との接触によって発生した蒸気は流動化ガスとともに排出され、そのうち、流動化ガス分の流量はブロアーへ流入し再び流動層内に流動化ガスとして供給される (7 → 8 → 9 → 7)。海水の蒸発量分の蒸気は圧縮機へ流入し、流動層蒸発器内の潜熱交換器で冷却され、凝縮水となる (7 → 10 → 11 → 12)。凝縮水はバルブで減圧されたのち、圧縮機 1 から出てきた流体と混合し、1つ目の潜熱交換器、顕熱交換器を経たのちバルブと冷却器でもとの温度圧力状態に戻る (12 → 13 → 14 → 15 → 16 → 17)。

本プロセスでのエネルギー消費量は、次式で表される。

$$\frac{W}{m_p} = \frac{C_1 + C_2 + B + H}{m_p} \quad (6-1)$$

それぞれのパラメーターは Table 5-1 と同様である。圧縮機動力 C の添え字、1、2 は

それぞれ、濃縮プロセスにおける圧縮機動力、乾燥プロセスにおける圧縮機動力を意味する。

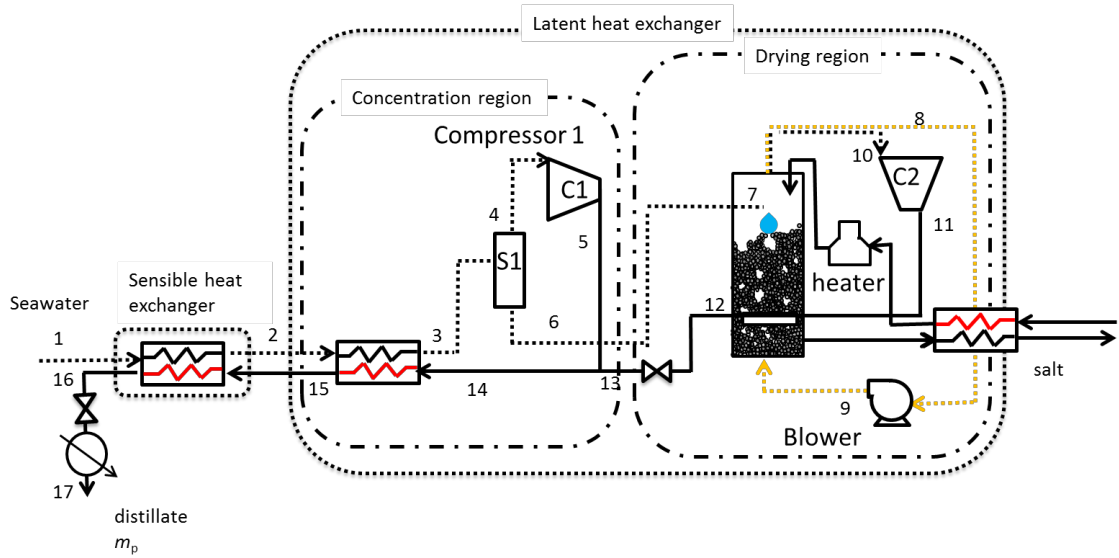


Fig. 6- 1 Schematic diagram of the self-heat recuperative concentration and drying process.

6.3 エネルギー消費量の計算

6.3.1. 自己熱再生に基づく濃縮プロセスと乾燥プロセスを組み合わせたプロセスのエネルギー消費量

提案したプロセスの省エネルギー性能について検討を行うために、プロセスシミュレーターを利用してエネルギー消費量を試算した。本プロセスでは、濃縮域で供給液の30%を蒸発させ、残りの濃縮液は流動層蒸発器で処理した。層内に供給する流量は $10 [\text{g min}^{-1}]$ とし、それ以外は Fig. 5-7 でエネルギー消費量を計算したときと同じ仮定を利用した。

シミュレーションの結果、 $C_1 = 1.84 [\text{W}]$ 、 $C_2 = 26.6 [\text{W}]$ 、 $B = 8.37 [\text{W}]$ 、 $H = 1.84 \times 10^{-4} [\text{W}]$ 、 $m_p = 0.23 [\text{g s}^{-1}]$ となった (Fig. 6-2)。(6-1) から、プロセス全体でのエネルギー消費量は $160 [\text{kJ kg}^{-1}]$ と求まった。

これは、5.3.2.2. で示した流動層蒸発器のみの乾燥プロセスよりもエネルギー消費量が 1/4 程度減少している。この理由を温度熱量線図から考察した。Fig. 6-3 に、自己熱再生に基づく流動層蒸発器だけを利用したプロセスと、自己熱再生に基づく蒸発法と流動層蒸発器を組み合わせたプロセスの温度熱量線図、ならびにそれぞれの熱交換器で熱を循環させるための圧縮機動力を示す。各プロセスの製品流量が等しくなるように、温度熱量線図、圧縮機動力を補正している。Fig. 6-3 からそれぞれのプロセスにおいて流体の持つ熱の大部分はプロセス内で循環していることが確認できるが、圧縮動力、並びに熱交換器内での熱交換温度差は本章で提案したプロセス (Fig. 6-1) の方が小さい。これは海水の塩分濃度が比較的低い 1 段目の蒸発器では、沸点上昇がほとんど生じないので、熱交換に必要な温度差を付けるための圧力比が小さくなり、プロセス全体での圧縮動力が小さくなったためである。さらに、海水淡水化プロセスを濃縮プロセスと乾燥プロセスの二つに分けると、乾燥プロセスで処理する海水の割合が小さくなるのでブローア動力も小さくなる。以上より単位製品あたりのエネルギー消費量は濃縮プロセスと乾燥プロセスを組み合わせたプロセスの方が乾燥プロセス単体のプロセスよりもエネルギー消費量が小さくなる。

また、本章で提案したプロセスの単位製品あたりのエネルギー消費量は、2 章で提案した自己熱再生に基づく蒸発法のエネルギー消費量 $70 [\text{kJ kg-water}^{-1}]$ と比べて 2 倍以上になっている。これは、濃縮プロセスのみの場合だと海水の沸点上昇はほとんど生じず、圧縮機動力が小さくて済み、なおかつブローア動力が不要なためである。しかしながら、このプロセスからは濃縮海水が排出される。

