



## 10mm Raschig ring 充填物に対する液境膜係数： 充填塔によるガス吸収

メタデータ	言語: jpn 出版者: 室蘭工業大学 公開日: 2014-05-26 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 木村, 一, 岡, 宏 メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10258/3125">http://hdl.handle.net/10258/3125</a>

# 10 mm Raschig ring 充填物に対する液境膜係数

— 充填塔によるガス吸収 —

木村 一・岡 宏

## Liquid Film Coefficients for 10 mm Ceramic Raschig ring

— Gas Absorption in a Packed Column —

Hajime Kimura and Hiroshi Oka

### Abstract

Experiments on gas absorption of pure carbon dioxide by water were carried out in several towers packed with 10 mm ceramic Raschig ring: in order to obtain liquid film coefficients directly, and investigated the effects of the following variables on the coefficients:— rate of liquid flow, gas velocity, end effect, height of packing, tower diameter.

We obtained the following experimental results. When the temperature was reduced to 15°C.

- 1) The coefficient was independent of gas velocity. This conclusion agreed with the results achieved by previous investigators.
- 2)  $k_{La}$  at above 6000, of liquid rate was proportionate to 0.82 power of this, while at below 6000, the coefficient was proportionate to  $L^{1.22}$ .
- 3)  $k_{La}$  was inversely proportional to the pipe diameter.
- 4) Conspicuous difference was observed with the data of other researchs in the height of packing on

$$k_{La} \propto Z^{-0.6}$$

- 5) Following experimental equations were:

$$\frac{k_{La}}{D_L} = \alpha \left( \frac{L}{\mu_L} \right)^n \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{0.5} \quad \begin{array}{ll} L > 3000 & \alpha = 5400 \quad n = 0.82 \\ < 3000 & \alpha = 310 \quad n = 1.22 \end{array}$$

#### Range of Experiments

Gas velocity	40 ~ 2,500 kg/m <sup>2</sup> ·hr
Rate of liquid flow	400 ~ 20,000 kg/m <sup>2</sup> ·hr
Tower diameter	0.02 ~ 0.10 m
Height of packing.	0.3 ~ 0.8 m

## 1. 緒 言

液体によるガス吸収は化学工業上重要で、其の研究も種々行われているが、主として物理

吸収の研究で、化学反応を伴う吸収については、現在行われつつあるが、その数は極めて少ない。古くは八田氏<sup>1)</sup>の著名な研究から、最近 van Krevelen<sup>2)</sup>, Sherwood<sup>3)</sup>, 藤田氏<sup>4)</sup>, Pigford<sup>5)</sup>, Himmelblau<sup>6)</sup>等の実用的な研究等も、主に炭酸ガスの苛性アルカリ、或いはモノー、ジー、トリエタノールアミン溶液による吸収、酸化窒素の水に対する吸収等であつた。

筆者らは、現在タール工業に於いて行われているタール中油中のタール酸をタール酸ソーダとして抽出し、更に炭酸ガスでタール酸として分解回収する工程についての化学吸収を系統的に追究して来たが、その中充填塔操作について必要な予備的基礎実験を行った結果を此所に報告する。

一般に化学吸収で充填塔を使用する場合の充填塔の設計には、(1)藤田氏<sup>7)</sup>の述べた如く、各個境膜係数  $k_{Ga}$ ,  $k_{La}$  を物理吸収より求め、化学吸収の場合の反応係数  $\beta$  を  $\beta = X/\tanh X$  ( $X = \sqrt{kA_m D_L/k_L}$ ) より計算で求め、 $1/K_{Ga} = 1/k_{Ga} + 1/H\beta k_{La}$  より総括吸収係数  $K_{Ga}$  を得て  $z = N_A/K_{Ga} \cdot (\Delta P) \ln$  より塔高を求める方法や、(2)Wilson plot 法や、(3)既に報告された諸家の実験式を適用する方法等種々あるが、(2)の方法は指数の数に制限があり、且つ余程精密な実測値を基にしないと誤差が多く、(3)の方法も適用実験条件、化学反応の種類、実験式の再現性、誤差範囲等に於いて特定な実験には適用しても信謬性に乏しく、結局、気・液有効接触面積  $a$  を含んでいるという難点はあるも、(1)の方法が最も信頼性の置ける方法と考えられる。

而して、充填塔のガス吸収操作に於いては、一般に液一ガス接触面の両側に液境膜およびガス境膜が存在し、その個々の境膜が溶質ガスの移動に対し抵抗を示し、その両境膜抵抗の和が吸収速度を支配すると考えられている。これらの境膜抵抗(又はその逆数の境膜係数)に対する液およびガス流速、充填物の形状・寸法、その他液、ガスの物理的性質などの諸因子影響を知るために従来多くの実験的研究が行われている。

すなわち、ガス境膜係数  $k_{Ga}$  に関しては、多くの実測値はあるが、理論的にも実験的にも完全に求め得られない事が知られた現在、最も確実と見られる Shulman, Surosky, Dodge 等の純液を不活性ガス中に蒸発させて液側の濃度勾配をなくする方法とか、液側で迅速な不可逆反応が生じて抵抗をゼロにする方法が行われている。また、 $a$  の確実なる評価の難点があるがこの外に藤田氏<sup>8)</sup>, van Krevelen<sup>9)</sup>等の比較的まとまつた実験式も存在するが、系の差の補正をしても如何に  $k_{Ga}$  の値が不一致であるかは Lynch & Wilke によつて明らかである。本実験に於いても以上の点より考えて、比較的实验条件の適用範囲の類似した藤田氏、van Krevelen の実験式をそのまま採用して爾後の計算の進展に供した。

また一方、液境膜係数に関する研究としては、Sherwood-Holloway<sup>10)</sup>の実験結果が最も信頼されている。かれらの実験は主として液流速  $L$  が  $2000 \text{ kg/m}^2 \cdot \text{hr}$  以上の部分で行われたものであり、藤田氏等<sup>11)</sup>, 疋田氏等<sup>12)</sup>も略々同じ傾向を示している。しかし Deed 等<sup>13)</sup>は  $L$  が  $5000$

