



室蘭工業大学

学術資源アーカイブ

Muroran Institute of Technology Academic Resources Archive



## 環状路充填層における固液系物質移動

メタデータ	言語: jpn 出版者: 室蘭工業大学 公開日: 2014-07-28 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 秋吉, 亮, 尾本, 行寛, 杉田, 治八郎 メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10258/3713">http://hdl.handle.net/10258/3713</a>

# 環状路充填層における固液系物質移動

秋吉 亮・尾本 行寛・杉田治八郎

## LIQUID PHASE MASS TRANSFER IN PACKED BED OF ANNULUS

Makoto Akiyoshi, Yukihiro Omoto and Jihachiro Sugita

### Abstract

The effect of the wall of packed tower on mass transfer was studied experimentally on dissolution of benzoic acid spheres to water in packed bed of annulus in the range  $1.42 < Re < 183$ .

The results obtained were as follows :

- 1) Void fraction at any height of packed bed of annulus is larger at the near parts to the wall of packed annulus than at the middle of annulus. Near the wall the concentration of the flowing solution was low because of high rate of flow and small interfacial area.
- 2) It was shown from the experimental results that the correlation between  $\epsilon j_M$  and  $Re$  could explain this dissolution phenomenon better than that between  $j_M$  and  $Re$ . Furthermore, by means of correcting property the interfacial area, the relationship between  $\epsilon j_M$  and  $Re$  could be expressed by single equation, regardless of the position in the radius direction of annulus.

### 1. 緒 言

充填層における固液系物質移動は吸着，接触反応，固液抽出，イオン交換など工業的に多く利用されている。従来，この物質移動機構の解明を目的に多くの研究が行なわれているが，その際充填塔管壁部に基づく影響を少なくするために，用いる粒子を粒子径の10倍以上の内径を有する充填塔に充填することが行なわれている。

本研究では充填層での固液系物質移動におよぼす充填塔管壁部の影響を調べる目的で，環状路充填層における安息香酸球状物の溶解実験を通じて得られる物質移動係数，物質移動  $j_M$  因子などから，その影響を調べ，溶解に対する既報の実験式と比較検討した。

### 2. 実 験 方 法

#### 2. 1 実験装置

環状路外管としてアクリル樹脂製の内径 8.0cm，長さ 35.0 cm の管を用いた。内管には外径 4.0, 3.2, 1.6 cm の3種の管とし，外管と内管を同軸に垂直にセットして環状路を設け，試料を充填した。環状路底部には充填物の支持のために多孔板を用い，充填試料の上下には末端効

果の解消と整流のために、試料とほぼ同径のガラス球を高さ5 cm ずつ充填した。

試料として、溶解度が小さい安息香酸を溶融し成型した球状物を使用した。その直径は約0.75と1.14 cmの2種類で、それぞれ500個、200個充填して実験に供した。

実験装置の概略を図1に示した。2基の恒温槽を用い、25°Cに保った供給液(水道水を使用)を環状路底部から送入し、安息香酸球の溶解を行なった。溶解におよぼす管壁の影響の有無を調べるために、環状路に同心円状の仕切板を挿入して3あるいは5に区分し、半径方向の濃度をそれぞれ測定した。仕切板の位置を図2に示した。濃度の測定は試料の充填前後の流路に白金電極を挿入して行ない、得られた電導度差から流動液濃度を求めた。

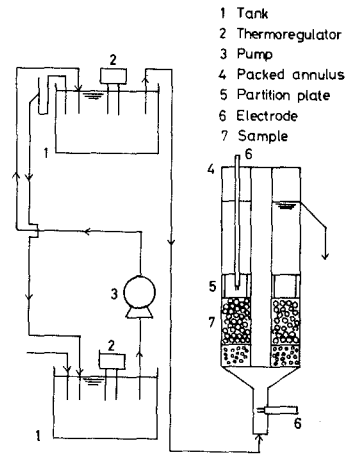


図1 実験装置図

2. 2 実験データの整理法

2. 2. 1 空間率

充填層内の平均空間率 $\bar{\epsilon}$ は次式で表わされる。

$$\bar{\epsilon} = 1 - \frac{n \cdot \pi \cdot d_p^3}{6 \cdot S \cdot h} \tag{1}$$

