



## 回分横型攪拌槽の気液有効接触面積

|       |                                                                                                                                                                      |
|-------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| メタデータ | <p>言語: jpn</p> <p>出版者: 室蘭工業大学</p> <p>公開日: 2014-07-14</p> <p>キーワード (Ja):</p> <p>キーワード (En):</p> <p>作成者: 安藤, 公二, 八柳, 正弘, 内藤, 憲良, 田保, 英明</p> <p>メールアドレス:</p> <p>所属:</p> |
| URL   | <p><a href="http://hdl.handle.net/10258/3525">http://hdl.handle.net/10258/3525</a></p>                                                                               |

# 回分横型攪拌槽の気液有効接触面積

安藤 公二・八柳 正弘  
内藤 憲良・田保 英明

## Studies on the Effective Interfacial Area in the Batch Horizontal Stirred Vessel

Koji Ando, Masahiro Hachiyanagi, Noriyoshi Naito  
and Hideaki Tabo

### Abstract

These studies were made on the transfer rate of oxygen into sodium sulphite solution in the presence of  $\text{Cu}^{++}$  or  $\text{Co}^{++}$  catalyst in the horizontal stirred vessel.

Aparatus used were cylindrical vessels, sized 15.0 cm in diameter, agitated by turbin type impellers.

Results obtained were as follows:

- 1) In the state  $A_1$ , in which the liquid is splashed violently by the impeller in the vessel, the effective interfacial area is obtained to be linear with Froude No.
- 2) The overall coefficient of mass transfer  $K_G$  was nearly constant.

### I. 緒 言

ガス吸収装置としての横型攪拌槽の性能については、すでに美坂<sup>1)</sup>や Ganz ら<sup>2),3)</sup>の連続装置による一連の実用化実験が報告されている。しかし、その性能を規定する気液有効接触面積と槽内流動状態との関係についての基礎的考察は行なわれていない。

著者ら<sup>4)~6)</sup>は、さきに、横型攪拌槽内の流動状態が、攪拌羽根基準のフルード数および液量率によって2つのパターンに大別されることを示し、所要動力、混合時間および総括吸収容量係数と操作条件との関係は、流動状態によってそれぞれ異なることを報告した。

槽内流動状態と気液有効接触面積との関係を、回分横型攪拌槽について実験的にもとめたのが本報告であり、気液有効接触面積もまた大別される流動状態それぞれについて、異なった相関関係を示すことをみいだした。

### II. 測定法および実験装置

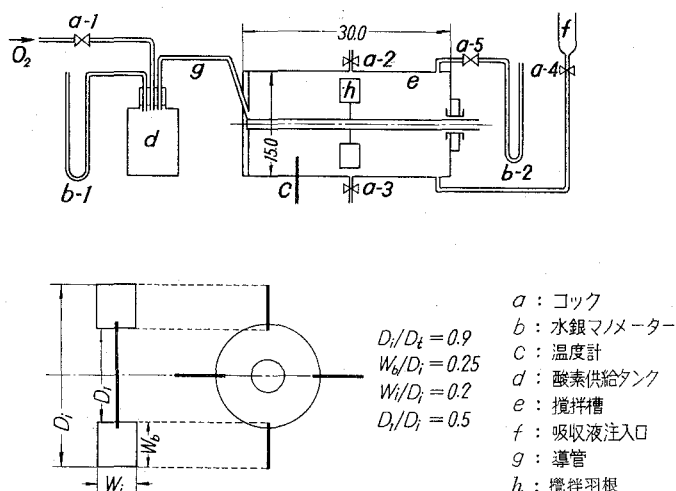
#### II-1 気液有効接触面積の測定法

気液有効接触面積の測定は、吉田らの化学反応を利用する方法<sup>7)</sup>によった。用いた系は、

亜硫酸ソーダ水溶液 (初濃度  $0.1 \text{ mol}/\ell$ )—純酸素系であって,  $\text{Cu}^{++}$  イオン ( $10^{-4} \text{ mol CuSO}_4/\ell$ ) を触媒として液相の物質移動が律速となるような条件下で液相物質移動容量係数  $k_{La}$  を求め, また,  $\text{Co}^{++}$  イオン ( $10^{-4} \text{ mol CoCl}_2/\ell$ ) を触媒として, 反応律速で液相物質移動係数  $k_L$  が計算可能な条件下で物質移動容量係数  $k'_{La}$  を求め,  $k_{La}$ ,  $k'_{La}$ ,  $k_L$  から気液有効接触面積  $a$  を算出した。