以下では  $(H.T.U)_L$  が Sherwood 等の式から偏倚するという結果を得ている。

液境膜係数を求める実験方法としては、水素、酸素、炭酸ガス等の溶解度の小さいガスを空気中から水に吸収させるか、水中から空気中に放散させて、得られた総括吸収係数を液境膜係数として使用する方法が一般に採用されている<sup>9),13)</sup>。これらの方法のかわりに、気相として純粋溶質ガスのみ用いこれを吸収させる方法をとればガス側には溶質ガスの分圧勾配がなく、ガス境膜抵抗はないものとしてよいから、得られた液境膜係数は酸素や水素などの放散又は吸収実験から求めた値より一層真の値に近い筈である。

著者らは現在行っている「石炭酸ソーダ溶液分解塔の化学工学的研究」の一部として充填塔による化学吸収の予備実験で、純粋炭酸ガスの水に対する吸収を 10 mm Raschig ring を充填物として行い、液境膜係数を測定し、これに対するガスおよび液流速、管径、充填層高、温度等の影響をしらべた。特に液流速に関しては極めて低い範囲まで実験を行つた。すなわち前述の如く、物理吸収の場合の  $k_L a$  より化学吸収の反応係数  $\beta$  を求めんとするものである。

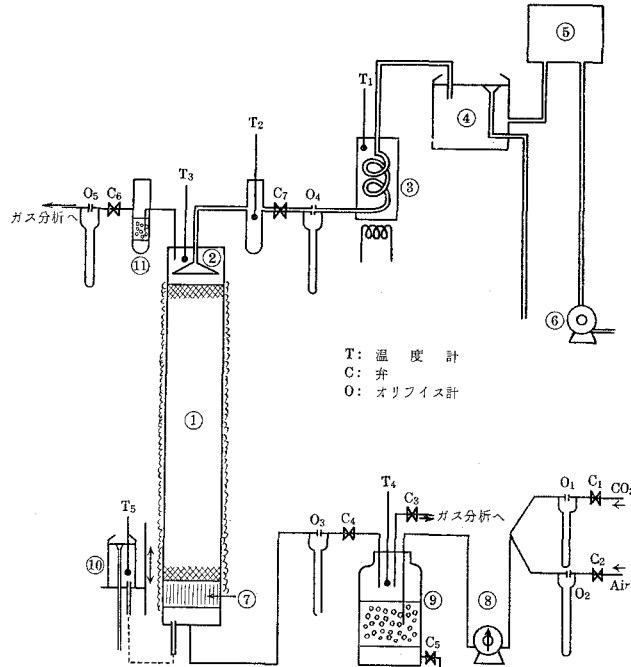
但し、以下述べる結果は 10 mm Raschig ring の場合にのみ適用できるもので、充填物の形状大きさの影響を知るためには、さらに今後の豊富な信用ある実測値の蓄積が必要である。

## 2. 実験装置および操作

実験に用いた装置の概略を第 1 図に示す。また使用した充填塔の種類、特性値の一部は、第 1 表の如くである。水はイオン交換樹脂層を通した蒸溜水を用い、これを定水位槽から流量調節弁および液分布器を通して充填物上に供給した。液分布器はノズルと開放口の両者を用い之をガラスサドルと硝子綿により均一に分布する様に工夫され、塔内を炭酸ガスと向流に流下し塔下部から排出された。液の排出には溢流形式を採り、塔内の圧力に応じて溢流部を上下し塔下部水面を一定位置（充填層下の距離）に保つた。

炭酸ガスはポンペからニードルバルブ、洗気瓶、流量計を通した後、塔下部へ送入し塔頂から排出したが、この際送入炭酸ガスは塔内での吸収量より稍々過剰に送りこの過剰分はガス溜に附設したガス放出管中に気泡として放出した。また系内の圧力を大気圧以上に保つて系外からの空気の混入を防いだ。

実験の操作法は、ガス循環を行わず、先ず液およびガスの流量を任意に調節し、一定時間後に定常状態に達せしめ、液ガスの温度、流量を測定し、両者の分析を行つた。液分析方法は溢流部より液試料を 10 ml のピペットで直接吸上げ、これを N/10 水酸化バリウム溶液の一定量入つた三角フラスコ内に入れ、過剰の水酸化バリウムを N/10 塩酸溶液で中和滴定をした。試料は毎回 2~3 回採取したが、分析結果は約 1% 以内でよく一致をした。亦塔頂への供給水も同様の分析を行つた。ガスは塔頂、塔底共に Orsat 法で分析した。



第1図 実験装置

- ① 充填塔 ② 液分布器 ③ 液温調節器 ④ 定水位槽  
 ⑤ 貯槽 ⑥ ポンプ ⑦ ガス整流器 ⑧ ガスメーター  
 ⑨ ガス溜兼ミスト捕集器 ⑩ 溢流タンク ⑪ ミスト捕集器

第1表 実験条件

塔記号	塔径 (m)	塔高 (m)	塔底空間高 (m)	空間率 (%)	液分布器
B <sub>1</sub>	0.037	0.8	0.1	65.9	nozzle
B <sub>2</sub>	0.037	0.8	0.1	65.9	Open
C <sub>1</sub>	0.024	0.8	0.075	69.8	nozzle
C <sub>2</sub>	0.024	0.5	0.075	69.9	nozzle
C <sub>3</sub>	0.024	0.3	0.075	70.2	nozzle
D <sub>1</sub>	0.0547	0.8	0.035	61.8	Open
D <sub>2</sub>	0.0547	0.5	0.035	61.3	Open
D <sub>3</sub>	0.0547	0.3	0.035	60.2	Open

### 3. 液境膜係数の算出

本実験では気相としては純粋の炭酸ガスを用いたからガス側による分圧勾配はなく、従つて気-液界面の液濃度はガス本体の圧力(全圧)に対応する溶質ガスの飽和濃度  $C_s$  に等しい。 $C_s$  を塔全体を通じて一定とすれば、液境膜係数  $k_L a$  に対して次式が導かれる。

$$k_L a = \frac{L}{\rho z} \int_{C_1}^{C_2} \frac{dC}{C_s - C} = \frac{L}{\rho z} \ln \frac{C_s - C_1}{C_s - C_2} \quad (1)$$

