



気泡塔内ボイド率に及ぼす初期液位の影響に関する研究

小林, 暢也

(Degree)

博士 (工学)

(Date of Degree)

2023-03-25

(Date of Publication)

2024-03-01

(Resource Type)

doctoral thesis

(Report Number)

甲第8645号

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/0100482393>

※ 当コンテンツは神戸大学の学術成果です。無断複製・不正使用等を禁じます。著作権法で認められている範囲内で、適切にご利用ください。



博 士 論 文

気泡塔内ボイド率に及ぼす
初期液位の影響に関する研究

令和 5 年 1 月

神戸大学大学院 工学研究科

小林 暢也

目次

第 1 章 序論	1
1.1 背景	1
1.2 気泡塔内流動に関する従来の研究	2
1.2.1 気泡塔内流れの流動様式	2
1.2.2 初期液位が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響	5
1.2.3 液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響	7
1.2.4 大気泡が塔内流動に及ぼす影響	9
1.3 本研究の目的と方法	10
1.4 本論文の構成	11
第 1 章の参考文献	12
第 2 章 水-空気系気泡塔において初期液位がボイド率に及ぼす影響	17
2.1 緒言	17
2.2 実験装置及び測定方法	18
2.2.1 実験装置及び実験方法	19
2.2.2 気泡塔内平均ボイド率の測定方法	21
2.2.3 局所ボイド率の測定方法	23
2.2.4 区間平均ボイド率の測定方法	28
2.3 実験結果及び考察	28
2.3.1 初期液位が気泡塔内平均及び局所ボイド率に及ぼす影響	28
2.3.2 水-空気系気泡塔内平均ボイド率相関式	34
2.4 結言	43

第 2 章の参考文献	43
第 3 章 液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響	47
3.1 緒言	47
3.2 実験装置及び実験条件	48
3.3 実験結果及び考察	49
3.3.1 液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響	49
3.3.2 液相粘度の影響を考慮した気泡塔内平均ボイド率評価式	54
3.4 結言	58
第 3 章の参考文献	58
第 4 章 気泡塔内大・小気泡群のボイド率	61
4.1 緒言	61
4.2 実験装置及び測定方法	62
4.2.1 実験装置及び実験条件	62
4.2.2 Dynamic gas disengagement(DGD)法	62
4.3 実験結果及び考察	64
4.4 結言	77
第 4 章の参考文献	78
第 5 章 結論	81
付録	84
A.1 局所ボイド率分布	84
A.2 断面平均ボイド率を用いた気泡塔内平均ボイド率の算出方法	85
A.3 水-空気系気泡塔内平均ボイド率の実験値	86
A.4 ペンダントバブル法による表面張力の測定	87
A.5 グリセリン水溶液-空気系気泡塔内平均ボイド率の実験値	89
A.6 大・小気泡群のボイド率の実験値	91

本研究に関連する学術論文・講演論文

93

図一覧

1.1	気泡塔の流動様式線図[6]	3
1.2	工業的に利用される気泡塔の流動様式[9]	3
1.3	気泡塔における局所ボイド率分布の典型例[10]	4
1.4	気泡塔内平均ボイド率と流動様式との関係[10]	5
1.5	初期液位が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響[4]	6
1.6	液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響	8
2.1	実験装置	19
2.2	散気板	19
2.3	高速度ビデオカメラによる自由表面近傍の撮影	22
2.4	画像処理による $\bar{H}(t)$ の取得	22
2.5	$\bar{H}(t)$ と $\bar{H}(t)$ の時間平均値 ($H_0 = 3000$ mm, $J_G = 0.30$ m/s)	23
2.6	点電極プローブ測定系	24
2.7	点電極プローブ先端部	24
2.8	局所ボイド率の測定位置	26
2.9	電圧信号及び二値化信号	26
2.10	時間平均局所ボイド率 ($H_0 = 2000$ mm, $J_G = 0.10$ m/s, $x = 0$ mm, $y = 0$ mm, $z = 400$ mm)	27
2.11	気泡塔内流動 ($H_0 = 1000$ mm)	29
2.12	初期液位が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響	30
2.13	局所ボイド率分布 ($H_0 = 2000$ mm)	31
2.14	断面平均ボイド率分布	32
2.15	算出方法の違いによる塔内平均ボイド率の比較	33
2.16	α_c^* と $\bar{\alpha}_g^*$ の比較 ($H_0 = 2000$ mm)	35
2.17	塔中央部 ($x = 0$ mm) における局所ボイド率分布	36
2.18	フォーム領域の長さ L_f	37
2.19	バルク領域のボイド率 $\langle \alpha_b \rangle$	39

2.20	フォーム領域のボイド率 $\langle\alpha_f\rangle$	40
2.21	$\langle\alpha_G\rangle$ と式(2.11), (2.15), (2.16)及び(2.18)との比較	41
2.22	$\langle\alpha_G\rangle$ の実験値と計算値との比較.....	41
2.23	2領域モデルに基づく相関式と式(2.19)との比較.....	42
2.24	2領域モデルに基づく相関式と式(2.16)との比較.....	43
3.1	液相粘度が気泡塔内流動に及ぼす影響($H_0 = 1000$ mm)	50
3.2	粘度が気泡塔内平均ボイド率の初期液位依存性に及ぼす影響	51
3.3	$\langle\alpha_G\rangle^*(H_0, J_G, \mu_L)$ と H_0 の関係.....	53
3.4	$\langle\alpha_G\rangle^*(J_G, \mu_L)$ と J_G の関係	54
3.5	$\langle\alpha_G\rangle$ と式(3.4), (3.5), (3.6)及び(3.7)との比較.....	56
3.6	$\langle\alpha_G\rangle$ の実験値と計算値との比較.....	57
4.1	DGD 法における H の時間変化($H_0 = 3000$ mm, $J_G = 0.30$ m/s).....	63
4.2	J_G が $\langle\alpha_G\rangle$ 及び $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ に及ぼす影響	64
4.3	H_0 が $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ に及ぼす影響.....	65
4.4	H_0 が $J_{G,L}$ に及ぼす影響	66
4.5	通気時に観察された大気泡($\mu_L = \mu_W$)	67
4.6	H_0 が W/D_H に及ぼす影響($\mu_L = \mu_W$)	68
4.7	J_G が W/D_H に及ぼす影響($\mu_L = \mu_W$).....	69
4.8	$\langle\alpha_G\rangle$ と $\langle\alpha_{G,S}\rangle$ の関係($\mu_L = \mu_W$)	70
4.9	μ_L が $\langle\alpha_G\rangle$ 及び $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ の J_G 依存性に及ぼす影響.....	71
4.10	μ_L が $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ に及ぼす影響.....	72
4.11	μ_L が $J_{G,L}$ に及ぼす影響.....	72
4.12	μ_L が W/D_H の H_0 依存性に及ぼす影響	73
4.13	μ_L が W/D_H の J_G 依存性に及ぼす影響.....	74
4.14	$\langle\alpha_G\rangle$ と $\langle\alpha_{G,S}\rangle$ の関係($\mu_L = 4.4\mu_W$ and $12.3\mu_W$).....	75
4.15	$\langle\alpha_G\rangle$ に対する $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ の割合	76
A.1	局所ボイド率分布($H_0 = 800$ mm)	85
A.2	局所ボイド率分布($H_0 = 1000$ mm)	86
A.3	$\overline{\alpha_G}$ を用いた $\langle\alpha_G\rangle$ の算出($H_0 = 2000$ mm, $J_G = 0.10$ m/s)	87
A.4	ペンダントバブル法[2]による表面張力の測定.....	89

表一覧

1.1 液相粘度がボイド率に及ぼす影響を調べた研究	9
3.1 液相の物性値(19±1 °C)	49
A.1 水-空気系気泡塔における気泡塔内平均ボイド率	87
A.2 グリセリン水溶液-空気系気泡塔における気泡塔内平均ボイド率 ($\mu_L = 4.4\mu_W$)	89
A.3 グリセリン水溶液-空気系気泡塔における気泡塔内平均ボイド率 ($\mu_L = 12.3\mu_W$)	90
A.4 大気泡群のボイド率($\mu_L = \mu_W$)	91
A.5 大気泡群のボイド率($\mu_L = 4.4\mu_W$)	91
A.6 大気泡群のボイド率($\mu_L = 12.3\mu_W$)	91
A.7 小気泡群のボイド率($\mu_L = \mu_W$)	91
A.8 小気泡群のボイド率($\mu_L = 4.4\mu_W$)	92
A.9 小気泡群のボイド率($\mu_L = 12.3\mu_W$)	92

主な使用記号

[英文字]

A	気泡塔断面積 [m^2]
d_h	散気板孔径 [mm]
D_H	気泡塔内径 [mm]
E_o	エトベス数
Fr	H_0 を代表長さ, J_G を代表速度としたフルード数
g	重力加速度 [m/s^2]
H	瞬時局所の自由表面高さ [mm]
$\bar{H}$	通気時の液面高さ(H の線平均値) [mm]
H_0	初期液位(通気前の液位) [mm]
H_1	Region 1 における液面高さに対する近似直線の切片 [mm]
H_2	Region 2 における液面高さに対する近似直線の切片 [mm]
H_3	Region 1 から Region 2 に変わる時刻の液面高さ [mm]
J_G	気相体積流束 [m/s]
$J_{G,L}$	大気泡群体積流束 [m/s]
$J_{G,S}$	小気泡群体積流束 [m/s]
L_b	バルク領域の長さ [m]
L_f	フォーム領域の長さ [m]
L_s	スパージャー領域の長さ [m]
M	モルトン数
Q_G	気相体積流量 [m^3/s]
t	時間 [s]

t_1	撮影開始時間 [s]
T	撮影時間 [s]
W	大気泡の水平方向サイズ [mm]
x	原点からの水平方向距離 [m]
y	原点からの奥行き方向距離 [m]
z	原点からの高さ [m]

[ギリシャ文字]

α_C	塔中央部($x = 0$ mm)における局所ボイド率
α_G	局所ボイド率
$\overline{\alpha_G}$	断面平均ボイド率
$\langle \alpha_b \rangle$	バルク領域の体積平均ボイド率
$\langle \alpha_f \rangle$	フォーム領域の体積平均ボイド率
$\langle \alpha_s \rangle$	スパージャー領域の体積平均ボイド率
$\langle \alpha_G \rangle$	気泡塔内平均ボイド率
$\langle \alpha_{G,L} \rangle$	大気泡群のボイド率
$\langle \alpha_{G,S} \rangle$	小気泡群のボイド率
μ_L	液相粘度 [mPa·s]
μ_W	水道水の粘度 [mPa·s]
ρ	密度 [kg/m ³]
σ	表面張力 [N/m]

[添字]

G	気相
L	液相

第 1 章

序論

1.1 背景

気泡塔型反応装置は液相を満たした塔型容器底部の気相分散器から気相を気泡として連続的に液相に流入させ気液間の化学反応を行う装置である[1,2]. 気泡の上昇に伴い液相が攪拌されるため、塔内に機械的駆動部を設置する必要がなく構造が単純である．そのため、腐食性の液相を含む反応や高圧反応に適している[3]，故障が生じにくく装置の維持及び管理が比較的容易である[3]等の長所があり，工業的には石油化学，生化学，排水処理等の様々な化学プロセスに利用されている．気泡塔の装置性能は塔内流動に強く依存するため，その設計，スケールアップ，操業条件の最適化等のためには塔内流動の把握が重要である．塔内流動には塔径程度の大規模スケールの現象から気泡径程度の小スケールの現象までの幅広いスケールの現象が混在し相互に作用するため，塔内には非常に複雑な流れが形成される．最も構造が単純な標準型気泡塔や，固気液三相系よりも現象が単純な気液二相系気泡塔でさえ塔内流動の十分な理解は得られていない[4].

気泡塔内流動を評価する最も基本的な因子の一つとして次式で定義される気泡塔内平均ボイド率 $\langle\alpha_G\rangle$ がある[2].

$$\langle\alpha_G\rangle = \frac{H_C - H_0}{H_C} \quad (1.1)$$

ここで、 H_C は通気時の液面高さ [m]、 H_0 は初期液位(通気していない状態の液面高さ)[m]である。 $\langle \alpha_G \rangle$ には気相体積流束 J_G [m/s]、 H_0 、塔内径 D_H [m]、液相物性など様々なパラメータが影響を及ぼす。従って、種々のパラメータが $\langle \alpha_G \rangle$ に及ぼす影響を把握することが重要である。種々のパラメータが $\langle \alpha_G \rangle$ に及ぼす影響を調べた研究は数多く存在するが、未だ十分な理解には至っていない。

1.2 気泡塔内流動に関する従来の研究

1.2.1 気泡塔内流れの流動様式

気泡塔内流動は均質気泡流、非均質気泡流及びスラグ流の三つの流動様式に大別される[2, 5]。Deckwer ら[6]が気相流入条件である J_G と D_H より流動様式を整理した結果を図 1.1 に示す。いずれの D_H においても、 $J_G \leq 0.025$ m/s の領域では均質気泡流が形成される。均質気泡流では気泡の大きさ及び上昇速度は概ね均一であり、気泡の合体及び分裂が生じないため気泡の大きさは気相分散器や気泡塔の物理的特性に依存する[7]。 $D_H \geq 200$ mm かつ $J_G \geq 0.075$ m/s の領域では非均質気泡流が形成される。非均質気泡流は乱れた流動であり、気液の循環が激しく高い上昇速度を持つ大気泡が形成される[7]。 $D_H \leq 100$ mm かつ $J_G \geq 0.05$ m/s の領域ではスラグ流が形成される。スラグ流は、塔断面を満たすような砲弾型の気泡と小気泡を含む液相部が交互に存在する流動である[8]。工業的に使用される気泡塔は D_H が大きく、 $D_H \leq 100$ mm となることは稀であり、塔内流動は主に均質気泡流か非均質気泡流となる[8]。図 1.2 に均質気泡流及び非均質気泡流の模式図[9]を示す。また、図 1.3 に均質気泡流と非均質気泡流における塔断面方向局所ボイド率分布の典型的な例[10]を示す。上述のように、均質気泡流では気泡は一樣に塔内を上昇するため局所ボイド率は平坦な分布となる。一方、非均質気泡流では塔中央に大きな気泡が集中するため局所ボイド率は塔中央部において高くなる。

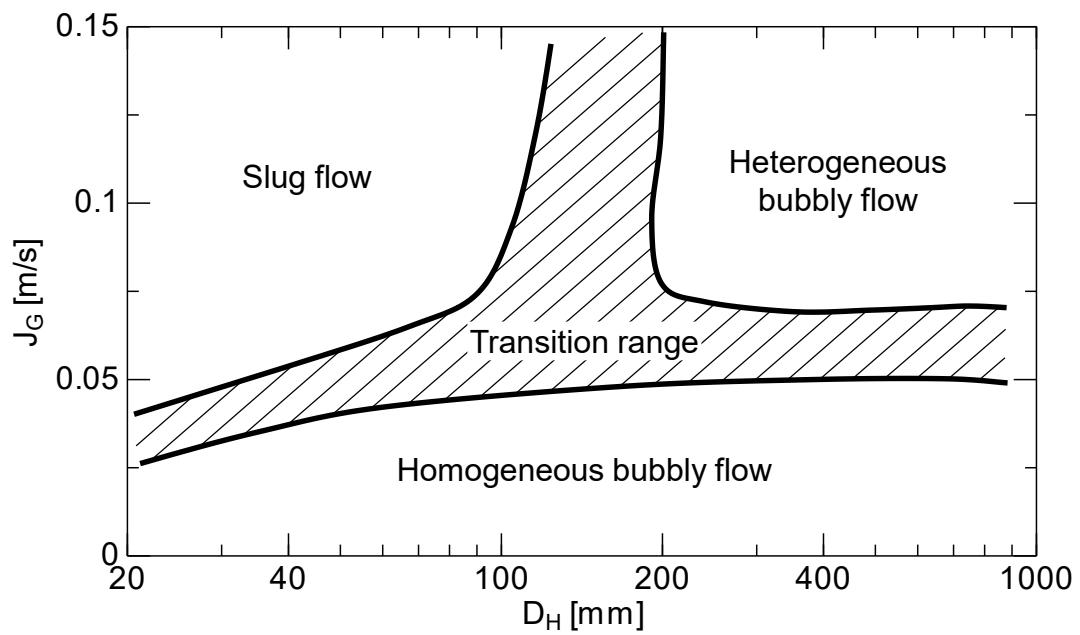


図 1.1 気泡塔の流動様式線図[6]

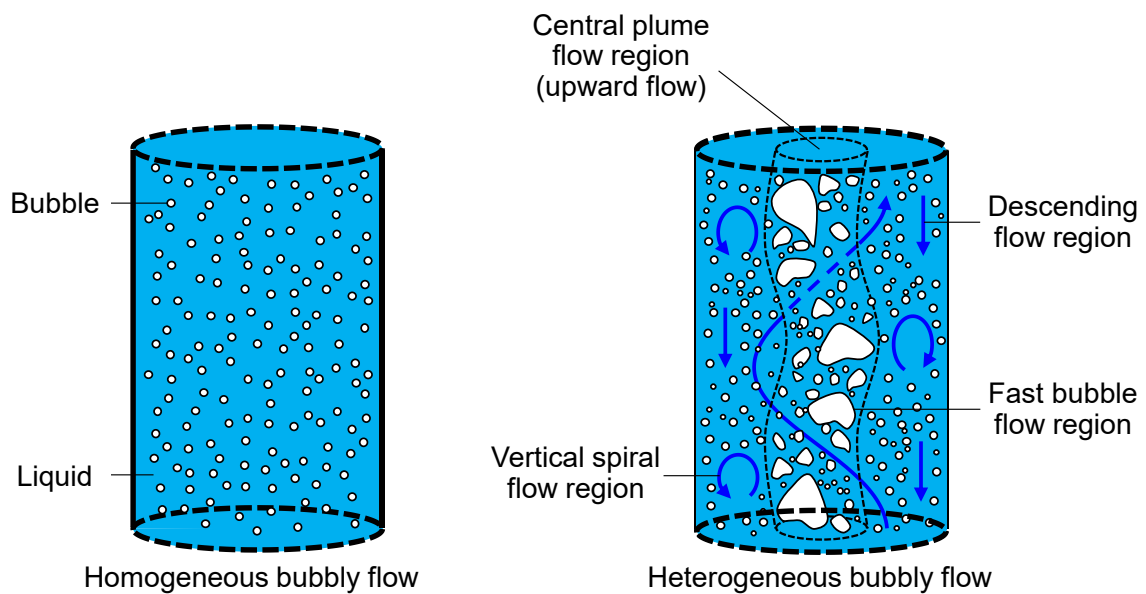


図 1.2 工業的に利用される気泡塔の流動様式[9]

