



| | |
|------------------|---|
| Title | 気泡攪拌加圧反応器の気泡と混合特性 |
| Author(s) | 武谷, 愿; Takeya, Gen; 石井, 忠雄 他 |
| Citation | 北海道大學工學部研究報告, 42, 81-90 |
| Issue Date | 1967-01-05 |
| Doc URL | https://hdl.handle.net/2115/40810 |
| Type | departmental bulletin paper |
| File Information | 42_81-90.pdf |



気泡攪拌加圧反応器の気泡と混合特性

武谷 愿* 石井忠雄* 牧野和夫*
真壁正孝* 白戸義美* 佐藤尚志*

Bubbles and Mixing in Gas Bubble Column under Pressure

Gen TAKEYA, Tadao ISHII, Kazuo MAKINO,
Masataka MAKABE, Yoshimi SHIROTO
and Takashi SATO

Abstract

The behavior of bubbles and the longitudinal mixing characteristics in a gas bubble column with a single orifice have been investigated under pressure (1~6 kg/cm²).

The following results were obtained:

1) d/a , d_0 , u_B , σ , ε of bubbles were determined over a range of $p_i=1\sim 6$ kg/cm², $G_p=0\sim 4$ cm³/sec. When data were correlated by G_p , approximately the same results as in the previous paper were obtained.

2) The values of E were calculated over a range of $p_i=1\sim 6$ kg/cm², $G_p=0\sim 0.54$ cm³/sec., $L=0.31\sim 0.51, 1.2\sim 1.4$ cm³/sec. by diffusion model. E was affected greatly by G_p but scarcely by p_i and L . Data were correlated simply by $E \propto \exp(G_p)$.

1. 緒 言

攪拌型反応器の場合、特に高圧反応装置では気密性を高める必要などから機械的な攪拌装置の使用が好ましくないことが多い。著者らもこの意味から石炭の液相高圧水素化分解反応を、気泡攪拌型の高圧反応器により行ない既に発表した⁵⁾、この反応器を解析するため塔内の液流体の混合状態を知る必要があった。しかるに従来の研究では、加圧下の混合状態を検討したものは殆んど見ることができない。

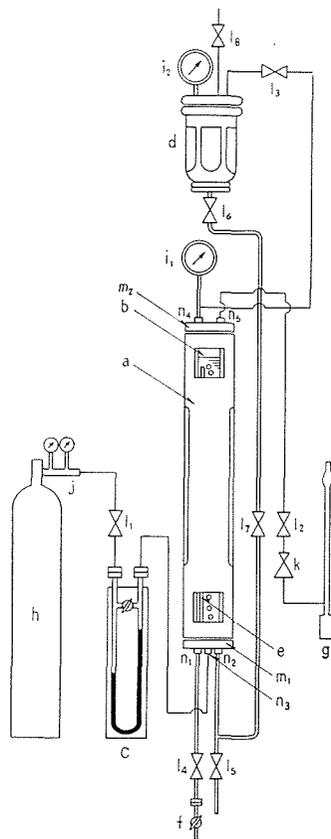
Kölbel¹⁾らはアクリグラス製の円筒(直径 19.2 cm, 高さ 2 m)を用い、16 kg/cm²まで圧力をかけ静止液中での気泡の大きさおよび運動状態などを観察しているが、液流体の混合状態に対する考察は行なっていない。

この報告では主として気体に窒素、液体に水を用い、塔内圧力を 6 kg/cm²まで変化させ、加圧下の気泡を観察すると共に、液体の混合特性におよぼす圧力の影響を検討した。また気体の種類の影響を検討する目的で、常圧において攪拌用気体に水素を用いた場合の d/a , d_0 , σ を測定し窒素の場合と比較した。

* 応用化学科

2. 実験装置

実験装置の系統図を Fig. 1 に示す。気泡塔は内径 40 mm, 外径 49 mm, 長さ 666 mm のガラス製円筒 (b) であり, この円筒は鋼製保護管 (a) 内に入れてある。耐圧保護管の上下端には円形のフランジがついていて, それぞれ 6 箇のナットによりガラス製円筒に密着している。下部フランジ (m_1) には加圧液体導入孔 (n_2), 加圧気体導入孔 (n_3), 溢流液の取出し孔 (n_1) がある。上部フランジ (m_2) には圧力計 (i_1), ガス排出孔 (n_5) および均圧パイプ接合部分 (n_4) がある。まず N_2 ガスは耐圧容器 (h) より減圧弁 (j), バルブ (l_1) を通り差圧ガス流量計 (c) を通って下部



