多段気泡塔内における段間の液の逆流比

西脇昭雄・籠 運 弘
加藤 康 夫

九州大学工学部 応用化学教室

田 中 重 信・福 田 隆 至

北海道工業開発試験所

緒 言

仕切多孔板などを塔内に挿入して多段化した気泡塔内における液の軸方向混合のデータについては多くの報告がある^{1-3,5-7,9-11,14,15)}。これらの報告では、塔内の液の混合が拡散モデル、槽列モデルあるいは逆混合モデルで表現されるとして、実測の応答曲線などを解析し、それぞれ混合拡散係数、段数あるいは段間の逆流比を求めて、装置因子ならびに操作因子との関係を検討しているものが多い。これに対し、関沢ら¹⁵⁾は、塔内の温度分布を測定する定常熱トレーサー法により、各段内の液の混合が拡散モデルに従い、かつ、各段間に逆流があるとした場合¹³⁾(*D-B*モデルと略記する)の段内の混合拡散係数および段間の逆流比を測定し、諸因子との関係を報告している。著者らは前報¹²⁾において、出口滞留時間分布の実測値またはその分散の値と相関式⁸⁾から算出される1段気泡塔内の液の混合拡散係数とから、*D-B*モデルによって、段間の逆流比が求められることを報告した。

そこで、本研究では、仕切多孔板により多段化した気泡塔内の液の軸方向混合を気液並流および向流操作についてデルタ応答法により測定し、得られた応答曲線を前報¹²⁾の方法に基づいて解析して、段間の逆流比を求め、これと塔径、塔高、段数、段間隔、仕切多孔板の開孔比、ガス流速および液流速との関係を検討した。

1. 実験装置および実験方法

実験装置の概略を Fig. 1 に示す。多段気泡塔には内径 12.2 および 21.4 cm の 2 種類を用い、一段の最小高さはそれぞれ 25 および 50.6 cm で、いずれも透明アクリル樹脂製である。塔底のガス分散器として、塔径 12.2 cm で並流操作の場合には孔径 0.14 cm (孔数 37) の多孔板を、向流操作の場合には孔径 0.2 cm (孔数 37) のガス吹き込み孔と直径 0.85 cm (本数 34) の液通過管とからなっているものを用い、また、塔径 21.4 cm の場合には孔径 0.1 cm (孔数 336) のものを用いた。使用した系は空気-水系である。

操作は、まず、コンプレッサーからの空気をオリフィス計で計量後、ガス分散器を通して塔内に流入させる。

Fig. 1 Experimental apparatus

次に、並流操作のときは、水道水をオリフィス計またはベンチュリ計を経て塔底近くの塔壁から塔内に供給する。液は塔内で空気と並流接触し、塔頂より溢流し、トレーサー濃度測定用の電導度セルを経て排出される。空気および水をそれぞれ所定の流量に調節し、塔内の気液の流れが定常状態になってから、トレーサーとして所定量の KCl 溶液を液供給管に取り付けたコックを開いて瞬間的に入れ、排出液のトレーサー濃度の時間的変化を電導度セルにより検出し、記録させる。塔頂とセルとの間の時間遅れはそのつど測定して応答時間の補正をした。

向流操作のときは、水道水をオリフィス計またはベンチュリ計で計量し、液分散器より塔頂部に供給し、塔内で空気と向流接触後、液ポンプにより塔底より流出させた直後、電導度セルを経てオリフィス計またはベンチュリ計で計量し、排出させる。空気および水をそれぞれ所定の流量に調節し、また、気液層高を一定に保ち、定常状態になってから、塔頂近くの塔壁より注射器または注射器の先につけた多孔管を挿入して所定量の KCl 溶液を瞬間的に入れ、塔底部出口の電導度セルでその濃度の

Fig. 2-a β vs. $\phi_{\max}/2$ and $\phi_{\max}$ with PeB at $N=4$ for external residence time distribution function of D-B model

時間的変化を検出し、記録させる。なお、塔底とセルとの間の時間遅れは、別に、塔底の液通過管の大部分にそれぞれ細管を挿入し、ごく少量の KCl 溶液を瞬間的に入れて、その応答を各液流速およびガス流速についてそれぞれ測定した。この結果を用いて各応答曲線における時間遅れを補正した。また、液流量として、オリフィス計またはベンチュリ計による値は目安とし、排出してくる液量を各実験ごとに秤とストップウォッチで測定して求めた値を用いた。

