液流動層の管軸方向乱流拡散係数について*

若 尾 法 昭**・大 島 亮***
矢 木 栄**

1. 緒 言

装置内を流れる流体は何らかの程度で流体混合を伴っていると考えられる。混合の程度はある種の撹拌槽のように、ほとんど完全混合とみなされるようなものもある、またピストン流れに近いようなものもある。

流通系反応装置における流体混合の問題は、滞留履歴函数、あるいは反応推進力に關係するから反応完結率を知る上にきわめて重要であるが、以前は研究が比較的乏しく、最近になって漸く均相系や異相系の各種反応装置（充填層、流動層、撹拌槽）の混合特性が研究されるようになった。

混合特性は一般に、ピストン流れからの偏倚を示すものとして乱流拡散係数で定量的表示が試みられる。すなわち、流れに添加物質を加えるなどの実験方法から、装置内では流速を均一と仮定し、添加物質の輸送が流れによるものと乱流拡散によるものとの和として、拡散係数の数算出あるいはその大きさの推定が行われる。

流動層で乱流拡散を測定したものには、液体流動層の Wilhelm ら、気体流動層の Gilliland らの研究がある。Wilhelm らはガラス球流動層で水を流体とし、メチレンブルー染料をトレーサ物質として層内中心軸上の一点より定常的に注入して下流域における濃度分布を実測し、液流動層は等方性の乱流場であるとして乱流拡散係数を求めた。Gilliland らは気固系流動層でヘリウムのバックミクシング²⁾や、層入口の流入流体に階段函数的な濃度変化を与えて、出口濃度の時間的变化、すなわち残余濃度曲線を求めて³⁾、混合特性の検討を行った。

本研究は、 β -ナフトール粒子の溶解を水流動層で行わせ、層内濃度勾配の実測と、理論濃度との比較から管軸方向の乱流拡散係数を求めたものである。

2. 乱流拡散係数と濃度勾配との理論的關係

流動層で粒子から流体へ物質移動が行われるとき、層内の乱流拡散を考慮して濃度勾配の理論解を求めよう。まずつぎの仮定を設ける。

(1) 粒子表面に接する流体は飽和濃度 C_s であり、溶解速度の抵抗は粒子を包む境界膜内の拡散である。

(2) 管断面内では流速、および流体濃度は均一である。

(3) 粒子比表面積は層内では場所的に変化しない。

(4) 管軸方向の乱流拡散係数 E_z は層内均一である。

以上の仮定をもとに、微小層高 dl について定常状態における物質収支をとればつぎのごとくなる。

$$u_0 \frac{dC}{dl} = E_z \frac{d^2C}{dl^2} + k_p a (C_s - C) \quad (1)$$

ここで u_0 は空管基準の流速、 E_z は管断面積基準で定義した管軸方向の乱流拡散係数、 k_p は粒子流体間の物質移動係数である。

層内の濃度 C が C_s に比してきわめて小であれば、(1) 式の右辺第 2 項で $C_s - C = C_s$ とおき、つぎのごとく近似される。

$$u_0 \frac{dC}{dl} = E_z \frac{d^2C}{dl^2} + k_p a C_s \quad (1')$$

すなわち、溶解は厳密には濃度に関し一次反応と相似であるが、濃度の小なる範囲では零次反応に相似として取扱いうるであろう。

(1') 式を解くに当って、層入口と出口における境界条件が必要である。層入口では微小層高の物質収支から、層出口では濃度の連続を仮定すれば、それぞれつぎの式が妥当と考えられる^{1,6-9)}。

流入流体の濃度が零であれば

$$\text{層入口 } l=0, \quad u_0 C = E_z (dC/dl) \quad (2)$$

$$\text{層出口 } l=L, \quad dC/dl=0 \quad (3)$$

(1') 式を境界条件 (2), (3) 式で解けば⁹⁾、

流出流体の濃度 C_L については $C_L = k_p a L C_s / u_0$

層内任意の点 $\eta \equiv l/L$ における濃度 C_η は

$$\frac{C_\eta}{C_L} = \eta + \frac{E_z}{u_0 L} \left[1 - e^{-\frac{u_0 L}{E_z} (1-\eta)} \right] \quad (4)$$