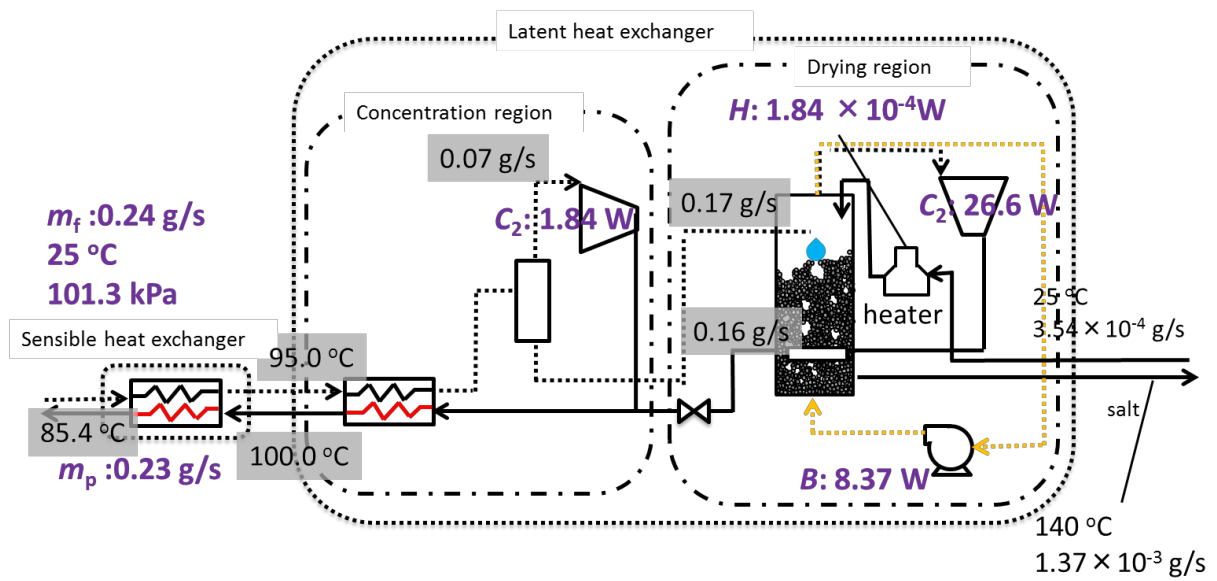


Fig. 6- 2 calculation result of the self-heat recuperative concentration and drying process.

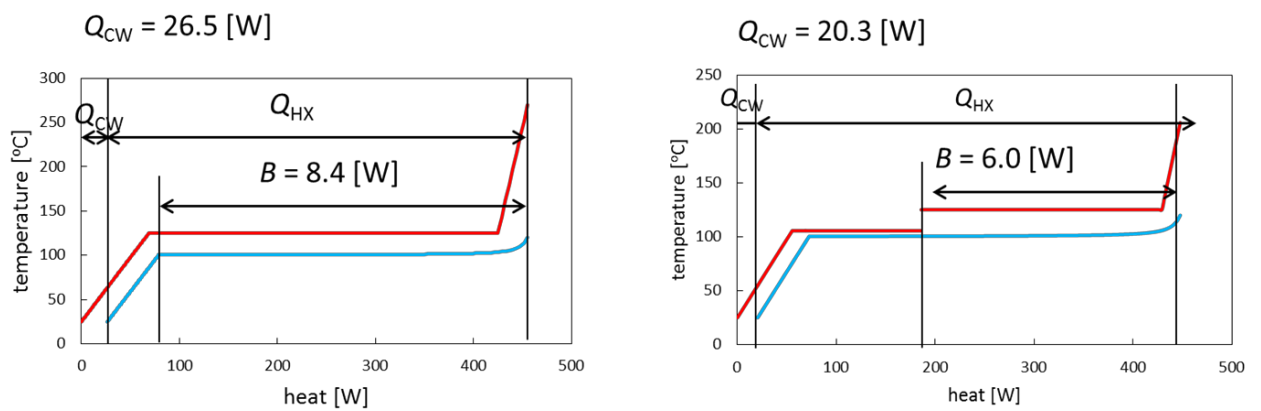


Fig. 6- 3 Temperature heat diagram of single drying process (left) and concentration and drying combination process (right).

6.3.2. 自己熱再生に基づく濃縮プロセスと乾燥プロセスを組み合わせたプロセスと既存のプロセスとの比較

提案したプロセスの省エネルギー性能を既存のプロセスと比較するために、濃縮プロセスとして、多段フラッシュ法、自己熱再生に基づく蒸発法の回収率と単位製品あたりのエネルギー消費量の関係、並びに乾燥プロセスである多重効用法と自己熱再生に基づく流動層蒸発器のエネルギー消費量をまとめた^{[1],[2],[3],[4]}。黒い線は濃縮プロセスを示している。実線は実際に運用されている回収率の領域、点線はスケールの析出などを考慮すべきことを示している。一方、褐色の実線は乾燥プロセスを示している。

既存の濃縮、乾燥プロセスで、濃縮海水が生じない蒸発法を構築するためには、多段フラッシュ法と、多重効用法に基づく晶析プロセスを組み合わせたプロセスとなる。Fig. 6-5の紫の実線でそのプロセスの構成を示す。回収率が0.16 [-] までは多段フラッシュ法で濃縮し、濃縮海水は多重効用法に基づく晶析プロセスで処理する。その時の単位製品あたりのエネルギー消費量は Fig. 6-5 から $586 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ となる。また本論文で提案するプロセス（自己熱再生に基づく蒸発法と自己熱再生に基づく流動層蒸発器を組み合わせたプロセス）は Fig. 6-5の緑の実線のように構成される。回収率が0.3 [-] までは、自己熱再生による蒸発法によって濃縮され、濃縮海水は自己熱再生に基づく流動層蒸発器で処理される。この時の単位製品あたりのエネルギー消費量は $167 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ となる。したがって、提案したプロセスは既存のプロセスと比べてエネルギー消費量を70%程度削減できることを明らかにした。さらに、Fig. 6-5からわかるように、自己熱再生に基づく蒸発法では回収率が大きいほど単位製品あたりのエネルギー消費量は減少する。Semiatらは海水の最高温度が $70 \text{ [}^\circ\text{C]}$ となるように減圧して濃縮プロセスを運用すると、スケールの析出なく回収率を0.5 [-] まで高めることができることを報告している^[5]。そこで、自己熱再生に基づく海水淡水化プロセスで回収率0.5 [-] まで濃縮し、残りを自己熱再生に基づく流動層蒸発器で蒸発させるプロセスのエネルギー消費量を計算すると、 $131 \text{ [kJ kg-water}^{-1}]$ となり、提案したプロセスのエネルギー消費量をさらに20%以上削減することが可能となる。以上より、自己熱再生に基づく蒸発法と自己熱再生に基づく流動層蒸発器を組み合わせた海水淡水化プロセスは、省エネルギーで蒸発法のメリットを有し、かつ周辺海域への影響が小さい革新的な海水淡水化プロセスを実現することが可能であると考えられる。

最後に、濃縮プロセスに逆浸透膜法を利用する場合のエネルギー消費量について検討を行った。Fig. 6-6に濃縮プロセスである多段フラッシュ法、熱交換温度差が 5 [K] 、 2 [K] の自己熱再生に基づく蒸発法、逆浸透膜法の回収率と単位製品あたりのエネルギー消費量の関係と、乾燥プロセスである多重効用法に基づくプロセスと自己熱再生に基づ