液ホールドアップは空気と水の供給を（向流操作のときはさらに水の排出を）同時に止め、塔内の液の静止高さと塔高（向流操作のときは液層高）とから求めた。

実験は塔径が 12.2 cm の場合は並流および向流の両操作について行い、塔径が 21.4 cm の場合は並流操作について行った。Table 1 に実験条件を示す。なお、液温度は 10~28°C であった。

2. 逆流比の求め方

D-B モデルにおけるパラメータは段数 N 、ペクレ数 $PeB (=u_i L/E_i)$ および段間の逆流比 β で、これら 3 個のパラメータにおおのの数値を入れ、前報¹²⁾の方法により出口滞留時間分布関数 $E(\phi)$ を数値計算して、各 N における $E(\phi)$ の最大値およびその 1/2 の値に対応する無次元時間 $\phi_{\max}$ および $\phi_{\max}/2$ ($\phi=0$ と $\phi_{\max}$ との間に存在する方の値) を求めると、これらと β と PeB との関係はそれぞれ Fig. 2 の実線のようにになる。なお、破線は逆混合モデルの $E(\phi)$ を Haddad ら⁴⁾の式によって計算して求めたものである。

各段内の液の混合拡散係数 E_i には前報⁸⁾の 1 段気泡塔内の液の混合拡散係数の相関式より算出される Fig. 3 に示す値を用いた。

Fig. 2-b β vs. $\phi_{\max}/2$ and $\phi_{\max}$ with PeB at $N=8$ for external residence time distribution function of D-B model

Fig. 2-c β vs. $\phi_{\max}/2$ and $\phi_{\max}$ with PeB at $N=12$ for external residence time distribution function of D-B model

β は、まず、各 N についての実測の応答曲線から最大濃度またはその 1/2 の濃度を与える $\phi_{\max}$ または $\phi_{\max}/2$ を求め、次に、 $PeB (=u_i L/E_i)$ を Fig. 3 の E_i を用いて算出し、これらの値と Fig. 2 より求めた。一部の応答曲線については $\phi_{\max}/2$ からのみ β を求めたが、大部分については $\phi_{\max}$ および $\phi_{\max}/2$ の両方からそれぞれ β を求め、その平均値をとった。なお、両方法による β の値は比較的良好に合致した。

3. 実験結果および考察

Figs. 4~7 に、塔径 D_T が 12.2 cm で並流および向流操作における逆流比 β とガス流速 $\bar{u}_g$ 、液流速 $\bar{u}_l$ 、段数 N 、段間隔 Δz および塔高 L との関係を各開孔比 Ar ごとに示す。

Fig. 3 Longitudinal dispersion coefficient in stage evaluated from the empirical equation⁸⁾

Fig. 4 Effects of u_g , u_L , L , N and Δz on β at $Ar=0.0605$

Fig. 5 Effects of u_g , u_L , L , N and Δz on β at $Ar=0.128$

β は u_L および Ar の影響を大きく受け、 u_L が大きくまた Ar が小さくなるほど、 β は小さい。しかし、 β に及ぼす N および Δz の影響は Ar が大きい場合には L が 100 cm のときを除きあまり見られない。