ここで  $n$ : 充填粒子数,  $d_p$ : 粒子径,  $S$ : 層断面積,  $h$ : 層高である。

本研究ではその解析に環状路充填層内の半径方向各位置における空間率を知る必要があるので、さきに環状路充填層内の空間率の分布について木村<sup>1)</sup>が提出している式を本研究に適用した。

すなわち、管壁の影響を受けない部分の空間率 $\epsilon_0$ は

$$1 - \epsilon_0 = \{ (1 - \bar{\epsilon})(1 - W^2) \} / \{ (1 - 1.12Y)^2 + Y(1.62 - 1.06Y) - W^2(1 + 1.40Z)^2 + W^2 Z(2.03 + 1.65Z) \} \tag{2}$$

ここで、 $W = D_i/D_o$ ,  $Y = d_p/D_o$ ,  $Z = d_p/D_i$ である。

また外管の内壁から0.56  $d_p$ 以内、すなわち外管壁の影響を受けると考えられる部分の空間率 $\epsilon_1$ は

$$1 - \epsilon_1 = 1.25(1 - \epsilon_0) \left( \frac{x}{d_p} \right)^{0.378} \quad x \leq 0.56 d_p \tag{3}$$

また内管の外壁から0.70  $d_p$ 以内、すなわち内管壁の影響を受けると考えられる部分の空間率 $\epsilon_2$ は

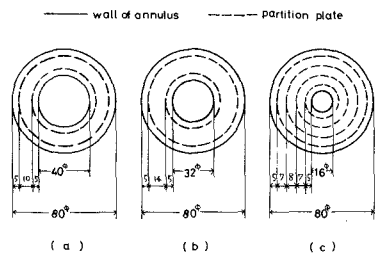


図2 環状路半径方向の区分位置

$$1 - \varepsilon_2 = 1.15(1 - \varepsilon_0) \left( \frac{x'}{d_p} \right)^{0.378} \quad x' \leq 0.70d_p \quad (4)$$

で表示される。

### 2. 2. 2 固液接触表面積

充填層単位体積当りの固液接触表面積 $\bar{a}_p$ は次式で与えられる。

$$\bar{a}_p = \frac{n \cdot \pi \cdot d_p^2}{S \cdot h} \quad (5)$$

式(1), (5)から

$$\bar{a}_p = \frac{6(1 - \bar{\varepsilon})}{d_p} \quad (6)$$

$\bar{\varepsilon}$ を与えると $\bar{a}_p$ は算出できるので、半径方向各区分内の固液接触表面積はそれぞれ次式から求めることができる。

$$\bar{a}_{p0} = \frac{6(1 - \varepsilon_0)}{d_p} \quad (7)$$

$$\bar{a}_{p1} = \frac{6(1 - \varepsilon_1)}{d_p} \quad (8)$$

$$\bar{a}_{p2} = \frac{6(1 - \varepsilon_2)}{d_p} \quad (9)$$

### 2. 2. 3 物質移動係数

充填層任意層高 $dh$ の物質移動を考えると、1) 推進力は粒子を取り囲む流体境膜部分の濃度勾配である、2) 固液接触面における流体は飽和の状態にある、3) 定常状態にある、の仮定のもとで、単位時間当りの物質移動量 $dN$ は次式で与えられる。

$$dN = \bar{k}_L \bar{a}_p S dh (c_s - c) = \bar{u}_f S dc \quad (10)$$

層入口(添字1)および層出口(2)の間で上式を積分して整理すると、 $C_1 = 0$ 故

$$\bar{k}_L = \frac{\bar{u}_f}{\bar{a}_p h} \ln \frac{c_s}{c_s - c_2} \quad (11)$$

### 2. 2. 4 物質移動 $j_M$ 因子

Chilton-Colburn<sup>2)</sup>によると $j_M$ 因子はつぎのように示される。

$$j_M = S_i S_c^{\frac{2}{3}} = \frac{\bar{k}_L}{\bar{u}_f} \left( \frac{\mu}{\rho D} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (12)$$

Williamson<sup>3)</sup>は式(12)の $Sc$ の指数を $2/3$ と $1/2$ の算術平均 $0.58$ を用いて修正 $j_M$ 因子 $j'_M$ を提出している。

$$j'_M = S'_i S_c^{0.58} = \frac{\bar{k}_L}{\bar{u}_f} \left( \frac{\mu}{\rho D} \right)^{0.58} \quad (13)$$