- a: steel mantle
- b: gas bubble column
- c: gas flow meter
- d: tank
- e: overflow pipe
- g: gas flow meter
- l: needle valve
- h: bomb of N_2
- i: pressure gauge

Fig. 1. Schematic diagram of experimental apparatus

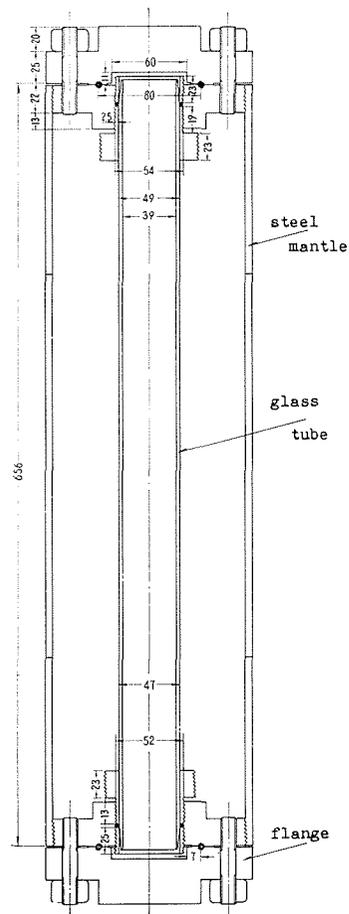


Fig. 2. Details of column design

フランジにとりつけたノズルを経て塔内へ気泡となって導入される。塔から排出するガスの中、一部はバルブ (l_2)、減圧弁 (k)、石鹼膜流量計 (g) を通って系外に排出される。他の一部は圧力計 (i_1) と加圧液溜容器 (d) に通じていて、塔内の圧力測定と (b)、(d) の均圧を行なっている。実験中のガス流量の測定は (c) によって行なう。残余濃度曲線の測定に際しては塔内の液柱高さを常に 56 cm に保ち、塔内の溢流管 (e) の高さ (54.6 cm) より若干高くし、液の取出しに際してガスの排出されるのを防いだ。Fig. 2 は耐圧気泡塔の詳細図である。鋼製保護管には上下側面の左右に各 1 箇の窓があいていて内部の気泡が観察できるようにになっている。Fig. 3 はガス吹込みノズルである。溢流管出口部分にはガラス製コックがついていて、このコックを調節して一定流量の液を系外に流出させた。加圧液溜容器は耐圧 50 kg/cm² のガラス製オートクレーブで鉄製の容器で保護されている。流量調節用バルブは小型ニードルバルブである。配管は液に対して外径 10.5 mm、内径 6 mm、ガスに対して外径 3 mm、内径 1 mm のステンレスパイプを用いた。

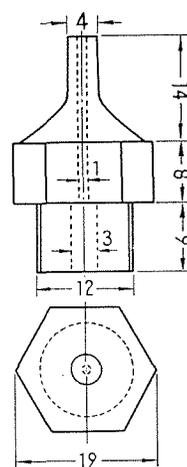


Fig. 3. Details of nozzle

3. 実験方法

一定加圧条件下で塔下部より液体および気体を流入し、加圧下の気泡による液流体の混合状態を残余濃度曲線の測定により検討した。Fig. 1 において、まず常圧下でバルブ (l_8) より (d) 中に 1-N 塩酸溶液を入れる。又塔 (b) 内にバルブ (l_5) を経て水を送入し、一定の液柱高さに達したところで (l_9) をとじる。つぎに容器 (h) より塔内に窒素を送り、装置内が所要の圧力より若干高くなったところで (l_1) を閉じる。ガスの漏れがないことを確認した後、(k) を適当に開け、次に (l_2) を開けて装置内を所定の圧力まで下げると同時に (l_1) を開けて一定流量でガスを吹込む。ガスが定常的に流れるようになってから (l_7) を開け、液流出口のコック (f) より流出する液と同量の 1 N-HCl 溶液を定常的に (d) より塔内に送り込む。

