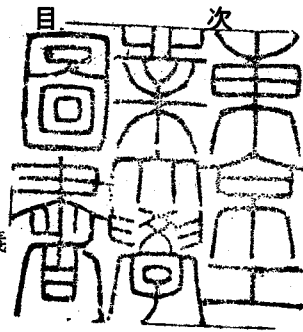


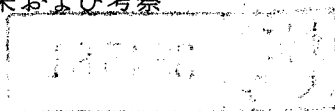
論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	多孔板塔における流体混合の研究
Title(English)	
著者(和文)	海野肇
Author(English)	HAJIME UNNO
出典(和文)	学位:工学博士, 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:乙第618号, 授与年月日:1975年7月23日, 学位の種別:論文博士, 審査員:
Citation(English)	Degree:Doctor of Engineering, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:乙第618号, Conferred date:1975/7/23, Degree Type:Thesis doctor, Examiner:
学位種別(和文)	博士論文
Type(English)	Doctoral Thesis



第 1 章	緒 論	1
1.1	序	2
1.2	本研究の目的と意義	2
1.3	既往の研究の概要	3
1.4	本論文の構成と内容	9
第 2 章	多孔板上における流体の混合	11
2.1	序	12
2.2	多孔板上での液の混合	12
2.2.1	乱流拡散の解析方法の適用	12
2.2.2	定常点源法による混合特性の解析	14
2.2.3	定常濃度分布の特徴	15
2.2.4	拡散モデルとの関係	16
2.2.5	実 験	17
2.2.5.1	実験装置および方法	17
2.2.5.2	実験結果および考察	18
2.3	多孔板上での気体混合	21
2.3.1	乱流拡散モデルの適用	21
2.3.2	実 験	24
2.3.2.1	実験装置および方法	24
2.3.2.2	実験結果および考察	24
2.4	本章の結論	26
第 3 章	多孔板上での液の混合モデル	27
3.1	序	28
3.2	混合モデル	28
3.3	普通の多孔板での液の混合モデル	29
3.3.1	混合特性値とモデルパラメータとの対応	29
3.3.2	モデルパラメータの実験的決定方法	32
3.3.3	混合過程の表現	37
3.3.4	実 験	38
3.3.4.1	実験装置および方法	39
3.3.4.2	実験結果および考察	41
3.4	本章の結論	42
第 4 章	2 段式多孔板上での液の混合モデル	43

4.1	序	44
4.2	2段式多孔板の特徴	44
4.3	混合モデル	46
4.3.1	モデルパラメータの決定方法	46
4.3.1.1	時間々隔 Δt の決定方法	47
4.3.1.2	セルの大きさ Δx の決定方法	47
4.3.1.3	推移確率 p, q, r の決定方法	48
4.3.2	混合過程の表現	52
4.3.3	実験	53
4.3.3.1	実験装置および方法	53
4.3.3.2	実験結果および考察	55
4.4	本章の結論	57
第5章	混合モデルの物質移動過程への応用	59
5.1	序	60
5.2	物質移動過程の表示方法	60
5.3	普通の多孔板での物質移動の扱い	61
5.3.1	物質移動過程の表現	62
5.3.2	実験	67
5.3.2.1	実験装置および方法	67
5.3.2.2	実験結果および考察	68
5.3.3	物質移動効率に及ぼす液混合の影響	70
5.4	2段式多孔板上での物質移動の扱い	72
5.4.1	物質移動過程の表現	72
5.4.2	実験	74
5.4.2.1	実験装置および方法	74
5.4.2.2	物質移動効率に及ぼす液混合の影響	74
5.4.3	実験結果および考察	77
5.5	本章の結論	78
第6章	混合特性値と操作条件との関係	79
6.1	序	80
6.2	変動速度	80
6.2.1	変動速度と操作条件との関係	80
6.2.2	実験	80
6.2.2.1	実験装置および方法	80
6.2.2.2	実験結果および考察	82



6.3	タイムスケール	86
6.3.1	タイムスケールと操作条件との関係	88
6.3.2	実験結果および考察	89
6.4	本章の結論	91
第7章	本研究の総括	93
7.1	序	94
7.2	本研究の総括	94
7.3	今後の問題	95
記号		96
引用文献		102

第 1 章

緒 論

本章では、本研究に対する目的と意義を明らかにし、既往の研究を概観して本研究の立場を明確にする。

1. 1 序

本研究は棚段式気液接触装置のうち、構造が最も簡単なものの1つである多孔板塔を取り上げ、棚段上での液の混合を乱流拡散現象の立場から把え、その特性を基礎にした物質移動過程も容易に考慮し得る数式モデルを確立しようと意図したものである。

本章では、本研究に対する目的およびその意義を明らかにし、既往の研究を概観して本研究の位置づけを行った。

1. 2 本研究の目的と意義

棚段塔を用いた気液接触操作は酒類の蒸留に関連して非常に古くから発展して来た。化学工業が発展するにつれて、2成分以上の混合液の分離方法の1つとして蒸留あるいは精留操作が応用され、棚段塔がその代表装置として広く用いられる様になった。その後、気体中の有用微量成分の分離のための吸収操作として、また最近では環境問題とも関連して排ガス中の有害成分の除去にも応用され、ガス吸収装置としても棚段塔は重要性を増している。

棚段式気液接触装置は上の棚段から流下してくる液と、下の棚段から上昇してくる気体とを棚段上で混合接触させて物質移動を行なわせる装置である。気・液の良好な接触効果を得るため、棚段の構造に関する非常に数多くの試みが成され実用化されている。良好な気・液の接触効果を得るためには気・液のホールドアップを棚段面上にできるだけ多く保持することが必要であるという発想から開発されたのがいわゆる泡鐘段であり、これが1950年代迄は棚段塔の主流を占めていた。泡鐘段は構造が複雑で建造費が高く、保守の上でも構造の複雑さが欠点になることが少なくなかった。そこで、これに代るものとして構造が極めて簡単な多孔板が古くから注目されていた。安定な操作範囲が泡鐘段よりも著しく狭いという懸念があり、非常に早い時期に使用された1818年のCelier, 1832年のCoffeyの例¹⁶⁾があるにもかかわらず、実用化されたのは非常に遅れた。1950年代からの多数の研究成果によってこの懸念はそれ程重要な問題ではなく、むしろその他の多くの利点が認められるにつれて実用化が活発になった。現在では泡鐘段に代ってバルブトレイと共に多孔板が最も多く使用されている。

棚段塔を用いた気液接触装置に関する研究の歴史の中で特筆すべきものは、泡鐘段の設計手順を確立するために行われた1952～1957年にわたるAIChEの総合研究である。その成果は、“Bubble Tray Design Manual”(1958年)¹⁾として刊行されている。AIChEの研究では液の混合が物質移動効率に及ぼす影響を主として拡散方程式に基く拡散モデルを用いて解析し、その推算法を示している。

このAIChEの研究以来、多孔板塔に対する段効率の推算方法もこの方法が流用されている。しかし、多孔板を用いた実験によってHarrisら(1962年)²⁶⁾はAIChEの方法では段効率に及ぼす液混合の影響を低く見積りすぎること指摘している。また、AIChEの研究以来、棚段上の液

混合そのものの研究も活発になった。宮内ら(1966年)⁴³⁾は多孔板上の液の混合を拡散モデルを前提として実験的に検討した結果、液流方向の拡散係数はトレーサ注入点から遠ざかるにつれて次第に大きくなる様に観察されるという事実を認めている。

これらの事実は多孔板上での液の混合現象についての理解が不十分であることを意味している。この問題に対する1つの解答を与えることは、微かではあっても化学工学の研究分野の進歩の一翼を担うものと考え、多孔板上での液混合の研究に着手した。

本研究では

- 1) 多孔板上での液体の混合を、従来の拡散モデルを一步進めた乱流拡散現象の立場から解析する。
- 2) 乱流拡散現象の考え方に基いた液混合の数式モデルを得ると同時に、混合モデルを決定する混合特性値の実験的決定方法を確立する。
- 3) この混合モデルを物質移動過程に応用した数式モデルを得て物質移動と液混合の關係に新しい解釈を与える。
- 4) 応用の便利のために混合特性値と操作変数との相関方法を得る。

ことを目的とした。

乱流拡散現象として液の混合を扱うためには、多孔板上での液の乱流構造を解明した上で考察するのが正攻法である。しかし、多孔板上には気・液が2相流の状態が存在し、その計測技術が必ずしも十分でないため、現時点ではこれが不可能である。

本研究の方法は、この正攻法に対する1つの近似方法であるが、工学的に十分な精度を持った方法である。本研究は、槽列モデルや拡散モデルによる従来の方法では明らかにし得なかった多孔板上の液混合の問題点を明確にし、これに対する1つの解法を示し、さらにその適用方法を開発したもので、この点に工学的意義があると考えられる。

なお、本研究で示した考え方は高速大型計算機の使用を前提としており、計算機が発達した今日において初めて可能になった方法であると著者は考えている。

1. 3 既往の研究の概要

棚段上での液の混合が物質移動効率に影響を及ぼすと認識されたのは Kirschbaum (1935年)³⁶⁾ が棚段上の液の混合状態を完全混合とし、また Lewis (1936年)⁴⁰⁾ が棚段上での液中に濃度勾配を認め、その解釈のために液の流れをピストン流れとして解釈したのに始まる。それ以来、いわゆる段効率との関連で気・液の混合機構を種々仮定した解析的研究が行なわれた。

Kirschbaum が仮定した完全混合と Lewis が仮定したピストン流れは混合状態の両極端を表わし、実際の棚段上での液の混合状態はこれらの中間にある。この中間の混合状態の大づかみを表現に Gautreaux ら (1955年)²¹⁾ はいわゆる槽列モデルを提案した。これは完全混合状態の部分をつか直列したものを実際の混合状態と等価とみなすもので、Gautreaux らはこれを mixing pool モデル

と呼び、その pool 数と操作条件との関係を経験的に与えた。

これと前後して AIChE の段効率の推算に関する総合研究 (1952~1957年) と関連して、またはこれに触発されて幾多の混合モデルが提案された。これらを大別すると、

- 1) 完全混合とピストン流れの概念に、気体と全々接触せずに通過するバイパス流れの概念を加え、これらを適当に組み合わせたモデル (表 1-1)

表 1-1 組み合わせモデル

年 代	研 究 者	文献番号	注
1935	Kirschbaum	36	完全混合
1936	Lewis	40	ピストン流れ
1941	Walter ら	59	ピストン流れ
1953	永田ら	46	ピストン流れと完全混合槽が並列 (押し出し比率)
1955	Gautreaux ら	21	槽 列
1956	Oliber ら	47	再循環
	Crozier	12	再循環
1958	Johnson ら	33	飛沫飛散
1959	藤田ら	20	ピストン流れと完全混合が直列 (I 因子)
1963	Strand	55	完全混合とバイパスが並列
1964	Eduljee	13	槽 列
1968	Aleksandrov ら	2	並列な完全混合槽
	Kafarov ら	34	拡散と完全混合が直列
	Lebedev ら	38	バイパスと逆流が並列
1970	Ashley ら	5	槽 列
	Molekanov ら	44	2つの完全混合槽が並列
1971	Bushuev ら	10	槽 列
1972	Porter ら	51	円形トレイ, 拡散モデルの組み合わせ

- 2) 混合状態を把握するためにトレーサ物質を注入すると分子拡散と類似の混合過程が観察される事実から、液の混合効果を見掛け上の拡散として表現する拡散モデル (表 1-2)

- 3) 棚段上での混合状態の観察に基くというよりはむしろ、棚段をブラックボックスとみなした液の滞留時間分布で混合状態を表わそうとするもの (表 1-3)

の3つになる。

表 1-2 拡散モデル

年代	研究者	文献番号	注
1954	Anderson	3	
1955	Wharton	62	
1956	Wehner ら	60	
1959	Gilbert	23	
1960	江口ら	14	
	Williams ら	63	
1962	Barker ら	7	
	原田ら	25	
1963	Gerster	22	
1964	Eduljee	13	バルブトレイ
	Welch ら	61	
1966	宮内ら	43	ガス流方向の混合も扱う
1967	Thomas ら	58	滞留時間分布と関連
1969	Haselden ら	28	
1970	Ashley ら	5	
	Hartlandら	27	
1971	Butcher ら	10	アンニュラートレイ
	Slobodyanikら	54	
1972	Bell	8	円形トレイ
	Porter ら	51	円形トレイ

表 1-3 滞留時間分布モデル

年代	研究者	文献番号	注
1958	Foss ら	18	
1960	宮内	42	
1972	Bell	8	円形トレイの循環流の表現

組み合わせモデルは、明確な偏流や循環流がある場合以外は多くが概念的で、必ずしも棚段上での混合現象の特性を十分に表わしているとはいえない。

極端な偏流や循環流がない普通の操作条件の下では、速度分布のために生ずる様な必ずしも逆混合の形で生じていない見掛け上の混合現象も含めて、多孔板上での液混合の大略は拡散モデルで表わせる。このため、AIChEの最終報告でも拡散モデルを採用しており、多くの研究者が棚段上の液混合の程度を拡散係数で表わしている。なお、拡散モデル、拡散係数は混合拡散モデル、見掛けの拡散係数あるいは混合拡散係数とも呼ばれているが、本論文では単に拡散モデル、拡散係数と表わす。

棚段上で生じている物質移動過程が一次過程で表わせるならば、液の滞留時間分布を知ることによって段効率を知ることができる。この観点に立つ代表的な研究は Foss ら(1958年)¹⁸⁾と宮内(1960年)¹²⁾のものである。

既往の棚段上での液混合を扱った実験的研究における混合状態の測定方法をみると、これはトレーサ法とそれ以外のものに大別される(表1-4)。トレーサ法はさらに定常法と非定常法に分けられる。

表 1-4 混合の実験法

		年代	研究者	文献番号	注		
ト レ イ サ 法	定 常 法	1962	原田ら	25			
			Barkaer ら	7			
		1966	宮内ら	43			
		1968	井上ら	64			
		1969	井上ら	65		ガスの混合	
	非 定 常 法		1958	Foss ら		18	
			1959	Gilbert		23	
			1962	Barker ら		7	
			1964	Welch ら		61	バルブトレイ
			1967	Thomas ら		58	
		1971	Aleksandrov ら	2	バラストトレイ		
	1972	Porter ら	50				
		Bell	8,9				
	1974	海野ら	69				
非 ト レ イ サ 法		1958	Johnson ら	33			

拡散モデルを前提としたトレーサ定常法による実験的研究では、大部分が液流に直角な面に面源状にトレーサを注入して液流の上流側に形成される濃度分布を測定している。これは液流方向のみの混合を拡散係数で表わすのに便利な方法であるために他ならない。

定常法では、面源よりは線源、線源よりは点源による濃度分布の方が混合に関する情報をより多く含んでいる。それにもかかわらず、点源を用いた研究が少ないのは、解析の困難さのためというよりは棚段の構造が複雑な泡鍾段での実験方法がそのまま踏襲されているためと考えられる。泡鍾段に比べて流動状態の不規則性が少ない多孔板では、線源あるいは点源を用いてより詳しい液混合の検討が可能と考えられる。

トレーサ非定常法では大部分が電解質溶液をトレーサに用い、液の電気伝導度を測定する方法をとっている。電極を電解質濃度検出端として用いる場合、激しく運動している泡の存在によって応答が著しく乱される。このため、1回の測定では必ずしも正確な応答が得られない。このためかトレーサ非定常法による実験は比較的少ない。

極最近 Bell (1972年)³⁹⁾ はグラスファイバーを用いて着色トレーサの濃度を光学的に測定する方法を開発しているが、検出端自身がかかなり大きくなるきらいがあり、問題が残されている。

トレーサを用いない液混合の研究では、Johnson ら (1958年)³³⁾ の気体が吹き飛ばす液の飛沫量を単孔板について実測した研究が挙げられる。この方法では実際の多孔板と比べて流動状態が異なり、実際の現象の把握は困難と考えられる。

以下では本論文に直接関係する既往の研究を概述し、本研究との関連を明確にする。

多孔板上での液の流動状態から、液の混合は乱流拡散現象として扱われる。表1-2に示した研究者の大部分がこの点を認めている。しかし、実際には形式的に拡散係数の概念を導入しているのに他ならず、乱流拡散の立場から考察しているものは殆んどない。わずかに宮内ら (1966年)⁴³⁾ が実験的に乱流拡散現象とみるべきことを指摘している程度である。図1-1は矩型多孔板について、トレーサを液流と気流に直角な方向に平行な定常線源として注入したときの濃度分布を示した宮内らの実験結果の1例である。⁴³⁾ 拡散モデルが成り立つとすれば、この場合の濃度分布を与える基礎式は物質収支から式(1-1)となる。

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{\varphi} E_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \bar{\varphi} E_z \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - \bar{u}_l \frac{\partial C}{\partial x} = -\delta(x) \delta(z-z_0) \\ \frac{\partial C(x, 0)}{\partial z} = \frac{\partial C(x, h_f)}{\partial z} = 0 \\ C(-\infty, z) < \infty, \quad C(+\infty, z) < \infty \end{array} \right. \quad (1-1)$$

ここに、 x, z はトレーサ注入点および多孔板面を原点とした液流および気流方向の座標を、 z_0 はトレーサ注入点の z 座標を表わす。 $C(x, z)$ は濃度で、 $\bar{\varphi}, \bar{u}_l, E_x, E_z, h_f$ はそれぞれ液の平均体積分率、液の平均速度、 x 方向と z 方向の拡散係数および泡沫層高さを表わす。また、 $\delta(x), \delta(z-z_0)$ はトレーサ注入点を示すデルタ関数である。

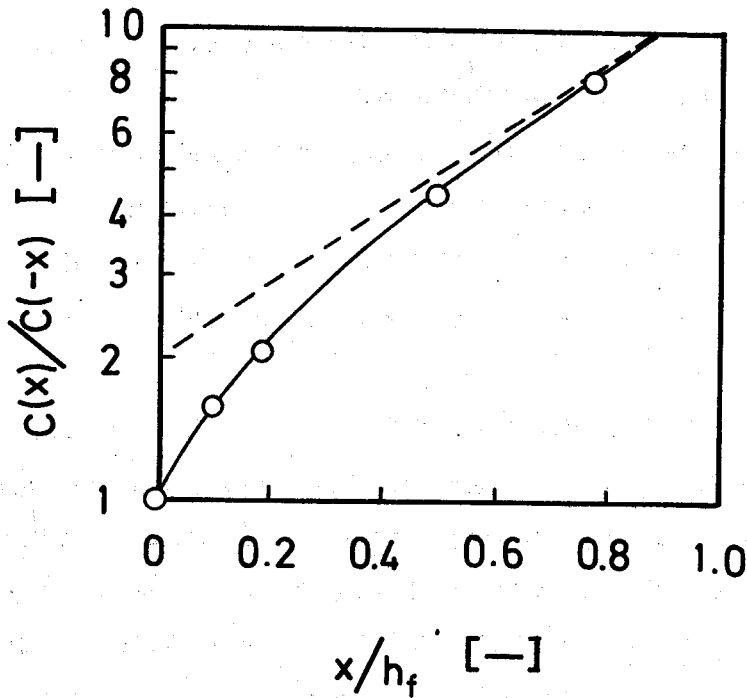


図 1-1 宮内らの実験結果⁴³⁾

式(1-1)の解は式(1-2)で与えられる。

$$\frac{C h_f \bar{u}_z}{Q_t} = \left\{ 1 + \exp\left(\frac{P_{e,x} x/h_f}{2}\right) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\cos n\pi z_0/h_f \cdot \cos n\pi z/h_f}{\sqrt{\frac{1}{4} + \frac{n^2 \pi^2}{P_{e,x} P_{e,z}}}} \times \right. \\ \left. \times \exp\left(-P_{e,x} \frac{x}{h_f} \sqrt{\frac{1}{4} + \frac{n^2 \pi^2}{P_{e,x} P_{e,z}}}\right) \right\} \exp\left(\frac{P_{e,x}(x-|x|)}{2 h_f}\right) \quad (1-2)$$

拡散係数 E_x が一定であれば Peclet 数 $P_{e,x} = \bar{u}_z L_x / E_x$ は一定となるから式(1-3)が成立し、 $\ln \{ C(x, z) / C(-x, z) \}$ と x の関係は原点を通る勾配が $P_{e,x} / h_f$ の直線にならなければならない。

$$\frac{C(x, z)}{C(-x, z)} = \exp\left(P_{e,x} \frac{x}{h_f}\right) \quad (1-3)$$

しかし、図1-1の宮内ら⁴³⁾が得た実験結果は明らかに式(1-3)の関係に従わない。式(1-3)を考慮すると、拡散係数はトレーサ注入点近傍では小さく、これから遠ざかるにつれて大きくなって一定値に漸近することがわかる。宮内らが指摘している様に、この結果は多孔板上の液の混合現象を乱流拡散現象として捉えるべきことを意味すると解釈される。このため、より正確な混合現象の解析のためにはこの観点からの解析が是非必要と考えられる。

均相流体の流体力学的な問題を除けば、化学工学の他の対象についても、混合現象を乱流拡散現象の立場から実験的に検討しているものは少い。その中で、Hanratty ら (1956年)²⁴⁾ は流動層での固体粒子の混合を乱流拡散として扱っている。また、Frenkiel (1953年)¹⁹⁾ は流体を微小な流体要素という概念の集合体と考えて乱流拡散を記述している。

本論文では、乱流拡散現象の立場に立てば、Hanratty らの考え方および Frenkiel が示した方法から多孔板上での流体混合の新しい取扱い方に対する指針が得られるという考えに立つて考察を展開した。

乱流拡散現象の立場から考える場合、何を混合の特性値とするのかを明確にしておかなければならない。本研究では、Hinze³⁰⁾ や Frenkiel¹⁹⁾ が述べている流体要素の概念を導入して着目流体要素の混合過程に着目し、この混合過程を表わす代表パラメータで液の混合を表わす立場をとった。

さて、棚段の気液接触効果をよくするために、泡鍾段が実用化されて以来、非常に多数の棚段の構造が提案され実用化されて来た。多孔板そのものについても、単に孔径や孔間隔についての改良に限らない。Ashley ら (1973年)⁵⁾ がV型のバツフルを液流に直角に配置すると気・液の良好な均一接触が得られることを報告しているのはその1例である。

安定な流動状態を保ったまま液のホールドアップを十分大きくし得るならば、気・液の接触面積の増大が得られ、良好な接触効果が得られるはずであるという観点に立つて著者は2段式多孔板を考案した。Porter ら (1966年)⁵⁰⁾ は泡鍾段の実験で、泡沫層中に棚段面に平行に金鋼を設置すると界面積が増加すると認めているが、これと同様な効果が2段式多孔板にも期待し得る。

本研究では、この2段式多孔板での液の混合過程および物質移動過程も普通の多孔板と同様に乱流拡散現象の立場から扱い得るとして考察を行った。

1. 4 本論文の構成と内容

第2章では多孔板上での流体の混合を乱流拡散現象の立場から把え、その混合特性を実験的に検討した。本論文では、第2章の方法を乱流拡散現象の立場から考察するという意味で乱流拡散モデルと呼ぶことにする。ここでは、混合特性を流体要素の乱れの速度とタイムスケールで表わした。同時にこれらと拡散係数および拡散モデルとの関係も明確にした。2.2節では多孔板を2次元的に把え、トレーサ定常点源法を用いて液の混合特性を解析する方法を述べた。現象面から考えると、気流に直角な方向の気体の混合過程も液と同様に乱流拡散モデルで解析が可能と考えられる。2.3節ではこの点を、酸素ガスをトレーサとして実験的に検討し、乱流拡散モデルの1例を示した。ただし、本研究では、気体の混合のさらに進んだ取り扱いは今後の問題としている。

第3章では、トレーサ定常法による混合特性の解析は時間がかかる上に必ずしも精度はよくないこと、大きな偏流や循環流がない限り、物質移動過程は液流方向の混合特性に主として関係することを考慮し、第2章で考察した液の混合特性であるタイムスケールと変動速度の大きさを基礎にし得る考え方として、時間、空間の双方に関して離散的な確立過程に基づく混合モデルを3.2節で提案

し、3.3節で普通の多孔板における扱いを考察した。3.3節ではモデルのパラメータの対応関係を明らかにすると共に、混合特性値の決定方法を示し、このモデルの妥当性を実験的に考察した。

第4章では2段式多孔板について、4.2節で普通の多孔板と比べた場合の特徴を簡単に述べ、4.3節で3.2節に示した混合モデルによる液混合の表わし方を考察し、実験による検討を行った。

第5章では、多孔板塔は気・液間での物質移動を行わせるのが主たる装置であり、新らしく開発した液混合モデルが物質移動過程の表現に応用し得なければ工学的に無意味であるという観点から第3章と第4章で開発した混合モデルを物質移動過程に応用した。5.2節では、混合モデルを気体の物理吸収過程に応用した数式モデルを考察し、5.3節ではこの数式モデルを普通の多孔板に適用し、その妥当性を実験的に検証した。さらに、このモデルを用いて混合特性値と物質移動の関係を検討し、得られた結果を述べた。5.4節では2段式多孔板での気体の物理吸収過程に第4章の混合モデルを応用し、その妥当性を実験的に検討した。さらにこれから得られた結果をもとに、2段式多孔板での物質移動に及ぼす液混合の影響の簡便な評価方法を考察した。

第6章では、第3章、第4章に示した混合モデルの応用のため、混合特性値と操作条件との関係を検討し、その相関方法を考察した。6.2節では変動速度の大きさと操作条件との相関方法を、6.3節ではタイムスケールと操作変数との相関方法を考察した。

第7章は本研究の結果の総括と今後の問題点のまとめである。

第 2 章

多孔板上における流体の混合

多孔板上での流体の混合を乱流拡散の立場から捉え、乱流拡散の解析手法を用いてこれを解析し、混合特性の表示方法を考察する。

2. 1 序

本章では、多孔板上での液の混合を乱流拡散と考え、乱流拡散の解析手法を応用してこれを解析し考察した。同時に、乱流拡散現象の立場からみた場合の液の混合特性の表示方法について検討し、従来から用いられている拡散モデルとの関係も明らかにした。この方法を拡散モデルと対応させて乱流拡散モデルと呼ぶことにする。ただし、著者の解析によれば、拡散モデルは液の混合過程を乱流拡散の立場で表現した特殊な場合にすぎない。

多孔板上での液の運動は多孔板の下から孔を通して流入してくる気体の混合作用に支配されている。すなわち、液の混合は気体の運動によって引き起されるのであるから、気体の混合もその相互関係から液の混合と同様な扱いが可能と考えられる。この点についても実験的に検討を加え、乱流拡散モデルの妥当性を確めた。

2. 2 多孔板上での液の混合

2. 2. 1 乱流拡散の解析方法の適用

多孔板上での液の混合は、孔から吹き込む気体によって乱れた液のランダムな運動の結果として生ずる。この混合過程を解析するために流体要素という概念を導入する。流体要素とは、「関連する物質移動過程が生ずる時間に比べて十分長い間分裂や合一が生じないとみなせる流体としての性質を示す最小単位」で、事実上固体粒子と同様な扱いをし得る実体である。

流体要素の概念を導入すると、多孔板上での液の混合過程は各流体要素が周囲の液体や気体と相互作用しながら液の平均流の方向へ移動する過程の集積の結果とみなした乱流拡散の立場から考察できる。以下で述べる乱流拡散の考え方に基いた解析方法を従来の拡散モデルに対して、本論文では乱流拡散モデルと呼ぶことにする。

1つの流体要素に着目すると、その運動過程は Lagrange の立場から記述できるが、関係する因子が非常に多くて複雑なため、流体力学的に解くことは現在の所不可能に近い。そこで、問題解決のために第1近似として以下の仮定を前提に解析する。ただし、座標系は図 2-1 に示す直交座標系とする。

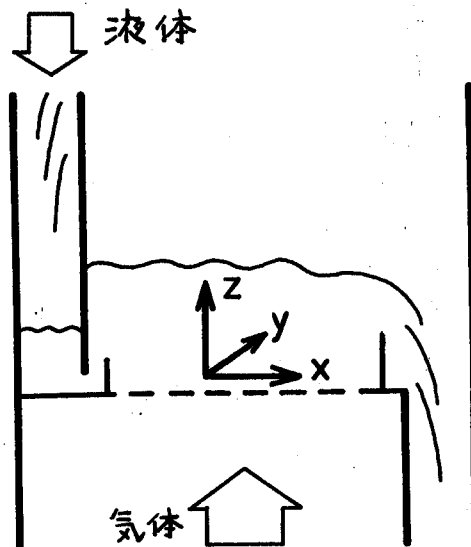


図 2-1 座 標 系

仮定 1 気流方向の液の混合は気流に直角な方向に比べて相当に大きく、気流方向には完全混合とみなして液の混合を多孔板面に平行に 2 次的に把える。

実際には気流方向に泡沫層の密度分布とこれに伴う液の速度分布もあるが、これらの特性は 2 次的な扱いをした時の場の特性の中に一諸に評価されることになる。したがって、仮定 1 の下に得られた混合特性値とこれらの分布との関係を明確にする方法も確立しておく必要がある。この点に関しては第 6 章で考察する。

仮定 2 時刻 $t = 0$ に $(x, y) = (0, 0)$ の位置にあった流体要素が $t = t$ の後に $(x, y) = (x, y)$ の位置に移動する過程は一定の確率法則に従うと考える。この確率密度関数 $\text{Pr}(x, y, t)$ は正規分布と考え、式 (2-1) で表わす。

$$\text{Pr}(x, y, t) = \frac{1}{2\pi s_x(t) s_y(t)} \exp \left\{ -\frac{(x - \bar{u}_l t)^2}{2 s_x^2(t)} - \frac{y^2}{2 s_y^2(t)} \right\} \quad (2-1)$$

$s_x^2(t)$, $s_y^2(t)$ は平均流がない場合に原点に多数の着目流体要素を瞬間的に注入した時、時刻 t の後に形成される濃度分布の x, y 方向の分散を表わす。 \bar{u}_l は液の平均速度である。

分散 $s^2(t)$ は Lagrange の立場に立つと、多数の着目流体要素の時間 t の間の変位に対する分散として次式で与えられる。¹⁹⁾

$$s^2(t) = 2 \tilde{v}^2 \int_0^t (t-t') R(t') dt' \quad (2-2)$$

$$R(t) = \frac{v'(t+t') v'(t')}{\tilde{v}^2} \quad (2-3)$$

$$\tilde{v}^2 = \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{1}{T} \int_0^T v'^2(t) dt \quad (2-4)$$

— は多数の流体要素についての平均を意味する。 $R(t)$ は変動速度の Lagrange の相関々数と呼ばれ、流体要素の運動の特性を代表する量である。

式 (2-3) から明らかな様に、 $t = t'$ での速度が $t = t + t'$ 迄持続されるとすれば、 $R(t) = 1$ となり、 $t = t + t'$ での速度が $t = t'$ の値と全く無関係ならば $R(t) = 0$ となる。すなわち、 $R(t)$ は流体要素がどの位の間に同一速度を持続するかを表わす関数とみなせる。この同一速度持続時間の尺度は Lagrange のタイムスケールと呼ばれる次式の積分時間で表わせる。

$$t_L = \int_0^\infty R(t) dt \quad (2-5)$$

以下では、これを単にタイムスケールと呼ぶことにする。

乱流拡散の考え方に従えば、多孔板上での液の混合、すなわち、式 (2-2) で示される流体要素の混合過程はその変動速度の大きさ \tilde{v} とタイムスケール t_L で代表できる。本研究では、第 3 章以後の考察でこの 2 つの量を多孔板上での液の混合過程を規定する混合特性値に採用し、考察を進める。

2. 2. 2 定常点源法による混合特性の解析

多孔板上の液の混合現象が流体要素の変動速度の相関を考慮した乱流拡散として記述できるか否かを検討するためには、トレーサを瞬間的にインパルス状に注入し、その空間的な広がりを経時的に追跡すればよい。しかし、現時点では、このトレーサが空間的に広がる過程を定量的に測定することが困難である。このため、ここではトレーサを連続的に点源状に注入した時に形成される定常濃度分布について考察する方法を検討する。

トレーサを点源状に連続的に注入する方法を定常点源法、トレーサの注入点を定常点源と呼び、この場合に形成される濃度分布を定常濃度分布と呼ぶことにする。

同一時刻に注入されたトレーサである多数の流体要素の広がりを示す流体要素の数の分布は、1つの流体要素の運動に着目すれば、その存在確率に比例するとみなせる。したがって、無限平面として扱える十分大きな多孔板を考えると、定常点源によって形成される定常濃度分布 $C(\xi, \eta)$ は式(2-1)~(2-3)を用いると次式で与えられる。

$$C(\xi, \eta) = k \int_0^{\infty} \frac{1}{\sigma_x(\theta) \sigma_y(\theta)} \exp \left\{ -\frac{(\xi - \theta)^2}{2T_x^2 \sigma_x^2(\theta)} - \frac{\eta^2}{2T_y^2 \sigma_y^2(\theta)} \right\} d\theta \quad (2-6)$$

$$\sigma^2(\theta) = 2 \int_0^{\infty} (\theta - \tau) R(t_L, \tau) d\tau \quad (2-7)$$

$$\begin{cases} \xi = \frac{x}{\bar{u}_L t_{L,x}}, & \eta = \frac{y}{\bar{u}_L t_{L,y}} \\ T = \frac{\tilde{v}}{\bar{u}_L}, & \theta = \frac{t}{t_L}, & \tau = \frac{t'}{t_L} \end{cases} \quad (2-8)$$

ξ, η は無次元座標、 T は乱れの速度の強さ、添字 x, y はそれぞれ x 方向、 y 方向を表わす。 k はトレーサ注入速度で決まる定数である。

定常濃度分布の特徴を実験と対応させて検討するために、液流に直角な方向の濃度分布の積率を考える。定常点源によって形成される定常濃度分布は x 軸に関して対称である。この点と実験精度とを考慮すると2次と4次の積率すなわち、分散 $\sigma_C^2(\xi)$ と尖鋭度 $\mu_C^4(\xi)$ を考えれば十分である。測定の容易さという点を考慮してトレーサの広がりを端的に表わす濃度分布の最大値もこれらに加えて検討する。

分散 $\sigma_C^2(\xi)$ 、尖鋭度 $\mu_C^4(\xi)$ および $\int_0^{\infty} C(\xi, \eta) d\eta$ で規格化した濃度分布の最大値 $c_M(\xi)$ はそれぞれ式(2-9)~(2-11)で与えられる。ただし、 $S^2(x)$ は y 方向の定常濃度分布の分散を表わす。

$$\sigma_C^2(\xi) \equiv \frac{S^2(x)}{(\bar{u}_L t_{L,y})^2} = \frac{T_y^2}{D(\xi)} \int_0^{\infty} \frac{\sigma_y^2(\theta)}{\sigma_x^2(\theta)} F(\xi, \theta) d\theta \quad (2-9)$$

$$\mu_C^4(\xi) \equiv \frac{3T_y^4}{\sigma_C^4(\xi) D(\xi)} \int_0^{\infty} \frac{\sigma_y^4(\theta)}{\sigma_x^4(\theta)} F(\xi, \theta) d\theta \quad (2-10)$$

$$c_M(\xi) \equiv \frac{1}{\sqrt{2\pi} T_y D(\xi)} \int_0^\infty \frac{1}{\sigma_x(\theta) \sigma_y(\theta)} F(\xi, \theta) d\theta \quad (2-11)$$

$$F(\xi, \theta) = \exp \left\{ -\frac{1}{2T_x^2} \frac{(\xi - \theta)^2}{\sigma_x^2(\theta)} \right\}$$

$$D(\theta) = \int_0^\infty \frac{F(\xi, \theta)}{\sigma_x(\theta)} d\theta$$

これらの値をさらに具体的に考察するために次の仮定をする。

仮定 3 気流方向すなわち x 軸方向に液の流速分布があるとすれば、見掛け上の乱れの速度 \tilde{v} は x 方向と y 方向で異ると考えられる。事実、第 6 章に示す様に見掛けの乱れの速度 \tilde{v} は液流速に依存する。しかし、簡単のため、本章の考察ではこれを無視して x 、 y 各方向の乱れの速度の大きさは等しいと仮定する。

$$\tilde{v} \equiv \tilde{v}_x = \tilde{v}_y \quad (2-12)$$

x 、 y 各方向の乱れの減衰機構は各方向での気・液の流動状態に関係する。すなわち、流体要素の変動速度に関する Lagrange の相関々数 $R(t)$ は気・液の流動状態に関係する。しかし、乱れの減衰機構を直接解明することは困難なため、次の仮定を前提として考察を進める。