く流動層蒸発器を利用したプロセスの単位製品あたりのエネルギー消費量を示す。この図を用いて、これらの濃縮プロセスと乾燥プロセスを組み合わせた海水淡水化プロセスのエネルギー消費量を試算した。Fig. 6-7において、緑の実線は熱交換温度差 ΔT が5 [K]、回収率 R が0.3 [-]の時の自己熱再生に基づく蒸発法と自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用したプロセスを組み合わせた場合の単位製品あたりのエネルギー消費量、赤の実線は、 $\Delta T=2$ [K]、 $R=0.5$ [-]、の条件で自己熱再生に基づく蒸発法で濃縮し、濃縮海水を自己熱再生に基づく流動層蒸発器を組み合わせたプロセス、青の実線は、逆浸透膜法で $R=0.5$ [-]まで濃縮し残りを自己熱再生に基づく流動層蒸発器で処理したプロセスを示す。それぞれのエネルギー消費量は167 [kJ kg-water⁻¹]、109 [kJ kg-water⁻¹]、109 [kJ kg-water⁻¹]となる。これらの結果から、自己熱再生に基づく蒸発法の回収率を大きくするほど、また熱交換温度差を小さくするほど単位製品あたりのエネルギー消費量は小さくなり、 $\Delta T=2$ [K]、 $R=0.5$ [-]で自己熱再生に基づくプロセスを運用すると、濃縮プロセスで逆浸透膜法を利用したプロセスとほぼ同等のエネルギー消費量となることがわかる。

2.3.2.2で述べたように、蒸発法における単位製品あたりの造水コストは原料海水の塩分濃度の影響をほとんど受けず、また製品の塩分濃度は工業用水として利用できるほど低い。一方、逆浸透膜法は原料水の塩分濃度が低いとより単位製品あたりの造水コストは減少する。また、濃縮海水の排出が許可されている場合には、乾燥プロセスを利用せずに濃縮プロセス単体を使用した方が、Fig. 6-6を見ると分かるように、単位製品あたりのエネルギー消費量は低下する。

したがって、原料水の水質や濃縮海水の処理方法など、求められている条件によって適切なプロセスを選択することが、環境負荷の小さな海水淡水化プロセスを構築する上で重要であると考えられる。

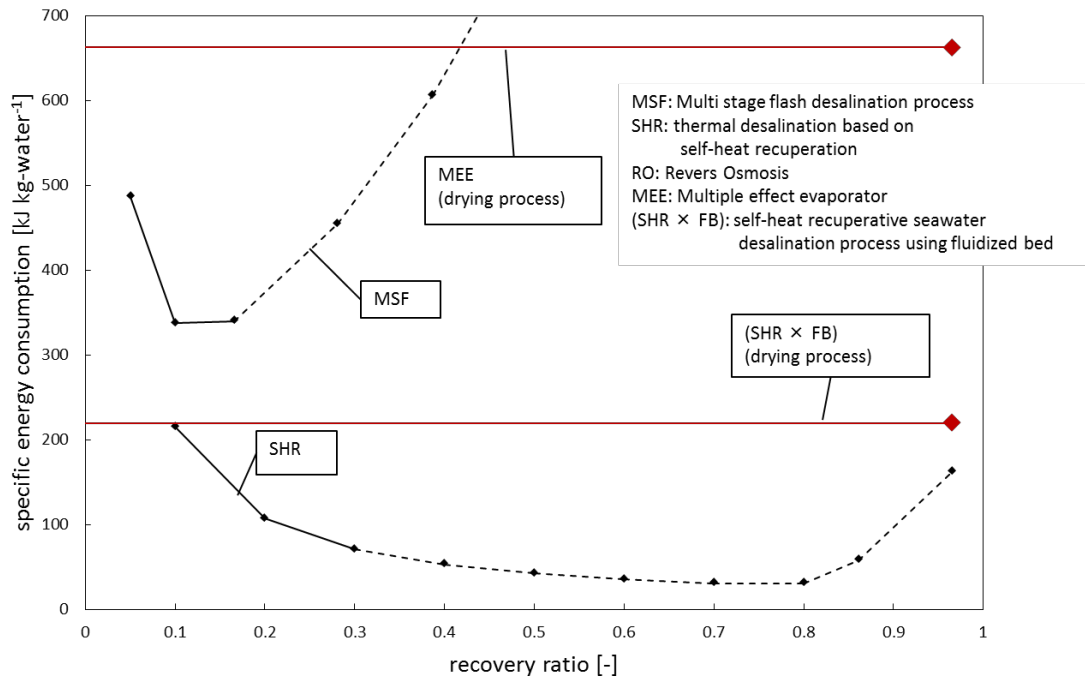


Fig. 6- 4 Summary of energy consumption.

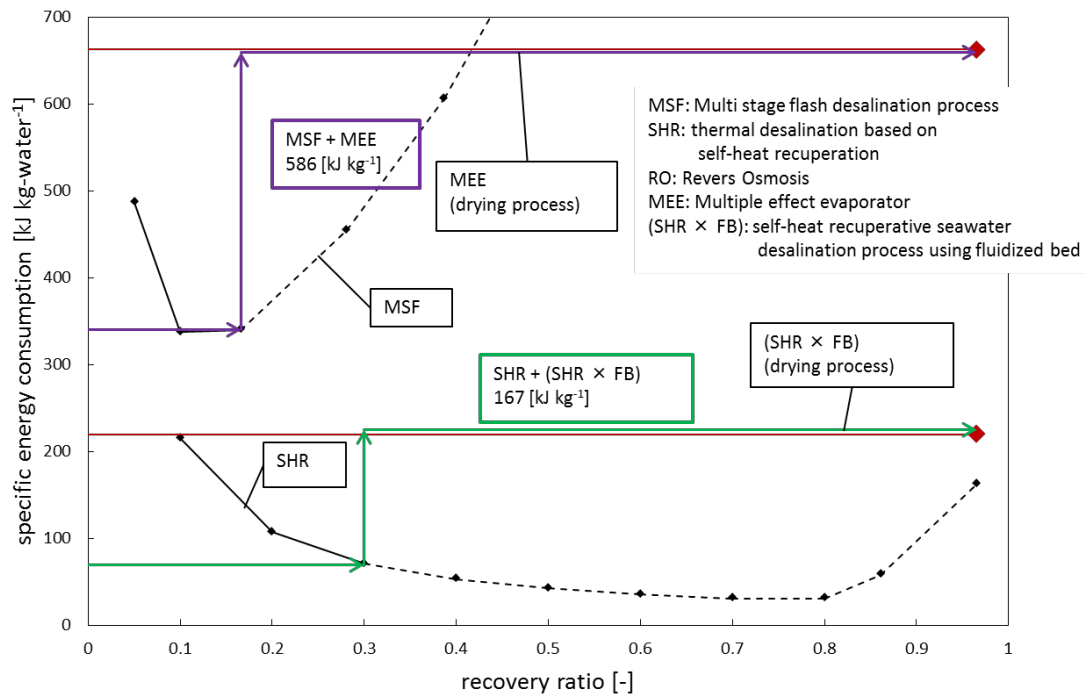


Fig. 6- 5 Comparison of energy consumption.