攪拌実験を行なう前に、気泡の形状、大きさなどを、ガス流速を変化させ 1~6 kg/cm² の圧力下で写真撮影により観察した。気泡の撮影位置はノズルより 35.5 cm の点である。この場合は塔内の液は流さない。気泡の分布、大きさを決める実験では、各気体流量に対し数回撮影し、約 10~30 個の気泡について平均気泡径その他を求めた。気泡のホールドアップ ε は液柱高さの変化より算出した。写真により気泡の径および形状を解析する場合、円筒形装置内の気泡の像の形の歪みが若干生じるが、これに対する補正は行なっていない。

3. 実験結果および考察

3.1 気泡の観察

気体流量 $0.1 \sim 4 \text{ cm}^3/\text{sec}$ の範囲の気泡の運動状態を肉眼で観察した。実験範囲内では加圧下でも常圧の場合と大略同一の傾向で肉眼的には著るしい差はみられなかった。

a) $0.1 \text{ cm}^3/\text{sec}$ 以下 形、大きさの様な回転楕円体の気泡が液柱の比較的中心部を小さな振動をしながら直線的に上昇し各気泡間隔は大体 10 cm 程度で、その間隔が 15 cm 程度の時は次に発生する気泡は密接した2個のものとなり、その一個は非常に小さく球形に近い。

b) $0.5 \text{ cm}^3/\text{sec}$ 特に小さい気泡は見られず回転楕円体の気泡が一定頻度で連続的に生成される。ノズルより 5 cm 位までは一本の細い気泡の連りのように見られ速いらせん運動をする。 5 cm 以上になると速度は低下し液柱の中心部からそれていく。気泡間隔は大体 $1 \sim 3 \text{ cm}$ 程度で、全体的に比較的大きい週期のジグザグ運動をしながら上昇する。

c) $1.0 \sim 1.2 \text{ cm}^3/\text{sec}$ ノズル上 15 cm 位までは速度の速いらせん運動をする気泡の連続した状態で、 20 cm 位の点から各気泡間に間隔が見られるようになるが、その間隔は一定でない。気泡は液柱中心部のみでなくちらばりが激しくなり、独立した気泡群が生じ始め各気泡の振動もはげしくなり全体的には前より週期の小さいジグザグ状の運動をしながら上昇する。

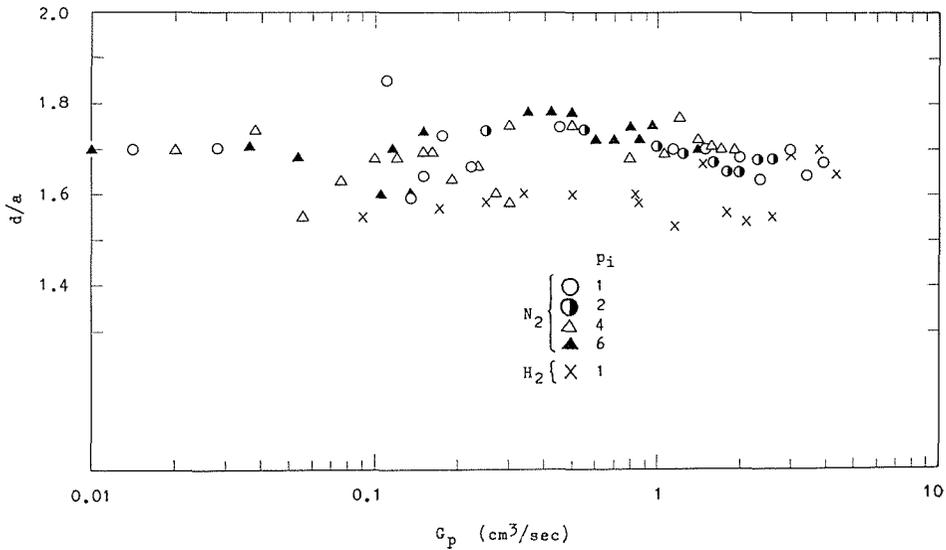
d) $2.2 \sim 2.3 \text{ cm}^3/\text{sec}$ 各気泡間の間隔は非常に小さくなり、いくつかの気泡群となって上昇する。c) が強くなった状態である。

