

# 内部循環流機構を組み込んだ多段連続式流下液膜蒸発装置

片岡 邦夫

関西化学機械製作(株) 特別顧問 工学博士

(株)技術情報協会

化学プロセスのスケールアップ、連続化

### 第3節 内部循環流機構を組み込んだ多段連続式流下液膜蒸発装置

はじめに

非揮発性の溶質の溶解した溶液を濃縮するには蒸発操作を使うが、揮発性成分の溶液の濃縮や分離精製するには蒸留操作が使われる。本装置は、これらどちらの操作にも使えるだけでなく、ファウリングやスラリーの問題にも対応でき、粒子懸濁の可能性があったり、濃縮操作において温度が高い状態で接触時間を長くすると、熱変性してしまう溶液を扱うとか、溶質の重合や析出でトレイや充填物が閉塞するなど、多様な厄介な問題にも対処でき、便利で省エネ性もあり、洗浄やメンテの楽な蒸発／蒸留装置である。薄膜蒸発／蒸留装置やガス吸収装置によく用いられる重力により流下する液膜流にはその内部や界面において伝熱や物質移動を伴っている。単純な濡れ壁塔の場合、通常、流量があまり大きくないため、膜レイノルズ数が小さくなく、層流あるいは乱れがなく、液体表面にリップル状の波立ちが生起する程度の層流状態が使用される。そのため液膜流の伝熱係数や物質移動係数があまり大きくならないだけでなく、膜厚さが薄いとジャケットなどの伝熱面に液に濡れないで乾いた部分ができたり、乾燥して溶質の固着が起きたりする問題もある。また重力のみによる下方への一方通行の下降流だと伝熱や物質移動のための接触回数は1回で接触時間に関係する滞留時間が大きくなる。これらの問題に対する対策として、例えば、蒸発プロセスでは流下液膜を回転するブレード（掻き取り翼）やブラシで強制的にかき乱したり、掻き取ったりして伝熱面に形成されるケーキや汚れによるファウリング（伝熱阻害となる）の成長を防いだり、境界膜剥離による界面更新作用により伝熱を促進したりしているが、この場合は壁面をブレードやブラシなどの固体部品で擦っているため、摩擦による製品への摩擦粉の混入がコンタミの問題となる。また接触時間が短いので、処理すべき原料の供給量を大きくとれない場合が多く、流下液膜の流量が少ないため膜レイノルズ数も高くなる。これを解消するために実際は装置底部から排出する缶出液をもう一度、装置外に設置したポンプでトップへ汲み上げて装置内を循環させることにより液膜の流量、したがって膜レイノルズ数を大きくする手段が取られたりしている。しかし、蒸発や蒸留の装置の場合、底部のプール液は沸騰蒸発状態にあり、これを外部の遠心式ポンプで吸引して汲み上げる場合、吸い込み側でキャビテーションが起きて、送液できない場合がある。

このような技術的諸問題に鑑み、流下液膜流の蒸発／蒸留機能を数段アップするには、装置内部で液体のプロセス流体を循環できる当社のウォールウェッター翼（以降、WW翼と略称する）の特長を生かすべきだと考えた。今まで、WW翼はタンク式のバッチの蒸発釜や、あるいは蒸留装置のリボイラに搭載して有効に使用されているが、回転するWW翼の遠心力により底部の液を汲み上げて上端より側壁のジャケット面へ噴射する流れを内部循環流と考えて連続化することとWW蒸発釜を積み上げて多段化するアイデアにより、大きく機能を向上させた多段連続式流下液膜蒸発装置（商標：WWムートン）の開発・商品化に成功した<sup>1,4)</sup>。

#### 1. 流下液膜流の基礎

##### 1.1 流下液膜の流動と伝熱の基礎的問題

まず、本システムの発想と特長を理解するために、基本的流れとなる層流の流下液膜の性質とそれを応用する問題点について概説する。図1に示す任意の幅  $B$ （濡れ辺長と呼ぶ、円筒形であれば円周になる）の平滑な鉛直面を重力で流下する層流液膜を考える。