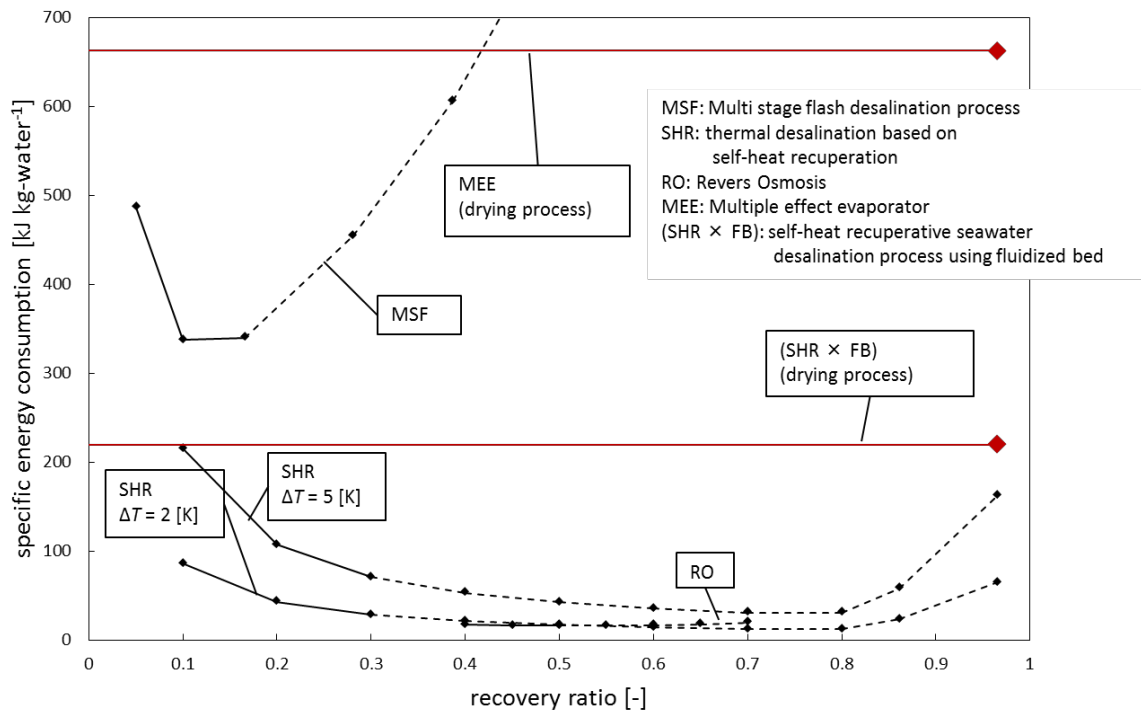


Fig. 6- 6 Summary of energy consumption.

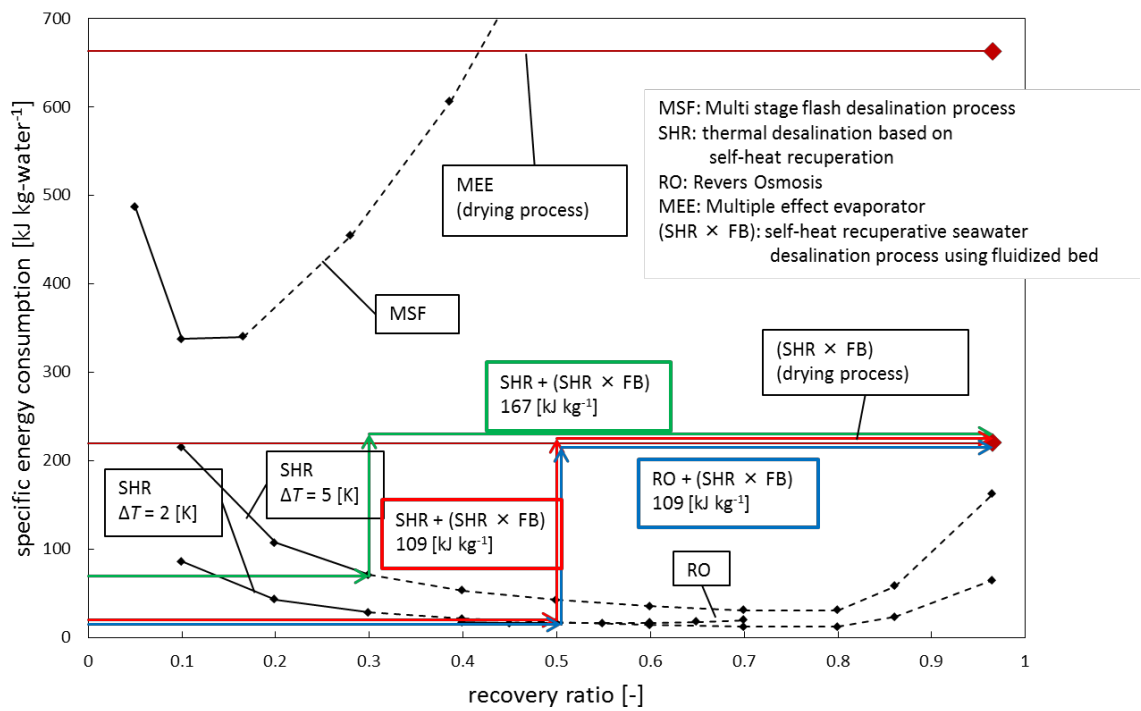


Fig. 6- 7 Comparison of energy consumption.