e) $2.9 \sim 3.0 \text{ cm}^3/\text{sec}$ 気泡が多少大きくなり形も扁平になる。時々大きな気泡や特に小さな気泡が生成される。これはノズル附近の激しいガスの噴射により気泡の合体や崩壊が生じるためと思われる。ノズル上 $5 \sim 10 \text{ cm}$ 位までは気体のジェット流で、これより $10 \sim 20 \text{ cm}$ 上までは激しいらせん状の運動をする気泡の連りが見られ、この附近で小さい気泡が分離され、また合体が起り大きな気泡も生じる。液柱体中間部より上部では気泡は群となり全体的に直線運動で上昇する。

f) $3.5 \sim 4.0 \text{ cm}^3/\text{sec}$ e) の状態が強くなる。ノズル上 10 cm 位までは不均一な気泡の群が生じ、液柱中心部の気泡は速度大で、その週辺は比較的遅い気泡が生じる。

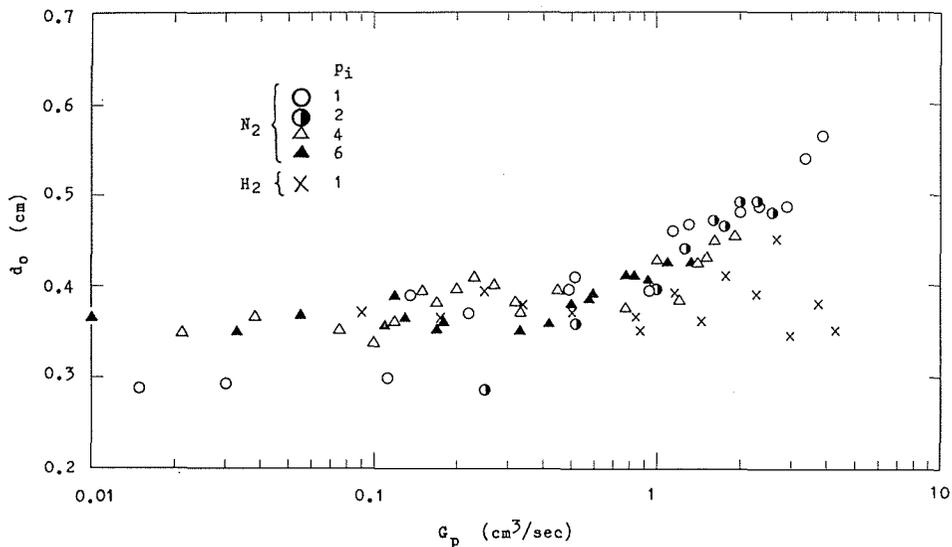
3.2 気泡の形状

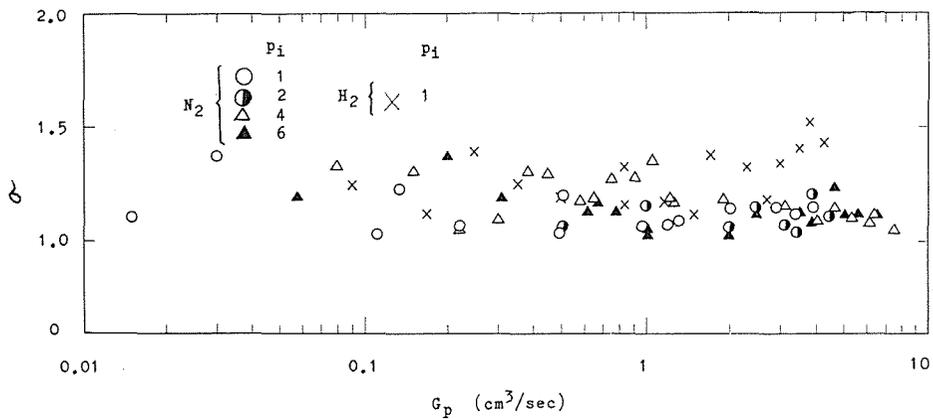
実験範囲内では気泡の形状は圧力に関係なくおおむね回転楕円体である。回転楕円体の長軸、短軸を夫々 $2a$, $2b$ とし、等容積の球径 d を計算し、気泡の形状を d/a で表した。常圧で測定したガス流量 G を塔内圧 p_i で修正した $G_p = G/p_i$ に対して d/a をプロットしたのが Fig. 4 である。気泡の形状に対する圧力の影響はほとんど見られず $G_p = 0.01 \sim 5 \text{ cm}^3/\text{sec}$ の範囲で、気体が N_2 の場合には d/a は大略 1.7 附近である。これに対して比較のため H_2 を用いた場合を検討したが、 d/a の値は 1.6 附近で、 N_2 の場合より気泡が若干扁平になることを示している。