## II・2 実験装置および実験方法

実験装置の概要を第1図に示した。攪拌槽と攪拌羽根は既報<sup>4)~6)</sup>に用いたものの内, 槽径  $D_t=15.0 \text{ cm}$  のものを用いた。図中のコック a-1~4 を閉じれば, 導管 g で連絡された攪拌槽 e と酸素供給タンク d は外界から遮断される。槽内圧力 (大気圧との差)  $\Delta p$  を一定時間ごとに測定し, ガス吸収によって攪拌槽内の酸素圧が減少する速度から (1) 式により吸収液単位体積当りの吸収速度  $w$  を算出した。



第1図 実験装置

$$w = \frac{1}{R^*T} \cdot \frac{V_s - V_l}{V_l} \cdot \frac{d\Delta p}{d\theta} \quad (1)$$

ここで  $V_s$  は密閉された装置系内の全容積であり, 本装置では  $15.9 \ell$  である。  $V_l$  は吸収液の体積,  $R^*$  はガス定数,  $T$  は系内酸素ガスの温度である。

## III. 実験結果

### III・1 液相物質移動容量係数 (物理吸収) $k_{La}$ の算出

$\text{Cu}^{++}$  イオンを触媒とした場合の槽内圧力 (大気圧との差)  $\Delta p$  と操作時間  $\theta$  との関係を示す代表例を第2図に示した。槽内圧力は操作時間とともにほぼ直線的に減少し, 槽内酸素圧の減少によって表わされる吸収速度は, 本実験範囲内においては, 槽内液濃度に依存せぬものと

仮定出来る。実験時の槽内圧力の時間的变化から、各時点における槽内酸素圧  $p_{O_2}$  を求め、その減少速度から総括吸収容量係数を次のように定義した。ここでは、液本体中の酸素分圧を零<sup>7),8)</sup> としている。

$$K_{Ga} = w/(p_{O_2} - 0) \quad (2)$$

気相の抵抗を無視し、ヘンリー定数に対する塩類の影響を Van Krevelen らの方法<sup>9)</sup> で推算し、 $k_{La}$  を求めた。Cu<sup>++</sup> イオンを触媒とする場合の吸収は、本実験の範囲では、液相における酸素の拡散によって律速されると考えられ、この場合の  $k_{La}$  はそのまま物理吸収の  $k_{La}$  と考え<sup>7)</sup> てよい。

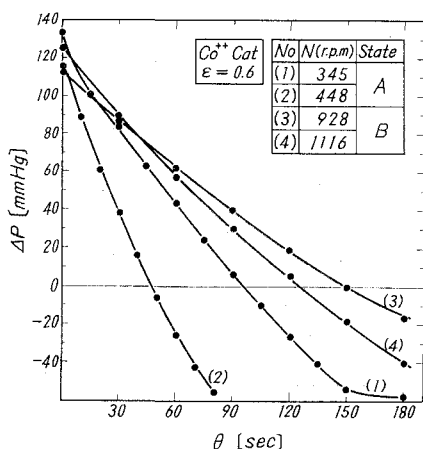
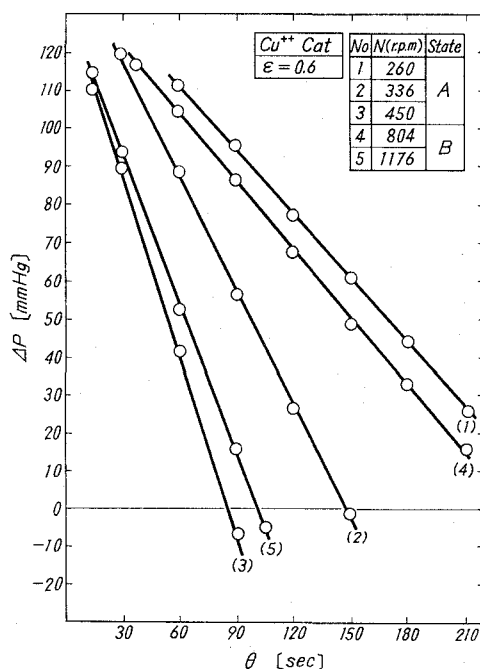
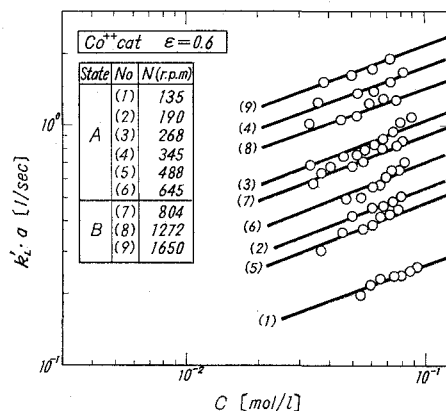
### III・2 気液有効接触面積 $\alpha$ の算出