液が供給される液膜上端の流れ開始点では一様な速度分布のプラグ流と仮定するが、流下するにつれて壁面から受ける粘性摩擦により壁側から境界層が発達し、ついには速度分布が放物線形の2次曲線になり、変化しない十分発達領域に到達する。この発達域では液膜厚さ  $\delta$  と単位濡れ辺長当たりの質量流量  $\Gamma$  の間には次式の関係がある。

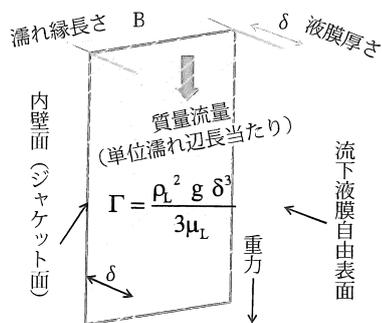


図1 十分に発達した流域における層流流下液膜

$$\delta = \left( \frac{3\mu_L \Gamma}{\rho_L^2 g} \right)^{1/3} \quad (1)$$

流下液膜の伝熱や蒸発の主たる伝熱抵抗が熱伝導で通過しなければならない層流液膜にあると考えると、伝熱係数は液の熱伝導度  $\kappa_f$  を液膜厚さ  $\delta$  で割って次式のように定義できる：

$$h = \kappa_f / \delta \quad (2)$$

したがって式 (1) を式 (2) に代入すれば、液膜厚さが薄い層流の液膜流の場合の伝熱係数と質量流量の間には次の関係式 (3) が得られる：

$$h = \kappa_f \left( \frac{\rho_L^2 g}{3\mu_L} \right)^{1/3} \Gamma^{-1/3} \quad (3)$$

膜レイノルズ数の定義は

$$Re_f = \frac{4\Gamma}{\mu_L} \quad (4)$$

であるから、これを用いて上式を整理すると次式となる：

$$Ev = h \left[ \frac{\mu_L^2}{\rho_L^2 g \kappa_f^3} \right]^{1/3} = \left( \frac{4}{3} \right)^{1/3} Re_f^{-1/3} \quad (5)$$

この式の左辺は重力で流下する液膜に関する伝熱係数の無次元数  $Ev$  であり、これが膜レイノルズ数の 1/3 乗に逆比例することを意味している。この式は層流液膜自身が伝熱抵抗となることを仮定した理論解であり、凝縮伝熱での「凝縮数」の理論解と同質のものである。蒸発装置としては、このような条件では流量を大きくしても液膜厚さが増加して、かえって無次元伝熱係数が低下するので好ましくない傾向となる。しかし、実際は膜レイノルズ数を非常に大きくすると、レイノルズ数の指数がプラスに転じて、伝熱係数が膜レイノルズ数とともに増加する領域があることを経験的に知っていたので、蒸発缶内に WW システムを組み込んで内部循環流を形成すれば、流下流量が大きく増大して大きな膜レイノルズ数が得られ、乱流の大きな伝熱係数が得られることが期待できると言う発想が技術開発の原点にあった。

## 1.2 流下液膜の流動形態と内部循環流の付与効果

重力で鉛直面を流下する液膜流の流動状態は膜レイノルズ数により、次のように類別<sup>2)</sup>される。

波立ちなしの層流： $Re_f < 4$  to 25

表面波立ちを伴う層流：

$$4 \text{ to } 25 < Re_f < 1,000 \text{ to } 2,000 \quad (6)$$

乱流： $Re_f > 1,000$  to 2,000

流下液膜蒸発装置の伝熱性能を高くするためには渦混合や乱流拡散が活発化する高レイノルズ数の乱流域を利用する必要があったが、この障壁は、処理すべき原料の供給量を大きくできなくても流下液膜部の流量を WW 翼による内部循環流により大きくすることで突破できることがわかった。当社で開発した WW 翼の原理を図 2 に示す。

