

## 研究論文

## カーボン粒子混合による熱交換器用フッ素樹脂細管の伝熱性能改善

高橋 カネ子,\* 山田 悦郎\*\*  
富田 千秋,\*\*\* 五色 慶悟\*\*\*

Improvement of Heat Exchange Performance of PFA  
Thin Tubes by Mixing of Carbon Particles

Kaneko TAKAHASHI† Etsuro YAMADA†† Chiaki TOMITA††† and Keigo GOSHIKI†††

## Abstract

The heat exchanger, especially shell & tube type, is basic apparatus for heat transfer equipments in various industrial and district fields. The metal tubes, such as copper, steel and so on, are usually employed in shell and tube heat exchanger. On the other hand, PFA tube using in this exchanger have many advantages that are stable against chemical solution, prevent to get rust, etc.. However, heat exchange efficiency is low value, since PFA has lower thermal conductivity than metals' one. If the conductivity of PFA tube is improved by mixing high conductivity powder in it for example, the effective thermal conductivity of tube may be more larger value and its means bring about large benefit on energy resources.

From this standpoint, we developed the apparatus to measure the thermal conductivity of the thin tube. The data on pure PFA tubes having different 3 sizes diameter are obtained and compared with the data taking from the same dia. tube mixed carbon powder. It is clear that the conductivity of mixed tube have greater value about 1.6 times than pure PFA tubes. Therefore, these mixed tube may be take many improvement to heat exchange coefficient.

**Key Words** : Heat Exchange Performance, Thin PFA tube, Carbon Particle, Thermal Conductivity, Over-all Coefficient of Heat Transmission

## 1. 緒言

熱交換器は工業と民生の多分野において熱利用機器の基本的構成要素であり、中でも、シェル&チューブ型は最も主要なものである。伝熱面を構成する細管には銅などの金属が一般に使用されているが、実用においては広範囲での耐蝕性と非汚染性及び耐久性が要求される。従来の熱交換器は、流体の種類、濃度、温度などによる制約を受け、さらに管の腐食発生などの問題点を生ずることが多い。近年、技術革新が進展するなかで、新素材や複合材料が開発されているが、特に、管材料として耐腐食性などの化学的安定性に優れ、たわみに強くかつ軽量であるなどの多くの利点を持つフッ素樹脂管の使用<sup>1),2)</sup>が見られる。しかしながら、フッ素樹脂は金属に比べ熱伝導率が小さいため、

管の厚さを薄くした場合でも伝導熱抵抗が大きく熱通過率を低下させる。熱通過率増大の手段としては、細管の内外表面に凹凸や溝を作ることによりその部分の熱伝達率の向上を図る方法も考えられるが、ここで用いる管は、直径が小さいだけでなく肉厚も薄いので無理がある。従って、細管の熱伝導率を何らかの方法で増大させることが、有力な性能改善手段となる。

しかしながら、このような改善手段は熱交換器製品が使用されてから長期間過ぎているにも関わらず現在に至るまで見当たらないようである。

上述のようなフッ素樹脂の特性を生かしたまま、管の熱伝導率を増加する方法として薄肉管の場合には樹脂よりも熱伝導率の大きい物質を分散させた混合物で管を作り、材料の有効熱伝導率を増大させることが有効な手段の一つである。

一方、合成繊維の測定例<sup>3)</sup>からも推察されるように、加工により細管の熱伝導率は素材本来の熱物性値とは異なる値や異方性を示すと考えられる。

また、粒子を混合した場合、粒子形状が球以外では粒子の向きがバルクにおける分散状態と異なった配向性を持つ可能性が高い。従って、細管状試料のままの熱伝導率の評価は必要不可欠と考えられ、このような形状についての測定例は見当たらないといつてよい。

本研究は以上の立場から、最終的には現在保持している特長を生かしつつさらに伝熱性能の優れた熱交換器の開発を目的とするが、本報告では当面の目標としてPFA（パーフロアルキルビニルエーテル共重合体）、即ち、テフロン<sup>®</sup>の細管素材中

平成11年8月6日受付

\* 秋田大学教育文化学部環境情報講座

〒010-8502 秋田市手形学園町1-1

\*\* 秋田大学工学資源学部 素材資源システム研究施設

〒010-8502 秋田市手形学園町1-1

\*\*\* 株式会社 潤工社

〒156-0051 東京都世田谷区宮坂2-25-25

† Dept of Engineerings and Information Science, Faculty of Education and Human Studies, Akita Univ., 010-8502 Tegata Gakuencho 1-1, Akita City