第3図に Co<sup>++</sup> イオン触媒の場合の槽内圧力  $\Delta p$  と操作時間  $\theta$  の関係の一例を示し

た。Co<sup>++</sup> イオン触媒の場合は Cu<sup>++</sup> イオン触媒の場合と異なり、槽内圧力の変化速度は操作時間と共に減少し、したがって、吸収速度は亜硫酸ソーダ濃度に依存することとなる。第4図は第3図の関係から、ヘンリー定数  $H=7.80 \times 10^5 \text{ atm} \cdot \text{cm}^3/\text{mol O}_2$  として、前項 III・1 に準じて算出した液相物質移動容量係数  $k'_{La}$  と亜硫酸ソーダ濃度  $C$  の関係であり、次式の関係が表われている。

$$k'_{La} \propto C^{\frac{1}{2}}$$

(3)


 第3図  $\Delta p$  と  $\theta$  の関係 (Co<sup>++</sup> 触媒)

 第2図  $\Delta p$  と  $\theta$  の関係 (Cu<sup>++</sup> 触媒)

 第4図  $k'_{La}$  と  $C$  の関係 (Co<sup>++</sup> 触媒)

以後の実験データの処理は吉田ら<sup>10)</sup>の手順に従った。 $\text{Co}^{++}$ イオンを触媒とする場合には、 $\text{Cu}^{++}$ イオンを触媒とする場合より吸収速度は大きく、反応律速と考えられるが、それを確かめるため、同一操作条件における $\text{Co}^{++}$ イオン触媒の場合の $k_L a$ と $\text{Cu}^{++}$ イオンの場合の $k_L a$ の比から反応吸収係数 $\beta = k'_L a / k_L a$ を求め、Van Krevelen らの相関<sup>11)</sup>

$$r = \frac{\sqrt{k C D_f}}{k_L} \quad (4)$$

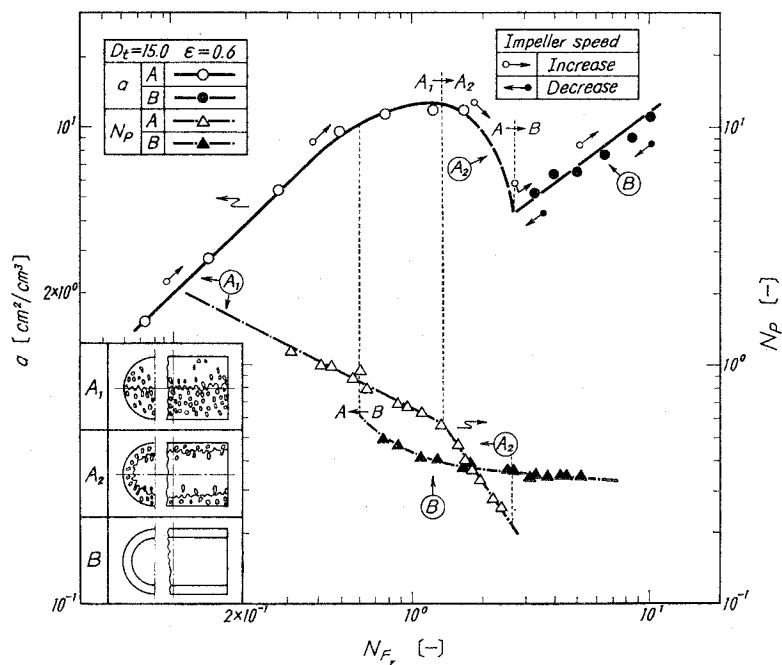
の $r$ が $\beta \div r$ と近似出来る条件( $\beta > 3$ )を各データについて確認した。ここで $k$ は反応速度定数、 $D_f$ は吸収液中の酸素の拡散係数である。