本研究では  $j_M$  因子,  $j'_M$  因子を用いて実験結果を検討した。

### 2. 2. 5 その他の数値

レイノルズ数には粒子基準, 空筒速度を用いた

$$Re = \frac{d_p \bar{u}_f \rho}{\mu} \quad (14)$$

と  $\bar{u}_f$  を  $\varepsilon$  で補正した修正レイノルズ数

$$Re' = \frac{d_p \bar{u}_f \rho}{\varepsilon \mu} \quad (15)$$

を使用した。

拡散係数  $D$  は Steinberger<sup>4)</sup> の 25°C における実測値  $(9.084 \pm 0.028) \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$  を Wilke の式<sup>5)</sup> で温度補正して使用した。粘度, 密度は本研究での層内流動液濃度は極めて希薄なので, 純水の数値<sup>6)</sup> を使用し, 安息香酸溶解度は文献値<sup>6)</sup> を用いた。

## 3. 結果および考察

### 3. 1 環状路半径方向の濃度と空間率分布

内管として外径 1.6 cm の管を挿入した場合の半径方向の濃度と空間率の分布の状態を図 3 に示した。管壁近傍における空間率は 1.0 に漸近し, 管壁から中央部に向かって進むにつれて空間率の値は小さくなり, 中央部で最小となり, 下に凸になることがわかる。

一方濃度分布は空間率の場合とは逆に上に凸となり, 環状路中央部で流動液濃度は最大になり, 中央部から離れるにしたがって低くなり, 管壁近傍では非常に低い。これは, 空間率に基因してそれぞれの部分を通る液量あるいは液体が試料と接触する表面積が異なり, 中央部か

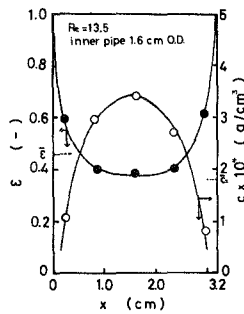


図 3 空間率と濃度分布

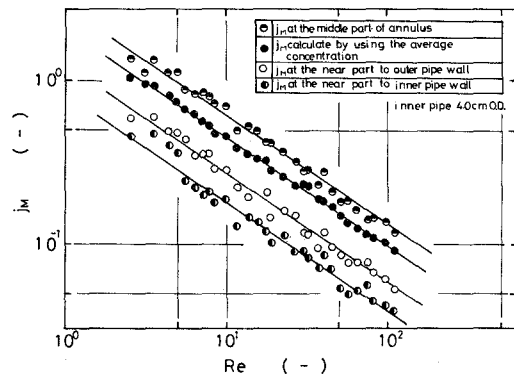


図 4 物質移動  $j_M$  因子におよぼす  $Re$  数の影響

表1 物質移動 $j_M$ 因子と $Re$ 数の相関式

内管径	平均濃度使用の場合	環状路中央部	外管内壁付近	内管外壁付近
4.0 cm	$j_M=2.08 (Re)^{-2/3}$	$j_{M0}=2.80 (Re)^{-2/3}$	$j_{M1}=1.25 (Re)^{-2/3}$	$j_{M2}=0.82 (Re)^{-2/3}$
3.2 cm	$j_M=2.25 (Re)^{-2/3}$	$j_{M0}=2.80 (Re)^{-2/3}$	$j_{M1}=1.28 (Re)^{-2/3}$	$j_{M2}=1.00 (Re)^{-2/3}$
1.6 cm	$j_M=2.00 (Re)^{-2/3}$	$j_{M0}=2.85 (Re)^{-2/3}$	$j_{M1}=1.23 (Re)^{-2/3}$	$j_{M2}=0.98 (Re)^{-2/3}$

ら離れるとともに流量が多くなり、かつ固液接触界面が減少するためと考えられる。挿入する内管径を3.2、4.0 cm と変えた場合にも同様の結果であった。

3. 2 物質移動 $j_M$ 因子と $Re$ 数の関係

内管に外径4.0 cm の管を挿入し、外管内壁、内管外壁の影響を受けやすい部と影響を受けない中央部の3ヶ所における $j_M$ 因子と $Re$ 数の関係を図4に示した。図から、それぞれの部分で $j_M$ の値は異なり、3.1項での濃度の場合と同様に中央部で大きく、管壁に近いと小さく、特に内管壁近傍の $j_M$ 値は小さかった。また塔内平均濃度を用いて算出した $j_M$ は中央部のそれより小さく、管壁部より大きかった。外径の異なる内管を用いた場合にも同様の傾向が認められた。得られた実験式を表1に示した。