仮定 4 タイムスケールは異っても規格化された流体要素の混合過程は x 、 y 各方向で等しいと考える。

$$\sigma_f^2(\theta) \equiv \sigma_x^2(\theta) = \sigma_y^2(\theta) \quad (2-13)$$

2. 2. 3 定常濃度分布の特徴

1) $T \ll 1$ の場合

乱れのスケール T が十分小さい時、式 (2-9) ~ (2-11) は鞍点法⁴⁸⁾ によって十分よい近似で式 (2-14) ~ (2-16) と計算される。

$$\sigma_c^2(\xi) \approx T^2 \sigma_f^2(\xi) \quad (2-14)$$

$$\mu_c^4(\xi) \approx 3 \quad (2-15)$$

$$c_M(\xi) \approx \frac{1}{\sqrt{2\pi} T \sigma_f(\xi)} \quad (2-16)$$

式 (2-14) (2-16) (2-7) から分散 $\sigma_c^2(\xi)$ と最大濃度 $c_M(\xi)$ は相関々数の形で決まることがわかる。すなわち、分散または最大値のトレーサ注入点からの変化から液の混合過程が乱流拡散現象として扱えるか否かを知ることができる。しかし、多孔板上での流体の変動速度は第 4 章に示すように相当大きく、 $T \ll 1$ の条件を満す場合は比較的少ない。

2) $T \ll 1$ が成立しない場合

この場合は 1) の様に実験値から直接相関々数の影響を検討できない。そこで、流体要素の速度そのものを実測することは困難なため、後の扱い易さも考えて次の仮定をする。

仮定 5 一般の乱流場において、変動速度の Lagrange の相関々数の最良近似の 1 つとさ

れている指数関数²⁰⁾を $R(t)$ に仮定する。

$$R(t) = \exp\left(-\frac{t}{t_L}\right) \quad (2-17)$$

式(2-17)によってトレーサの混合過程が近似できるか否かは数値的に検討しなければならない。

2.2.4 拡散モデルとの関係

混合拡散モデルによると着目流体要素の時間 t の間の変位の分散 $s^2(t)$ は次式で与えられる。¹¹⁾

$$s^2(t) = 2Et \quad (2-18)$$

ただし、 E は拡散係数である。

これを式(2-2)と対応させると、この場合の拡散係数および相関 α 数はそれぞれ式(2-19)(2-20)となる。

$$E = \tilde{v}^2 t_L \quad (2-19)$$

$$R(t) = \left(1 - \frac{t}{2t_L}\right) \left\{ u(t) - u(t - 2t_L) \right\}, \quad t_L \approx 0 \quad (2-20)$$

ただし、 $u(t)$ は単位ステップ関数である。

すなわち、拡散モデルは流体要素の変動速度に関する相関時間が非常に短い特別な場合である。

この時、定常濃度分布の式(2-6)とこれに対応する分散、尖鋭度および最大濃度は式(2-21)~(2-24)で与えられる。

$$C(\xi, \eta) = k \exp\left(-\frac{\xi}{2T^2}\right) K_0\left(\frac{\sqrt{\xi^2 + \eta^2}}{2T^2}\right) \quad (2-21)$$

$$\sigma_C^2(\xi) = 2T^2(\xi + 2T^2) \quad (2-22)$$

$$\mu_C^4(\xi) = 3 \left\{ 1 + \frac{1}{1 + \frac{\xi}{2T^2}} + \frac{1}{\left(1 + \frac{\xi}{2T^2}\right)^2} \right\} \quad (2-23)$$

$$C_M(\xi) = \frac{1}{2\pi T^2} \exp\left(-\frac{\xi}{2T^2}\right) K_0\left(\frac{\xi}{2T^2}\right) \quad (2-24)$$

$K_0(\cdot)$ は0次の第1種変形ベッセル関数を表わす。なお、式(2-21)の比例定数 k はトレーサの注入速度に関する。

拡散モデルと乱流拡散モデルとの最大の相違は式(2-2)と式(2-18)で示す様に流体要素の変動速度の相関の有無にある。これに伴う両者の主な相違点の比較を表2-1に示した。

表 2 - 1 モデルの比較

		乱流拡散モデル	拡散モデル
$R(t)$		$\exp\left(-\frac{t}{t_L}\right)$	$\left(1 - \frac{t}{2t_L}\right)\{u(t) - u(t - 2t_L)\}$ ただし, $t_L \approx 0$
定常濃度分布の特性	分散 $\sigma^2_C(\xi)$	曲線: 式(2-9) $\lim_{\xi \rightarrow \infty} \sigma^2_C(\xi) / \xi = 2T^2$	直線: 式(2-22) $\sigma^2_C(\xi) / \xi = 2T^2$
	尖鋭度 $\mu^4_C(\xi)$	$3 < \mu^4_C(\xi) < \infty$: 式(2-10)	$3 < \mu^4_C(\xi) \leq 9$: 式(2-23)
	最大値の勾配 $\omega \equiv \frac{d \ln C_M(\xi)}{d \ln \xi}$	$\lim_{\xi \rightarrow 0} \omega = -1$ $\lim_{\xi \rightarrow \infty} \omega = -\frac{1}{2}$ $-\frac{1}{2} < \omega$: 式(2-11)	$\lim_{\xi \rightarrow 0} \omega = 0$ $\lim_{\xi \rightarrow \infty} \omega = -\frac{1}{2}$ $\omega < -\frac{1}{2}$: 式(2-24)

2. 2. 5 実 験

多孔板上での液の混合が乱流拡散として記述できることを確認するため、定常点源による濃度分布を実測し、式(2-9)~(2-11)、(2-22)~(2-24)に検討を加えた。

2. 2. 5. 1 実験装置および方法

使用した多孔板の諸元は表2-2に示した。

表 2 - 2 実験に用いた孔板の大きさ

幅	[mm]	450
長さ	[mm]	400
堰高さ	[mm]	
入口		50
出口		40
孔径	[mm]	4
孔間隔	[mm]	15, 20, 25
開孔比	[%]	12.9 7.26 4.65
板厚	[mm]	4
孔配列		正三角形

材質はすべて黄銅

実験系は水-空気系である。

トレーサにはウラニン (fluorescein sodium : $C_{20}H_{10}O_5Na_2$) の濃度 0.25 g/l の水溶液を使用し、 2.5 m 上方の定水位槽から定常的に点源状に供給した。トレーサの定常濃度分布はアスピレータを使用して試料を吸引採取し、分光分析によって定量した。

2. 2. 5. 2 実験結果および考察

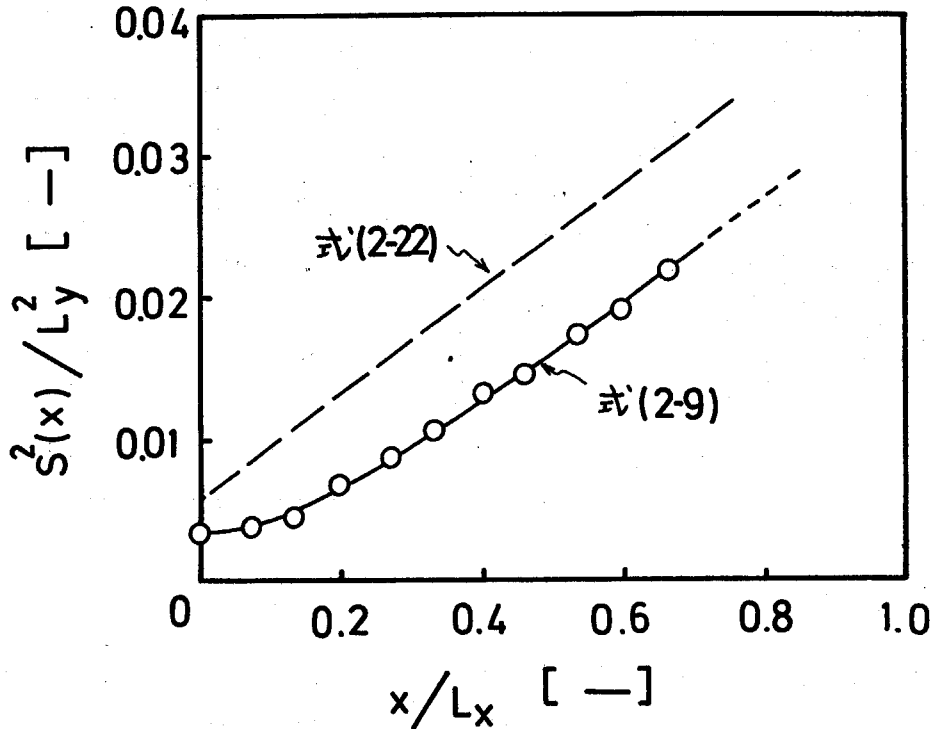


図 2-2 定常濃度分布の分散

($\bar{u}_x = 5.68 \text{ cm/sec}$, $U_y = 118 \text{ cm/sec}$)

図 2-2 ~ 2-4 に実測した定常濃度分布の分散、尖鋭度および最大濃度の例を示した。図中の実線は相関々数に指数関数を仮定して計算した値である。また、図中の破線は式 (2-19) から計算した拡散係数を用いた拡散モデルの値である。

これらの結果から分散 $S^2(x)$ は $x = 0$ の近傍で曲線的な変化を示し、尖鋭度 $\mu^4_c(x)$ は $x \rightarrow 0$ で非常に大きくなって無限大へ発散する傾向を示し、さらに、最大濃度 $c_M(x)$ の変化は両対数紙上で $x \rightarrow 0$ とした時、その勾配が -1 になる傾向を示すことがわかる。この結果を表 2-1 と対応させてみると、いづれの特徴からみても拡散モデルに従うというよりは乱流拡散モデルに従っているとみる方が妥当であることがわかる。

すなわち、変動速度の Lagrange の相関々数を指数関数で近似した乱流拡散モデルによって、拡散モデルより正確に多孔板上の液の混合過程を表現できると結論される。

定常濃度分布を求めると式 (2-9) ~ (2-13) (2-17) を用いて x 方向とこれに直角な y 方向の液の混合特性が同時に求められる。その 1 例を拡散係数で示したのが図 2-5 である。この結果から次の特徴点が挙げられる。

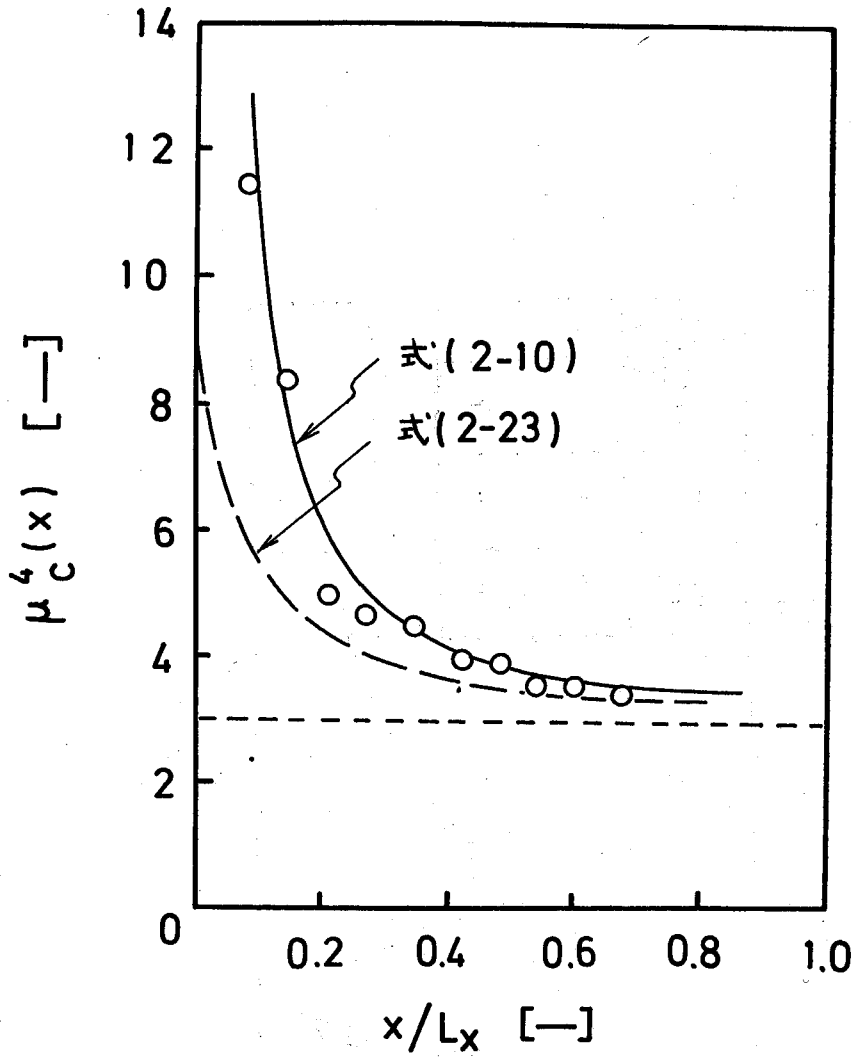


図 2-3 定常濃度分布の尖鋭度

($\bar{u}_z = 5.68 \text{ cm/sec}$, $U_g = 118 \text{ cm/sec}$)

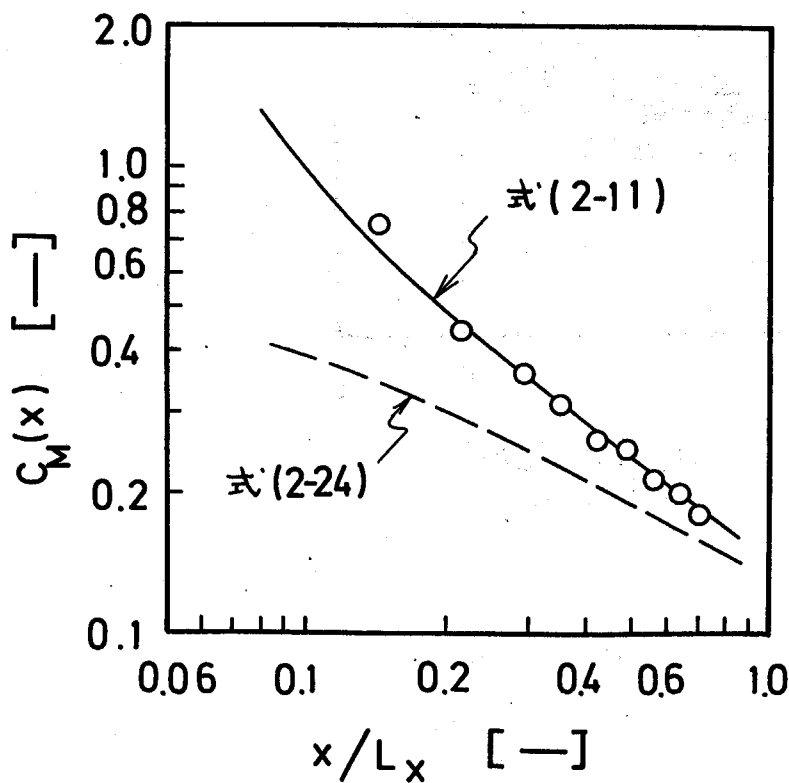


図 2-4

定常濃度分布の最大値

($\bar{u}_z = 5.68 \text{ cm/sec}$,
 $U_g = 118 \text{ cm/sec}$)

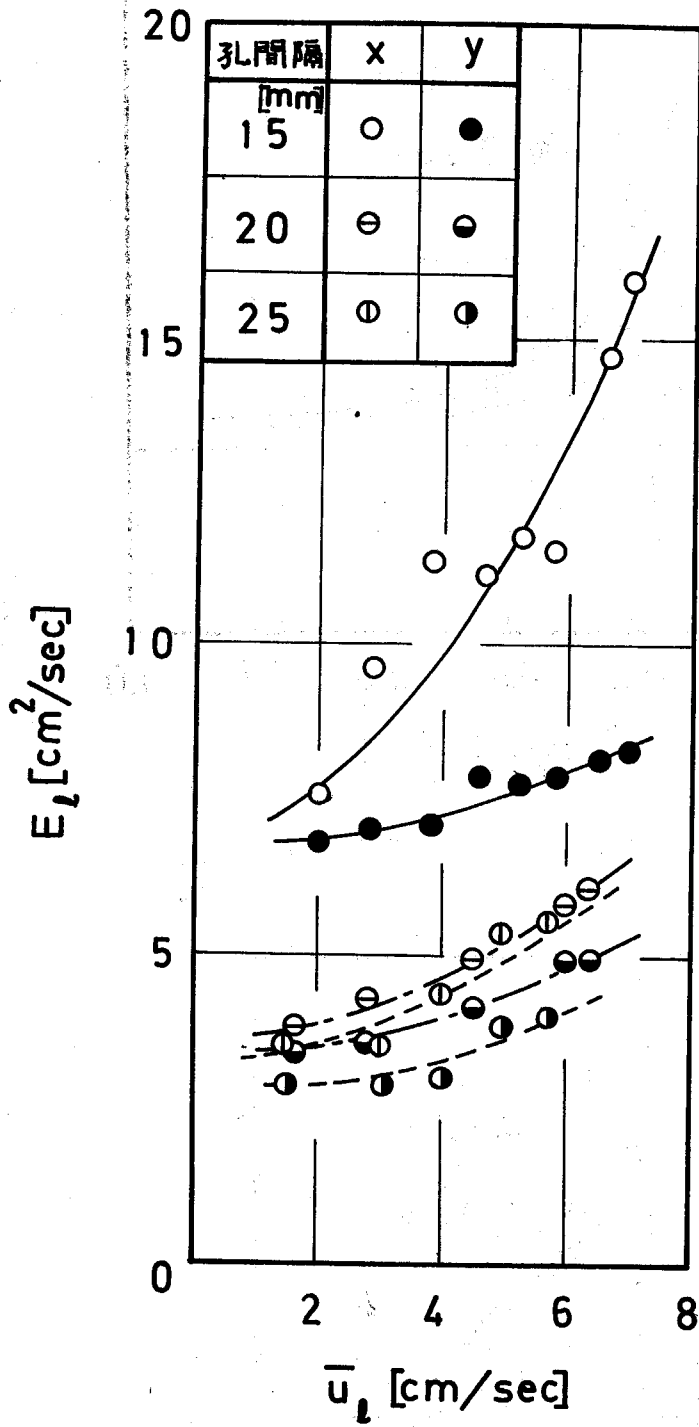


图 2-5 扩散系数
($U_g = 118 \text{ cm/sec}$)

- 1) 気体の空塔速度を一定にした時、液流方向の見掛けの拡散係数 E_x は y 方向の見掛けの拡散係数 E_y に比べて非常に大きい。
- 2) E_x は液流速に大きく依存するが E_y はあまり大きく変化しない。
- 3) 液流速が小さくなると E_x 、 E_y の差は小さくなりほぼ一致する。

これらの結果は、液の混合特性が液の流速に大きく支配されていることを示している。しかし、液の線速度それ自身は高々 10 cm/sec 程度のため、いわゆる一般の乱流拡散の様に液の平均流によって引き起された乱れの影響がそれ程大きな効果を及ぼすとは考えられない。

本論文の解析では2次的に混合現象を扱っているため、実際には気流方向の液の速度分布があるにもかかわらず、これを平均流速で代表したための影響が現われている可能性がある。すなわち、Taylor⁵⁶⁾が円管内流動における液の見掛けの拡散係数が速度分布に関係することを指摘したのと同様な影響が多孔板上での液の混合にも現われる可能性が考えられる。この点については、第6章で詳しく検討する。

本章の混合特性の解析方法では、定常点源に対するほぼ完全な濃度分布を実測する必要があり、多大の時間を要する。その上、多孔板上では大きな周期で流動状態が変動しているため、1回のサンプリングでは必ずしも平均的な濃度分布が得られるとは限らない。この影響で必ずしも実験精度は良くない。このため、定常点源法によって変動速度の大きさとタイムスケールについて定量的に考察することが困難な場合が多い。これはタイムスケールの値が 0.1 sec 程度でかなり小さいことが関係している。

従来から認められている様に、物質移動との関連で重要な役割をするのは液流方向の混合特性である。この点を考慮すると、偏流や循環流が生じない限り、工学的には y 方向の混合特性をそれ程重要視しなくてもよい。

これらの諸点から、精度のよい簡便な液流方向の混合特性を解析する方法が必要になる。この点については第3章で考察する。

2. 3 多孔板上での気体の混合

多孔板上での液の混合は気体の運動によって引き起された液のランダムな運動の集積の結果である。したがって、気体の混合、特に気流に直角方向の気体の混合過程は、2. 2で述べた液の混合過程と密接な関係にあると考えられる。

本節では2. 2の乱流拡散モデルの応用の1例として、気流に直角方向の気体の混合について考察した。

2. 3. 1 乱流拡散モデルの適用

図2-6は多孔板の孔を通過する気体の速度と等しい速度で1つの孔からトレーサとして酸素ガスを連続的に注入し、泡沫層上面に形成される定常濃度分布を求めた1例である。この分布の形は

図に示す様にはほぼ正規分布とみなせる。この結果をもとにしてデータを解析し、気体の混合を検討することができる。

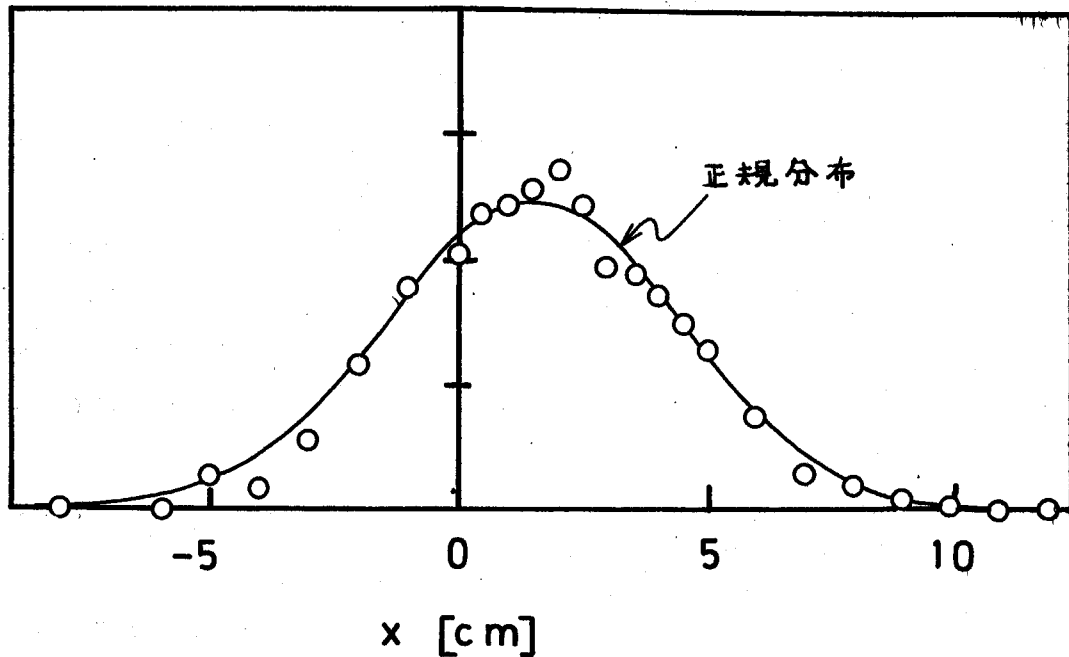


図 2-6 泡沫層上面の気体濃度の分布
 ($\bar{u}_l = 4.77 \text{ cm/sec}$, $U_g = 97.7 \text{ cm/sec}$)

仮定 1 多孔板上に流入した気体の流体要素は液の平均流方向に移動しながら混合してゆく。この混合過程は液の混合と同様に正規型確率密度関数に従い、定常濃度分布は式(2-25)で表わせると仮定する。

$$C_g(x, y, z) = k \int_0^{\infty} \frac{1}{s_x(t) s_y(t) s_z(t)} \exp \left\{ -\frac{(x - \bar{u}_l t)^2}{2 s_x^2(t)} - \frac{y^2}{2 s_y^2(t)} - \frac{(z - \bar{u}_{f,g} t)^2}{2 s_z^2(t)} \right\} dt \quad (2-25)$$

$\bar{u}_{f,g}$ は泡沫層中の気体の平均速度である。 $s^2(t)$ は気体の変動速度を用いて表わした流体要素の分散で式(2-2)により与えられる。なお、座標系は図2-7に示す様にトレーサ注入点を原点にとる。

多孔板上での液の運動の機構から考えて、気体の乱れの速度は液の乱れの速度と同程度の大きさと考えられる。液の乱れの速度は、実測した範囲では高々 10 cm/sec 程度であるから、気体の空塔速度が 1 m/sec 程度であることを考えると、気体の乱れのスケール $\bar{v}_g / \bar{u}_{f,g}$ はあまり大きくならないと考えてよい。

$\bar{v}_g / \bar{u}_{f,g} \ll 1$ の時、泡沫層上面 $z = h_f$ における濃度分布の主軸 $x_p = \bar{u}_l h_f / \bar{u}_{f,g}$, $y_p = 0$

上の分散 $S^2_{g,x}$, $S^2_{g,y}$ は式 (2-25) から 2.2 と同様な考察によって式 (2-26) (2-27) で与えられる。

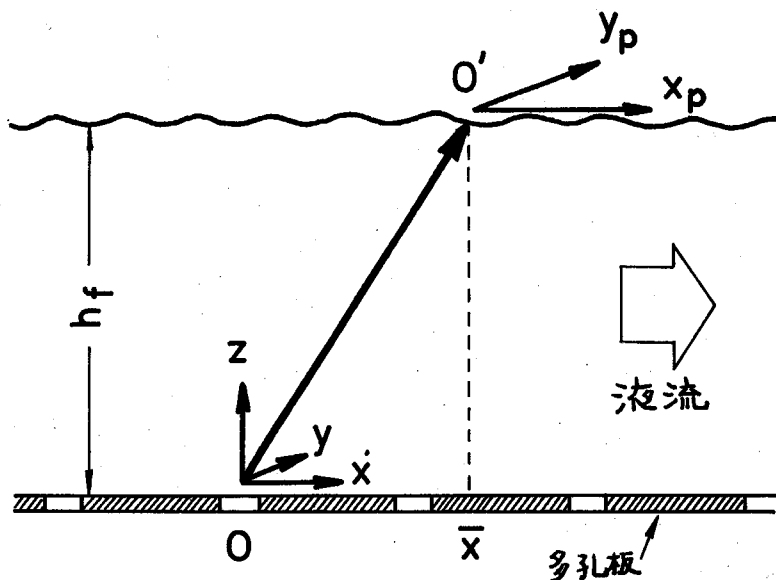


図 2-7 座 標 系

$$S^2_{g,x} = s^2_x \left(\frac{h_f}{\bar{u}_{f,g}} \right) \quad (2-26)$$

$$S^2_{g,y} = s^2_y \left(\frac{h_f}{\bar{u}_{f,g}} \right) \quad (2-27)$$

仮定 2 液体の場合と同様に気体の変動速度に関する Lagrange の相関々数も近似的に指数関数で表わせると仮定する。

$$R(t) = \exp \left(-\frac{t}{t_{L,g}} \right) \quad (2-28)$$

一方多孔板上での気液の運動を考えると、各相の乱れの状態は相互に密接に関連し合っているはずである。そこで第 1 近似として、気体の乱れの伝達される平均距離は液のそれに等しいと考えることができる。

仮定 3 流体要素が同一の乱れの速度をとる程度の時間、すなわち、タイムスケールの時間内に移動する平均の移動距離を $l_{*,g}$ と定義すると次式の様に仮定できる。

$$l_{*,g} = \bar{v}_g t_{L,g} = l_{*,l} = \bar{v}_l t_{L,l} \quad (2-29)$$

式 (2-26) ~ (2-29) から泡沫層上面での定常濃度分布の主軸上の分散 S^2_g は式 (2-30) で与えられる。

$$\left(\frac{S^2_g}{l^2_{*,g}}\right)_{x,y} = 2 \left\{ \left(\frac{h_f}{\bar{u}_{f,g} t_{L,g}}\right)_{x,y}^{-1} + \exp\left[-\left(\frac{h_f}{\bar{u}_{f,g} t_{L,g}}\right)_{x,y}\right] \right\} \quad (2-30)$$

式(2-29)(2-30)を用いると、分散 S^2_g 、泡沫層の高さ h_f 、気体の速度 $\bar{u}_{f,g}$ 、平均泡沫層密度 $\bar{\rho}$ 、液の特性距離を測定することによって気体のタイムスケール $t_{L,g}$ 、乱れの大きさ \bar{v}_g が求められる。これから、式(2-19)に従って対応する気体の拡散係数 E_g が求められる。

2.3.2 実験

多孔板上の気体の混合特性を液のそれと対応させて考察するため、定常点源による泡沫層上面に形成されるトレーサの濃度分布を実測し、拡散係数を求めた。

2.3.2.1 実験装置および方法

用いた多孔板と実験系は 2.2.5.1 に示したものと同一である。

トレーサには酸素を用い、その濃度はモレキュラーシーブ 5A を充填剤とし、担体ガスを水素としたガスクロマトグラフィーによって定量した。なお、酸素の水に対する溶解度は常温常圧で 4ppm 程度であってこれによる影響は無視し得る。

2.3.2.2 実験結果および考察

実測した拡散係数 E_g の 1 例を図 2-8 に示した。いずれの多孔板でも泡沫層が高くなるにつれて拡散係数は小さくなり一定値に漸近する傾向を示す。これは、出口堰の高さを一定とした時、液流速と共に泡沫層が高くなる点を考慮すると、図 2-5 に示した液の拡散係数とは逆の傾向を示していることになる。

一見矛盾する様に見えるこの結果は、気体の泡沫層内での滞留時間がタイムスケールと同程度に短いという点に注目すると以下の様に説明できる。

式(2-30)から拡散係数 E_g と分散 S^2_g との関係は次式で与えられる。

$$S^2_g = 2 E_g \left\{ \frac{z}{\bar{u}_{f,g}} - t_{L,g} + t_{L,g} \exp\left(-\frac{z}{\bar{u}_{f,g} t_{L,g}}\right) \right\} \quad (2-31)$$

これから明らかな様に、泡沫層の挙動が不変である限り泡沫層の増大に伴って相関の効果が減衰して E_g は泡沫層に固有の一定値に漸近する。

図 2-9 は気体の拡散係数が直感とは相容れない傾向を示す説明図である。簡単のため、泡沫層上面の境界の影響はないとする。さらに、気体の混合機構が泡沫層高 h_f によって変化しないとする。この時、定常濃度分布の分散の泡沫層高さ方向での変化過程は式(2-31)すなわち、曲線 K または K' で示される。

泡沫層の高さが低く A の位置にある時、孔 H_1 から流入した気体は隣接の孔 H_2 から流入する気体の影響をほとんど受けない中に泡沫層を通過してしまふ。したがって、各孔から発生する気泡群の混合過程は独立に曲線 K に従うと評価され、拡散係数 E_g は図中の漸近線 D すなわち式(2-32)の勾配 $2E_g / \bar{u}_{f,g} \equiv t_1$ で与えられる。

$$S_g^2 = 2E_g \left(\frac{z}{\bar{u}_{f,g}} - t_{L,g} \right) \quad (2-32)$$

一方，泡沫層の高さがBの位置にある時，隣接する孔からの気体と相互に影響し合っ曲線Kの混合過程を辿る。すなわち，気体の混合過程はいわゆる Einstein¹⁵⁾の混合機構にすでに従っていると考えられる。この時の拡散係数 E_g は図2-9中の直線D'の勾配 t_2 で決まる。 $t_1 > t_2$ であるから，泡沫層の高さが小さい程拡散係数 E_g は大きく評価されることになる。

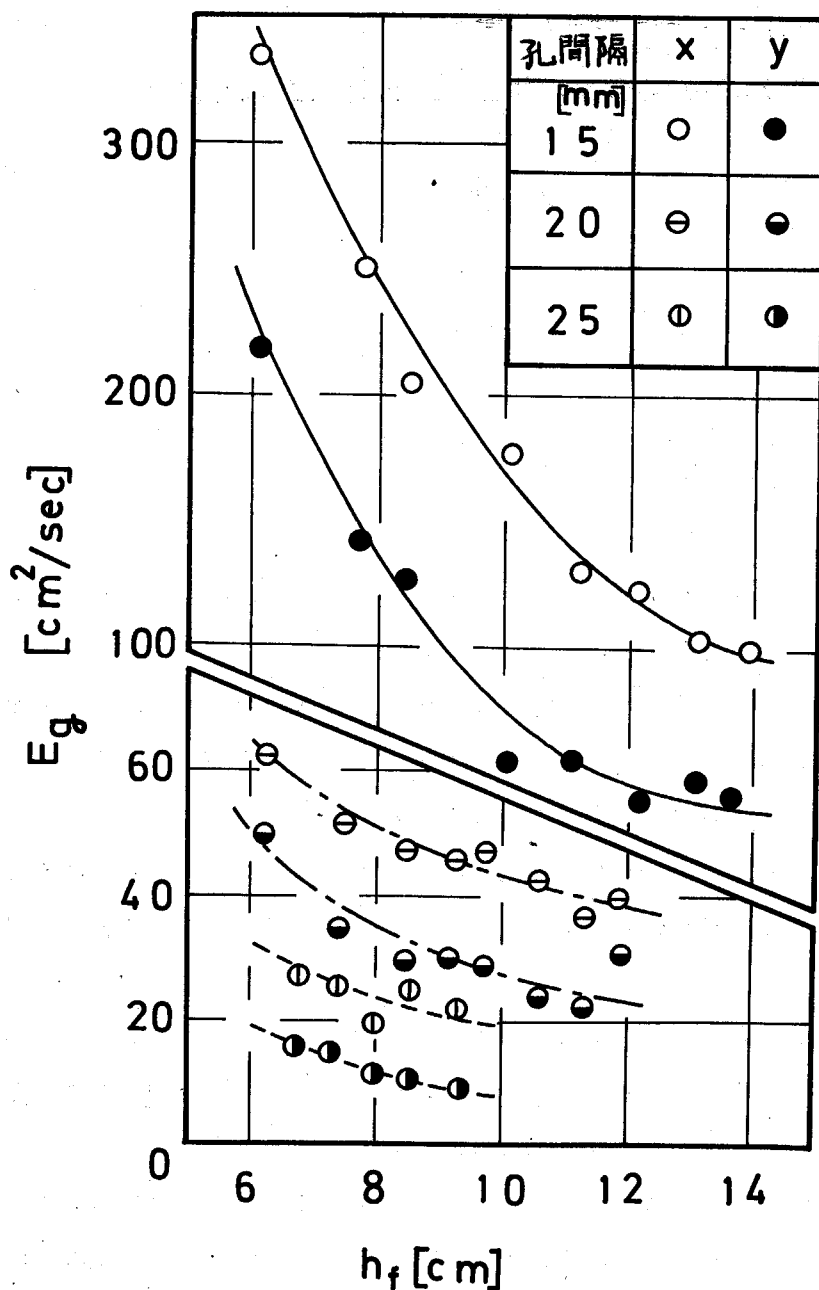


図 2-8 気体の拡散係数
($U_g = 118 \text{ cm/sec}$)