$\text{Co}^{++}$ イオン使用の場合の反応速度定数 $k$ を斎藤ら<sup>14)</sup>の実験式から求め、 $2.18 \times 10^3 \ell \cdot \text{mol} / \text{sec}$ とした。この式は矢木・井上<sup>13)</sup>の式とほとんど一致している。また $20^\circ\text{C}$ における $0.1 \text{ mol} / \ell$ の亜硫酸ソーダ水溶液中の酸素の拡散係数 $D_f$ を吉田ら<sup>14)</sup>の実験式より $1.85 \times 10^{-5} \text{ cm}^2 / \text{sec}$ と推算し、(5)式から気液有効接触面積 $a$ を得た。

$$a = \frac{k'_L \cdot a}{\sqrt{k \cdot C \cdot D_f}} \quad (5)$$

### III・3 気液有効接触面積 $a$ とフルード数との関係

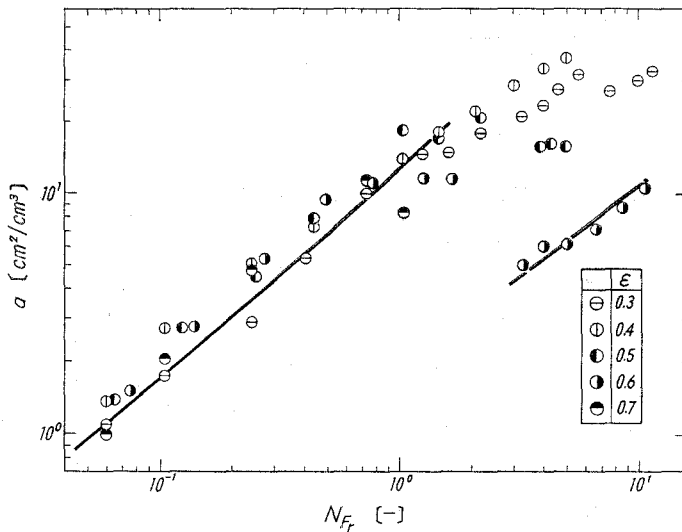
第5図に上記の手順で求めた気液有効接触面積と槽内流動状態を規定<sup>4)</sup>するフルード数 $N_{Fr}$ の関係を示した。本実験と同型の装置によって求めた動力数<sup>4), 15)</sup>は、本実験範囲では、レ



第5図  $a$ と $N_{Fr}$ ,  $N_p$ と $N_{Fr}$ の相関

イノルズ数にはほとんど関係せず、フルード数、液量率によって表わしうることが実験的に明らかとなったので、別報<sup>6)</sup>と同様、吸収速度に関する流動状態は、フルード数、液量率によって表わしうるものと仮定した。図中点線は槽内液流動状態の転移フルード数を示したものであり、同図に含めた動力数とフルード数との関数関係の変化点<sup>4)</sup>に対応している。A<sub>2</sub>状態に対応する気液有効接触面積は測定されていないが、A<sub>1</sub>・A<sub>2</sub>転移点近傍を最大値として、図中破線のごとく、気液有効接触面積は減少すると思われる。以上のようなフルード数との対応関係は、別報<sup>6)</sup>  $K_{Ga}$  とフルード数との関係においても得られている。

液量率  $\varepsilon$  が異なる場合について、気液有効接触面積とフルード数との関係を第6図に示したが、液量率の影響は、データのバラツキの内部に含まれ、その影響は現われていない。すなわち、ガス吸収操作に適当と考えられる A<sub>1</sub> 状態<sup>6)</sup> では、装置規模の影響は明らかではないが、異なる液量率を含め、気液有効接触面積は、ほぼフルード数に比例して増加している。



第6図  $a$  と  $N_{Fr}$  の相関 ( $\varepsilon=0.3\sim0.7$ )

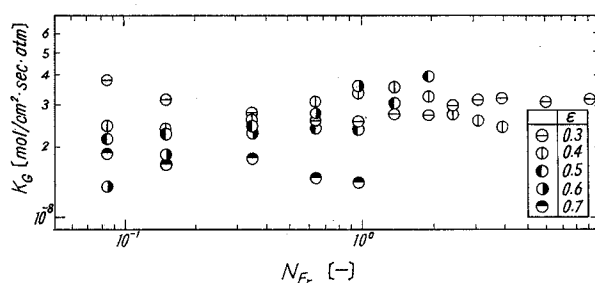
B 状態のデータは、 $\varepsilon=0.6$  のみであり、液量率の影響は明らかでないが、その流動状態を完全な中空状態と仮定すると、円筒形の気液界面積は  $0.28 \text{ cm}^2/\text{cm}^3$  と計算される。実測の気液有効接触面積は  $5\sim10 \text{ cm}^2/\text{cm}^3$  であり計算値とオーダーが異なる。観察によれば、攪拌羽根の近傍に微小な気泡が無数に存在する。したがって、B 状態における気液有効接触面積は、円筒状の気液界面積よりも、攪拌羽根周辺の気泡による気液界面積に依存していると推測される。