此の場合  $C_s$  は塔全体を通じて一定、すなわち液温が一定と仮定して導かれたものであるが、一般にガスが液に溶解する時は発熱を伴ない、この為液温の上昇を来す傾向がある。而して、溶質ガスが炭酸ガスの如く溶解度の小さいものでは発生熱量も少なく、液温は塔の上下を通じて一定であるとみなして差支へなく、実験的にも確められた。此の実験の場合は、塔の保温は行つたが、液温が低温の場合はガス温度の影響を受けてガス側より液側へ顕熱の移動が行われ、塔頂と塔底の液温差が最高  $6^\circ\text{C}$  に達した為、(1) 式の  $C_s$  を一定とみなす事が出来ぬ故、塔上下の温度範囲での  $C_s$  の温度による変化を直線的とみなせば、推進力  $(C_s - C)$  の塔全体を通じての平均値として塔入口および塔出口に於ける値の対数平均値が使用出来る。すなわち

$$k_L a = \frac{L}{\rho z} \frac{C_2 - C_1}{(C_s - C)_{av}} \quad (2)$$

$$(C_s - C)_{av} = \frac{(C_s - C)_1 - (C_s - C)_2}{\ln [(C_s - C)_1 / (C_s - C)_2]} \quad (3)$$

此の場合の  $C_s$  の値としては、大気圧、塔内平均液温、塔頂および塔底温度に対する値を I.C.T. より求め計算に供した。なお本実験は後におこなう同じ条件における石炭酸ソーダ液による吸収と比較する必要があるので、充填層の積変えはおこなわないが、端効果については後述の如く検討をおこなつた。また諸家の実験結果と比較対照の為の温度補正としては、一応概括的に(1), (2) 式より求めた  $k_L a$  を Sherwood-Holloway<sup>10)</sup> にならい次式により

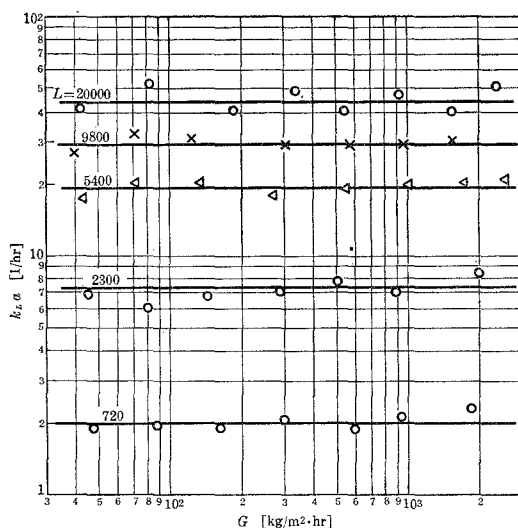
$$k_L a \propto e^{0.023t} \quad (4)$$

$15^\circ\text{C}$  の値に換算した。

### 4. 実験結果および考察

**a. ガス流速の影響:** 液境膜係数に対するガス流速の影響を、液温  $16 \pm 1.5^\circ\text{C}$  に於いて、充填層高 0.3 m, 塔径 0.037 m, 空間率 65.9% の塔を用い  $720 \sim 20,000 \text{ kg/m}^2 \cdot \text{hr}$  の液流速のそれぞれに対し、ガス流速を  $30 \sim 3000 \text{ kg/m}^2 \cdot \text{hr}$  の範囲に変化させて実験を行つた。なおガス流速  $G$  の値としては、塔入口および塔出口の値の算術平均値を用いた。

実験結果を第2図に示す。これは  $G=300$  以上の数値は循環実験も併用した。図から知られる如く、 $G$  は  $k_L a$  に影響を与えない。この事実は各種の充填物や溶質ガスを用いて行つた既往の研究者達<sup>10),12),14),15)</sup>の実験結果と全く一致している。したがつて充填塔のガス吸収又は放散操作で Loading velocity 以下のガス流速範囲および通常の液流速範囲では、充填物の形状、寸法、充填塔径の大小、溶質ガスの種類などの如何を問はず  $G$  は  $k_L a$  に影響を与えないという一般的な定説は本実験の場合も当てはめ得た。



第2図 ガス速度の影響

b. 液流速の影響:  $k_L a$  に対する  $L$  の影響をしらべる目的で、 $G=128.5 \text{ kg/m}^2 \cdot \text{hr}$  の場合にガス循環を行わず、 $L$  を  $500 \sim 20,000 \text{ kg/m}^2 \cdot \text{hr}$  に変化させて実験を行つた。

第2表に実験条件を、第3表に測定数値の一部を、第3図、第4図に括めた結果を図示する。第2表に於いてはガス分析結果よりの炭酸ガス消費量と液分析結果による炭酸ガス吸収量の良い一致を示したものを塔径、層高の異つた各塔について記載した。また有効接触面積  $a$  については藤田氏<sup>10)</sup>等の方法により  $L/a_i \mu_L$  vs.  $a/a_i$  より求めた。また記載した  $(k_L a)_{15^\circ\text{C}}$  は前式(1)で求めた  $(k_L a)_{t^\circ\text{C}}$  を(4)式により  $15^\circ\text{C}$  に換算した数値で、これを図示すると  $\pm 10\%$  の範囲で第3図の直線上に点綴される。この点より爾後の計算に用いた  $k_L a$  は凡て第3図より求めたものである。

第2表 実験条件

ガス流速	40~2,500	$\text{kg/m}^2 \cdot \text{hr}$
液流速	400~20,000	$\text{kg/m}^2 \cdot \text{hr}$
ガス濃度	95~99.5	%
ガス温度	17~20	$^\circ\text{C}$
液温度	7.5~25.0	$^\circ\text{C}$
統 填 塔 径	0.02~0.10	m
充 填 塔 径 層 高	0.3~0.8	m