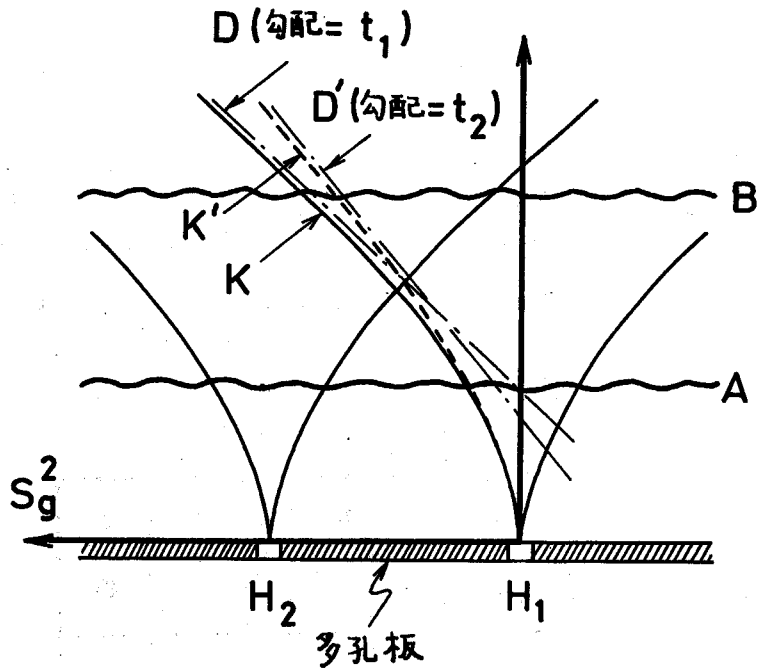


図 2-9 気体の混合過程の説明

2. 4 本章の結論

多孔板上での液の混合過程を乱流拡散モデルを用いて従来からの拡散モデルと対比して検討し、混合現象は乱流拡散の考え方でよく説明されることを示した。

乱流拡散モデルに基いた液の混合特性値として、従来の拡散係数の代りに乱れの変動速度の2乗平均平方根の値と、Lagrangeのタイムスケールを提案した。拡散係数はこれらの2つの量から求まる。また、これらの混合特性値は定常点源法によって求まる。

実験結果から拡散係数として評価した液の混合は液の流速に依存することを認めた。これは泡沫層の高さ方向の液の速度分布に関係するものと思われる。この点のさらに進んだ考察は第6章で行なり。

なお、本章で提案した混合特性値の変動速度の大きさとタイムスケールを個々に考察するには定常点源法は精度が劣る上に実測に時間がかかる。このため、混合特性値個々の測定方法および考察は別の面から行う必要がある。この点に関しては、第3章および第6章で改めて行う。

液の混合現象は気体の混合と密接に関係しているため、気体の混合も乱流拡散モデルで記述し得ると考えられる。この考えに基づいて、乱流拡散モデルの1つの応用例として気流に直角な方向の気体の混合を実験的に検討した。その結果、気体の混合は拡散係数でみる限り、見掛け上液の場合とは逆の傾向を示すことを見出したが、これも乱流拡散モデルで説明されることを示した。

第 3 章

多孔板上での液の混合モデル

多孔板の物質移動過程に関係する液の平均流方向の混合特性を、第 2 章で提案した混合特性値を考慮に入れ、時間と空間の双方に対する離散的な確率過程に基いた混合モデルにより考察する。

3. 1 序

多孔板塔の本来の機能は物質移動を行なわせることにある。物質移動を考える場合、偏流現象が生じなければ、液流と気流に直角な方向の混合は物質移動過程に影響を及ぼさない。このため、普通は平均流方向の混合についての、物質移動も考慮し得る適当な表示式が得られれば十分である。

本章ではこれらの観点から、液の平均流方向の混合のみに着目し、第2章で提案した混合特性値を考慮に入れ、時間と空間の双方に対する離散的な確率過程に基いた混合モデルを用いて考察を展開した。

混合モデルは、混合特性値の物理的意味を考慮してモデルパラメータの決定を行うと極めて簡単になる。混合特性値である変動速度の大きさ及びタイムスケールはこの様にして得られた混合モデルを用いると、インパルス応答から容易に求められる。

3. 2 混合モデル

第2章で考察した様に、多孔板上での液の流動状態は多孔板面に平行に2次的に扱えられる。この時、液の混合特性が液流に直角な方向で一様になるならば、多孔板の物質移動との関係を考察するのに液流方向の混合特性のみに着目すれば十分である。すなわち、多孔板を液流方向に一次的に扱えて液の混合をモデル化すればよい。

液混合のモデル化の基礎として第2章で提案した混合特性値のタイムスケールと変動速度の大きさを考える。これらは、液の混合を支配する諸因子の中の統計的な代表量にすぎない。また、第2章の考察では、流体要素という概念を用いているが、物質移動を考慮するためにはこれを扱い易い概念に置き替える必要がある。これは物質移動速度は物質移動係数と界面積に支配されており、これらを各流体要素について具体的に決定することは現在の所不可能だからである。

タイムスケールは流体要素の変動速度に着目した時、それが同一速度を持続する平均的な時間を表わしている。したがって、タイムスケールで決まる時間 Δt を適当にとると流体要素の運動を Δt 毎のランダムな過程に置き換えることができる。

Δt の間に各流体要素は平均流と変動速度の作用で一定の距離を移動するから Δt の間に流体要素が移動する液流方向の距離 Δx を定めることができる。この距離 Δx で決まる多孔板上の区間をセルと名づける。この様に考えると、多孔板上での液の混合は流体要素の集団が各セルあるいは各セル間を Δt 毎にある確率法則に従ってランダムに運動する単純マルコフ過程として表わせるようになる。この具体的な表示式を混合モデルと呼ぶことにする。

具体的なモデルの構成方法は普通の多孔板の場合を3.3で、著者の考案した2段式多孔板の場合を第4章で考察する。

この様に、流体要素個々の運動を流体要素の集団の運動として扱えると、物質移動の扱いも従来

から行なわれている総括容量係数を用いた扱いが可能になる。この点に関しては第5章で考察する。

3. 3 普通の多孔板での液の混合モデル

3. 3. 1 混合特性値とモデルパラメータの対応

第2章で提案した混合特性値の変動速度の大きさ \bar{v} とタイムスケール t_L を離散的な混合モデルに考慮するためには以下のように考えることができる。

液流方向にのみ着目した時、第2章で示した様に $t = 0$ で $x = 0$ にあった多数の流体要素は $t = \Delta t$ の後には図3-1に示す様に式(3-1)に従って混合する。

$$\text{Pr}(x, \Delta t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} s_x(\Delta t)} e^{-\frac{(x - \bar{u}_L \Delta t)^2}{2 s_x^2(\Delta t)}} \quad (3-1)$$

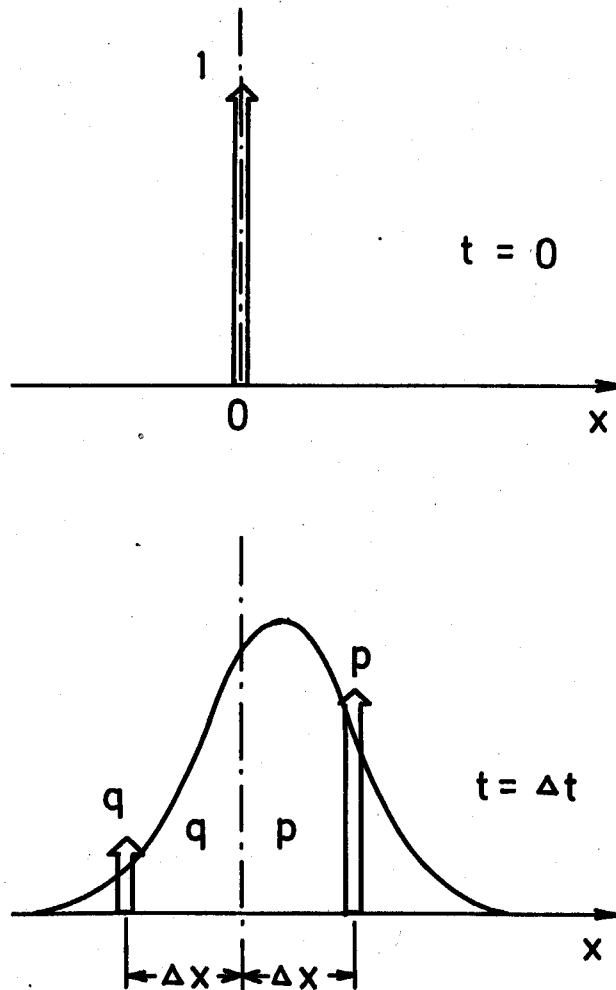


図 3-1 流体要素の混合過程

これを図 3-1 に示す様に、 Δt の間に $x = 0$ より下流に移動した流体要素の割合 p と上流に移動した流体要素の割合 q に分けて考え、その各々の平均の移動距離 Δx が等しくなる様に考えることが可能かを検討してみる。この場合、 Δt 後の平均の移動距離 Δx は次式を満足しなければならない。

$$\begin{cases} \Delta x \equiv -\frac{1}{q} \int_{-\infty}^0 x \text{Pr}(x, \Delta t) dx = \frac{1}{p} \int_0^{\infty} x \text{Pr}(x, \Delta t) dx \\ p = 1 - q = \int_0^{\infty} \text{Pr}(x, \Delta t) dx \end{cases} \quad (3-2)$$

一方、 Δt の間に流体要素が移動する平均距離は $\bar{u}_L \Delta t$ であるから次式を満足する。

$$\bar{u}_L \Delta t = \int_{-\infty}^{\infty} x \text{Pr}(x, \Delta t) dx \quad (3-3)$$

式 (3-2) (3-3) から Δx は以下の様にして一意的に次式 (3-4) で決まることがわかる。

$$\begin{aligned} \Delta x = -\frac{1}{q} \int_{-\infty}^0 x \text{Pr}(x, \Delta t) dx &= -\frac{1}{q} \left\{ \int_{-\infty}^{\infty} x \text{Pr}(x, \Delta t) dx \right. \\ &\quad \left. - \int_0^{\infty} x \text{Pr}(x, \Delta t) dx \right\} = -\frac{1}{q} (\bar{u}_L \Delta t - p \Delta x) \end{aligned}$$

ゆえに
$$\Delta x = \frac{\bar{u}_L}{p - q} \Delta t \quad (3-4)$$

したがって、流体要素の移動過程は Δt 毎に式 (3-5) の速度 V_x でそれぞれ下流と上流へ p と q の確率で同じ距離 Δx を移動する酔歩過程とみなして表わすことができる。

$$V_x = \frac{\bar{u}_L}{p - q} \quad (3-5)$$

この様に簡単化した速度過程の変動速度の 2 乗平均は $p(V_x - \bar{u}_L)^2 + q(-V_x - \bar{u}_L)^2$ となる。

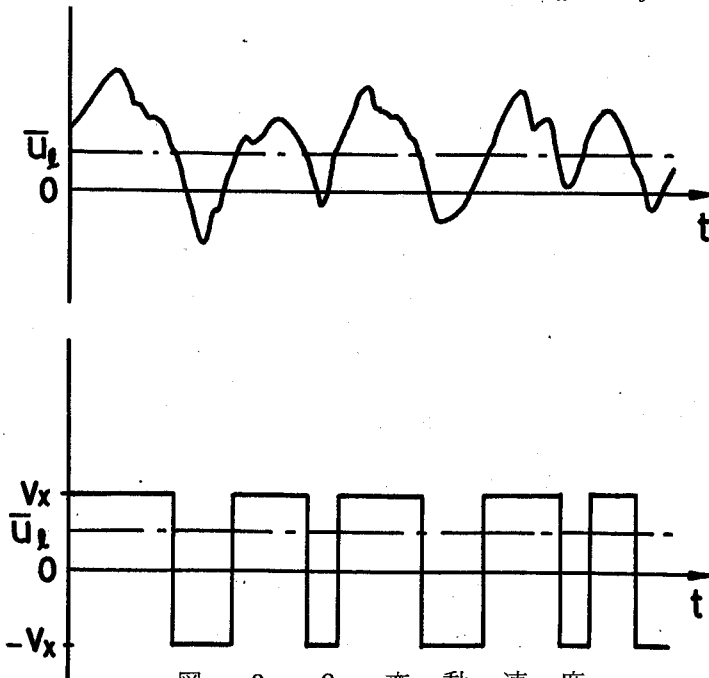


図 3-2 変動速度

モデルが妥当であるためには、図 3-2 に示す様に、この値が実際の乱れの大きさの 2 乗 \tilde{v}^2 に等しくなる必要がある。この条件から次の式が得られる。

$$p(V_x - \bar{u}_l)^2 + q(-V_x - \bar{u}_l)^2 = \tilde{v}^2 \quad (3-6)$$

また、この Δt 毎の過程が何回も繰返された後の流体要素の拡散係数は $2pq(\Delta x)^2 / \Delta t$ で与えられる¹⁷⁾ が、これは十分時間が経過した後の式 (2-19) で与えられる乱流拡散モデルの拡散係数 $\tilde{v}^2 t_{L,x}$ に等しくならなければならない。

$$\frac{2pq(\Delta x)^2}{\Delta t} = \tilde{v}^2 t_{L,x} \quad (3-7)$$

式 (3-4) ~ (3-7) から Δt は次式で与えられる。

$$\Delta t = 2 t_{L,x} \quad (3-8)$$

一方、確率 p, q は式 (3-1) (3-2) の積分を行って解析的に求めることは困難であるが、式 (3-5) と式 (3-6) とから $p + q = 1$ の条件を用いると次式の様に平均流速と変動速度の大きさの関数で表わせる。

$$p = 1 - q = \frac{1}{2} \left\{ 1 + \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\tilde{v}}{\bar{u}_l}\right)^2}} \right\} \quad (3-9)$$

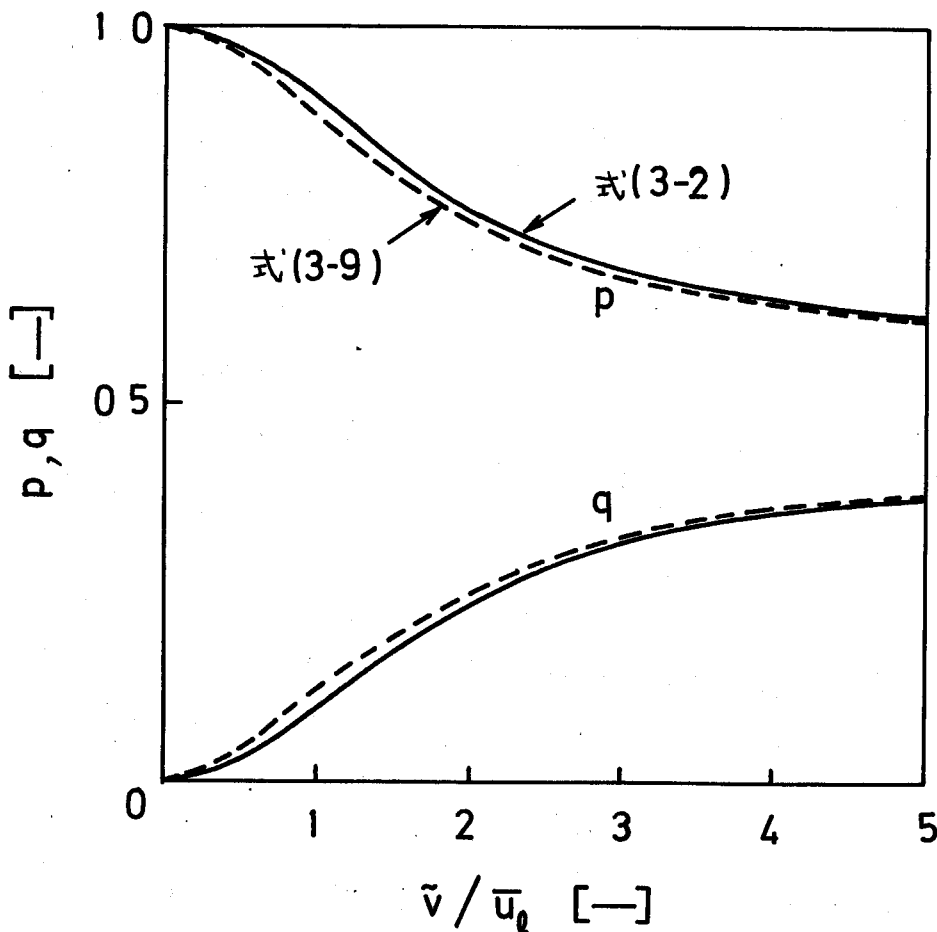


図 3-3 モデルの誤差

式(3-2)を式(3-9)で近似するための誤差は図3-3に示す様に \bar{v}/\bar{u}_l のすべての値に対して5%程度である。

これらの結果は、変動速度の Lagrange の相関々数を図3-4の様に直線で近似した事に等しい。

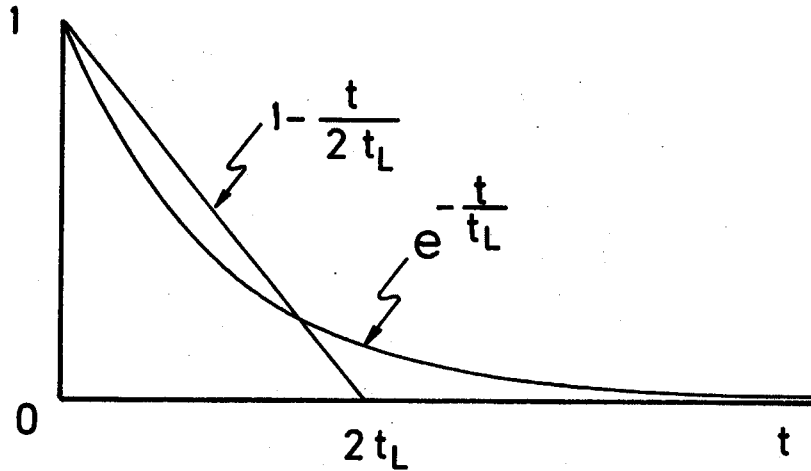


図 3-4 相関々数の近似

これは、流体要素の移動を $\Delta t = 2t_{L,x}$ 毎のピストン流れの繰返しとみなせることを意味している。

確率 p, q についてさらに考察してみる。 p, q は1つの流体要素が Δt 毎に $+V_x, -V_x$ の速度をとる確率であるが、見方を変えると、大きさ Δx のセルを考えた時、その中にはこれらの流体要素がランダムに分布しているはずであるから、各セル内の流体要素の中、 $+V_x$ の速度を持っているものの割合が $p, -V_x$ の速度を持っているものの割合が q であるとみることもできる。すなわち、この様なモデル化によって流体要素の運動を流体要素の集団の運動とみて把えることができる。この結果を利用すると混合モデルを比較的容易に物質移動過程に応用することができる。

以上の考察によって、液の混合を表現するための流体要素の運動を記述するモデルは次の様に表わせる。

「タイムスケール $t_{L,x}$, 平均流速 \bar{u}_l および変動速度の大きさ \bar{v} の関数としてそれぞれ式(3-8)(3-5)(3-9)で与えられるパラメータ $\Delta t, V_x, p$ または q を用いると、多孔板上での液の混合過程は、時間 Δt 毎に確率 p または q で大きさ V_x の速度をとる流体要素の酔歩過程で表わせる。」

3.3.2 モデルパラメータの実験的決定方法

3.3.1で示した混合モデルの構成過程およびモデルパラメータの意味を考慮しながらその決定方法について考察する。

式(3-4)で決まるセルの大きさ Δx で多孔板の液流方向の長さを分割し、その総数を M とする。各セルには入口から順番に $1, 2, 3, \dots, m, \dots, M$ と番号をつける。 Δx の大きさによってセル M の大きさに多くの場合端数が生ずるが、この場合も大きさ Δx の1つのセルとみなす。この様

に考えても、普通はこのセル数 M は十分大きく、このために生ずる誤差はほとんど問題にならない。各セル間の流体要素の運動を時間 Δt 毎の不連続な過程として扱えば、 Δt の後には Δt の定義からセル m 中にあったすべての流体要素の中、 p の部分は隣接のセル $m+1$ に、 q の部分は隣接のセル $m-1$ に移動して完全に入れ換わる。この各セル内の状態の Δt 毎の変化を以下ではタイムステップと呼ぶことにする。

混合実験でのトレーサ流体要素の混合過程と対応させて、各セル間を移動する流体要素の数を考える。各セル中に存在する流体要素の総数を W で表わし、セル m からセル M へ n 回のタイムステップで到達する流体要素の数を $W_{m,n}$ と表わす。 $W_{1,n}$ は入口のセル 1 中に存在する流体要素の中、 n ステップの後に出口のセル M で見い出される数である。したがって、 $W_{1,n}$ が通常のインパルス応答から得られる滞留時間分布に対応することになる。この様に考えると、 $W_{m,n}$ によって液の混合過程を考察することができる。

いま、セル m に存在する流体要素を考える。これは 1 ステップ後には必ずセル $m+1$ か $m-1$ かのいずれかに移動するから、セル $m+1$ を経て $n+1$ ステップ後に M に到達する個数を $W_{m,n+1}^{\rightarrow}$ 、同様にセル $m-1$ を経るものを $W_{m,n+1}^{\leftarrow}$ と表わすと次の収支式が成り立つ。

$$W_{m,n+1} = W_{m,n+1}^{\rightarrow} + W_{m,n+1}^{\leftarrow} \quad (3-10)$$

各セルから 1 ステップ後に隣接する下流のセルおよび上流のセルに移動する流体要素の個数は、多孔板上の液の流動状態が一樣である限り、どのセルについても一定である。これをそれぞれ W_{\rightarrow} 、 W_{\leftarrow} と表わせば次式が成り立つ。

$$W = W_{\rightarrow} + W_{\leftarrow} \quad (3-11)$$

同様に、各セルに 1 ステップ毎に隣接する上流および下流のセルから移動してくる流体要素の個数は各セルについて一定でそれぞれ W_{\rightarrow} 、 W_{\leftarrow} に等しい。

一方、セル $m+1$ にある流体要素の中、 n ステップでセル M に到達する数 $W_{m+1,n}$ は 1 ステップ前にセル m およびセル $m+2$ からセル $m+1$ に流入してきて n ステップでセル M に到るものの和になっている。一担セル $m+1$ に流入してしまえば、タイムステップの定義から、そこに存在する流体要素がいつから流入してきたかに無関係になる。したがって、1 ステップ前にセル m からセル $m+1$ に入ってきた流体要素 W_{\rightarrow} のうち、 n ステップでセル M に達するものの数 $W_{m,n+1}^{\rightarrow}$ は次式で与えられる。

$$W_{m,n+1}^{\rightarrow} = W_{m+1,n} \frac{W_{\rightarrow}}{W} \quad (3-12)$$

セル $m-1$ 中の流体要素について考えると同様に次式が得られる。

$$W_{m,n+1}^{\leftarrow} = W_{m-1,n} \frac{W_{\leftarrow}}{W} \quad (3-13)$$

式 (3-10) (3-12) (3-13) から次式が得られる。

$$W_{m,n+1} = \frac{W_{\rightarrow}}{W} W_{m+1,n} + \frac{W_{\leftarrow}}{W} W_{m-1,n} \quad (3-14)$$

次に、セル1, M ではそれぞれ隣接する上流側および下流側のセルがなく、そこにある入口堰および出口堰による反射の条件を考慮しなければならない。

セル1では、もし上流側に反射壁がなければ上流側の隣接セル中に逆流するはずの流体要素が反射のためにセル1中に戻される。この流体要素の数は W_{\leftarrow} に等しいからセル1での式(3-14)に対応する境界条件は式(3-15)となる。

$$W_{1,n+1} = \frac{W_{\rightarrow}}{W} W_{2,n} + \frac{W_{\leftarrow}}{W} W_{1,n} \quad (3-15)$$

セル M では下流側に隣接するセルがないが、連続系であるので正味の流量に等しい数の流体要素が流出しなければならない。セル1, M 以外のセル m での流体要素の数の変化をみると、1ステップ毎に W_{\rightarrow} が下流の隣接セルに移動して W_{\leftarrow} がそこから逆流してくるから、正味として $W_{\rightarrow} - W_{\leftarrow}$ が下流に移動していることになる。したがって流れが定常である普通の場合は、セル M にあって1ステップ後に系外に流出する流体要素の数は $W_{\rightarrow} - W_{\leftarrow}$ に等しい。

一方、出口での反射壁がなければ1ステップ毎に W_{\rightarrow} だけ流出するはずだから、 W_{\leftarrow} が出口壁で反射されて M に戻されていることになる。これはさらに1ステップ以上を経て排出されるから、式(3-14)に対応するセル M での境界条件は式(3-16)となる。

$$W_{M,n+1} = \frac{W_{\leftarrow}}{W} W_{M,n} + \frac{W_{\leftarrow}}{W} W_{M-1,n} \quad (3-16)$$

ここで、1つのセル中にある流体要素の総数 W に対する W_{\rightarrow} , W_{\leftarrow} の比を考えると、これは1ステップ毎にそのセルにある流体要素が下流および上流に移動する量の比、すなわち、流量配分比を表わす。1つの流体要素についてみると、これは上流および下流に移動する確率 p , q に等しい。これは推移確率と呼ばれているものである。液の巨視的な混合は液の流速の差に基くものであり、 p , q はこの尺度を表わす。

同様に、 $W_{m,n}$ の W に対する比は、セル m にあった1つの流体要素が n ステップ後にセル M に到達する確率に等しい。これを $w_{m,n}$ と表わすと、式(3-14)は式(3-17)となる。

$$w_{m,n+1} = p w_{m+1,n} + q w_{m-1,n} \quad (3-17)$$

これと同様に境界条件の式(3-15)(3-16)を確率を用いて表わすと式(3-18)となる。

$$\begin{cases} w_{1,n+1} = p w_{2,n} + q w_{1,n} \\ w_{M,n+1} = q w_{M,n} + q w_{M-1,n} \end{cases} \quad (3-18)$$

確率 p , q を実験的に求めるために、多孔板の入口にトレーサを注入したインパルス応答を考える。この場合、式(3-17)(3-18)を解くための $n=0$ とした初期条件は以下の様にと与えられる。 $W_{m,0}$ は最初にセル m にあった流体要素の数であるから、出口のセル M では W に等しく、それ以外のセルでは0とおける。これを確率で表わすと、式(3-17)に対する初期条件が次の様

に求まる。

$$\begin{cases} w_{M,0} = 1 \\ w_{m,0} = 0 \end{cases} \quad (m \neq M) \quad (3-19)$$

式(3-17)~(3-19)に基いて、実測が比較的簡単な滞留時間分布を用いる混合特性値の決定方法を以下に考察する。

モデルのパラメータは推移確率 p または q 、セル数 M 、時間々隔 Δt の3つで、これらは3.3.1に示した様に平均流速 \bar{u}_L 、変動速度 \bar{v} 、タイムスケール $t_{L,x}$ に関係づけられている。これら3つのパラメータを決定して混合特性値を得るためには3つの独立な滞留時間分布の特性値が必要である。

滞留時間分布の特性の中、実験精度が比較的高く、しかも計算が簡単な量は平均値と分散である。これに滞留時間分布の立ち上り時間、すなわち、無駄時間を加えた3つの実測値を用いて混合特性値を決定することができる。このためには式(3-17)~(3-19)を解いて滞留時間分布の平均 \bar{t} と分散 σ_t^2 に対応する滞留ステップ数分布の平均 \bar{n} と分散 σ_n^2 を求める必要がある。以下にその解法を示す。

セル m にあつた流体要素が $n+1$ ステップで出口から排出する確率を $v_{m,n+1}$ とする。セル M にある流体要素が排出される確率は $p-q$ であるから、 $v_{m,n+1}$ は $w_{m,n}$ と $p-q$ の積で与えられる。

$$v_{m,n+1} = (p-q) w_{m,n} \quad (3-20)$$

$w_{m,n}$ 、 $v_{m,n}$ の特性関数を式(3-21)の様にそれぞれ $W_m(s)$ 、 $V_m(s)$ と定義する。

$$W_m(s) = \sum_{n=0}^{\infty} s^n w_{m,n}, \quad V_m(s) = \sum_{n=0}^{\infty} s^n v_{m,n} \quad (3-21)$$

式(3-20)の両辺に s^n を掛け $n=0,1,2,\dots$ の和をとると式(3-22)が得られる。

$$V_m(s) = \sum_{n=0}^{\infty} s^{n+1} v_{m,n} = (p-q) s \sum_{n=0}^{\infty} s^n w_{m,n} = (p-q) s W_m(s) \quad (3-22)$$

一方、平均タイムステップ数 \bar{n} は次の公式で与えられる。

$$\bar{n} = \sum_{n=0}^{\infty} n v_{0,n} = \left(\frac{dV_0(s)}{ds} \right)_{s=1} \quad (3-23)$$

また、滞留タイムステップ数分布の分散 σ_n^2 は次式で与えられる。

$$\sigma_n^2 = \sum_{n=0}^{\infty} v_{0,n} (n-\bar{n})^2 = \left(\frac{d^2 V_0(s)}{ds^2} \right)_{s=1} - \bar{n} + \bar{n}^2 \quad (3-24)$$

ただし、式(3-24)には式(3-25)の公式を用いている。

$$\left(\frac{d^2 V_0(s)}{d s^2} \right)_{s=1} = \sum_{n=0}^{\infty} n(n-1) v_{0,n} \overline{n^2 - \bar{n}} \quad (3-25)$$

式(3-17)の両辺に s^{n+1} を掛けて $n = 0, 1, 2, \dots$ の和をとると特性関数の差分方程式(3-26)が得られる。

$$W_m(s) = p s W_{m+1}(s) + q s W_{m-1}(s) \quad (3-26)$$

同様に式(3-18)(3-19)から式(3-26)の境界条件は次式となる。

$$\begin{cases} (1-qs)W_1(s) - psW_2(s) = 0 \\ (1-qs)W_M(s) - qsW_{M-1}(s) = 1 \end{cases} \quad (3-27)$$

式(3-26)(3-27)の解を求め、 $m=0$ とおくと、 $W_0(s)$ は式(3-28)と求まる。

$$W_0(s) = \frac{(\lambda_1 - \lambda_2) p s}{\lambda_1^{M-2} \{ (1-qs)\lambda_1 - qs \}^2 - \lambda_2^{M-2} \{ (1-qs)\lambda_2 - qs \}^2} \quad (3-28)$$

ただし、 λ_1, λ_2 は特性方程式の根で次式で与えられる。

$$\lambda_{1,2} = \frac{1}{2ps} \left\{ 1 \pm \sqrt{1 - 4pq s^2} \right\} \quad (3-29)$$

式(3-22)(3-23)(3-24)(3-28)(3-29)を用いると \bar{n}, σ_n^2 がそれぞれ式(3-30)(3-31)の様に求まる。

$$\bar{n} = \frac{M}{p-q} \quad (3-30)$$

$$\sigma_n^2 = \frac{4pq}{(p-q)^3} M + \frac{2pq}{(p-q)^4} \left\{ \left(\frac{q}{p} \right)^{M+1} - 1 \right\} \quad (3-31)$$

滞留時間分布の立ち上り時間 t_d に対応するステップ数 n_d はセル $M+1$ への最小到達ステップ数であるから M に等しい。

$$n_d = M \quad (3-32)$$

多孔板は連続操作を行うのが普通であるため、常に $p > q$ である。したがって M が十分大きい場合、式(3-31)は式(3-33)で近似できる。

$$\sigma_n^2 \approx \frac{4pq}{(p-q)^3} M \quad (M \gg 1) \quad (3-33)$$

普通の条件では M は十分大きく、多くの場合、この条件が成立する。以下では簡単のため、セル数 M が十分大きい場合について考える。

次に、滞留時間分布の特性値と混合モデルの特性値との対応を検討する。1ステップに対応する時間々隔は Δt であるから次の関係が得られる。

$$\bar{t} = \frac{M}{p-q} \Delta t \quad (3-34)$$

$$\sigma_t^2 \simeq \frac{4pq}{(p-q)^3} M (\Delta t)^2 \quad (3-35)$$

$$t_d = M \Delta t \quad (3-36)$$

式(3-34)~(3-36)から混合モデルのパラメータ $p, q, \Delta t, M$ が滞留時間分布の特性値の関数として次の様に求まる。

$$p = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{t_d}{\bar{t}} \right), \quad q = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{t_d}{\bar{t}} \right) \quad (3-37)$$

$$\Delta t \simeq \frac{t_d^2}{\bar{t}^2 - t_d^2} \left(\frac{\sigma_t}{\bar{t}} \right)^2 \bar{t} \quad (3-38)$$

$$M \simeq \left(\frac{\bar{t}}{t_d} - \frac{t_d}{\bar{t}} \right) \left(\frac{\bar{t}}{\sigma_t} \right)^2 \quad (3-39)$$

液の混合特性値 \tilde{v} , $t_{L,x}$ はこれらのモデルパラメータを用いて式(3-8)(3-9)から決定されるが、次式に従って実測値から直接求めることができる。

$$t_{L,x} \simeq \frac{1}{2} \frac{t_d^2}{\bar{t}^2 - t_d^2} \left(\frac{\sigma_t}{\bar{t}} \right)^2 \bar{t} \quad (3-40)$$

$$\tilde{v} \simeq \frac{t_d}{\sqrt{\bar{t}^2 - t_d^2}} \frac{L_x}{\bar{t}} \quad (3-41)$$

ただし、 L_x は棚段の長さである。

式(3-40)(3-41)を用いて混合特性値を求める場合、セル数 M が大きくないと式(3-31)を式(3-33)で近似した誤差は大きくなる。この場合には式(3-37)~(3-39)から求めた $M, p, q, \Delta t$ を第1近似として、 Δt の値が十分収束する迄式(3-31)を用いて反復計算を行い、精度を上げることができる。この計算の収束速度は極めて速く、 Δt の誤差を1%以内にするのに要する反復回数は $M > 10$ の時、高々2回で十分である。

3.3.3 混合過程の表現

着目流体要素を多孔板上に注入した時の各セル中の濃度の変化過程を知るためには、各セル中に存在する着目流体要素の数の、そのセル内の全流体要素数 N との比を考えればよい。これは存在確率と呼ばれる量である。そこで、単位量の着目流体要素を $t = 0$ に多孔板に注入した時、 $t = n\Delta t$ に、セル j 内にそれが存在する確率を u_j^n と表わすと、 u_j^n は次式を満足する。

$$\left\{ \begin{array}{l} u_1^{n+1} = q u_1^n + q u_2^n \\ u_2^{n+1} = p u_1^n + q u_3^n \\ \dots\dots\dots \\ u_m^{n+1} = p u_{m-1}^n + q u_{m+1}^n \\ \dots\dots\dots \end{array} \right.$$

結果と比較検討した。

3.3.4.1 実験装置 および方法

表 3-1 実験に用いた多孔板の大きさ

幅	[mm]	300
長さ	[mm]	390
堰高さ	[mm]	
入口		20
出口		10, 15, 20, 25, 30, 40, 50, 60, 70, 88
孔径	[mm]	4
孔間隔	[mm]	15
開孔比	[%]	12.9
板厚	[mm]	4
孔配列		正三角形