図 2 のように角速度  $\omega$  で回転する WW 翼 (傾斜角  $\theta$ ) の樋型流路内において、液面が存在する位置の回転軸からの半径距離が  $r$  の時、液に働く遠心力  $\rho_L r \omega^2$  と重力  $\rho_L g$  のそれぞれの樋流路に沿う方向の成分の大小関係式 (7) で液が汲み上げられるかどうかが決まる。すなわち、回転数がある臨界値より大きくすると液が汲み上げられる。

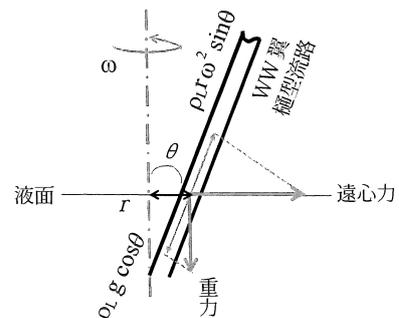


図 2 WW 翼の液汲み上げの原理

$$\rho_L r \omega^2 \sin \theta \geq \rho_L g \cos \theta \quad (7)$$

このような WW 翼によりタンク底部に溜まったプール液を汲み上げて、上端より吐出させて液ジェットにしてジャケット内壁に衝突させれば何度もジャケット面に接触する液膜流となる。このような内部循環流により膜レイノルズ数を大きくすれば伝熱が増進されることを期待できる。その上、外部に設置したポンプとは異なり、WW 翼は沸点液であっても遠心力で汲み上げているので、キャビテーションが起きない利点も合わせ持っている。また、液面を低くした連続操作であっても内部循環流により汲み上げた液膜で何度も伝熱面と接触する回数を大きくできる利点もある。さらに、後述するように、WW 翼上端から発する吐出流をジャケット壁に噴射・衝突させるので、流量増加だけでなく、周期的断続的な衝突流による界面更新効果すなわち伝熱促進効果も期待できる。

### 1.3 WW 蒸発装置の構造

WW ムートン蒸発装置の基本となる元の単一のバッチ WW 蒸発装置を図 3 に示す。

WW 翼は傾斜した（半割パイプのような）樋を攪拌翼のように固定したものであり、WW 翼を回転すると釜の下部に溜まっている液が遠心力のせいで樋上を上昇して上端より遠心方向に噴射される。図 3 のようなジャケット壁を有する蒸発釜側内壁面にこの噴射液体が衝突して流下液膜となるから、バッチ蒸発操作の場合、蒸発プロセスの進展により液面が下降しても、プール液に触れていないジャケット上面は噴射液の衝突による流下液膜によって被われるので、蒸発プロセス中、液面より上部の本来なら乾いているべき部分も含めて常に全伝熱面が有効に活用されるので、バッチ操作中、伝熱速度が高い一定値に維持される。このような利点を有する WW 釜を上下に積み重ねて多段化するシステムを組めば、上述の内部循環流により各段内で何回でも蒸発のための伝熱接触をすることができるので、多段化と連続化が可能となった。

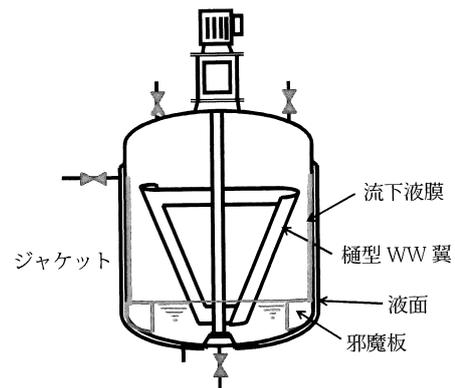


図 3 単体の WW 蒸発装置

### 1.4 多段化の必要性とメリット

多段にするメリットは当社の多室蒸発装置と同じ原理であり、大きな伝熱効率が期待できることである。ある蒸発操作において、溶質の濃縮目標濃度  $x_W$  が決まっている場合、図 4 左のように 1 段のみだと、その 1 段が一つの完全混合槽に似た状態となり、液中の溶質の濃度がその段の混合濃度（完全混合の場合、缶出液濃度に同じ）であり目標濃度  $x_W$  になってしまうので、沸点上昇がある系だとジャケット温度  $T_j$  と蒸発する液の温度  $T_0$  の差  $(T_j - T_0)$  が小さくなってしまふ。すなわち 1 段のみだと全伝熱面積が、この温度差の小さい加熱に使われてしまうので、蒸発速度が大きくならない。