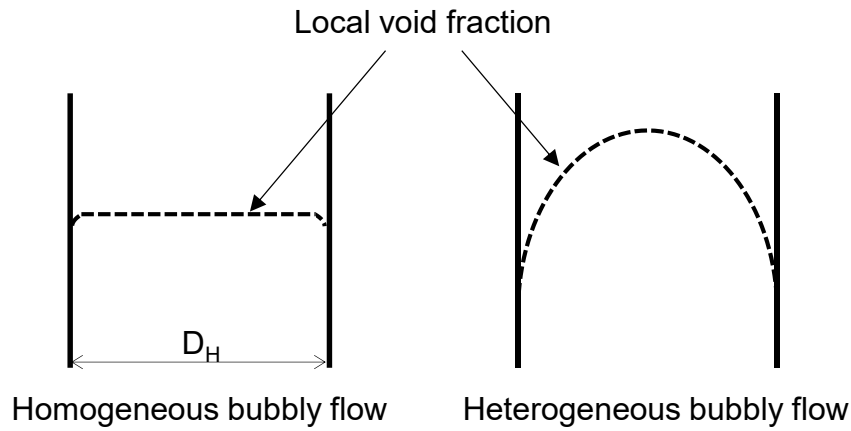


図 1.3 気泡塔における局所ボイド率分布の典型例[10]

Ruzicka ら[10]は $\langle \alpha_G \rangle$ 及び J_G により均質気泡流及び非均質気泡流を判別可能であると報告している．図 1.4 に横軸を J_G ，縦軸を $\langle \alpha_G \rangle$ としたときの流動様式の変化を示す．図中の実線に注目すると，低 J_G において， $\langle \alpha_G \rangle$ は J_G に対して下に凸な特徴 ($\langle \alpha_G \rangle \sim J_G^2$) を有し，この領域では均質気泡流が形成される． J_G 増加に伴い $\langle \alpha_G \rangle$ は増加し，ある J_G において極大となる．その後， $\langle \alpha_G \rangle$ は一旦減少するが J_G 増加に伴い再び増加する．再び $\langle \alpha_G \rangle$ が増加する領域では非均質気泡流が形成される．一方，破線はいずれの J_G においても非均質気泡流となる場合を表し，Ruzicka ら[10]はこのような流れを「pure heterogeneous flow」と呼称している．本研究では「pure heterogeneous flow」を「純非均質気泡流」と呼称する．非均質気泡流は均質気泡流に比べて複雑な流動であるため，未だ十分な理解が得られていない．そこで，本研究ではいずれの J_G においても非均質気泡流となる純非均質気泡流を対象とする．

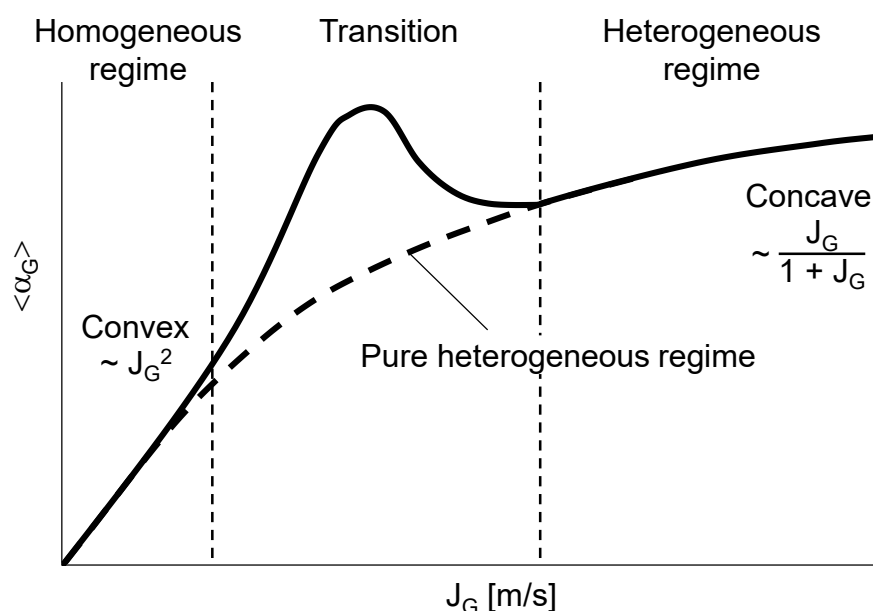


図 1.4 気泡塔内平均ボイド率と流動様式との関係[10]

1.2.2 初期液位が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響

初期液位は気泡塔の設計，スケールアップにおいて重要な幾何学的パラメータである[1, 11]が，塔径や散気板形状等の幾何学的パラメータと比較して初期液位がボイド率に及ぼす影響を調べた例は少ない．初期液位がある値より小さい場合は初期液位増加に伴い気泡塔内平均ボイド率は減少し，初期液位がある値より大きい場合には初期液位はボイド率に影響を及ぼさないことが知られている[4, 8, 12, 13]．初期液位の影響を調べた既存の研究の多くはパラメータとして初期液位と塔径の比であるアスペクト比を用いている．しかしながら，ボイド率は塔径にも依存するため，ボイド率が塔径に依存しない範囲においてアスペクト比は初期液位がボイド率に及ぼす影響を整理するためのパラメータとしては不適切である．佐々木[4]は，初期液位及び塔径がボイド率に及ぼす影響を独立に調べており，初期液位は 2200 mm 程度以上においてボイド率に影響を及ぼさないこと(図 1.5)，塔径は 200 mm 以上においてボイド率に影響を及ぼさないことを報告している．彼は広範囲の初期液位($400 \leq H_0 \leq 4000$ mm)において取得した気泡塔内平均ボイド率に基づきボイド率の初期液位依存性を調べているが， $H_0 \geq 1500$ mm における彼のボイド率のデータ点数はボ

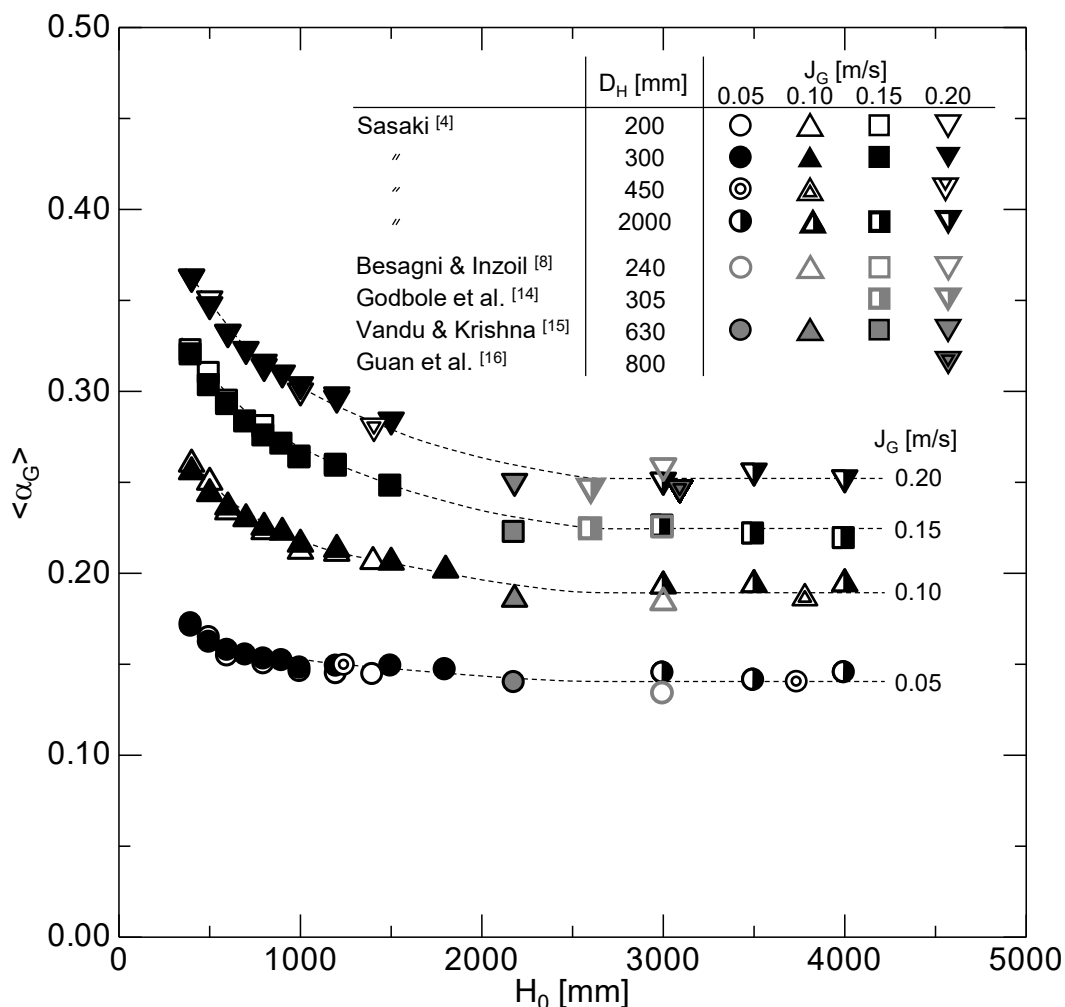


図 1.5 初期液位が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響[4]

イド率の初期液位依存性を明確に捉えるには不十分である。

気泡塔内気泡流の流動構造は、塔底部のスパージャー領域、中間部のバルク領域、塔上部のフォーム領域の3つの領域に分割できることが経験的に知られている。そのため、ボイド率の初期液位依存性はボイド率の鉛直方向分布に依存すると考えられる。Yamashita[17]は、フォーム領域とスパージャー領域の長さを把握するために、塔断面形状が50 x 100 mmの矩形気泡塔を用いて、フォーム領域の局所ボイド率及びスパージャー領域の平均ボイド率の鉛直方向分布を $260 \leq H_0 \leq 790$ mmにおいて測定している。その結果、フォーム領域の長さは H_0 に依存せず J_G 増加に伴い増加し、スパージャー領域の長さは H_0 に依存せず J_G 増加に伴い減少すると報告してい

る．また，Yamashita[18]は，塔径 160 mm の円筒気泡塔を用いて $200 \leq H_0 \leq 1600$ mm において塔内平均ボイド率を取得し，実験データに基づき次の3領域モデルを提案している．

$$\langle \alpha_G \rangle = \frac{\langle \alpha_s \rangle L_s + \langle \alpha_b \rangle L_b + \langle \alpha_f \rangle L_f}{L_s + L_b + L_f} \quad (1.2)$$

ここで， $\langle \alpha_s \rangle$ ， $\langle \alpha_b \rangle$ ， $\langle \alpha_f \rangle$ はそれぞれスパージャー領域，バルク領域，フォーム領域の体積平均ボイド率， L_s ， L_b ， L_f はそれぞれスパージャー領域，バルク領域，フォーム領域の長さを表す．彼は式(1.2)を変形し， $\langle \alpha_G \rangle$ を $\langle \alpha_b \rangle$ 及び H_0 を用いて表現することで H_0 が $\langle \alpha_G \rangle$ に及ぼす影響を評価した．しかしながら，各領域のボイド率の初期液位依存性について議論していないこと，彼が用いた気泡塔は塔径に $\langle \alpha_G \rangle$ が依存する領域 $D_H < 200$ mm であること及び $\langle \alpha_G \rangle$ が初期液位に依存する範囲の実験データのみを用いて初期液位依存性を評価しているため，気泡塔のスケールアップの観点からボイド率の初期液位依存性が十分に議論されているとは言い難い．

1.2.3 液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響

実機気泡塔ではオイルなどの水と比較して高粘度の液相が用いられることが多い[19]．従って，液相粘度がボイド率に及ぼす影響の把握が重要であり，多くの研究例が存在する[20-30]．非均質気泡流において液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響の一例を図 1.6 に示す．ここで， $\langle \alpha_G \rangle^*$ は水空気系におけるボイド率で規格化したボイド率， μ_L^* は水の粘度で規格化した液相粘度を表す．また，表 1.1 に図中に示した研究における実験条件を示す． $\mu_L^* \leq 3$ mPa・s において μ_L^* 増加に伴い $\langle \alpha_G \rangle^*$ は増加し， $\mu_L^* \geq 3$ mPa・s において μ_L^* 増加に伴い $\langle \alpha_G \rangle^*$ は減少する．低粘度においては抗力の増加がボイド率に及ぼす影響が，気泡合体がボイド率に及ぼす影響より優位に働くことで，気泡上昇速度が低下しボイド率が増加すると考えられている[31]．一方，高粘度においては気泡合体がボイド率に及ぼす影響が，抗力がボイド率に及ぼす影響より優位に働くことで，塔内の平均気泡径が増加し気泡上昇速度が増加することでボイド率が減少すると考えられている[31]．既存の実験結果は定

性的には一致するが、定量的には殆ど一致しない。この要因として、ボイド率の測定方法及び塔径の違いが考えられる。Kuncova と Zahradnik[27]及び Xing ら[28]は2点間の圧力損失を測定し、ボイド率を算出している。この測定方法はボイド率の鉛直方向分布の影響を受けるため、塔内平均ボイド率の液相粘度依存性の評価には適していない。また、既存の研究の殆どは塔径が 200 mm 未満の気泡塔を用いてボイド率を測定しているため、殆どの実験データは塔径の影響を受けている。以上より、液相粘度が塔内平均ボイド率に及ぼす影響については系統的知見が未だ得られていない。また、初期液位がボイド率の粘度依存性に及ぼす影響を調べた研究は極めて少なく、Ruzicka ら[29]が $200 \leq H_0 \leq 800$ mm において液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響を調べているのみである。このため、ボイド率が初期液位に依存しない範囲において液相粘度がボイド率に及ぼす影響は未だ調べられていない。

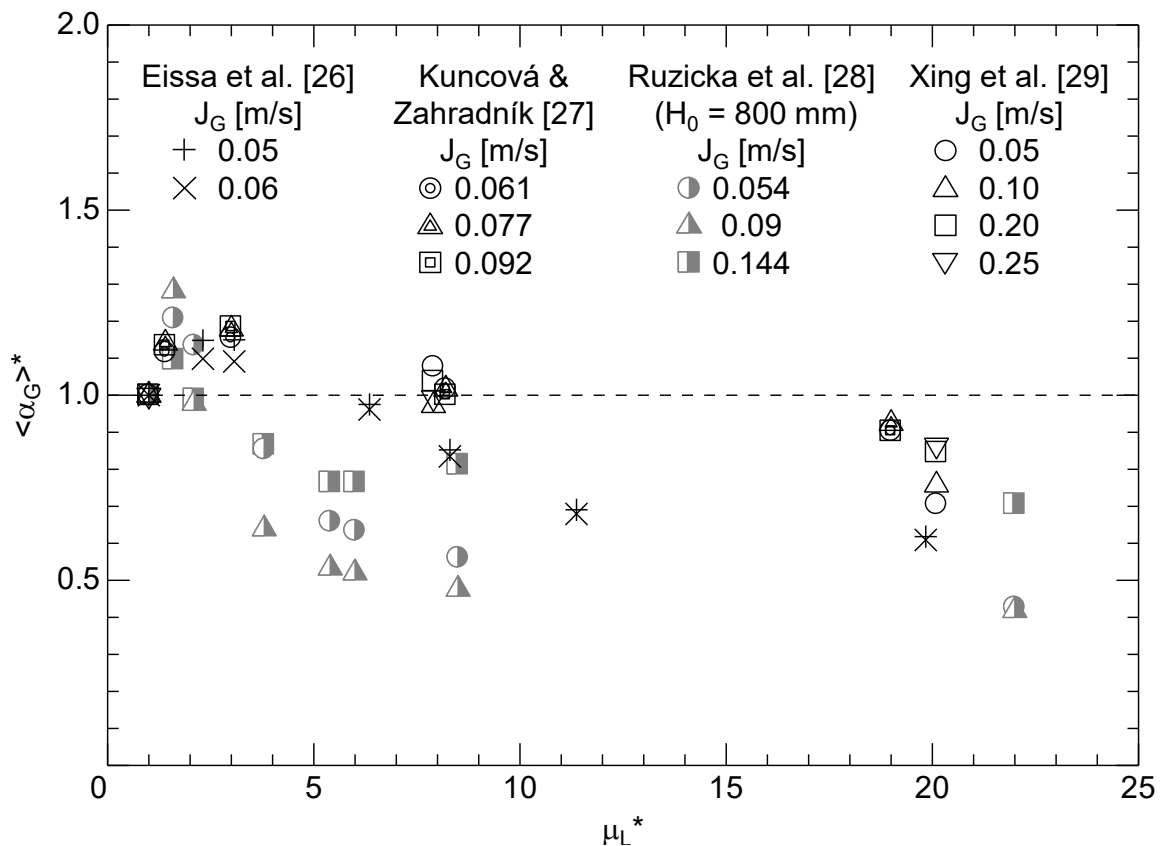


図 1.6 液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響

表 1.1 液相粘度がボイド率に及ぼす影響を調べた研究

	μ_L [mPa·s]	D_H [mm]	H_0 [mm]	J_G [m/s]	d_0 [mm]	Measurement method of gas holdup
Eissa et al. (1975)	1-39.41	200	-	0.005- 0.06	2	Aeration height
Kuncová & Zahradník (1995)	1-110	152	500	0.009- 0.092	1.6	Pressure profile method
Ruzicka et al. (2003)	1-22	140	200- 800	0.024- 0.144	0.5	Aeration height
Xing et al. (2013)	1-39.6	190	-	0.01-0.3	1	Pressure profile method

1.2.4 大気泡が塔内流動に及ぼす影響

気泡塔設計において、塔内平均ボイド率は主に実験相関式[32, 33]を用いて推算され、経験に頼った設計が行われてきた。しかしながら、実験相関式は実機とは異なる物性、温度、圧力条件、または、塔径が 200 mm 未満の気泡塔において得られた実験データを基に作成されたものが多い。このため、実験相関式を実機の設計へ適用する際にはその推算精度が問題とされてきた[34]。そこで、現在では数値計算を活用した気泡塔設計が進められており、精度良い数値計算技術の開発が重要課題となっている。工業的に利用される気泡塔内の流動の多くは非均質気泡流であり[35]、気泡合体・分裂により気泡径分布の幅は大きい流れとなる。このため非均質気泡流数値計算には、幅広い気泡径を扱える多流体モデルが適している。小嶋[36]は気泡合体・分裂を考慮した多流体モデルを用いて非均質気泡流の数値計算を行い、 $J_G = 0.020$ 及び 0.034 m/s の気泡塔内流動を良好に予測している。非均質気泡流において、大気泡の存在は塔内流動を理解する上で重要な因子であると考えられる。Sasaki ら[37]は塔径 200 mm の気泡塔を用いて非均質気泡流の流動を観察し、気相体積流束増加に伴い形成される大気泡の大きさは増大し、塔径規模の大気泡が生じることを報告している。このため、気相体積流束増加に伴い大気泡が流動に及ぼす影響は大きくなると推測される。従って、数値予測精度の向上を図る上で、高気相体積流束における大気泡群のボイド率を把握しておくことが重要である。これまでに様々な