一方、 β と u_g との関係は、 u_g が約 4~5 cm/sec まで

Table 1 Experimental conditions

D_T [cm]	$Ar^{\dagger}$ [-]	d [cm]	n [-]	$L^{\ddagger}$ [cm]	N [-]	$\bar{u}_L^{\text{†††}}$ [cm/sec]
12.2	0.0605	1.0	9	100	4	+0.095, +0.4
"	"	"	"	200	4	+0.051, +0.095, +0.2, +0.4
"	"	"	"	"	8	+0.051, +0.095, ± 0.2 , +0.4
"	"	"	"	300	4	+0.095, +0.4
"	"	"	"	"	12	± 0.095 , -0.2, +0.4
"	0.128	1.0	19	100	4	+0.095, +0.4
"	"	"	"	200	4	+0.051, +0.095, +0.2, +0.4, +0.69,
"	"	"	"	8	8	+0.051, ± 0.095 , ± 0.2 , ± 0.4 , +0.69, +1.0
"	"	"	"	300	4	+0.095, +0.4
"	"	"	"	"	12	± 0.095 , -0.2, ± 0.4 , ± 0.69 , ± 1.0
"	0.208	1.0	31	100	4	+0.095, +0.4
"	"	"	"	200	4	+0.051, +0.095, +0.2, +0.4, +0.69, +1.0
"	"	"	"	8	8	+0.051, ± 0.095 , ± 0.2 , ± 0.4 , ± 0.69 , +1.0
"	"	"	"	300	4	+0.095, +0.4, +1.0
"	"	"	"	"	12	± 0.095 , ± 0.4 , -0.69, ± 1.0
"	0.289	1.0	43	200	8	± 0.095 , ± 0.2 , ± 0.4 , ± 0.69 , +1.0
"	"	"	"	300	12	± 0.095 , -0.2, ± 0.4 , -0.69, ± 1.0
21.4	0.102	0.8	73	405	4	+0.1, +0.4
"	"	"	"	"	8	+0.1, +0.4
"	0.230	1.2	"	"	4	+0.1, +0.4, +1.0
"	"	"	"	"	8	+0.1, +0.4

$\bar{u}_g$: 1.5~20 cm/sec

$\dagger$ Plate material bronze, plate thickness 1mm

$\ddagger$ In countercurrent operation, L expresses average total height of gas-liquid fluidized bed

††† Symbols, + and -, express cocurrent operation and countercurrent operation, respectively

の小さい範囲では β は $\bar{u}_g$ にほとんど無関係で、また、並流か向流操作かによらず、各 $\bar{u}_L$ についてほぼ一定である。ところで、 Ar が 0.128 より大きい場合および Ar が 0.0605 であっても N が 8 および 12 の場合には、 $\bar{u}_g$ が約 5 cm/sec より大きくなると、 β は $\bar{u}_g$ とともに大きくなっている。しかも β の大きくなる割合は、 $\bar{u}_L$ が大きいほど、また Ar が 0.128 の場合には向流操作の方が並流操作のときより若干大きい。さらに $\bar{u}_g$ が大きくなり、 $\bar{u}_g$ が 13~20 cm/sec の範囲では再び各 $\bar{u}_L$ についての β は $\bar{u}_g$ にほぼ無関係になっている。しかし、 Ar が小さく 0.0605 で、かつ、 N が 4 で $\bar{u}_L \leq 0.2$ cm/sec のときには β は $\bar{u}_g$ によってあまり変わらなく、しかも L が 100 cm (N が 4) のときには、 $\bar{u}_g$ が大きくなると β は逆に小さくなる傾向がある。このように β が $\bar{u}_g$ の増加とともに減少する傾向は、関沢ら¹⁵⁾の開孔比が 0.0775 の場合の結果と同様である。以上のように、 $\bar{u}_g$ が大きい範囲で、 Ar が 0.0605 の場合に β が L , N および Δz により、また、 Ar が 0.128 で $\bar{u}_L$ が大きくなると並流と向流操作とで異なるのは、主として塔内の流動状態の差異によるものと思われる。すなわち、 Ar が 0.0605 で、かつ、 L が 100 cm の場合には、 $\bar{u}_g$ が大きくなるにつれて仕切多孔板直下にガス空間部が生じ、ガスは上の段へ新たに気泡として分散し、また、段内で気泡の合一も起こりやすい。ガス空間部が生じた状態では上の段からの液の流下は円滑でなくなり、また、このガス空間部の大きさは $\bar{u}_g$ が大きいほど大きくなるので、 β の値が $\bar{u}_g$ の増加とともに小さくなるものと思われる。しかし、 Δz が