6.4 まとめ

本章では、省エネルギーで蒸発法のメリットを有し濃縮海水が発生しない革新的な海水淡水化プロセスを実現するために、自己熱再生に基づく蒸発法と、自己熱再生に基づく流動層蒸発器を用いたプロセスを組み合わせた新たなプロセスの提案を行い、その省エネルギー性について検討を行った。

シミュレーションの結果、提案したプロセスは自己熱再生に基づく流動層蒸発器単体のプロセスと比べて、エネルギー消費量を 25%程度削減できることを明らかにした。この理由を、温度熱量線図を用いて考察し、圧力比が小さいため、またブロアー動力が小さいためであることを明らかにした。

さらに、提案したプロセスを、既存の濃縮プロセスと乾燥プロセスを組み合わせたプロセスと比較し、提案したプロセスの省エネルギー性について検討を行った。シミュレーションの結果、提案したプロセスの単位製品あたりのエネルギー消費量は 109~167 [kJ kg-water⁻¹] となり、既存のプロセスと比べてエネルギー消費量を 70~80%程度削減できることを明らかにした。

以上の結果から、自己熱再生に基づく蒸発法と自己熱再生に基づく流動層蒸発器を組み合わせたプロセスは、省エネルギーで蒸発法のメリットを有し、かつ周辺海域への影響が小さい革新的な海水淡水化プロセスを実現することが可能であると考えられる。

-
- [1] H. Mizuno, Y. Kansha, A. Kishimoto, A. Tsutsumi, “Thermal seawater desalination process based on self-heat recuperation,” *Clean Technology and Environmental Policy*, 15 (2013) 765-769.
- [2] H. Mizuno, Y. Kansha, A. Kishimoto, A. Tsutsumi, “Thermal desalination process based on self-heat recuperation,” *Chemical Engineering Transactions*, 29 (2012) 379-384.
- [3] 日本海水学会・ソルト・サイエンス研究財団編, 海水の科学と工業, (1994), 東海大学出版会.
- [4] Web 版 化学プロセス集成 海水からの塩の製造-電気透析法と多重効用蒸発による塩の濃縮プロセス-, 化学工学会, <http://www3.scej.org/education/>, Accessed on November 19, 2015.
- [5] UNESCO-EOLSS Waste MULTI-EFFECT DISTILLATION (MED), UNESCO, <http://www.eolss.net/Sample-Chapters/C07/E6-144-44-00.pdf>, Accessed on November 30, 2015.

7. 結論

7.1. まとめ

世界では水不足が深刻な問題となっており、海水淡水化が大きな注目を集めている。現在、広く普及しているのは蒸発法と膜法である。

蒸発法は海水中の水分を蒸発させ、発生した蒸気を凝縮することで淡水を製造する。蒸発法のメリットとして、前処理の負荷が小さく、製品（淡水）の塩分濃度が工業用水として利用することができるほど低い点が挙げられる。しかしながら、エネルギー消費量が膜法に比べ大きいので、その省エネルギー化が求められている。同時に淡水製造後の残渣となる、濃縮海水の排出による周辺海域への悪影響が懸念されている。濃縮海水を処理するための乾燥プロセスとして、一般に多重効用法により省エネルギー化を図ったプロセスが利用されている。しかしながら、依然、エネルギー消費量が大きい問題や、伝熱面にスケールが析出するなどの問題がある。

本論文ではエネルギー消費量が小さく、蒸発法のメリット（前処理の負荷が小さく製品を直接工業用水として利用することが可能）を持ち、かつ周辺海域への影響を考慮した革新的な海水淡水化プロセスを実現するために、海水淡水化プロセスを濃縮プロセスと乾燥プロセスに分割し、それぞれの基礎的な研究を行った。さらにそれら二つを組み合わせ革新的な海水淡水化プロセスの開発を目標とした。

2章では、前処理の負荷が小さく、製品を直接工業用水として利用することができ、なおかつ省エネルギーな濃縮プロセスを実現するために、自己熱再生に基づく蒸発法の提案を行った。本プロセスでは、発生した蒸気を圧縮機で熱交換に必要な温度差分断熱圧縮し、高温流体の潜熱、顕熱を低温流体の潜熱、顕熱とそれぞれ熱交換させることで、プロセス内で流体の持つすべての熱を循環させる。シミュレーションを行い、熱交換温度差、回収率（供給した海水のうち淡水として取り出す割合）、断熱効率がエネルギー消費量に与える影響について検討するとともに、温度熱量線図を用いてその結果を考察した。さらに蒸発法として最も利用されている多段フラッシュ法と比較を行い、提案したプロセスの省エネルギー性について検討を行った。シミュレーションの結果、提案したプロセスは従来の蒸発法と比べて1/4以下までエネルギー消費量を削減できることを明らかにした。

3章では、海水淡水化プロセスによる周辺海域への影響を少なくするために、濃縮海水が排出されない乾燥プロセスについて検討を行った。濃縮海水を排出させないためには供給する海水を全て蒸発させる必要がある。しかしながら、従来の多重効用法を用いた乾燥プロセスではエネルギー消費量が大きく、また伝熱面にスケールが析出するなど

の問題があった。そこで、本研究では蒸発器に流動層の利用を提案した。粒子は、層底部から流入するガスによって流動化され、層内に挿入された伝熱管によって加熱される。海水は層上部から供給され加熱された流動粒子と接触する。提案した流動層を海水の蒸発に利用することが可能であるか、また可能な場合、そのスケール抑制効果について検討を行うために、流動層蒸発器を作製し海水蒸発実験を行った。実験の結果、流動層蒸発器で海水の蒸発が可能であり、かつ伝熱管表面にスケールは析出しないことを確認した。

4章では、提案した乾燥プロセスの安定した運転条件の明確化を行うために、流動層内における凝集体成長・堆積モデルの構築を行った。さらに、流動層で海水蒸発実験を行い、構築したモデルの妥当性について検討を行った。また、構築したモデル、実験をもとに流動層蒸発器を安定的に運用できる運転条件を導出した。流動層内における凝集体成長・堆積モデルは、層内で働く力と、凝集体の成長・堆積に関する物理的な仮定から構築を行った。そして、モデルから導いた凝集体の堆積が開始するまでの時間 t_a [s] と、凝集体の堆積が開始するまでに層内に供給した海水量 F [g] を実験結果と比較した。空塔速度、静止層高、層内温度、海水供給速度を変えて海水蒸発実験を行った結果、凝集体の挙動は構築したモデルとよく一致した。さらに、分散板が流動状態に与える影響、及び堆積した凝集体の質量と空塔速度の関係も構築したモデルによって説明することが可能であることを明らかにした。以上より、提案した凝集体の成長・堆積モデルの妥当性が示された。さらに、流動層を蒸発器として運用することが可能な条件をモデルと実験から導出した。

5章では、省エネルギーな乾燥プロセスを実現するために、自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用したプロセスの提案を行った。さらに提案したプロセスの省エネルギー性について検討を行った。本プロセスでは、発生した蒸気を圧縮機で断熱圧縮し、流体の熱をプロセス内で循環させるとともに、ブローアを用いて流動化ガスを層内に供給する。流動化ガスとして空気または過熱水蒸気を利用し、各プロセスのエネルギー消費量を試算した。シミュレーションから、エネルギー消費量が小さいプロセスを実現するためには、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用することが望ましいことが分かった。これは、流動化ガスに空気を利用すると、蒸気分圧が低下するので、その分圧縮機動力が増大するからである。そこで、流動化ガスとして過熱水蒸気を利用した自己熱再生に基づく流動層蒸発器を用いた乾燥プロセスと、既存の多重効用法に基づく晶析装置を利用した乾燥プロセスのエネルギー消費量を比較した。提案したプロセスは伝熱面へのスケールの析出を抑制しながら 70%程度エネルギー消費量を削減できることを明らかにし