材質はすべて黄銅製

使用した多孔板の諸元は表 3-1 に示した。

実験系は水-空気系である。

滞留時間分布はトレーサのインパルス応答法から求めた。トレーサには、0.1 N KOH 水溶液を用い、これを入口堰のすぐ内側に内径 1 mm のステンレス管から電磁弁を介して瞬間点源状に注入した。その濃度変化は電極で連続的に測定し、これを滞留時間分布に変換した。

測定用電極には泡除けのために 30 メッシュの磷青銅製の網を取り付けて泡による濃度応答への外乱を除いた。

金網を電極に取り付けたための応答の遅れはほとんど問題にならない。図 3-5 は、対象は異なる

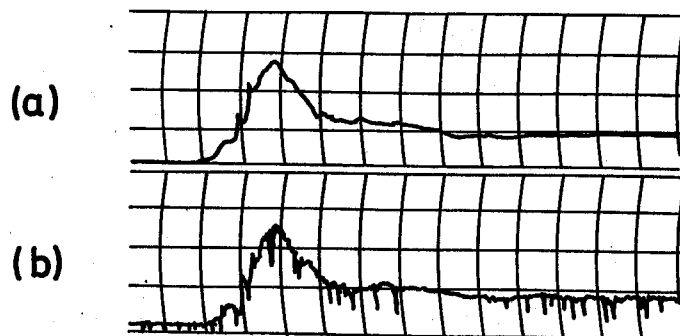


図 3-5 金網付き電極の応答

(a) 金網付き電極 (b) 裸電極

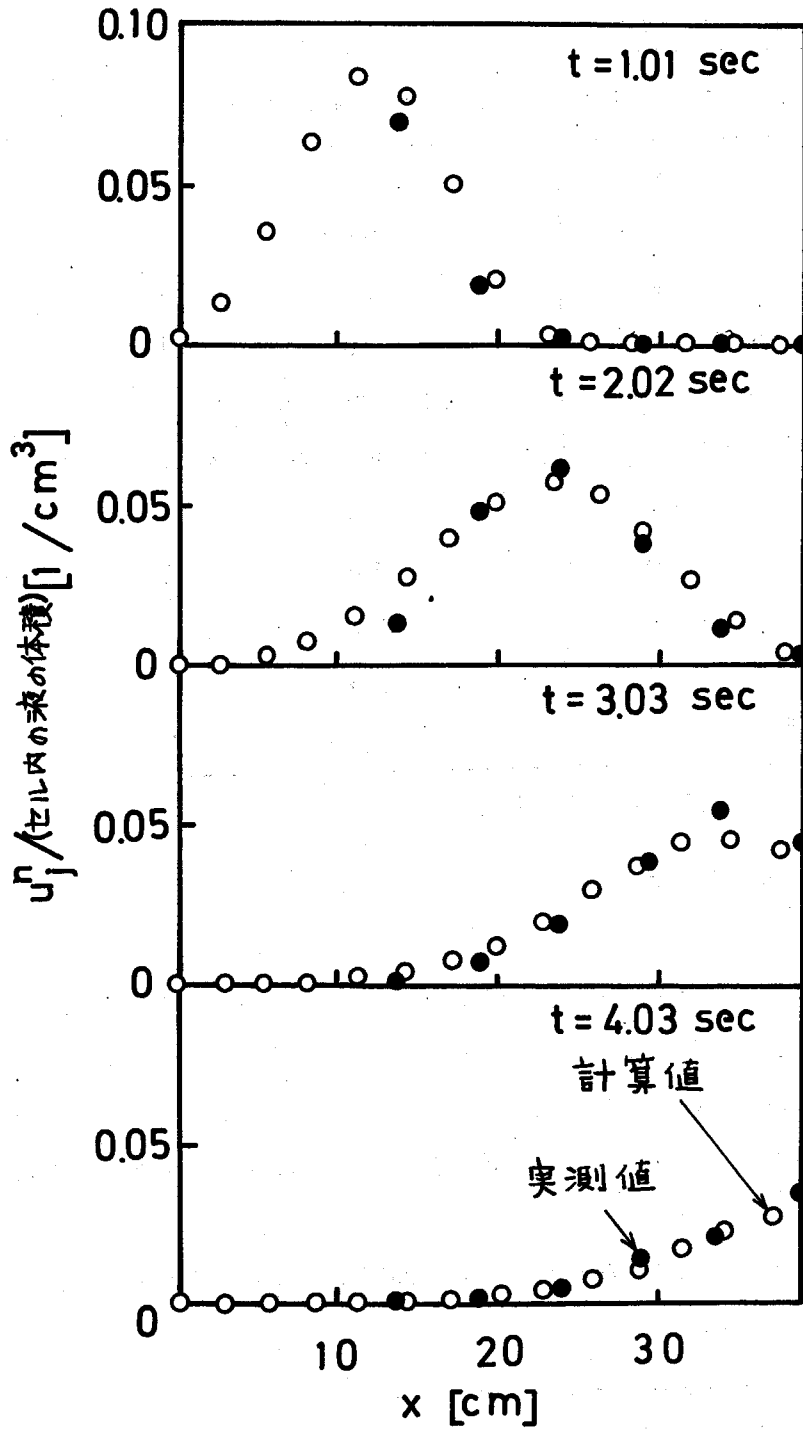


図 3-6 濃度分布の経時変化

$$\left[\begin{array}{l} Z_w = 50 \text{ mm} \\ q_L = 37.4 \text{ cm}^3 / \text{cm} \cdot \text{sec}, U_y = 125 \text{ cm} / \text{sec} \\ p = 0.735, q = 0.265 \\ \Delta t = 0.126 \text{ sec} (t_{L,x} = 0.063 \text{ sec}) \\ \tilde{v} = 20.2 \text{ cm} / \text{sec}, M = 29 \end{array} \right]$$

が、回分式気泡塔で金網を付けた電極と裸の電極をほぼ同じ位置に設置して、同時に同一の濃度応答を記録した1例である。この結果から金網の影響はほとんど問題ないことがわかる。

多孔板上では気体のホールドアップが気泡塔に比べてかなり多く、網付き電極を用いてもなお気泡による外乱が入る。これに加えて、泡沫層全体としての大きなスケールの不規則な運動があるため、必ずしも再現性のよいインパルス応答が得られるとは限らない。この点を考慮して、5～10回同一実験を行い、これらの平均をインパルス応答のデータとした。

3.3.4.2 実験結果および考察

式(3-37)～(3-39)の関係から得られた混合モデルのパラメータ p , q , Δt , M を用いて式(3-43)～(3-48)に従ってインパルス応答を計算し、実測値と比較した例を図3-6、図3-7に示した。図3-6は多孔板面上での濃度分布の経時変化の例である。図3-7は図3-6と同一条件での滞留時間分布である。

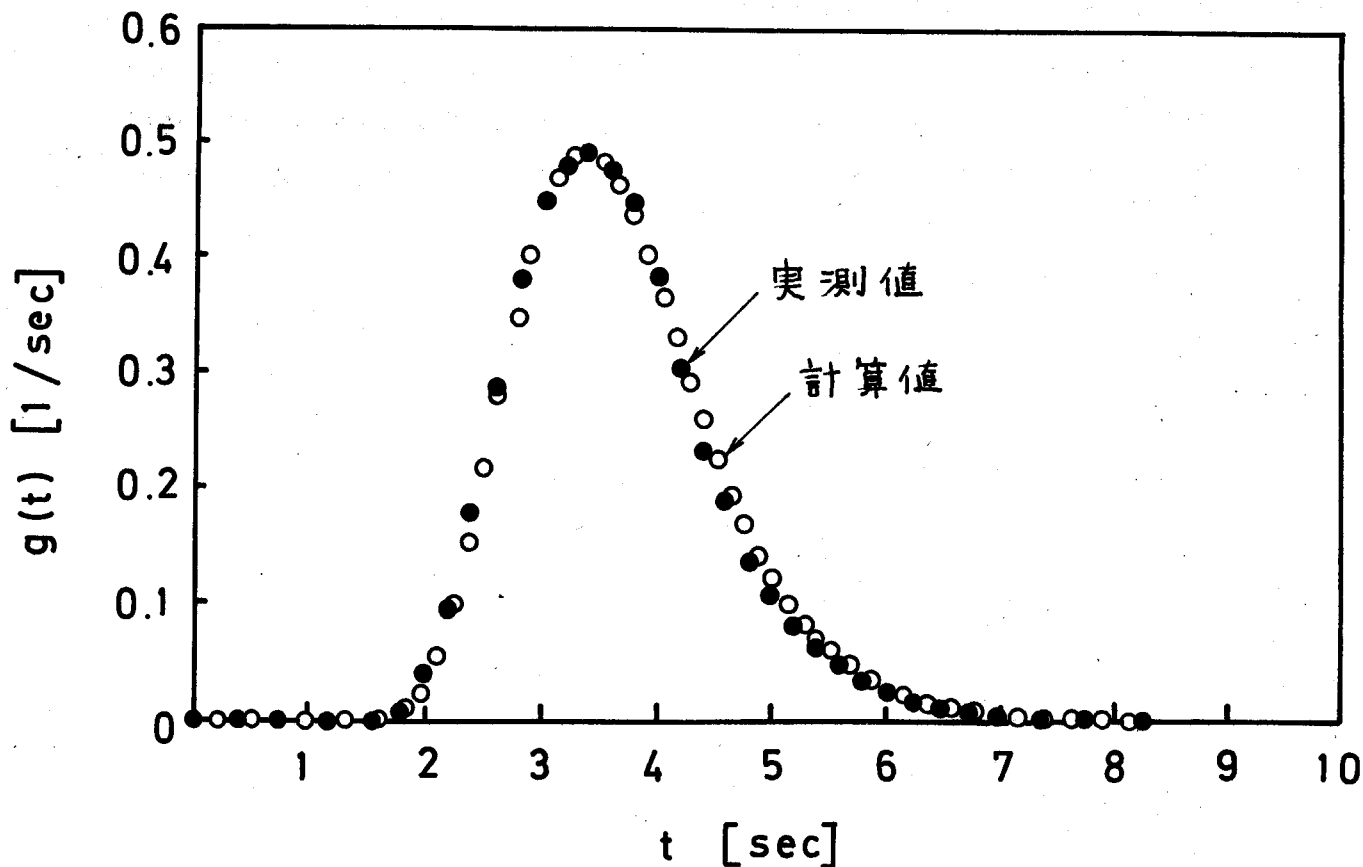


図 3-7 滞 留 時 間 分 布

$$\left[\begin{array}{l} Z_w = 50 \text{ mm} \\ q_L = 37.4 \text{ cm}^3/\text{cm} \cdot \text{sec}, U_g = 125 \text{ cm/sec} \\ p = 0.735, q = 0.265 \\ \Delta t = 0.126 \text{ sec} (t_{L,x} = 0.063 \text{ sec}) \\ \bar{v} = 20.2 \text{ cm/sec}, M = 29 \end{array} \right]$$

これらの結果から、濃度の空間分布および滞留時間分布でみる限り、本章で考察した離散的な混合モデルは十分な精度で多孔板上の液の混合過程を表わしていると結論できる。

3.3.2にも示したが、 $4t$ の値によっては多孔板の長さが必ずしも整数に分割されず、端数の生ずることが多い。この点も含めた離散的な混合モデルによる誤差の検討を滞留時間分布の多数の実測値と計算値とに対して行った。その結果、滞留時間分布の最大値に達する時間、平均値、分散に関しては10%以内で一致した。

3. 4 本 章 の 結 論

第2章で提案した液の混合特性値である変動速度の大きさとタイムスケールを基礎にした混合モデルを一般的に考察し、離散的な混合モデルを提案した。この混合モデルを普通の多孔板に適用し、さらにそのモデルパラメータの決定方法について考察し、滞留時間分布の特性値である立ち上り時間、平均滞留時間および分散から直接混合特性値を求められることを示した。

このモデルをさらに応用するための便利を考えて、推移確率行列を用いた表示式を得、これを用いてインパルス応答の実測値とモデルとの比較を行った。その結果、提案した混合モデルの精度は、モデルパラメータの決定に用いた滞留時間分布の特性値に対して10%以内であることを認めた。

第 4 章

2 段式多孔板上での液の混合モデル

気液の流動状態を安定に保ったまま、気・液のホールドアップを増大させて大きな界面積を形成させ、良好な接触効果を得ることを目的として試作した 2 段式多孔板に対し、普通の多孔板の場合に提案した混合モデルの具体的な構成方法と応用について考察する。

4. 1 序

多孔板上での気液の流動状態を安定に保ったまま大きな気液のホールドアップを得ることにより大きな界面積を形成させ、良好な接触効果を得ることを目的として、2段式多孔板を試作した。これは従来の多孔板上にこれと平行にさらに一枚の多孔板を設置した簡単な構造のものである。

この2段式多孔板の物質移動効率の評価のためには適当な液の混合モデルが必要とされる。

本章では、3.2で提案した混合モデルを第2章で提案した混合特性値を考慮し、2段式多孔板に適用する方法を考察する。この際、流動状態の観察結果と応用のし易さことから、普通多孔板での混合特性値を用いて2段式多孔板の混合も説明し得るという立場から考察を行った。

4. 2 2段式多孔板の特徴

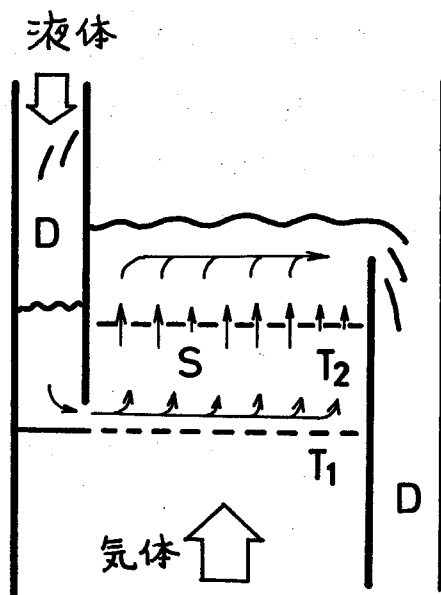


図 4-1 2段式多孔板

2段式多孔板は図4-1に示す様な単純な構造のものである。すなわち、2段式多孔板では平行に設置した2枚の多孔板 T_1 、 T_2 が単位段となる。

液はダウンカマーDを通過して2枚の多孔板 T_1 、 T_2 の間の空間Sに入り、下の多孔板 T_1 から流入する気体と接触する。その後、2相流の状態で気・液は多孔板 T_2 を通過する。多孔板 T_2 上に流出した気・液は再接触を繰り返した後、それぞれ次の段へと流出する。

普通多孔板で多孔板単位面積当りの気液界面積を大きくする目的で出口堰を高くし、液のホールドアップを増大させるとかえって流動状態が不安定になったり、ウイーピングが発生し易くなって多孔板の物質移動効率は低下する。このため、普通多孔板の設計法では出口堰の高さは高々数cmにするのが普通である。

しかし、図4-1の様な2段構造にすると、多少圧損は大きくなるものの、安定な流動状態を保ったまま大きな気・液のホールドアップが得られ、かつ、操作範囲も著しく広くなる。特にウーピングの発生するガス速度を著しく下げることができる。さらに、2枚目の多孔板の存在によっていわゆる気体の吹き抜けがほぼ完全に防止され、単位段当りの物質移動の性能が高くなる。

ここで、多孔板の入口と出口での液中の溶質濃度をそれぞれ c_i, c_e とし、多孔板に流入するガスと平衡にあると考えた液中の溶質濃度を c^* とする時、次式

$$\eta = \frac{c_e - c_i}{c^* - c_i}$$

で物質移動効率 η を定義し、これを物質移動に及ぼす液混合の影響を考察する尺度とする。

図4-2は炭酸ガスと空気の混合気体を用いて炭酸ガスを水に吸収させた場合の物質移動効率 η に関する実験結果の1例である。

図4-2からわかる様に、2段式多孔板を適切に設計すると単一段当りの物質移動効率は普通の多孔板に比べてかなり大きくし得ることがわかる。

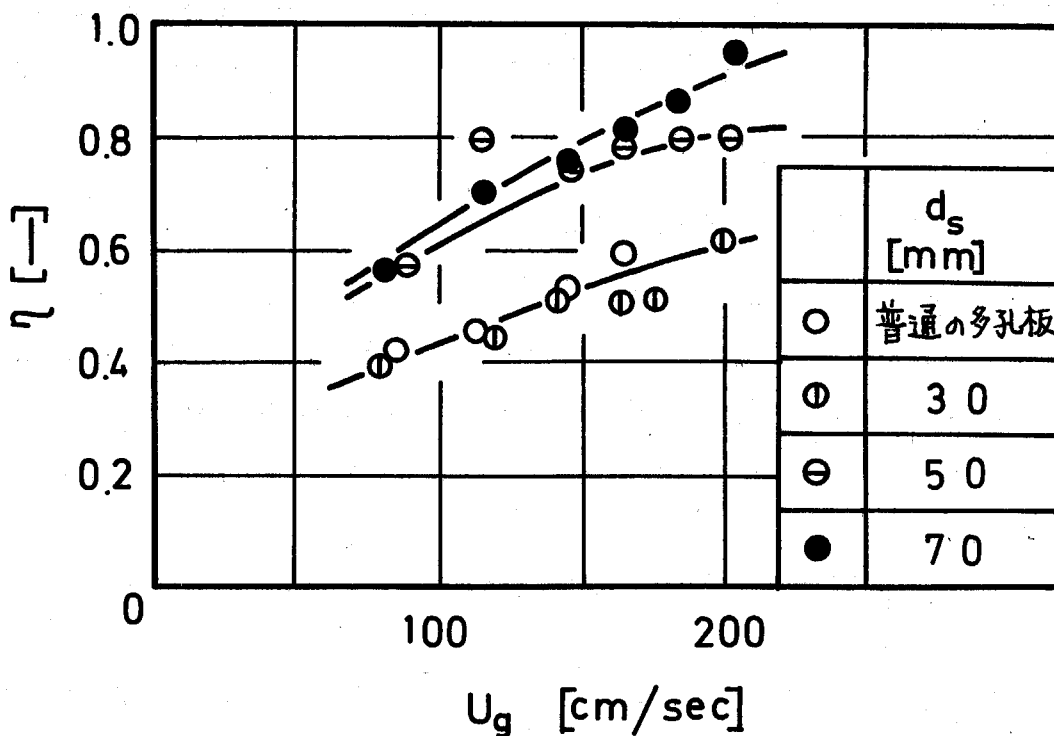


図 4-2 物質移動効率の例

$$\left[\begin{array}{l} Z_w = 10 \text{ cm} \\ \text{孔径} = 4 \text{ mm (上段, 下段共)} \end{array} \right]$$

(ただし、物質移動効率 η は平衡状態にあると考えた液中の溶質量に対する実際の液中に存在する溶質量の比である。)

4. 3 混合モデル

多孔板を2段式にしても、液の混合に関係する流動状態には普通多孔板と比べて本質的な差異が現われるとは考えられない。すなわち、多孔板上で液が混合する第1原因は下の棚段から流入する気体であり、さらにこれが原因となって多孔板上の流動状態が変化すると考えられるからである。

この考えに基づいて、2段式多孔板での液の運動も普通多孔板での特性を用いて推定し得るといふ立場から2段式多孔板上の液の速度分布を考慮の上、3.2の混合モデルを2段式多孔板上の液の混合モデルに適用して、その妥当性を考察した。

2段式多孔板では上の多孔板を気・液が2相流の状態を通過する点が従来型と異なる。しかし、普通は気/液の流量比は著しく大きく、このため、上の多孔板での流動状態は液の流量によりそれ程大きく異ならないと考えてよい。2段式多孔板で普通多孔板と本質的に異なる点は、図4-1に示した空間Sから上の多孔板 T_2 を通して T_2 上に液が流出するため、各多孔板 T_1 、 T_2 上で場所と共に平均流速が変化することである。第6章で詳しく考察するが、液の混合特性値はガス流量が一定であっても液流速と共に変化するため、これを考慮しなければならない。

一方、見方を変えると、2段式多孔板は独立な2つの多孔板 T_1 、 T_2 が多孔板 T_2 を介して接触系とみなせるから、3.2のモデルを2段式多孔板に応用するには、その各々についてのモデルを組み合わせた形で構成されることになる。

4. 3. 1 モデルパラメータの決定方法

簡単のため、これ迄と同様に矩型多孔板を考え、以下の仮定を前提とする。

仮定 1 下段から上段への液の流入は一様と考える。また、適当に設計され適切に操作されていけば上段から下段に気・液が逆流することは殆んどないのでこれを無視する。

この時、下段及び上段での液流方向の液の速度分布は気・液の存在比率が均一であれば図4-3の様に表わせる。

仮定 2 液の混合特性値に第2章で示した変動速度の大きさとタイムスケールをとれるとする。

これらの混合特性値は気・液の平均流速のみの関数で与えられる。この関係の詳細は第6章で考察する。

4. 3. 1. 1 時間々隔 Δt の決定方法

3.2の混合モデルを適用するためには、その扱いからも明らかな様に、どの流体要素の運動についてもそれがランダムとみなせる合理的な時間々隔 Δt が選べなければならない。3.3の普通の多孔板での扱いではタイムスケールの2倍を時間々隔 Δt にとると、その物理的意味から混合過程はいわゆる単純マルコフ過程で表わせ、混合モデルを簡単にし得ることを示した。しかもこの場合はセルフープも考える必要がないという特徴をもっていた。

しかし、2段式多孔板では図4-3に示す様な液の平均速度分布のため、混合特性値が液の流速に依存することを考慮すると第3章の場合の様に単純にタイムスケールを決められない。セルの大きさを適当に決めた時、隣接セル以外のセルとの関連も考慮しなければならない様な扱いは、物質移動過程も簡単に考慮し得る混合モデルという立場から考えると好ましくない。そこで、液流速で

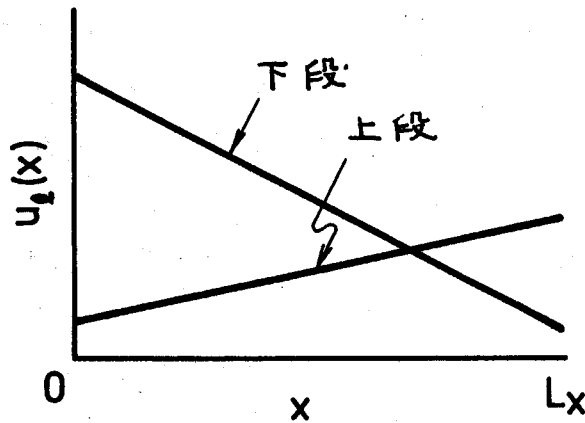


図 4-3 液の速度分布

決まるタイムスケール $t_{L,x}$ の最大値に対応する時間を選び、3.3と同様に式(4-1)から1ステップの時間々隔 Δt を決める。

$$\Delta t = \text{Max} \{ 2 t_{L,x} \} \quad (4-1)$$

この様に Δt を決めると、 $2 t_{L,x}$ が流体要素の同一速度持続時間の最大値を与えるとみなせるから、 $t_{L,x} < \text{Max} \{ t_{L,x} \}$ となる場所での流体要素の運動は、 $t=0$ と $t=\Delta t$ で独立とみなせる。すなわち、単純マルコフ過程と考えることができる。

4. 3. 1. 2 セルの大きさ Δx の決定方法

液の平均流速が一定の普通の多孔板では、セルの大きさ Δx を式(4-2)の様に決めると隣接セルへの流体要素の移動確率は式(4-3)で与えられることを示した。

$$\Delta x = V_x \Delta t = \frac{\bar{u}_L}{p-q} \Delta t \quad (4-2)$$

$$p = 1 - q = \frac{1}{2} \left\{ 1 + \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\bar{v}}{\bar{u}_l}\right)^2}} \right\} \quad (4-3)$$

上式を利用してなるべくモデルを簡単にするには以下の様にセルの大きさを決定すればよい。

いま、下段について考える。 $x = 0$ における液の平均速度と気体の空塔速度 U_g で決まる変動速度の大きさ \bar{v} を式 (6-7) から求める。着目しているセルとその前後のセルでは液の平均流速は同一と近似すると、式 (4-2) (4-3) からセル 1 の大きさ Δx_1 が求まる。つぎに $x_1 = \Delta x_1$ での液の平均速度 $\bar{u}_l(x_1)$ と式 (6-7) の変動速度の大きさ \bar{v} から次のセルの大きさ Δx_2 が求まる。以下同様にして下段の大きさが次々に決まる。同様の操作によって上段のセルの大きさも決められる。ただし、この場合、上段は出口の方からセルの大きさを順次決定する方が便利である。この下段と上段の各セル数をそれぞれ M, L とする。

この様に決めた各セルでは $t_{L,x} \leq \text{Max} \{ t_{L,x} \}$ となるため、すでに述べた様に普通の多孔板と異なり、 Δt 毎の 1 ステップで同一セル中に止る流体要素が存在する。すなわち、セルフープを考えなければならない。しかし、流体要素が少くとも隣接セルとそれ自身以外のセルへ移動する確率は考えなくてもよくなる。

2 段式多孔板の上段へは液が多孔板 T_2 を通って流入する。これを考慮して流体要素の各セル間での流れを概念的にわかりやすくするため、図 4-4 にセルの分割と対応させて確立流れ線図で表わした。図 4-4 中の節は各セル中での着目流体要素の相対的な存在量を表わし、矢印は Δt 毎の各セルからの流体要素の移動する方向とその確率を表わす。また、図中の添字 D は下段を、 U は上段を表わす。 $d_{i,j}$ は下段のセル i 中の流体要素が上段のセル j へ Δt 毎に移動する確率を表わす。上段と下段を結ぶ矢印は下段のセルに上段のセルが重なり合っている場合のみ Δt 毎の流体の移動があることを明示するために描かれる。たとえば、図 4-4 の下段のセル 1 には上段のセル 1, 2, 3 が接しており、下段のセル 2 は上段のセル 3 と 4 が接していることを表わしている。

なお、図 4-4 の各段の流動状態が一見していわゆる逆混合モデル⁴¹⁾と同じ様な表現になっているが、この確率の流れは Δt 毎の離散的なものであること、各セル内の流体要素の移動確率に基いた表現になっていること等の点で、連続的な表示式であり、かつ、流量を用いて表わした逆混合モデルとは本質的に異っている。⁷⁴⁾

4.3.1.3 推移確率 p, q, r の決定方法

上述の様にセルの大きさを決めれば、1 ステップ毎の各セル内の流体要素の移動は図 4-4 に示した通り、下流と上流の隣接セルおよびそれ自身に限られる。

まず、セル i のセルフープに入る確率について考察する。3.3 で示した様に、流体要素はタイムスケールの 2 倍で決まる時間々隔を単位としてランダムに運動しているとみなせる。したがって、 $\Delta t < \text{Max} \{ 2 t_{L,x} \}$ となる。各セル内での流体要素は各セルの位置の液の流速で決まるタイムスケールの 2 倍の時間を単位としてランダムに運動しているとみなせる。セル i について考える

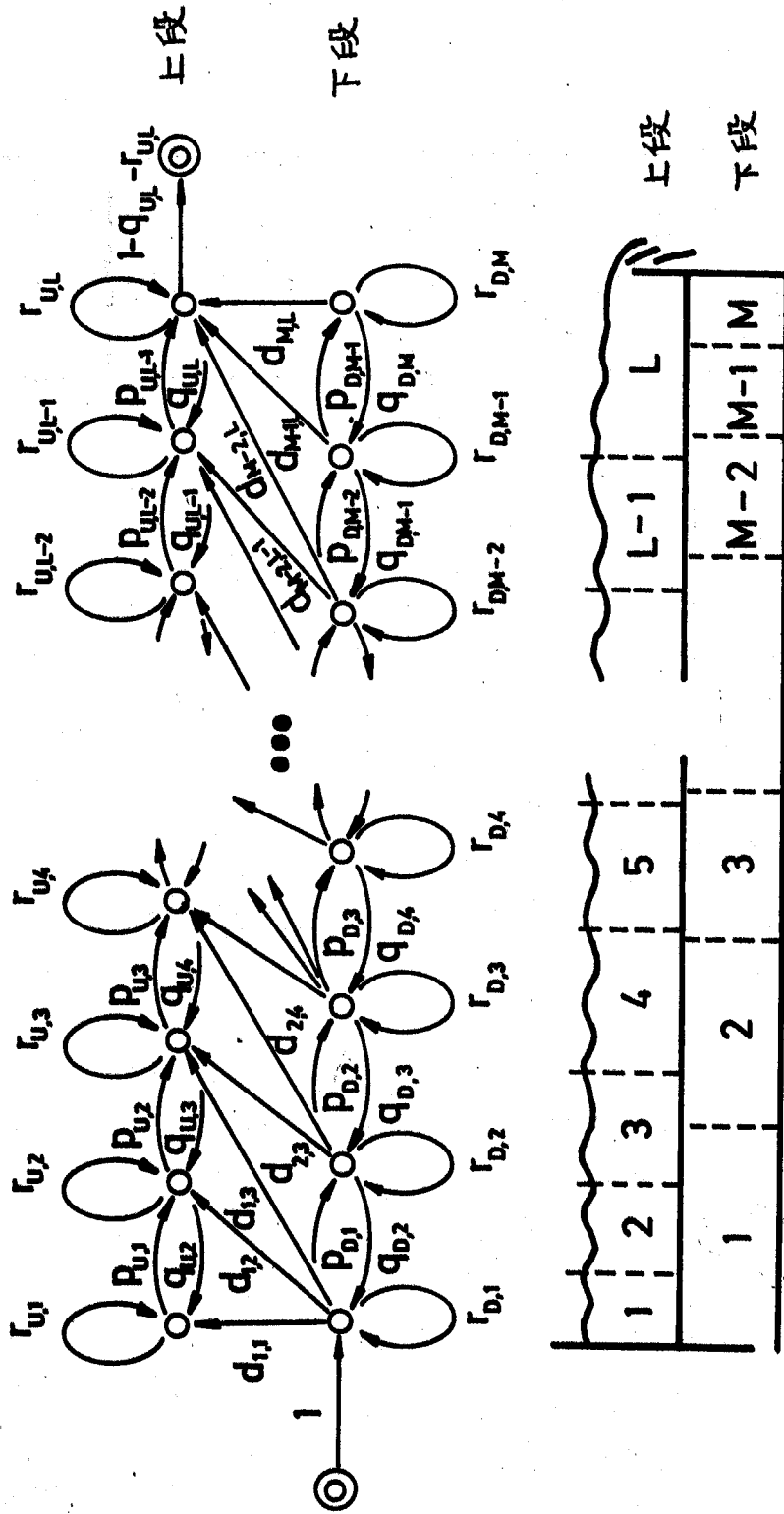
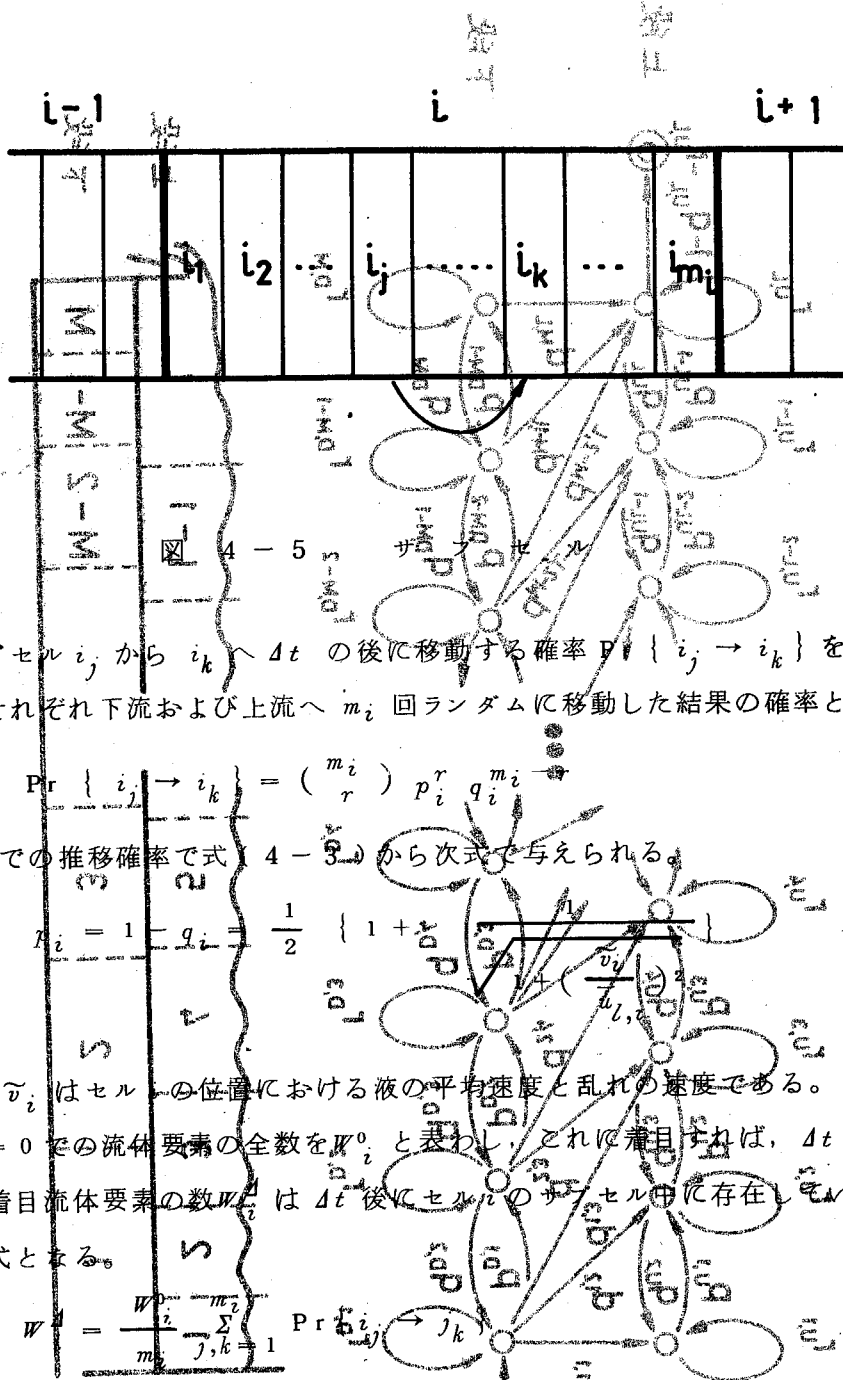


图 4-4 磁率流九線圖

と、その運動のスケールは $(2t_{L,x})_i V_{x,i}$ となる。添字 i はセル i についての値を表わす。各セル内では平均流速は一定と考えているから、各セルについて 3.3 の方法で $(2t_{L,x})_i V_{x,i}$ のスケールで幾つかのサブセルに分割できる。簡単のため、この分割数は常に整数であるとして、図 4-5 に示す様に分割数を m_i とする。



流体要素がサブセル i_j から i_k へ Δt の後に移動する確率 $\Pr \{ i_j \rightarrow i_k \}$ を考えるとこれは確率 p_i, q_i でそれぞれ下流および上流へ m_i 回ランダムに移動した結果の確率として与えられる。

$$\Pr \{ i_j \rightarrow i_k \} = \binom{m_i}{r} p_i^r q_i^{m_i-r} \quad (4-4)$$

p_i, q_i はセル i での推移確率で式 (4-3) から次式で与えられる。

$$p_i = 1 - q_i = \frac{1}{2} \left\{ 1 + \frac{v_i}{\bar{u}_{i,i}} \right\} \quad (4-5)$$