表から、中央部、外管壁でそれぞれほぼ同一の実験式で表示されることがわかる。これは外径の異なる内管を挿入しても環状路中央部はもちろん、外管内壁近辺の空間率に変化のないためと考えられる。

以上の結果から、

$$j_M \propto Re^{-2/3} \tag{16}$$

の関係が得られ、Wilson<sup>7)</sup>の得た実験式と比較すると、係数の異なった式が得られた。

3. 3 物質移動係数と流速の関係

式(12)、(16)から

$$\frac{\bar{k}_L}{\bar{u}_f} \left( \frac{\nu}{D} \right)^{2/3} \propto \left( \frac{d_p \cdot \bar{u}_f}{\nu} \right)^{-2/3} \tag{17}$$

が得られ、これより

$$\bar{k}_L \cdot d_p^{2/3} \propto \bar{u}_f^{1/3} \cdot D^{2/3} \cdot \nu^0 \tag{18}$$

となる。

そこで粒子径を考慮した $\bar{k}_L \cdot d_p^{2/3}$ の関係を図5に示した。図から、次の実験式(19)が得られ、 $\bar{k}_L$ は $\bar{u}_f^{1/3}$ に比例することがわかる。

$$\bar{k}_L \cdot d_p^{2/3} = 9.0 \times 10^{-4} \cdot \bar{u}_f \tag{19}$$

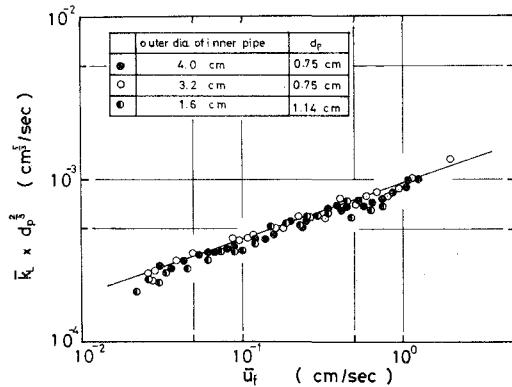


図5  $\bar{k}_L \cdot d_p^{2/3}$  と  $\bar{u}_f$  の関係

5. 4  $Sh$  数と  $Re$  数,  $Sc$  数の相関式

$j_M$  因子と  $Re$  数との相関とともによく試みられる  $Sh$  数と  $Re$  数,  $Sc$  数との相関を調べた。式 (16) から

$$Sh \propto Sc^{1/3} \cdot Re^{1/3} \quad (20)$$

が得られ, この式から  $Sh$  数は  $Re$  数の  $1/3$  乗に比例することが示唆されるが, このことを実験から確かめるために図 6 に  $Sh$  数と  $Re$  数をプロットすると, 挿入する内管径, 充填粒子径によらず, 次の式が得られ, 本実験から  $Sh$  数が  $Re$  数の  $1/3$  乗に比例することが確かめられた。

$$Sh = 20 Re^{1/3} \quad (21)$$

同じように

$$Sh = 2.0 Sc^{1/3} \cdot Re^{1/3} \quad (22)$$

3. 5 他の整理法との比較

3. 5. 1 Williamson<sup>3)</sup>の整理法

溶解実験の結果をよく整理できるとした Williamson の修正  $j_M$  因子と修正  $Re$  数を用いて, 整理し得られた実験式を表 2 に示す。

表2 修正  $j_M$  因子と修正  $Re$  数との相関式

内管径	平均濃度使用の場合	環状路中央部	外管内壁付近	内管外壁付近
4.0 cm	$j_M = 1.95 (Re)^{-0.66}$	$j_{M0} = 3.10 (Re)^{-0.66}$	$j_{M1} = 1.05 (Re)^{-0.66}$	$j_{M2} = 0.68 (Re)^{-0.66}$
3.2 cm	$j_M = 2.10 (Re)^{-0.66}$	$j_{M0} = 3.00 (Re)^{-0.66}$	$j_{M1} = 1.22 (Re)^{-0.66}$	$j_{M2} = 0.90 (Re)^{-0.66}$
1.6 cm	$j_M = 1.45 (Re)^{-0.66}$	$j_{M0} = 3.00 (Re)^{-0.66}$	$j_{M1} = 0.96 (Re)^{-0.66}$	$j_{M2} = 0.84 (Re)^{-0.66}$