注1. 本実験のレイノルズ数とフルード数の範囲は、 $N_{Re}=4\times10^4\sim7\times10^5$ 、 $N_{Fr}=0.07\sim20$  である。

注2. 液量率  $\varepsilon$ : 攪拌槽容積  $V_0$  に対する吸収液体積  $V_l$  の割合、即ち  $\varepsilon=V_l/V_0$

### III・4 総括物質移動係数 $K_G$ とフルード数との関係

総括吸収容量係数  $K_{Ga}$  と III・3 で求めた気液有効接触面積  $a$  より酸素—亜硫酸ソーダ系の総括物質移動係数  $K_G$  を求め、 $K_G$  とフルード数との関係として第7図に示した。バラツキは大きい、フルード数、液量率の影響は現われず、 $K_G$  は  $1.5 \sim 4 \times 10^{-8} \text{ mol/cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{atm}$  の範囲にある。したがって、本装置におけるフルード数の変化に対応した総括吸収容量係数  $K_{Ga}$  の変化<sup>6)</sup>は、総括物質移動係数  $K_G$  よりも気液有効接触面積  $a$  とフルード数の対応関係に依存していることとなる。



第7図  $K_G$  と  $N_{Fr}$  の相関 ( $\varepsilon=0.3 \sim 0.7$ )

加藤<sup>8)</sup>らは、気液流動層の総括物質移動容量係数を亜硫酸ソーダー空気系について求め、気泡の大きさにかかわらず  $K_G \div 9 \times 10^4 \text{ kg} \cdot \text{mol/m}^2 \cdot \text{hr} \cdot \text{atm} = 2.5 \times 10^{-8} \text{ mol/cm}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{atm}$  となると報告しており、本実験で得られた  $K_G$  と同じオーダーを示している。

## IV. 結 言

直径 15.0 cm、槽径に対して2倍の長さを有する横型攪拌槽を用い、1段4枚羽根タービン攪拌羽根を中央部に設置し、純酸素—亜硫酸ソーダ溶液系のガス吸収実験を  $\text{Cu}^{++}$  イオンあるいは  $\text{Co}^{++}$  イオンを触媒として回分系で行ない、槽内液流動状態の変化を規定する攪拌羽根基準のフルード数、液量率と気液有効接触面積、総括物質移動係数との関係を検討した。得られた結果が下記である。

1) 気液有効接触面積は、槽内液の流動状態ごとに異なった相関関係を示し、 $A_1$  状態においては、フルード数にほぼ比例する。

2) 総括物質移動係数は、フルード数、液量率にかかわらず、ほぼ一定値を示した。

(昭和 46. 5. 20 受理)

