層流域における向流および並流濡壁塔の気相側物質移動

藍 原 和 夫・鶴 川 直 彦*

宝 沢 光 紀・只 木 楨 力

東北大学工学部 化学工学科

緒 言

気液接触反応は排煙脱硫などの工程で最近とみにその重要性を増しつつある。しかしこれらの装置内の物質移動特性はその流動状態が不明確なため、いまだ完全に解明されてはいない。

代表的な気液接触装置である濡壁塔については従来より多くの実験的研究があるが、その大部分は塔内を流れる気体が乱流状態の場合¹⁻⁵⁾で層流状態の場合についてはあまり研究されておらず、特に気相の流動状態に及ぼす流下液膜速度の影響は明らかでない。最近、篠原⁸⁻¹⁰⁾は半径方向の速度成分が無いと仮定して液膜速度をも考慮した気体の速度分布式を導き、それを用いて拡散の基礎方程式を解析的に解いている。しかし気液が向流に接触する場合ならびに並流で液流速が大きい場合には、塔内の気体は液に引きずられて循環運動を起こすので、半径方向の速度成分を無視するわけにはいかない。篠原らはさらに循環流の生ずる場合についても2~3の仮定のもとにモデルを提出し考察を加えているが、より厳密な取り扱いが必要と思われる。

本研究では、濡壁塔を用いて窒素気流中への水の蒸発実験を行う一方、仮定を極力減らして運動方程式と拡散方程式を連立させ、それを数値計算することにより塔内の気相側の速度分布および濃度分布を導き実験値と比較検討した。

1. 実験装置ならびに実験方法

濡壁塔本体の概略を Fig. 1 に示す。塔本体は内径 25.2mm のパイレックス・ガラス管で、濡れ部分の長さは 300mm である。またその上下に 280mm の整流部を設け、気体の出入口には目皿板を置き気体の偏流を防いだ。液体は上方のスリットからしみ出し塔壁を伝って流下した後、下方のスリットから塔外へ排出される。一方気体は向流の場合塔底から塔頂へ、また並流の場合には塔頂から塔底へと流す。

実験装置全体のフローシートを Fig. 2 に示す。ポンプを出た窒素気体は、流量計を経て気化器に入る。気化器は容量 85cc 程度のガラス容器で、周囲をニクロム線で加熱してマイクロフィーダーから供給される水分を蒸発させて、気体を任意の水蒸気濃度にするための装置で

Fig. 1 Wetted-wall column used

C: Glass cock
F: Orifice flow-meter
G: Manometer
M: Micro-feeder
N: Needle valve
O: Overflow pipe
T: Thermometer
W: Wetted-wall column

Fig. 2 Schematic diagram of experimental apparatus

ある。気化器で水蒸気を含んだ気体は、混合器（滞在時間4~10分）を経て濡壁塔本体へと供給される。一方、塔本体へ供給される水は装置の上に置いた恒温槽中にため、流下液膜表面の波立ちを抑えるために0.01 wt%の界面活性剤を含ませた。濡壁塔本体はエアバス中に納め、温度範囲を $35 \pm 0.5^\circ\text{C}$ に抑えた。

窒素気体中の水蒸気濃度はガスクロを用いて分析した。サンプリングは実験開始約30分後に行い、また気体あるいは液体の流量のみを変えた場合も、その流量を

* 三菱重工業(株)

Fig. 3 Effects of liquid flow rate on mass transfer rate (cocurrent)

Fig. 4 Effects of liquid flow rate on mass transfer rate (countercurrent)

設定した後約 10 分間放置し、サンプリングした（気体の塔内滞在時間は最大約 24 秒である）。

2. 実験結果

本実験を整理するにあたり、諸物性値*は主に化学工学便覧から引用した。また流下液については流れが層流であると仮定して、ヌッセルトの式⁶⁾により流下液膜表面の流速 v_s を算出し、これを代表値として用いた。さらに、気相中の水蒸気濃度は、入口における平均水蒸気濃度および気液界面の平衡濃度を用いて飽和度 Y で表した。