5. 5. 2 Wilson<sup>7)</sup>の整理法

同様に溶解実験の結果を空間率を用いて  $j_M$  因子を補正した Wilson の整理法を用い,  $Re$  数と相関した結果を表 3 に示す。

表3  $\epsilon j_M$  と  $Re$  数との相関式

内管径	平均濃度使用の場合	環状路中央部	外管内壁付近	内管外壁付近
4.0 cm	$\epsilon j_M = 0.95 (Re)^{-2/3}$	$\epsilon_0 j_{M0} = 1.11 (Re)^{-2/3}$	$\epsilon_1 j_{M1} = 0.66 (Re)^{-2/3}$	$\epsilon_2 j_{M2} = 0.47 (Re)^{-2/3}$
3.2 cm	$\epsilon j_M = 1.00 (Re)^{-2/3}$	$\epsilon_0 j_{M0} = 1.10 (Re)^{-2/3}$	$\epsilon_1 j_{M1} = 0.70 (Re)^{-2/3}$	$\epsilon_2 j_{M2} = 0.58 (Re)^{-2/3}$
1.6 cm	$\epsilon j_M = 0.86 (Re)^{-2/3}$	$\epsilon_0 j_{M0} = 1.10 (Re)^{-2/3}$	$\epsilon_1 j_{M1} = 0.70 (Re)^{-2/3}$	$\epsilon_2 j_{M2} = 0.64 (Re)^{-2/3}$

以上 2 つの整理法で溶解実験の結果の整理を試みたところ, 内管径の異なった管を挿入しても環状路中央部, 外管内壁部はそれぞれ同一の実験式で表示することができる。Wilson の方法

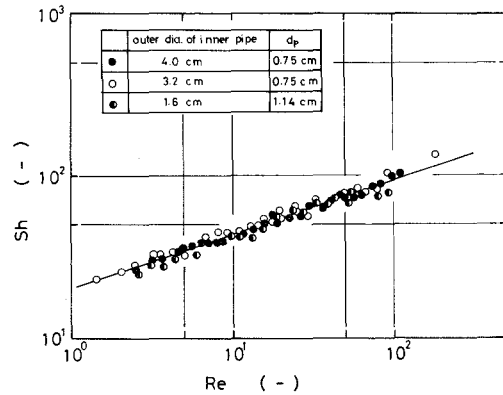


図 6  $Sh$  数と  $Re$  数との関係

で整理した中央部の実験式は Wilson の実験式  $\epsilon j_M = 1.09 Re^{-2/3}$  とよい一致を示した。しかし依然として管壁の影響が認められ、半径方向各位置で得られる実験式を一本化することができなかった。しかしながら Wilson の整理法はこれまでの整理法、 $j_M$  因子- $Re$  数、 $j_M$  因子- $Re$  数の場合よりそれぞれの式が近似し、各区分を同一の実験式で整理する方法としてかなりよい整理法と考えられる。

### 3. 6 $\bar{a}_p$ の補正

3. 5 項で Wilson の整理法はかなりよい結果を与えることがわかったが、まだ依然として管壁の影響が残り、得られた式の係数から判断すると管壁部でのそれは小さく、物質移動量の少ないことを意味し、これを補正するために用いた  $\bar{a}_p$  の値は実際には更に小さいのではないかと考えられる。

そこで管壁の有無に関係なく、表 3 の実験式を 1 つで表示するために Wilson が溶解実験で得た実験式と同一の式で表示できた中央部を基準にして  $\bar{a}_p$  を外管内壁と内管外壁部で補正する係数を表 4 に示した。これらの係数を  $\bar{a}_p$  に乗じて用いると、環状部の半径方向位置に関係なく、

$$\epsilon j_M'' = 1.10 Re^{-2/3} \quad (23)$$

の唯一本の実験式を得る。

$\bar{a}_p$  は充填層の空間率を補正する意味をもつが、表 4 に示した補正係数は更に管壁の有無による固液接触表面積の減少することを意味していると考えられる。この値が

小さいほど管壁の影響が大きいことを示し、本実験では内管壁の影響が大きいことがいえる。

表4  $\bar{a}_p$  に対する補正係数

内管径	平均濃度使用の場合	外管内壁付近	内管外壁付近
4.0 cm	0.86	0.60	0.42
3.2 cm	0.91	0.64	0.53
1.6 cm	0.78	0.64	0.58