となり、層出口濃度のほかに、層内濃度がわかれば、(4) 式から E_z を算出することができる。しかし、以上の関係式は層内濃度が飽和濃度に比してきわめて小さい範囲にしか適用し得ないことはもちろんである。

3. 装置と実験方法

実験装置の概略を Fig. 1 に示す。流動管は内径 52.1 mm のガラス管で、最下部には流動層入口の流れを整流

* 昭和 33 年 7 月 29 日受理

** 東京大学工学部

*** 現在、住友化学工業株式会社

Fig. 1 Skeletal diagram of experimental unit

するために固定層部分を設けた。固定層は粒径4mmのガラス球を約5cmの高さに充填し、粒子の流動化を防ぐために層上面を金網で抑える。流動層の粒子支持には金網(タイラー80メッシュ程度)を用いた。流体は水道水でヘッドタンクから流量を適当に調節して固定層整流部の下に供給する。水は固定層を通過したのち、充填物のない空管部分(約10cm)を流れて、 β -ナフトール粒子の流動層に入り、粒子の溶解によ

る粒径の変化は無視小であった。溶解度および拡散係数については別報⁷⁾と同じである。

なお、粒子はあらかじめ流動層で水銀にかけ、大きさを揃えて使用したから、流動層高は安定しており、観察によれば層内の粒子密度も比較的均一とみなされた。

4. 実験範囲

粒子形状：円筒
 粒子代表径 $D_p = 6.6 \sim 7.6 \text{ mm}$
 粒子比重： 1.52 g/cm^3
 粒子数：1,200~1,400コ
 管径 $D_T = 5.21 \text{ cm}$
 流動層高 $L = 26 \sim 81 \text{ cm}$
 空間率 $\epsilon = 0.65 \sim 0.90$
 流速 $u_0 = 4.9 \sim 9.6 \text{ cm/sec}$
 レイノルズ数 $Re_p = 260 \sim 490$

出口濃度は飽和濃度の5%以下、すなわち濃度勾配の理論解を得るに当たって基礎式を(1')式とすることが十分に許される範囲である。

5. 実験結果

管軸方向に測定した濃度実測値はまず滑らかな曲線で代表し、曲線上の値から(4)式を用い、 $l/L = \eta = 1/4, 1/2, 3/4$ の各三点で E_s の値を算出した。実測濃度および $Pe \equiv D_p u_0 / E_s$ の算出値をTable 1に示す。各点における E_s は一般にやや異なる値(最大で約2倍)が得られたが、層高による系統的な影響はみられない。充填層でも濃度勾配を実測したが、これはほとんど直線であって、数量的な値を算出することはできないが、充填層の E_s は流動層よりもかなり小さいことがわかる。

って濃度を得る。流動層を出たところで水温を測定し、溶解液は塔上部の側管から排出する。

流動層部分では、約5cm間隔で管壁に設けたタップを通して層内に外径約1mmの注射針を挿入し、定常状態になってから管内の液をきわめて少量ずつ時間をかけて採取し、濃度を測定する。分析は紫外部の分光比色計による⁷⁾。