これに対して、例えばジャケットは共通にして、釜側を 3 分割して、図 4 右のように 3 段にすると、第 1 段から第 3 段まで順に濃縮されていくので、下段ほど液の温度が高くなり、温度差が  $(T_j - T_1) > (T_j - T_2) > (T_j - T_3)$  となり、目標濃度  $x_W$  になるのは第 3 段目だけであるから、濃縮目標濃度は同じであっても、第 1 段と第 2 段は温度差を大きく取れる。すなわち必要伝熱面積を 3 分割してコンパクトにすると  $Q_A < Q_B$  となり、大きな伝熱速度が得られるなど、伝熱効率が大きくなることを期待できる。1 段のみの場合の液温度は 3 段の場合の第 3 段目と同じ目標濃度の沸点  $T_0 = T_3$  にならざるを得ないのである。

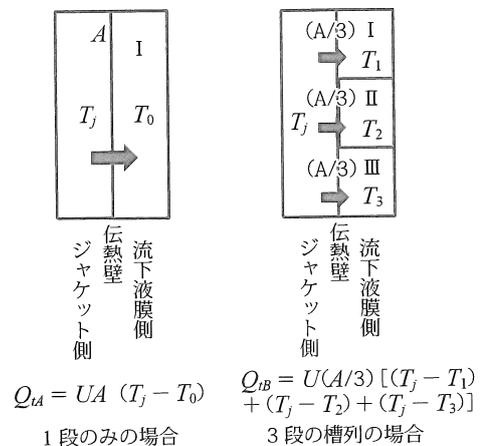


図 4 多段化による省エネ効果

## 2. 多段化と連続化による WW ムートン蒸発装置

### 2.1 基本構造とフロー

WW ムートン蒸発装置の基本構造を図5に示す。これは単純な構造の実験装置の例であるが、WW 蒸発釜を3段に積み重ねた構造をしている。各段底部はWW 翼の下端部がプール液（還流液）に浸かるように、中央部に開口部のある溢流堰付きのトレイ構造になっている。プール液量をあまり大きくせず、開口部を蒸発蒸気が上昇通過する構造となっている。蒸発プロセスにかけたい原料液は第1段の底部トレイ上に供給され、そこのプール液と混合される。このプール液は回転するWW 翼により汲み上げられてWW 翼上端よりジャケット面を有する釜の側壁上部に噴射・衝突されて流下液膜となる。

各段の流下液膜はWW 翼による内部循環流と合流して大きな流量で流下するので、激しい乱流となり、大きな蒸発伝熱係数が得られる。ジャケットを例えば水蒸気加熱にしたり、熱媒、温水、減圧蒸気など、目的に応じた熱媒体での加熱により効率的に蒸発することができる。液プールへ戻った液のうち余分な流量分だけトレイ中央の溢流堰をオーバーフローして次の下段の回転円盤に落下する。円盤による遠心力でジャケット壁へ噴射・衝突してその段の流下液膜となる。これにその段のWW 翼の上端から発する噴射流が合流するので、この段においても内部循環流の加わった大きな蒸発能力が得られる。最終的に最下段の底部に設けられたノズルより濃縮された製品として缶出液が抜き出される。

一方、各段で蒸発した蒸気は各段のトレイ中央の開口部を通過、上昇して装置頂部より排出される。本装置は原料をトップ段に供給するストリップング塔とみなされるシステムである。図には含まれていないが、装置頂部より排出する蒸気はコンデンサーにより全縮される。取り扱う物質の沸点によっては変質を防止するために沸点を下げたい場合もあり、操作圧を減圧にするために、コンデンサー部に真空ポンプを付設している。

