Gas-Liquid Contact in a Gas-Liquid-Solid Fluidized Bed*

Yasuo Kato**

Experiments were conducted on the critical gas velocity for complete fluidization of solid particles and the rate of oxygen absorption by aqueous sodium sulfite solution containing cupric ions as catalyst in a gas-liquid-solid fluidized bed.

The data of critical gas velocity, u_{CF} , above which solid particles were completely fluidized, were correlated as a function of the terminal velocity, initial bed height, diameter and density of solid particle and the liquid physical properties.

Two different regions were found in the investigation of oxygen absorption rates. At low gas velocities the rate of oxygen absorption is a function of gas velocity, particle size, initial bed height of solid particles and density difference between solid and liquid. At high gas velocities the rate is not a function of the above variables. The critical gas velocity, u_{CM} , above which the rate of oxygen absorption becomes nearly constant, independently of the gas velocity, can be expressed by means of two empirical equations, one for $u_{CM} \geq u_{CF}$ and another for $u_{CM} < u_{CF}$.

1. 緒 言

気液固系流動層に関しては筆者の研究発表^{1,2)}後、酒井³⁾の流動現象についての研究と栗原ら⁴⁾の多孔板による水-水素間の接触交換反応についての研究などが発表された。

筆者³⁾は先に気液流動層における亜硫酸ソーダ水溶液の空気酸化速度を測定して、総括吸収係数の値を得た。

そこで、本研究においては、固体粒子-亜硫酸ソーダ水溶液-空気系について実験して、固体粒子の浮遊状態、ガスのホールドアップならびに総括吸収容量係数などと空気流速、粒子の大きさ、粒子層の厚さおよび粒子と液との密度差などとの関係を調べ、さらに気液接触面積の値について検討した。

2. 実験装置および方法

吸収部は内径 60mmφ、高さ 600mm のガラス管で、これをフランジにより空気吹きこみ部に固定した。空気吹きこみ板には市販のガラスフィルタ G1 (外径 65

mm、厚さ 5mm) の表面を砥石で平らにしたものを用いた。

操作方法は、まず吸収部に一定量の固体粒子を入れ、つぎに空気を少し吹きこみながら (溶液が落ちないように) 一定量の亜硫酸ソーダ水溶液を入れる。それから、空気を止めて、試料を採る。つぎに一定流量の空気をすみやかにガラスフィルタを通して懸濁液中へ吹きこむ。一定時間通気したら空気を止めて、試料を採る。

試料の分析は沃度滴定法で行ない、亜硫酸ソーダの濃度変化量から酸素の吸収量を求めた。

また、吸収実験中に流動状態の観察と流動高さの測定を行なった。

固体粒子には、粒径 0.295~0.246mm, 0.175~0.147mm, 0.147~0.104mm, 0.104~0.074mm のガラス球 4 種類と粒径 0.175~0.147mm, 0.147~0.104mm, 0.104~0.074mm, 0.074~0.038mm の磁鉄鉱粒子 4 種類を使用した。また溶液には 0.2N、亜硫酸ソーダ水溶液を用いた。

3. 実験結果および考察

3.1 固体粒子の浮遊限界空気流速

空気流速が大きくなるにつれて粒子の浮遊量も多くな

* Received on January 29, 1962

昭和 32 年 4 月 3 日化学工学協会春季研究発表会にて発表 (筆者は当時山梨大学工学部)

** 防衛大学校化学教室 Department of Chemistry, Defense Academy, Yokosuka

Fig. 1 Correlation of critical air velocity for the complete fluidization of solid particles

Fig. 2 Effect of u_G , d and H_s on $(1-\phi)$

り、ついには全粒子が浮遊する。このときの空気流速を固体粒子の浮遊限界空気流速 u_{CF} とする。また、最大粒径の固体粒子が溶液中を自由沈降する場合の終末速度を u_m とする。

u_{CF} と諸因子との関係は本実験の結果と先に報告した砂-水-空気系およびガラス球-水-空気系の結果¹⁾ とから Fig. 1 のように整理された。

3.2 ガスのホールドアップ

全流動容積から固体粒子の容積を差し引いた気液流動容積当りのガス容積をガスのホールドアップ $(1-\phi)$ とする。

ガラス球の場合の $(1-\phi)$ と空気流速 u_G 、粒径 d および粒子層の厚さ（無通気時における） H_s との関係は Fig. 2 に示す。 $(1-\phi)$ は u_G の小さい範囲では u_G に比例して大きくなり、 $u_G = 15 \sim 20$ cm/sec のところで極