第3表 実験結果

Exp. No.	Mean Water Temp. $t$ [°C]	Liq. Rate $\text{kg/m}^2\text{-hr}$	$(Re)_L$	Sec. area $[\text{m}^2]$	Height $[\text{m}]$	Liquor Conc.		$a$	$k_L a$ at 15[°C] $1/\text{hr}$
						equil. $[\text{kg/kg H}_2\text{O}]$	Outlet $[\text{kg/kg H}_2\text{O}]$		
B <sub>1</sub> 01	24.75	519	19.7	$13.82 \times 10^{-4}$	0.8	$1.521 \times 10^{-3}$	$0.651 \times 10^{-3}$	32.7	0.293
02	24.75	1623	40.8			1.521	0.887	49.4	1.2
03	24.0	3243	65.2			1.542	0.921	60.8	2.75
04	23.75	5450	90.5			1.561	0.817	72.2	4.2
05	21.25	12050	155.2			1.669	0.934	88.4	8.0
B <sup>2</sup> 01	12.0	825	21.1	$13.82 \times 10^{-4}$	0.8	$2.205 \times 10^{-3}$	$1.470 \times 10^{-3}$	34.8	1.18
02	8.0	1670	31.4			2.537	1.728	43.2	2.65
03	9.65	5780	74.9			2.375	1.759	65.2	10.2
04	9.0	11420	118.7			2.442	1.715	79.6	17.5
05	7.5	16720	151.7			2.580	1.672	88.2	24.8
C <sub>1</sub> 01	17.0	1780	38.6	$5.71 \times 10^{-4}$	0.8	$1.890 \times 10^{-3}$	$0.938 \times 10^{-3}$	47.5	1.5
02	17.0	3990	65.6			1.890	1.048	61.8	3.8
03	15.5	13440	149.0			1.976	1.152	87.2	14.0
04	15.0	17500	181.0			2.015	1.129	94.2	17.5
C <sub>2</sub> 01	19.0	2360	48.4	$5.71 \times 10^{-4}$	0.5	$1.782 \times 10^{-3}$	$0.774 \times 10^{-3}$	52.3	2.6
02	19.0	3760	64.7			1.782	0.851	61.8	4.4
03	18.5	8820	118.0			1.807	0.925	78.8	12.7
04	16.0	20350	204.4			1.948	0.935	93.9	25.2
C <sub>3</sub> 01	16.5	1780	37.6	$5.71 \times 10^{-4}$	0.3	$1.888 \times 10^{-3}$	$0.919 \times 10^{-3}$	47.5	3.0
02	16.5	3810	63.9			1.948	0.946	60.8	8.0
03	17.0	7980	113.0			1.890	0.956	72.0	17.3
04	16.0	18100	187.0			1.948	0.894	96.0	34.8
D <sub>1</sub> 01	14.0	896	22.9	$30.15 \times 10^{-4}$	0.8	$2.075 \times 10^{-3}$	$1.285 \times 10^{-3}$	36.7	0.9
02	14.0	1235	28.0			2.075	1.145	41.3	1.31
03	12.0	2110	38.4			2.208	1.380	49.0	2.45
04	11.5	6620	84.5			2.241	1.194	69.0	6.75
D <sub>2</sub> 01	11.5	718	19.0	$30.15 \times 10^{-4}$	0.5	$2.244 \times 10^{-3}$	$1.158 \times 10^{-3}$	33.4	1.02
02	13.0	1095	25.6			2.120	1.166	39.0	1.70
03	11.0	2990	49.1			2.277	1.252	53.2	5.4
04	8.0	4930	161.5			2.537	1.314	62.0	8.0
D <sub>3</sub> 01	12.5	876	22.2	$30.15 \times 10^{-4}$	0.3	$2.172 \times 10^{-3}$	$1.145 \times 10^{-3}$	35.5	1.85
02	9.7	1542	30.5			2.382	1.099	42.6	3.35
03	9.2	4230	64.8			2.422	0.943	61.6	8.2
04	8.5	7580	87.9			2.482	1.222	70.7	18.2



第3図より明らかなる如く  $L > 5000$  の部分では傾斜0.82の直線で表わせるが  $L < 3000$  の部分ではその直線より偏倚し  $k_L a$  は  $L$  の減少と共に大体  $L^{1.22}$  に比例して減少する。此の部分についての指数の変化は多少見受けられた。

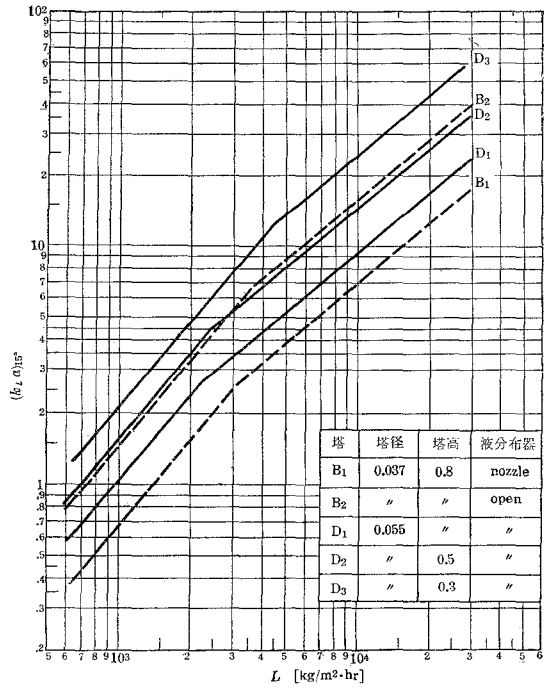
此の  $L$  の或る値以下で直線の屈折するのは液流速の低い時には塔内の充填物に充分均一な液分布を与える事が出来なくなり、有効接触面積  $a$  の減少率が增大する為である。したがって如何に塔内の液分布の良好な充填塔でも  $L$  の一定値以下では  $k_L a$  の急激な減少が起る事が予想され、此の考えは Shulman<sup>17)</sup>, Hikita<sup>12)</sup> らの研究でも指摘されている。

又 Sherwood らによれば  $L/\mu_L$  の指数はリングの大きさによつて変るとあり、此の点 10 mm リングに対しては第4図に示される如く、

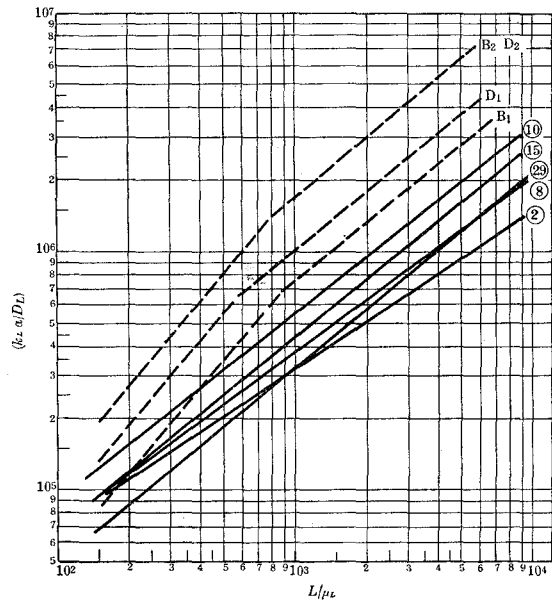
$$\frac{k_L a}{D_L} \propto (L/\mu_L)^{0.82}$$