ただし、 $\bar{u}_{i,i}, \tilde{v}_i$ はセル i の位置における液の平均速度と乱れの速度である。

セル i 中の $t=0$ での流体要素の全数を W_i^0 と表わし、これに着目すれば、 Δt の後にセル i 中になお存在する着目流体要素の数 $W_i^{\Delta t}$ は Δt 後にセル i のサブセル中に存在しているものの和で与えられるから次式となる。

$$W_i^{\Delta t} = \frac{W_i^0}{m_i} \sum_{j,k=1}^{m_i} \Pr \{ i_j \rightarrow i_k \} \quad (4-6)$$

$t=0$ でセル i にあった流体要素の個数に対する $W_i^{\Delta t}$ の比が 1 つの流体要素に着目した時の Δt 毎の推移でセルフープに入る確率 r_i を与える。

同様に、セル i の各サブセルにある流体要素の中、 Δt 後にセルの下流および上流側へ流出するものの和を考えると、セル i からセル $i+1$ への推移確率 p_i 、セル i からセル $i-1$ への推移確率 q_i はそれぞれ次式で与えられる。

$$r_i = \frac{1}{m_i} \sum_{j,k=1}^{m_i} \text{Pr} \{ i_j \rightarrow i_k \} \quad (4-7)$$

$$p_i = \frac{1}{m_i} \sum_{j=1}^{m_i} \sum_{k=m_i+1}^{m_i+m_i+1} \text{Pr} \{ i_j \rightarrow i_k \} \quad (4-8)$$

$$q_i = \frac{1}{m_i} \sum_{j=1}^{m_i} \sum_{k=-1}^{-m_i-1} \text{Pr} \{ i_j \rightarrow i_k \} \quad (4-9)$$

2 段式多孔板では上の多孔板 T_2 を通って上の多孔板上に液が流出する。これを考慮するために、図 4-6 に示す様に下段のセル i から上段のセル j へ流出する流体要素の数 $W_{i \rightarrow j}$ を考える。 $W_{i \rightarrow j}$ のセル i 中の流体要素の数 W_i^0 に対する比はセル i 中にある流体要素が上の多孔板に流入する確率を与えるものである。これを配分比 $d_{i,j}$ と定義すると、液が一様に多孔板 T_2 を通過すると仮定すれば、これはセルの大きさ Δx_i および液の流出する棚段の大きさ $\Delta x_{i,j}$ と液の体積分率 $\bar{\varphi}$ の関数の次式で与えられる。

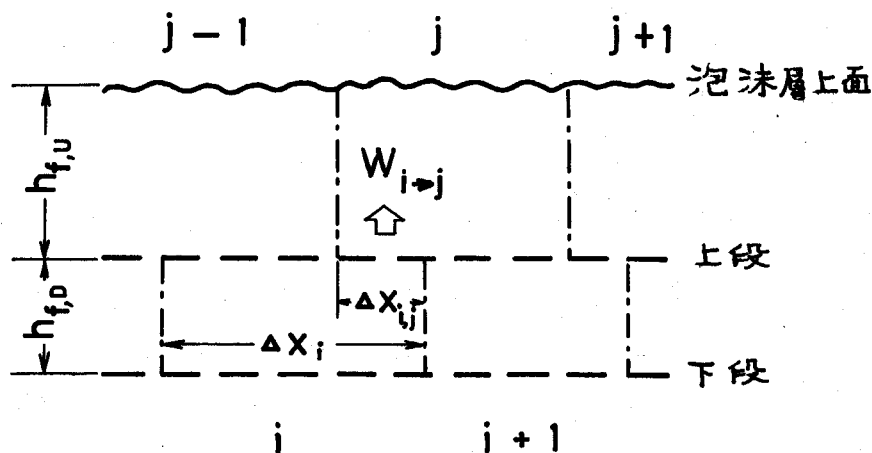


図 4-6 下段から上段への液の分配

$$d_{i,j} = \frac{W_{i \rightarrow j}}{W_i^0} = \frac{\left[\begin{array}{l} \text{下段のセル } i \text{ と上段のセル } j \text{ の接して} \\ \text{いる面を通して } \Delta t \text{ の間にセル } i \text{ から} \\ \text{セル } j \text{ へ流出する流体要素の数。} \end{array} \right]}{\text{(下段のセル } i \text{ 中の流体要素の数)}} = \frac{\Delta x_{i,j} q_l \Delta t / L_x}{\Delta x_i h_{f,D} \bar{\varphi} D} \quad (4-10)$$

なお、物質収支から $p_i, q_i, r_i, d_{i,j}$ の間には当然のことながら次式の関係が成立している。

$$p_i + q_i + r_i + \sum_j d_{i,j} = 1 \quad (4-11)$$

4. 3. 2 混合過程の表現

2 段式多孔板では各セルの大きさが異なるため、混合状態は 3.3 と同様な着目流体要素の存在確率分布で簡単に表現できない。そこで、下段 i および上段 j の各セル中の流体要素の存在量を、下段の入口のセル 1 内の全流体要素の数 N_0^n に対する相対量で表わし、それらを x_i^n, y_j^n と定義すると、4.3.1 の考察から次式が得られる。

$$\left\{ \begin{array}{l} x_1^{n+1} = (q_{D,1} + r_{D,1}) x_1^n + q_{D,2} x_2^n \\ x_2^{n+1} = p_{D,1} x_1^n + r_{D,2} x_2^n + q_{D,3} x_3^n \\ \dots\dots\dots \\ x_i^{n+1} = p_{D,i-1} x_{i-1}^n + r_{D,i} x_i^n + q_{D,i+1} x_{i+1}^n \\ \dots\dots\dots \\ x_M^{n+1} = p_{D,M-1} x_{M-1}^n + r_{D,M} x_M^n \end{array} \right. \quad (4-12)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} y_1^{n+1} = (q_{U,1} + r_{U,1}) y_1^n + q_{U,2} y_2^n + \sum_k d_{k,1} x_k^n \\ y_2^{n+1} = p_{U,1} y_1^n + r_{U,2} y_2^n + q_{U,3} y_3^n + \sum_k d_{k,2} x_k^n \\ \dots\dots\dots \\ y_j^{n+1} = p_{U,j-1} y_{j-1}^n + r_{U,j} y_j^n + q_{U,j+1} y_{j+1}^n + \sum_k d_{k,j} x_k^n \\ \dots\dots\dots \\ y_L^{n+1} = p_{U,L-1} y_{L-1}^n + r_{U,L} y_L^n + \sum_k d_{k,L} x_k^n \\ y_{L+1}^{n+1} = (1 - q_{U,L} - r_{U,L}) y_L^n + y_{L+1}^n \end{array} \right. \quad (4-13)$$

式 (4-12) (4-13) はそのままでは取り扱いが非常に繁雑なので、 x_i^n, y_j^n の分布を式 (4-14) (4-15) のベクトルで定義すると 3.3 と同様な方法によって $t = n \Delta t$ から $t = (n+1) \Delta t$ の推移における流体要素の相対量分布は式 (4-16) ~ (4-19) で与えられる。

$$x_n \equiv (x_1^n, x_2^n, \dots, x_i^n, \dots, x_M^n)^T \quad (4-14)$$

$$y_n \equiv (y_1^n, y_2^n, \dots, y_j^n, \dots, y_L^n, y_{L+1}^n)^T \quad (4-15)$$

$$y_{n+1} = P_U y_n + D P_D x_{n-1} \quad (4-16)$$

$$P_D = \begin{pmatrix} q_{D,1} + r_{D,1} & q_{D,2} & 0 & & & 0 \\ p_{D,1} & r_{D,2} & q_{D,3} & 0 & & \\ 0 & p_{D,2} & r_{D,3} & q_{D,4} & 0 & \\ \dots\dots\dots & & & & & \\ 0 & 0 & p_{D,M-2} & r_{D,M-1} & q_{D,M} & \\ & & 0 & p_{D,M-1} & r_{D,M} & \end{pmatrix} \quad (4-17)$$

表 4-1 実験に用いた多孔板の大きさ

幅	(mm)	50
長さ	(mm)	390
出口堰高さ	(mm)	88
段間隔	(mm)	30, 50, 70
孔間隔	(mm)	15
孔径 (上段, 下段共)	(mm)	4
板厚	(mm)	4
孔配列		正三角形

材質はすべて黄銅製

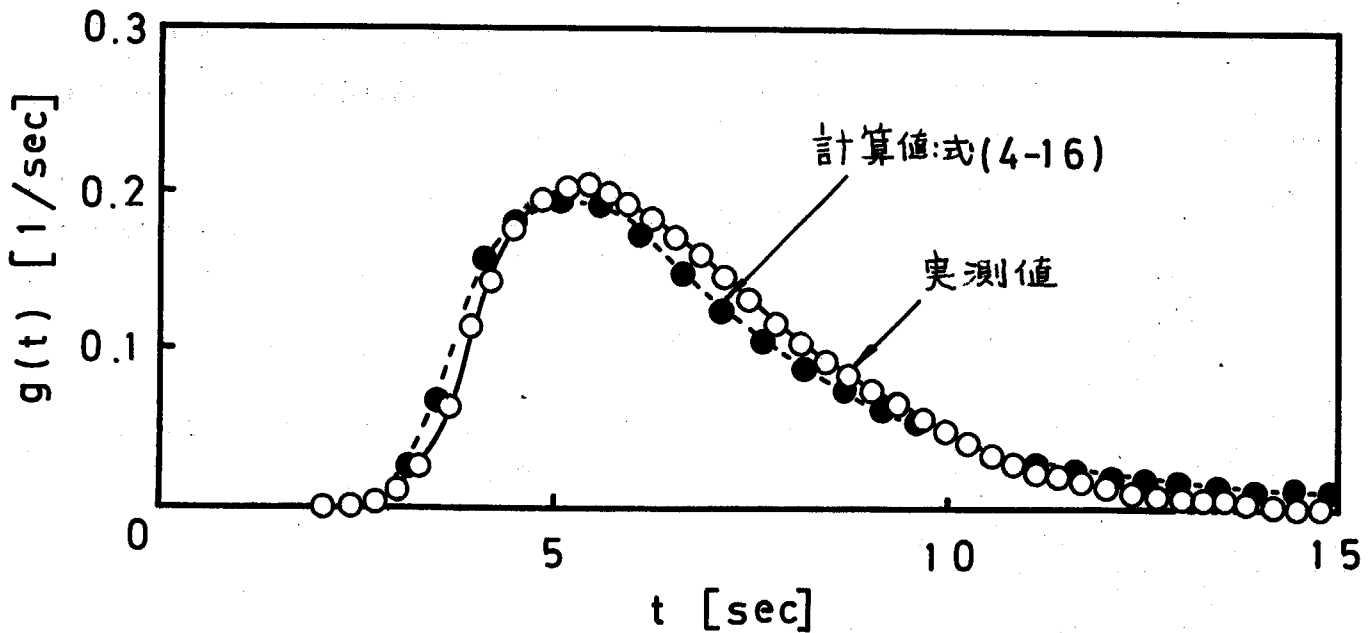


図 4-7 滞留時間分布

$$\left[\begin{array}{l}
 Z_w = 88 \text{ mm}, d_s = 50 \text{ mm} \\
 h_{f,D} + h_{f,U} = 15.0 \text{ cm}, \bar{\varphi}_D = 0.13, \bar{\varphi}_U = 0.28 \\
 q_L = 20.1 \text{ cm}^3 / \text{cm} \cdot \text{sec}, U_g = 123 \text{ cm/sec} \\
 M = 10, L = 9 \\
 \Delta t = 0.268 \text{ sec}
 \end{array} \right]$$

この計算値と実測値との比較から両者の良好な一致が認められ、滞留時間分布に見る限り、普通の多孔板での対応する流動条件での混合特性値から2段式多孔板の混合の大略を推定し得ることがわかる。すなわち、2段式多孔板でも液の混合に関しては離散的な混合モデルによる表現が可能で、そのパラメータは普通の多孔板の値から推定し得るといえる。

普通の多孔板では、液の平均流速は一定とみなせるため、液の混合特性値は気体と液体の平均速度で定まる1組の変動速度の大きさとタイムスケールで表わすことができた。しかし、2段式多孔板では図4-3にも示した様に、液の速度が液流方向に変化するため、普通の多孔板の様に1組の変動速度 \bar{v}_L とタイムスケール t_L では表現できない。

多孔板塔の本来の機能である物質移動との関係で液の混合を検討するには、上述の液の混合特性値に代る別の工学的に便利な何らかの量を導入するのが望ましい。そこで、系内の流動状態が不明の時、滞留時間分布の特性のみで系の混合特性を表わす1つの方法の混合度³²⁾ M_I をここで採用する。流動状態がピストン流れに近ければ M_I は0に近い値をとり、完全混合流れに近ければ M_I は1に近い値をとる。この混合度の特徴について以下で簡単に考察し、その応用を試みる。

混合度とは、滞留時間分布の平均値に対する標準偏差の比で、式(4-21)で定義される。

$$M_I \equiv \frac{\sigma_t}{\bar{t}} \quad (4-21)$$

ただし σ_t は滞留時間分布の標準偏差である。

定常で操作している一般の連続装置を考え、装置内の流体要素の年齢頻度分布関数を $I(t)$ 、出口でのそれを $E(t)$ と表わせば次の関係が成立する。⁶⁶⁾ ただし、流体要素の年齢は、それが装置に流入した時点を0として測定した時間を意味する。

$$\frac{dI(t)}{dt} = \frac{1}{\bar{t}} (\delta(t) - E(t)) \quad (4-22)$$

t は流体要素が系の入口に流入した時点を原点とした年齢を、 \bar{t} は平均滞留時間を、 $\delta(t)$ はデルタ関数を表わす。この様に表わした時の系の特性を次に示す平均年齢と分散で表わす。

$$\bar{t}_I \equiv \int_{0-}^{\infty} t I(t) dt \quad (4-23)$$

$$\bar{t}_E \equiv \int_{0-}^{\infty} t E(t) dt \quad (4-24)$$

$$\sigma_E^2 \equiv \frac{1}{\bar{t}_E^2} \int_{0-}^{\infty} (t - \bar{t}_E)^2 E(t) dt \quad (4-25)$$

入口、出口に逆流成分のないいわゆる閉系³⁹⁾ では、式(4-22)から次の関係が成立する。

$$\bar{t}_E = \bar{t} \quad (4-26)$$

定常操作を行っている連続装置では、出口年齢頻度分布関数 $E(t)$ は滞留時間分布関数 $g(t)$ と同一であるから次式となる。

$$\bar{t} = \int_{0-}^{\infty} t g(t) dt = \bar{t}_E \quad (4-27)$$

式(4-22)の両辺に t を掛けて積分すると式(4-25)(4-26)から次式の関係が得られる。

$$\sigma_E^2 = 2 \frac{\bar{t}_I}{\bar{t}_E} - 1 \quad (4-28)$$

定義式(4-25)によると、 σ_E^2 は出口年令頻度分布関数の変動係数であるから、これは井上³²⁾の提案した滞留時間分布関数の変動係数、すなわち、式(4-21)の混合度 M_I に等しい。したがって、混合度 M_I は流体要素の平均年令 \bar{t}_I 、 \bar{t}_E を用いて式(4-29)と表わせる。

$$M_I = \sqrt{2 \frac{\bar{t}_I}{\bar{t}_E} - 1} \quad (4-29)$$

混合度 M_I は定義式(4-29)からわかる通り、出口と系内の平均年令の比が等しくなる場合は混合機構の如何によらず等しい混合度を与えることになる。

2段式多孔板の場合、液の混合過程は式(4-16)で表わせ、そのパラメータが流速と共に一定の関係に従って変化するにすぎない。仮に異なった混合状態が同一の混合度に対応する場合があるとしても、多孔板の幾何学的条件が与えられれば、その重りはそれ程大きくないと考えられる。すなわち、物質移動との関連で、2段式多孔板での液混合の評価を混合度 M_I を用いて行うのは、簡便さという点から妥当と考えられる。

この考えの下に、液の体積分率 $\bar{\phi}$ を上段、下段共等しくかつ、一定とした場合の段間隔 d_s と混合度 M_I との関係を式(4-16)を用いたシミュレーションによって求めた。

図4-8はその結果の1例である。この結果から、混合度 M_I は気体速度に対してはあまり変化しないこと、液流量によって多少変化するが、その程度は小さいことがわかる。ただし、すでに示した様に、実際には段間隔や液流量の条件によって必ずしも一様流入の状態が得られるとは限らないため、この点を考慮した上で図4-8の結果を評価しなければならない。

図4-8の結果から得られる最も特徴的な点は、気、液の流量の如何によらず、段間隔 d_s が泡沫層の高さのほぼ半分程の時に混合度 M_I が最小になることである。この結果は、実際の操作条件のほぼ全域にわたるシミュレーションからいずれの場合も同様であった。液が上段上へ一様に流入することを前提にすれば、これが液の混合を最小にする条件であることがわかる。

4. 4 本章の結論

本章では、単位棚段当りの物質移動効率を高めて塔の設置空間を小さくする目的で考案した2段式多孔板について、その物質移動効率の推定に必要なより扱い易い簡単な液の混合モデルを3.2で提案した離散的な混合モデルの応用という立場から考察し、以下の結論を得た。

1) 2段式多孔板の液の混合モデルは普通の多孔板で得た混合特性値を用いて構成できる。このモデルの特徴はセルフープを持つことであるが、隣接のセル以外との相互作用は考えなくてもよい

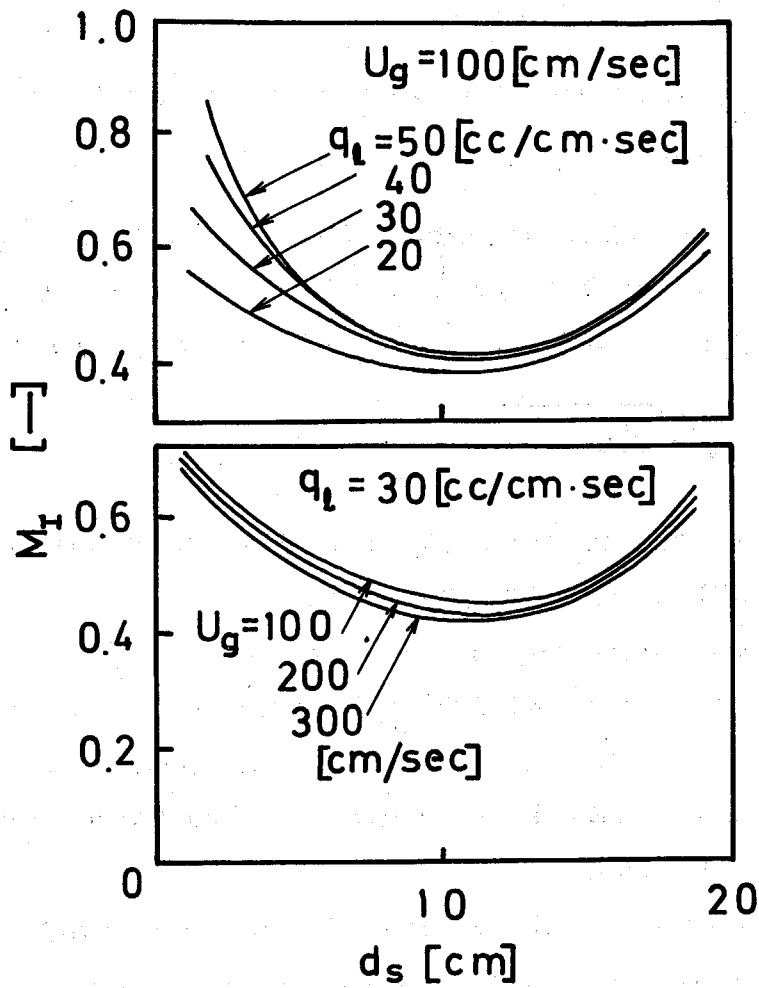


図 4-8 混 合 度

$$\left[\begin{array}{l} h_{f,D} + h_{f,U} = 20 \text{ cm} \\ \bar{\varphi}_D = \bar{\varphi}_U = 0.3 \end{array} \right]$$

ため、簡単に扱える。

2) 2段式多孔板の液の混合特性値は、液の流速が場所によって変化するため、1組のタイムスケールと変動速度の大きさを表わせないが、工学的には混合度で便宜的に表わすことができる。

3) 液の混合の程度は、混合度を用いて評価すると、上段の多孔板を泡沫層の高さの約半分的位置に設置した時最も小さくなる。

第 5 章

混合モデルの物質移動過程への応用

多孔板塔は本来、物質移動を行わせる装置であるという観点から、普通の多孔板および2段式多孔板での混合モデルの応用例として炭酸ガスの物理吸収過程を考察する。

5. 1 序

多孔板塔は本来物質移動を行わせる装置であるから、得られた混合モデルが物質移動過程を表現するのに応用し得なければ工学的に価値は半減する。本章では、第3章と第4章で得た混合モデルの応用例として移動速度が比較的遅い物質移動過程への適用を試みた。

第3章で示した普通の多孔板での混合モデルを応用した物質移動過程を表わす表示式を得て、その妥当性を実験的に検討し、これを用いて混合と物質移動との関係を明らかにすることが本章の第一の目的である。さらに、第4章で示した2段式多孔板の場合についても、同様に物質移動過程を表わす表示式の妥当性を実験的に考察し、これに基づいて物質移動と第4章で考察した2段式多孔板での混合特性との関係を明らかにするのが本章の第二の目的である。

第3章と第4章の混合モデルは、すでに示したように液の混合過程を一定時間毎のピストン流れの組み合わせとして表わしたものと解釈できる。これは、1ステップの時間間隔が流体要素の変動速度の相関時間から決まるといふ事実によって説明される。

液の流れがピストン流れであれば、そこで物質移動が生ずる場合の扱いは比較的簡単となる。このため、第3章の混合モデルを用いると物質移動過程の扱いも簡単になる。

本章では混合モデルに物理吸収過程を応用してその表示式を示し、さらに、炭酸ガスの水への吸収実験を行ってその妥当性を考察した。

5. 2 物質移動過程の表現方法

第3章と第4章で示した混合モデルは、セル*i*についてみると時間 $t = 0$ でセル*i* 中にあった全流体要素が Δt 毎にどの様に配分されて隣接のセル $i + 1$, $i - 1$ またはそれ自身のセル*i* に移動するかを表わしたものである。着目成分についてみると、 $t = 0$ で各セル内は一様であると考えているから、物質移動を考えない場合は流体要素全体を考えた上述の解釈が着目成分についても成り立ち、この配分割合を第3章第4章ではそれぞれ p_i , q_i , r_i と表わした。しかし、物質移動が生ずる場合は、着目成分は時間と共に増加、又は減少することになり、これを考慮しなければならぬ。

今、液単位量当りの着目成分量の Δt 毎の変化率すなわち、 Δt 毎の濃度変化の初濃度に対する比を ΔS_i と表わすと、セル*i* からセル $i + 1$, $i - 1$, i へ移動する実質の着目成分の量はそれぞれ次の様に表わせる。

$$\begin{cases} p_i (1 + \Delta S_i) C_0 V_{f,i} \bar{\varphi}_i \\ q_i (1 + \Delta S_i) C_0 V_{f,i} \bar{\varphi}_i \\ r_i (1 + \Delta S_i) C_0 V_{f,i} \bar{\varphi}_i \end{cases} \quad (5-1)$$

V_f は各セルの泡沫体積, $\bar{\varphi}$ は液の平均体積分率, c_0 は着目成分の濃度である。

ガス吸収の場合の様に液相中の着目成分が増加する場合は $\Delta S_i > 0$ であり, ガスの放散の場合の様に液相中の溶質が減少する場合は $\Delta S_i < 0$ となる。

物質移動が生ずる場合は, 式(5-1)から見掛け上移動確率が変化するとして扱えることがわかる。しかし, ガスの吸収あるいは放散といった操作の相違によって ΔS_i が正になったり負になったりするために扱い方を場合によって変えなければならないのは不都合である。そこで, 平衡状態への近接度を表わすためにセルの容量という概念を導入すると便利である。セルの容量とは, 各セルにさらに吸収し得る全容質量, または各セルからさらに放散し得る全容質量と定義する。これは気・液の接触時間を無限大にした時の $|\Delta S_i|$ の値である $|\Delta S_i|_{\max}$ から $|\Delta S_i|$ を差引き, これに各セルの液量を掛けたものに等しくなる。

$$c_0 V_{f,i} \bar{\varphi}_i \{ |\Delta S_i|_{\max} - |\Delta S_i| \} \quad (5-2)$$

したがって, 物質移動過程を各セルの容量の相対的な変化過程すなわち, 平衡状態への近接度の変化過程として扱えば, 物質移動過程は式(5-1)の代りに式(5-3)で示される相対容量の変化過程によって, 吸収, 放散の如何によらず表現し得る。

$$\left\{ \begin{array}{l} p_i r_i \frac{V_{f,i} \bar{\varphi}_i}{V_{f,0} \bar{\varphi}_0} \\ q_i r_i \frac{V_{f,i} \bar{\varphi}_i}{V_{f,0} \bar{\varphi}_0} \\ r_i r_i \frac{V_{f,i} \bar{\varphi}_i}{V_{f,0} \bar{\varphi}_0} \end{array} \right. \quad (5-3)$$

$$r_i = 1 - \frac{|\Delta S_i|}{|\Delta S_i|_{\max}} \quad (5-4)$$

この様に表わした pr , qr , rr は上式からも明らかな様に, 物質移動のために着目成分の量が変化した見掛け上の各セル間の着目成分の移動割合とみなせる。したがって r は物質移動のために生ずる見掛け上の移動割合の変化率を与える。以下では, この方法で物質移動過程を表わし, 具体的な場合について, その数式モデルの妥当性を検討する。

5. 3 普通の多孔板上の物質移動の扱い

普通の多孔板の液の混合モデルは, 第3章で示した様にセルフループの項 $r=0$ である。また, 液の体積分率 $\bar{\varphi}$, 泡沫層体積も一定とみなせるから, この場合の物質移動過程は式(5-4)の r の項で表現される。

5. 3. 1 物質移動過程の表現

時間 Δt 毎のセル i の溶質量の収支を考える。セル i の $t = 0$ における液中の溶質の初濃度を $c_{i,0}$ 、時間 Δt の後に液中に存在する溶質の濃度を $c_{i,\Delta}$ と表わすと時間 Δt 毎に次の収支式が成立する。

$$V_f \bar{\varphi} c_{i,0} = p V_f \bar{\varphi} c_{i-1,\Delta} + q V_f \bar{\varphi} c_{i+1,\Delta} \quad (5-5)$$

普通の多孔板では残存容量 $Y_{i,\bullet}$ は式 (5-6) の様に定義される。この様に定義した $Y_{i,\bullet}$ は、ガス吸収を問題にする時はセル i 内の液にさらに吸収し得る溶質量を、ガスの放散を問題にする時はセル i 内の液からさらに放散し得る残存溶質量を意味することは明らかである。

$$Y_{i,\bullet} = V_f \bar{\varphi} |K C_{g,0} - c_{i,\bullet}| = V_f \bar{\varphi} |K C_{g,0} - c_{i,0}| - (c_{i,\bullet} - c_{i,0}) \quad (5-6)$$

ここに、 $c_{i,0}$ は流入液の濃度である。したがって $|K C_{g,0} - c_{i,0}|$ は単位液量当りの最大容量、 $|c_{i,\bullet} - c_{i,0}|$ は^{時間}後の単位液量当りの容量で、これらは式 (5-2) の $|dS|_{\max}$ と $|dS|$ にそれぞれ対応するから、式 (5-6) を変形すると次式が得られる。

$$Y_{i,\Delta} = V_f \bar{\varphi} |K C_{g,0} - c_{i,0}| r \quad (5-7)$$

式 (5-5) (5-6) から次式が得られる。

$$\begin{aligned} Y_{i,0} &= p Y_{i-1,\Delta} + q Y_{i+1,\Delta} \\ &= r p Y_{i-1,0} + r q Y_{i+1,0} \end{aligned} \quad (5-8)$$

次に式 (5-8) を解く境界条件について述べる。セル 1 では入口堰での反射を考慮しなければならない。すなわち、セル 1 にある液の中 q の部分がセル 1 中に残ることになる。いま便宜的にセル 1 の前に各セルと同一の容積を持ったセル 0 を考えると、この中の溶質の濃度によって流入液の濃度が与えられる。

ここでの考察は定常な連続装置を対象としているので、多孔板での正味の流量を考えると、 Δt 毎に各セル内の液量の中 $p - q$ の部分が下流に流れていることになる。したがって、セル 0 からセル 1 に Δt 毎に流入する液量はセル 0 中の液の $p - q$ の部分となる。この点を考慮して同様な展開を行うと式 (5-9) が得られる。

$$Y_{1,0} = r (p - q) Y_{0,0} + r q Y_{1,0} + r q Y_{2,0} \quad (5-9)$$

$Y_{0,0}$ は入口の仮想セル 0 中の容量である。

セル M では、出口堰での反射壁を考慮して同様の操作を行うと式 (5-10) が得られる。

$$Y_{M,0} = r p Y_{M-1,0} + r q Y_{M,0} \quad (5-10)$$

必要な初期条件を与えれば、 Δt 毎の濃度分布の変化過程は式 (5-8) ~ (5-10) を用いて求められる。

後の計算の便利のために、さらに次式で定義する相対容量 X_i を考えると便利である。

$$X_{i,0} = \frac{Y_{i,0}}{V_{f,i} \bar{\varphi}_i Y_{0,0} / (V_{f,0} \bar{\varphi}_0)} \quad (5-11)$$

ただし、 $X_{i,0}$ はセル i 中の残存容量の初期容量に対する相対値で、必ず 1 より小さな値となる。

多孔板での物質移動操作は定常操作時における物質移動効率を問題にすることが多い。以下ではこの観点から、液濃度の初期分布が与えられた場合の過渡変化を知る方法を考察する。これは、この解が求まれば時間 $t \rightarrow \infty$ とした時の値として定常特性が求まるからである。

残存容量 Y_i を相対容量 X_i に変換し、 $t = n\Delta t$ 後の X_i の値を X_i^n と表わすと、相対容量 X_i^n に関する方程式群は式(3-44)の推移確率が見掛け上変化したとみせる式(5-12)~(5-14)で与えられる。ただし、 X_n は相対容量分布ベクトル、 X_0 はその初期分布を与える。また T は転置行列を意味する。

$$X_n = r P X_{n-1} = (rP)^n X_0 \quad (5-12)$$

$$X_n \equiv (X_0^n, X_1^n, \dots, X_i^n, \dots, X_M^n, X_{M+1}^n)^T \quad (5-13)$$

$$P \equiv \begin{pmatrix} 1 & 0 & & & & & 0 \\ p-q & q & q & 0 & & & \\ 0 & p & 0 & q & 0 & & \\ & & \dots & & & & \\ & & & 0 & p & 0 & q & 0 \\ & & & & 0 & p & q & 0 \\ 0 & & & & & 0 & p-q & 0 \end{pmatrix} \quad (5-14)$$

行列 P の第 1 列はセル 0 には常に外部から新しい液が流入して来ることを示すため第 1 行に 1 の項が付加されている。また行列 P の最右列の要素はすべて 0 であるが、これはセル $M+1$ 中の液は時間 Δt 毎に完全に出口から排出されることを表わしている。したがって、この場合の P はいわゆる規格化の条件は満足しないため、推移確率行列ではない。

rP は Δt 毎の各セル中の相対容量の変化を規定する行列であるので、これを容量行列と呼ぶことにする。

初期条件を与える相対容量分布ベクトル X_0 は条件によって任意に与えることができる。たとえば、ガス吸収の場合、 $t = 0$ で被吸収ガスを流通し始めたとすれば、式(5-15)で与えられ、溶質の放散を行う場合に $t = 0$ で被放散液を流し始めたとすれば式(5-16)で与えられる。

$$X_0 = (1, 1, \dots, 1)^T \quad (5-15)$$

$$X_0 = (1, 0, \dots, 0)^T \quad (5-16)$$

連続的に操作を行う場合に得られる定常濃度分布は $n = \infty$ として式(5-12)から得られる。式(5-12)~(5-14)を用いて多孔板上での物質移動を考察するためには r と物質移動に関

係する因子との関係が明らかになれば、従来の拡散モデルによるよりさらに詳細に物質移動効率に及ぼす液混合の影響を考察し得る。

以下では、この点について考察するため、まず、 $0 < t < \Delta t$ での流体要素の移動を考える。

ここで用いている液の混合モデルの特徴は次の様である。

1) $0 < t < \Delta t$ では、各セル内の流体要素は確率 p および q に従って下流と上流に一定の速度 V_x で移動する。

2) $t = \Delta t$ ですべての流体要素は隣接のセルに移動して、そこで改めて 1) の過程を繰り返す。

各セル内の下流および上流へ移動している流体要素はセル内にランダムに分布している。しかし、 Δt の間に流体要素は各々独立に運動していると考えられるので、図 5-1 の様に区別して表わせる。

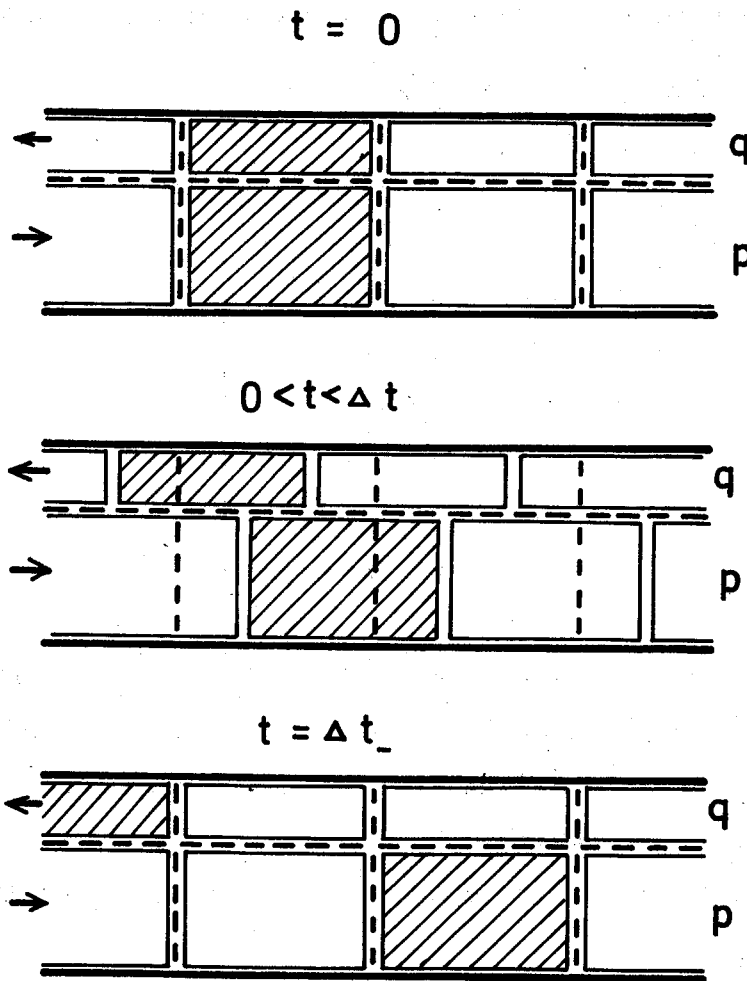


図 5-1 液体の流動モデル

すなわち、液の混合過程は Δt 毎のピストン流れの繰返しで表わせる。

今、ガスの物理吸収について考え、次の仮定を前提として扱う。

- 仮定 1 気液平衡関係は式 (5-19) の直線関係で表わせる。
- 仮定 2 物質移動速度は総括吸収容量係数で表わせる。
- 仮定 3 気体中の溶質濃度の変化過程は比較的小さく気流方向での濃度分布はないとする。
- 仮定 4 気体中の溶質濃度は一様な状態で多孔板に流入する。