2・1 流出気体の飽和度に及ぼす液流量の影響

1) 並流の場合 並流の場合の実験結果を Fig. 3 に示した。縦軸には流出気体の平均飽和度 $\bar{Y}_{out}$ 、横軸には流下液膜表面の流速 v_s と平均気体流速 $\bar{v}_{in}$ との比 α をとった。グレイツ数**の異なるいずれの場合にも、気相の出口水蒸気飽和度は α 、すなわち液流量とともに増加している。また蒸発による液面の温度降下の影響をみるために、グレイツ数を同じにし入口水蒸気濃度のみを変化させたところ (Fig. 3 中の $G_z=12.5$ と 12.8 の実験結果)、両者の飽和度はほとんど同じであった。この

* 35°C において、 $D_g=0.2601\text{ cm}^2/\text{sec}$ 、 $\mu_g=0.1812\times 10^{-3}\text{ g}\cdot\text{cm}/\text{sec}$ 、 $\rho_g=1.094\times 10^{-3}\text{ g}/\text{cm}^3$ である。

** 本実験装置では、グレイツ数 $G_z=12.8$ は平均気体流速 $\bar{v}_{in}$ が $20.0\text{ cm}/\text{sec}$ に相当する。

Fig. 5 Effects of gas flow rate on mass transfer rate (cocurrent)

Fig. 6 Effects of gas flow rate on mass transfer rate (countercurrent)

ことより、蒸発による液面の温度降下を無視しうるということがわかる。なお、図中の実線は後に述べる数値解による理論計算結果である。

2) 向流の場合 向流の場合の実験結果を Fig. 4 に示す。向流の場合には並流とは逆に、液流量すなわち α が増加するにしたがって出口の平均飽和度は減少している。また Fig. 3 と比較すると、気体流量が同じとき出口の平均飽和度は並流に比べ向流では著しく低い値を示していることがわかる。

以上のように、気相の物質移動特性は並流向流いずれの場合にも液流量に大きく左右され、しかもその効果は並流と向流では相反している。

2・2 流出気相飽和度に及ぼす気体流量の影響

1) 並流の場合 実験結果を Fig. 5 に示す。縦軸は気相の出口における水蒸気飽和度 $\bar{Y}_{out}$ であり、横軸にはグレイツ数 G_z をとった。

同一液流量では、 G_z が増大するほど気液の接触時間が短くなり、出口の平均飽和度は減少している。また Fig. 3 で述べたように、液流量の大きいほど出口の飽和度は相対的に増大している。

2) 向流の場合 結果を Fig. 6 に示す。向流の場合も並流と同様、 G_z が増すにしたがって出口の平均飽和度は低下している。また Fig. 5 と比較して同一の G_z では、並流に比べ向流では出口の平均飽和度が低い値を示している。

3. 理論的解析

3・1 基礎式ならびに境界条件

濡壁塔内の気相側流動特性，および水蒸気濃度分布の理論計算を行うにあたり，次の仮定を置く。

- i) 気体の密度 ρ_g ，粘度 μ_g は一定である。
- ii) 流れは軸対称である。
- iii) 定常状態である。
- iv) 蒸発による液面の温度降下は無視できる。
- v) 円周方向の速度成分はない。
- vi) 液と接触している気体は液流速に等しくかつ飽和している。
- vii) 流入気体の半径方向速度成分はなく，軸方向速度成分は半径に無関係に一樣であり (Appendix 参照)，濃度分布はない。
- viii) 流出気体の半径方向速度成分はない。

すると，Fig. 7 に示す円筒座標系では，連続の式，運動方程式，および拡散方程式はそれぞれ Eqs. (1)~(4) となる。また境界条件は Eq. (5) となる。