パラメータが大気泡群のボイド率に及ぼす影響が調べられてきたが[38-52]，既存の研究においては初期液位及び塔径が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響がほとんど考慮されておらず，高気相体積流束において初期液位や液相粘度が大・小気泡群のボイド率に及ぼす影響に関する系統的なデータは未だに得られていない．

1.3 本研究の目的と方法

本研究では，非均質気泡流において初期液位，気相体積流束及び液相粘度が塔内平均ボイド率及び大気泡群のボイド率に及ぼす影響に関する実験的知見の取得と理解を目的とする．

まず，水-空気系を対象とし，ボイド率の塔径依存性が無くなる塔径， $D_H = 200$ mm の気泡塔を用いて広範囲の初期液位における気泡塔内平均ボイド率の実験データを取得する．また，点電極プローブを用いて局所ボイド率分布を取得し，初期液位が流動構造に及ぼす影響を検討する．得られた流動構造の知見に基づきボイド率の合理的モデル化を試みる．

1.2.3 項に示したように，代表的な既存の研究において得られた液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響は，それぞれ定性的には一致するが，定量的には一致しない．この要因として，ボイド率が塔径に依存する塔径 200 mm 未満の気泡塔を用いていること，気泡塔内平均ボイド率の測定方法が不適切であることを指摘した．そこで本研究では， $D_H = 200$ mm の気泡塔において画像処理により得られた通気時の液面高さをを用いて塔内平均ボイド率を算出し，種々の液相粘度，初期液位及び気相体積流束における気泡塔内平均ボイド率の実験データを取得する．また，水-空気系用として提案したボイド率相関式に粘度効果の導入を試みる．

気泡塔内の大・小気泡群のボイド率を取得する手法に Dynamic Gas Disengagement (DGD)法[53]がある．DGD 法では，気相供給を急停止した後の液面高さの減少速度を測定し，上昇速度に大きな差がある大・小気泡群のボイド率を決定する．本研究では，種々の初期液位及び液相粘度において大・小気泡群のボイド率を実験的に調べる．

1.4 本論文の構成

本論文は5章より構成される。以下に各省の概要をまとめる。

第1章では、背景、気泡塔内気泡流の流動様式及び既存の研究において初期液位をパラメータとした平均ボイド率の実験的知見の不足に関して述べ、本研究の目的を示した。

第2章では、平均ボイド率に及ぼす塔径の影響がない塔径、 $D_H = 200 \text{ mm}$ の水-空気系気泡塔において、幅広い初期液位及び気相体積流束における気泡塔内平均ボイド率を実験的に調べる。次に、局所ボイド率の測定値を基に初期液位及び気相体積流束が流動構造に及ぼす影響を把握する。また、流動構造に基づいたボイド率の合理的モデル化を試みる。

第3章では、 $D_H = 200 \text{ mm}$ の気泡塔を用いて種々の液相粘度、初期液位及び気相体積流束における気泡塔内平均ボイド率を測定し、液相粘度がボイド率に及ぼす影響を調べる。さらに、第2章において提案した水-空気系気泡塔内平均ボイド率相関式に液相粘度の影響を考慮する方法を検討する。

第4章では、 $D_H = 200 \text{ mm}$ の気泡塔において、高気相体積流束、種々の初期液位及び液相粘度における大・小気泡群のボイド率を実験的に調べる。得られた実験データを基に初期液位、気相体積流束、液相粘度が大・小気泡群の体積流束及びボイド率に及ぼす影響を考察する。

第5章では、以上の結果を総括し、本論文の結論を述べる。

第 1 章の参考文献

- [1] Kantarci, N., Borak, F., Ulgen, K.O., Bubble column reactors, *Process Biochem* 40, pp. 2263–2283 (2005).
- [2] 上山惟一, 気泡塔・三相流動層実用ハンドブック, アイピーシー (1993).
- [3] 柘植秀樹, 海野肇, 「泡」技術-使う, 造る, 排除する, 工業調査会 (2004).
- [4] 佐々木翔平, 気泡塔内ガスホールドアップに関する研究, 神戸大学博士論文 (2017).
- [5] Hyndman, C.L., Larachi, F., Guy, C., Understanding gas-phase hydrodynamics in bubble columns: a convective model based on kinetic theory, *Chem. Eng. Sci.* 52, pp. 63–77 (1997).
- [6] Deckwer, W., Louls, Y., Zald, A., Ralek, M., Hydrodynamic properties of the Fischer-Tropsch slurry process, *Ind. Eng. Chem. Process. Des. Dev.* 19, pp. 699–708 (1980).
- [7] Thorat, B.N., Joshi, L.B., Regime transition in bubble columns: experimental and predictions, *Exp. Therm. Fluid Sci.* 28, pp. 423–430 (2004).
- [8] Besagni, G., Di Pasquali, A., Gallazzini, L., Gottardi, E., Colombo, L.P.M., Inzoli, F., The effect of aspect ratio in counter-current gas-liquid bubble columns: Experimental results and gas holdup correlations, *Int. J. Multiph. Flow* 94, pp. 54–78 (2017).
- [9] Chen, R.C., Reese, J., Fan, L.S., Flow structure in a three-dimensional bubble column and three-phase fluidized bed, *AIChE J* 40, pp. 1093–1104 (1994).
- [10] Ruzicka, M.C., Zahradník, J., Drahoš, J., Thomas, N.H., Homogeneous-heterogeneous regime transition in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.* 56, pp. 4609–4626 (2001).
- [11] Leonard, C., Ferrasse, J.H., Boutin, O., Lefevre, S., Viand, A., Bubble column reactors for high pressures and high temperatures operation, *Chem Eng Res Des* 100, pp. 391–421 (2015).
- [12] Wilkinson, P.M., Spek, A.P., van Dierendonck, L.L., Design parameters estimation for scale-up of high-pressure bubble columns, *AIChE J* 38, pp. 544–554 (1992).
- [13] Thorat, B.N., Shevade, A.V., Bhilegaonkar, K.N., Aglawe, R.H., U Parasu Veera, Thakre, S.S., Pandit, A.B., Swant, S.B., Joshi, J.B., Effect of sparger design and height to diameter ratio on fractional gas hold-up in bubble columns, *Trans. Inst. Chem. Engrs.*

- 76, pp.823–834 (1998).
- [14] Godbole, S.P., Joseph, S., Shah, Y.T., Hydrodynamics and mass transfer in a bubble column with an organic liquid, *Can J Chem Eng* 62, pp. 440–445 (1984).
- [15] Vandu, C.O., Krishna, R., Volumetric mass transfer coefficients in slurry bubble columns operating in the churn-turbulent flow regime, *Chem. Eng. Sci.* 59, pp. 5417–5423 (2004).
- [16] Guan, X., Gao, Y., Tian, Z., Wang, L., Cheng, Y., Li, X., Hydrodynamics in bubble columns with pin-fin tube internals, *Chem Eng Res Des* 102, pp. 196–206 (2015).
- [17] Yamashita, F., Effect of liquid depth, column inclination and baffle plates on gas holdup in bubble columns, *J. Chem. Eng. Japan* 18, pp.349–353 (1985).
- [18] Yamashita, F., Effect of clear liquid height and gas inlet height on gas holdup in a bubble column, *J. Chem. Eng. Japan* 31, pp. 285–287 (1998).
- [19] 小島博光, 気泡塔の工業的使用状況, 化学装置 (2010).
- [20] Olivieri, G., Russo, M.E., Simeone, M., Marzocchella, A., Salatino, P., Effects of viscosity and relaxation time on the hydrodynamics of gas–liquid systems, *Chem. Eng. Sci.* 66, pp. 3392–3399 (2011).
- [21] Yoshida, F., Akita, K., Performance of gas bubble columns: volumetric liquid-phase mass transfer coefficient and gas holdup, *AIChE J* 11, pp. 9–13 (1965).
- [22] Hwang, S.J., Cheng, Y.L., Gas holdup and liquid velocity in three-phase internal-loop airlift reactors, *Chem. Eng. Sci.* 52, pp. 3949–3960 (1997).
- [23] Zahradník, J., Fialova, M., Ruzicka, M., Drahoš, J., Kaštanek, F., Thomas, N. H., Duality of the gas-liquid flow regimes in bubble column reactors, *Chem. Eng. Sci.* 52, pp. 3811–3826 (1997).
- [24] Yang, J.H., Yang, J.I., Kim, H.J., Chun, D.H., Lee, H.T., Jung, H., Two regime transitions to pseudo-homogeneous and heterogeneous bubble flow for various liquid viscosities, *Chem Eng Process* 49, pp. 1044–1050 (2010).
- [25] Mouza, A.A., Dalakoglou, G.K., Paras, S.V., Effect of liquid properties on the performance of bubble column reactors with fine pore spargers, *Chem. Eng. Sci.* 60, pp. 1465–1475 (2005).
- [26] Eissa, S.H., Schügerl, K., Holdup and backmixing investigations in cocurrent and

- countercurrent bubble columns, *Chem. Eng. Sci.* 30, pp.1251–1256 (1975).
- [27] Kuncová, G., Zahradník, J., Gas holdup and bubble frequency in a bubble column reactor containing viscous saccharose solutions, *Chem Eng Process* 34, pp.25–34 (1995).
- [28] Ruzicka, M.C., Drahoš, J., Mena, P.C., Teixeira, J.A., Effect of viscosity on homogeneous-heterogeneous flow regime transition in bubble columns, *Chem. Eng. J.* 96, pp.15–22 (2003).
- [29] Xing, C., Wang, T., Wang, J., Experimental study and numerical simulation with a coupled CFD–PBM model of the effect of liquid viscosity in a bubble column, *Chem. Eng. Sci.* 95, pp.313–322 (2013).
- [30] Kim, J.H., Kim, B., Nho, N.S., Go, K.S., Kim, W., Bae, J.W., Jeong, S.W., Epstein, N., Lee, D.H., Gas holdup and hydrodynamic flow regime transition in bubble columns, *J Ind Eng Chem* 56, pp.450–462 (2017).
- [31] Besagni, G., Inzoli, F., Guido, G.D., Pellegrini, L.A., The dual effect of viscosity on bubble column hydrodynamics, *Chem. Eng. Sci.* 158, pp.509–538 (2017).
- [32] Akita, K., Yoshida, F., Gas holdup and volumetric mass transfer coefficient in bubble columns, *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.* 12, pp. 76–80 (1973).
- [33] Koide, K., Takazawa, A., Komura, M., Matsunaga, H., Gas holdup and volumetric liquid–phase mass transfer coefficient in solid–suspended bubble columns, *J. Chem. Eng. Japan.* 17, pp. 459–466 (1984).
- [34] Tomiyama, A., The state of the art and perspective of computational bubble dynamics, *Trans. JSME, B* 66, 1618–1626(2000).
- [35] Krishna, R., Ellenberger, J., Gas holdup in bubble column reactors operating in the churn-turbulent flow regime, *AIChE J* 42, pp. 2627–2634 (1996).
- [36] 小嶋真平, スラリー気泡塔内流れに関する研究, 神戸大学博士論文 (2015).
- [37] Sasaki, S., Uchida, K., Hayashi, K., Tomiyama, A., Effects of Liquid Height on Gas Holdup in Air–Water Bubble Column, *Exp. Therm. Fluid Sci.* 72, pp. 67–74 (2016).
- [38] Ellenberger, J., Krishna, R., A unified approach to the scale-up of gas–solid fluidized bed and gas–liquid bubble column reactors, *Chem. Eng. Sci.* 49, pp. 5391–5411 (1994).
- [39] Krishna, R., de Swart, J.W.A., Ellenberger, J., Martina, G.B., Maretto, C., Gas holdup in slurry bubble columns: effect of column diameter and slurry concentrations, *AIChE*

- J 43, pp. 311–316 (1997).
- [40] Krishna, R., Urseanu, M. I., de Swart, J.W.A., Ellenberger, J., Gas hold-up in bubble columns: Operation with concentrated slurries versus high viscosity liquid, *Can J Chem Eng* 78, pp. 442–448 (2000).
- [41] Krishna, R., van Baten, J. M., Urseanu, M.I., Ellenberger, J., Design and scale up of a bubble column slurry reactor for Fischer–Tropsch synthesis, *Chem. Eng. Sci.* 56, pp. 537–545 (2001).
- [42] Li, H., Prakash, A., Influence of slurry concentrations on bubble population and their rise velocities in three-phase slurry bubble column, *Powder Technol* 113, pp. 158–167 (2000).
- [43] Pjontek, D., Hackman, L.P., Landry, J., McKnight, C.A., Macchi, A., Effect of a dispersed immiscible liquid phase on the hydrodynamics of a bubble column and ebullated bed, *Chem. Eng. Sci.* 66, pp. 2224–2231 (2011).
- [44] Xing, C., Wang, T., Wang, J., Experimental study and numerical simulation with a coupled CFD–PBM model of the effect of liquid viscosity in a bubble column, *Chem. Eng. Sci.* 95, pp. 313–322 (2013).
- [45] Yang, J.H., Yang, J.I., Kim, H.J., Chun, D.H., Lee, H.T., Jung, H., Two regime transitions to pseudo-homogeneous and heterogeneous bubble flow for various liquid viscosities, *Chem. Eng. Process.: Process Intensif.* 49, pp. 1044–1050 (2010).
- [46] Behkish, A., Lemoine, R., Sehabiague, L., Oukaci, R., Morsi, B. I., Gas hold-up and bubble size behavior in a large-scale slurry bubble column reactor operating with an organic liquid under elevated pressures and temperatures, *Chem. Eng. J.* 128, pp. 69–84 (2007).
- [47] Cooke, M., Heggs, P.J., Rodgers, T.L., The effect of solids on the dense phase gas fraction and gas–liquid mass transfer at conditions close to the heterogeneous regime in a mechanically agitated vessel, *Chem Eng Res Des* 86, pp. 869–882 (2008).
- [48] Fransolet, E., Crine, M., Marchot, P., Toye, D., Analysis of Gas Holdup in Bubble Columns with Non-Newtonian Fluid Using Electrical Resistance Tomography and Dynamic Gas Disengagement Technique, *Chem. Eng. Sci.* 60, pp. 6118–6123 (2005).
- [49] Grund, G., Schumpe, A., Deckwer, W.D., Gas-liquid mass transfer in a bubble column

- with organic liquids, Chem. Eng. Sci. 47, pp. 3509–3516 (1992).
- [50] Jin, H., Yang, S., Zhang, T., Tong, Z., Bubble behaviour of a large-scale bubble column with elevated pressure, Chem. Eng. Technol. 27, pp. 1007–1013 (2004)
- [51] Hyndman, C.L., Larachi, F., Guy, C., Understanding gas-phase hydrodynamics in bubble columns: a convective model based on kinetic theory, Chem. Eng. Sci. 52, pp. 63–77 (1997).
- [52] Jordan, U., Saxena, A.K., Schumpe, A., Dynamic gas disengagement in a high-pressure bubble column, Can J Chem Eng 81, pp. 491–498 (2003).
- [53] Sriram, K., Mann, R., Dynamic Gas Disengagement: a New Technique for Assessing the Behavior of Bubble Columns, Chem. Eng. Sci. 32, pp. 571–580 (1977).

第 2 章

水-空気系気泡塔において初期液位がボイド率に及ぼす影響

2.1 緒言

気泡塔型反応装置は、化学、石油化学、生化学等の様々な分野で利用される装置である。気泡塔のスケールアップのために初期液位(気相流入前の液位)や塔径のような幾何学的パラメータがボイド率に及ぼす影響について検討されてきた[1-9]。初期液位及び塔径がボイド率に及ぼす影響に関する研究は、初期液位及び塔径の影響をそれぞれ独立に検討できていないものが多い。一方、佐々木[9]は初期液位及び塔径の影響を独立に検討しており、塔径は 200 mm 以上、初期液位は 2200 mm 程度以上においてそれぞれ塔内平均ボイド率に影響を及ぼさないことを報告している。しかしながら、佐々木の初期液位 1500 mm 以上におけるボイド率のデータ点数は、ボイド率の初期液位依存性を明確に捉えるには不十分である。

初期液位が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響は、気泡塔内のボイド率分布に依存する。気泡塔内気泡流の流動構造は、塔底部のスパージャー領域、中間部のバルク領域、塔上部のフォーム領域の 3 つの領域に分割できることが経験的に知られている。しかしながら、これらの領域のボイド率や長さについて詳しく調べた研究例は少ない。加えて、各領域のボイド率や長さに関する過去の研究は、塔径が塔内平均ボイド率に影響を及ぼすような小さな気泡塔を用いて実施されている[3]。

本章では、平均ボイド率に及ぼす塔径の影響がない塔径 200 mm の水-空気系気泡塔において、幅広い初期液位及び気相体積流束における気泡塔内平均ボイド率の実験データベースを構築する。次に、局所ボイド率の測定値を基に初期液位及び気相体積流束が各領域のボイド率及び長さ に及ぼす影響を把握する。また、流動構造に基づいた気泡塔内平均ボイド率のモデル化を試みる。

2.2 実験装置及び測定方法

2.2.1 実験装置及び実験方法

実験装置の概略を図 2.1 に示す。円筒型気泡塔には流れの可視化のため透明アクリル樹脂製容器を用いた。塔内径 D_H は 200 mm，塔高さは 5500 mm とした。ここで、図中の x [mm] 及び y [mm] は各々塔中央からの水平方向及び奥行き方向を表し， z [mm] は散気板上面からの高さである。塔底部には気泡を生成させるための孔を有する板厚 5 mm のステンレス鋼製散気板(図 2.2)を取り付けた。塔断面に占める散気板孔の総面積割合は 0.18% である。気泡塔内流動は均質気泡流と非均質気泡流に大別される[8, 10]。流動状態は気相体積流束に強く依存し，低気相体積流束においては均質気泡流，高気相体積流束においては非均質気泡流が形成される[11, 12]。散気板の孔径 d_h が 1 mm 程度以上の場合にはいずれの気相体積流束においても流動状態は非均質気泡流が形成される[2, 11, 13]。本研究では純非均質気泡流を対象とするため d_h を 1.4 mm とした。また，孔間隔は 25 mm，孔数は 37 とし，三角格子状に孔間距離 25 mm で配置した。