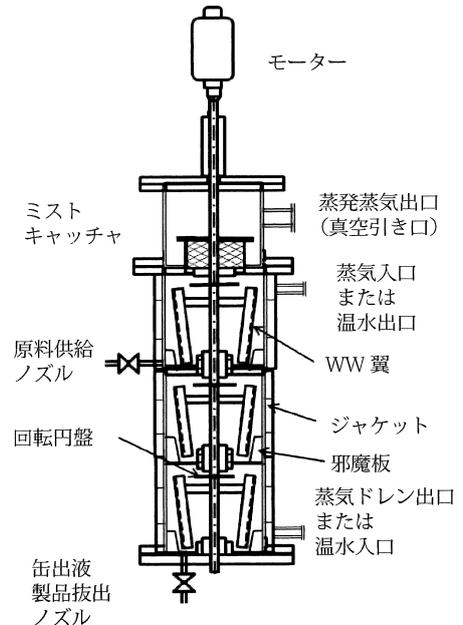


図5 WW ムートン蒸発装置の基本構造 (3段式)

### 2.2 内部循環流量

各段のWW 翼によるプール液の汲み上げ流量が、すなわちその段の内部循環流量であり、膜レイノルズ数に関する重要な役割を果たしている。この流量に関しては、遠心力に関するWW 翼の回転数、WW 翼のプール液面との深さ関係、WW 翼の幅や構造と枚数、傾斜角度、そしてプール液の取り込み部の形状など、非常に多くのパラメータが複雑に関与しており、吐出流量の算出のためのデータベースを構築している<sup>1)</sup>。図5のWW 翼のレイノルズ数  $Re_{ww}$  と膜レイノルズ数  $Re_f$  との関係の一例として次式のような実験式を有している<sup>1)</sup>。

$$Re_f = 3.33 \times 10^{-11} Re_{ww}^{2.69} \quad (8)$$

WW 翼のレイノルズ数の定義は次式である。

$$Re_{ww} = W_0 r \omega \rho_L / \mu_L \quad (9)$$

前述のように、大きな蒸発伝熱係数を達成するには、液膜に内部循環流を付与して大きなレイノルズ数の乱流にしなければならない。

例えば、実験で扱った原料供給量（水 245 kg/h とする）のみで内部循環流のない、単なる濡れ壁塔（塔内径を実験装置と同じにして）の場合の流下液膜の膜レイノルズ数はせいぜい 2,000 程度であるが、220 rpm で回転するWW 翼による内部循環流を伴う場合の膜レイノルズ数は約 60,000 のオーダーであり、比較すると約 30 倍も大きくなっている。

### 3. 蒸発伝熱特性

濡れ壁塔のように流量の小さい、液膜厚さが薄い層流液膜流の場合は膜レイノルズ数が増加すると液膜厚さが大きくなるだけであり、かえって伝熱係数が低下する問題があったが、WW ムートンは内部循環流により液膜流を高レイノルズ数の乱流にしているため、渦混合や乱流拡散効果が付加されて大きな伝熱特性が得られる。多段化しているため、蒸発装置としてだけでなく、ストリップング塔のような濃縮蒸留塔としても有効である。加熱負荷については、上の段ほど低沸点成分濃度が高いので流下液膜の液温が低いから、伝熱の温度差が大きくなり、伝熱効率が高くなる。一般に低沸点成分の大半が塔頂段で飛んでしまい蒸発量も多くなるので、上の段ほど加熱負荷が大きくなる。

#### 3.1 流下液膜への非定常性付与効果

内部循環流により流下液膜を乱流状態にできても、さらに伝熱増進をしてほしいと言う要望は結構多い。これに関連して、流下液膜流れに周期的かつ断続的な流量あるいは速度の変化（厳密には速度勾配変動）を与えると、伝熱界面の抵抗を液体自身の非定常な流れにより掃き取るスウィープ効果すなわち界面更新効果を期待できる。所謂、対流伝熱促進のための非定常性付与効果が得られる<sup>1)</sup>。