Fig. 4. d/a vs. G_p

3.3 気泡の大きさと分布

気泡の d と累積度数の百分率を対数正規確率紙上にプロットし、Leibson²⁾らと同様な方法で幾何平均直径 d_0 を求め、圧力を 1~6 kg/cm² で変化し、 G_p との関係を図示したのが Fig. 5 である。この図より p_i が変化しても G_p が一定であれば d_0 は一定であることがわかる。また G_p が増大するにつれて d_0 は次第に増大し、特に $G_p=1$ cm³/sec 附近より急激に増大する。この点をオリフィスを通る流速に換算すると $u_p=127$ cm/sec であり只木ら⁴⁾の結果と一致する。しかしながら水素を用いた場合は d_0 の増大は著るしくなく、 $u_p=250$ cm/sec 附近よ

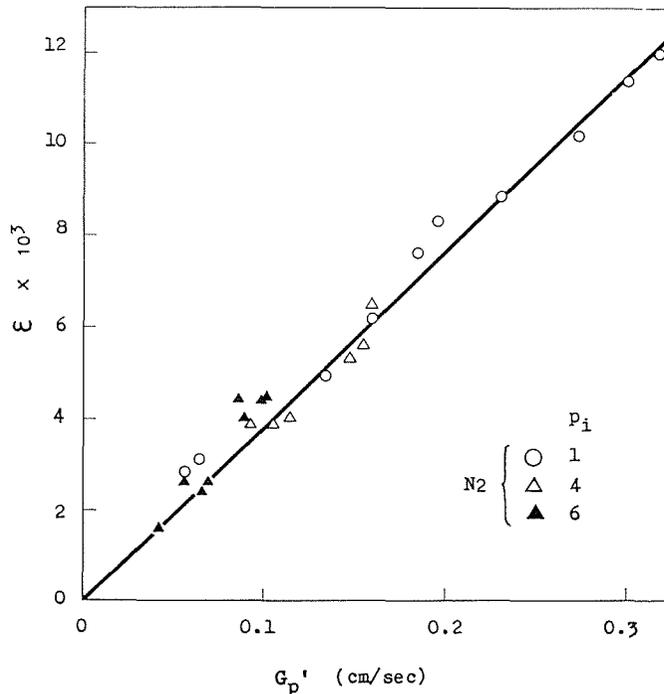
Fig. 5. d_0 vs. G_p

Fig. 6. σ vs. G_p .

り d_0 は減少する傾向がある。これは気泡生成に際して気体の性質の差が影響したものと考えられる。また標準偏差 σ を上記の対数正規確率紙上の直線から求め、これを G_p に対しプロットすると Fig. 6 となる。この図より σ は若干のばらつきがあるが、 G_p 、 p_i に無関係でほぼ一定の範囲 (1.0~1.4) 内にあることがわかる。

3.4 気泡のホールドアップと平均上昇速度

気泡を通さないときの静止液柱高さ H_0 と、気泡を通したときの高さ H_p を実測し、ホー

Fig. 7. ϵ vs. G_p'

ルドアップ ε を Eq. (1) より計算した⁷⁾。

$$\varepsilon = \frac{H_p - H_0}{H_p} = \frac{G'_p}{u_B} \quad (1)$$

実験範囲内で $(H_p - H_0)$ の値は 0.9~6.8 mm であった。 H_p の測定に際して液柱表面の泡沫層の高さは無視した。 Fig. 7 は気体の空塔速度 G'_p と ε の関係を示したもので直線関係があることがわかる。すなわち