気泡塔にあらかじめ常温(19 ± 1 °C)・常圧の液相を初期液位の高さまで満たし，コンプレッサー(ANEST IWATA, SLP-1501EB)から供給された空気をエアドライヤ(ANEST IWATA, RDG-150C)，エアタンク及び散気板を介して気泡として塔内に流入させた。液温は温度計(熱研, SN3000, 精度 ± 0.5 °C)により測定した。初期液位 H_0 は $400 \leq H_0 \leq 4400$ mm とした。気相体積流量 Q_G [m³/s] は 2 種の流量計(日本フローセル, FLT-H ($1.4 \times 10^{-3} - 6.9 \times 10^{-3}$ m³/s), フルスケール精度 ± 2.5 % ; FLT-H ($2.8 \times 10^{-3} - 13.9 \times 10^{-3}$ m³/s), フルスケール精度 ± 2.5 %)を用いて測定した。気相体積流束 J_G [m/s] は次式で定義される。

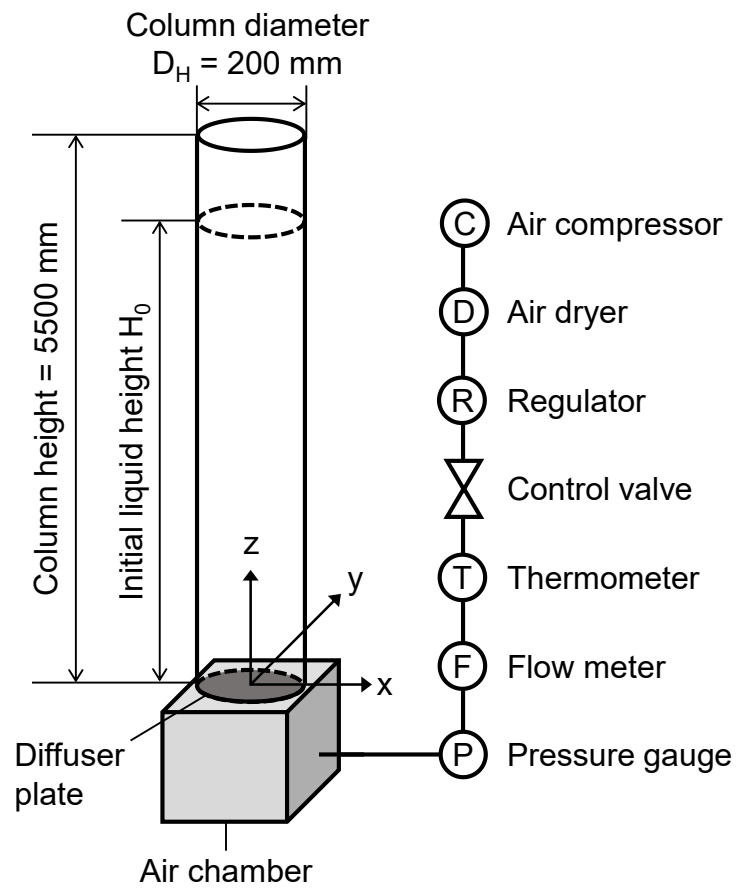


図 2.1 実験装置

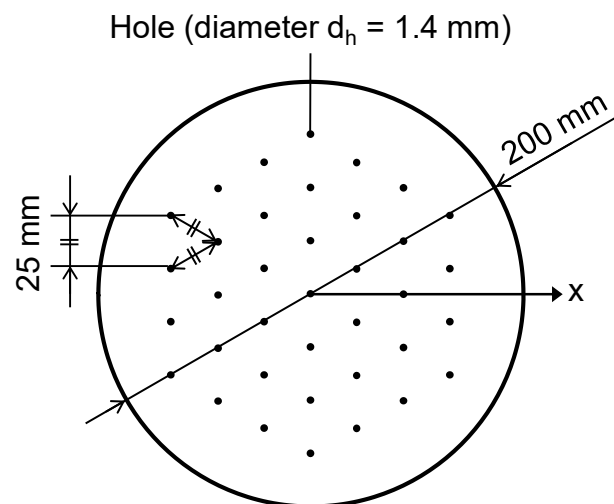


図 2.2 散気板

$$J_G = \frac{Q_G}{A} \quad (2.1)$$

ここで、 A は気泡塔の断面積 [m^2]である。散気板より流入した気体は塔内を上昇するに伴い液相の静圧の減少により膨張する。このため、 J_G は z に依存する。本研究では $z = H_0/2$ における Q_G に対して J_G を定義した[2, 14]。 Q_G は流量計の読み値 Q_{GF} [m^3/s]から次式で求めた。

$$Q_G = \frac{P_0}{P_C} \frac{T_C}{T_0} \sqrt{\frac{T_S}{T_F}} Q_{GF} \quad (2.2)$$

ここで、 P_0 は標準状態における圧力(=0.1 MPa)、 P_C は気泡塔内の流量定義位置における静圧 [Pa]、 T_C は流量定義位置における気相温度 [K]、 T_0 は標準状態における気相温度(=273 K)、 T_S は流量計固有の基準温度(=293 K)、 T_F は流量計における気相温度 [K]である。 T_C は液温(=292 K)と同じと仮定した。 P_C は次式で評価した。

$$P_C = P_0 + \frac{1}{2} \rho_L g H_0 \quad (2.3)$$

ここで、 ρ_L は液相密度 [kg/m^3]、 g は重力加速度 [m/s^2]である。工業的に使用されている気泡塔では J_G は様々な値で設定される。一例として、生物反応槽では $O(10^{-2})$ [m/s] [15]、Fischer-Tropsch 合成反応塔では $O(10^{-1})$ [m/s] [16]である。これらの条件を考慮して J_G は $0.06 \leq J_G \leq 0.30 \text{ m/s}$ とした。 J_G の95%信頼区間における不確かさは±5%以内であった。

2.2.2 気泡塔内平均ボイド率の測定方法

高速度ビデオカメラ(IDT, Motion Pro X-3)を用いて自由表面近傍の連続画像を取得した(図 2.3). 空間及び時間分解能は各々0.36 mm/pixel 及び 1/100 s, 露光時間は 550 μ s とした. 気泡塔内平均ボイド率 $\langle\alpha_G\rangle$ は次式で算出した.

$$\langle\alpha_G\rangle = \frac{1}{T} \int_{t_1}^{t_1+T} \frac{\bar{H}(t) - H_0}{\bar{H}(t)} dt \quad (2.4)$$

ここで, t は時間 [s], t_1 は撮影開始時刻 [s], T は撮影時間 [s], $\bar{H}(t)$ は通気時の自由表面高さ(平均液位) [mm]である. $\bar{H}(t)$ の算出手順を以下に述べる.

- (1) 液面近傍のグレースケール画像を取得する (図 2.4(a)).
- (2) 撮影画像を二値化する (図 2.4(b)).
- (3) 領域拡張法[17]により連続した液面のみを取得し, 壁面に付着した液滴等のノイズを除去する (図 2.4(c)).
- (4) x 方向各位置における連続液相の最大高さ $H(x, t)$ を求める (図 2.4(d)).
- (5) $H(x, t)$ を瞬時局所の自由表面高さとし, $H(x, t)$ の x に関する線平均値 $\bar{H}(t)$ を次式により算出する.

$$\bar{H}(t) = \frac{1}{D_H} \int_{-D_H/2}^{D_H/2} H(x, t) dx \quad (2.5)$$

図 2.5 に液面変動が最も激しかった $H_0 = 3000$ mm, $J_G = 0.30$ m/s における $\bar{H}(t)$ 及び $\bar{H}(t)$ の時間平均値を示す. $\bar{H}(t)$ は大きく変化しているが, $\bar{H}(t)$ の時間平均値は $T \sim 15$ s で概ね収束している. そこで, 本研究では十分に収束した値を得るため測定時間は 30 s とした. $0.06 \leq J_G \leq 0.30$ m/s における $\langle\alpha_G\rangle$ の相対標準誤差は $\pm 1.8\%$ であった.

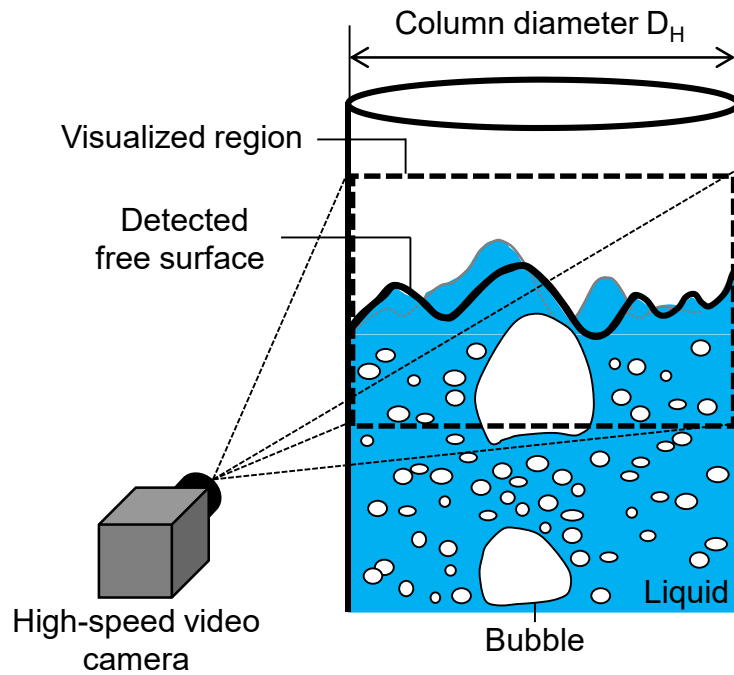


図 2.3 高速度ビデオカメラによる自由表面近傍の撮影

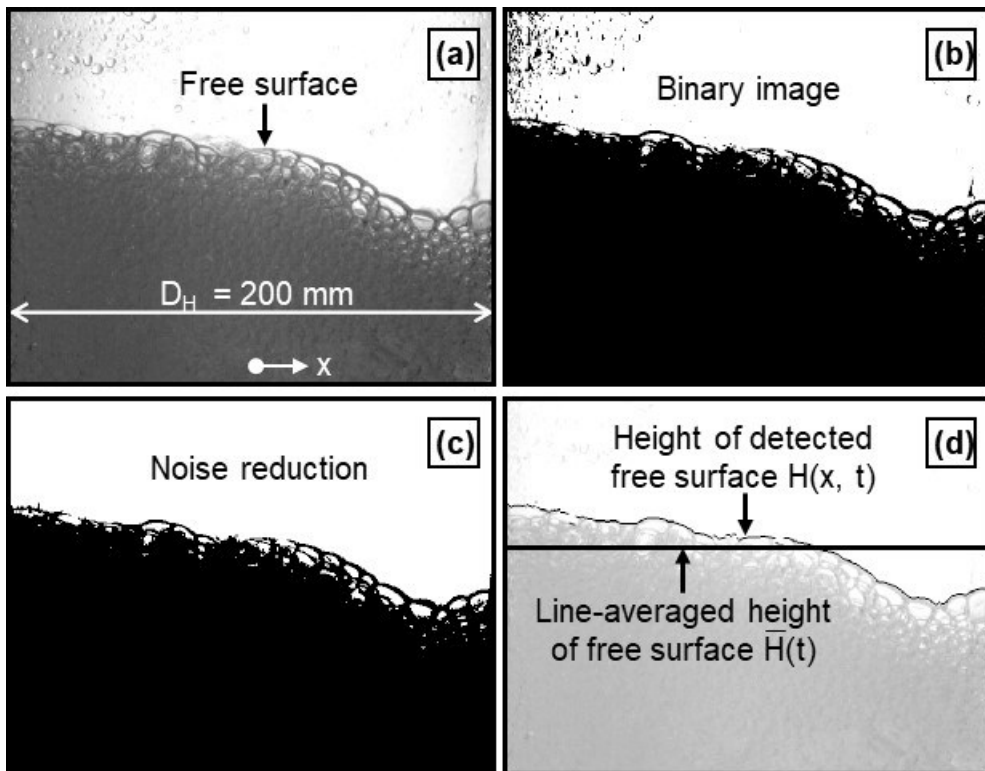


図 2.4 画像処理による $\bar{H}(t)$ の取得

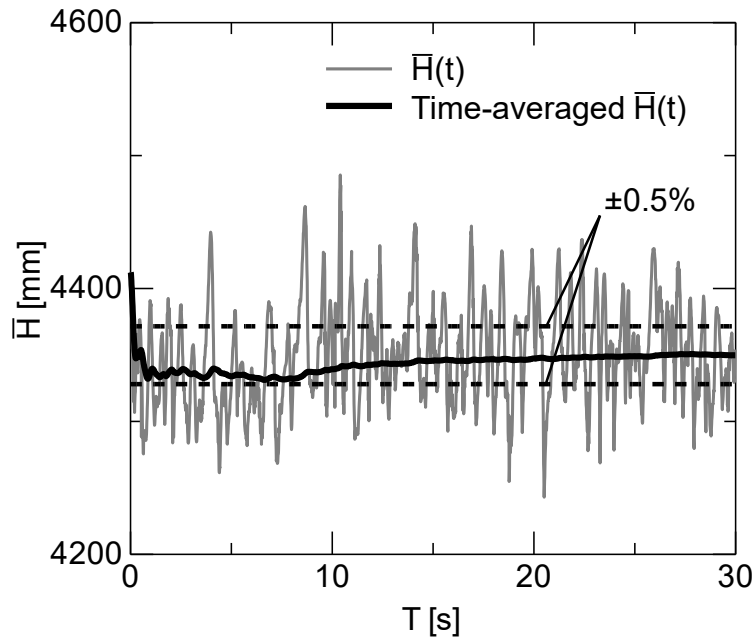


図 2.5 $\bar{H}(t)$ と $\bar{H}(t)$ の時間平均値 ($H_0 = 3000$ mm, $J_G = 0.30$ m/s)

2.2.3 局所ボイド率の測定方法

点電極プローブ法[18, 19]を用いて局所ボイド率 α_G を測定した．点電極プローブ法とは気相と液相の電気伝導度の違いから相検出を行う方法である．図 2.6 に点電極プローブ測定系を示す．この測定系は点電極プローブ，電極，電気回路，データロガー(横河電機，WE7000)及びコンピュータから成る．導線にはんだ付けした白金線(直径 $\phi = 100$ μm)をステンレスパイプに通し，白金線の先端部以外をエナメル塗料で絶縁した．測定精度を向上させるため，白金線先端を電解研磨により鋭利に加工した(図 2.7)．電気回路に接続された電極を，液相と常に接触するように塔内に設置した．図の抵抗部(抵抗値 2 M Ω)にかかる電圧信号はデータロガーを通してパソコンに取り込んだ．SN(Signal to Noise)比の高い信号を得るために，データロガーとプローブの間に抵抗を取り付け，その抵抗値 R [Ω]を調整した．本実験では $R = 3.9$ M Ω で SN 比の高い電圧信号を得られた．

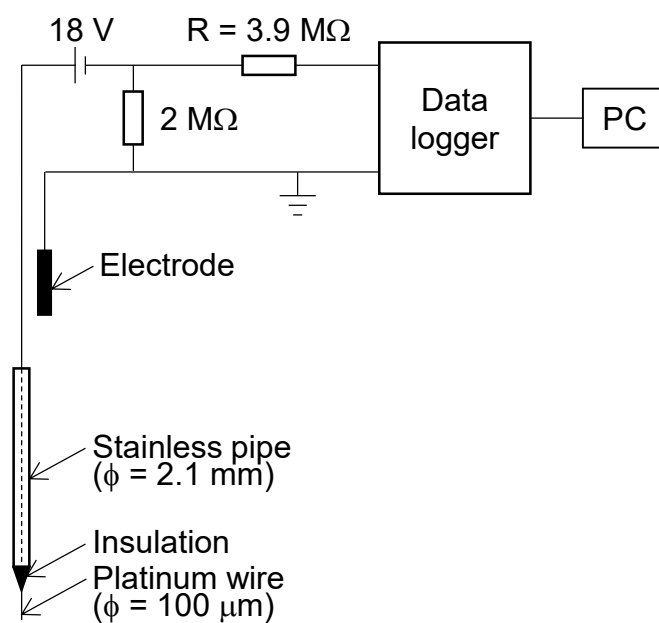


図 2.6 点電極プローブ測定系

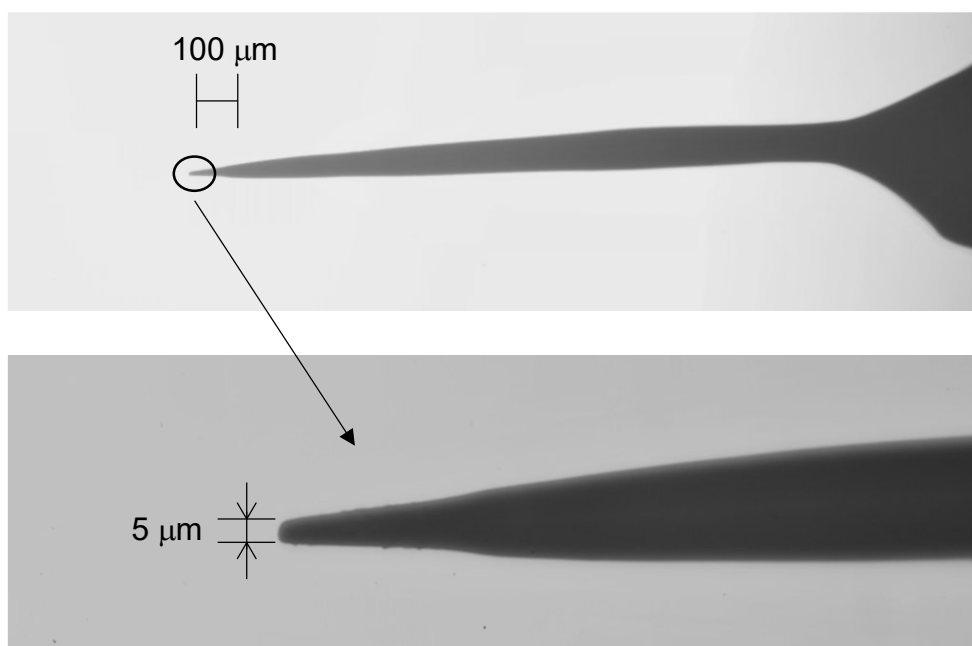


図 2.7 点電極プローブ先端部

α_G の測定位置は $250 \leq z \leq 2487 \text{ mm}$, x 方向は図 2.8 に示すように 11 点とした. 非均質気泡流においては塔径スケールの大規模な液相循環流が形成され, 塔中央部では上昇流, 壁面近傍では下降流が形成される[20]. 塔中央部($|x| < 80 \text{ mm}$)では上昇する気泡を測定するためにプローブを下向きに設置した. 一方で, 壁面近傍では小さな気泡が液相の下降流によって下降するため, 点電極プローブが下向きでは小さな気泡を検出することができない. 従って, 壁面近傍部($|x| \geq 80 \text{ mm}$)では点電極プローブを横向きに設置した.