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ru) + \frac{\partial v}{\partial z} = 0 \quad (1)$$

$$u \frac{\partial u}{\partial r} + v \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{1}{\rho_g} \frac{\partial p}{\partial r} = \nu_g \left[\frac{\partial}{\partial r} \left\{ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ru) \right\} + \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} \right] \quad (2)$$

$$u \frac{\partial v}{\partial r} + v \frac{\partial v}{\partial z} + \frac{1}{\rho_g} \frac{\partial p}{\partial z} = \nu_g \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial v}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} \right] \quad (3)$$

$$u \frac{\partial c}{\partial r} + v \frac{\partial c}{\partial z} = \mathcal{D}_g \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial c}{\partial r} \right) + \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right] \quad (4)$$

境界条件

$$\left. \begin{aligned} z=0; & u=0, \quad v=v_{in}, \quad c=c_{in} \\ z=z_3; & u=0, \quad \partial^2 c / \partial z^2 = 0 \\ r=0; & u=0, \quad \partial v / \partial r = 0, \quad \partial c / \partial r = 0 \\ r=r_0, & 0 < z < z_1; \quad u=0, \\ & v=0, \quad \partial c / \partial r = 0 \\ " & , \quad z_1 < z < z_2; \quad u=0, \\ & v=-v_s, \quad c=c_s \\ " & , \quad z_2 < z < z_3; \quad u=0, \\ & v=0, \quad \partial c / \partial r = 0 \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

これらの式を Eq. (6) に示す無次元量を用いて無次元化し，さらに Eq. (7) で定義した流線関数 ϕ ，および渦度 ζ を用いて整理すれば，最終的に基礎式として Eqs. (8)~(9)，境界条件として Eq. (10) を得る。

Fig. 7 Diagram of wetted-wall column (countercurrent)

$$\left. \begin{aligned} R &= r/r_0, & Z &= z/r_0, \\ U &= r_0 u / \nu_g, & V &= r_0 v / \nu_g, \\ P &= r_0^2 (p + \rho_g g z) / \rho_g \nu_g^2 \\ Y &= (c - c_{in}) / (c_s - c_{in}) \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

$$\left. \begin{aligned} U &= -\frac{1}{R} \frac{\partial \phi}{\partial Z}, & V &= \frac{1}{R} \frac{\partial \phi}{\partial R} \\ \zeta &= \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left\{ \frac{1}{R} \frac{\partial \phi}{\partial R} \right\} + \frac{1}{R^2} \frac{\partial^2 \phi}{\partial Z^2} \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} U \frac{\partial \zeta}{\partial R} + V \frac{\partial \zeta}{\partial Z} &= \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left\{ \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} (R^2 \zeta) \right\} + \frac{\partial^2 \zeta}{\partial Z^2} \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} U \frac{\partial Y}{\partial R} + V \frac{\partial Y}{\partial Z} &= \frac{1}{Sc} \left[\frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left\{ R \frac{\partial Y}{\partial R} \right\} + \frac{\partial^2 Y}{\partial Z^2} \right] \end{aligned} \quad (9)$$

境界条件;

$$\left. \begin{aligned} Z=0; & \frac{\partial \phi}{\partial Z} = 0, \quad \frac{1}{R} \frac{\partial \phi}{\partial R} = V_{in}, \\ & Y=0 \\ Z=Z_3; & \frac{\partial \phi}{\partial Z} = 0, \\ & \frac{\partial^2 Y}{\partial Z^2} = 0 \\ R=0; & \phi=0, \quad \frac{\partial}{\partial R} \left(\frac{1}{R} \frac{\partial \phi}{\partial R} \right) = 0, \\ & \frac{\partial Y}{\partial R} = 0 \\ R=1, & 0 < Z < Z_1; \quad \frac{\partial \phi}{\partial Z} = 0, \\ & \frac{\partial \phi}{\partial R} = 0, \quad \frac{\partial Y}{\partial R} = 0 \\ R=1, & Z_1 < Z < Z_2; \quad \frac{\partial \phi}{\partial Z} = 0, \\ & \frac{1}{R} \frac{\partial \phi}{\partial R} = -V_s, \quad Y=1 \\ R=1, & Z_2 < Z < Z_3; \quad \frac{\partial \phi}{\partial Z} = 0, \\ & \frac{\partial \phi}{\partial R} = 0, \quad \frac{\partial Y}{\partial R} = 0 \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