†† Research Institute of Materials and Resources, Faculty of Engineering and Resource Science, Akita Univ., 010-8502 Tegata Gakuencho 1-1, Akita City

††† Junkosha Co.,Ltd. 156-0051 Miyasaka 2-25-25, Setagayaku, Tokyo  
E-mail : kaneko@ed.akita-u.ac.jp

に、より熱伝導率の大きい粉状粒子を混入した場合どの程度の熱伝導率の向上が得られるか、また、それにより熱通過率の上昇と熱交換器の性能改善がどの程度可能か、などの定量的推定を行う。ただし、細管状試料の熱伝導率を測定するためには測定装置に工夫を要するので、始めに、測定装置を開発し、実験方法を工夫することによって精度のよい実験値を求めることを試みた。次に、前述の目標である、より熱伝導率の大きい粉状粒子を混入した試料についても熱伝導率測定を行い、フッ素樹脂のみの管との比較を行うことによって熱交換器の性能改善を推定した。その結果、テフロン細管の熱伝導率は約60%向上し、それによって、熱交換器の伝熱性能が約20%改善できることを明らかにした。

## 2. 実験

よく知られているように熱伝導率の測定法には多くの方法<sup>4)9)</sup>があるが、細管状試料にそのまま使用出来る手法は見当たらない。しかし、類似の円筒状試料測定例を発展させる形で、本報告では円筒絶対法を選んで装置の試作を行った。

### 2.1 測定原理と誤差評価

#### 2.1.1 測定原理

Figure 1 に示すような座標系において、単位時間・単位長さ当りの発熱量  $q$  を持つ無限に長い円筒状熱源と、それと同心に置かれた熱伝導率  $\lambda$  の無限長の均質な物質がある場合を考える。外表面の熱伝達率  $h_r$  が周方向・軸方向共に一定で、温度場が定常状態にあるとき、熱は半径方向のみに1次元的に流れるので、円筒座標系の熱伝導方程式と境界条件を用いると物質の熱伝導率は次式で求められる。

$$\lambda = q \frac{\ln(r_o/r_i)}{2\pi(T_i - T_o)} \quad (1)$$

ここで、式中の円筒の内外径  $r_i$  および  $r_o$  を既知とすれば、熱源から発生する熱量  $q$  と試料内外面の温度  $T_i$  および  $T_o$  を測定することによって円筒状試料の熱伝導率  $\lambda$  が求められる。

#### 2.1.2 有限試料寸法に基づく誤差

理想的な場合には上述のように熱伝導率が求められるが、実際には試料の長さは Figure 1 の実線で示すごとく有限である。即ち、座標軸を図のようにとり、軸向の試料長さを  $L_o$  とすると、 $L_o/2$  の位置の両端面からの熱損失によって誤差を生じることは避けられない。十分に精度のよい測定を行うためには、この誤差を評価した上で試料寸法を決定しなければならない。従って、以下のような誤差評価を行った。始めに、熱は周方向には流れず、半径  $r$  及び軸  $z$  方向のみに流れると仮定し、定常状態を考えると、熱伝導方程式は、

$$\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} = 0 \quad (2)$$

で与えられる。また、境界条件は

$$r = r_i \quad \text{で} \quad q = -2\pi\lambda r \frac{\partial T}{\partial r} \quad (3)$$

$$r = r_o \quad \text{で} \quad -\lambda \frac{\partial T}{\partial r} = h_r(T - T_o) \quad (4)$$

$$z = L_o/2 \quad \text{で} \quad -\lambda \frac{\partial T}{\partial z} = h_z(T - T_o) \quad (5)$$

$$z = 0 \quad \text{で} \quad \frac{\partial T}{\partial z} = 0 \quad (6)$$

のように与えられる。

ここで、 $r_i$  および  $r_o$  はそれぞれ細管試料の内外半径、 $L_o/2$  は管の軸方向端面部、 $h_r$  および  $h_z$  はそれぞれ管の外周面および軸端面における外気との熱伝達率、 $T_i$  および  $T_o$  はそれぞれ管外表面および周囲温度を表すものとする。

式(2)を式(3)から(6)の境界条件のもとで解析的に解くことは困難である。従って、ここでは近似的に  $h_r = h_z$  とし、差分法による数値解析を行った。差分法による手法はよく知られているので、ここでは説明を省略する。