使用粒子は、直径と高さのほぼ等しく成型した円筒型 β -ナフトールである。粒子代表径 D_p としては表面積の等しい球の直径をとる。

溶解度はきわめて小さいから、一回の実験前後におけ

Table 1 Mass transfer from particles to water in fluidized beds

Observed Data										
Run No.	Particle Dia. D_p cm	No. of Particles	Water Velocity u_0 cm/sec	Temp. in Bed $^{\circ}\text{C}$	Bed Height cm	Conc. of β -Naphthol, gmol/l				
						C_{η} along Bed Height	Exit Conc.		Satur. Conc.	
						$\eta = 1/4$	1/2	3/4	C_L	C_s
						$\cdot 10^{-4}$	$\cdot 10^{-4}$	$\cdot 10^{-4}$	$\cdot 10^{-4}$	$\cdot 10^{-4}$
(L)-1	0.733	1157	4.93	8.2	26	0.44	0.69	0.91	1.07	26.6
2	0.720	1157	6.05	8.3	31	0.33	0.56	0.76	0.88	26.7
3	0.761	1410	7.80	7.4	56	0.29	0.50	0.66	0.725	25.5
4	0.658	1206	9.26	7.5	56	0.21	0.32	0.40	0.463	25.6
5	0.697	1250	9.61	8.6	81	0.17	0.30	0.41	0.500	27.1
Derived Results										
Run No.	Reynolds Number Re_p ($D_p u_0 \rho / \mu$)	Frac. Void ϵ	Peclet No. $Pe = D_p u_0 / E_s$							
			$\eta = 1/4$	1/2	3/4					
(L)-1	262	0.649	0.17	0.19	0.25					
2	317	0.720	0.18	0.16	0.17					
3	420	0.777	0.091	0.065	0.053					
4	433	0.866	0.056	0.055	0.087					
5	491	0.895	0.095	0.084	0.12

Fig. 2 Variation of axial Peclet number during fluidization in water of β -naphthol cylindrical particles

Fig. 3 Plot of $E_z/\mu/\rho$ against Re_p

Fig. 2 には $Pe = D_p u_0 / E_z$ と空間率 ϵ との関係を示す。図中の点に矢印をもたせてあるのは、算出した E_z の範囲に対応するものである。なお本図では McHenry ら⁵⁾ に従い、充填層は $Pe \approx 2$ であるとして、流動化の程度の低い範囲を点線で推定した。 Pe は流動化とともに減少するが、約 0.07 の最低値を経ると、こんどは増加する傾向がみられる。また $E_z/\mu/\rho$ と Re_p との関係は Fig. 3 に示すごとくで、本実験系では E_z の最大値は約 $70 \text{ cm}^2/\text{sec}$ であることがみとめられた。

6. 考 察

Wilhelm ら⁴⁾ はガラス球の水流動層で、染料を点源から拡散せしめ乱流拡散係数を求めたが、彼らの得た Pe 値は本実験結果より 10 倍以上も大きい。乱流拡散は使用粒子や実験装置特に管内の流れの状態によって異なるから、こうした相異にもよろうが、Wilhelm らの得た拡散係数は層内半径方向またはこれに近いものであると考えられる。

観察によれば空間率が 0.9 程度までは層内の粒子密度

は、ほぼ平均しているとみなしうる状態であったが、粒子の運動状態から層内の流れは管断面内で均一ではなく部分的に速いところと遅いところがあること、および流れの速い吹き抜けの存在することがみとめられた。吹き抜け部分はピストン流れに近い状態と考えられるが、平均滞留時間よりも短い時間で層を排出する。一方、吹き抜けの存在することは平均滞留時間以上の滞留を行う流体部分のあることを示し、全体として層内の流れをピストン流れからかなり偏倚せしめ、 E_z を大きくしていると考えられる。流動化が進むに従って吹き抜けが大となるために E_z は大きくなるが、さらに流動化が進んで空間率がかなり増加すれば、層内の流れは空管内流れに近くなり E_z が減少するものと考えられる。

Notation

- a : specific surface of particles in bed [cm^{-1}]
 - C : concentration [gmol/cm^3]
 - C_L : concentration of effluent fluid [gmol/cm^3]
 - C_s : saturated concentration [gmol/cm^3]
 - D_p : particle diameter [cm]
 - D_T : tube diameter [cm]
 - E_z : turbulent diffusion coefficient in axial direction, based on bed cross section [cm^2/sec]
 - k_p : particle to fluid mass transfer coefficient [cm/sec]
 - l : axial distance variable [cm]
 - L : bed height [cm]
 - Pe : axial Peclet number $\equiv D_p u_0 / E_z$ [—]
 - Re_p : Reynolds number $\equiv D_p u_0 \rho / \mu$ [—]
 - u_0 : superficial fluid velocity based on empty tube [cm/sec]
 - ϵ : fractional void in bed [—]
 - μ : viscosity of fluid [$\text{g}/\text{cm} \cdot \text{sec}$]
 - ρ : density of fluid [g/cm^3]
- Subscripts
- $\eta \equiv l/L$