取得した電圧信号 R_i には信号のノイズや信号の立ち遅れが含まれている. そのため, 正確なボイド率を得るためには, この R_i を正しく二値化信号 B_i に変換する相判別アルゴリズムが必要である. 本研究では, 以下の多重しきい値法[21]を用いた.

- (1) 総測定時間 T の間, 一定の時間間隔 Δt で測定した $N (= T/\Delta t + 1)$ 個の電圧信号 R_i ($i = 1-N$)を準備する. 信号 R_i の最大値 R_{max} および最小値 R_{min} を検出する. 全点の B_i ($i = 1-N$) を 0 にする.
- (2) 信号 R_i を t の正方向に走査する. このとき, 最後に検出した最大値 R_H , 最後に検出した最小値 R_L とその時刻 i_H, i_L を記憶する.
- (3) ある時刻の信号 R_i が $|R_i - R_L|/(R_{max} - R_{min}) < p_1$ を満たす場合, この信号を立ち上がりとみなして $B_i = 0$ を $B_i = 1$ に変更する. ここで p_1 は立ち上がり判定しきい値である. 以降, 信号が立ち下がるまでの点の B_i は 1 にする.
- (4) ある時刻の信号 R_i が $|R_H - R_i|/(R_{max} - R_{min}) < p_2$ を満たす場合, 信号を立ち下がったものとみなして $B_i = 0$ とする. ここで p_2 は立ち下がり判定のしきい値である.
- (5) ある時刻の信号 R_i が $|R_i - R_L|/(i - i_L) < p_3$ を満たす場合, R_L を再設定する. ここで p_3 は勾配のしきい値である. この処理はノイズによる相判別誤差を防ぐためのものである.

信号の立ち上がり, 立ち下がり, 勾配のしきい値を決定するパラメータ p_1, p_2, p_3 は 0.009, 0.03, 0.0035 とした. 図 2.9 に本手法を用いて信号を処理した結果を示す. 本手法及び設定したしきい値により良好に気相を検出できる.

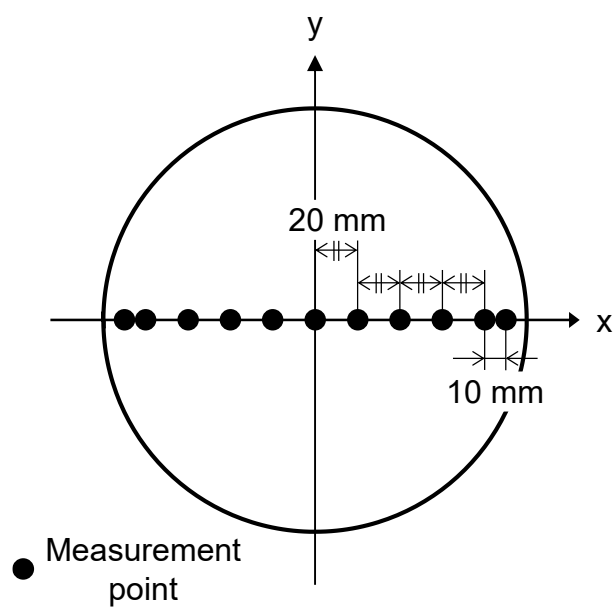


図 2.8 局所ボイド率の測定位置

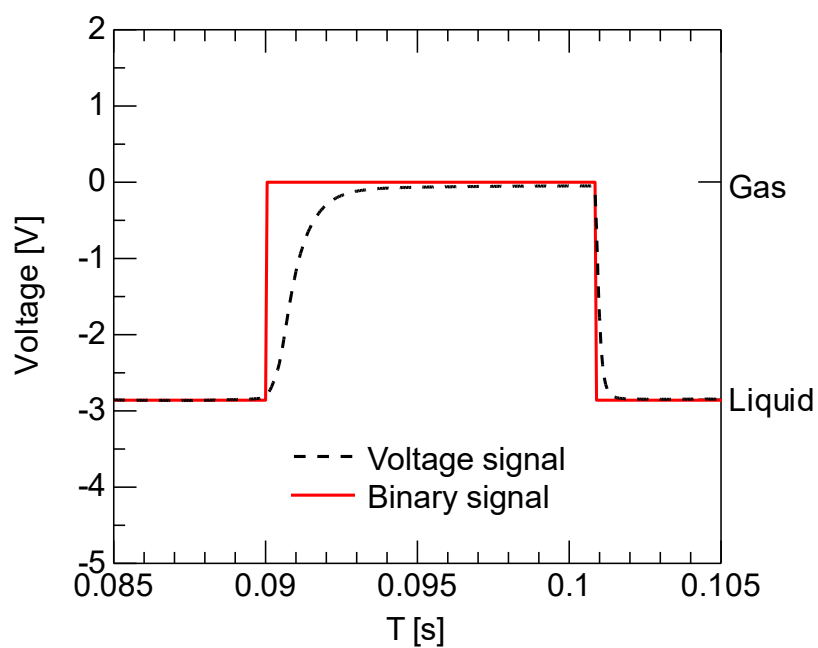


図 2.9 電圧信号及び二値化信号

二値化信号 B_i に時間平均を施すことで α_G を算出した.

$$\alpha_G = \frac{1}{T} \sum_{i=1}^N B_i \Delta t \quad (2.6)$$

$H_0 = 2000 \text{ mm}$, $J_G = 0.10 \text{ m/s}$, $x = 0 \text{ mm}$, $y = 0 \text{ mm}$, $z = 400 \text{ mm}$ における α_G と測定時間の関係を図 2.10 に示す. α_G は $T \sim 1000 \text{ s}$ において概ね収束している. 収束に要する T は測定条件によって異なり, 本実験では α_G が $\pm 0.5\%$ の範囲内に収まるように T を $1000\text{--}1500 \text{ s}$ とした. サンプルングレートは 20 kHz とした. 本実験方法における α_G の相対標準誤差は $\pm 2.4\%$ であった.

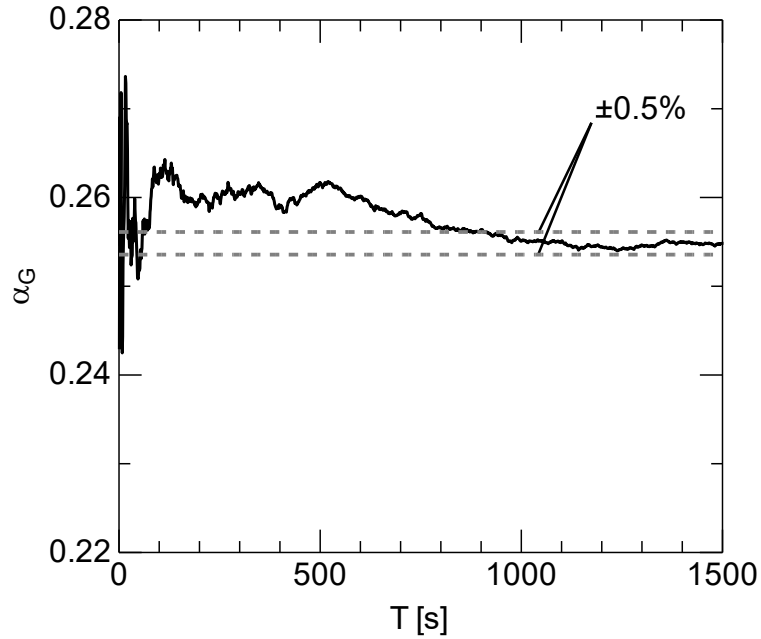


図 2.10 時間平均局所ボイド率

($H_0 = 2000 \text{ mm}$, $J_G = 0.10 \text{ m/s}$, $x = 0 \text{ mm}$, $y = 0 \text{ mm}$, $z = 400 \text{ mm}$)

2.2.4 区間平均ボイド率の測定方法

微差圧トランスデューサ(Valdyne Engineering, DP45, 測定レンジ 0–8.6 kPa, フルスケール誤差 $\pm 0.25\%$)を用いて圧力損失 ΔP を測定した。ここで, P は圧力である。気泡塔側面に測定孔(直径 $\phi = 8.6$ mm)を設け, 各測定点と微差圧トランスデューサをポリウレタンチューブ(外径 4 mm, 内径 2.5 mm, TU0425C-20, SMC)で接続し ΔP を測定した。測定時の H_0 は 1000 mm とした。測定区間はその区間内に $\bar{H}/2$ を含むように設定し, $J_G = 0.06$ m/s における測定区間は $z = 400\text{--}600$ mm, $J_G = 0.10\text{--}0.30$ m/s における測定区間は $z = 600\text{--}800$ mm とした。サンプリングレートは 1 kHz とし, 測定時間は 50 s とした。得られた ΔP から下記の式を用いて測定区間内の平均ボイド率 $\langle \alpha_G \rangle$ を算出した。

$$\frac{dP}{dz} = -(1 - \langle \alpha_G \rangle) \rho_L g \quad (2.7)$$

本実験方法における 95%信頼区間における不確かさは $\pm 5.8\%$ であった。

2.3 実験結果及び考察

2.3.1 初期液位が気泡塔内平均及び局所ボイド率に及ぼす影響

図 2.11 に $H_0 = 1000$ mm において観察された気泡塔内流動の一例を示す。気相体積流束 J_G 増加に伴い液面高さは増加し, これは J_G 増加に伴い気泡塔内平均ボイド率が増加することを表す。図中の破線は大気泡の界面を表す。いずれの J_G において大気泡の存在が確認され, 純非均質気泡流が形成されることを確認した。

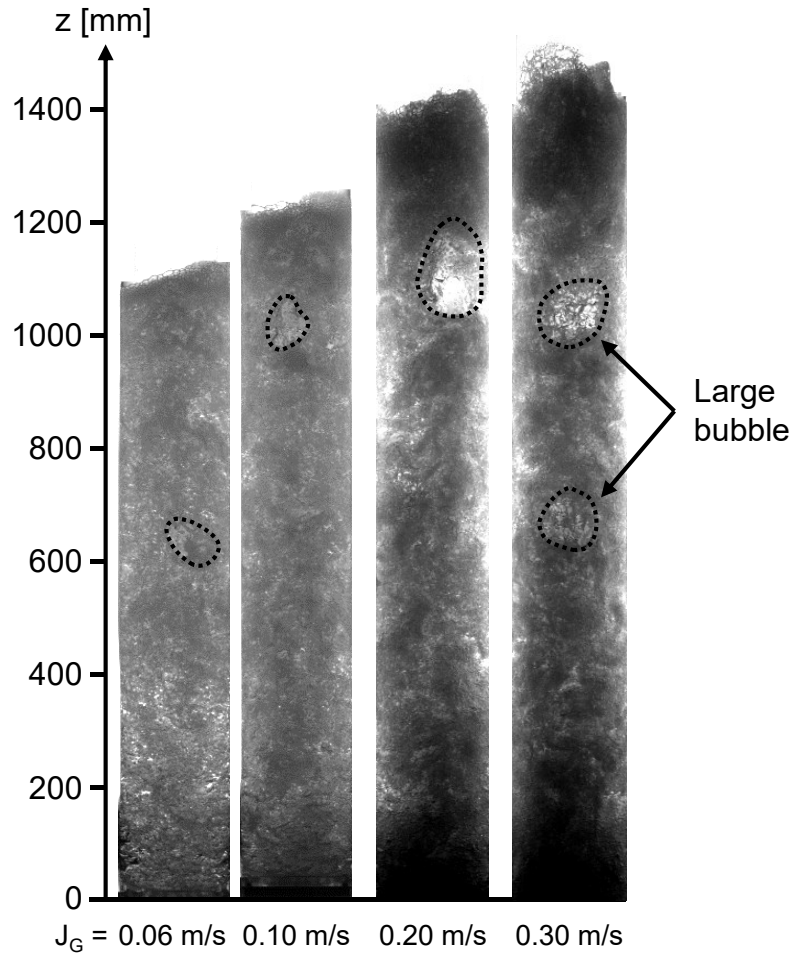


図 2.11 気泡塔内流動($H_0 = 1000$ mm)

図 2.12 に本実験条件で得られた気泡塔内平均ボイド率 $\langle \alpha_G \rangle$ を示す．いずれの J_G においても H_0 の増加に伴い $\langle \alpha_G \rangle$ は減少するが， H_0 増加に伴い $\langle \alpha_G \rangle$ の H_0 依存性は徐々に小さくなり， $\langle \alpha_G \rangle$ は J_G 毎にある一定値に漸近する．佐々木[9]は， $0.05 \leq J_G \leq 0.20$ m/s の範囲では $H_0 \sim 2200$ mm となると H_0 をそれ以上増加させても $\langle \alpha_G \rangle$ は H_0 に依存しなくなると報告している．しかしながら， $1500 < H_0 \leq 2000$ mm において $J_G = 0.06$ m/s では $\langle \alpha_G \rangle$ は概ね一定であるが， $J_G \geq 0.10$ m/s では $\langle \alpha_G \rangle$ は僅かに低下している．従って， $\langle \alpha_G \rangle$ の H_0 依存性が無視できるほど小さくなる H_0 は J_G を用いた関数で表すべきである．

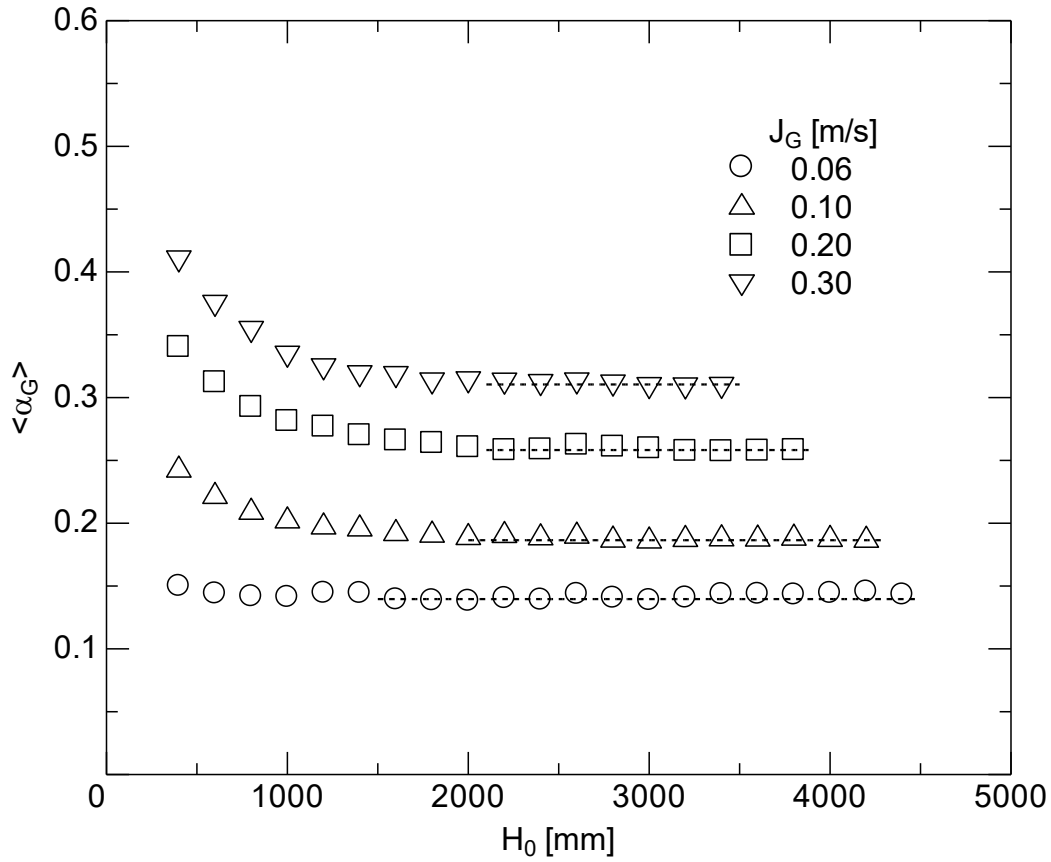
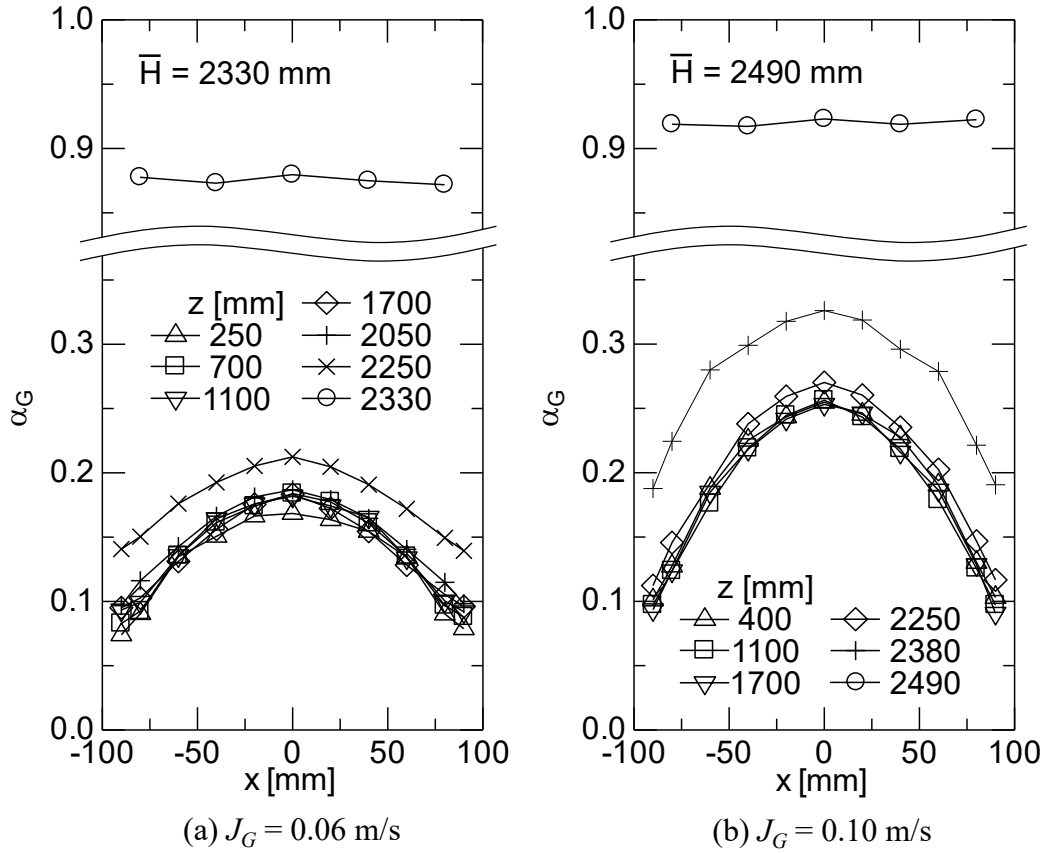


図 2.12 初期液位が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響

図 2.13 に $H_0 = 2000$ mm, $J_G = 0.06$ 及び 0.10 m/s における局所ボイド率 α_G を示す. ここで, $\bar{H}$ は通気時の自由表面高さの時間平均値であり, 図 2.12 に示した $\langle \alpha_G \rangle$ から算出した. $J_G = 0.06$ m/s においては $\bar{H} = 2330$ mm, $J_G = 0.10$ m/s においては $\bar{H} = 2490$ mm である. α_G 分布は $z = \bar{H}$ を除いて釣鐘型の分布となる. これは既存の研究[22]で報告されている非均質気泡流における α_G 分布の傾向と一致し, 本実験条件において非均質気泡流が形成されていることが確認できた. $J_G = 0.06$ m/s の場合は $700 \leq z \leq 2050$ mm, $J_G = 0.10$ m/s の場合は $400 \leq z \leq 1700$ mm において, z 増加に関わらず α_G 分布は概ね一定となる. 気泡合体・分裂頻度が平衡状態に達することで, 十分に発達した流動が形成されたため α_G 分布が概ね一定となったと考えられる. 本研究ではこの α_G 分布が概ね一定となる領域をバルク領域と呼ぶ. 一方, $J_G = 0.06$ m/s, $z = 250$ mm における α_G は, $700 \leq z \leq 2050$ mm における α_G よりも小さい. これは散気板の影響を受けていると考えられる. 本研究ではこの領域をスパージャー領域と呼ぶ.