ヒータの周囲におかれる試料の外径をパラメータとして、試料の軸方向端面の  $L_o/2$  の表面から熱伝達で熱が流出する場合の計算結果は Figure 2 のようになる。この図から、測定誤差  $\varepsilon$  は試料の外径が大きい場合でも、試料長さ  $L_o$  は 100mm 以上であれば理論上は十分な測定精度であることがわかる。ここでは、少し安全をとって  $L_o = 150\text{mm}$  を採用した。また、他の測定誤差因子と考えられる試料厚さ  $s = (r_o - r_i)$  及び端面の熱伝達率  $h_z$  の種々の値についても計算し、測定誤差に対して軸方向長さ  $L_o$  のような大きな影響がないことも確認した。これらの解析結果から、装置の寸法を決めこれを製作した。

#### 2.1.3 温度測定誤差

次に、試料外表面の温度測定においては表面の境界条件を考

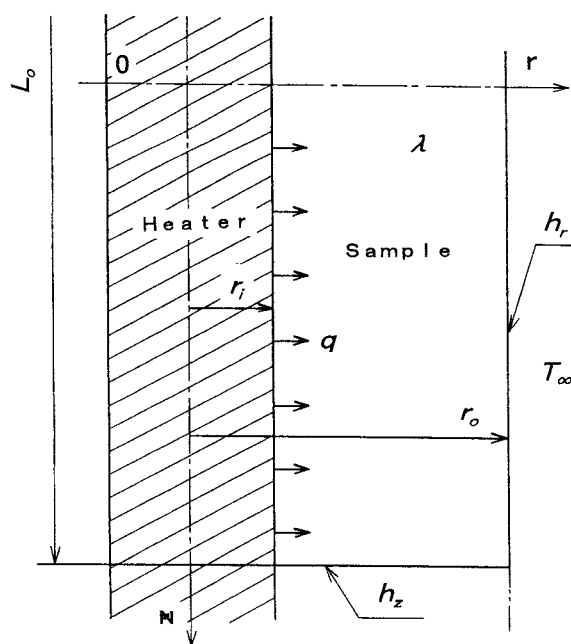


Figure 1 Coordinate system of hollow cylinder and heater

慮する必要がある。試料表面を自然対流状態で測定すると、表面温度が揺らぎ、不安定になると考えられる。しかし、強制対流状態としても、表面の局所熱伝達率  $h$  は流速のみならず位置によっても変化する。周方向の  $h$  についての Eckert ら<sup>6)</sup> Schmidt ら<sup>7)</sup> の文献値を用いて得られた結果を上死点からの角度  $\theta$  を変数として示すと Figure 3 になる。試料を横切る流体のレイノルズ数  $R$  により測定誤差  $\varepsilon$  に相違があるが、下死点  $\theta = 180^\circ$  の位置が最も  $\varepsilon$  が小さいといえる。本報告ではこの

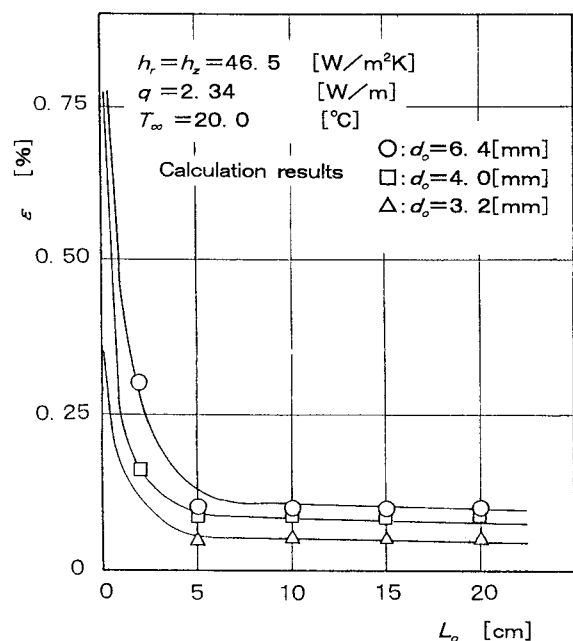


Figure 2 Effects of  $L_o$  on  $\varepsilon$

結果から温度の測定点を下死点においた。また、軸方向に  $h$  が一様でない場合の計算も行ったが、この誤差は比較的小さく、 $q \geq 2.3$  [W/m] で 0.1% 程度であった。