## 4. 結 言

充填層における固液系物質移動に関して管壁部の物質移動に与える影響を調べるために、環状路充填層を利用して、球状安息香酸を水で溶解する実験を  $Re=1.42\sim 183$  の範囲で行ない、次の結果を得た。

- 1) 環状路充填層の空間率は管壁近傍で大きく、中央部は小さい。そのために管壁近傍では中央部に比し、流量が大きく、固液接触表面積が小さく、濃度は低い。
- 2)  $j_M$  因子- $Re$  数の相関で得た実験式は環状路半径方向位置で係数の異なった式が得られ、 $j_M$  因子を  $\epsilon$  で補正した  $\epsilon j_M$  と  $Re$  数の相関では  $j_M$  因子- $Re$  数の場合より係数が接近する。係数の違いは空間率の他に、管壁部での空間率だけで補正しきれない因子があり、空間率から算出した固液接触表面積を更に補正した値で整理し全部を 1 本の式で相関させることができた。

(昭和 55 年 5 月 24 日受理)



## 使用記号

$\bar{a}_p$ : 単位体積当りの固液接触表面積 (cm <sup>-1</sup> )	$D$ : 拡散係数 (cm <sup>2</sup> /sec)	$S$ : 層断面積 (cm <sup>2</sup> )
$\bar{a}_{p0}$ : 環状路中央部単位体積当りの固液接触表面積 (cm <sup>-1</sup> )	$dp$ : 粒子径 (cm)	$Sc$ : シュミット数 (—)
$\bar{a}_{p1}$ : 環状路外管内壁付近単位体積当りの固液接触表面積 (cm <sup>-1</sup> )	$h$ : 充填層高 (cm)	$Sh$ : シャーウッド数 (—)
$\bar{a}_{p2}$ : 環状路内管外壁付近単位体積当りの固液接触表面積 (cm <sup>-1</sup> )	$j_M$ : 物質移動 $j_M$ 因子 (—)	$St'$ : 修正スタントン数 (—)
$c$ : 流体液濃度 (g/cm <sup>3</sup> )	$j_{M0}$ : 環状路中央部の $j_M$ 因子 (—)	$\bar{u}_f$ : 液流速 (cm/sec)
$c_s$ : 安息香酸飽和濃度 (g/cm <sup>3</sup> )	$j_{M1}$ : 外管内壁付近の $j_M$ 因子 (—)	$x$ : 外管内壁からの距離 (cm)
$c_1$ : 送入液濃度 (g/cm <sup>3</sup> )	$j_{M2}$ : 内管外壁付近の $j_M$ 因子 (—)	$x'$ : 内管外壁からの距離 (cm)
$c_2$ : 流動液濃度 (g/cm <sup>3</sup> )	$j_M'$ : 修正物質移動 $j_M$ 因子 (—)	$\bar{\epsilon}$ : 充填層平均空間率 (—)
$D_o$ : 外管内径 (cm)	$\bar{k}_L$ : 物質移動係数 (cm/sec)	$\epsilon_0$ : 環状路中央部の空間率 (—)
$D_i$ : 内管外径 (cm)	$n$ : 充填粒子数 (—)	$\epsilon_1$ : 外管内壁付近の空間率 (—)
	$N$ : 単位時間当りの物質移動量 (g/cm <sup>2</sup> ·sec)	$\epsilon_2$ : 内管外壁付近の空間率 (—)
	$Re$ : レイノルズ数 (—)	$\mu$ : 液粘度 (g/cm·sec)
	$Re'$ : 修正レイノルズ数 (—)	$\rho$ : 密度 (g/cm <sup>3</sup> )
		$\nu$ : 動粘度 (cm <sup>2</sup> /sec)

## 参考文献

- 1) 木村允, 能野一雄, 金田堯徳: 化学工学, **19**, 397 (1955)
- 2) Chilton, T. H. and Colburn, A. P.: Ind. Eng. Chem., **26**, 1183 (1934)
- 3) Williamson, J. E., Bazaire, K. E. and Geankoplis, C. J.: Ind. Eng. Chem. Fundls. **2**, 126 (1963)
- 4) Steinberger, R. L. and Treybal, R. E.: A. I. Ch. E. Journal, **6**, 227 (1960)
- 5) Wilke, C. R.: Chem. Eng. Progr., **45**, 218 (1949)
- 6) 日本化学会編: 化学便覧 (1975)
- 7) Wilson, E. J. and Geankoplis; Ind. Eng. Chem. Fundls., **5**, 9 (1966)