た。

6 章では省エネルギーで蒸発法のメリットを持ち濃縮海水が生じない革新的な海水淡水化プロセスを実現するために、2 章で提案した自己熱再生に基づく蒸発法と 5 章で提案した自己熱再生に基づく流動層蒸発器を利用したプロセスを組み合わせた新たなプロセスを構築し、その省エネルギー性について検討を行った。シミュレーションの結果、提案したプロセスは既存のプロセスと比べて伝熱面へのスケール析出を抑制しながらエネルギー消費量を 70～80%程度削減できることを明らかにした。

以上の結果から、本研究で提案した自己熱再生に基づく蒸発法と自己熱再生に基づく流動層蒸発器を組み合わせたプロセスは、省エネルギーで蒸発法のメリットを有し、かつ周辺海域への影響が小さい革新的な海水淡水化プロセスを実現することが可能であると考えられる。

7.2. 今後の研究について

7.2.1. 凝集体成長・堆積モデルの精緻化

4章では流動層内における凝集体の成長・堆積モデルを構築し、空塔速度や層内温度が凝集体に与える影響をよく表現できていることを確認した。しかしながら、4.3.3.2の流動粒子の平均粒径を変更する実験では、平均粒径が比較的小さい196 [μm]、262 [μm] のとき、液架橋力と気泡のせん断力が釣り合う時の空塔速度、 U_{eq} 、が過大に評価されていることがわかった。また、構築したモデルでは固体架橋は破碎されないと仮定したが、4.3.2.5で海水供給速度を変えた実験を行った結果、固体架橋も破碎されていることを示す結果が得られた。

したがって、流動層内の凝集体の成長・堆積挙動をより正確に予想するために、流動粒子の平均粒径や固体架橋の影響についてさらなる検討をすすめ、提案したモデルに組み込む必要があると考えられる。

7.2.2. エネルギー消費量を削減するための運転条件の最適化

4章では提案した乾燥プロセスの安定した運転条件の明確化を行うために、流動層内における凝集体成長・堆積モデルの構築を行い、また流動層を蒸発器として利用できる条件を実験的に確かめた。5章ではその条件内でシミュレーションを行い、従来プロセスと比べて大幅にエネルギー消費量を削減することが可能であることを示した。そこで、乾燥プロセスの更なる省エネルギー化に向けて運転条件の最適化が必要である。

4章の結果から、液架橋力と気泡のせん断力が等しくなる空塔速度 U_{eq} [m s^{-1}] よりも U_0 [m s^{-1}] が大きいと、層内に供給された凝集体は破碎されるので、凝集体の表面積は増加する。また、Fig. 7-1に110 [$^{\circ}\text{C}$] の流動層に直径が13 [mm]、20 [mm] の真鍮球を挿入した際の空塔速度と熱伝達率の関係を示す。計測方法はAppendix Aに記載する。この図から、球の直径が小さい方が、熱伝達率が大きいことがわかる。つまり、 U_0 を U_{eq} 以上にすると、凝集体が破碎され凝集体の表面積が大きくなるとともに、凝集体と層間の熱伝達率が大きくなるので、蒸発速度は上昇すると考えられる。一方、ブロアーの観点から考えると空塔速度は小さい方がブロアー動力は小さい。

また、層内の温度が低い方が圧縮機動力は小さくなるが、海水の蒸発速度は低下する。したがって、海水の処理量は減少し、結果的に単位製品あたりの圧縮機動力が増加することも予想される。流動層蒸発器にはプロセスのエネルギー消費量に関して他にも様々なトレードオフが存在すると考えられる。

そこで、提案した乾燥プロセスの更なる省エネルギー化に向けて、4章で構築したモデルを用いて運転条件の最適化が必要であると考えられる。

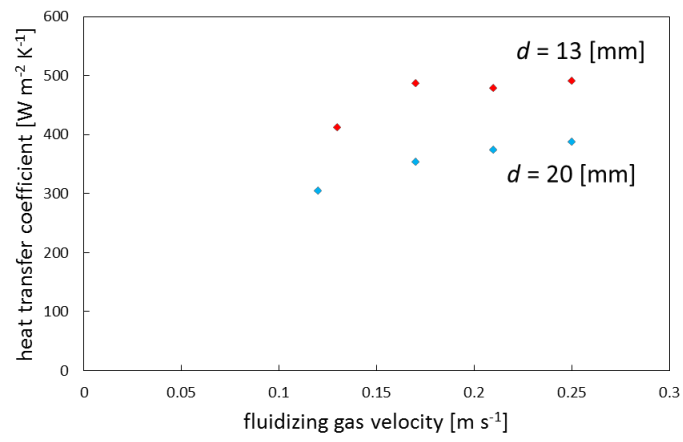


Fig. 7- 1 Heat transfer coefficient vs. fluidizing gas velocity plots of particles. of 13 mm and 20 mm.

Appendix A

流動層内の凝集体、層間の熱伝達率を計測するために、Fig. 3-7 に示す流動層に凝集体を模擬した金属球を挿入し、伝熱実験を行った。Fig. A-1 に凝集体を模擬した金属球（真鍮）の写真を示す。K 型熱電対を 4 本設置（金属球の約 1 cm 前方、後方、金属球表面、そして金属球中心）し、加熱された流動層に凝集体を模擬した金属球を挿入した際の温度変化を計測した。

流動層、金属球間の熱伝達率は以下の式を利用して計測した。
エネルギー保存則から次式が成立する。

$$C_m M \frac{dT_m(t)}{dt} = hA[T - T_m(t)] \quad (\text{A-1})$$

ここで、 C_m は金属球の比熱、 M は金属球の質量、 T_m は金属球の温度、 h は熱伝達率、 A は表面積、 T は層内温度である。

(A-1) は次のように書き換えることができる。

$$-\ln[T - T_m(t)] = \frac{hA}{C_m M} t - \ln[T - T_m(0)] \quad (\text{A-2})$$

(A-2) において、(A-3) で定義する τ を利用すると、(A-4) となる。

$$\frac{C_m M}{hA} \equiv \tau \quad (\text{A-3})$$

$$T - T_m(t) = [T - T_m(0)] \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (\text{A-4})$$

流動層と金属球の温度差 ($T - T_m(t)$) が、金属球を流動層内部に入れた直後の流動層、金属球間の温度差 ($T - T_m(0)$) の 36.8% ($= \exp(-1)$) になるまでの時間を計測し、(A-3) から層内から球への熱伝達率 h を見積もった。