 図 2.13 局所ボイド率分布($H_0 = 2000 \text{ mm}$)

また $J_G = 0.06 \text{ m/s}$ の場合は $2050 \leq z \leq 2330 \text{ mm}$, $J_G = 0.10 \text{ m/s}$ の場合は $1700 \leq z \leq 2490 \text{ mm}$ の範囲において, z 増加に伴いいずれの x においても α_G は増加し, $z = \bar{H}$ における α_G 分布は平坦となる. 自由表面に近づくにつれて液相の上昇速度が低下し, それに伴い気泡の上昇速度が低下することで気泡数が増加し, α_G が増加すると思われる. 本研究ではこの α_G が増加する領域をフォーム領域と呼ぶ. この z 増加に伴う α_G 分布の傾向は $H_0 = 600$ 及び 1000 mm においても確認できた(付録 A.1).

得られた α_G 分布から各高さにおける断面平均ボイド率 $\bar{\alpha}_G$ を以下の式を用いて算出した.

$$\bar{\alpha}_G = \frac{4}{\pi D_H^2} \int_0^{D_H/2} 2\pi \alpha_{Gm}(r) r dr \quad (2.8)$$

ここで, $r = |x|$, $\alpha_{Gm}(r) = [\alpha_G(|x|) + \alpha_G(-|x|)]/2$ である. 図 2.14(a), (b)に $J_G = 0.06$ 及び

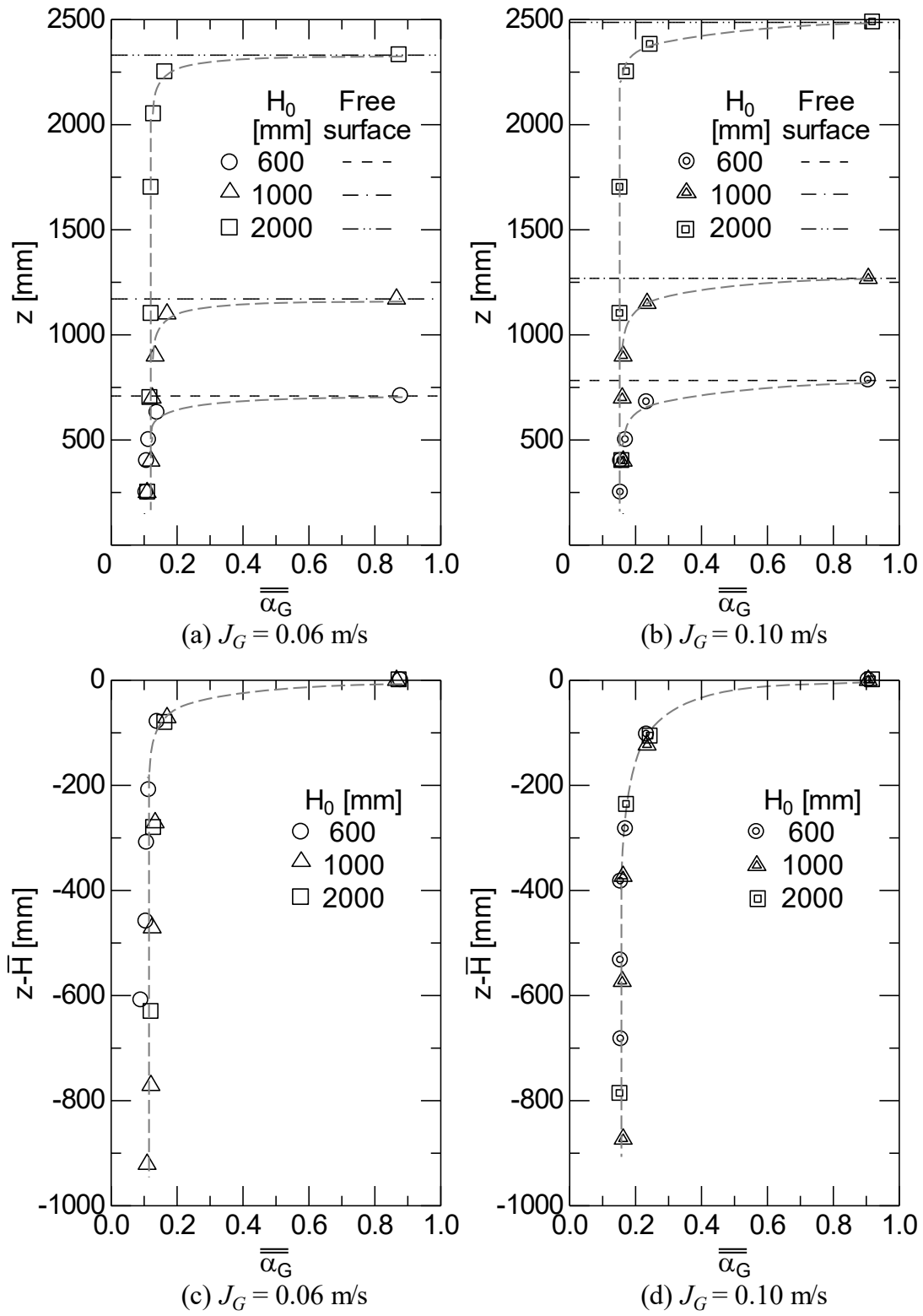


図 2.14 断面平均ボイド率分布

0.10 m/s における $\overline{\alpha_G}$ を示す. $\overline{\alpha_G}$ はフォーム領域において z 増加に伴い急激に増加する. 一方, そのほかの領域においては z 増加に関わらず概ね一定となる. 図 2.14(c), (d) に自由表面高さからの距離 $z - \bar{H}$ と $\overline{\alpha_G}$ の関係を示す. 本図より, フォーム領域とバルク領域の断面平均ボイド率は H_0 に依存しないことがわかる. また, フォーム領域の長さ L_f は H_0 には依存せず, J_G 増加に伴い増加する. Yamashita[23] は矩形気泡塔(50 x 100 mm)を用いて $260 \leq H_0 \leq 790$ mm において L_f を測定している. その結果, L_f は H_0 に依存しないと報告しており, 本実験結果と一致する. また, フォーム領域長さと初期液位の比 L_f/H_0 が H_0 増加に伴い減少することで, H_0 が $\langle \alpha_G \rangle$ に及ぼす影響が減少・消失すると考えられる.

図 2.15 に自由表面高さから算出した $\langle \alpha_G \rangle$ と $\overline{\alpha_G}$ から算出した $\langle \alpha_G \rangle$ (計算方法の詳細は付録 A.2 に示す) との比較を示す. いずれの条件においても両者は概ね一致する. $\overline{\alpha_G}$ から $\langle \alpha_G \rangle$ を算出する際, スパージャー領域をバルク領域と見なして計算を行っているが, $\langle \alpha_G \rangle$ が概ね一致することからこの仮定は妥当と言える. 従って, 以降はスパージャー領域のボイド率をバルク領域と同等とみなす.

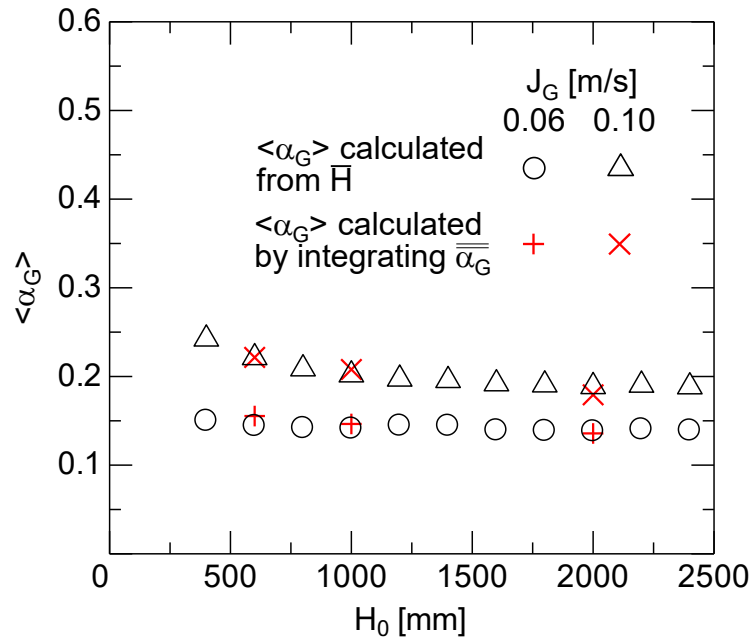


図 2.15 算出方法の違いによる塔内平均ボイド率の比較

2.3.2 水-空気系気泡塔内平均ボイド率相関式

Yamashita[3]は水-空気系気泡塔内平均ボイド率相関式として以下の式で表される3領域モデルを提案している.

$$\langle \alpha_G \rangle = \frac{\langle \alpha_s \rangle L_s + \langle \alpha_b \rangle L_b + \langle \alpha_f \rangle L_f}{L_s + L_b + L_f} \quad (2.9)$$

ここで, $\langle \alpha_s \rangle$, $\langle \alpha_b \rangle$, $\langle \alpha_f \rangle$ はそれぞれスパージャー領域, バルク領域, フォーム領域の体積平均ボイド率, L_s 及び L_b はそれぞれスパージャー領域, バルク領域の長さを表す. 前述のように, スパージャー領域のボイド率はバルク領域のボイド率と同等とみなせる. 従って, この3領域モデルは以下の2領域モデルに簡略化できる.

$$\langle \alpha_G \rangle = \frac{\langle \alpha_b \rangle L_{bs} + \langle \alpha_f \rangle L_f}{L_{bs} + L_f} \quad (2.10)$$

ここで, $L_{bs} (=L_s + L_b)$ はフォーム領域以外の長さを表す. 式(2.10)に $L_{bs} = \bar{H} - L_f$ 及び $\bar{H} = H_0/(1 - \langle \alpha_G \rangle)$ を代入すると次式を得る.

$$\langle \alpha_G \rangle = \frac{\langle \alpha_b \rangle + \langle \alpha_b \rangle \left(\frac{\langle \alpha_f \rangle}{\langle \alpha_b \rangle} - 1 \right) \frac{L_f}{H_0}}{1 + \langle \alpha_b \rangle \left(\frac{\langle \alpha_f \rangle}{\langle \alpha_b \rangle} - 1 \right) \frac{L_f}{H_0}} \quad (2.11)$$

式(2.11)において, H_0 を無限大にまで増加させると $\langle \alpha_G \rangle$ は $\langle \alpha_b \rangle$ に漸近する. 以下では L_f , $\langle \alpha_b \rangle$ 及び $\langle \alpha_f \rangle$ の算出及びこれらの相関式について検討する.

塔中央部($x = 0$ mm)における局所ボイド率 α_c 及び $\overline{\alpha_G}$ を次式を用いてそれぞれ規格化する.

$$\alpha_C^* = \frac{\alpha_C(z) - \alpha_C(z_b)}{\alpha_C(H) - \alpha_C(z_b)} \quad (2.12)$$

$$\overline{\alpha_G}^* = \frac{\overline{\alpha_G}(z) - \overline{\alpha_G}(z_b)}{\overline{\alpha_G}(H) - \overline{\alpha_G}(z_b)} \quad (2.13)$$

ここで、 α_C は塔中央部($x = 0$ mm)における α_G 、 z_b はバルク領域内の高さを表す。いずれの J_G においても $z < 2000$ mmにおいて α_C 及び $\overline{\alpha_G}$ が概ね一定となったため、 $z_b = 1700$ mmとした。図2.16に $H_0 = 2000$ mmにおける α_C^* 及び $\overline{\alpha_G}^*$ を示す。いずれの J_G においても、 z 増加に伴う α_C^* と $\overline{\alpha_G}^*$ の傾向は良好に一致する。従って、以下では L_f は α_C 分布を用いて推算する。

図2.17に α_C 分布を示す。ある高さ $z = z_{bf}$ から z 増加に伴い α_C は増加する。この z_{bf} はフォーム領域とバルク領域の境界高さである。フォーム領域における α_C に対して最小二乗法を用いて $\alpha_C = [(z - c)/a]^{1/b}$ で表される近似曲線を得た。ここで a 、 b 及び c は定数である。 z_{bf} 及び L_f はそれぞれ $z_{bf} = a\alpha_C(z_b)^{1/b} + c$ 及び $L_f = \overline{H} - z_{bf}$ より算

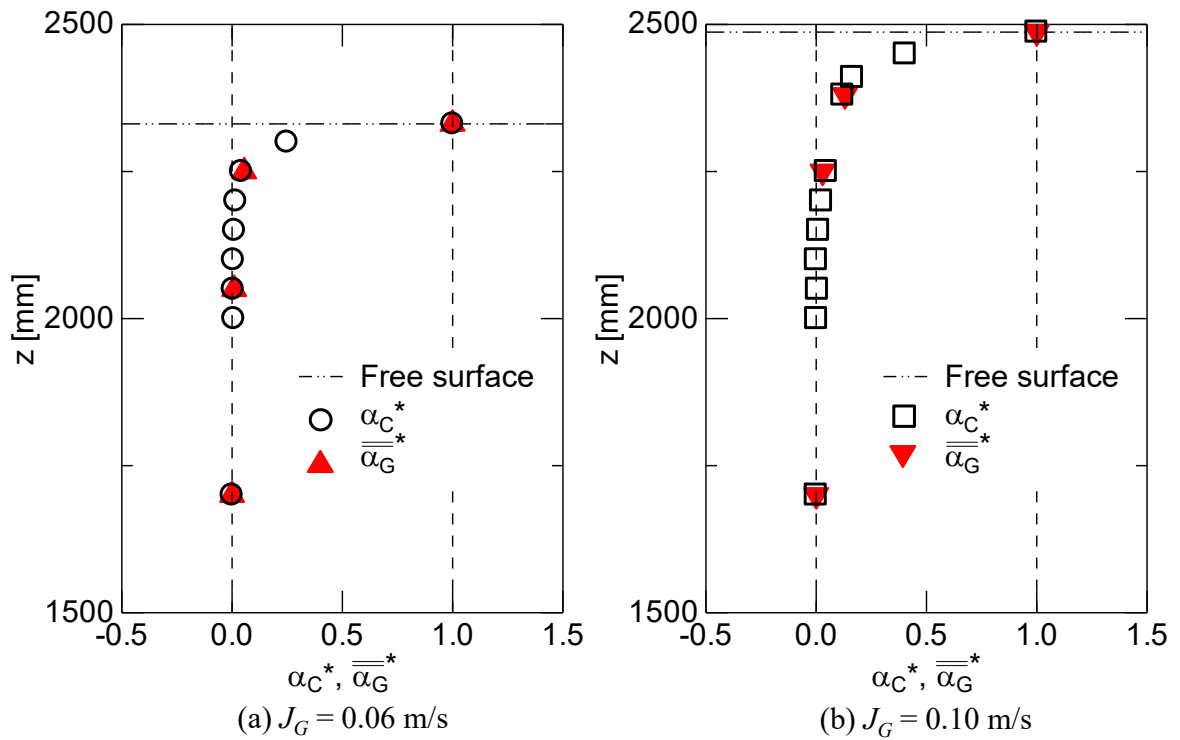
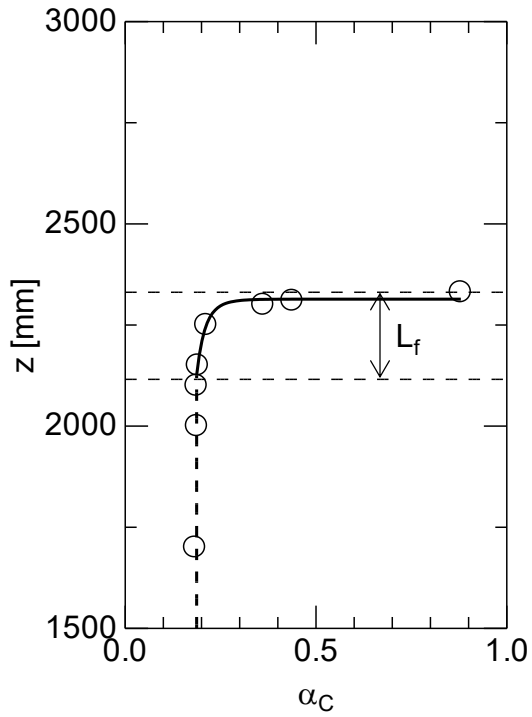
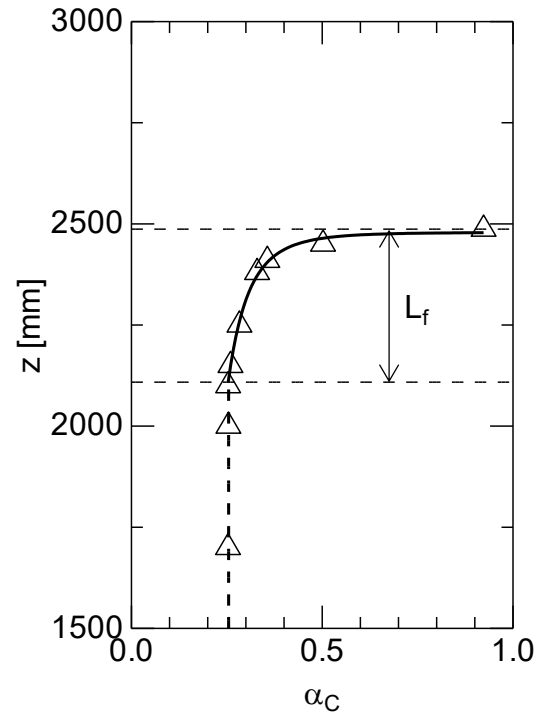