Fig. 8 Flow patterns and concentration profiles (cocurrent)

Fig. 9 Flow patterns and concentration profiles (countercurrent)

3・2 計算方法

これらの基礎式は連立2階非線形偏微分方程式であって、解析解は得られない。そこで比較的安定な upwind 差分形⁷⁾を用いて差分化し、半径方向21等分、軸方向71等分して種々の条件下の流線、渦度および濃度を緩和法により数値計算して求めた(計算には東北大学大型計算機センター; NEAC 2200, Model 700を用いた)。

3・3 計算結果

以上の方法による数値計算結果を、並流について、Figs. 8 a)~c)、向流について Figs. 9 a)~c)に示す。各図左側は流線、右側は等濃度線を表す。

Fig. 8 a) は液表面の流速 v_s と平均気体流速 $\bar{v}_{in}$ が等しい ($\alpha=1$) 場合の結果である。図より、ピストン状の速度分布で塔頂から流入した気体は整流部を流れる間にはば放物線状となるが、液と接触すると液に引きずられるためにピストン状の流れに変わり、液との接触を終

えると再び放物線状の流れとなって塔外へ排出されるのがわかる。このときの等濃度線図から、液と接触した気体中を水蒸気が拡散してゆく状態、および接触を終えると濃度分布が徐々にならされてゆく様子がわかる。Fig. 8 b) は液流速のみを3倍とし他はFig. 8 a)と同じにしたときの結果である。この場合、液流速が速いため液膜近傍の気体も引きずられてかなり速く、そのため流入した気体は液膜近傍のみを通して流れ去り、中心部には大きな循環流が生じている。なおこの循環流は流速比 α が約2以上になると生ずる。また、このときの等濃度線図によれば、中心部に生じた循環流のために Fig. 8 a) の等濃度線図とはかなり様相を異にしており、特に中心付近の濃度がかなり高くなっていることがわかる。さらに、出口の平均飽和度は0.992であるが、液流量の少ない Fig. 8 a) の0.880に比べきわめて高い。これは、流下液膜表面の速度が速くなると液膜近傍の気体流量が相

対的に増大し、水蒸気濃度の高い部分がより多く運び去られるためと説明される。Fig. 8 c) は Fig. 8 b) に比べ液流量を同じにし気体流量のみを増加させた場合の結果である。Fig. 8 b) に比べ全体としての流線は混んでいるものの液膜付近の流線の間隔はほとんど変化せず、液膜付近の気体流速が液膜の流下速度に支配されていることがわかる。それゆえ、水蒸気濃度の比較的低い中心付近を流れる気体の流量が Fig. 8 b) に比べて相対的に増加し、出口の平均水蒸気濃度は減少している。

次に、向流の場合の計算結果を Figs. 9 a)~c) に示す。図より、向流の場合には液膜付近に常に循環流が存在していることがわかる。この循環流が、いったん蒸発し流れによって運ばれた水分を再び液膜付近にリサイクルさせるので、蒸発の driving force が低下し、向流の場合の出口飽和度は同条件の並流の場合に比べ相対的に低い値となる。また、Fig. 9 a) と比べ液流量のより大きい Fig. 9 b) では液膜付近に存在する循環流の占める割合がより大きくなり、そのため並流の場合とは逆に出口の平均飽和度は低下している。最後に Fig. 9 b) と Fig. 9 c) を比較すると、液流量が同じで気体流量が大きい Fig. 9 c) では循環流の占める部分は狭くなっており、濃度も全般に低下していることがわかる。

4. 実験結果と理論値の比較

出口における平均飽和度の数値計算結果を Figs. 3~6 中に実線で示した。これらによれば、実験結果と数値計算結果とは定性的にその傾向がよく一致しており、並流の場合の飽和度が向流よりも大きいこと、および液流量の影響が向流と並流で異なることなどの原因は塔内の気相の流動状態の差に起因することがわかる。すなわち、並流では気液界面に常に新鮮な気体が供給されるのに対し、向流では液膜近傍に循環流が生じ蒸発の driving force を低下させる。また液流量を増加させると、並流では新鮮な気体が界面により多く供給され出口の平均飽和度が増加するのに対し、向流では液膜付近の循環流が増大して逆に driving force を低下させるものと思われる。