Fig. 6 Effects of $\bar{u}_g$, $\bar{u}_l$, L , N and Δz on β at $Ar=0.208$

Fig. 7 Effects of $\bar{u}_g$, $\bar{u}_l$ and N on β at $Ar=0.289$

同じ 25 cm でも L が 200 あるいは 300 cm のときには、仕切多孔板直下のガス空間部の形成が不安定となり、塔内の気液層全体が $\bar{u}_g$ の増加とともに不規則な流動から次第に規則的な脈動状態となり、その結果、段間の逆流が促進され、 β の値が大きくなると考えられる。しかし、 Ar が同じ 0.0605 でも Δz が大きい 50 または 75 cm で N が 4 の場合には、 $\bar{u}_g$ が大きい範囲においても脈動流の状態は起こりにくかった。また、 Ar が 0.128 の場合、向流に比べ並流操作の方が脈動状態は起こりにくく、同じ $\bar{u}_l$ について小さい β の値を示すときは脈動が起こりにくい状態にあった。さらに、 Ar が 0.208 および 0.289 の場合脈動流はほとんどみられなかった。

Fig. 8 に、 D_T が 21.4 cm の場合の β と諸因子との関係を示す。 β に及ぼす $\bar{u}_g$, $\bar{u}_l$ および N の影響は D_T が 12.2 cm の場合とほぼ同様であり、また、 Ar が 0.102 で N が 8 の場合、 $\bar{u}_g$ の大きい範囲における流動状態は脈動流状態であった。

以上の結果より、 β に大きな影響を与える因子は主として Ar , $\bar{u}_l$ および $\bar{u}_g$ であり、また、 β は Ar が小さ

Fig. 8 Effects of $\bar{u}_g$, $\bar{u}_l$, N and Ar on β at $D_T=21.4$ cm

Fig. 9 Correlation between β and $\bar{u}_l Ar^{-1.2}$ in the range of $\bar{u}_g = 1.5 \sim 4.5$ cm/sec

く $\bar{u}_g$ が大きい場合にはさらに L , N , Δz ならびに操作方法の影響も受けることがわかったので、 L が 100 cm のデータを除いて、以下の整理を行った。すなわち、 $\bar{u}_g$ が 1.5~4.5 cm/sec の範囲ならびに 13~20 cm/sec の範囲の各条件下における β の値を $\bar{u}_g$ に無関係なそれぞれの直線で、また、これらの中間の $\bar{u}_g$ の範囲の β と $\bar{u}_g$ との関係を示す直線に直線で、それぞれ Figs. 4~8 の実線のように近似した。 $\bar{u}_g$ が 1.5~4.5 cm/sec の範囲で、かつ、 $\beta > 4$ なる範囲の β は $\bar{u}_l$ にほぼ逆比例し、また $Ar^{-1.2}$ に比例しているため、この $\bar{u}_g$ の範囲の β の全データを $\bar{u}_l Ar^{-1.2}$ に対してプロットすると、Fig. 9 のようになる。 β は $\bar{u}_l Ar^{-1.2}$ が小さいところでは $\bar{u}_l Ar^{-1.2}$ の 1 乗に比例して小さくなり、 $\bar{u}_l Ar^{-1.2}$ が大きくなるにつれて β の減少する割合が大きくなっているが、 D_T に

Fig. 10 Correlation between β and $\bar{u}_L Ar^{-1.5}$ in the range of $\bar{u}_g = 13 \sim 20$ cm/sec

はほとんど無関係で、 β と $\bar{u}_L Ar^{-1.2}$ との関係は次の実験式で表される。

$$\beta = 4.7 / [(\bar{u}_L Ar^{-1.2}) \{1 + 0.055(\bar{u}_L Ar^{-1.2})^{1.6}\}] \quad (1)$$

なお、Fig. 9 中には、同じ $\bar{u}_g$ の範囲における関沢ら¹⁵⁾の結果も示した。彼らの実験条件は仕切多孔板の孔径が 0.5 cm、厚さが 5 mm で本実験の条件と異なっているが、彼らの β の値と本実験のそれとはよく合致している。ところで、市川ら⁵⁾は応答曲線を拡散モデルで解析したときの総括の混合拡散係数は仕切多孔板の孔径が 0.5~2 cm の範囲で同じ値であることを報告している。

一方、 $\bar{u}_g$ が 13~20 cm/sec の範囲の β については、 $\bar{u}_L Ar^{-1.5}$ に対してプロットすると、Fig. 10 のようになる。脈動流がほとんど起こらないか、起こっていても小さな脈動流動状態の場合には、 β と $\bar{u}_L Ar^{-1.5}$ との関係は D_T にほとんど無関係に、実線で近似され、次の実験式で表される。

$$\beta = 13 / [(\bar{u}_L Ar^{-1.5}) \{1 + 0.011(\bar{u}_L Ar^{-1.5})^{1.5}\}] \quad (2)$$