で表わされ、既往の実験に比し若干高い値であるが、リングの大小に余り変化なく指数は殆んど 0.6~0.82 の値を示している。

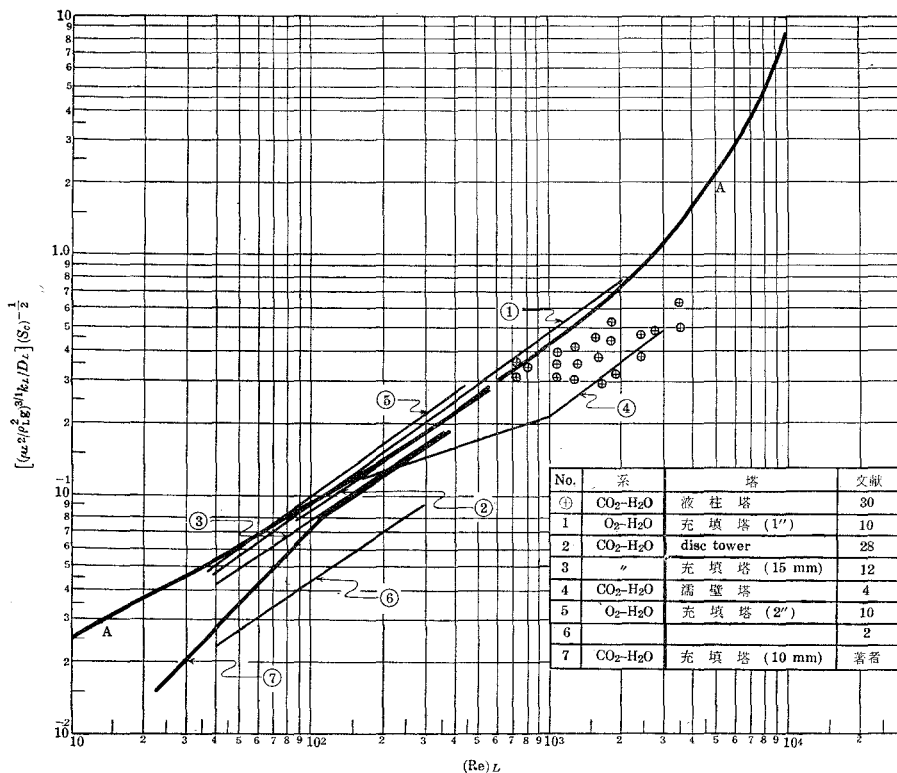
次に充填塔に於ける液側物質移動係数  $k_L$  におよぼす諸種の影響を明らかにする為に、 $k_L$  を  $L, \rho, \mu, D_L, a, g$  の函数として次元解析を行い、 $(Sh)/(Sc)^{0.5}$  対  $(Re)_L$  を点綴すれば第5図に示す如くなる。充填塔の  $(Re)_L$  としては従来各種の形が用いられているが、著者らは Sher-



第3図 液流速の影響



第4図 Sherwood-Holloway の式との比較



第5図  $(Sh)(Sc)^{-1/2} : (Re)_L$

wood<sup>3)</sup>らと同様な考え方より  $(Re)_L = 4L/a\mu$  を採用した。又  $(Sh) = (\mu_L^2/\rho_L^2 g)^{1/3} k_L/D_L$  中の  $k_L$  は  $k_L a$  を藤田氏等<sup>16)</sup>の曲線より求めた  $a$  で除した値を用いた。又比較の為の充填層高の補正については、既に藤田氏等<sup>18)</sup>、van Krevelen<sup>9)</sup>、栗原氏等<sup>19)</sup>の報告の如く  $k_L$  が充填層高  $z$  の (0.19 ~ 0.33) 乗に逆比例するという実験事実があるが、後述の如く著者らの実験では  $z$  の 0.75 乗に逆比例する点より此の式により  $z = 0.3$  m に換算した値を用いた。

以上の結果、既往の実験結果と比較した曲線とは  $(Re)_L > 100$  で極めて良い一致を示したが、 $(Re)_L < 100$  では少しく減少した値を示した。しかし乍ら van Krevelen<sup>9)</sup>の値より少々高い点については

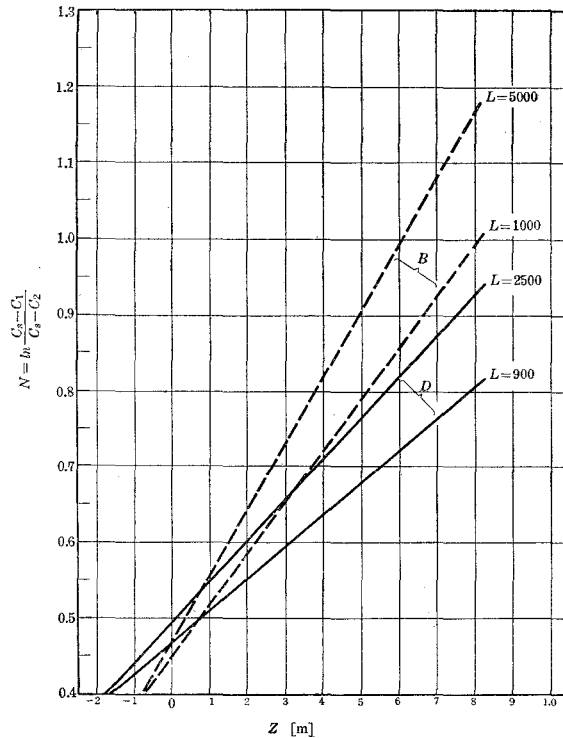
$$(Sh) = 0.015 \left( \frac{L}{a\mu_L} \right)^{2/3} (Sc)^{1/3}$$