Literature cited

- 1) Danckwerts, P. V. : *Chem. Eng. Sci.*, 2, 1 (1953)
- 2) Gilliland, E. R., and E. A. Mason : *Ind. Eng. Chem.*, 41, 1191 (1949)
- 3) Gilliland, E. R., and E. A. Mason : *Ind. Eng. Chem.*, 44, 218 (1952)
- 4) Hanratty, T. J., G. Latinen, and R. H. Wilhelm : *A. I. Ch. E. Journal*, 2, 372 (1956)
- 5) McHenry, Jr., K. W., and R. H. Wilhelm : *A. I. Ch. E. Journal*, 3, 83 (1957)
- 6) Otake, T., and E. Kunugita : *Chem. Eng. (Japan)*, 22, 144 (1958)

- 7) Wakao, N., T. Oshima, and S. Yagi: *Chem. Eng. (Japan)*, **22**, 780 (1958)
8) Yagi, S., Y. Kato, and T. Koizumi: *Chem. Eng.*

- (*Japan*), Meeting at Tokyo, Apr., 1955.
9) Yagi, S., and T. Miyauchi: *Chem. Eng. (Japan)*, **19**, 507 (1955)

Studies on Axial Turbulent Diffusion Coefficient in Water-Fluidized Beds

Noriaki Wakao,* Takashi Oshima** and Sakae Yagi*

The mixing characteristics of the fluid flowing through reactors are industrially important for the purpose of designing reactors and estimating the yield of the product. Recently several studies have been made on the mixing characteristics of the homogeneous and heterogeneous reactors. These mixing characteristics usually cover the field of turbulent diffusion whose coefficient is obtained on the assumption that the turbulent mass diffusion is superimposed on the convective flow with the uniform velocity.

Studies on fluid mixing in the fluidized bed were made by Wilhelm et al for the liquid-solid system and by Gilliland et al for the gas-solid system. Wilhelm et al¹⁾ measured the turbulent diffusion coefficient by measuring the spreading of the methylene blue dye from a point source in water-fluidized bed of glass beads. Gilliland et al carried out the diffusion experiment on helium gas from a point source²⁾, and employed the technique of the residence time curve³⁾ for the fluidized bed of gas-solid system.

The present authors have obtained the axial turbulent diffusion coefficients by measuring axial concentration gradients in the water-fluidized beds of β -naphthol cylindrical particles.

When the concentration in the bed is very small as compared with the saturation concentration, the dissolution rate approximates to the zero-order reaction as expressed by Equation (1'). By using the boundary conditions at the inlet and outlet of the bed, that is by using Equations (2) and (3), Equation (4) can be derived from Equation (1').

The experimental apparatus used for this work is shown in Figure 1. The inside diameter of the column is 52.1 mm. City water is used as the fluid. The water, before entering the fluidized bed, passes through the calming section of fixed bed packed with glass beads. The water in the fluidized bed is slowly taken out by means of the injectors thrust along the tube wall at intervals of 5 cm. The concentration of this water is measured by the spectrophotometer at the wave length of 2,735 Å and 2,850 Å.

From the measured concentration gradients, the axial diffusion coefficient E_z is calculated with the help of Equation (4) at three points: $\eta \equiv l/L = 1/4, 1/2, 3/4$.

The results derived are presented in Table I, Figures 2 and 3. Figure 2 shows the relative axial Peclet number ($Pe = D_p u_0 / E_z$) plotted against fractional void ϵ , and the relative Pe vs. Re_p is shown in Figure 3. From these figures we know that the turbulent diffusion coefficient E_z increases with the increase of fractional void and reaches the maximum value of about 70 cm²/sec in this system.

* University of Tokyo, Department of Chemical Engineering

** Sumitomo Chem. Ind. Co., Ltd.

* * * *