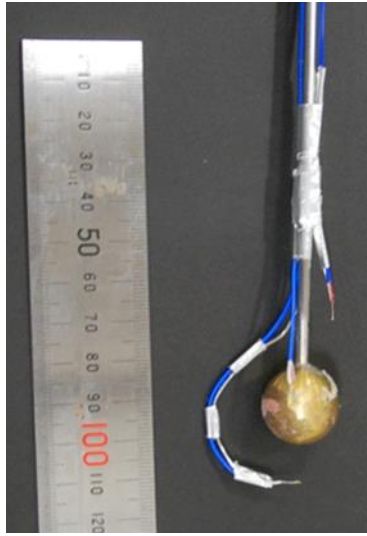


Fig. A- 1 heat transfer probe

投稿論文

1. **H. Mizuno**, Y. Kansha, A. Kishimoto, A. Tsutsumi, “Thermal desalination process based on self-heat recuperation,” *Chemical Engineering Transactions*, 29 (2012) 379-384.
2. **H. Mizuno**, Y. Kansha, A. Kishimoto, A. Tsutsumi, “Thermal seawater desalination process based on self-heat recuperation,” *Clean Technology and Environmental Policy*, 15 (2013) 765-769.
3. **H. Mizuno**, Y. Kansha, M. Ishizuka, A. Tsutsumi, “A novel thermal desalination process using fluidized bed,” *Chemical engineering transactions*, 39 (2014) 181-186.
4. Y. Kansha, **H. Mizuno**, Y. Kotani, M. Ishizuka, C. Song, Q. Fu, A. Tsutsumi, “Numerical investigation of energy saving potential for self-heat recuperation,” *Chemical Engineering Transactions*, 45 (2015) 187-192
5. **H. Mizuno**, Y. Kansha, M. Ishizuka, A. Tsutsumi, “Agglomeration behavior in fluidized-bed evaporator for thermal seawater desalination,” *Applied Thermal Engineering*, 89 (2015) 1096-1103.

著書

1. **Mizuno, H.**, Kansha, Y., Tsutsumi, A. (2014) Desalination: Processes, Applications and Impacts on the Marine Environment (Book title), A Novel Thermal Seawater Desalination Process based on Self-Heat Recuperation (chapter title), NOVA science publishers, New York, 32, 267-278
2. **水野 寛之他**, 監修: 堤敦司, 熱エネルギー高度有効利用と省エネルギー技術, 自己熱再生海水淡水化プロセス, フロンティア出版, 東京, 254-261, 2015

国際学会

○ 口頭発表、□ ポスター発表

1. **Mizuno, H.**, Kansha, Y., Kishimoto, A., Tsutsumi, A., Thermal desalination process based on self-heat recuperation, 15th International Conference on Process Integration, Modeling and Optimization for Energy Saving and

- Pollution Reduction (PRES 2012), Prague, Czech Republic, Aug. 2012
2. ○ Mizuno, H., Kansha, Y., Tsutsumi, A., A Novel Seawater Desalination Based on Self-Heat Recuperation, 2012 AIChE annual meeting, Pittsburgh, PA, USA, Oct. 2012
 3. ○ Kansha Y., Liu Y., Kotani Y., Mizuno H., Ishizuka M., Tsutsumi A., Self-Heat Recuperation and Its Applications in Chemical Industries, 2012 AIChE annual meeting, Pittsburgh, PA, USA, Oct. 2012
 4. ○ Mizuno, H., Kansha, Y., Ishizuka, M., Tsutsumi, A., Self-heat recuperative desalination using fluidized bed, Postgraduate Colloquium of POCER 2013 Environmental Research, Genting Highlands, Malaysia, Jun. 2013
 5. ○ Mizuno, H., Kansha, Y., Ishizuka, M., Tsutsumi, A., Evaluation of self-heat recuperative desalination process using fluidized bed, 8th conference on sustainable development of energy, water and environment systems, Dubrovnik, Croatia, Sep. 2013
 6. ○ Mizuno, H., Kansha, Y., Ishizuka, M., Tsutsumi, A., Self-Heat Recuperative Seawater Desalination Process Using Fluidized Bed, 2013 AIChE annual meeting, San Francisco, CA, USA, Nov. 2013
 7. ○ Mizuno, H., Kansha, Y., Ishizuka, M., Tsutsumi, A., A novel self-heat recuperative seawater desalination process using fluidized bed evaporator, The 4th Asia-Oceania Conference on Green and Sustainable Chemistry (AOC-4 GSC), Taipei, Taiwan, Nov. 2013
 8. ○ Mizuno, H., Kansha, Y., Ishizuka, M., Tsutsumi, A., Thermal seawater desalination process using fluidized bed evaporator, The 7th World Congress on Particle Technology (WCPT7), Beijing, China, May. 2014
 9. ○ Ishizuka M., Mizuno H., Kansha Y., Tsutsumi A., Modeling of Fluidized Bed Flow Behavior Using Electric Equivalent Circuit, The 7th World Congress on Particle Technology (WCPT7), Beijing, China, May. 2014
 10. □ Mizuno, H., Kansha, Y., Ishizuka, M., Tsutsumi, A., A novel thermal desalination process using fluidized bed, PRES 2014, 15th Conference on Process Integration, Modelling and Optimisation for Energy Saving and Pollution Reduction, Prague, Czech Republic, Aug. 2014
 11. ○ Ishizuka M., Mizuno H., Kotani Y., Kansha Y., Tsutsumi A. (2014) A novel

thermal desalination process using fluidized bed, 21st International Congress of Chemical and Process Engineering CHISA 2014, Prague, Czech Republic, Aug. 2014

12. ○ Ishizuka M., **Mizuno H.**, Kotani Y., Kansha Y., Tsutsumi A., Modeling of Triple bed Circulating Fluidized Bed Flow Behavior Using Equivalent Electrical Circuit, 4th Asian Conference on Innovative Energy and Environmental Chemical Engineering (ASCON-IEEChE 2014), Yeosu, Korea, Nov. 2014
13. ○ Kansha Y., **Mizuno H.**, Kotani Y., Ishizuka M., Song C., Fu Q., Tsutsumi A., Methanol Production Process Based on Self-Heat Recuperation, 4th Asian Conference on Innovative Energy and Environmental Chemical Engineering (ASCON-IEEChE 2014), Yeosu, Korea, Nov. 2014
14. ○ **Mizuno, H.**, Kansha, Y., Ishizuka, M., Tsutsumi, A., Hydrodynamic behaviors of a fluidized bed evaporator in thermal desalination process, 2014 AIChE annual meeting, Atlanta, GA, USA, Nov. 2014
15. ○ □ **Mizuno, H.**, Kansha, Y., Ishizuka, M., Tsutsumi, A., Analysis of evaporation mechanism in thermal desalination process using fluidized bed, 12th International Conference on Gas-Liquid & Gas-Liquid-Solid Reactor Engineering (GLS12), New York, NY, USA, Jul. 2015
16. ○ Kansha Y., **Mizuno H.**, Kotani Y., Ishizuka M., Song C., Fu Q., Tsutsumi A., Numerical investigation of energy saving potential for self-heat recuperation, 18th Conference Process Integration, Modeling and Optimization for Energy Saving and Pollution Reduction (PRES'15), Kuching, Malaysia Aug. 2015
17. ○ Ishizuka M., **Mizuno H.**, Kotani Y., Kansha Y., Tsutsumi A. Modeling of flow behavior at downer and riser in triple bed circulating fluidized bed using equivalent circuit, 18th Conference Process Integration, Modeling and Optimization for Energy Saving and Pollution Reduction (PRES'15), Kuching, Malaysia Aug. 2015
18. ○ **Mizuno, H.**, Kansha, Y., Ishizuka, M., Tsutsumi, A., Investigation of agglomeration mechanism in a fluidized bed evaporator for thermal seawater desalination, The 6th Asian Particle Technology Symposium (APT2015), Seoul, Korea, Sep. 2015