の  $(Sc)_L$  の指数が 1/2 でなく 1/3 としている点や、 $a$  の算出が明確でない点に原因があるものと考えられる。

c. End effect: 充填塔でガス吸収を行う場合には、液-ガスの接触は充填層の内部だけでなく、塔頂部および塔底部においてもおこり、塔入口および出口の組成から計算した係数

は実際の充填層のみによる係数よりも大きく出るわけである。特に低い充填高さの塔では塔の上下端の影響、すなわち End effect (端効果) は大きく無視出来ないのが普通である。

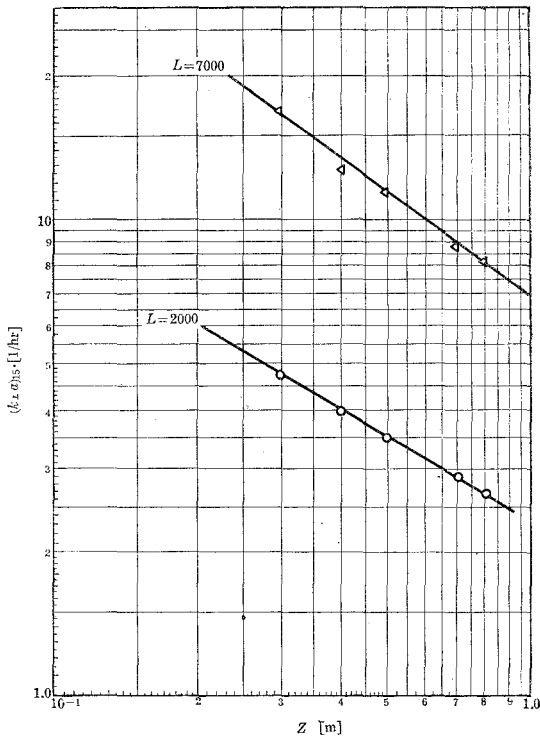
第3図に示した各種充填層高に対する実験結果から知られる如く  $k_L a$  は  $z$  が低くなる程高くなる。これらの結果から End effect を知るために一定の液流速に於いて移動単位数  $N$ 、すなわち  $\ln[(C_s - C_1)/(C_s - C_2)]$  を  $z$  に対して点綴する方法を用いた。第6図はこれを示す。図から End effect が約 17 cm 充填高さに相当する。この値は他の実験者等<sup>12), 20), 21)</sup>の結果より稍大きい、これは本実験では液分布器を充填物のすぐ上に置き、分布器と充填層頂間の吸収は防いだ、充填層底部から液面間に長さ 0.1 m の整流器と更に空隙 0.03 m が有り此の間の吸収と、更に液の流下および滴下に伴う液面の動揺、気体の巻込み等により End effect の高い値が得られたものと思われる。また End effect は塔径により変化する事が知れた。



第6図 End effect

**d. 層高の影響:**  $k_L a$  が端効果以外に充填層高に影響ある点に関して、先に藤田氏<sup>9)</sup>, van Krevelen<sup>9)</sup>, 織田氏等<sup>22)</sup>により指摘されている。すなわち藤田氏は若し Higbie<sup>23)</sup>の非常拡散の理論を充填塔にあてはめ、時間を塔の長さを書きかえれば、むしろ当然の結果として  $k_L$  が  $z$  の 0.5 乗に逆比例することになる点に着目し、丹羽氏<sup>24)</sup>, 栗原氏, 脇田氏<sup>19)</sup>と共に塔高

$z=0.15\sim 1.13$  m に於いて End effect の外に  $k_L a$  が  $z^{0.19}$  に逆比例する事を、更に工業的装置で  $H_{O_2}$  が  $z^{0.2}$  に比例する事を認めた。またその結果は  $\pm 20\%$  の範囲内で Sherwood-Holloway のデータと極めてよい一致を示している<sup>10)</sup>。此の事実は液境膜が層流の時は特に影響が大である事は言うまでもなく、また管内の伝熱を考えても定性的に合致する。一方 van Krevelen も  $z^{1/3}$  に逆比例する事を認めて居り、此の層高の影響は実際の 20~25 m という工業的吸収塔では注目に値するものとして著者らも此の点を追及した。結果は第 7 図に示す如く層高の高い部分で  $(Re)_L$  の大なる場合は前者の研究値に略々合致するも、層高の低い部分に対して約 0.6 乗に逆比例するという意外な結果が表われた。之は液分布器の影響(第 3 図に示す如く Nozzle と Open の 2 種の相違—i.e. nozzle は open の 1/2.16 の値—)もあるがこれ以外に層高の変化の折に外塔をそのままにし層高のみリングを除去して減少し、分布器は層頂迄延長して液を落下させた点、あるいは End effect が特に層高が低い場合に大きく影響を与えた点に原因するものと思われる。而し乍ら八田氏の指摘の如く指数のみならず層高の影響を理論的追究と今後信用あるデータの蓄積のみが層高の影響の解決の道に他ならない。



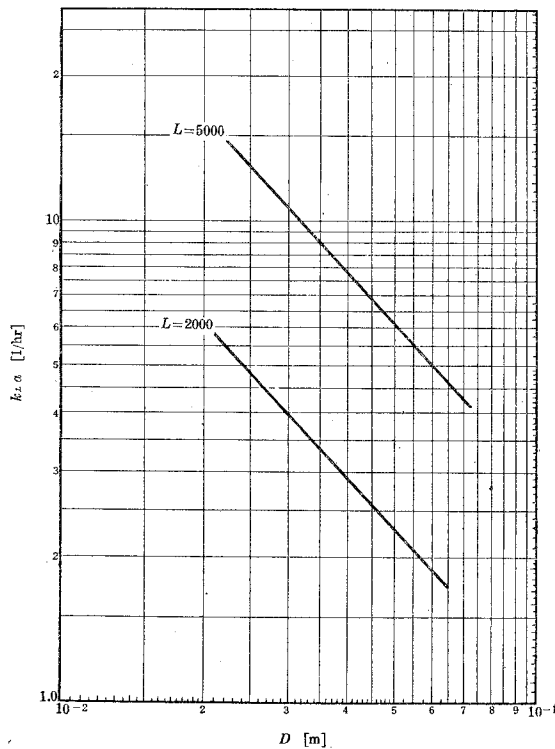
第 7 図  $k_L a$  対  $z$

e. 塔径の影響:  $k_L a$  に対する塔径の影響については余り文献が見当らず, 溢汪現象等で僅かにしらべられている。最近矢木氏等<sup>25)</sup>がアルカリ溶液による管内炭酸ガスの吸収に於て