ところで、破線近傍のデータの流動状態はかなり脈動の起こっているときで、並流操作では Ar が 0.0605 で N が 8 および 12 の場合 ($\Delta z/D_T = 2.05$)、 Ar が 0.128 で N が 8 および 12 で $\bar{u}_L$ が 0.2 cm/sec 以下の場合および Ar が 0.102 で N が 8 の場合 ($\Delta z/D_T = 2.36$) であり、また、向流操作では Ar が 0.0605 と 0.128 の場合であった。この脈動流動状態については次の実験式が得られた。

$$\beta = 18 / [(\bar{u}_L Ar^{-1.5}) \{1 + 0.0045(\bar{u}_L Ar^{-1.5})^{1.5}\}] \quad (3)$$

以上のように、 $\bar{u}_g$ が 13~20 cm/sec の範囲については流動状態の差異によって β と $\bar{u}_L Ar^{-1.5}$ との関係を大きく二つに分けた。しかし、これらの中間の流動状態については区別をはっきりつけにくいので、Eqs. (2) およ

び (3) の適用範囲については本実験範囲だけでは不充分であるが、並流操作ではおよそ $\Delta z/D_T = 2.5 \sim 4$ および $Ar = 0.1 \sim 0.13$ 、また、向流操作ではより大きい Ar を境にして分けられるものと推定される。しかし、これらについての詳細な検討には今後のデータの蓄積が必要である。

各実験式と実測値との相関は Eq. (1) のときは $\pm 20\%$ 、また、Eqs. (2), (3) のときおよび中間の $\bar{u}_g$ の範囲のときは $\pm 30\%$ である。

結 言

多段気泡塔内の液の軸方向混合をデルタ応答法により測定し、軸方向混合が、段内は拡散モデルに従い、かつ、段間に逆流があるとするモデル¹³⁾で表されると仮定し、段内の混合拡散係数に相関式⁹⁾から算出される 1 段気泡塔内の液の混合拡散係数の値が使えるものとして、段間の逆流比 β を求めた。 $\bar{u}_g$ が 1.5~4.5 cm/sec の範囲の β は Eq. (1) から、また、 $\bar{u}_g$ が 13~20 cm/sec の範囲の β は比較的静かな流動状態の場合には Eq. (2) から、脈動流動状態の場合には Eq. (3) から、さらに、 $\bar{u}_g$ が 4.5~13 cm/sec の中間の範囲の β は Eq. (1) の $\bar{u}_g = 4.5$ cm/sec のときの値と Eq. (2) または Eq. (3) の $\bar{u}_g = 13$ cm/sec のときの値を $\bar{u}_g$ と両対数方眼紙上にプロットし、2 点を結んだ直線から求められる。各実験式と実測値との相関は Eq. (1) のとき $\pm 20\%$ 、また、Eqs. (2) と (3) のときおよび中間の $\bar{u}_g$ の範囲のとき $\pm 30\%$ である。なお、Eqs. (2) または (3) の適用条件についての詳細な検討には今後のデータの蓄積が必要である。

【付 記】 本報告中の一部の実験に手塚善和氏および井戸川清氏のご協力を得た。付記して謝意を表する。また、数値計算は九州大学大型計算機センターの電子計算機 FACOM 230-60 によった。

Nomenclature

Ar	= open area ratio of perforated baffle plate	[—]
d	= diameter of hole in perforated baffle plate	[cm]
D_T	= diameter of column	[cm]
E_L	= longitudinal dispersion coefficient of liquid in stage based on actual mean liquid velocity	[cm ² /sec]
$E(\phi)$	= external age distribution function	[—]
L	= total length of column	[cm]
n	= number of holes in perforated baffle plate	[—]
N	= total number of stages	[—]
PcB	= $u_L L / E_L$, modified Peclet number	[—]
$\bar{u}_B$	= back-flow velocity of liquid between stages based on empty column	[cm/sec]
$\bar{u}_g$	= superficial velocity of gas based on empty column	[cm/sec]
$\bar{u}_L$	= superficial velocity of liquid based on empty	