国内学会

○ 口頭発表、□ ポスター発表

1. ○ 水野 寛之, 甘蔗 寂樹, 岸本 啓, 堤 敦司, 自己熱再生技術に基づく省エネルギー海水淡水化法の開発, 第 21 回日本エネルギー学会大会, 東京, 2012 年 8 月
2. □ 水野 寛之, 甘蔗 寂樹, 岸本 啓, 堤 敦司, 自己熱再生型海水淡水化装置の開発, 化学工学会 第 44 回秋季大会, 仙台, 2012 年 9 月
3. □ 水野 寛之, 甘蔗 寂樹, 石束 真典, 堤 敦司, 自己熱再生蒸発法による海水淡水化プロセスの開発, 第 2 回 JACI/GSC シンポジウム, 大阪, 2013 年 6 月
4. ○ 水野 寛之, 甘蔗 寂樹, 石束 真典, 堤 敦司, 流動層蒸発器を用いた自己熱再生型海水淡水化プロセスの開発, 化学工学会第 45 回, 秋季大会, 岡山, 2013 年 9 月
5. □ 水野 寛之, 甘蔗 寂樹, 石束 真典, 堤 敦司, 流動層型蒸発器を利用した省エネルギーな海水淡水化プロセスの開発, 第 19 回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム, 桐生, 2013 年 11 月
6. ○ 水野 寛之, 甘蔗 寂樹, 石束 真典, 堤 敦司, 流動層型蒸発器を海水淡水化プロセスに適用した際の非流動化に関する検討, 化学工学会第 46 回, 秋季大会, 福岡, 2014 年 9 月
7. □ 水野 寛之, 甘蔗 寂樹, 石束 真典, 堤 敦司, 流動層型海水淡水化プロセスにおける非流動化に関する検討, 第 20 回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム, 岡山, 2014 年 12 月
8. ○ 石束 真典, 水野 寛之, 小谷 唯, 甘蔗 寂樹, 堤 敦司, 大型三塔式循環流動層の粒子循環量制御のためのモデル化, 第 20 回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム, 岡山, 2014 年 12 月
9. ○ 石束 真典, 水野 寛之, 甘蔗 寂樹, 堤 敦司, パルス状ガス供給による循環流動層の粒子循環量制御, 第 21 回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム, 北九州, 2015 年 12 月 (予定)

受賞

1. 水野 寛之, 化学工学会 分離プロセス部会賞, 自己熱再生型海水淡水化装置の開発, 化学工学会 第 44 回秋季大会, 2012 年 9 月 20 日
2. 水野 寛之, 第 7 回 GSC Student Travel Grant Award, 自己熱再生蒸発法によ

る海水淡水化プロセスの開発, 2013年6月6日

3. **Mizuno, H.**, Kansha, Y., Ishizuka, M., Tsutsumi, A., Best Oral Presentation Award, A novel self-heat recuperative seawater desalination process using fluidized bed evaporator, The 4th Asia-Oceania Conference on Green and Sustainable Chemistry (AOC-4 GSC), 6, 11, 2013
4. **水野 寛之**, 優秀ポスター賞, 流動層型蒸発器を利用した省エネルギーな海水淡水化プロセスの開発, 第19回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム, 2013年11月28日
5. **水野 寛之**, 化学工学会 粒子・流体プロセス部会シンポジウム賞(プレゼンテーション賞), 化学工学会第46回, 秋季大会, 2014年9月17日-19日(福岡)
6. **水野 寛之**, 優秀ポスター賞, 流動層型海水淡水化プロセスにおける非流動化に関する検討, 第20回流動化・粒子プロセッシングシンポジウム, 2014年12月11日

特許

1. 海水淡水化装置および海水淡水化方法, 2013-119332, 出願日 2013年6月5日
2. 濃縮装置および濃縮方法, 2013-119333, 出願日 2013年6月5日

謝辞

本研究は、筆者が東京大学大学院 工学系研究科 機械工学専攻 博士課程において、堤研究室で行った研究をまとめたものです。研究をすすめるにあたりお世話になった方々へ、末筆ながら感謝を述べさせていただきます。

指導教官の堤 敦司 特任教授には研究テーマの設定からそのすすめかたまで終始ご指導をいただきました。心より感謝いたします。

本論文の内容に関して貴重なご意見とご指導を頂いた、鹿園 直毅 教授、白樫 了 教授、沖 大幹 教授、大島 まり 教授、酒井 幹夫 准教授に深く感謝の意を表します。

甘蔗 寂樹 特任准教授、石束 真典 特任研究員には、日常の議論を通じて多くの有意義なアドバイスを頂きました。また、実験装置の組み立て方からその使い方まで多くの面でご指導いたしました。深謝致します。

東京農工大学 伏見 千尋 准教授、山本 英寿 シニア協力員、株式会社神戸製鋼所 岸本 啓 研究員、崔 復圭 特任研究員、Dhruba Panthi 特任研究員、宋 春風 特任研究員、付 乾 特任研究員、劉 玉平 博士、小谷 唯 博士にはゼミなどを通じて大変貴重なアドバイスを頂きました。感謝いたします。

本間 聖子 氏、原谷 桜 氏には研究をスムーズにすすめるための様々なサポートをしていただきました。堤研究室の吉江 悠史 氏、権 容旭 氏、趙 情熙 氏、Mike Musil 氏、Supachita Krerkkaiwan 氏、Sumit Srivastava 氏、加世田 敏宏 氏、Renaldo Rasfuldi 氏、榊原 悠祐 氏、清水 悠輝 氏、Chen Lu 氏、唐 淵 氏、坂東 健太 氏とは大変有意義な研究室生活を過ごすことができました。感謝いたします。

また、本研究は特別研究員奨励費（課題番号 26・8306）の助成を受けたものです。大変感謝しております。

最後に、博士課程まで進学させていただき多くの援助をしていただいた両親とともに、充実した大学院生活に欠かせなかった、数多くの友人と妻の遥香に感謝いたします。ありがとうございました。