Fig. 3 Effect of V_L on $(1-\phi)$

Fig. 4 Relation between $(1-\phi)$ and $u_m H_s$

大となっている $(1-\phi)$ の極大値が小さいほどこの値を示す u_G は大きくなっている。また、 $(1-\phi)$ は d が大きいほどまた H_s が大きいほど小さくなっている。しかし、 d が小さくなるにつれて $(1-\phi)$ に及ぼす H_s の影響は次第に少なくなっている。

Fig. 3 は磁鉄鉱粒子の場合の $(1-\phi)$ と u_G , d および液量 V_L との関係を示したもので、 $(1-\phi)$ は $V_L^{-1/3}$ にほぼ比例している。また、 $(1-\phi)$ と u_G , d および H_s との関係は磁鉄鉱粒子の場合もガラス球の場合に類似しているから、 $u_G = 5$ cm/sec における $(1-\phi)$ を縦軸に $u_m H_s$ を横軸にとって図示すると Fig. 4 のような関係が得られた。

3.3 総括吸収容量係数

触媒として硫酸銅を亜硫酸ソーダ水溶液 1 liter 当り 0.001 mol 入れた。

気液流動容積基準の総括吸収容量係数を K_{Ga} と表わす。ここに、 K_G は流動層内の平均酸素分圧差にもとづく総括吸収係数で、また a は単位気液流動容積当りの気液接触面積である。

K_{Ga} と諸因子との関係を Fig. 5~8 に示す。これらの図からわかるように、 K_{Ga} の値が u_G にほぼ比例して

Fig. 5 Effect of d on K_{Ga}

Fig. 8 Effect of V_L on K_{Ga}

Fig. 6 Effect of H_S on K_{Ga}

Fig. 7 Effect of ρ_s on K_{Ga}

Fig. 9 Relation between $(u_{CM}-3.8)$ and u_{CF}

安定な泡沫層を形成するような場合にはある u_G のところで極大となり、 u_G が大きくなるにつれて少しずつ小さくなって u_G が約 15 cm/sec のところ ($(1-\phi)$ が極大となる) で極小となり、それから再び少しずつ大きくなるような傾向はあるが、大略 u_G , d , H_S , $(\rho_s - \rho_L)$ および V_L などに関係なくほぼ一定と見なせる。

K_{Ga} がほぼ一定になるところの限界空気流速を u_{CA} とし、 $(u_{CM}-3.8)$ と u_{CF} との関係を H_S をパラメータとして図示すると Fig. 9 のようになる。 $u_{CM} \geq u_{CF}$ なる範囲では $(u_{CM}-3.8)$ は u_{CF} に比例した $H_S^{0.5}$ に比例している。 $u_{CM} < u_{CF}$ なる範囲では u_{CM} は u_{CF} に関係なくほぼ一定になっている。そこで、縦軸と横軸に、それぞれ、 $(u_{CM}-3.8)/H_S^{0.5}$ と u_{CF} とをとれば Fig. 10 のようになり、次の実験式が得られる。

$$u_{CF} \leq 3.8 / (1 - 0.47 H_S^{0.5}) \quad (1)$$

なる範囲については

大きくなる範囲と u_G にほとんど関係なく大略一定になっている範囲に大別できる。前者の範囲では、 d が大きいほど、 H_S が大きいほどまた粒子の密度と液の密度との差 $(\rho_s - \rho_L)$ が大きいほど、すなわち、 u_{CF} が大きいほど K_{Ga} の値は小さくなっているが、 V_L にはほとんど無関係になっている。後者の範囲では、 K_{Ga} の値は、

Fig. 10 Relation between $(u_{CM}-3.8)/H_s^{0.5}$ and u_{CF}

$$u_{CM} = 3.8 + 0.47 u_{CF} H_s^{0.5} \quad (2)$$

$$u_{CF} \geq 3.8 / (1 - 0.47 H_s^{0.5}) \quad (3)$$

なる範囲については

$$u_{CM}(1 - 0.47 H_s^{0.5}) = 3.8 \quad (4)$$

以上の結果より、気液間の物質移動または反応速度が律速である場合には、(1)式の範囲では(2)式より、また(3)式の範囲では(4)式より最適ガス流速を求めることができる。一方、固体触媒反応または固液間の物質移動速度が律速であるような場合には少なくとも全粒子が浮遊する条件が必要であるから、少なくとも u_{CF} に等しいガス流速が必要である。ところで、 u_{CF} は Fig. 1 より求めることができる。