その証拠写真として、弊社の WW 翼の吐出流の衝突による界面更新流動の写真を図 6 に示す。

写真は水運転の場合のものであり、白く見えているのは巻き込んだ空気泡と思われるが、実際の蒸発や蒸留の場合も蒸気泡の入った衝突流となり、界面更新効果もあると考えている。この噴射液ジェットがジャケット伝熱面に直接衝突する位置での伝熱促進効果が一番大きいと考えられるが、界面更新運動をする渦運動は流下液膜の平均流速で下方へ移動する<sup>1)</sup>。したがって、どの場所の伝熱面も周期的かつ断続的に界面更新され、伝熱促進が期待される。

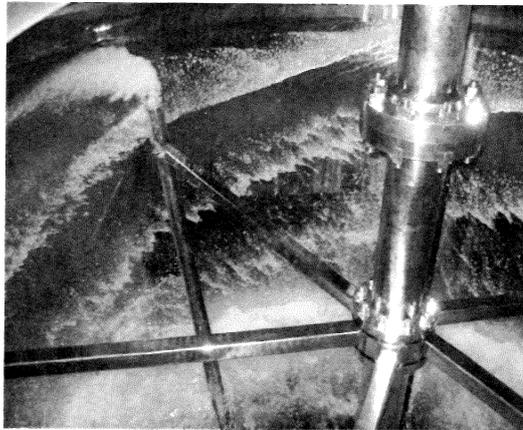


図 6 WW 翼から噴射された液ジェットのジャケット面への衝突写真

#### 3.2 循環流と界面更新効果との関係

内部循環流量を増加させたい目的と伝熱促進のための界面更新効果を増加させたい目的が同じ WW 翼の回転数に頼っているため、WW 翼による内部循環流にしたがって膜レイノルズ数の増加の効果と WW 翼からの断続的吐出流の周波数の増加による伝熱促進効果を分離することができない。そこで伝熱促進効果に関与する界面更新パラメータは次式のように定義している<sup>1)</sup>。

$$SR = n_{WW} f_{SR} D_i / v_{av} \quad (10)$$

このパラメータは WW 翼（枚数  $n_{WW}$ ）の回転（周波数  $f_{SR}$ ）による界面更新効果が液膜の流下速度（ $v_{av}$ ）で下流へ移動することを表しており、カルマン渦の発生とその移動を表すストローハル（Strouhal）数と性質は同じものである。前述のように WW 翼の回転数を増加すると、膜レイノルズ数は約 2.7 乗に比例して増加するが、界面更新パラメータは WW 翼の回転数（周波数）に正比例して増加する。したがって界面更新効果は次式のような伝熱促進率を定義している：

$$\epsilon = 1 + 0.01SR \quad (11)$$

現状では、無次元の蒸発伝熱係数に関して、次式のような相関式をデータベースとして有している<sup>1)</sup>。

$$Ev_f = 0.01\epsilon Re_f^{0.255} (Pr / Pr_w) \quad (12)$$

右辺第1項は伝熱促進率を表しており、輸送物性の違いによる影響はプラントル数で考慮されており、最終項のように水の沸点におけるプラントル数を基準に正規化して考慮している。