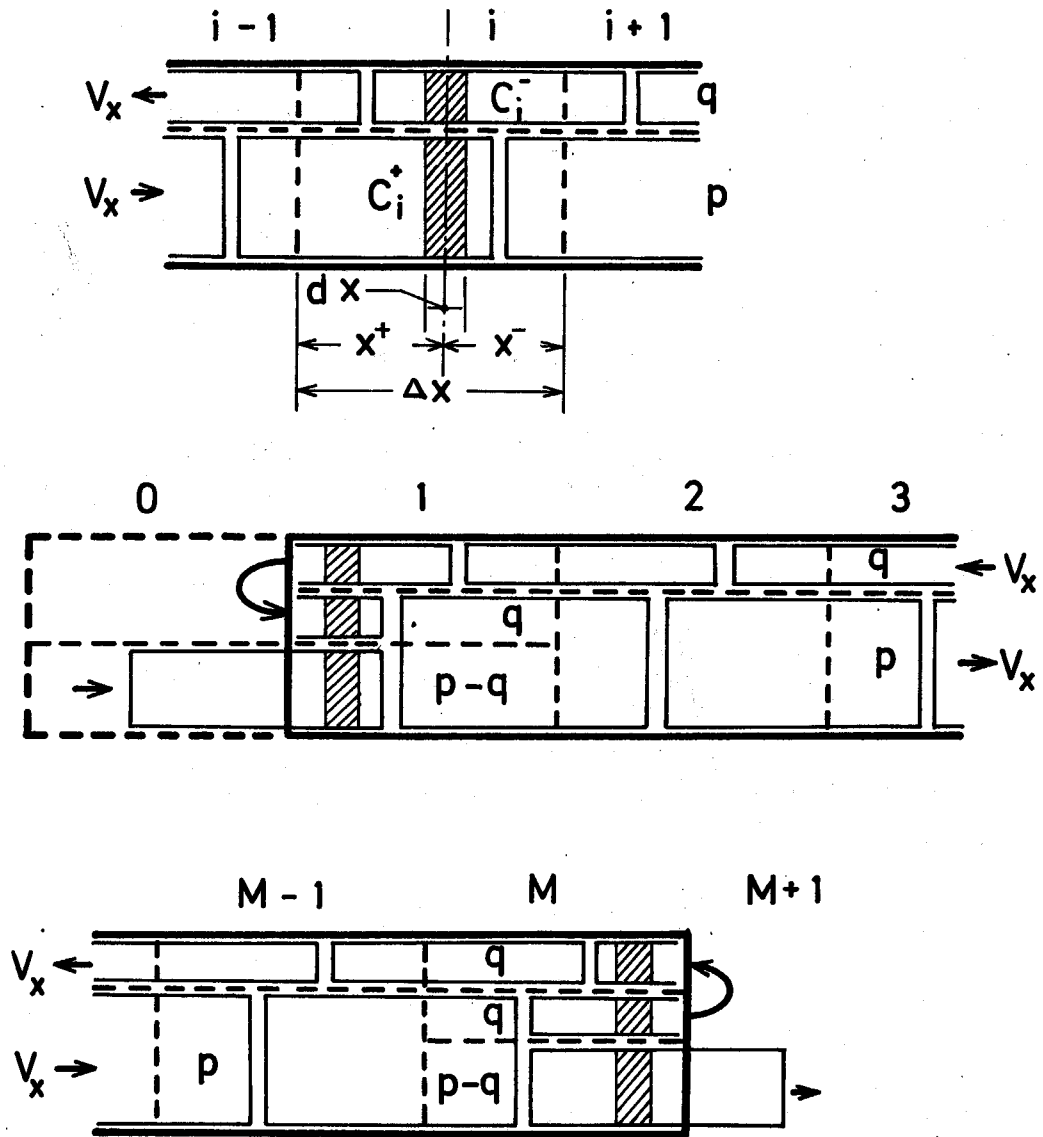


図 5-2 物質収支

Δt 毎の溶質量の変化を考えるため、図 5-2 に示すセル i の dx 部分の液を考える。下流および上流へ移動する液体中の溶質濃度をそれぞれ $c_i^+(x^+, t)$, $c_i^-(x^-, t)$ で表わすと、濃度の変化過程は式 (5-17) (5-18) で与えられる。ただし、図 5-2 に示す様に座標 x^+ , x^- は液の移動方向を正にとり、セル i に隣接セルの流体が流入し始める点、すなわち、それぞれセル $i-1$ とセル i の境界、セル i とセル $i+1$ との境界を原点にとる。

$$\frac{\partial c_i^+}{\partial t} + V_x \frac{\partial c_i^+}{\partial x^+} = \frac{K_L a}{\phi} (K C_g - c_i^+) \quad (5-17)$$

$$\frac{\partial c_i^-}{\partial t} + V_x \frac{\partial c_i^-}{\partial x^-} = \frac{K_L a}{\phi} (K C_g - c_i^-) \quad (5-18)$$

$$K \equiv \frac{c_i^*}{c_g} = \frac{c_i}{c_g^*} \quad (5-19)$$

$K_L a$ は液の体積を基準にした液側総括吸収容量係数, $\bar{\varphi}$ は液の平均体積分率, K は平衡定数, * は平衡値を表わす。

dx 部分の平均濃度を $\langle c_i \rangle$ と表わすと, これは c_i^+, c_i^- とは次の関係で結ばれる。

$$\langle c_i \rangle = p c_i^+(x^+, t) + q c_i^-(\Delta x - x^+, t) \quad (5-20)$$

式(5-17) ~ (5-20) から次式が得られる。

$$\frac{\partial \langle c_i \rangle}{\partial t} + p V_x \frac{\partial c_i^+}{\partial x^+} + q V_x \frac{\partial c_i^-}{\partial x^-} = \frac{K_L a}{\bar{\varphi}} (K C_{g,0} - \langle c_i \rangle) \quad (5-21)$$

一方, dx での物質収支を考えると次式が得られる。

$$\frac{\partial \langle c_i \rangle}{\partial t} + p V_x \frac{\partial c_i^+}{\partial x^+} + q V_x \frac{\partial c_i^-}{\partial x^-} = \frac{U_g}{\bar{\varphi} h_f} (C_{g,0} - C_g) \quad (5-22)$$

ここに, $C_{g,0}$ は多孔板に入る前の気体中の溶質の濃度, U_g は多孔板単位面積当りの気体の流量, h_f は泡沫層の高さである。

式(5-17)(5-18)(5-21)(5-22) から次式が得られる

$$\frac{\partial c_i^+}{\partial t} + V_x \frac{\partial c_i^+}{\partial x^+} = \alpha (1 + q \beta \zeta^+) (K C_{g,0} - c_i^+) \quad (5-23)$$

$$\frac{\partial c_i^-}{\partial t} + V_x \frac{\partial c_i^-}{\partial x^-} = \alpha (1 + p \beta \zeta^-) (K C_{g,0} - c_i^-) \quad (5-24)$$

ただし,

$$\alpha = \frac{K_L a}{\bar{\varphi} (1 + \beta)}, \quad \beta = \frac{K_L a h_f K}{U_g} \quad (5-25)$$

$$\zeta^+ = \frac{c_i^- - c_i^+}{K C_{g,0} - c_i^+}, \quad \zeta^- = \frac{c_i^+ - c_i^-}{K C_{g,0} - c_i^-} \quad (5-26)$$

常に $c_i^+ \leq K C_{g,0}$, $c_i^- \leq K C_{g,0}$ が成立するから, $|\zeta^+| \leq 1$, $|\zeta^-| \leq 1$ である。

通常の多孔板の操作条件では U_g は 1 m/sec 程度, h_f は 10 cm 程度であるから, 多くの物理吸収では $\beta |\zeta^+, -| \ll 1$ と考えてよい。 $\beta |\zeta^+, -| \ll 1$ の条件が満足する時式(5-23)(5-24) は次の様に簡単化される。

$$\frac{\partial c_i^+}{\partial t} + V_x \frac{\partial c_i^+}{\partial x^+} = \alpha (K C_{g,0} - c_i^+) \quad (5-27)$$

$$\frac{\partial c_i^-}{\partial t} + V_x \frac{\partial c_i^-}{\partial x^-} = \alpha (K C_{g,0} - c_i^-) \quad (5-28)$$

$t = 0$ での初濃度を $c_{i,0}$ と表わせば, $t = \Delta t$ の時の解は次式となる。

$$c_i^+ (x_i^+ - V_x \Delta t, \Delta t) - K C_{g,0} = (c_{i,0} - K C_{g,0}) e^{-\alpha \Delta t} \quad (5-29)$$

$$c_i^- (x_i^- - V_x \Delta t, \Delta t) - K C_{g,0} = (c_{i,0} - K C_{g,0}) e^{-\alpha \Delta t} \quad (5-30)$$

式(5-29)(5-30)の左辺は, 下流および上流へ移動する流体要素の単位液量当りの Δt 後の残存容量を表わすので, 式(5-4)から r は次式で与えられることがわかる。

$$r = e^{-\alpha \Delta t} \quad (5-31)$$

5. 3. 2 実 験

式(5-12)の妥当性を検討するため, 例として炭酸ガスの水への吸収実験を行った。

5. 3. 2. 1 実験装置および方法

使用した多孔板の諸元は表5-1に示した。

表 5-1 実験に用いた多孔板の大きさ

幅	[mm]	50
長さ	[mm]	390
堰高さ	[mm]	
入口		20
出口		40
孔径	[mm]	4
孔間隔	[mm]	15
開孔比	[%]	12.9
板厚	[mm]	4
孔配列		正三角形

材質はすべて黄銅製

実験系は水-空気系で, 溶質として炭酸ガスを使用した。炭酸ガスは多孔板より約3m上流の内径200mmの空気導入管の中央に注入し, オリフィス板と整流用多孔板で均一濃度にした後, 測定する多孔板に流入する様に分散させた。

液の混合特性は第3章で示したインパルス応答法に従って式(3-40)(3-41)から混合特性値のタイムスケール $t_{L,x}$ と変動速度の大きさ \bar{v} を求めた。

泡沫層の高さ h_f は目測および光の透過度を測定する方法を併用して求めた。液の平均ホールドアプはインパルス応答から測定された液の平均滞留時間と液の流量とから求めた。

水中に溶存する炭酸ガス濃度は過剰の 0.1N 水酸化バリウム水溶液中に採取した試料を添加して、0.1N 塩酸による逆滴定から求めた。

気体中の炭酸ガス濃度は、苛性カリ水溶液中に吸収させる方式のミヤベ式ガス分析装置を用いて定量した。

定量した各相中の炭酸ガスの濃度を用いて、式 (5-6) (5-11) から定常相対容量分布 $(X_i)_{\text{exp}}$ を求める。次に $K_L a$ を仮定して、これを予め求めておいた混合特性値を用いて式 (5-12) から対応するセルの相対容量 $(X_i)_{\text{calc}}$ を求める。この様な繰返し計算によって絶対偏差の和 $\sum_{i=1}^M |(X_i)_{\text{exp}} - (X_i)_{\text{calc}}|$ が最小になる r の値を求め、式 (5-31) (5-25) から $K_L a$ の値を算出し、各条件の総括吸収容量係数として求めた。

5.3.2.2 実験結果および考察

炭酸ガスの水への吸収では β の値は 0.01 の程度であるから、 $\beta |G| \ll 1$ の条件を満足している。

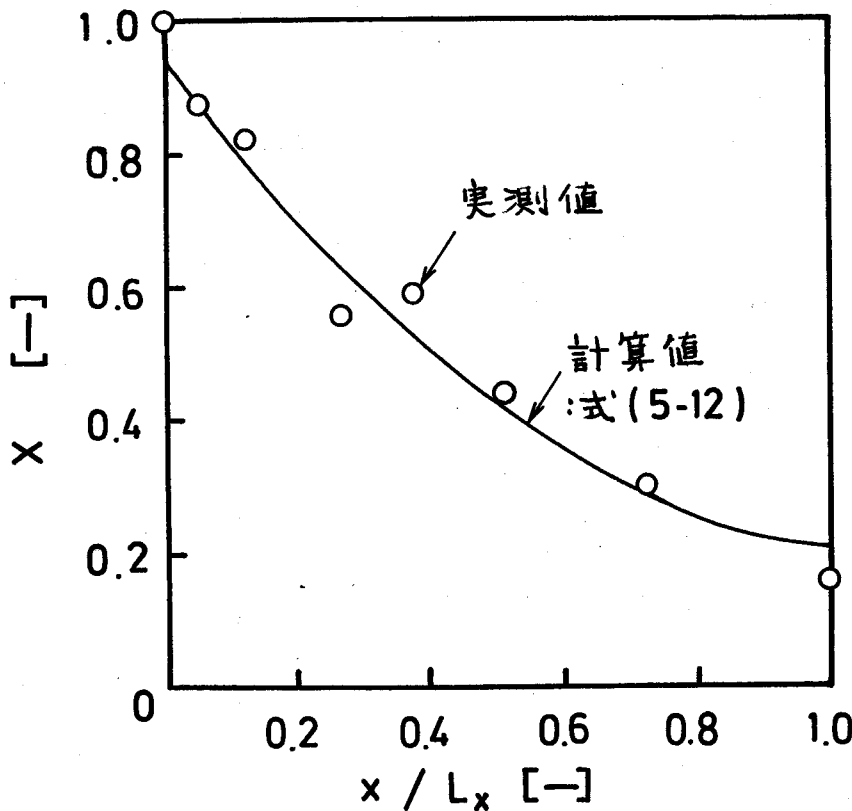


図 5-3 定常相対容量分布

$$\left[\begin{array}{l}
 q_L = 38.8 \text{ cm}^3/\text{cm} \cdot \text{sec}, \quad U_g = 70.7 \text{ cm/sec} \\
 h_f = 15.5 \text{ cm/sec}, \quad \bar{\varphi} = 0.297 \\
 K_L a = 0.118 \text{ 1/sec}, \quad K = 0.915 \\
 p = 0.712, \quad q = 0.288 \\
 \Delta t = 0.0740 \text{ sec} \quad (t_{L,x} = 0.0370 \text{ sec}) \\
 M = 26 \\
 \bar{v} = 18.6 \text{ cm/sec}
 \end{array} \right.$$

図5-3は前節に示した方法で求めた $K_L a$ の値と第3章の方法で求めた液の混合特性値とを用いて、式(5-12)から定常相対容量分布を計算し、式(5-12)によって実測値がどの程度よく説明されるかをみたものである。この結果から、実験精度も考慮すれば、式(5-12)は実測値を十分よく説明している。

多孔板上での気・液の接触状態は流量や棚段の幾何学的条件等によって変化すると考えられる。このため、液の混合特性と総括吸収容量係数とを独立に求める方法はまだ確立されていない様に見える。したがって、現在の所、必ずしも十分満足のいく形で各々独立に求めた混合特性、流動特性、物質移動特性から直接このモデルの妥当性を検討することは無理な状況にあると著者は考えている。そこで、この点に対する1つの考察として、他の研究者のデータについて検討を試みる。

測定した方法が必ずしも明確ではないが、Foss¹⁸⁾らは酸素の水からの放散についての総括吸収容量係数のデータを流動特性の関数で与えている。同時に、これとは独立に液の混合特性として滞留時間分布のデータを示している。そこでこれらのデータが独立に測定されたものとみなし、以下にこれを用いて式(5-12)の妥当性を検討してみる。なお、Fossらの示している濃度分布のデータと同じ操作条件での滞留時間分布は、彼らが示している滞留時間分布のデータから内挿して求めた。

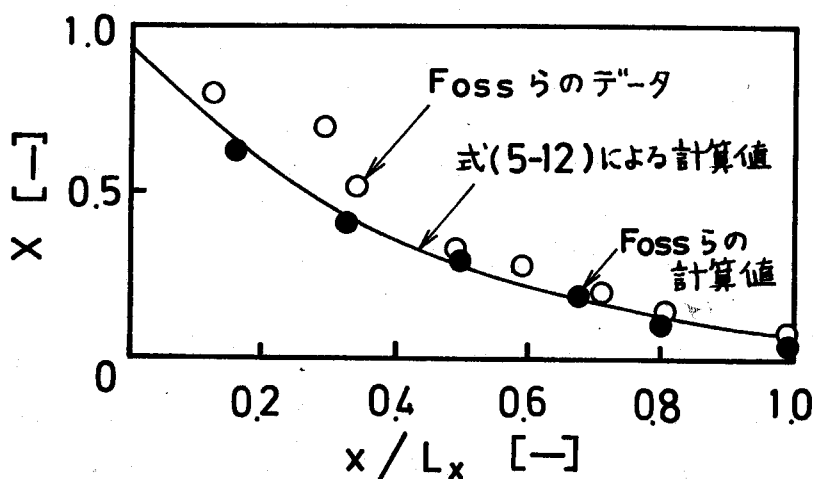


図 5-4 定常相対容量分布 (Foss¹⁸⁾)

$$\left[\begin{array}{l}
 q_L = 56.8 \text{ cm}^3/\text{cm}\cdot\text{sec}, \quad U_g = 1.83 \text{ cm}/\text{sec} \\
 h_f = 10.3 \text{ cm}, \quad \bar{\varphi} = 0.350 \\
 K_L a = 0.216 \text{ 1}/\text{sec}, \quad K = 0.367 \\
 p = 0.710, \quad q = 0.290 \\
 \Delta t = 0.0670 \text{ (} t_{L,x} = 0.0335 \text{ sec)} \\
 \bar{v} = 16.7 \text{ sec}, \quad M = 29
 \end{array} \right]$$

図5-4は式(5-12)に従ってシミュレーションを行い、定常相対容量分布を計算してFossらのデータと比較した結果である。図中の黒丸はFossらが、実測したインパルス応答を用いてシミュレーションを行った結果であるが、これと同程度に式(5-12)は実測値を説明しているとみなせる。

図5-3, 図5-4の結果から、式(5-12)すなわち液の混合を変動速度の大きさとタイムスケールを基礎としたモデルで表現し、これに物質移動過程を導入したモデルで多孔板上の物質移動過程は表わせるとみなせる。

5.3.3 物質移動効率に及ぼす液混合の影響

棚段上の液の混合が物質移動効率に及ぼす影響の研究は、拡散モデルを前提としたMurphreeの効率⁴⁵⁾に関して非常に数多く発表されている。¹⁾これらはいずれも前提としているモデルのため、液混合の因子は拡散係数としてのみ評価され、変動速度やタイムスケールの影響は全く検討していない。

5.3.2の結果から、第3章で示した混合モデルを応用した式(5-12)は多孔板上での液の物質移動過程をよく説明することができた。したがってこの式を用いると、そのパラメータである変動速度の大きさおよびタイムスケールと物質移動効率との関係が検討できる。

実験的に変動速度の大きさやタイムスケールを独立に与えることは現在のところ困難であるため、以下では式(5-12)を用いてシミュレーションを行い、これらの混合特性値と物質移動効率との関係を検討した。ここでは4.2に定義した物質移動効率 η を相対容量を用いて表わす。すなわち、定常状態では次の様にして、 η は式(5-13)の X_{M+1} を用いて表わせる。

$$\eta = \frac{C_{M+1} - C_0}{C^* - C_0} = \frac{V_f \bar{\varphi}(KC_{g,0} - C_0) - V_f \bar{\varphi}(KC_{g,0} - C_{M+1})}{V_f \bar{\varphi}(KC_{g,0} - C_0)} = \frac{Y_0 - Y_{M+1}}{Y_0} = X_0 - X_{M+1} = 1 - X_{M+1} \quad (5-32)$$

これは、入口の液相濃度がガス流方向に一様な場合のMurphreeの液相効率^{1) 45)}に等しい。

図5-5は $1 - \eta$ とタイムスケール $t_{L,x}$ との関係を乱れの数 \bar{v} と見掛けの拡散係数 E をパラメータとして表わした結果の1例である。なお、計算例の数値は炭酸ガスの18℃の水への吸収の場合に相当する。

図5-5の結果から、タイムスケール $t_{L,x}$ 、変動速度の大きさ \bar{v} のいずれが増大しても物質移動効率 η は減少することがわかる。これは、拡散係数 E が式(2-19)で与えられることを考えると、従来の研究で得られている結果、すなわち、拡散係数 E が増大すると共に物質移動効率 η が低下するという事実をより詳しく説明したものと解釈できる。

図5-5中には拡散係数 E が一定の場合を破線で示してある。これから明らかな様に、拡散係数が与えられても物質移動効率 η は一義的には定まらない。変動速度の大きさ \bar{v} とタイムスケール $t_{L,x}$ の相対的な大小関係によって物質移動効率 η は異ってくる。すなわち、拡散係数 E が一定であってもタイムスケール $t_{L,x}$ が大きければ、変動速度の大きさ \bar{v} が小さくても物質移動効率 η は小さく

なる。

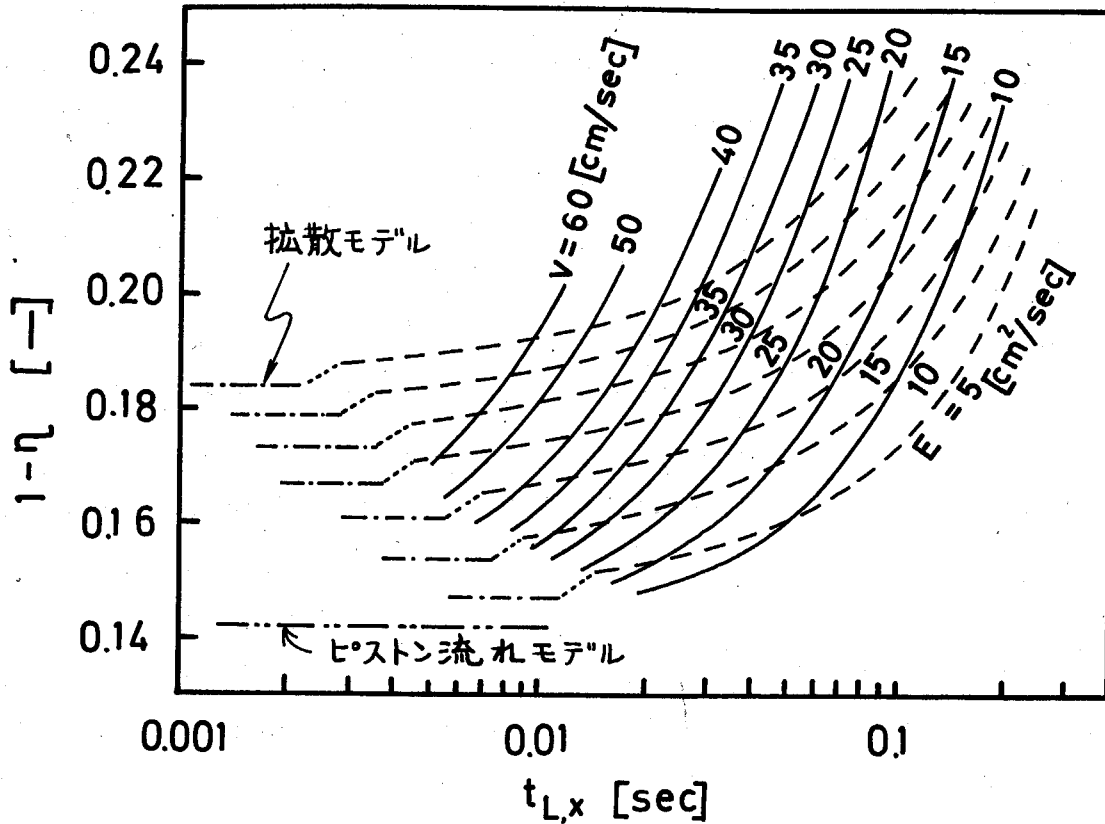


図 5-5 物質移動効率と混合特性値との関係

$$\left[\begin{array}{l} q_L = 35.0 \text{ cm}^3/\text{cm}\cdot\text{sec}, \quad U_g = 100 \text{ cm/sec} \\ h_f = 10.0 \text{ cm}, \quad \bar{\varphi} = 0.5 \\ K_L a = 0.4 \text{ 1/sec}, \quad K = 0.95 \end{array} \right]$$

比較のため、図 5-5 中には拡散モデルおよび拡散係数 E が 0 に対応するピストン流れモデルの場合の値も示した。これらの値はそれぞれ式 (5-33) (5-34) で与えられる。

$$\eta = 1 - \frac{4 \mu \exp(P_{e,x})}{(1+\mu)^2 \exp\{2(1+\mu)P_{e,x}\} - (1-\mu)^2 \exp\{2(1-\mu)P_{e,x}\}}$$

$$\mu = \sqrt{1 + P_{e,x} \frac{K_L a L_x / \bar{\varphi} \bar{u}_L}{1 + \beta}} \quad (5-33)$$

$$\eta = 1 - \exp\left\{-\frac{K_L a L_x / \bar{\varphi} \bar{u}_L}{1 + K_L a h_f K / U_g}\right\} \quad (5-34)$$

この比較から、タイムスケール $t_{L,x}$ が 0 に漸近するにつれて混合モデルの値は拡散モデルの値に

に近づくことがわかる。これは式(3-17)において1ステップの時間間隔 Δt を 0 に近づければ、この式が拡散モデルの式になる¹⁷⁾ 事実からも明らかな結果である。

しかし、図5-5の結果から、もし乱流拡散現象としての多孔板上での液の混合を拡散モデルで表わすとすれば、タイムスケールは十分小さくなければならないことがわかる。たとえば、図5-5の例ではタイムスケールが 10^{-3} sec 以下でなければ拡散モデルは妥当とはいえない。実際に多孔板上での液の混合現象のタイムスケールは $10^{-2} \sim 10^{-1}$ sec 程度で、 10^{-3} sec よりオーダーが1桁以上大きい。すなわち、多孔板上での液の混合は拡散モデルでは必ずしも十分な精度で表わし得ないことを意味する。

さらに興味ある点は、変動速度がいくら大きくてもタイムスケールさえ十分小さければ物質移動効率がよくなることである。 ω を大きくすれば、液相内の混合が促進されて液側物質移動抵抗が減少し、物質移動速度が増大するという効果が期待される。このため、タイムスケールが小さく、変動速度が大きければマクロな混合の物質移動効率への影響が減少すると同時に、物質移動効率がよくなると考えられる。これは、何らかの方法でタイムスケールを十分小さく、かつ、 ω を十分大きくできれば単一段当りの物質移動効率のよい接触装置が得られる可能性のあることを示している。

タイムスケールを小さくする1つの方法に、液流方向に直角にバッフルを挿入することが考えられる。V型のバッフルを挿入すると、バッフルのない場合に比べて物質移動効率が高くなるという Ashley ら⁵⁾ の実験結果は、本論文で得られたタイムスケールを小さくすることによる効果が現われているとみることができる。

以上の結果から、マクロな液の混合が物質移動効率に及ぼす影響はタイムスケールによってより強く規制されているといえる。

5. 4 2 段式多孔板上での物質移動の扱い

上段への液の流入が一樣ならば、液の混合過程は式(4-16)に示した混合モデルで表わせることを第4章で示した。本節では、2段式多孔板での物質移動も5.3と同様に式(4-16)に物質移動過程を適用して表現し得るかについて考察した。さらにこれを用いて、4.3.3.2で提案した2段式多孔板での混合特性値の混合度と物質移動効率との関係を考察した。

5. 4. 1 物質移動過程の表現

5.3と同様にガスの物理吸収を考える。以下では5.3と同様の前提の下に解析を行う。

供給液の条件を与えるため、5.3と同様に、下段のセル1の前にこれと等しい大きさのセル0を考える。各セル内の容量、すなわち、各セル内の液にさらに吸収し得る溶質量の、下段の入口の仮想セル0のそれに対する相対値の分布を上段、下段についてそれぞれ式(5-35)(5-36)の様に表わす。

$$X_n = (X_0^n, X_1^n, \dots, X_M^n) \quad (5-35)$$

$$Y_n = (Y_1^n, Y_2^n, \dots, Y_L^n, Y_{L+1}^n) \quad (5-36)$$

ただし、 X_0^n は下段の仮想セル 0 の容量を表わし、これは供給液の条件を与える。また、 Y_{L+1} は第 4 章で示した上段出口の仮想セル $L+1$ の相対容量を表わす。これは流出液の状態を与える。

下段から上段への液の流入を考慮して、5.3 で示したのと同様の手順を辿れば、 Δt 毎の容量分布の変化を表わす関係式は次の様に求まる。

$$Y_{n+1} = P_U^* Y_n + D^* \tilde{X}_n \quad (5-37)$$

$$X_{n+1} = P_D^* X_n \quad (5-38)$$

$$P_D^* = \begin{pmatrix} \tau_{D,1} & 0 & 0 & 0 \\ \tau_{D,1}(p_{D,1} - q_{D,1}) & \tau_{D,1}(q_{D,1} + \tau_{D,1}) & \tau_{D,2} q_{D,2} & 0 \\ 0 & \tau_{D,1} p_{D,1} & \tau_{D,2} \tau_{D,2} & \tau_{D,3} q_{D,3} & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & 0 & \tau_{D,M-2} p_{D,M-2} & \tau_{D,M-1} \tau_{D,M-1} & \tau_{D,M} q_{D,M} \\ & & 0 & \tau_{D,M-1} p_{D,M-1} & \tau_{D,M} \tau_{D,M} \end{pmatrix} \quad (5-39)$$

$$P_U^* = \begin{pmatrix} \tau_{U,1}(q_{U,1} + \tau_{U,1}) & \tau_{U,2} q_{U,2} & 0 & 0 \\ \tau_{U,1} p_{U,1} & \tau_{U,2} \tau_{U,2} & \tau_{U,3} q_{U,3} & 0 \\ 0 & \tau_{U,2} p_{U,2} & \tau_{U,3} \tau_{U,3} & \tau_{U,4} q_{U,4} & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & \tau_{U,L-2} p_{U,L-2} & \tau_{U,L-1} \tau_{U,L-1} & \tau_{U,L} q_{U,L} & 0 \\ 0 & 0 & \tau_{U,L-1} p_{U,L-1} & \tau_{U,L} \tau_{U,L} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \tau(1 - q_{U,L} - \tau_{U,L}) & 0 \end{pmatrix} \quad (5-40)$$

$$r_{\bullet,i} = \exp(-\alpha_{\bullet,i} \Delta t) \quad (5-41)$$

$$\alpha_{\bullet,i} = \frac{(K_L a)_{\bullet,i}}{\bar{\varphi}(1 + \beta_{\bullet,i})} \quad (5-42)$$

$$\beta_{\bullet,i} = \frac{(K_L a)_{\bullet,i} h_f K}{U_g} \quad (5-43)$$

ここに D^* は式(4-14)の D の各要素 $d_{i,j}$ を $\{\exp(-\alpha_{D,i} \Delta t/2) + \exp(-\alpha_{U,i} \Delta t/2)\}$ 倍したものを要素とした行列である。これは、 Δt の間にセル i からセル j へ移動する流体は両方のセルに $\Delta t/2$ ずつ滞留するという仮定に基いている。また、下段のセル 0 の条件はセル 1 と同一と仮定した。 \tilde{X}_n は X_n の 1 番目の要素 X_n^1 を除いた m 次のベクトルである。添字は各セルの位置での流動条件に対応した普通の多孔板での値をとることを意味する。 \bullet は U または L を意味する。

式(5-37)(5-38)が成立するためには、 $\beta_{\bullet,i} \ll 1$ の条件が成立する必要がある。4.3で示した方法で決定される時間間隔 Δt の値は 0.1 ~ 0.3 sec 程度であるから、物理吸収の場合、この条件は十分満足されているとみなせる。

定常状態における各セルの定常相対容量 X_∞, Y_∞ は $n \rightarrow \infty$ として式(5-37)(5-38)から求まる。なお、 Y_∞ は式(5-37)から次式で与えられる。

$$Y_\infty = (E - P_U^*)^{-1} D \tilde{X}_\infty \quad (5-44)$$

ただし、 E は単位行列を、 -1 は逆行列を表わす。

物質移動効率は各セルの大きさを考慮すると、上段の出口でのセル内の定常残存容量 Y_{L+1} を用いた次式で評価できる。

$$\eta = 1 - \frac{Y_{L+1} / h_{f,U} \bar{\varphi}_U \Delta x_L}{X_0 / h_{f,D} \bar{\varphi}_D \Delta x_0} \quad (5-45)$$

5. 4. 2 実 験

式(5-37)(5-38)の妥当性を示すため、炭酸ガスの水に対する吸収実験を行った。

5. 4. 2. 1 実験装置および方法

使用した多孔板の諸元は表4-1に示したのと同じである。

実験系は水-空気系とし、溶質は炭酸ガスである。

炭酸ガスの多孔板への導入方法および濃度の定量方法は5.3の方法と同様である。

5. 4. 2. 2 実験結果および考察

図5-6は式(5-37)(5-38)を用いて求めた定常相対容量分布と実測値の比較の1例である。式(5-41)~(5-43)の各パラメータの値は、気体速度、液速度および泡沫層の高さが実験系と同一な普通の多孔板のデータから内挿および外挿して求めた。これらの値は表5-2に示した。

図5-6の結果から、式(5-37)(5-38)によって2段式多孔板の物質移動も表現し得ると結論できる。すなわち、2段式多孔板の物質移動効率は式(5-37)(5-38)の数式モデルで推定できる。この時の混合パラメータと物質移動パラメータは液速度、気体速度、泡沫層高さが等しい普通の多孔板でのデータを使用することができる。

また、これ迄の解析では、上の多孔板を気・液が2相流の状態で通過する時の界面更新の効果を

表 5-2 図 5-6 の計算データ

$$P_D = \begin{bmatrix} .400 & .277 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .461 & .224 & .257 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .360 & .256 & .232 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .349 & .305 & .259 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .325 & .316 & .252 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .287 & .308 & .226 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .301 & .372 & .202 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .264 & .402 & .295 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .258 & .539 \end{bmatrix}$$

$$P_U = \begin{bmatrix} .888 & .043 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .112 & .772 & .057 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .185 & .732 & .134 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .211 & .595 & .221 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .271 & .403 & .153 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .376 & .458 & .158 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .389 & .392 & .241 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .450 & .219 & .275 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .540 & .125 & .305 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .600 & .025 & .262 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .670 & .262 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .576 & 1.0 \end{bmatrix}$$

$$D = \begin{bmatrix} .067 & .069 & .003 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .085 & .055 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .018 & .092 & .029 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .080 & .058 & .0 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .024 & .117 & .0 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .082 & .056 & .0 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .052 & .085 & .0 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .091 & .047 \\ .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .0 & .141 \end{bmatrix}$$

$K_L a$ の値 [1/sec]

(下段)

セル :	1	2	3	4	5	6	7	8	9
$K_L a$:	.151	.143	.138	.129	.120	.110	.101	.091	.088

(上段)

セル :	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
$K_L a$:	.083	.092	.101	.110	.117	.121	.130	.137	.142	.149	.164

無視してきたが、図5-6の結果は、これをそれ程重要視しなくてもよいことを示している。

図5-6の定常相対容量分布をみると、下段の方が上段に比べて著しく相対容量が変化し、したがって濃度変化が速いことがわかる。これは、2段式多孔板では液が上段へ流出するため、下流へゆくにつれて液流速が減少し、その結果、滞留時間が長くなり、それだけ長い間物質移動が進行するからに他ならない。