以上のように、数値計算結果は実験結果の傾向を定性的によく説明しているものの、全体的に数値計算結果は実験値より大きい値を示しており完全に定量的な一致をみるには至っていない。これは数値計算におけるメッシュサイズの粗さ*、ならびに液膜の波立ちを防ぐ目的で混入した界面活性剤が水の蒸発の界面抵抗となったことなどによるものと思われる。

* メッシュサイズの影響を調べるためにメッシュ数を約2倍にした 31×101 で計算を行ったところ、計算値は実験値に近づく傾向を示したもののあまり変化はなかった。さらにメッシュ数を大きくすることは、計算機の容量と速度が不十分のため現段階では行っていない。

結 言

濡壁塔における窒素気流中への水の蒸発実験結果と数値解法による理論計算結果との比較検討を行った。その結果気相が層流状態の場合、向流に接触するよりも、むしろ並流に接触したほうが物質移動量が多いこと、また液流量の変化による影響が並流と向流の場合で相反することなどがわかった。さらに、これらの現象は塔内の気相の流動状態の違いによることが理論的に裏付けられた。

Appendix

気体流入口には気相の偏流を防ぐ目的で目皿板をおいたため、流入気体の速度分布は放物線状ではなく、また完全なピストン流でもない。

ここでは半径方向速度成分はないものとし、軸方向速度成分 V_{in} は次式で近似されるものとした。

$$V_{in} = \bar{V}_{in} - \frac{\bar{V}_{in}}{\sqrt{R}} \left[\operatorname{erfc} \left(\frac{1-R}{2\sqrt{T}} \right) + \frac{\sqrt{T}}{4} \left(\frac{1}{R} - 1 \right) \operatorname{ierfc} \left(\frac{1-R}{2\sqrt{T}} \right) + \frac{T}{32} \left(\frac{9}{R^2} - \frac{2}{R} - 7 \right) \operatorname{i}^2 \operatorname{erfc} \left(\frac{1-R}{2\sqrt{T}} \right) \right] \quad (A-1)$$

上式は、無限に長い円管が速度 $\bar{V}_{in}$ で動いており気体もまた同じ速度で管内をピストン状で流れていたものが、時間 $T=0$ において突然円管が止まったとして管内の気相の速度分布を求めたもので、次式の解である。

$$\frac{\partial V}{\partial T} = \frac{1}{R} \frac{\partial}{\partial R} \left(R \frac{\partial V}{\partial R} \right) \quad (A-2)$$

境界条件；

$$\left. \begin{array}{l} T=0; \quad V=V_0 \\ R=0; \quad \partial V / \partial R = 0 \\ R=1; \quad V=0 \end{array} \right\} \quad (A-3)$$

Eq. (10) の境界条件として Eq. (A-1) を適用する場合に軸方向の刻み幅 ΔZ を通過するのに要する平均時間の $1/10$ の時間、すなわち $T=0.1(\Delta Z)/\bar{V}_{in}$ を代入したが、 V_{in} はほとんどピストン状の流れで管壁付近のみに速度勾配が存在する。

【謝 辞】 本研究を行うにあたり、実験に御協力下さった高松次雄氏（昭和石油（株））に深く感謝いたします。

Nomenclature

c	= concentration	[mol/cm ³]
c_{in}	= averaged concentration at the inlet	[mol/cm ³]
c_s	= equilibrium concentration	[mol/cm ³]
$\mathcal{D}_g$	= diffusion coefficient	[cm ² /sec]
G_z	= Greatz number, $\pi r_0^2 \bar{v}_{in} / \mathcal{D}_g L$	[—]
g	= gravitational acceleration	[cm/sec ²]
L	= length of wetted-wall column	[cm]
P	= dimensionless pressure, $r_0^2(p + \rho_g g z) / \rho_g \nu g^2$	[—]