蒸発伝熱のデータベースとして、無次元伝熱係数の実験データをグラフ化したものが図7である。図中の曲線は相関式(12)の値である。

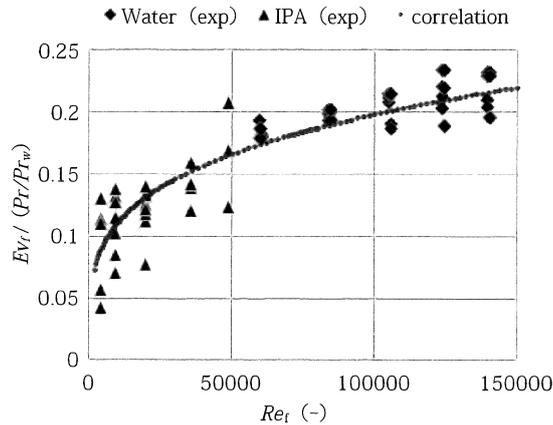


図7 蒸発伝熱係数の膜レイノルズ数による相関

## 4. 多段化による濃縮効果

### 4.1 減圧蒸留装置

本装置(商標: WW ムートン®)は単なる蒸発装置としても威力を発揮するが、濃縮や精製が必要な蒸留装置としても貢献しており、多段化していることが有利である。回転部を内蔵するので、装置の構造から考えて2段から多くてせいぜい5段までがよい。例えば、減圧にして沸点を下げて熱変性しやすい高沸点の脂肪酸エステルを、その中の不純物を除去して高純度に精製するストリップング塔形式の減圧蒸留装置として有望である<sup>3)</sup>。その適用性について検討する減圧蒸留装置は図5と同じ形式とする。

### 4.2 適用性解析<sup>3)</sup>

適用性解析のプロセスシミュレーションの例題として、A成分:オレイン酸メチル(正常沸点343.9℃)に少量のB成分:エチレングリコール(正常沸点197.3℃)が(仮想不純物として)含有されている原料(供給量:A成分2.9 kmol/h, B成分0.1 kmol/h)からできるだけ製品の缶出液のA成分の純度を上げる問題について論じる<sup>3)</sup>。原料(90℃)は第1段のトレイ上の液プール部に入り、WW翼により汲み上げられて第1段の流下液膜になり、付設されているスチームジャケット(サイドリボイラー)による加熱により低沸点B成分のエチレングリコールが選択的に蒸発する。余分な第1段底部のプール液(原料の供給量に近い値)が溢流堰を越えて下の第2段に流下する。第2段のプール液はWW翼により汲み上げられて第2段のスチームジャケットの伝熱面を流下する液膜に合流し、さらにグリコールを選択的に蒸発して分離精製が進行する。最下段で蒸発した蒸気はカラム中央の開口部より順次、上の段へ上昇し、低沸点成分が濃縮されて塔頂より排出されてコンデンサーに至る。高沸点のA成分の変性を防止するために沸点を下げる必要がある場合を考えて、本装置の塔内圧力はコンデンサーの所に繋がった真空ポンプにより操作圧を1 mmHgに維持される。

本装置では還流は普通しないので、計算では仮に還流比0.01としている。段数が3段の場合で、原料3 kmol/h中、製品の缶出液を2.78 kmol/h回収する場合と2.89 kmol/h回収する場合で、塔底製品の純度がどの程度違うかを、計算した結果を図8,9に示す。

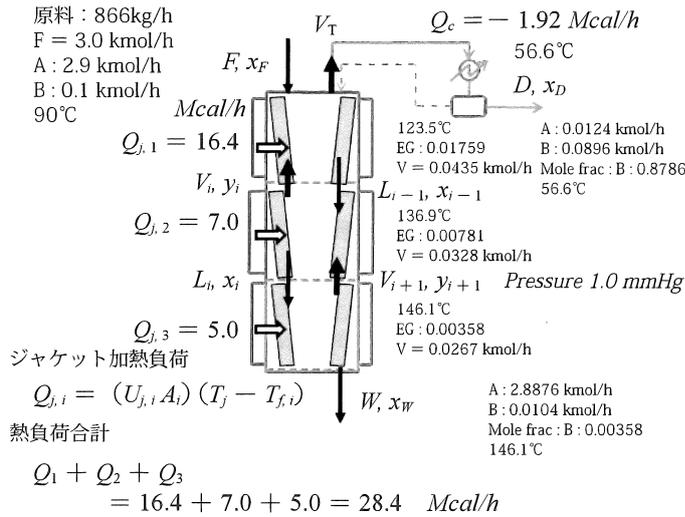


図8 シミュレーション解析結果 ( $W = 2.89 \text{ kmol/h}$  の場合)