## 使 用 記 号

|                  |                                       |                                                                           |
|------------------|---------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------|
| $a$              | 気液有効接触面積                              | $[\text{cm}^2/\text{cm}^3]$                                               |
| $c$              | 亜硫酸ソーダ濃度                              | $[\text{g}\cdot\text{mol}/\ell]$                                          |
| $D_f$            | 拡散係数                                  | $[\text{cm}^2/\text{sec}]$                                                |
| $D_i$            | 攪拌羽根の直径                               | $[\text{cm}]$                                                             |
| $g$              | 重力の加速度                                | $[\text{cm}/\text{sec}^2]$                                                |
| $g_c$            | 重力換算係数                                | $[\text{g}\cdot\text{cm}/\text{sec}^2\cdot\text{G}]$                      |
| $H$              | ヘンリー定数                                | $[\text{atm}\cdot\text{cm}^3/\text{mol O}_2]$                             |
| $K_G$            | 気相基準の総括物質移動係数                         | $[\text{g}\cdot\text{mol O}_2/\text{cm}^2\cdot\text{sec}\cdot\text{atm}]$ |
| $K_{Ga}$         | 気相基準の総括吸収容量係数                         | $[\text{g}\cdot\text{mol O}_2/\text{cm}^3\cdot\text{sec}\cdot\text{atm}]$ |
| $k$              | 反応速度定数                                | $[\ell/\text{mol}\cdot\text{sec}]$                                        |
| $k_L$            | 液相物質移動係数                              | $[\text{cm}/\text{sec}]$                                                  |
| $k_{La}$         | 液相物質移動容量係数 (物理吸収)                     | $[1/\text{sec}]$                                                          |
| $k'_{La}$        | 液相物質移動容量係数 (化学吸収)                     | $[1/\text{sec}]$                                                          |
| $N$              | 攪拌羽根回転速度                              | $[1/\text{min}]$                                                          |
| $N_P$            | 動力数 ( $Pg_c/n^3 D_i^5$ )              | $[-]$                                                                     |
| $N_{Fr}$         | 攪拌羽根基準のフルード数 ( $=n^2 D_i/g$ )         | $[-]$                                                                     |
| $N_{Re}$         | 攪拌羽根基準のレイノルズ数 ( $=\rho n D_i^2/\mu$ ) | $[-]$                                                                     |
| $n$              | 攪拌羽根回転速度                              | $[1/\text{sec}]$                                                          |
| $P$              | 攪拌所要動力                                | $[\text{G}\cdot\text{cm}/\text{sec}]$                                     |
| $p_{\text{O}_2}$ | 槽内酸素圧                                 | $[\text{atm}]$                                                            |
| $\Delta p$       | 槽内圧力と大気圧の差                            | $[\text{mmHg}]$                                                           |
| $R^*$            | ガス定数                                  | $[\text{mmHg}\cdot\text{cm}^3/\text{mol}\cdot^\circ\text{K}]$             |
| $T$              | 密閉された装置系内酸素の絶対温度                      | $[\text{K}]$                                                              |
| $V_o$            | 槽の容積                                  | $[\text{cm}^3]$                                                           |
| $V_l$            | 吸収液の体積                                | $[\text{cm}^3]$                                                           |
| $V_s$            | 密閉された装置系内酸素の体積                        | $[\text{cm}^3]$                                                           |
| $w$              | ガス吸収速度                                | $[\text{g}\cdot\text{mol O}_2/\text{sec}\cdot\text{cm}^3]$                |
| $\beta$          | 反応吸収係数                                | $[-]$                                                                     |
| $\gamma$         | 活量係数                                  | $[-]$                                                                     |
| $\varepsilon$    | 液量率 ( $=V_l/V_o$ )                    | $[-]$                                                                     |
| $\theta$         | 時 間                                   | $[\text{sec}]$                                                            |

## 文 献

- 1) 美坂康有: 北海道大学学位論文 (1967).
- 2) Ganz, S. N.,: Zh. Prikl. Khim., **30**, 1311 (1957).
- 3) Ganz, S. N. and Lokshin, M. A.,: Zh. Prikl. Khim., **31**, 191 (1958).
- 4) 安藤公二・原 弘・遠藤一夫: 化学工学, **35**, 466 (1971).
- 5) 安藤公二・原 弘・遠藤一夫: 化学工学, **35**, 102 (1971).
- 6) 安藤公二・原 弘・遠藤一夫: 化学工学, **35**, (1971), (12号掲載予定).
- 7) 吉田文武・池田明禮・今川修平・三津喜温: Ind. Eng. Chem., **52**, 435 (1960).
- 8) 加藤康夫・森田 繁: 化学工学, **26**, 1134 (1962).
- 9) Van Krevelen, D. W. and Hoftijzer, P. J.,: Chim. Ind. XXI<sup>eme</sup> Congr. Int. Chim. Ind. 168 (1948).
- 10) 植野宗治・谷山 幸・吉田文武: 化学工学協会第32年会講演要旨集, 114 (1967).
- 11) Hoftijzer, P. J. and VanKrevelen, D. W.,: Trans. Instn. Chem. Engrs., **32**, Suppl. S. 60 (1954).
- 12) 斎藤弘太郎・服部 宏: 化学工学協会第27年会講演要旨集, 48 (1962).
- 13) 矢木 栄・井上博愛: Chem. Eng. Sci. **17**, 411 (1962).
- 14) 吉田文武・安西 茂・大島宣雄: 第4回反応工学シンポジウム講演要旨集, 76.
- 15) 玉木康夫・伊藤四郎: 化学工学協会第2回秋季大会講演要旨集, C 102 (1968).