一方、試料内表面を示す温度  $T_i$  の測定について考える。管状試料にヒータを挿入するためには、試料とヒータ間に隙間が存在する。この隙間に熱伝導率の低い空気が満たされている場合、 $T_i$  の測定誤差が大であると考えられることから、実験ではこの空間を液相で充填し、誤差を小さくするよう試みた。さらに、次のような手段により、測定値の補正を行った。隙間を考慮した補正のモデルの概略図を Figure 4 に示す。熱電対は後述のように、細く、また周囲の液相に比較して熱伝導率が 10 倍以上の値をもつので、伝熱的にはこれを見捨ると、図に示すような円筒座標系の半径方向のみの 1 次元定常熱伝導問題で取扱うことができる。試料内面測定用の熱電対は後に示す Fig. 6 のようにヒーターであるマンガニン線表面に取り付けられ挿入されるので、その位置を  $r = r_s$  とし、その位置の温度を  $T = T_i$  とする。また、 $\lambda$  および  $\lambda g$  をそれぞれ試料と隙間を満たす液体の熱伝導率とすると、伝熱量  $q$  は

$$q = \frac{2\pi (T_i - T_o)}{\ln(r_i/r_s)/\lambda g + \ln(r_o/r_i)/\lambda} \quad (7)$$

で現わされ、これを变形して試料の熱伝導率  $\lambda$  は

$$\lambda = \frac{\ln(r_o/r_i)}{2\pi (T_i - T_o)/q - \ln(r_i/r_s)/\lambda g} \quad (8)$$

となる。

## 2.2 実験装置と測定方法

実験装置の概略図を Figure 5 に示す。装置は液槽、ポンプ及び測定部から構成されている。測定温度範囲を熱交換器の使用温度約  $120^\circ\text{C}$  まで可能にする目的で、液槽には  $100^\circ\text{C}$  以上でも蒸気の発生しにくいエチレングリコールを満ち、ポンプによって循環する。液相温度は PID 制御方式を用いて制御し、 $\pm 0.1$

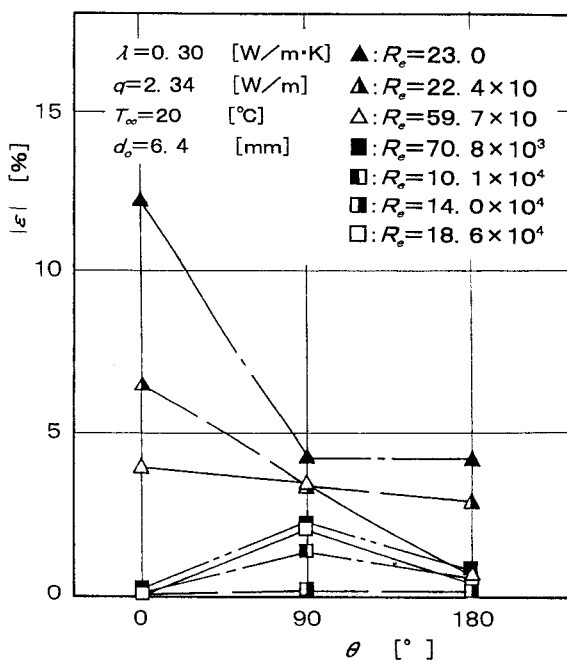


Figure 3 Effects of  $\theta$  on  $\varepsilon$

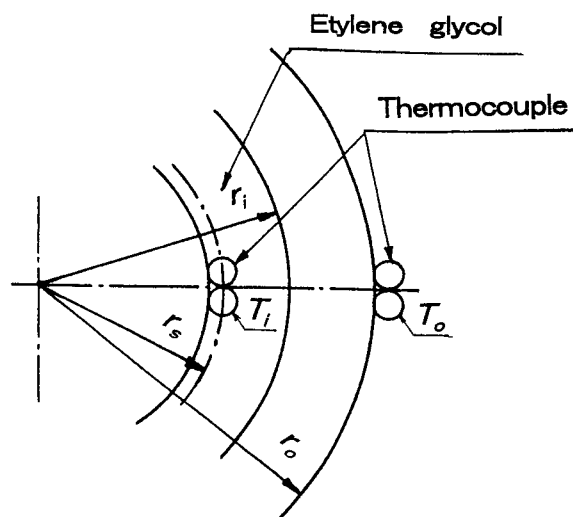


Figure 4 Schematic diagram of heater and thermocouples

℃の範囲で液温をできるだけ等温に保持している。

また、熱流束を与えるヒータの拡大図を Figure 6 に示す。円筒状のヒータの芯棒にはセラミックスまたは真鍮を使用し、 $\phi 0.2\text{mm}$  の絹巻マンガン線線を密に接するように巻き付けて作成した。温度測定には直径 $0.08\text{mm}$  の J 熱電対を用い、ヒータ中央の外面に試料内表面温度  $T_i$  を測定するため一対取り付け、試料内に挿入している。また、それに対応する試料外表面位置に  $T_o$  を測定するための一対が図のように接着されている。