$$\varepsilon = 0.039 G'_p \quad (2)$$

となり、Eq. (1), (2) より p_i , G'_p に無関係に一定の平均気泡上昇速度 $u_B = 25.6$ cm/sec が求められた。

3.5 混合拡散係数

種々の圧力下で一定流量の水を流しながら N_2 で気泡攪拌を行ない、塔内が定常状態に達

Table 1. Experimental conditions and results

| p_i kg/cm ² | θ min | L cm ³ /sec | G_p cm ³ /sec | P'_c — | E cm ² /sec | S — | I — | I_{ca1} — |
|-----------------------------|-----------------|-----------------------------|-------------------------------|-------------|-----------------------------|----------|----------|----------------|
| 1 | 26.2 | 0.42 | 0 | 29.0 | 0.034 | 14.62 | 0.85 | 0.93 |
| 1 | 35.3 | 0.31 | 0.017 | 19.0 | 0.040 | 9.82 | 0.89 | 0.90 |
| 1 | 28.5 | 0.39 | 0.022 | 10.4 | 0.088 | 5.46 | 0.81 | 0.82 |
| 1 | 27.9 | 0.40 | 0.058 | 6.4 | 0.147 | 3.64 | 0.72 | 0.73 |
| 1 | 35.1 | 0.31 | 0.086 | 3.85 | 0.193 | 2.52 | 0.43 | 0.60 |
| 1 | 27.1 | 0.38 | 0.104 | 2.85 | 0.339 | 2.09 | 0.63 | 0.52 |
| 1 | 27.5 | 0.40 | 0.126 | 2.01 | 0.474 | 1.78 | 0.40 | 0.44 |
| 1 | 29.5 | 0.37 | 0.150 | 1.15 | 0.771 | 1.41 | 0.32 | 0.29 |
| 1 | 26.0 | 0.42 | 0.197 | 0.52 | 1.93 | 1.18 | 0.09 | 0.15 |
| 1 | 33.0 | 0.33 | 0.240 | 0.27 | 2.93 | 1.10 | 0.0 | 0.09 |
| 1 | 33.0 | 0.33 | 0.400 | 0.09 | 8.81 | 1.03 | 0.04 | 0.03 |
| 1 | 9.5 | 1.16 | 0 | 25.5 | 0.108 | 13.0 | 0.91 | 0.92 |
| 1 | 8.7 | 1.26 | 0.069 | 8.5 | 0.353 | 4.66 | 0.87 | 0.78 |
| 1 | 8.5 | 1.29 | 0.134 | 7.1 | 0.442 | 4.06 | 0.67 | 0.75 |
| 1 | 8.0 | 1.37 | 0.198 | 1.85 | 1.76 | 1.68 | 0.25 | 0.41 |
| 1 | 9.2 | 1.20 | 0.253 | 0.44 | 6.50 | 1.15 | 0.03 | 0.13 |
| 4 | 31.3 | 0.35 | 0.012 | 10.1 | 0.082 | 5.71 | 0.95 | 0.83 |
| 4 | 31.6 | 0.36 | 0.033 | 7.2 | 0.115 | 3.98 | 0.61 | 0.75 |
| 4 | 31.1 | 0.35 | 0.067 | 3.8 | 0.214 | 2.48 | 0.57 | 0.60 |
| 4 | 21.7 | 0.51 | 0.103 | 2.55 | 0.472 | 1.97 | 0.47 | 0.49 |
| 4 | 28.0 | 0.39 | 0.137 | 1.34 | 0.698 | 1.48 | 0.20 | 0.33 |
| 4 | 24.3 | 0.45 | 0.190 | 0.42 | 2.56 | 1.14 | 0.11 | 0.13 |
| 4 | 26.6 | 0.41 | 0.233 | 0.15 | 6.55 | 1.05 | 0.0 | 0.04 |
| 4 | 29.5 | 0.37 | 0.538 | 0 | ∞ | 0.96 | 0.0 | -0.04 |
| 6 | 29.8 | 0.37 | 0.007 | 10.3 | 0.08 | 7.06 | 0.99 | 0.86 |
| 6 | 30.8 | 0.36 | 0.035 | 7.2 | 0.12 | 4.06 | 0.88 | 0.75 |
| 6 | 20.6 | 0.54 | 0.045 | 6.5 | 0.20 | 3.71 | 0.67 | 0.73 |
| 6 | 21.8 | 0.51 | 0.065 | 5.5 | 0.22 | 3.24 | 0.72 | 0.69 |
| 6 | 30.4 | 0.36 | 0.078 | 3.9 | 0.22 | 2.54 | 0.51 | 0.61 |
| 6 | 32.7 | 0.34 | 0.083 | 3.3 | 0.24 | 2.27 | 0.59 | 0.56 |
| 6 | 20.3 | 0.54 | 0.111 | 2.5 | 0.51 | 1.95 | 0.51 | 0.49 |
| 6 | 35.1 | 0.31 | 0.134 | 0.9 | 0.82 | 1.32 | 0.26 | 0.24 |
| 6 | 26.9 | 0.41 | 0.172 | 0.5 | 2.07 | 1.16 | 0.12 | 0.14 |