column	[cm/sec]
$u_l = \bar{u}_l/\epsilon_l$, actual mean velocity of liquid	[cm/sec]
$\beta = \bar{u}_B/\bar{u}_l$, back-flow ratio	[—]
Δz = distance between perforated baffle plate	[cm]
ϵ_l = liquid holdup	[—]
θ = time	[sec]
$\theta_T = L/u_l$, mean residence time of liquid	[sec]
$\phi = \theta/\theta_T$, normalized time	[—]
<Subscripts>	
$_{\max}$ = value in maximum concentration of tracer flowing out of column or maximum of $E(\phi)$ function	
$_{\max/2}$ = value in one-half of maximum concentration of tracer flowing out of column or in one-half of maximum of $E(\phi)$ function	

Literature cited

- 1) Arai, T., H. Tsuge and S. Hibino: Preprint of the 37th Annual Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, No. B 307 (1972)
- 2) Bishoff, K.B. and J.B. Phillips: *Ind. Eng. Chem., Process Design and Develop.*, **5**, 416 (1966)
- 3) Goto, S., A. Kitai and A. Ozaki: *Kagaku Kōgaku*, **35**, 197 (1971)
- 4) Haddad, A.H. and D. Wolf: *Can. J. Chem. Eng.*, **45**, 100 (1967)
- 5) Ichikawa, Y., Y. Adachi and K. Makino: *Kagaku Kōgaku*, **30**, 1097 (1966)
- 6) Kageyama, O., M. Kai and A. Fujiki: Preprint of the 10th General Symposium of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, p.119 (1971)
- 7) Kato, Y.: Preprint of the Hamamatsu Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, No.223 (1962); Preprint of the 28th Annual Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, No.133 (1963); Preprint of the 30th Annual Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, No.2210 (1965)
- 8) Kato, Y. and A. Nishiwaki: *Kagaku Kōgaku*, **35**, 912 (1971)
- 9) Kats, K.B. and L.S. Genin: *Intern. Chem. Eng.*, **7**, 246 (1967)
- 10) Kusunoki, K., H. Irie and W. Sakai: Preprint of the 30th Annual Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, No. 2211 (1965)
- 11) Nakazawa, S., H. Tsuge and S. Hibino: Preprint of the 7th Autumn Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, No. A 318 (1973)
- 12) Nishiwaki, A. and Y. Kato: *Kagaku Kōgaku*, **36**, 1112 (1972)
- 13) Saida, T.: *Mol.*, **6**, No. 3, 57 (1968)
- 14) Sekizawa, T. and H. Kubota: Preprint of the Hokkaido Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, No. B 37 (1968)
- 15) Sekizawa, T. and H. Kubota: Preprint of the Niigata Meeting of the Soc. of Chem. Engrs., Japan, No. A 7 (1969)

(1974年3月19日受理)

Back-Flow Ratio of Liquid between Stages in Multi-Stage Bubble Columns

Akio Nishiwaki, Tokihiro Kago and Yasuo Kato

Dept. of Applied Chem., Kyushu Univ., Fukuoka

Shigenobu Tanaka and Takashi Fukuda

The Gov. Ind. Development Lab., Hokkaido, Sapporo

Longitudinal mixing of liquid in multi-stage bubble columns was measured by a delta-response method for cocurrent and countercurrent operations. Response curves obtained were analyzed by the diffusion/back-flow model, in which it was assumed that the diffusion model was applicable in each stage and there was back-flow between stages, and the back-flow ratio, β , was determined.

β in the range of 1.5~4.5 cm/sec of superficial gas velocity, $\bar{u}_g$, is a function of both superficial liquid velocity and open area ratio of perforated baffle plates, and an empirical equation is obtained. β in the range of $\bar{u}_g=13\sim20$ cm/sec is approximated by two empirical equations, one for non pulsating flow region and other for pulsating flow region. β in the range of $\bar{u}_g=4.5\sim13$ cm/sec can be read by the straight line which passes values of β on a log-log graph at $\bar{u}_g=4.5$ cm/sec and $\bar{u}_g=13$ cm/sec calculated from the above equations.