さらに、ヒータと試料との隙間に液相を充填させる目的で試料の軸端部の上死点 ( $\theta = 0^\circ$ ) とその反対側 ( $\theta = 180^\circ$ ) に穴を開け液が確実に管内部に充填するように注意した。実験は、研究を始めた初期には、Figure 5 による方法の他に、ファンにより表面に空気を流す方法<sup>8)</sup>も予備的に行ったが、測定原理

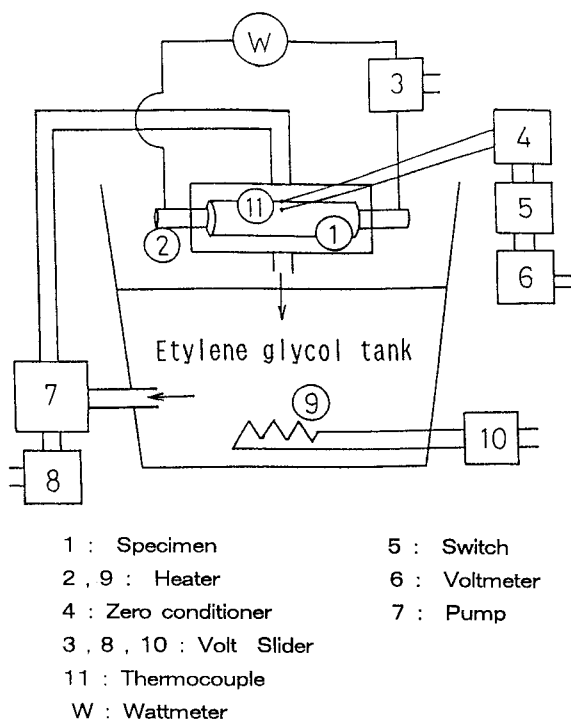


Figure 5 Schematic diagram of experimental apparatus

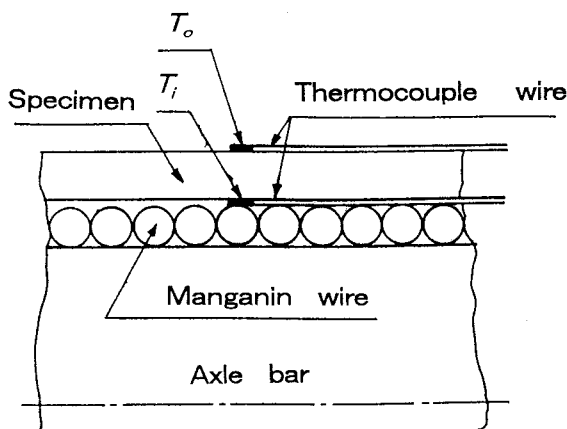


Figure 6 Details of heater and thermocouple junctions

Table 1 Dimensions of specimen

No.	Material	$d_o$ [mm]	$d_i$ [mm]	$s$ [mm]
1	PFA	3.20	2.40	0.40
1C	PFA + Carbon (7.5%)	3.20	2.40	0.40
2	PFA	4.00	3.00	0.50
2C	PFA + Carbon (7.5%)	4.00	3.00	0.50
3	PFA	6.40	5.20	0.60
3C	PFA + Carbon (7.5%)	6.40	5.20	0.60

は同様であるので説明を省略する。

測定手順は次のようである。ヒータへの入力電力と循環液相温度を設定し、 $T_i$  と  $T_o$  とが一定になるように微調整しながら、2 対の熱電対の出力が  $\pm 1 \mu\text{V}$  (約  $\pm 0.025^\circ\text{C}$ ) 以内で 20 分以上変化しない場合に定常状態が得られたと判断した。試料表面の温度差 ( $T_i - T_o$ ) は約  $4 \sim 5^\circ\text{C}$  を選び測定した。熱伝導率の温度依存性を検討する上で温度差は出来るだけ小さいことが望ましいが、小さすぎると温度測定誤差の影響が大きくなることを考慮したものである。測定温度範囲は約  $40 \sim 120^\circ\text{C}$  である。