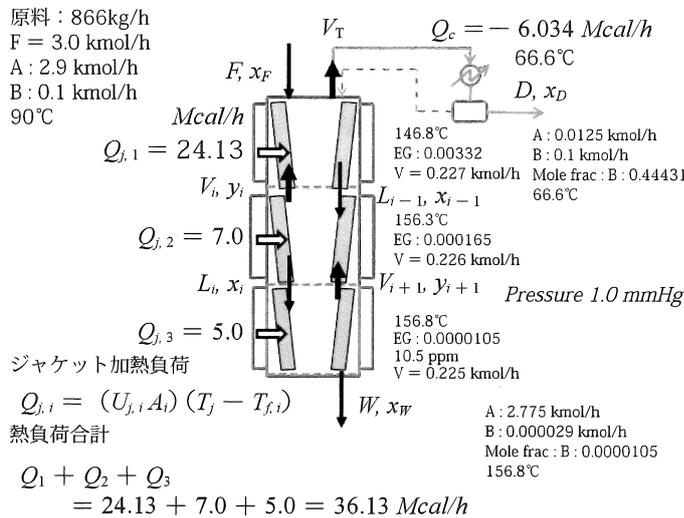


図9 シミュレーション解析結果 ( $W = 2.78 \text{ kmol/h}$  の場合)

図8のように、製品をできるだけ多く回収したいとすると、缶出液の製品純度が低下してモル分率で0.00358の不純物を含んでいる。当然のことながら、蒸発させる量が少ないので、加熱負荷合計は28.4 Mcal/hと少なくなっている。一方、図9のように、製品回収率を少し我慢してできるだけ製品のA成分の純度を上げたいので、缶出液の製品拔出量を2.78 kmol/hにした場合、加熱負荷合計は36.13 Mcal/hと増加するが、製品の純度は非常に上がって、不純物が10.5 ppmになっている。このようにして最下段の底部より高純度のA成分エステルが缶出液（製品）として抜き出される。目的どおり、高純度（モル分率0.99999）のA成分が27.8/29 = 95.86%の高回収率で得られている。缶出液（製品）の拔出量をもっと減らせば、さらに純度が向上するが、当然のことながら、その分、留出液側のA成分の濃度が徐々に増加してくる。この留出液のA成分を回収するために、また精製原料に戻せばよい。ここでは3段のシステムで適用解析したが、段数をもっと増やしても確かに製品純度は向上する傾向<sup>3)</sup>になるが、いろいろな観点から3段程度が適当であろう。

おわりに

ここに概説した「多段連続式流下液膜蒸発装置」は現場の多様なニーズに有能に対応できる便利な機能を持った蒸発／蒸留装置である。伝熱係数や物質移動係数を大きくするためにWW翼が造る内部循環流により周期的な間欠性を

付与して非定常的に伝熱や物質移動を促進したこと、内部循環により蒸発や蒸留のための接触回数を増加させ、各段の効率を大きくアップしたこと、連続化と多段化をしたこと、伝熱面等のファウリングをできるだけ減らし、ジャケット全面を常に活用できるようにしたこと等々はプロセス強化にとって非常に重要なファクターであり、WW 翼には幾多のメリットがあることを例証している。このような実際的な現場の問題に対処して、いろいろなプロセスに活用されて行くものと期待される。

#### 文 献

- 1) 向田忠弘・片岡邦夫・山路寛司・野田秀夫・大村直人：非定常性を有する連続・多段式流下液膜蒸発／蒸留装置の蒸発伝熱特性，化学工学論文集，第 44 巻，第 2 号，pp. 107-112 (2018)
- 2) R. B. Bird, W. E. Stewart and E. N. Lightfoot, *Transport Phenomena*, John Wiley, p. 41 (1960)
- 3) 向田忠弘・片岡邦夫・野田秀夫・山路寛司・梶谷里紗・大村直人：多段向流式流下液膜蒸発器の開発のためのプロセス解析，化学工学会第 48 回秋季大会，徳島，I121 (2016)
- 4) 特許出願：2015-45885  
国際出願：PCT/JP2016/057101