$$K_G a = C d^{-0.9}$$

と単位容積当りの有効接触面積が管径の 0.9 乗に逆比例して変化することを示した。著者らは  $k_L a$  に対する管径の影響として管径を 0.024~0.067 m について追究した結果第 8 図の如く管径が大になるにつれて  $k_L a$  が減少し, 次の関係式が得られた。

$$k_L a = C d^{-1.06}$$



第 8 図  $k_L a$  対  $D$

ただし, 図には分布器は open のみのものを示し, nozzle は補正係数 2.16 を乗じたものを, 又層高は凡て 0.8 m の数値のみを採用した。すなわち, 前述の矢木氏の結果と考え合わせて, アルカリ溶液による炭酸ガスの吸収で  $K_G a$  は略々  $k_L a$  に相等しいオーダーを示す点より,  $k_L a$  は管径に略々逆比例すると言い事が推定せられる。

f. 実験式の導出: Sherwood 等<sup>10)</sup>はローディング速度以下のガス流速範囲で各種溶質ガス, 各種充填物に対する  $k_L a$  データを次の有次元の式で整理している。

$$\frac{k_L a}{D_L} = a \left( \frac{L}{\mu_L} \right)^{1-n} \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{0.5}$$

著者らも同一溶質ガスを用いて同一温度条件下で行った実験に対して第3表の数値に End effect の補正を行つた後、15°C に換算、更に層高を 0.3 m に換算して  $L=3000$  附近で屈折する 2 本の直線群であらわされた。すなわち

$L > 3000$

$$\frac{k_L a}{D_L} = 54.00 \left( \frac{L}{\mu_L} \right)^{0.82} \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{0.5}$$

$L < 3000$

$$\frac{k_L a}{D_L} = 310 \left( \frac{L}{\mu_L} \right)^{1.22} \left( \frac{\mu_L}{\rho_L D_L} \right)^{0.5}$$

しかし前述の Sherwood-Holloway の式は有次元である故、Fujita<sup>11)</sup>、van Krevelen<sup>2)</sup> 等は無次元の式に改良すべく努力した結果次式を得ている。

Fujita の式

$$Sh/(Sc)^{1/2} = 0.025 \left( \frac{4L}{a\mu_L} \right)^{2/3} \left\{ (\mu_L^2/\rho_L^2 g)^{1/3}/z \right\}^{0.19}$$

van Krevelen の式

$$Sh/(Sc)^{1/3} = 0.05 \left( \frac{D_p}{z} \right)^{1/3} \left( \frac{L}{a\mu_L} \right)^{2/3}$$

しかして上述の 2 式については  $a$  の影響を或る程度許容値をとれば藤田の式がより信頼性がもたれる故著者らは此の 10 mm リングによる結果より次の実験式を求め得た。

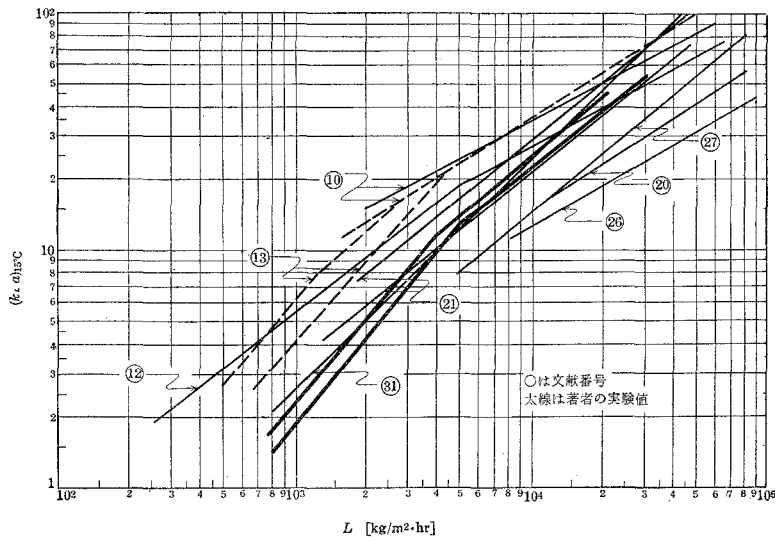
$$Sh/(Sc)_L^{1/2} = 0.025 \left( \frac{4L}{a\mu_L} \right)^{2/3} \left\{ \left( \frac{\rho_L}{\mu_L g} \right)^{1/3} / z \right\}^{0.2-0.6}$$

上記の計算に使用した  $D_L$ 、 $\mu_L$ 、 $\rho_L$  はいずれも I.C.T の値またわ水に対する値を用いた。

g. 既往文献との比較： 第9図、第4表に第4図にしめした場合と同じく Sherwood-Holloway の式の検討に対する著者の結果の外に、既往の研究者達の結果も示し、又文献値との比較とそれらの実験条件を示した。 $k_L a$  はすべて(2)式により更に(4)式で 15°C に換算し、又  $O_2$  に対するデータは  $CO_2$  になおしたものである。

著者等のデータは液流速の高い範囲では八田氏等<sup>21)</sup>の直線と同一の傾斜を有するが約 17% 低く、又  $L$  の低い所では Deed 等<sup>13)</sup>の 1/2" リングに対するデータと同様  $k_L a$  の急激な減少を示すが約 50% 近い値を示している。

ただ精密な比較検討は実験装置、特に液分布器が類似して居らねば如何に実験条件を相似にしても困難であり、また層高、管径の影響の理論的追究の困難な現段階に於いての比較も意