### 2.3 試料

本実験では、実際の熱交換器に使用されている、(1)乳白色に見えるテフロンチューブ (PFA)、新たに試作された(2)熱伝導率を大きくするために同様の材質の中に平均直径  $8 \mu\text{m}$ 、平均軸長  $9 \mu\text{m}$  の寸法を持つ円柱状カーボングラファイト粒子をランダムに 7.5% 混入した黒色のテフロンチューブ、の 2 種類の材質を持つ試料を用いた。さらに、管直径をそれぞれの材質の管について 3 通り寸法を変化させた。Table 1 にこれらの寸法等の詳細を示す。

## 3. 実験結果と考察

### 3.1 空気による実験結果と考察

先に 2.2 でもふれたように、実験の初期にはファンにより空気流を作り、それを試料表面にあて熱伝達実験を行った。結果の 1 例を Figure 7 に示す。この例では、ヒータを試料に挿入する場合には出来るだけ隙間に空気が入り込まず、温度差が

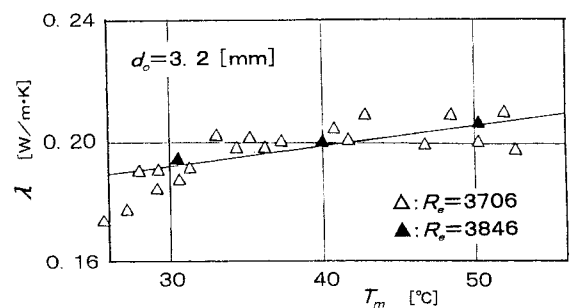


Figure 7 Experimental results of  $\lambda$  ( $d_o = 3.2\text{mm}$ ) in air stream

出来ないように銀ペーストを塗り、管に入れた。Figure 7の結果は最も良好と考えられる結果を示したものである。図から、温度の上昇とともに、熱伝導率が次第に増加する傾向を示している。この定性的な傾向は、Table 1に示した他の試料2および3のフッ素樹脂のみの管でも同様であった。

しかしながら、空気による実験には装置の不十分さにもよるがいくつかの問題点を生じた。すなわち、ヒータへの銀ペーストの塗り付けが一樣に出来ず、また、挿入において、熱電対の付近のペーストが離脱して、空気にさらされることがあること。したがって、結果のばらつき、再現性などの問題が生ずる。また、一般の実験室に小型ファンを置いた状態で風をあてているので、測定温度範囲が狭く、約25~55°C程度であり、改良のためには多くの費用とスペースを要することもある。これらを解決するために、前述のような液体を回流させる方法に改良し多数のデータを求めた。

### 3.2 エチレングリコールを用いた結果と考察

実験は先に示したFigure 5の装置を用い、より高温に対応出来るように、液体にはエチレングリコールを採用した。予備実験として、液温制御の結果をFigure 8に示す。設定温度により、目標値からのばらつきが多少異なるがほとんどの点が目標温度 $\pm 0.02$  [°C]以内におさまっている様子が見られる。120 [°C]の場合でも変動幅を目標値に対する比でとれば、むしろ、制御変動は小さいともいえる。この変動の減少および測定温度領域は明らかに、前節の空気流の場合よりも優れているといえる。管直径 $d_o = 3.2$  [mm]の試料1およびカーボン粒子を入