一方、上段では相対容量は非常に緩やかな変化を示しているが、これは下段の場合とは逆に、下流へゆくにつれて次第に液流速が大きくなっているためである。

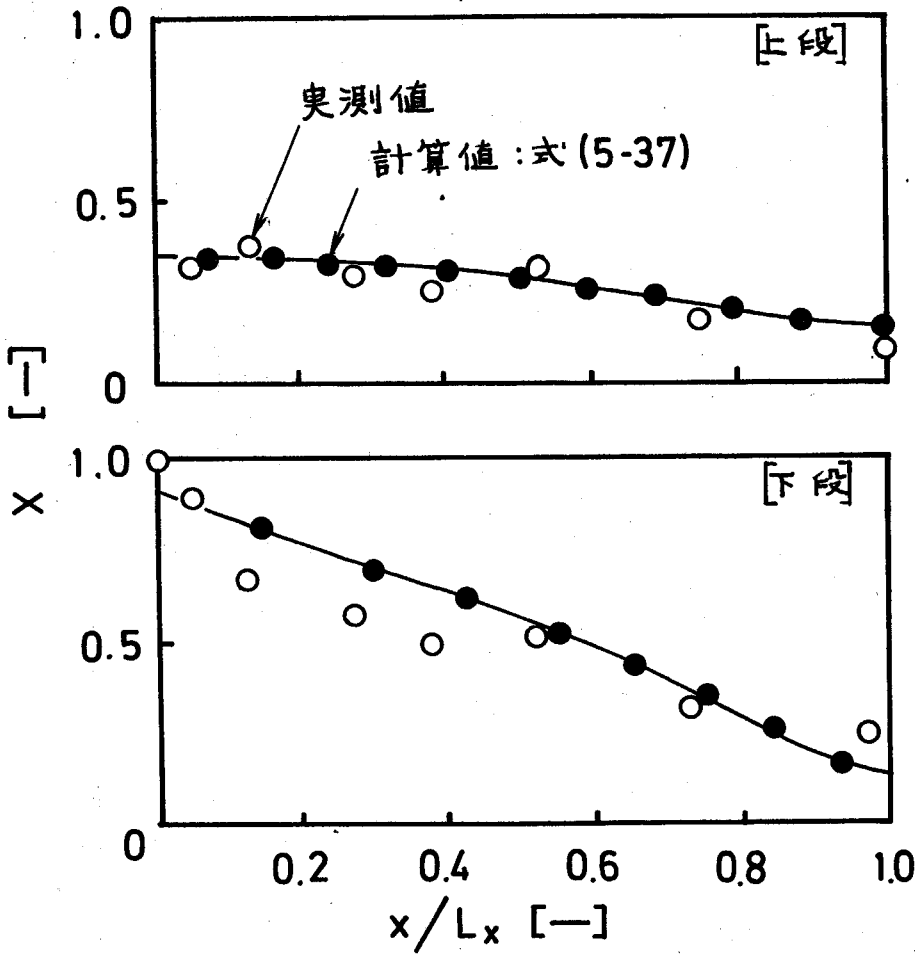


図 5-6 定常相対容量分布

$$\left[\begin{array}{l}
 d_s = 5.0 \text{ cm} \\
 q_L = 19.9 \text{ cm}^3 / \text{cm} \cdot \text{sec} , U_g = 134 \text{ cm/sec} \\
 \bar{\phi}_D = 0.20 , \bar{\phi}_U = 0.25 \\
 M = 11 , L = 9 \\
 \Delta t = 0.272 \text{ sec}
 \end{array} \right]$$

5. 4. 3 物質移動効率に及ぼす液混合の影響

すでに 4. 3. 3. 2 で示した様に、液の混合特性を混合度で表わすと、流動状態が変化しない限り上の多孔板を泡沫層高さの半分程の所に設置した時に混合度は最小になる。

従来からの混合と物質移動効率との関係についての諸家の研究結果を参考にすると、上記の事実から上の多孔板を泡沫層高さの半分程度になる様に設置すれば物質移動効率が高くなることが期待される。この点を検討するため、5. 4. 2 で得られた結果から、式(5-37)(5-38)を用いて物質移動効率 η と段間隔 d_s の関係を数値解析した。その結果の 1 例が図 5-7 である。この結果から物質移動効率 η は段間隔 d_s が泡沫層の高さの $1/2$ 近傍の時に他と比べて高くなることがわかる。また、段間隔が泡沫層の高さに近づくと急激に物質移動効率が低下するが、この様な条件下での実験操作はほとんど行なわれないため、これが問題になることはない。

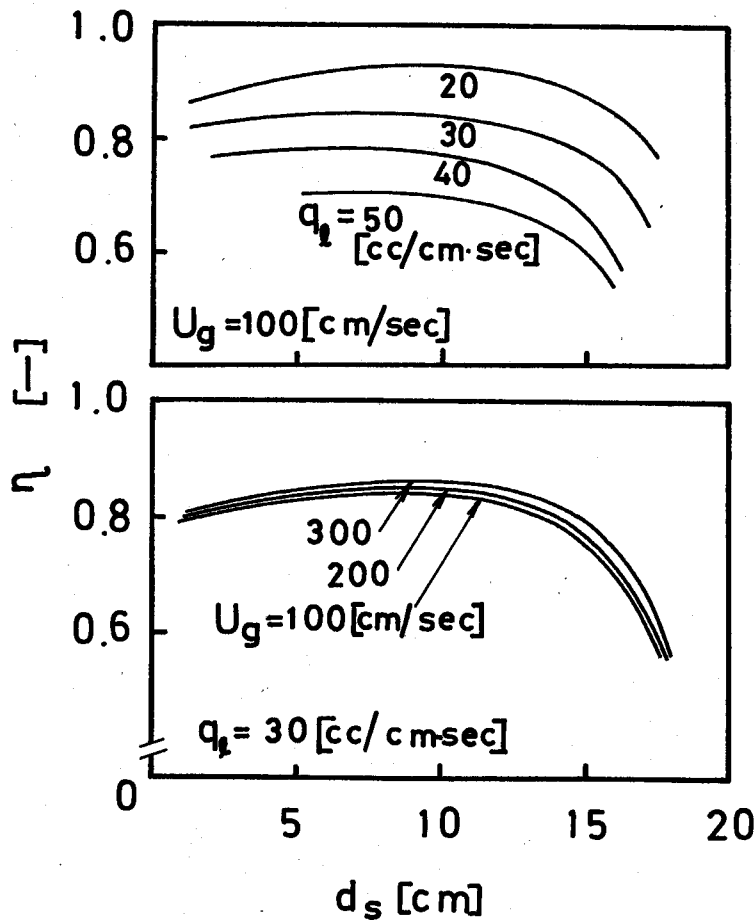


図 5-7 物質移動効率

$$\left[\begin{array}{l} h_{f,D} + h_{f,U} = 20 \text{ cm} \\ \bar{\varphi}_D = \bar{\varphi}_U = 0.3 \\ K_L a = 0.08 \text{ 1/sec} \\ K = 1.0 \end{array} \right]$$

5. 5 本章の結論

第2章で示した、多孔板上での液の混合は乱流拡散現象として扱えられるという事実に基いて、離散的に液の混合過程を表現する混合モデルを第3章と第4章で示した。本章ではこの混合モデルに物質移動過程を考慮して、乱流拡散現象としての混合特性値と単一段当りの物質移動効率との関係をガスの物理吸収の場合を例にとって検討し、以下の結論を得た。

- 1) 乱流拡散現象に基く離散的な液混合モデルは多孔板上での総括吸収容量係数の値がとくに大きくない場合の物理吸収過程を表わすのに応用できる。
- 2) 第3章で示した混合モデルを用いると、普通の多孔板での物質移動効率と変動速度の大きさおよび、タイムスケールとの関係を検討できる。
- 3) 拡散係数が増大すると共に物質移動効率が低下するという他の研究者が得ている結果は、変動速度の大きさあるいはタイムスケールの増大に原因していると理解される。すなわち、拡散係数が同一の場合、変動速度の大きさとタイムスケールのいずれが大きくなっても物質移動効率は拡散モデルで得られる結果より低下する。
- 4) 2段式多孔板の物質移動効率は、普通の多孔板の変動速度とタイムスケールの大きさから推定できる。
- 5) 2段式多孔板の物質移動効率は操作条件が与えられた場合、段間隔が全泡沫層高さの約 $1/2$ の時に最も高くなる。

第 6 章

混合特性値と操作条件との関係

混合特性値と操作変数との相関方法を
実験的に考察する。

6. 1 序

液の混合モデルおよびこれを物質移動過程に適用したモデルを用いるためには、モデルパラメータの基礎となっている混合特性値と操作変数との関係の知識が必要とされる。

混合特性値と操作変数および幾何学的因子との関係をあらゆる気・液の組み合わせですべての操作条件にわたって実験的に検討するのは困難である。第3章で提示した混合モデルを別の気・液系に应用する場合、そのデータを整理するための指針を与えることを目的として、本章では、混合特性値の変動速度の大きさおよびタイムスケールと液流速、気体流速等の操作変数との相関方法を考察する。

なお、本章では液流方向の混合特性値が主として物質移動過程に関係するという第3章に示した観点に立って、液流方向の混合特性値のみを考察する。

6. 2 変動速度

6. 2. 1 変動速度と操作条件との関係

第2章で述べた拡散係数に対する考察から、液の混合特性は他の研究者の結果⁷⁾と同様に液の平均流速に依存することを認めている。多孔板の液の平均流速は10 cm/sec程度で小さいため、この実験事実は乱れが平均流速によって引き起される通常の乱流拡散現象としては説明し難い。したがって、液の流速に対する拡散係数の依存性には別の原因が作用していると考えなければならない。

Taylor^{56, 57)}, Aris⁴⁾は円管内の流れについて、流速分布がある時、これが見掛け上拡散係数を大きくするという結果を得ている。第2章の実験結果から見ると、Taylorが得たのと同様な速度分布の影響が多孔板上の液の混合にも現われている可能性がある。

ここでは、変動速度 \bar{v} と液流速 \bar{u}_L との関係を明らかにするため、液の泡沫層高さ方向の速度分布を実測して検討を加えた。なお、液の速度分布を算出するためには液の体積分率分布が必要になるため、これも同時に測定した。

6. 2. 2 実 験

6. 2. 2. 1 実験装置および方法

実験に用いた多孔板の諸元は表6-1に示した。

実験系は水-空気系である。液流量は単位棚段幅当り15 ~ 60 cm³/cm.sec 空気流量は空塔速度で60 ~ 300 cm/secとした。これらの条件はほぼ正常な操作範囲全域にわたっている。

なお、混合特性値の変動速度 \bar{v} 、タイムスケール $t_{L,x}$ は3.3.2の方法に従ってインパルス応答法より求めた。

表 6 - 1 実験に用いた多孔板の大きさ

幅	[mm]	50	300
長さ	[mm]	390	390
堰高さ	[mm]		
入口		20	20
出口		10, 30, 50, 70, 88	10, 15, 20, 25, 30
孔径	[mm]	4	4
孔間隔	[mm]	10, 15, 30	15
開孔比	[%]	27.1, 12.9, 3.06	12.9
板厚	[mm]	4	4
孔配列		正三角形	正三角形

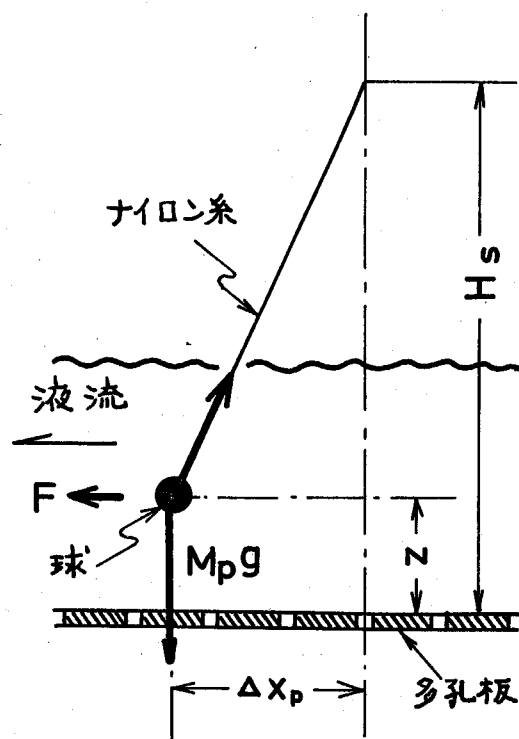


図 6 - 1 速度分布の測定方法

図 6-1 に示す様に直径 1.1 mm 質量 6.08 g の黄銅球を 0.075 mm のナイロン糸で泡沫層中に吊した。この黄銅球には、気・液の界面から受ける力、浮力、気・液の圧力等の力が作用し、非常に複雑である。しかし、球の比重が周囲の混相流体に比べて十分大きく、かつ、気・液の変動速度の周波数が大きければ、液の平均流速から受ける力に比べて変動速度から受ける力を無視し得る。泡沫層中の球は液の平均流速が作用する力によって下流方向へ変位する。この変位は泡沫層のランダムな運動に従って平均値の廻りにランダムに運動する。この変位の平均距離 Δx_p を球の棚段面からの距離 z を変化させて測定すれば、球に作用する力の平均値 F は式 (6-1) から求められる。

$$g_c F = \frac{C_D}{2} A_p \varphi(z) \rho_l u_l^2(z) = M_p g \frac{\Delta x_p}{H_s - z} \quad (6-1)$$

ただし、 C_D は球の抵抗係数、 $\varphi(z)$ 、 $u_l(z)$ はそれぞれ位置 z における液の平均体積分率と平均流速、 ρ_l は液の密度、 H_s は糸の支点から棚段面迄の距離、 $M_p g$ は泡沫層中の球の重量、 A_p は球の投影面積、 g は重力加速度である。泡沫層中での球は水による浮力を受けるため、厳密には、 M_p は球の質量と異なるが、最終的に得られる速度 $u_l(z)$ の値に対する誤差が 3.5% 以内で小さいため、ここでは M_p に球の質量を用いた。

式 (6-1) から、速度分布 $u_l(z)$ を求めるためには体積分率分布 $\varphi(z)$ を知らなければならない。液の体積分率分布は直径 0.2 mm のエナメル線と多孔板とを対極とした探針法³¹⁾を用いて求めた。印加電圧は 1 volt 周波数は 1~2 kHz とした。

一般に探針法では、探針の太さや形状の影響があるため、これを補正しなければならない。この補正は次の様に行った。平均滞留時間と液流量から平均の液のホールドアップが求まる。これが探針法で求めた体積分率分布から計算される液ホールドアップに等しくなる様に補正した。この際、泡沫層高さ h_f の値が必要となるが、この値は透過光量の測定および目測を並用して求めた。

混相中での球の抵抗係数 C_D については既往の研究が殆んどなく、不明の点が多い。本研究では簡単のため、 $\varphi(z)$ が変化しても気・液の流量が一定ならば C_D は一定と考えて、式 (6-1) から相対的な速度分布を求めた。さらに、後に示す式 (6-4) から求めた平均流速が式 (6-5) から決まる平均流速 \bar{u}_l に一致する様に補正して流速分布 $u_l(z)$ を決定した。

6.2.2.2 実験結果および考察

図 6-2 は黄銅球の変位と探針法による液の体積分率分布とから求めた平均流速分布の 1 例である。この結果から泡沫層高さ方向に明らかに非一様な流速分布の存在が認められる。

液の平均流速分布の形は、実験した範囲ではいつれの場合も同様で、泡沫層の上層に行くにつれて大きくなっている。図 6-2 には実測した液の体積分率分布も示してあるが、これからわかる様に、泡沫層上層程液の体積分率分布は小さいため、流速分布が平均流速 \bar{u}_l に及ぼす影響はそれ程大きくない。このことは、図 6-2 中に示した液の体積流束 $u_v(z) = \varphi(z) u_l(z)$ の分布が $u_l(z)$ の分布に比べて平坦であることから理解される。

しかし、液の流速分布があると、Taylor^{56, 57)} が示したのと同様に、見掛け上混合速度が大きく

観測される。この点を明らかにするため、トレーサの混合現象から見た乱れの色は実際の液の変動速度と必ずしも同等とは断定できないが、ここでは等しいと仮定して考察する。

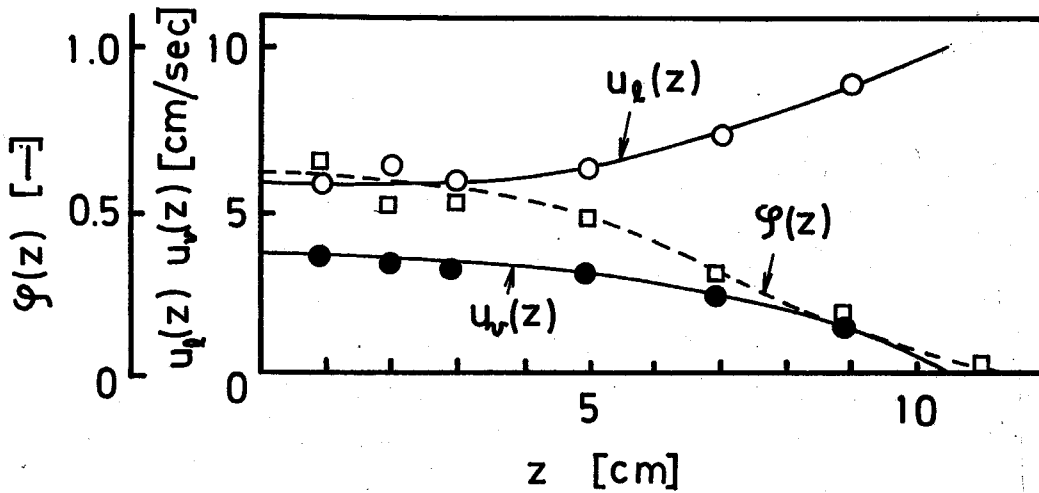


図 6-2 速度分布，液の体積分率分布の例

$$\left[\begin{array}{l} Z_w = 50 \text{ mm}, L_y = 50 \text{ mm} \\ q_L = 28.7 \text{ cm}^3/\text{cm}\cdot\text{sec}, U_g = 85.1 \text{ cm/sec} \end{array} \right]$$

インパルス応答から求めた変動速度の大きさ \tilde{v} を，液の速度分布のために生ずる見掛けの変動速度 \tilde{v}_l と液の速度分布の影響を受けない液の変動速度 $\tilde{v}_{l,g}$ とに分けて式(6-2)の様に表わす。

$$\tilde{v} = \tilde{v}_l + \tilde{v}_{l,g} \tag{6-2}$$

液の平均速度分布のために生ずる見掛けの変動速度を除いた頃 $\tilde{v}_{l,g}$ は主として気体による混合作用の結果と考えられる。

液の速度分布に関する \tilde{v}_l はその定義から次式に従って求められる。

$$\tilde{v}^2 = \frac{1}{h_f \bar{\varphi}} \int_0^{h_f} \{ u_l(z) - \bar{u}_l \}^2 \varphi(z) dz \tag{6-3}$$

$$\bar{u}_l = \frac{1}{h_f \bar{\varphi}} \int_0^{h_f} u_l(z) \varphi(z) dz \tag{6-4}$$

$$\bar{\varphi} = \frac{q_L \bar{t}}{L_x h_f} \tag{6-5}$$

ただし， $\bar{\varphi}$ は液の平均体積分率で液の流量 q_L ，平均滞留時間 \bar{t} ，泡沫層の高さ h_f ，および棚段の長さ L_x から求まる。

気流方向の液の混合速度は宮内ら⁴³⁾ が示している様に，液流方向の値と比べて著しく大きいと

みなせる。このため、トレーサは入口堰の内側に気流方向に対して一様な線源として注入されているとみなせるから、トレーサのインパルス応答から求めた乱れ速度 \tilde{v}_l には式(6-2)の形で $\tilde{v}_{l,g}$ が測定されているとみなせる。

この様に考えると、液の速度に直接関係する部分はそのほとんどが \tilde{v}_l の項に集中されていると考えられるから、 $\tilde{v}_{l,g}$ は主として気体の速度に関係している項とみなせる。

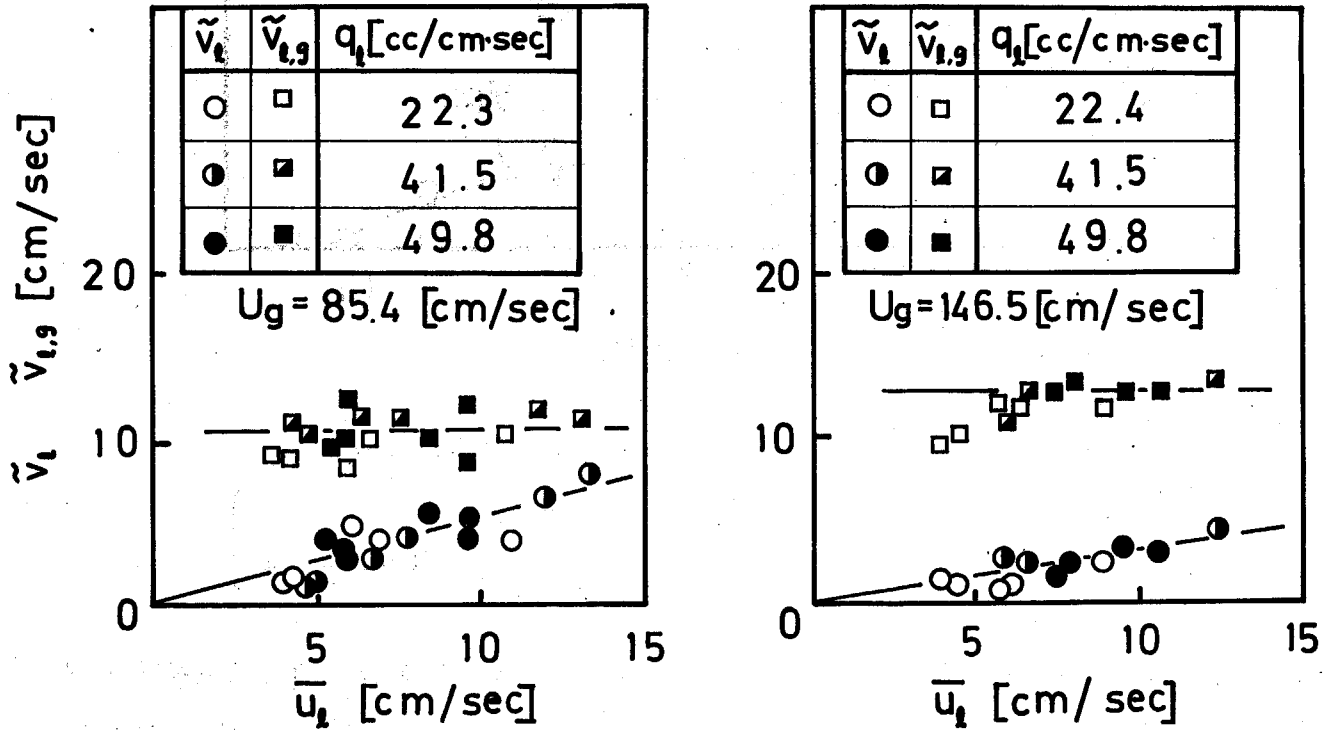


図 6-3 $\tilde{v}_l, \tilde{v}_{l,g}$ の例

$$\{L_y = 50 \text{ mm}\}$$

図6-3は式(6-3)~(6-5)を用いて求めた見掛けの変動速度の大きさ \tilde{v}_l と、これを用いて式(6-2)から求めた $\tilde{v}_{l,g}$ とを液の平均流速 \bar{u}_l との関係で示した1例である。この結果から、見掛けの変動速度 \tilde{v}_l の液の平均流速 \bar{u}_l への依存性は本実験系にみる限りほぼ比例関係にあるとみてよい。ただし、このことは液の流速分布が平均流速に対して相似であることを必ずしも意味しない。事実、実測した多数の速度分布を検討してみると、泡沫層の高さ、液のホールドアップ、気-液の流量等の複雑な関数になり、単純ではない。

さらに、見掛けの変動速度の大きさ \tilde{v}_l は図6-3にみられる様に、気体の流速が増大すると共に液流速に対する依存性が減少している。これは、気体速度の増大と共に泡沫層の高さ方向への液の運動量の伝達速度が大きくなり、液の速度分布が一様になって行くためと解釈できる。

速度分布による液の見掛けの変動速度 \tilde{v}_l の平均流速 \bar{u}_l に対する依存性を式(6-6)で表わす。この時、液の速度分布が一様分布から偏っている程度を表わす比例係数 a は本実験系の場合、

図 6-4 に示す様にほぼ気体の空塔速度 U_g に逆比例するとみなせる。

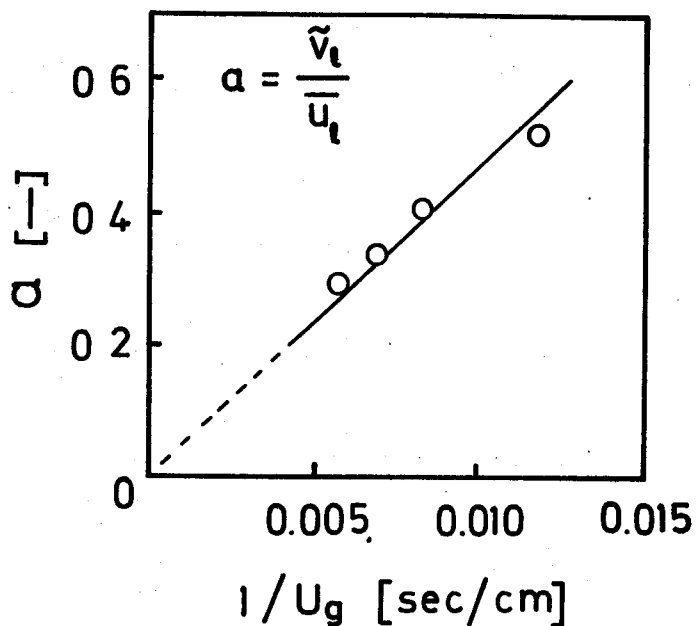


図 6-4 \tilde{v}_l の気体速度への依存性

$$\tilde{v}_l = a \bar{u}_l \propto \frac{\bar{u}_l}{U_g} \quad (6-6)$$

一方、図 6-3 の結果から、液の流速分布の影響を除去した乱れ速度 $\tilde{v}_{l,g}$ は液の流速に対してほとんど無関係になることがわかる。

式 (6-2) から求めた変動速度 $\tilde{v}_{l,g}$ は、多孔板の幾何学的条件を別にすれば、気体速度に直接関係すると考えられる。この考えの下に $\tilde{v}_{l,g}$ と U_g の関係の 1 例を示したのが図 6-5 である。この結果から、実測した範囲では、 $\tilde{v}_{l,g}$ は U_g とほぼ直線関係にあることがわかる。

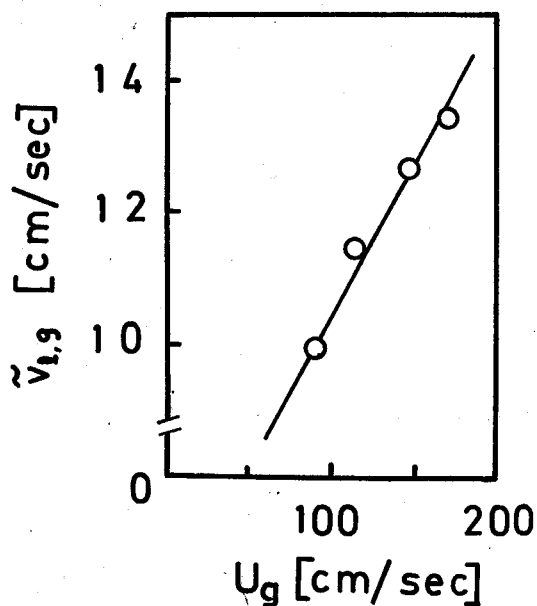


図 6-5

\tilde{v}_g と気体速度との関係

図6-6はインパルス応答から求めた全体の変動速度 \tilde{v} と出口堰の高さを表6-1の範囲で変えることによって変化させた液の平均流速 \bar{u}_L との関係の1例であるが、 \tilde{v} と \bar{u}_L との関係は出口堰の高さによってもほとんど変化しないことがわかる。さらに、多孔板の操作条件を同一にした場合、棚段の幅を変化させても実験結果に大きな相違は認められない。同様のことが、 $\tilde{v}_{L,g}$ 、 \tilde{v}_L の各々に対しても言える。

以上の結果から、第3章～第5章で示したモデルを適用するために必要な混合特性値の1つである液の変動速度の大きさ \tilde{v} の気・液の流量への依存性は次のように検討すればよいと結論される。

与えられた気・液系について

- 1) 泡沫層の高さ方向の速度分布から決まる見掛けの変動速度の大きさ \tilde{v}_L の平均流速 \bar{u}_L への依存性
- 2) その依存性と気体速度 U_g との関係
- 3) 液の速度分布の影響を除いた変動速度 $\tilde{v}_{L,g}$ の気体速度 U_g への依存性

を順次検討すればよい。

本実験系の場合、液の変動速度 \tilde{v} は次式で操作変数 \bar{u}_L 、 U_g と相関され、各定数 k_1 、 k_2 、 k_3 の値は表6-2に示す値をとる。

表 6-2 式(6-7)の係数の値

条 件		k_1 [cm/sec]	k_2 [-]	k_3 [cm/sec]
孔間隔 [mm] (開孔比 [%])	堰高さ幅 [mm]			
10 (27.1)	300	81.0	0.05	5.70
15 (12.9)	50	4.80	0.05	5.70
	300	81.0	0.05	5.70
30 (3.06)	300	25.0	0.05	5.70

$$\tilde{v} = k_1 \frac{\bar{u}_L}{U_g} + k_2 U_g + k_3 \quad (6-7)$$

6. 3 タイムスケール

他の混合特性値であるタイムスケールは流体要素の運動に直接関係すると考えられる。この立場からタイムスケールと操作変数との関係に検討を加えた。

これらの関係は、多孔板の孔間隔すなわち、開孔比を変化させてもそれ程大きく変化しない。

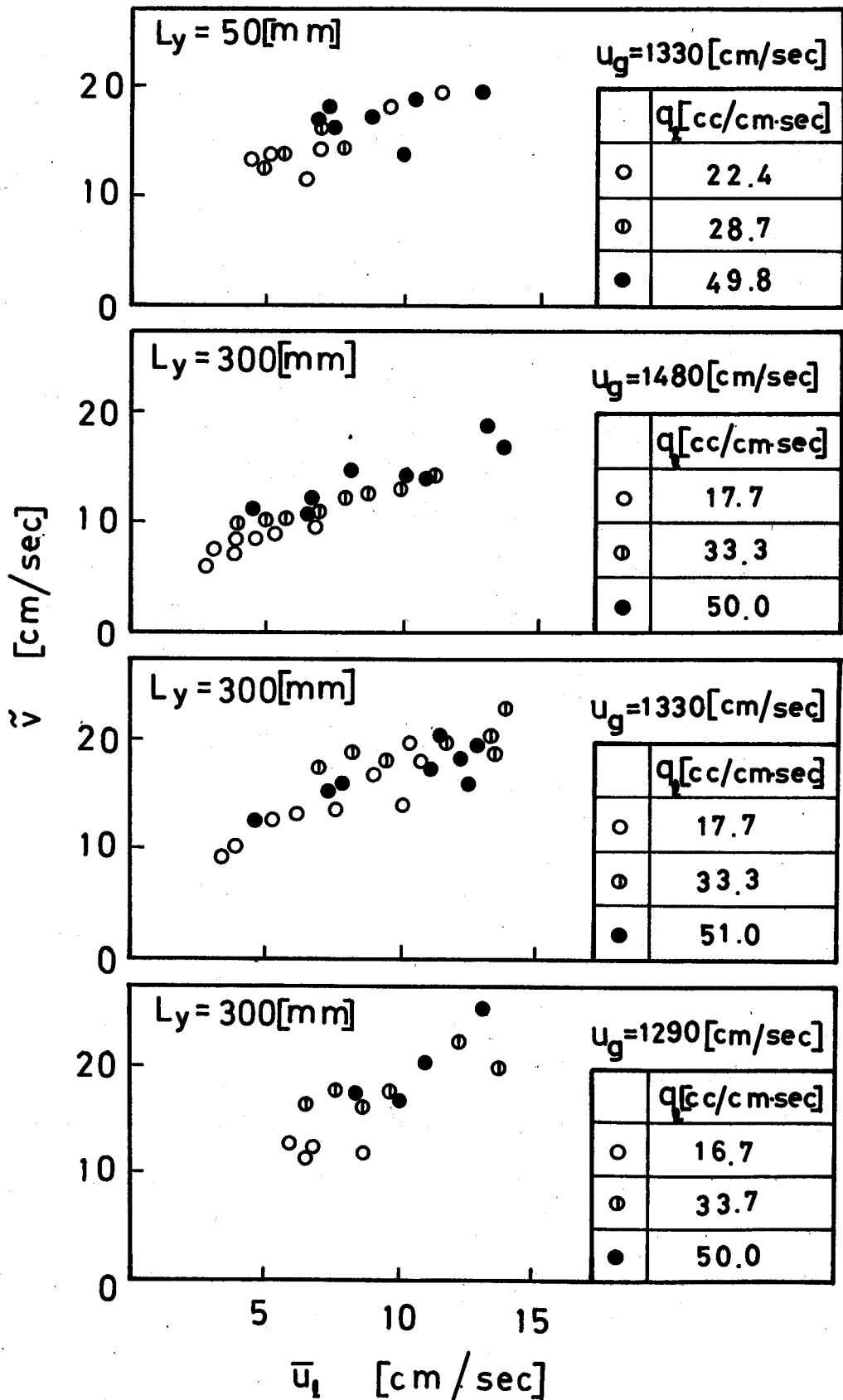


図 6-6 \bar{v} と平均流速との関係

6. 3. 1 タイムスケールと操作条件との関係

第3章～第5章のモデルでは、少なくとも各セル内では一様な液の平均流速分布を仮定している。しかるに6.2で示した様に実際には泡沫層高さ方向に速度分布があるため、3.3.2の方法で求めたタイムスケールにはこの影響が含まれていることになる。すでに述べた様に、液の速度分布の形は非常に複雑であるため、この影響が実測されたタイムスケールにどのような形で反映しているかを具体的に検討することは困難である。

そこで、タイムスケールと操作変数との相関々係を検討するため、便宜的ではあるが、実測されたタイムスケールが平均速度に分布がない一様な場で測定されたものとみなして解析を行い、これから得られる結果を利用する。したがって、この方法で求められた相関式の係数に速度分布の影響が一括して集約されていることになる。

タイムスケールは流体要素のランダムな運動を規定する量であるから、これと操作変数との関係は流体要素そのものの運動に基礎を置かないと明確にはできない。

流体要素は乱流拡散現象を解析する際に便利な仮想的な概念であって、その実体は物理的には必ずしも明確ではない。しかし、第2章で示した様に流体要素の概念を用いて解析した結果、式(2-17)の指数関数を変動速度のLagrangeの相関関数にとることによって、多孔板上での液の混合が説明できた。この事実を認めると、少なくともタイムスケール $t_{L,x}$ 程度の時間間隔については粒子とみなした流体要素を考慮してよいと言えよう。

流体要素に作用する単位質量当りの力を $f(t)$ 、抵抗係数を b と表わすと、いわゆるLangevinの式⁶⁾が導かれる。 $f(t)$ は着目している流体要素が周囲の流体要素から受けるランダムな力である。いま $f(t)$ の相関時間 t_f は変動速度のタイムスケール $t_{L,x}$ に比べて十分小さく、かつ、これに比例すると仮定する。

$$t_f \propto t_{L,x} \quad (6-8)$$

$f(t)$ の相関時間 t_f が $t_{L,x}$ に比べて十分小さなランダムな力であれば、この場合の変動速度についてのLagrangeの相関関数は指数関数で表わされ、式(2-17)と一致する。この時のタイムスケールは $1/b$ に等しくなる。この様に考えると、先にも述べた様に、多孔板上の液の混合を考える際、流体要素という概念を粒子として扱ってもよいであろう。