した後、水を 1 N-HCl に切り換え、その時の時間を $t=0^*$ として溢流管出口 f における塩酸濃度 c の時間的变化を測定し、残余濃度曲線 ($1-c/c_0$ 対 t/θ 曲線) を求めた。液柱高さ Z は常に 56 cm に保つようにした。この場合の液柱塔本体の実容積は 660 ml であった。実験範囲は $p_i=1, 4, 6$ kg/cm², $L=0.31\sim 0.51, 1.2\sim 1.4$ cm³/sec, $G_p=0\sim 0.54$ cm³/sec, $\theta=8.0\sim 9.5, 20.3\sim 35.3$ min である。

測定した残余濃度曲線を半対数紙上にプロットし、矢木ら⁶⁾、永田ら³⁾の方法に従って解析した。まず、直線の傾斜 S より $P'_e = \bar{u}Z/2E$ を算出した。気泡を通じた場合の液柱高さの増大は最大 0.7 cm 程度であったのでこれを無視して P'_e より E を算出した。種々の実験条件下の P'_e, E, S, I などを一括して Table 1 に示す。 I_{ca1} は $I=1-1/S$ の関係より計算した I

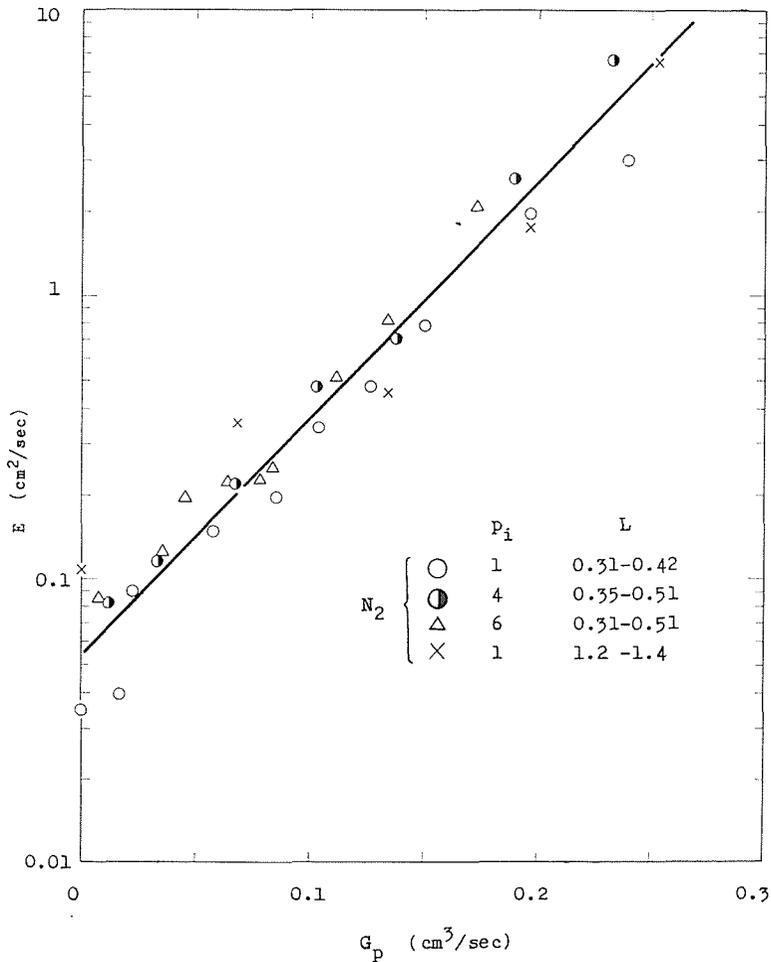


Fig. 8. E vs. G_p

* 1 N-HCl の導入パイプの一部、溢流管などの液柱塔本体以外の部分 (74 ml) による t のおくれを補正して $t=0$ とした。この部分では液の混合はないものとした。