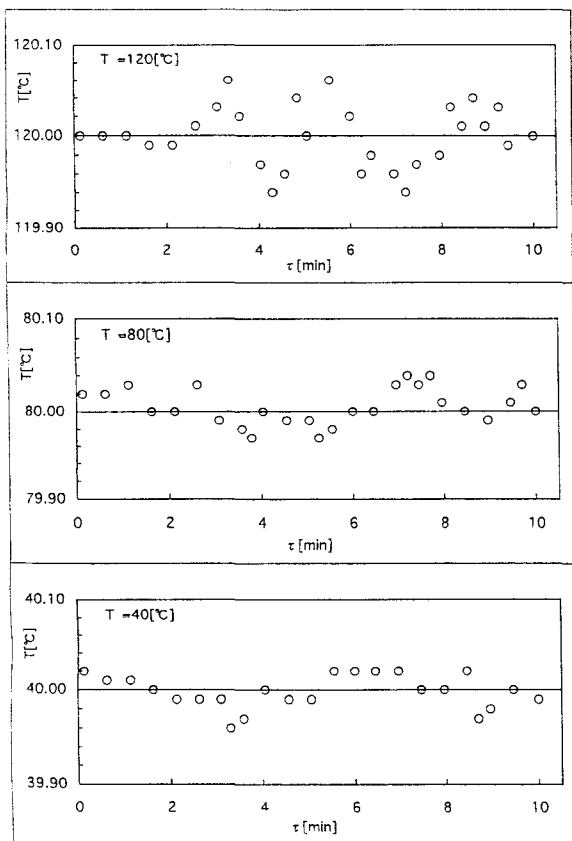


Figure 8 Temperature control state of ethylene glycol

れた試料1Cについての結果をFigure 9に示す。ここでは、求められたそのままのデータと式(8)により補正されて求められた結果の両方を示している。いずれの試料についても、Figure 7と同様の傾向、すなわち、温度依存性が正であることが明らかである。また、補正された試料1の値がFigure 7の値よりもやや小さい値ではあるが、ばらつきや再現性などの点からこの図の結果の方が信頼性があると評価している。さらに、補正の妥当であると考えられる。さらに、試料1と1Cとの間には明らかに相違があり、補正值で比較すると、後者が約60%熱伝導率が向上していることがわかる。

同様な実験結果を管径が最大の $d_o = 6.4$  [mm]について示すと、Figure 10のようである。正の温度依存性はこれまでと同様であるが、試料3Cの勾配が他に比較して大である。この理由については現時点では不明である。また、試料3の値は試料1よりもやや大きな値を示しているが、 $d_o = 4.0$  [mm]の結果と併せ考えても、加工程度による相違(加工度の高い方が軸方向には値が小になるという推定)であるという断定は出来なかった。また、試料3と3Cを比較すると、 $T = 80$  [°C]では前図と同様に約60%の熱伝導率の向上が得られた。この傾向は、図を省略するが試料2と2Cでも同様であった。