3・4 気液接触面積に関する一考察

a と $(1-\varphi)$ および平均気泡径 δ との間には次の関係式が成り立つ。

$$a = (6/\delta)(1-\varphi) \quad (5)$$

そこで、まず δ についての観察結果について述べる。 u_G の小さい範囲では気泡はほぼ発生時の大きさを保ちながら液層中を上昇し、この液層の上部に泡沫層を形成する。泡沫層の厚さは u_G が大きくなるにつれて厚くなり、ついには層全体が泡沫層になる。ところで、泡沫層の気泡は層の上部ほど大きくなっているから、 u_G が大きくなるにつれて平均気泡径は少しずつ大きくなり、泡沫層の厚さ最大 ($(1-\varphi)$ が最大) のとき最大になった。さらに u_G が大きくなると攪乱状態になって δ は次第に小さくなった。一方、発生気泡の大きさは d が大きいほど、 H_s が大きいほどまた $(\rho_s - \rho_L)$ が大きいほど、すなわち、残留粒子量が多い場合ほど大きかった。

次に、 a について考察する。泡沫層の少ない範囲では残留粒子量が多い場合ほど δ は大きくまた $(1-\varphi)$ は小さいから、このような条件のもとでは a は小さいものと

考えられる。また、この範囲では δ は u_G が大きくなってもあまり変化しないが、 $(1-\varphi)$ は u_G にほぼ比例して変化しているから、 a は u_G に大体比例して変化するものと考えられる。泡沫層の多い範囲では、 u_G が大きくなるにつれて u_G に対する δ の増加率と u_G に対する $(1-\varphi)$ の増加率とが次第に等しくなり、ついには a が u_G にほとんど関係なくほぼ一定になっているものと考えられる (泡沫層状態範囲では K_G は u_G によってほとんど変化しないと考えられるから)。

以上のような結果と考察から、 a と諸因子との関係は K_{Ga} と諸因子との関係に類似しているものと推測される。そこで、いま K_G の値に気液流動層における亜硫酸ソーダ溶液の空気酸化の実験で得た実験式²⁾

$$K_G = 0.3 \exp\left(-\frac{3400}{RT}\right) \quad [\text{kg-moles/m}^2 \cdot \text{hr} \cdot \text{atm}] \quad (6)$$

が適用できるものとして、 K_{Ga} の実験値と(6)式とから a の値を求めると、 K_{Ga} の値が u_G にほとんど関係なくほぼ一定になっている範囲では $a = 1000 \sim 1100 \text{ m}^2/\text{m}^3$ of $(V_L + V_G)$ となる。したがって、本装置は気液接触面積の大きいものであることがわかった。

また、 K_{Ga} および $(1-\varphi)$ の実験値または K_{Ga}' の実験値と(6)式とから単位液容積当りの気液接触面積 a' の値を求めると、 a' の極大値は $(1-\varphi)$ が極大なところにあり、その最大値は約 $3500 \text{ m}^2/\text{m}^3$ of V_L で、粒子が浮遊し難い場合ほどその値は小さくなる。

4. 結 言

気-液-固系流動層で、亜硫酸ソーダ溶液による酸素の吸収速度を測定した。その結果つぎの知見をえた。

(1) 固体粒子の残留量は、粒径が大きいほど、粒子と液との密度差が大きいほど、また粒子層が厚いほど多いが、空気流速を大きくするとついには全粒子が浮遊する。この浮遊限界空気流速と諸因子との関係を Fig. 1 のように整理した。

(2) ガスのホールドアップは、粒子が大きいほど、粒子と液との密度差が大きいほど、また粒子の量が多いほど小さくなる。

(3) K_{Ga} は、空気流速の小さいところでは空気流速にほぼ比例して大きくなるが、ある空気流速以上になると空気流速にほとんど関係なくほぼ一定になる。この限界空気流速について実験式((1)~(4)式)をえた。

(4) K_G についての実験式(6)式が適用できるものとして、(6)式と K_{Ga} の実験値とから求めた a の値は、 K_{Ga} が空気流速に関係なくほぼ一定な範囲では、大約