$f(t)$ が上述の条件を満たす時、統計力学の分野^{35,6)}では抵抗係数 b が $f(t)$ の相関時間 t_f と $f(t)$ の2乗平均 \bar{f}^2 および乱れの速度の2乗平均とから決まることが示されている。この関係が多孔板上での流体要素の運動に対しても成立するとすれば次式を得る。

$$t_{L,x} = \frac{1}{b} \propto \frac{\bar{v}^2}{t_f \bar{f}^2} \quad (6-9)$$

ランダムな力 $f(t)$ は着目している流体要素の存在する位置での変動圧力によって決まると考えられる。そこで流体要素の質量を m_f 、投影面積を s_f とすると近似的に次の様に考えられる。

$$m_f \bar{f} \sim s_f \bar{p} \quad (6-10)$$

\bar{p} は変動圧力の 2 乗平均である。

一方、多孔板上の液に作用する全圧力は液の平均流がある場合、出口堰上の泡沫層の高さ $h_f - Z_w$ で決まると考えられる。このため、変動圧力は $h_f - Z_w$ の変動によって決まる。さらに、有効泡沫層高さ $h_f - Z_w$ が大きくなれば、これと共にその変動量も大きくなるので、大略の近似として変動圧力の大きさ \bar{p} は平均有効泡沫層高さ $h_f - Z_w$ で決まる圧力差に比例すると仮定できる。

一般的な流路内の流れについて、流動状態が乱流状態であれば、圧力差は流量の 2 乗に比例する。泡沫層の密度が大きく変化しないとすれば、多孔板上の液の流れについても同様に考えることができる。したがって次の様に推論される。

$$\bar{p} \propto \bar{u}_l^2 \quad (6-11)$$

流体要素の大きさが流動状態によって著しく変化しないと考えると式 (6-8) ~ (6-11) から次の関係が得られる。

$$t_{L,x} \propto \frac{\bar{v}}{\bar{u}_l^2} \quad (6-12)$$

この関係は幾つかの理想化と仮定の下に導かれたものであるが、実測されたタイムスケール $t_{L,x}$ と操作変数とを関連づけて整理する時、1つのパラメータとして \bar{v} / \bar{u}_l^2 を採用し得る可能性を示していると考えられる。

6.3.2 実験結果および考察

図 6-7 は実測したタイムスケール $t_{L,x}$ を \bar{v} / \bar{u}_l^2 との関係で整理したものである。これらの結果から実測した範囲ではタイムスケールは液流量および堰高さの如何によらず次式で整理できることがわかる。

$$t_{L,x} = h_1 \frac{\bar{v}}{\bar{u}_l^2} + h_2 \quad (6-13)$$

\bar{v} は式 (6-7) で操作変数と関係づけられているので、 $t_{L,x}$ は操作変数 \bar{u}_l, U_g の関数として決まる。

本実験の場合、係数 h_1 は孔間隔、すなわち開孔比によって変化せず約 0.11 cm である。このことは式 (6-12) の導出過程での考察から h_1 が流体要素の大きさで決まる値であることがわかるから、実験範囲内の流体要素の大きさはほぼ一定であったことを意味すると解釈される。

定数 h_2 は孔間隔が大きくなると多少大きくなるが、これは孔の部分で気流によって発生させられた液の乱れが孔間隔が大きくなるにつれてより長く持続する結果と解釈される。

本実験で得られた式 (6-13) の定数 h_1, h_2 の値は表 6-3 に示した。実験系が異れば、 h_1 はその意味から当然変化すると予想される。また、これに伴って h_2 の値も幾何学的条件だけではなく、物性その他の影響も受けると思われるが、タイムスケール $t_{L,x}$ の整理パラメータとして \bar{v} / \bar{u}_l^2 を選ばなければいづれの場合も同様な整理方法が可能と思われる。

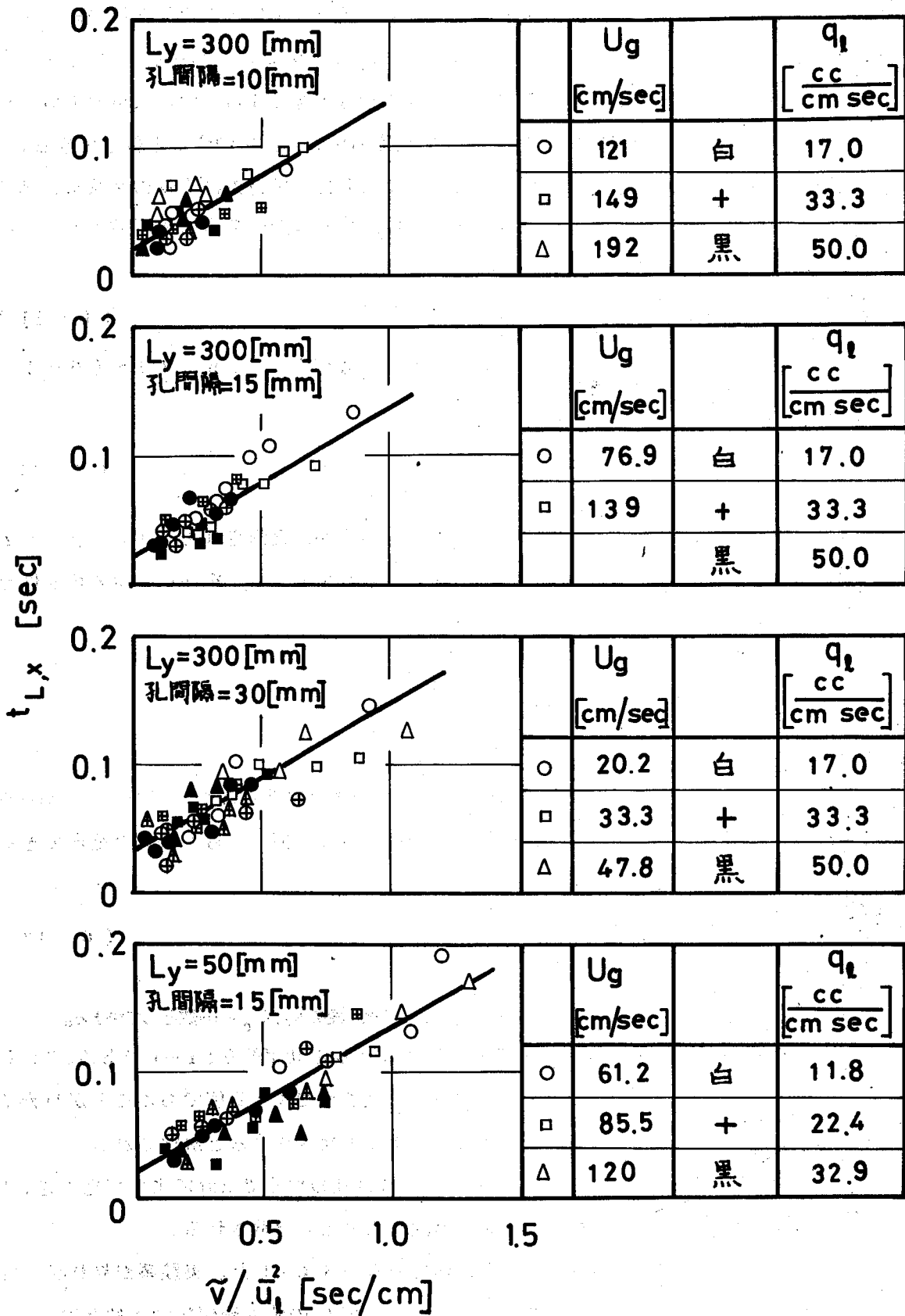


図 6-7 タイムスケールと \tilde{v} / \bar{u}_1^2 の相関

表 6-3 式(6-13)の係数の値

条 件		h_1 [cm]	h_2 [sec]
孔間隔 [mm] (開孔比 [%])	堰 幅 [mm]		
10 (27.1)	300	0.11	0.02
15 (12.9)	50 300	0.11 0.11	0.02 0.02
30 (3.06)	300	0.11	0.35

なお、拡散係数として混合特性を評価する場合には、式(6-7)(6-13)を用いて式(2-19)から拡散係数を求めればよい。

6. 4 本章の結論

第3章～第5章で述べた混合モデルおよびこれを物質移動に応用したモデルを用いるためには、モデルのパラメータを決定する混合特性値の変動速度の大きさとタイムスケールについての知識が必要となる。実際の多孔板塔でのすべての気・液系とすべての操作条件についてこれを検討するのは困難なため、本章では実験データを整理する時の操作変数との関係を検討して以下の結論を得た。

混合実験から得られる液の変動速度は、泡沫層の高さ方向に液の速度分布が存在することから観測される見掛けの変動速度と気流によって引き起される液の乱れとに分けて考えられる。この場合、前者は平均液流速に比例するが、比例定数は気体速度の関数となる。本実験系の場合、この比例定数は気体速度に反比例して小さくなる。これは、気体速度が大きくなると共に液の速度分布が一様分布に近づくためである。一方、後者は気体速度の1次式として整理される。

タイムスケールは流体要素の運動過程の反映と考えられる。この観点から、速度分布の影響を考慮しないでタイムスケールと操作変数との関係を検討し、関係する因子が液の変動速度と平均流速の2乗の比であることを示した。この結果を用いて実際には速度分布がある場合のタイムスケールのデータを整理した結果、流速分布の影響も含めてこの因子で整理し得ることを認めた。

第 7 章

本研究の総括

本章では、本研究をまとめ、今後に残された問題点を整理する。

7. 1 序

本章では、棚段式気液接触装置のうち、構造が最も簡単なものの1つである多孔板塔の棚段上での液混合を乱流拡散現象の立場から考察し、液の混合過程を表わす数式モデルを得て混合特性値を解析し、さらに、これらを物質移動過程に適用した第2章から第6章迄の研究を総括し、今後に残された問題点を整理した。

7. 2 本研究の総括

一般に多孔板式気液接触装置の物質移動効率は流体混合に支配される。本研究は、多孔板式気液接触装置の流体混合を乱流拡散現象の立場から考察し、混合特性値に従来から用いられている拡散係数を一歩進めたものとして、変動速度の大きさとタイムスケールを提案し、とくに液の混合の表現にその物理的意味を考慮に入れ、かつ、これと物質移動との関係も比較的容易に考察し得る数式モデルを確立することを目的とした。

本論文の内容は

- 1) 多孔板上の液の混合現象の観察から、これを乱流拡散現象として解析した第2章、
- 2) 液の混合特性値を考慮した一般的な混合モデルを提示し、これを普通の多孔板上の液混合に適用する方法を示した第3章、
- 3) 流動状態を安定に保ったまま、単一段当りの物質移動面積を大きくする目的で考案した2段式多孔板上の液の混合モデルを定式化した第4章、
- 4) 混合モデルの物質移動過程への適用方法を示した第5章、
- 5) 混合モデルの応用のために必要な混合特性値と操作変数の相関方法を提示した第6章、

の5項目より成り、各項目について以下の結論を得た。

- 1) 従来、多くの研究者は多孔板上の液の混合現象は乱流拡散であると述べているにもかかわらず、拡散モデルによる扱いの域を出ていなかった。本研究では、乱流拡散現象として多孔板上の液の混合が表現できることを明らかにした。これに基づいて従来の拡散係数に代る液の混合特性値に液の変動速度とタイムスケールの2つの量を用いることができる。
- 2) 上記の混合特性値を考慮し得る離散的な液混合モデルを普通の多孔板に適用してその具体的な数式モデルを示した。このモデルによって普通の多孔板の混合過程は表現でき、これを用いると混合特性値が容易に求められる。
- 3) 単一段当りの物質移動^効率を向上させるという目的で新たに考案した2段式多孔板での液混合に離散的な混合モデルを適用し、その妥当性を実験的に検証した。このモデルのパラメータは普通の多孔板でのデータを用いて決定することができる。
- 4) 2) 3) の液の混合モデルには物質移動過程への応用のし易さも考慮されており、総括吸収容量係数があまり大きくない物理吸収への応用例を考察してその妥当性を確認した。これに基づいて、

普通の多孔板での物質移動効率に及ぼす液混合の影響に対する新しい解釈を示した。また、物質移動効率に及ぼす液混合の影響は2段式多孔板の場合には非常に複雑になるが、混合度の概念で工学的に十分な精度で考察し得ることも認めた。

5) 混合モデルを用いるためには、操作条件による混合特性値の変化を知る必要がある。このため、普通の多孔板に混合モデルを適用した各条件にわたる実測値から、操作変数の関数として混合特性値の整理方法を確立した。

本研究の液混合の取り扱い、多孔板上での液の混合現象を観察し、これに基づいた妥当と認められる考え方に基礎をおくものである。本研究の結果、液の速度分布が必ずしも一様ではないこと、泡沫層中の各相の体積分率分布が必ずしも一様ではないこと等の影響は平均流速に重畳した乱れの速度による混合の影響とみなし、一括して評価し得ることが明らかになった。以上の点は工学的に意味があると考えている。

7. 3 今後の問題

本研究で示した多孔板上の液混合の扱いは、工学的見地からみて、従来より一歩進んだものと考えられるが、

- 1) 多孔板上での気泡の大きさ、およびその分布と気液の流動状態との関係
- 2) 気・液の乱れの構造

を解明した上でそれらの特徴を本研究で示した混合特性に関連づけることが物性の影響を知る上で今後に残された問題に関係する。

1) 多孔板上での液の運動は分散相である気泡群の運動に直接関係しており、液の混合をこの点からさらに詳細に解析するためには、気・液の運動を支配する気泡の大きさおよび形状に関する知識が必要になる。液中の単一気泡の運動に関する研究はこれ迄数多く成されているが、気泡の大きさの分布も考慮してこれらの結果を総合し、気泡群の運動を解析した研究はほとんど見当たらない。これは、気泡群が個々の気泡間の相互作用のため、単一気泡とはまったく異った流動状態を示し、その解析が困難なことに原因している。さらに、多孔板塔本来の機能である物質移動の面からみると、物質移動速度を決定する主要因子の1つである界面積は気泡径とその分布に直接関係しており、この関係の具体的な表示式が重要になる。

2) 気泡群に乱された液の変動速度を実験的に測定し、その構造を解明した上で気泡群の運動と関連づけて解析することは、本研究で用いた混合特性値の1つである変動速度が多孔板上での物質移動速度とどの様に関連しているかを解明するための問題点である。これは、液相の変動速度の状態がいわゆる物質移動の境膜抵抗に関係していると考えられるからである。

これらの問題点を解明するためには、この種の問題に本質的である界面現象を物理化学的に解明すると同時に、気液二相流状態での速度を測定する技術の開発が必要である。

記 号

A_p	: 球の投影面積	[cm^2]
a	: 定数 : 式(6-6)	[-]
a_h	: 孔面積	[cm^2]
b	: 抵抗係数 : 式(6-9)	[$1/\text{sec}$]
C_D	: 抵抗係数 : 式(6-1)	[-]
C_g	: 気体の濃度	[mol/cm^3]
$C_{g,0}$: 多孔板に流入する気体の濃度	[mol/cm^3]
C_i	: セル i 中の溶質の濃度	[mol/cm^3]
$C_{i,0}$: セル i 中の溶質の初濃度	[mol/cm^3]
$C_{i,\Delta}$: セル i 中の Δt 後の溶質の濃度	[mol/cm^3]
$C_i^+, C_i^+(x, t)$: セル i から下流へ移動する液中の溶質濃度	[mol/cm^3]
$C_i^-, C_i^-(x, t)$: セル i から上流へ移動する液中の溶質濃度	[mol/cm^3]
$C(x)$: 定常濃度分布	[mol/cm^3]
$C(x, t)$: 時刻 t における規格化した濃度分布	[$1/\text{cm}^3$]
$C(\xi, \eta)$: 無次元化した定常濃度分布 : 式(2-6)	[-]
$C_M(\xi)$: 規格化した定常濃度分布の最大値	[-]
$\langle C_i \rangle$: セル i の同位置の液中の平均濃度	[mol/cm^3]
D	: 下段から上段への液の配分を表わす行列 : 式(4-19)	[-]
$d_{i,j}$: 下段のセル i から上段のセル j への液の配分比	[-]
d_s	: 段間隔	[cm]
E	: 単位行列	[-]
E	: 拡散係数 : 式(2-19)	[cm^2/sec]
$E(t)$: 出口年齢頻度分布関数	[$1/\text{sec}$]
$f(t)$: 流体要素に作用するランダムな力	[G/cm^2]
\tilde{f}	: $f^2(t)$ の2乗平均平方根	[G/cm^2]
g	: 重力加速度	[cm/sec^2]
g_c	: 換算係数	[$\text{g} \cdot \text{cm}/\text{G} \cdot \text{sec}$]
$g(t)$: 滞留時間分布関数	[$1/\text{sec}$]
h_f	: 泡沫層高さ	[cm]
h_1	: 定数 : 式(6-13)	[cm]
h_2	: 定数 : 式(6-13)	[sec]
$I(t)$: 内部年齢頻度分布関数	[$1/\text{sec}$]

i	: セル i	[-]
j	: セル j	[-]
K	: 気-液平衡定数	$\left[\frac{(\text{mol}/\text{cm}^3)}{(\text{mol}/\text{cm}^3)} \right]$
K_{La}	: 液側総括物質移動係数	[1 / sec]
$K_0(\bullet)$: 0次の変形ベッセル関数	[-]
k_1	: 定数 : 式(6-7)	[cm / sec]
k_2	: 定数 : 式(6-7)	[-]
k_3	: 定数 : 式(6-7)	[cm / sec]
L	: 上段のセル数	[-]
L_x	: 棚段の長さ	[cm]
L_y	: 棚段の幅	[cm]
l_*	: 特性距離 : 式(2-29)	[cm]
M	: 普通の多孔板および下段のセル数	[-]
M_I	: 混合度 : 式(4-21)	[-]
M_p	: 球の質量	[g]
m	: セル m	[-]
m_f	: 流体要素の質量	[g]
m_i	: セル i 中のサブセルの数	[-]
n	: タイムステップ数	[-]
n_d	: 滞留ステップ数分布の立上りタイムステップ数	[-]
\bar{n}	: 平均滞留ステップ数	[-]
P	: 推移確率行列 : 式(3-45)	[-]
P_D	: 下段の推移確率行列 : 式(4-17)	[-]
P_U	: 上段の推移確率行列 : 式(4-18)	[-]
P_D^*	: 下段の容量行列 : 式(5-39)	[-]
P_U^*	: 上段の容量行列 : 式(5-40)	[-]
P_e	: Peclet 数	[-]
$\text{Pr}\{i \rightarrow j\}$: Δt の間に流体要素がサブセル i からサブセル j へ移動する確率	[-]
$\text{Pr}(x, y, t)$: 流体要素の存在確率密度関数	[1 / cm ²]
p, p_i	: Δt 毎の流体要素の下流方向への推移確率	[-]
\tilde{p}	: 変動圧力の2乗平均平方根	[G / cm ²]
Q_g	: 気体流量	[cm ³ / sec]
Q_t	: トレーサー流量	[mol / sec]
q, q_i	: Δt 毎の流体要素の上流側への推移確率	[-]

q_l	: 単位堰幅当りの液の流量	$\{ \text{cm}^3 / \text{cm} \cdot \text{sec} \}$
$R(t)$: 変動速度の Lagrange の相関々数	$\{ - \}$
r_i	: セルフループに入る確率	$\{ - \}$
$S^2(x)$: y 方向の定常濃度分布の分散	$\{ \text{cm}^2 \}$
S^2_g	: 泡沫層上面での気体の分布の分散	$\{ \text{cm}^2 \}$
s_f	: 流体要素の投影面積	$\{ \text{cm}^2 \}$
$s^2(t)$: 瞬間点源の分散 : 式(2-2)	$\{ \text{cm}^2 \}$
T	: 乱れのスケール : 式(2-8)	$\{ - \}$
t	: 時間, 年令	$\{ \text{sec} \}$
t'	: 時間	$\{ \text{sec} \}$
t_L	: タイムスケール	$\{ \text{sec} \}$
t_d	: 滞留時間分布の立ち上り時間	$\{ \text{sec} \}$
t_f	: ランダムな力 $f(t)$ の相関時間	$\{ \text{sec} \}$
t_1, t_2	: 気体の拡散過程の勾配	$\{ \text{cm}^2 / \text{sec} \}$
\bar{t}	: 平均滞留時間	$\{ \text{sec} \}$
\bar{t}_E	: 出口平均年令	$\{ \text{sec} \}$
\bar{t}_I	: 内部平均年令	$\{ \text{sec} \}$
$\Delta t, \Delta t'$: タイムステップの時間々隔	$\{ \text{sec} \}$
U	: 流体要素の存在確率分布	$\{ - \}$
U_g	: 気体の空塔速度	$\{ \text{cm} / \text{sec} \}$
$u(t)$: 単位ステップ関数	$\{ - \}$
u_j^n	: n ステップ後に流体要素がセル j に存在する確率	$\{ - \}$
$u_l(z)$: 液の速度分布	$\{ \text{cm} / \text{sec} \}$
$u_v(z)$: 液の体積フラックス分布	$\{ \text{cm}^3 / \text{cm}^2 \text{sec} \}$
\bar{u}_l	: 液の平均流速	$\{ \text{cm} / \text{sec} \}$
$\bar{u}_l(x)$: 液の速度分布	$\{ \text{cm} / \text{sec} \}$
V_f	: セル内の泡沫層体積	$\{ \text{cm}^3 \}$
$V_m(s)$: 特性関数 : 式(3-21)	$\{ - \}$
V_x	: 混合モデルでの流体要素の移動速度 : 式(3-5)	$\{ \text{cm} / \text{sec} \}$
$v_{m,n}$: 流体要素の排出確率	$\{ - \}$
$v'(t)$: 変動速度	$\{ \text{cm} / \text{sec} \}$
\tilde{v}	: 変動速度の2乗平均平方根 : 式(2-4)	$\{ \text{cm} / \text{sec} \}$
\tilde{v}_l	: 見掛けの乱れの速度 : 式(6-3)	$\{ \text{cm} / \text{sec} \}$
$\tilde{v}_{l,g}$: $\tilde{v} - \tilde{v}_l$: 式(6-2)	$\{ \text{cm} / \text{sec} \}$
W	: セル内の流体要素の数	$\{ - \}$

$W_{i \rightarrow j}$: Δt 毎に下段のセル i から上段のセル j へ流出する流体要素の数	{ - }
$W_{m, n}$: セル m からセル M へ n ステップで到達する流体要素の数	{ - }
W_i^0	: セル i 中の時刻 0 における着目流体要素の数	{ - }
W_i^{Δ}	: セル i 中の時刻 Δt 後における着目流体要素の数	{ - }
$W_m(s)$: 特性関数 : 式 (3 - 21)	{ - }
W^{\rightarrow}	: Δt 毎に各セルから下流に移動する流体要素の数	{ - }
W^{\leftarrow}	: Δt 毎に各セルから上流に移動する流体要素の数	{ - }
$W_{m, n}^{\rightarrow}$: 最初の 1 ステップでセル $m+1$ を経てセル m からセル M へ到達する流体要素の数	{ - }
$W_{m, n}^{\leftarrow}$: 最初の 1 ステップでセル $m-1$ を経てセル m からセル M へ到達する流体要素の数	{ - }
$w_{m, n}$: セル m からセル M へ n ステップで到達する流体要素の推移確率	{ - }
X_n	: n ステップ後の相対容量分布 : 式 (5 - 13)	{ - }
X_i	: セル i の相対容量 : 式 (5 - 11)	{ - }
\bar{X}_n	: X_n の 1 番目の要素を除いたベクトル	{ - }
x	: 下段での流体要素の相対的存在量の分布	{ - }
x	: 座標	{ cm }
x_i	: セル i での流体要素の相対的存在量	{ - }
x_p	: 気体濃度分布の主軸	
x^+	: セルの境界から下流方向にとった座標	{ cm }
x^-	: セルの境界から上流方向にとった座標	{ cm }
$\Delta x, \Delta x_i$: セルの大きさ : 式 (3 - 2)	{ cm }
$\Delta x_{i, j}$: 下段のセル i から上段のセル j へ液が流出する棚段の長さ	{ cm }
Δx_p	: 球の変位	{ cm }
Y_n	: 上段の相対容量分布 : 式 (5 - 36)	{ - }
Y_i	: セル i の相対容量	{ - }
$Y_{i, 0}$: セル j の初期相対容量	{ - }
$Y_{i, \Delta}$: セル i の Δt 後の相対容量	{ - }
y	: 上段での流体要素の相対的存在量分布	{ - }
y	: 座標	{ cm }
y_i	: 上段での流体要素の相対的存在量	{ - }
y_p	: 気体濃度分布の主軸	
Z_w	: 出口堰の高さ	{ cm }
z	: 座標	{ cm }

α, α_i	: 物質移動速度定数 : 式(5-25)(5-42)	[1/sec]
β, β_i	: 定数 : 式(5-25)(5-43)	[-]
r, r_i	: 残存容量減少速度係数	[-]
$\delta(t)$: デルタ関数	[1/sec]
ζ, ζ^-	: 無次元濃度差 : 式(5-26)	[-]
η	: 物質移動効率 : 式(5-32)	[-]
η	: 無次元座標 : 式(2-8)	[-]
θ	: 無次元時間 : 式(2-8)	[-]
λ_1, λ_2	: 特性方程式の根	[-]
μ	: 無次元数 : 式(5-33)	[-]
μ_C^4	: 尖鋭度	[-]
ξ	: 無次元座標 : 式(2-8)	[-]
π	: 円周率	[-]
ρ	: 密度	[g/cm ³]
$\sigma^2(\theta)$: 無次元の分散 : 式(2-7)	[-]
$\sigma_C^2(\xi)$: 規格化した定常濃度分布の分散 : 式(2-9)	[-]
σ_E^2	: 出口年令分布関数の分散	[sec ²]
σ_t^2	: 滞留時間分布の分散	[sec ²]
σ_n^2	: 滞留タイムステップ数の分散	[-]
$\varphi(z)$: 液の体積分率分布	[-]
$\bar{\varphi}$: 液の平均体積分率	[-]
ω	: 最大濃度分布の勾配 : 表2-1	[-]

添 字

D	: 下 段
d	: 遅 れ
g	: 気 体
i	: セル i
j	: セル j
l	: 液 体
m	: セル m
n	: タイムステップ n
t	: 滞留時間分布
U	: 上 段

x, y, z : x, y, z 方向

Δ : Δt 後

0 : 初期値

→ : 下流方向へ移動している

← : 上流方向へ移動している

引 用 文 献

- 1) AIChE : "Bubble Tray Design Manual" (1958)
- 2) Aleksandros, I. A. and V. G. Vybornov : *Theor. Found. Chem. Eng.*, **5**, 308 (1971)
- 3) Anderson, J. E. : Sc. D. Thesis, MIT (1954) (Final Rept of Delaware)
- 4) Aris, R. : *Proc. Roy. Soci. (London)*, **A 235**, 67 (1956)
- 5) Ashley, M. J. and G. G. Haselden : *Trans. Instn Chem. Engrs*, **51**, 188 (1973)
- 6) 東 健一, 長倉三郎 : "緩和現象の化学", (1973)
- 7) Barker, P. E. and M. F. Self : *Chem. Eng. Sci.*, **17**, 541 (1962)
- 8) Bell, R. : *AIChE Journal*, **18**, 491 (1972)
- 9) Bell, R. : *ibid*, **18**, 498 (1972)
- 10) Bushuev, V. P. and V. P. Pavlov : *Theor. Found. Chem. Eng.*, **5**, 126 (1971)
- 11) Butcher, K. L. and M. S. Medani : *Trans. Instn Chem. Eng.*, **49**, 225 (1971)
- 12) Crozier, R. D. : Ph. D. Thesis, Univ. Mich. (1956) (Final Rept of Michigan)
- 13) Eduljee, H. E. : *Brit. Chem. Eng.*, **9**, 820 (1964)
- 14) 江口 弥, 永田進治 : 化学工学, **24**, 142 (1960)
- 15) Einstein, A. : "Investigation on the Theory of the Brownian Movement" (1956)
- 16) Ellis, S. R. M. and H. K. Moyade : *Brit. Chem. Eng.*, **4**, 342 (1959)
- 17) Feller, W. : "An Introduction to Probability Theory and Its Applications", 325 (1950)
John Wiley and Sons
- 18) Foss, A. S., J. A. Gerster and R. L. Pigford : *AIChE Journal*, **4**, 231 (1958)
- 19) Frenkiel, F. N. : *Advances in Applied Mechanics*, **3**, 61 (1953)
- 20) 藤田重文, 早川豊彦, 館川直樹 : 化学工学協会第24年会予稿集 (1959)
- 21) Gautreaux, M. F. and H. E. O'Connell : *Chem. Eng. Progr.*, **51**, 232 (1955)
- 22) Gerster, J. A. : *Chem. Eng. Progr.*, **59**, (3) 35 (1963)
- 23) Gilbert, T. J. : *Chem. Eng. Sci.*, **10**, 243 (1959)
- 24) Hanratty, T. J., G. Latinen and R. H. Wilhelm : *AIChE Journal*, **2**, 372 (1959)
- 25) 原田 誠, 足立昌暁, 江口 弥, 永田進治 : 化学工学, **26**, 856 (1962)
- 26) Harris, I. J. and G. H. Roper : *Can. J. Chem. Eng.*, **40**, 245 (1962)
- 27) Hartland, S. and J. C. Mecklenburgh : *Brit. Chem. Eng.*, **15**, 216 (1970)
- 28) Haselden, G. G. and D. Shore : *Int. Symp. on Distillation, Sec. 2*, 154 (1969)
- 29) Hinze, J. O. : "Turbulence", 53 (1959) Mc Graw Hill
- 30) Hinze, J. O. : *ibid*, 276
- 31) 飯田嘉宏, 小林清志, 熊谷伸一 : 日本原子力学会誌, **9**, 2 (1967)
- 32) 井上一郎, 殿岡康彦 : 理研報告, **40**, 317 (1964)
- 33) Johnson, A. I. and J. Marangozis : *Can. J. Chem. Eng.*, **36**, 161 (1958)

- 34) Kafarov, V. V. , V. V. Shestopalov and B. M. Gorenstein : *Theor. Found. Chem. Eng.*, **2**, 537 (1968)
- 35) Kirkwood, J. G. : *J. Chem. Phys.*, **14**, 180 (1946)
- 36) Kirschbaum, E. : *Forsh. Gebiete Ingenieur*, : **35**, 245 (1935)
- 37) 櫻田栄一, 大竹伝雄 : 化学工学, **30**, 144 (1966)
- 38) Lebedev, Y. N. , I. A. Aleksandros and D. D. Zykov : *Theor. Found. Chem. Eng.*, **2**, 155 (1968)
- 39) Levenspiel, O. : *Advances in Chem. Eng.*, **4**, 95 (1963)
- 40) Lewis, W. K. Jr : *Ind. Eng. Chem.*, **28**, 399 (1936)
- 41) 宮内照勝 : 統新化学工学講座 “流系操作と混合特性” (1960) 日刊工業新聞社
- 42) 宮内照勝 : 化学工学, **24**, 434 (1960)
- 43) 宮内照勝, 今井弘, 久保国道 : 化学工学, **30**, 643 (1966)
- 44) Molkeanov Yu. K. and L. P. Rogazina : *Theor. Found. Chem. Eng.*, **4**, 762 (1970)
- 45) Murphree, E. V. : *Ind. Eng. Chem.*, **17**, 747 (1925)
- 46) 永田進治, 江口弥, 稻村寿一, 谷川澄, 田中知治 : 化学工学, **17**, 387 (1953)
- 47) Oliver, E. P. and C. C. Watson : *AIChE Journal*, **2**, 18 (1956)
- 48) Papoulis, A. : “Fourier Integral and Its Applications”, 302 (1962)
- 49) Papoulis, A. : “Probability, Random Variables, and Stochastic Processes”, 288 (1965)
McGraw Hill
- 50) Porter, K. E. , M. B. King and K. C. Varshney : *Trans. Instn Chem. Engrs*, **44**, T247 (1966)
- 51) Porter, K. E. , M. J. Lockett and C. T. Lin : *Trans. Instn Chem. Engrs*, **50**, 91 (1972)
- 52) Prince, R. G. H. and B. K. G. Chan : *Trans. Instn Chem. Engrs*, **43**, T49 (1965)
- 53) Schmalzer, D. K. and H. E. Hoelcher : *AIChE Journal*, **17**, 104 (1971)
- 54) Slobodyanik, I. P. and K. V. Malashikhin : *Theor. Found. Chem. Eng.*, **5**, 123 (1971)
- 55) Strand, C. P. : *Chem. Eng. Progr.*, **59**, (4) 58 (1963)
- 56) Taylor, G. I. : *Proc. Roy. Soci. (London)*, **A219**, 186 (1953)
- 57) Taylor, G. I. : *ibid*, **A233**, 446 (1954)
- 58) Thomas, W. J. and M. Campbell : *Trans. Instn Chem. Engrs*, **45**, T64 (1967)
- 59) Walter, J. F. and T. K. Sherwood : *Ind. Eng. Chem.*, **33**, 493 (1941)
- 60) Wehner, T. F. and R. H. Wilhelm : *Chem. Eng. Sci.*, **6**, 89 (1956)
- 61) Welch, N. E. , L. D. Durbin and C. D. Holland : *AIChE Journal*, **10**, 373 (1964)
- 62) Wharton, L. : B. S. Thesis, MIT (1955) (Final Rept of Delaware)
- 63) Williams, B. J. , W. Begley and C. H. Wu : “Tray Efficiencies in Distillation” (Final Rept of Michigan), (1960)

- 64) 井上一郎, 海野 肇 : 化学工学, 32, 480 (1968)
- 65) 井上一郎, 海野 肇 : 化学工学, 33, 453 (1969)
- 66) 海野 肇 : 理研報告, 46, 34 (1970)
- 67) 井上一郎, 海野 肇 : 化学工学, 36, 65 (1972)
- 68) 海野 肇, 井上一郎 : 化学工学, 38, 217 (1974)
- 69) 海野 肇, 井上一郎 : 化学工学, 38, 433 (1974)
- 70) 海野 肇, 井上一郎 : 化学工学論文集, 1, 33 (1975)
- 71) 海野 肇, 井上一郎 : 化学工学論文集, 1, (1975)
- 72) 海野 肇, 井上一郎 : 化学工学論文集, 1, (1975)
- 73) 海野 肇, 太田口和久, 井上一郎 : 理研報告, 50, 115 (1974)
- 74) 太田口和久, 海野 肇, 井上一郎 : 理研報告, 50, 201 (1974)
- 75) 海野 肇, 井上一郎 : 理研報告, 50, 191 (1974)

- 76) 海野 肇 : 第26回研究談話会 (化学工学協会東海支部)
前刷, 17 (1971)
- 77) 海野 肇, 井上一郎 : 化学工学協会 第6回秋期大会
前刷, 101 (1972)

謝 辞

本研究をまとめるにあたって終始懇切な御指導と御助言を頂きました理化学研究所主任研究員，東京工業大学教授井上一郎先生，さらに，有益な御助言を頂きました東京工業大学教授伊藤四郎先生，白井 隆先生，稻積彦二先生，明島高司先生に心から感謝の意を表します。また，本研究を行うに当って種々の御協力を頂きました理化学研究所・化学工学研究室の方々に深く御礼申し上げます。