の値であって、測定値の I の検討のため表中に示してある。Fig. 8 は E と G_p との関係を示したもので、 E は p_i , L などに影響されず、実験的に簡単に

$$E \propto \exp(G_p) \quad (3)$$

なる関係を得た。

同一 G_p において E が p_i , L 等にあまり影響されないことは、実験範囲内では d/a , d_0 , u_B , σ , ϵ 等が p_i , L などにより大きく変化しないことから推察される。

4. 結 論

単一オリフィスによる気泡攪拌型加圧反応器の混合状態を知る目的で、先づ、 $p_i=1\sim6$ kg/cm², $L=0$ cm³/sec, $G_p=0\sim4$ cm³/sec の実験範囲内で、N₂, H₂ 両ガスについて気泡の形状、大きさ、分布などを検討した結果、従来の研究とほぼ同様な傾向を得たが、H₂ の場合は d/a , d_0 , σ などが N₂ の場合と完全には一致せず、気体の物性の影響が若干認められた。

次に、混合特性を検討するため、 $p_i=1\sim6$ kg/cm², $G_p < 0.54$ cm³/sec, $\theta=8.0\sim9.5$, 24.3~35.3 min で残余濃度曲線を求め、近似的に拡散モデルにしたがって E を算出した。実験範囲内では同一 G_p において E は p_i , L 等によって殆んど影響されないが、 G_p によって大きく変化する、 $E \propto \exp(G_p)$ の関係が得られた。

Nomenclature

| | |
|--|------------------------|
| a : lengths of semi-major axes of spheroid | (cm) |
| b : lengths of semi-minor axes of spheroid | (cm) |
| C : concentration of HCl | (N) |
| C_0 : initial concentration of HCl | (N) |
| d : equivalent spherical diameter of bubble | (cm) |
| d_0 : geometric mean diameter of bubble | (cm) |
| E : longitudinal dispersion coefficient | (cm ² /sec) |
| G : volumetric flow velocity of gas at standard conditions | (cm ³ /sec) |
| G_p : volumetric flow velocity of gas at experimental conditions | (cm ³ /sec) |
| G'_p : linear flow velocity of gas at experimental conditions | (cm/sec) |
| H_0 : initial height of liquid column | (cm) |
| H_p : height of bubble bed | (cm) |
| I : fraction of piston flow | (—) |
| $I_{cal} = 1 - 1/S$ | (—) |
| L : volumetric flow velocity of liquid | (cm ³ /sec) |
| p_i : pressure of column | (kg/cm ²) |

| | |
|---|----------|
| S : values obtained graphically from $C/C_0 = e^{-S[(t/\theta)-1]}$ at $I < t/\theta$ | (—) |
| t : time | (min) |
| \bar{u} : superficial velocity of liquid based on empty tube | (cm/sec) |
| u_B : average ascending velocity of bubbles | (cm/sec) |
| u_p : average velocity of gas through nozzle | (cm/sec) |
| $P'_e = \bar{u}Z/2E$ | (—) |
| Z : length of liquid column | (cm) |
| ε : fraction of gas in the column | (—) |
| θ : mean residence time of liquid | (min) |
| σ : logarithmic standard deviation | (—) |

参 考 文 献

- 1) Kölbl, H., Borchers, E. and Langemann, H.: *Chem-Ing-Tech.*, **33**, 668 (1961).
- 2) Leibson, I., Holcomb, E. G., Cacosso, A. G. and Jacmic, J. J.: *A. I. Ch. E. Journal*, **2**, 296 (1956).
- 3) 永田進治・江口 弥・稲村寿一・谷川 澄・田中知治: 化学工学, **17**, 387 (1953).
- 4) 只木楨力・前田四郎: 化学工学, **27**, 147 (1963).
- 5) 武谷 愿: 燃料協会誌, **41**, 466 (1962).
- 6) 矢木 栄・宮内照勝: 化学工学, **17**, 382 (1953).
- 7) 吉留 浩: 化学工学, **27**, 27 (1963).