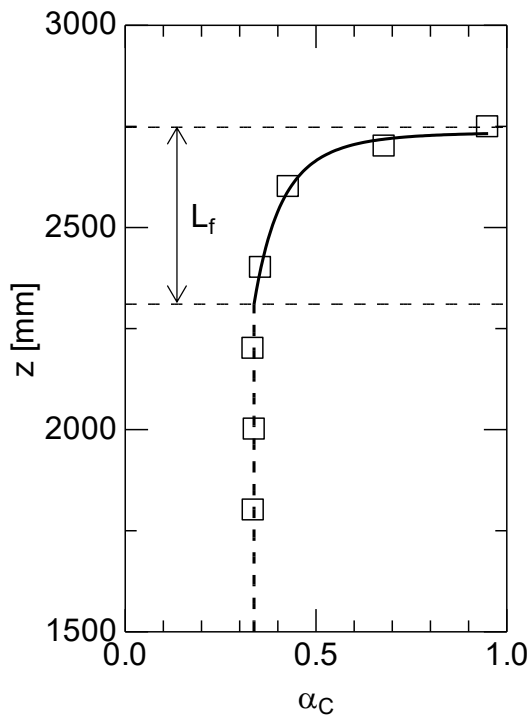
図2.16 α_C^* と $\overline{\alpha_G}^*$ の比較($H_0 = 2000$ mm)



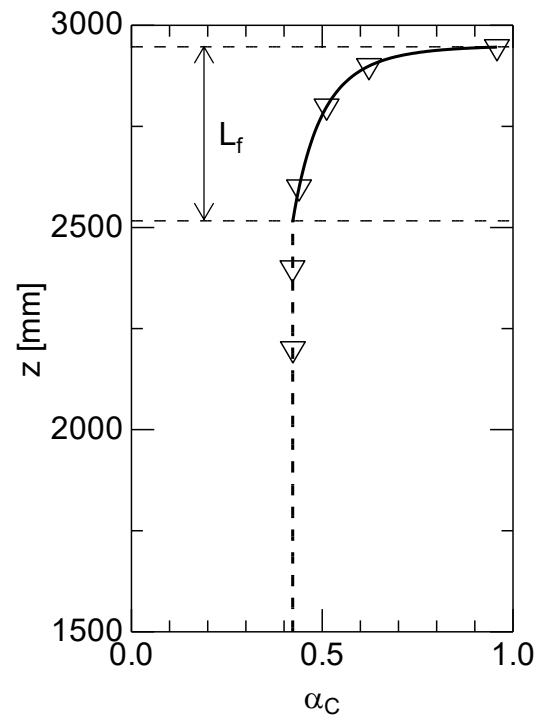
(a) $J_G = 0.06$ m/s



(b) $J_G = 0.10$ m/s



(c) $J_G = 0.20$ m/s



(d) $J_G = 0.30$ m/s

図 2.17 塔中央部($x = 0$ mm)における局所ボイド率分布

出した．図 2.18 に L_f と J_G の関係を示す． $J_G < 0.20$ m/s において L_f は J_G 増加に伴い増加する． $J_G \geq 0.20$ m/s において L_f は概ね一定となる．Yamashita[23]は L_f 相関式として以下の式を提案している．

$$L_f = 433 J_G^{0.73} \quad (2.14)$$

図 2.17 に式(2.14)を破線で示す．式(2.14)より得られる L_f は本実験結果よりもはるかに小さい．Yamashita[23]は水力等価直径の小さい 50 x 100 mm の矩形気泡塔を用いて実験を行ったことが要因として考えられる．このように L_f を評価できる相関式はない．そこで， L_f の実験式として以下の式を提案する．

$$L_f^* = \tanh(1.8 J_G^*) \quad (2.15)$$

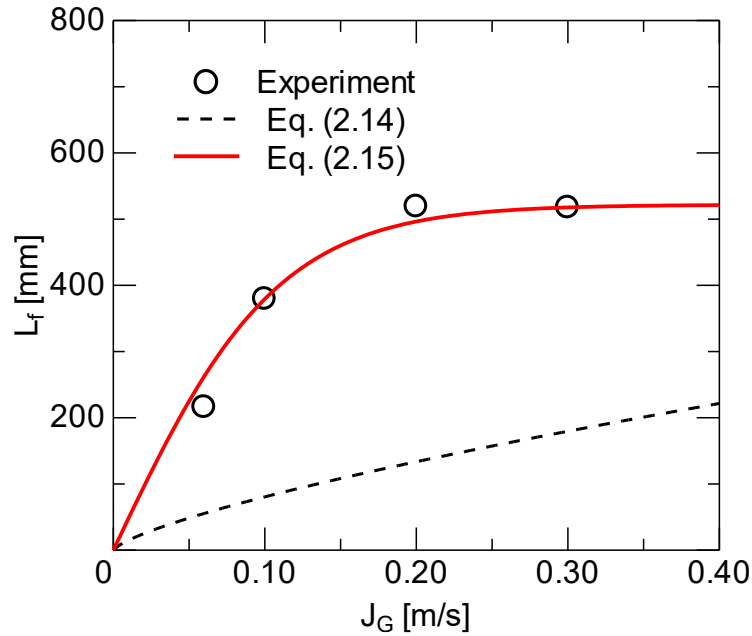


図 2.18 フォーム領域の長さ L_f

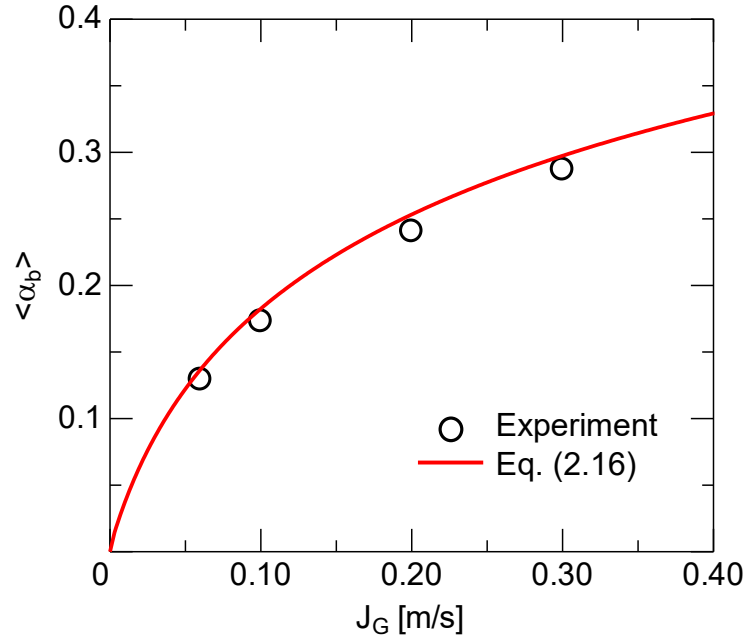
ここで， L_f^* は $J_G = 0.20$ m/s における L_f で規格化されたフォーム領域の長さ， J_G^* は

$J_G = 0.20 \text{ m/s}$ で規格化された気相体積流束である。図 2.18 に式(2.15)を実線で示す。

$H_0 = 1000 \text{ mm}$ において得られた区間平均ボイド率を図 2.19 に示す。バルク領域においては断面平均ボイド率が一定であるため、区間平均ボイド率はバルク領域のボイド率 $\langle \alpha_b \rangle$ とみなせる。 J_G 増加に伴い $\langle \alpha_b \rangle$ は増加する。 J_G 増加に伴い気泡数密度が増加し、気泡間距離が減少する。その結果、気泡合体頻度が増加するため $\langle \alpha_b \rangle$ が増加したと考えられる。前述のように、2領域モデルにおいて H_0 を無限大にまで増加させると $\langle \alpha_G \rangle$ は $\langle \alpha_b \rangle$ に漸近する。そのため、 $\langle \alpha_b \rangle$ は H_0 に依存しないボイド率相関式を用いて評価できると考えられる。 H_0 に依存しないボイド率相関式として、Akita と Yoshida[24]は $150 \leq D_H \leq 600 \text{ mm}$, $1260 \leq H_0 \leq 3500 \text{ mm}$, $0.003 \leq J_G \leq 0.40 \text{ m/s}$ の範囲で次のボイド率相関式を提案している。

$$\frac{\langle \alpha_G \rangle}{(1 - \langle \alpha_G \rangle)^4} = C_A \left(\frac{\rho_L g D_H^2}{\sigma} \right)^{1/8} \left(\frac{\rho_L^2 g D_H^3}{\mu_L^2} \right)^{1/12} \frac{J_G}{\sqrt{g D_H}} \quad (2.16)$$

ここで、 μ_L は液相粘度 [$\text{mPa}\cdot\text{s}$]、 σ は表面張力 [N/m]であり、 C_A は係数である。純液体及び非電解質溶液の場合は C_A は 0.20、電解質溶液の場合は 0.25 が推奨されている。式(2.16)の右辺は3つの無次元数から成り、 $\rho_L g D_H^2 / \sigma$ はボンド数、 $\rho_L^2 g D_H^3 / \mu_L^2$ は逆粘性数、 $J_G / \sqrt{g D_H}$ はフルード数である。式(2.16)は変数に D_H を含んでいるが、式の右辺を展開すると D_H の指数は 0 となる。佐々木[9]は、 C_A を 0.24 とすれば H_0 依存性が消失した H_0 における水-空気系気泡塔内平均ボイド率を良好に評価できると報告している。係数を修正した式(2.16)を図 2.19 に実線として示す。相関式の物性値は水の値($\rho_L = 998 \text{ kg/m}^3$, $\mu_L = 1.0 \text{ mPa}\cdot\text{s}$, $\sigma = 0.072 \text{ N/m}$)を用いた。式(2.16)は $\langle \alpha_b \rangle$ を概ね良好に評価できている。


 図 2.19 バルク領域のボイド率 $\langle \alpha_b \rangle$

式(2.11)を $\langle \alpha_f \rangle$ について解くと式(2.17)が得られる.

$$\langle \alpha_f \rangle = \frac{\langle \alpha_G \rangle - \langle \alpha_b \rangle + \langle \alpha_b \rangle (1 - \langle \alpha_G \rangle) \frac{L_f}{H_0}}{(1 - \langle \alpha_G \rangle) \frac{L_f}{H_0}} \quad (2.17)$$

上式に実験から得られた $\langle \alpha_G \rangle$, $\langle \alpha_b \rangle$ 及び L_f を代入し, $\langle \alpha_f \rangle$ を算出した. $\langle \alpha_b \rangle$ として $H_0 = 1000 \text{ mm}$ における区間平均ボイド率を用いたため, $\langle \alpha_G \rangle$ は $H_0 = 1000 \text{ mm}$ における値を使用した. 得られた $\langle \alpha_f \rangle$ と J_G の関係を図 2.20 に示す. J_G 増加に伴い $\langle \alpha_f \rangle$ は増加する. フォーム領域における平均ボイド率は H_0 に依存しないこと, また, 本実験結果が D_H に依存しないことを考慮し, Akita と Yoshida[24]のボイド率相関式を参考に $\langle \alpha_f \rangle$ の次式による補完を試みた.

$$\langle \alpha_f \rangle = C_1 \left[\left(\frac{\rho_L g D_H^2}{\sigma} \right)^{1/8} \left(\frac{\rho_L^2 g D_H^3}{\mu_L^2} \right)^{1/12} \frac{J_G}{\sqrt{g D_H}} \right]^{C_2} \quad (2.18)$$

ここで, C_1, C_2 は定数である. 式(2.17)より算出された $\langle \alpha_f \rangle$ から最小二乗法により C_1, C_2 を決定した結果, $(C_1, C_2) = (0.18, 0.47)$ となった. 式(2.18)を図 2.20 に実線で示す. 式(2.18)は $\langle \alpha_f \rangle$ を良好に表現できている.

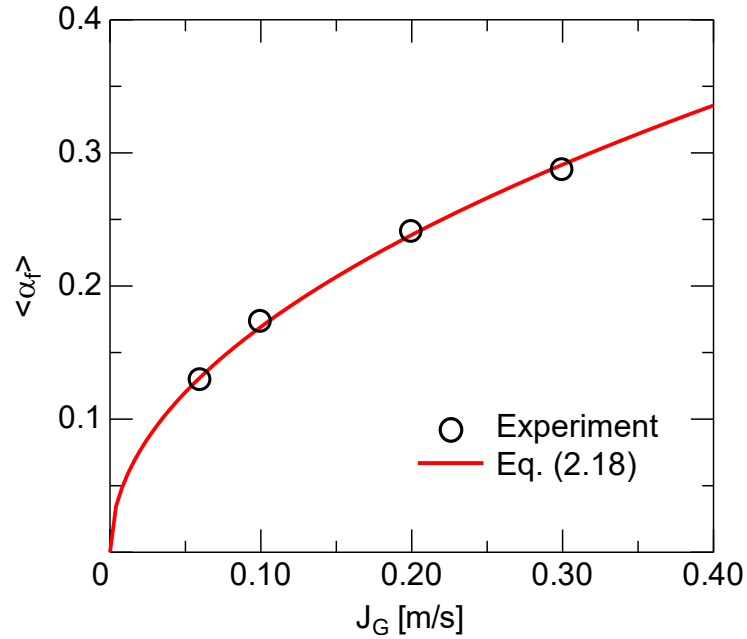


図 2.20 フォーム領域のボイド率 $\langle \alpha_f \rangle$

式(2.15), (2.16), (2.18)より得られる L_f , $\langle \alpha_b \rangle$, $\langle \alpha_f \rangle$ を式(2.11)に代入すると $\langle \alpha_G \rangle$ と H_0 の関係を求められる. 図 2.21 に実験との比較を示す. 式(2.11), (2.15), (2.16), (2.18)により $\langle \alpha_G \rangle$ の H_0 依存性を良好に評価できている. 図 2.22 に示すように, 式(2.11), (2.15), (2.16)及び(2.18)は実験データの 95%を誤差 $\pm 5\%$ 以内で評価できている.

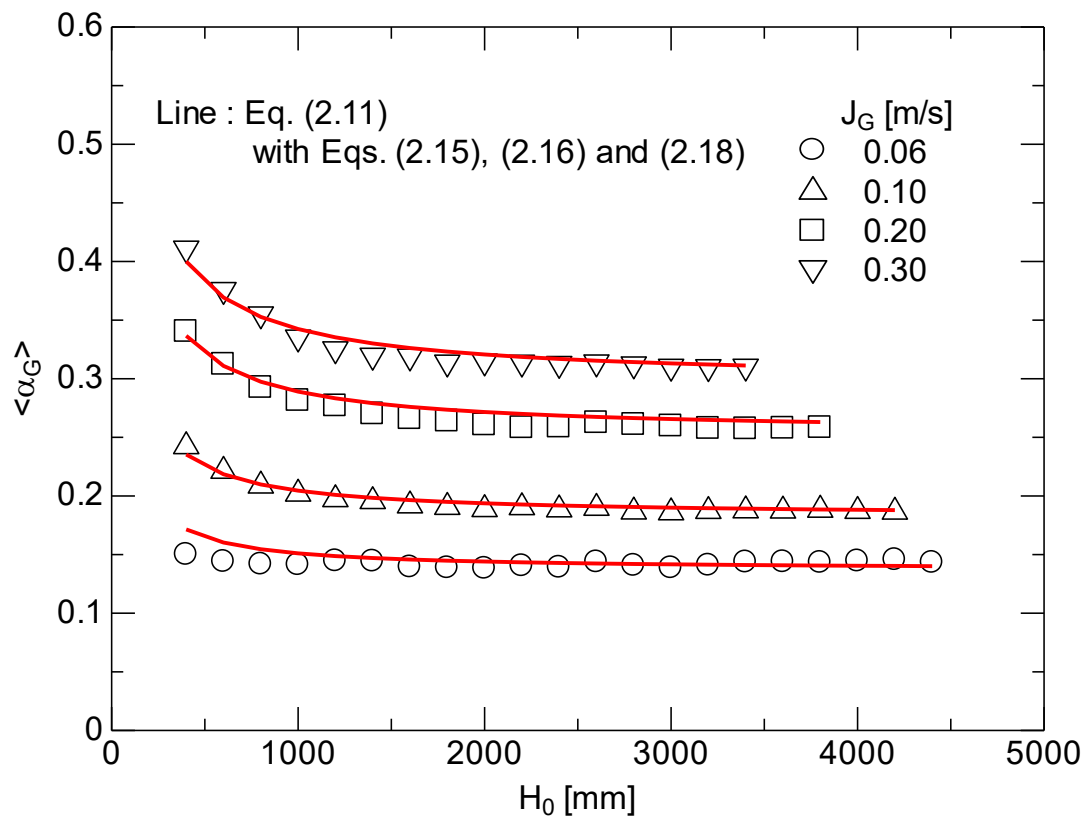


図 2.21 $\langle \alpha_G \rangle$ と式(2.11), (2.15), (2.16)及び(2.18)との比較

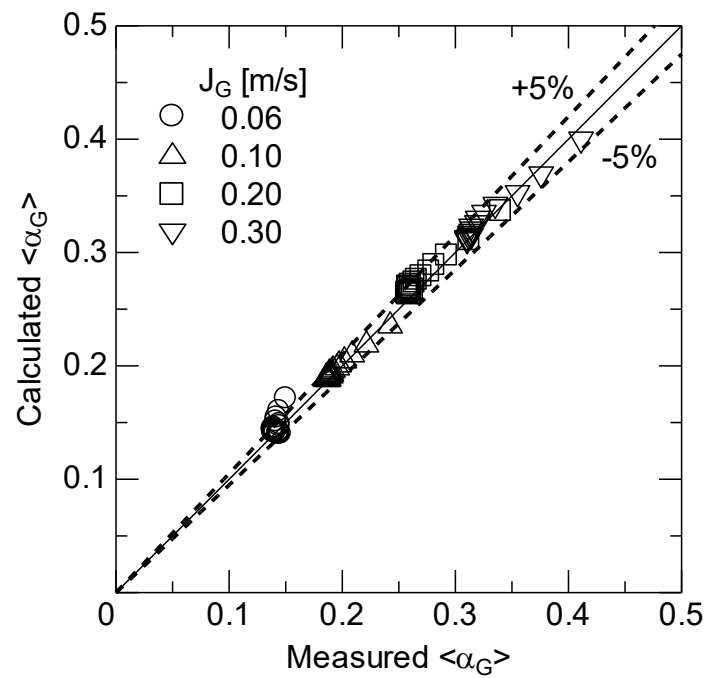


図 2.22 $\langle \alpha_G \rangle$ の実験値と計算値との比較

佐々木[9]は $D_H = 200 \text{ mm}$ の気泡塔を用いて $400 \leq H_0 \leq 1000 \text{ mm}$ において塔内平均ボイド率を取得し、実験結果を基に初期液位の影響を考慮した次式のボイド率相関式を提案している。

$$\langle \alpha_G \rangle = \max \left[\frac{C_1^{R1} Fr_H}{1 + C_2^{R1} Fr_H}, \frac{C_1^{R2} Fr_H}{1 + C_2^{R2} Fr_H} \right] \quad (2.19)$$