$1050 \text{ m}^3/\text{m}^3$ of $(V_L + V_G)$ となる。

Nomenclature

a : contact area of gas-liquid per unit volume of $(V_L + V_G)$ [m^2/m^3 of $(V_L + V_G)$]
 a' : contact area of gas-liquid per unit volume of liquid [m^2/m^3 of V_L]
 D : diameter of column [mm]
 d : diameter of particle [mm]
 H_S : initial height of solid particle layer [cm]
 K_G : over-all absorption coefficient [$\text{kg-moles}/\text{m}^2 \cdot \text{hr} \cdot \text{atm}$]
 K_{Ga} : over-all volumetric absorption coefficient [$\text{kg-moles}/\text{hr} \cdot \text{atm} \cdot \text{m}^3$ of $(V_L + V_G)$]
 K_{Ga}' : over-all volmetric absorption coefficient [$\text{kg-moles}/\text{hr} \cdot \text{atm} \cdot \text{m}^3$ of liquid]
 R : universal gas constant [$\text{cal}/^\circ\text{K} \cdot \text{mole}$]
 T : absolute temperature [$^\circ\text{K}$]
 u_{CF} : critical air velocity, where all particles fluidize [cm/sec]
 u_{CM} : critical air velocity, where the values of

K_{Ga} become nearly constant in the mixed phase of gas-liquid-solid [cm/sec]

u_G : apparent air velocity [cm/sec]

u_m : terminal velocity, where the particle of maximum size falls through the liquid [cm/sec]

V_G : air volume in fluidized bed [m^3]

V_L : liquid volume in fluidized bed [m^3]

δ : diameter of bubble [m]

ρ_L : density of liquid [gr/cc]

ρ_S : density of solid particle [gr/cc]

μ_L : viscosity of liquid [$\text{gr}/\text{cm} \cdot \text{sec}$]

$(1-\phi) = V_G/(V_L + V_G)$: gas holdup [—]

Literature cited

- 1) Kato, Y.: *Reports of the Faculty of Eng., Yamanashi Univ.*, 7, 111 (1956)
- 2) Kato, Y.: the 22nd annual meeting, Soc. of Chem. Engrs. (Japan), Apr., 1957
- 3) Kato, Y. and Morita, S.: the meeting, Soc. of Chem. Engrs. (Japan), Sendai, Oct., 1956
- 4) Kurihara, Y. et al.: the 26th annual meeting, Soc. of Chem. Engrs. (Japan), Apr., 1961
- 5) Sakai, N.: the 25th annual meeting, Soc. of Chem. Engrs. (Japan), Apr., 1960

気泡の直径と吸収容量係数

気泡の直径 δ と液境膜物質移動係数 k_L との関係が Calderbank らの結果 (*Chem. Eng. Sci.*, 16, 39 (1961)) に従うとして、 δ と吸収容量係数 $k_L a$ との関係について検討してみる。

彼らは気泡の自由上昇およびタンク攪拌の場合における k_L の値を δ によって次の三範囲に大別している。

範囲 I ($\delta < 0.6 \text{ mm}$, 気泡が変形しないで球形を保って上昇する範囲): k_L は δ に関係なく一定。

範囲 II ($0.6 \text{ mm} < \delta < 2.5 \text{ mm}$, 過渡範囲): k_L は大略 δ に比例して大きくなる。

範囲 III ($\delta > 2.5 \text{ mm}$, 気泡が絶えず変形しながら上昇する範囲): k_L は δ に関係なく一定。

一方、単位流動容積当りの気液接触面積 a と δ とガスのホールドアップ $(1-\phi)$ との間には次の関係がある。

ある。

$$a = (6/\delta)(1-\phi)$$

したがって、範囲 I および範囲 III では

$$k_L a \propto (1-\phi)/\delta$$

範囲 II では

$$k_L a \propto (1-\phi)$$

なる関係が得られる。

ところで、 $(1-\phi) < 0.4 \sim 0.5$ では、 δ が小さくなるにつれて気泡の上昇速度が小さくなり、同一見かけガス流速における $(1-\phi)$ は大きくなる。

以上を総括すると、 δ を小さくすることは $k_L a$ の値を大きくするために範囲 I および範囲 III では極めて有効であるが、範囲 II では $(1-\phi)$ の増加量しか期待できない。

[観音崎生]