第 9 図  $k_{La}$  对  $L$

第 4 表

	Authors	Experimental formulas Converted into 15°C†	Liq. Rate Range (m/hr)	Experimental Method	Temp Range (°C)	Packing used	Tower $D \times Z$ (mm)
1	Sherwood Holloway	$k_{La} = 10.0L^{0.50}$	7~50	CO <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O abs. & desorp.	15	3/8" Ceramic ring	52×305
2	Sherwood Holloway					1/2" Ceramic ring	
3	Deeds Drew					1/2" Ceramic ring	
4	Cautelo Simmors	$k_{La} = 3.55L^{0.56}$	10~70	10~25% CO <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O abs.	7~9	Glass	91×860
5	Hikita	$k_{La} = 5.07L^{0.54}$	6~60	CO <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O abs.	7~12	10 mm Alass	50×(100-330)
6	Simmors Osborn	$k_{La} = 2.39L^{0.74}$	15~40	8~25% CO <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O abs.	7~18	18 mm Glass sphere	-×815
7	Sherwood Ruckmann	$k_{La} = 1.84L^{0.88}$	4~45	CO <sub>2</sub> -HO <sub>2</sub> desorp.	17~20	Carbon ring	250×1400
8	Hatta	$k_{La} = 3.30L^{0.79}$	3~28	98% CO <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O absorp	7~19	10 mm Glass	50×500
8	Hatta	$k_{La} = 4.56L^{0.79}$	3~28	98% C <sub>2</sub> O-H <sub>2</sub> O absorp	7~19	10 mm Glass	50×500
9	Koch	$k_{La} =$					
10	Authors	$k_{La} = 1.82L^{0.82}$	1~22	98% CO <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O absorp	5~25	10 mm Rasching	54×800

義的に疑問視されるが信頼性のあるデータの蓄積は此の後の  $k_{La}$  に及ぼす諸種の函数関係の解明に重要な課題と考えられる。

附記：本研究に対し、終始懇切なご指導を戴いた佐藤久次教授はじめ教室の諸先生、ならびに実験に協力された米沢健次、山貫章三郎両工学士に厚く感謝の意を表する次第であります。

[昭和32年10月日本化学会北海道大会(於 釧路), 昭和34年4月日本化学会年会講演発表の1部]

(昭和34年4月30日受理)

#### 使用記号

$a$ : 有効接觸面積	[m <sup>2</sup> /m <sup>3</sup> ]
$C$ : 水中炭酸ガス濃度	[kg/kg 水]
$D$ : 統 填 塔 径	[m]
$D_G$ : ガス拡散係数	[m <sup>2</sup> /hr]
$D_L$ : 液 拡 散 係 数	[m <sup>2</sup> /hr]
$g$ : 重力加速度	[m/hr <sup>2</sup> ]
$G$ : 単位塔断面積当りのガス質量速度	[kg/m <sup>2</sup> hr]
$L$ : 単位塔断面積当りの液質量速度	[kg/m <sup>2</sup> hr]
$k_{La}$ : 液 境 膜 係 数	[1/hr]
$t$ : 液 温	[°C]
( $Re$ ): レイノルズ数 = $4L/a\mu$	[—]
( $Sc$ ) <sub>L</sub> : シュミット数 = $\mu_L/\rho_L D_L$	[—]
( $Sh$ ): シャーウッド数 = $k_L(\mu_L^2/\rho_L g)/D_L$	[—]
$Z$ : 充 填 塔 層 高	[m]
$\rho$ : 密 度	[kg/m <sup>3</sup> ]
$\mu$ : 粘 度	[kg/m·hr]

1, 2, s は入口, 出口, 飽和を表わす。

#### 文 献

- 1) 八田: 工化, **31**, 869 (1928); **32**, 809 (1929); **35**, 1389 (1932); Tech. Rep. Tohoku Imp. Univ., **10**, 613 (1932).
- 2) van Krevelen & Hofstijzer: Chem. Eng. Progress, **44**, 529 (1948).
- 3) Sherwood & Pigford: Absorption and Extraction 2nd Ed.
- 4) 藤田, 谷本, 土方, 推名, 中根: 化工, **18**, 73 (1954).
- 5) Pigford & Wendel: A. I. Ch. E. J. **4**, 249 (1958).
- 6) Himmelblaw & Babb: A. I. Ch. E. J. **4**, 143 (1958).
- 7) 藤田, 丹羽: 化学工学, **18**, 216 (1954).
- 8) 藤田, 丹羽: 化学機械, **16**, 399 (1952).
- 9) van Krevelen, Hofstijzer & van Hooren: Rec. trav. chim., **66**, 513 (1947).
- 10) Sherwood & Holloway: Trans. Amm. Inst. Chem. Engrs., **36**, 39 (1940).
- 11) 藤田, 早川: 化工, **20**, 113 (1956).



- 12) 疋田, 上山, 西上, 舟橋: 化工, **18**, 63 (1954).
- 13) Deed, Schutz & Drew: I. E. C. **39**, 766 (1947).
- 14) Molstad, Abbeyetc: Trans. Am. Inst. Chem. Engr. **38**, 410 (1942).
- 15) Vivan & Whitney: C. E. P. **43**, 691 (1947).
- 16) 藤田, 佐久間: 化工, **18**, 64 (1954).
- 17) Shulman, Ullrich, Proulx Z. Zimmerman: A. I. C. E. J., **1**, 247, 253, 259 (1955).
- 18) 藤田: 化学機械, **11**, 36 (1947).
- 19) 栗原: 化学機械協会大会講演, 1953年11月.
- 20) Simmons & Osborn: I. E. C, **26**, 529 (1934).
- 21) 八田, 小野寺: 化工, **18**, 484 (1954).
- 22) 織田: 化学機械, **13**, 198 (1949).
- 23) Higbie: T. A. I. C. E., **31**, 365 (1935).
- 24) 丹羽: 東工大卒研究の一部 (1952).
- 25) 矢木, 佐々木, 小野, 森: 化工, **18**, 13 (1954).
- 26) Cantelo & Simmons: I. E. C., **39**, 766 (1947).
- 27) Sherwood-Ruckman: ibd **29**, 282 (1937)
- 28) Stephan & Morris: C. E. P., **44**, 529 (1948).
- 29) Scheibel-Othmer
- 30) 松山: 化工, **14**, 245 (1950).
- 31) Koch, Stuzmann, Blum, Autchings: C. E. P. **45**, 977 (1949).