p	= pressure	[g/cm · sec ²]	α	= $V_s/\bar{V}_{in}$	[—]
R	= dimensionless radial distance, r/r_0	[—]	ζ	= modified vorticity defined by Eq. (7)	[—]
r	= radial distance	[cm]	μ_g	= viscosity of gas	[g/cm · sec]
r_0	= radius of wetted-wall column	[cm]	ν_g	= kinematic viscosity of gas	[cm ² /sec]
Sc	= Schmidt number, ν_g/D_g	[—]	ρ_g	= density of gas	[g/cm ³]
U	= dimensionless radial velocity, $r_0 u/\nu_g$	[—]	ϕ	= stream function defined by Eq. (7)	[—]
u	= radial velocity of gas	[cm/sec]			
V	= dimensionless axial velocity, $r_0 v/\nu_g$	[—]			
V_{in}	= $r_0 v_{in}/\nu_g$	[—]			
$\bar{V}_{in}$	= $r_0 \bar{v}_{in}/\nu_g$	[—]			
V_s	= $r_0 v_s/\nu_g$	[—]			
v	= axial velocity of gas	[cm/sec]			
v_{in}	= axial velocity of gas at the inlet	[cm/sec]			
$\bar{v}_{in}$	= averaged velocity of gas at the inlet	[cm/sec]			
v_s	= liquid surface velocity	[cm/sec]			
Y	= saturation ratio, $(c-c_{in})/(c_s-c_{in})$	[—]			
$\bar{Y}_{out}$	= averaged saturation ratio at the outlet	[—]			
Z	= dimensionless axial distance, z/r_0	[—]			
Z_1	= z_1/r_0	[—]			
Z_2	= z_2/r_0	[—]			
Z_3	= z_3/r_0	[—]			
z	= axial distance	[cm]			
z_1, z_2, z_3	= see Fig. 7	[cm]			

Literature cited

- 1) Barnet, W. and K. A. Kobe: *Ind. Eng. Chem.*, **33**, 436 (1941)
- 2) Gilliland, E. R. and T. K. Sherwood: *ibid.*, **26**, 516 (1934)
- 3) Gilliland, E. R. and T. K. Sherwood: *ibid.*, **30**, 506 (1938)
- 4) Jackson, M. L. and N. H. Ceaglske: *ibid.*, **42**, 1188 (1950)
- 5) McCarter, R. J. and L. F. Stutzman: *AIChE J.*, **5**, 502 (1959)
- 6) Nusselt, W.: *Z. Ver. deut. Ing.*, **60**, 541, 569 (1916)
- 7) Runchal, A. K., D. B. Spalding and M. Wolfshtein: *Phys. Fluid Supplement*, **2**, 21 (1969)
- 8) Shinohara, H., S. Ogata and K. Maeda: Preprint of the 37th Annual Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, C 117 (1972)
- 9) Shinohara, H., S. Ogata and K. Maeda: Preprint of the 6th Autumn Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, E 206 (1972)
- 10) Shinohara, H., *et al.*: *Kagaku Kōgaku*, **31**, 772 (1967)

(1973年12月22日受理; 化学工学協会第7回秋季大会(名古屋, 1973年10月)にて発表)

Gas Phase Mass Transfer Characteristics of Countercurrent and Cocurrent Wetted-Wall Column in a Laminar Region

Kazuo Aihara, Naohiko Ukawa*, Mitsunori Hozawa and Teiriki Tadaki

Dept. of Chem. Eng., Tohoku Univ., Sendai

An experimental and theoretical study was attempted for the vaporization of water into a laminar flow of nitrogen gas in a wetted-wall column. Flow patterns and concentration profiles of gas phase were obtained, by solving the Navier-Stokes equations and diffusion equation numerically. In cocurrent gas-liquid flow fresh gas was always in contact with the liquid surface, whereas in countercurrent flow there existed a large circulation near the surface which blocked the contact.

It was concluded that the difference of flow patterns made overall mass transfer rate for cocurrent flow larger than that for countercurrent flow.

* Mitsubishi Heavy Ind. Co., Ltd.