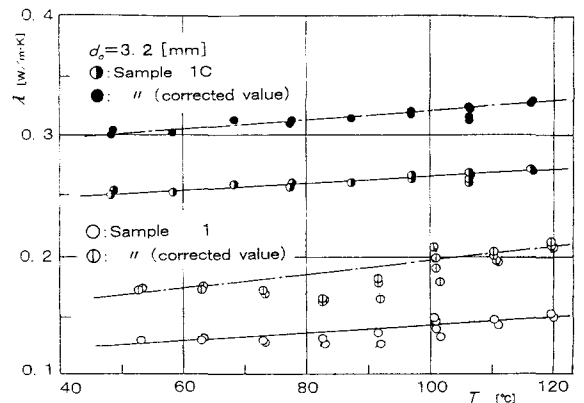


Figure 9  $\lambda$  vs. T diagram ( $d_o = 3.2$  mm) in ethylene glycol stream

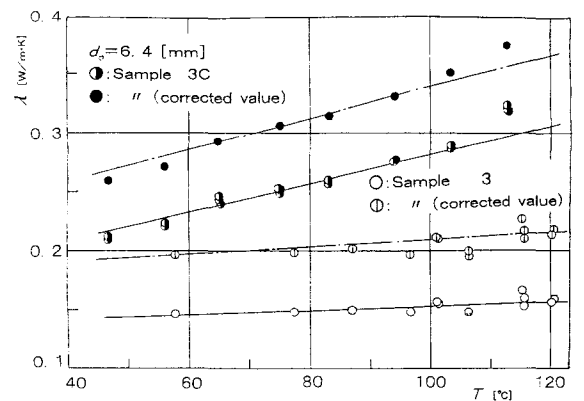


Figure 10  $\lambda$  vs. T diagram ( $d_o = 6.4$  mm) in ethylene glycol stream

### 3.3 熱通過率改善の推定

次に、カーボン粒子を混入した管がどの程度熱通過率を向上させ得るかの概算を試みる。

簡単のため、熱交換器の伝熱量  $Q$  が

$$Q = K \cdot A \cdot \Delta T_m \quad (9)$$

で表されると仮定する。

ただし、 $K$  は熱通過率、 $A$  は伝熱面積、 $\Delta T_m$  は対数平均温度差である。また、 $K$  は

$$\frac{1}{K} = \frac{1}{h_i} + \frac{s}{\lambda} + \frac{1}{h_o} \quad (10)$$

で表される。

ここで、 $h_i$  および  $h_o$  は熱交換器を構成する管内外の熱伝達率、 $\lambda$  は管の熱伝導率、 $S = r_o - r_i$  は管の厚さである。本研究の熱交換器の場合、管材質のみの改善であるので、式(9)で、 $A$  には変化がなく、もし、 $\Delta T_m$  にも変化がないものと仮定すれば、式(10)の  $K$  の増加がそのまま、 $Q$  の増大につながることになる。 $h_i$  および  $h_o$  がどの程度の値か、使用流体および流速により異なり決定しにくいと比較のため、 $h_i = h_o = 1000$  [W/(m<sup>2</sup>・K)] という良好な場合を仮定し、 $\lambda = 0.2$  [W/(m・K)]、 $S = 0.0004$  [m] ( $d_o = 3.2$  [mm] の場合) とすると、

$$K = 250 \text{ [W/(m}^2 \cdot \text{K)]}$$

となる。次に管が改良されて熱伝導率が60%向上し  $\lambda = 0.32$  になり、他の値は変化しないとすると、

$$K = 308 \text{ [W/(m}^2 \cdot \text{K)]}$$

すなわち、伝熱量は約20%増加できると推定される。

したがって、以上から、熱伝導率の小さいフッ素樹脂に、より熱伝導率の大きなカーボン微粉末を混入することによって、管材料の熱伝導率が向上し、伝熱量も増加することは明らかで、効果のある改善方法といえる。カーボンの混入を増加すれば管の熱伝導率はさらに増大するが、管の加工可否、強度その他の物性変化などを考慮し、さらに検討すべきであろう。

### 4. 結 論

フッ素樹脂細管を用いる熱交換器は多くの特長を持つが細管に加工された樹脂管の熱伝導率を求め難いこと、また、熱交換性能が低いことなどの問題点が生じていた。

これらを解決するためこの研究がなされ、この報告で明らかにされた主な点を上げると以下のようなものである。

(1) 細管に加工されたままの状態での熱伝導率を測定する装置と修正式(8)を提案し、広い温度範囲の実験値を求めることができ

た。

(2) フッ素樹脂にカーボン粒子を7.5%混入した管を試作した結果、いずれの寸法の試料でも管の熱伝導率を約60%向上できた。

(3) この熱伝導率の向上は熱交換器の伝熱性能を約20%改善するものと推定される。

最後に、この研究に卒業研究として協力してくれた学生諸君に感謝の意を表します。

### Nomenclature

$A$ : heat transfer area	[m <sup>2</sup> ]
$d$ : diameter of tube	[mm]
$h$ : heat transfer coefficient	[W/(m <sup>2</sup> ・K)]
$K$ : over-all coefficient of heat transmission	[W/(m <sup>2</sup> ・K)]
$L$ : tube length	[m, cm, mm]
$Q$ : heat rate from tube	[W]
$q$ : heat rate from heater per unit length	[W/m]
$Re$ : Reynolds Number	[-]
$r$ : distance of radial direction	[mm]
$s$ : thickness of tube	[mm]
$T$ : temperature	[°C]
$\Delta T$ : logarithmic mean temperature difference	[°C]
$\varepsilon$ : measurement error	[%]
$\lambda$ : thermal conductivity	[W/(m・K)]
$\theta$ : angle from front dead point	[°]
Subscript	
$i$ : inner side	
$m$ : mean value	
$o$ : outer side	
$r$ : radial direction	
$z$ : axial direction	
$\infty$ : surround	

### References

- 1) 井手忠行：化学装置，10 (1983)，111-116.
- 2) 森田光一：配管技術，7 (1988)，99-104.
- 3) 川端季雄：繊維機械学会誌，39 (1986)，58-60.
- 4) 日本機械学会編：熱物性値測定法，養賢堂 (1991)，P.2.
- 5) 日本機械学会編：熱計測技術，朝倉書店 (1986)，P.107.
- 6) Eckert, E.R.G. et al.: Trans. ASME, 74 (1952), 343.
- 7) Schmidt, E. et al.: Forschung, 12 (1941), 65.
- 8) 山田悦郎，佐藤光夫：日本機械学会東北支部八戸 地方講演論文集，(1990)，213-214.