ここで、 Fr_H は代表速度を気相体積流束、代表長さを初期液位としたフルード数である。 C_1^{R1} , C_1^{R2} , C_2^{R1} , C_2^{R2} は塔径、気相体積流束、流体物性に依存する係数であり、それぞれ、11.5, 23.2, 8.2, 12.7 である。前述したように、式(2.16)の係数を 0.24 とすれば H_0 依存性が消失した H_0 における水-空気系気泡塔内平均ボイド率を良好に評価できる[9]。図 2.23 及び図 2.24 にそれぞれ 2 領域モデルに基づくボイド率相関式と式(2.19)及び式(2.16)との比較を示す。2 領域モデルに基づくボイド率相関式を用いることで気泡塔内平均ボイド率が初期液位に依存する領域及び依存性を無視できる領域のいずれにおいても既存の相関式と比較して塔内平均ボイド率を良好に評価できている。

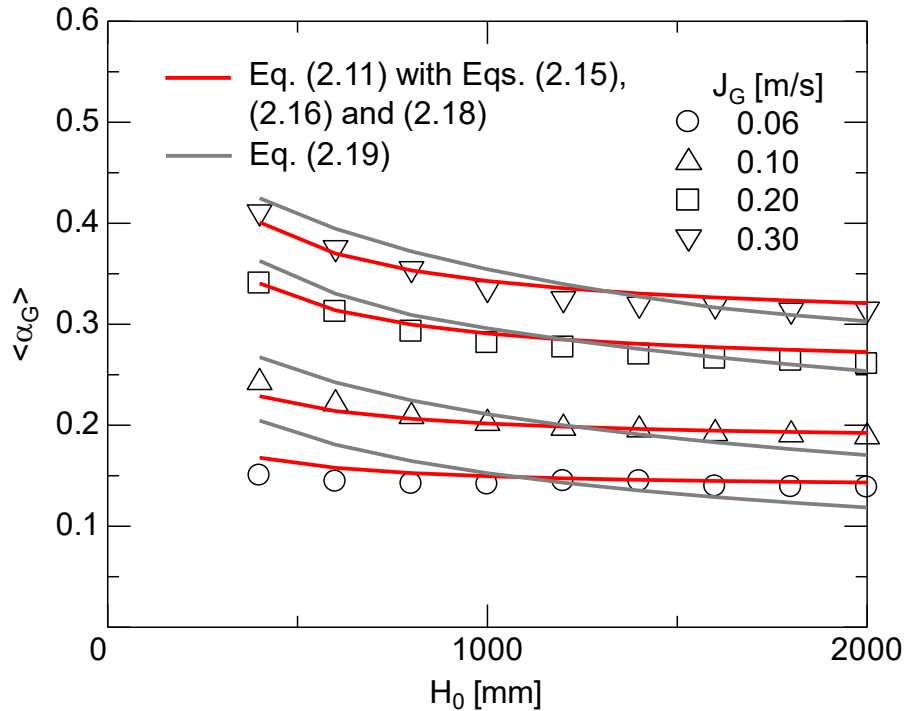


図 2.23 2 領域モデルに基づく相関式と式(2.19)との比較

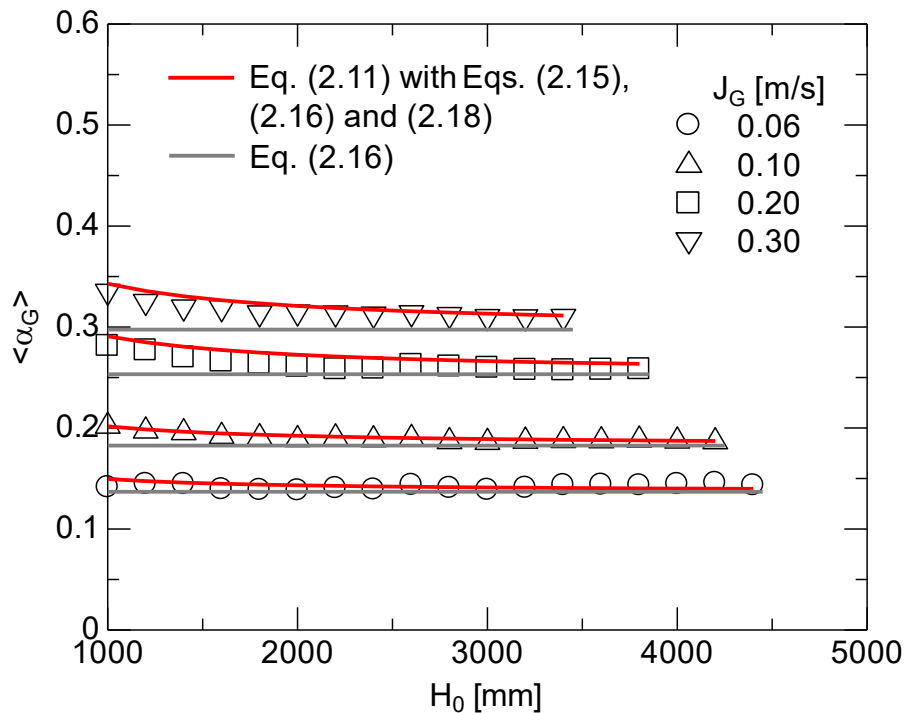


図 2.24 2 領域モデルに基づく相関式と式(2.16)との比較

2.4 結言

本章では、塔径 200 mm の水-空気系気泡塔において、幅広い初期液位及び気相体積流束における気泡塔内平均ボイド率測定実験を実施した。また、局所ボイド率測定値を基に初期液位及び気相体積流束が塔内流動構造に及ぼす影響を調べ、流動構造に基づくボイド率のモデル化を試みた。得られた知見を以下に示す。

- (1) 幅広い初期液位及び気相体積流束におけるボイド率の実験データを取得した。
- (2) 気泡塔内平均ボイド率の初期液位依存性はある初期液位以上において無視できるようになり、その初期液位は気相体積流束の関数で表される。
- (3) 塔上部のフォーム領域及び塔中部のバルク領域の平均ボイド率は初期液位に依存しない。また、フォーム領域の長さも初期液位に依存しない。初期液位増加に伴いフォーム領域の長さとの初期液位の比が減少するため、気泡塔内平均ボイド

率の初期液位依存性は消失する。

- (4) 水-空気系気泡塔において、幅広い初期液位及び気相体積流束に適用可能な2領域モデルに基づくボイド率相関式を構築した。本相関式により、 $400 \leq H_0 \leq 4400$ mm, $0.06 \leq J_G \leq 0.30$ m/s における気泡塔内平均ボイド率の全データの93%を誤差 $\pm 5\%$ 以内で評価できる。

第2章の参考文献

- [1] Yamashita, F., Effect of liquid depth, column inclination and baffle plates on gas holdup in bubble columns, J. Chem. Eng. Japan 18, pp. 349–353 (1985).
- [2] Wilkinson, P.M., Spek, A.P., van Dierendonck, L.L., Design parameters estimation for scale-up of high-pressure bubble columns, AIChE J 38, pp. 544–554 (1992).
- [3] Yamashita, F., Effect of clear liquid height and gas inlet height on gas holdup in a bubble column, J. Chem. Eng. Japan 31, pp. 285–287 (1998).
- [4] Thorat, B.N., Shevade, A.V., Bhilegaonkar, K.N., Aglawe, R.H., Parasu Veera, U., Thakre, S.S., Pandit, A.B., Swant, S.B., Joshi, J.B., Effect of sparger design and height to diameter ratio on fractional gas hold-up in bubble columns, Trans. Inst. Chem. Engrs. 76, pp. 823–834 (1998).
- [5] Ruzicka, M.C., Drahoš, J., Fialová, M., Thomas, N.H., Effect of bubble column dimensions on flow regime transition, Chem. Eng. Sci. 56, pp. 6117–6124 (2001).
- [6] Lemoine, R., Behkish, A., Sehabiague, L., Heintz, Y.J., Oukaci, R., Morsi, B.I., An algorithm for predicting the hydrodynamic and mass transfer parameters in bubble column and slurry bubble column reactors. Fuel Process. Technol. 89, pp. 322–343 (2008).
- [7] Leonard, C., Ferrasse, J.H., Boutin, O., Lefevre, S., Viand, A., Bubble column reactors for high pressures and high temperatures operation, Chem. Eng. Res. and Design 100, pp. 391–421 (2015).
- [8] Besagni, G., Di Pasquali, A., Gallazzini, L., Gottardi, E., Colombo, L.P.M., Inzoli, F., The effect of aspect ratio in counter-current gas-liquid bubble columns: experimental

- results and gas holdup correlations, *Int. J. Multiph. Flow* 94, pp. 53–78 (2017).
- [9] 佐々木翔平, 気泡塔内ガスホールドアップに関する研究, 神戸大学博士論文 (2017).
- [10] Chen, R.C., Reese, J., Fan, L.S., Flow structure in a three-dimensional bubble column and three-phase fluidized bed, *AIChE J* 40, pp. 1093–1104 (1994).
- [11] Zahradník, J., Fialová, M., Růžicka, M., Drahoš, J., Kašánek, F., Thomas, N.H., Duality of the gas-liquid flow regimes in bubble column reactors, *Chem. Eng. Sci.* 52, pp. 3811–3826 (1997).
- [12] Şal, S., Gül, Ö.F., Özdemir, M., The effect of sparger geometry on gas holdup and regime transition points in a bubble column equipped with perforated plate spargers, *Chem. Process Des. Dev.* 70, pp. 259–266 (2013).
- [13] Ojima, S., Hayashi, K., Hosokawa, S., Tomiyama, A., Distributions of void fraction and liquid velocity in air–water bubble column, *Int. J. Multiph. Flow* 67, pp. 111–121 (2014).
- [14] Koide, K., Morooka, S., Ueyama, K., Matsuura, A., Yamashita, F., Iwamoto, S., Kato, Y., Inoue, H., Shigeta, M., Suzuki, S., Akehata, T., Behavior of bubbles in large scale bubble column, *J. Chem. Eng. Japan* 12, pp. 98–104 (1979).
- [15] 小島博光, 気泡塔の工業的使用状況, 化学装置, (2001).
- [16] Maretto, C., Krishna, R., Modelling of a bubble column slurry reactor for Fischer-Tropsch synthesis, *Catalysis Today* 52, pp. 279–289 (1999).
- [17] Hojjatoleslami, S.A., Kittler, J., Region growing: a new approach, *IEEE Trans Image Process* 7, pp. 1079–1084 (1998).
- [18] Wu, Q., Ishii, M., Sensitivity study on double-sensor conductivity probe for the measurement of interfacial area concentration in bubbly flow, *Int. J. Multiph. Flow* 25, pp. 155–173 (1999).
- [19] Tacke, K. H., Schubert, H. G., Weber, D. J., Klaus Schwerdtfeger, Characteristics of round vertical gas bubble jets, *Metallurgical Transactions B* 16, pp. 263–275 (1985).
- [20] Devanathan, N., Moslemian, D., Duduković, M.P., Flow mapping in bubble columns using CARPT, *Chem. Eng. Sci.* 45, pp. 2285–2291 (1990).
- [21] Žun, I., Filipič, B., Perpar, M., Bombač, A., phase discrimination in void fraction measurements via genetic algorithms, *Review of Scientific Instruments* 66, pp.

5055–5064 (1995).

[22] Ruzicka, M.C., Zahradník, J., Drahoš, J., Thomas, N.H., Homogeneous-heterogeneous regime transition in bubble columns, *Chem. Eng. Sci.* 56, pp. 4609–4626 (2001).

[23] Yamashita, F., Effect of foam layer on gas holdup in a bubble column, *J. Chem. Eng. Japan* 28, pp. 837–840 (1995).

[24] Akita, K., Yoshida, F., Gas holdup and volumetric mass transfer coefficient in bubble columns, *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.* 12, pp. 76–80 (1973).

第 3 章

液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響

3.1 緒言

第 2 章では，水-空気系において初期液位が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響を調べ，初期液位の影響を考慮したボイド率関連式を提案した．実機気泡塔ではオイルなどの水と比較して高粘度の液相が用いられることが多く[1]，液相粘度がボイド率に及ぼす影響の把握が重要である．液相粘度がボイド率に及ぼす影響を調べた研究では，低液相粘度において液相粘度増加に伴いボイド率が増加し[2-4]，高液相粘度において液相粘度増加に伴いボイド率が減少することが報告されている[2-13]．一方，初期液位 H_0 がボイド率の粘度依存性に及ぼす影響を調べた研究は極めて少なく，Ruzicka ら[4]が $200 \leq H_0 \leq 800$ mm において液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響を調べているのみである．実機気泡塔は幅広い初期液位において使用されるため，広範囲の初期液位において液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響を調べる必要がある．また，気泡塔内平均ボイド率は塔径 200 mm 以上において塔径に依存しないことが報告されている[14]が，既存の液相粘度に関する研究の殆どが塔径 200 mm 未満の気泡塔を用いており[3-12]，種々の液相粘度において塔径に依存しないボイド率の実験データが不足している．

本章では，平均ボイド率に及ぼす塔径の影響がない塔径 200 mm の気泡塔を用い

て種々の液相粘度及び初期液位における気泡塔内平均ボイド率の実験データベースを構築し、液相粘度がボイド率に及ぼす影響を調べる．さらに、第2章において提案した水-空気系気泡塔内平均ボイド率相関式に高液相粘度における液相粘度の影響を考慮する方法を検討する．

3.2 実験装置及び実験条件

実験装置は前章に示した気泡塔と同一である．気相には空気、液相にはグリセリン水溶液を用いた．グリセリン水溶液には水道水とグリセリン(キシダ化学, 000-34536, 純度 99.0%以上)を用いた．本実験に用いたグリセリン水溶液の液相粘度 μ_L [mPa·s], 液相密度 ρ_L [kg/m³], 表面張力 σ [N/m]を表3.1にまとめる．表中の μ_W [mPa·s]は水道水の粘度、 M は次式で定義されるモルトン数である．

$$M = \frac{\mu_L(\rho_L - \rho_G)g}{\rho_L^2 \sigma^3} \quad (3.1)$$

ここで、 ρ_G [kg/m³]及び g [m/s²]はそれぞれ気相密度及び重力加速度である．使用した空気の気相密度 ρ_G は常温・常圧で 1.2 kg/m³であった． ρ_L 及び μ_L は各々標準比重計(Ando Keiki Co., Ltd., JIS B7525)及び音叉型振動式粘度計(A&D Co., Ltd., SV-10)を用いて測定した． σ はペンダントバブル法[15, 16]を用いて測定した．ペンダントバブル法については付録 A.4 に詳述した．これらの測定手法における μ_L , ρ_L 及び σ の95%信頼区間における不確かさは各々0.01%, 4.2%及び3.3%であった．気泡塔内平均ボイド率の測定には、第2章に記述した測定方法と同様の方法を用いた．なお、 $\mu_L = \mu_W$ における気泡塔内平均ボイド率は第2章に示した実験データである．

表 3.1 液相の物性値(19±1 °C)

	μ_L [mPa·s]	ρ_L [kg/m ³]	σ [N/m]	$\log M$
Tap water	1.0 (μ_W)	998	0.072	-10.8
31 wt% Glycerol–water solution	3.0 ($3.0\mu_W$)	1074	0.071	-8.7
42 wt% Glycerol–water solution	4.4 ($4.4\mu_W$)	1106	0.071	-8.0
62 wt% Glycerol–water solution	12.3 ($12.3\mu_W$)	1158	0.068	-6.2

3.3 実験結果及び考察

3.3.1 液相粘度が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響

図 3.1 に $\mu_L = \mu_W$, $4.4\mu_W$ 及び $12.3\mu_W$ において観察された気泡塔内流動の一例を示す．ここで H_0 は初期液位 [mm], J_G は気相体積流束 [m/s] である．いずれの μ_L においても J_G 増加に伴い気泡塔内平均ボイド率は増加する． μ_L 増加に伴い気泡塔内平均ボイド率は増加する．図中の破線は大気泡の界面を表す．いずれの J_G においても大気泡の存在が確認され，非均質気泡流が形成されることを確認した．また， $\mu_L = 3.0\mu_W$ においても同様に全 J_G において大気泡の存在を確認した．

図 3.2 に種々の μ_L における気泡塔内平均ボイド率 $\langle\alpha_G\rangle$ と H_0 の関係を示す． $\mu_L = 3.0\mu_W$ において $400 \leq H_0 \leq 600$ mm では H_0 増加に伴い $\langle\alpha_G\rangle$ は減少する．その後， H_0 増加に伴い $\langle\alpha_G\rangle$ は増加し $\mu_L = \mu_W$ における $\langle\alpha_G\rangle$ よりも大きくなり，一定値に漸近する．この傾向は $\mu_L = \mu_W$ における $\langle\alpha_G\rangle$ の H_0 依存性と異なる．Besagni ら[2]は $\mu_L \leq 3.0$ mPa·s において，抗力の増加がボイド率に及ぼす影響が気泡合体がボイド率に及ぼす影響より優位に働くことで， μ_L 増加に伴い $\langle\alpha_G\rangle$ が増加することを報告している．本実験より得られた μ_L 増加に伴う $\langle\alpha_G\rangle$ の傾向は， $H_0 \geq 1500$ mm において Besagni ら[2]の報告と一致するが， $H_0 \leq 1500$ mm においては一致しない． $\mu_L = 4.4\mu_W$ 及び $12.3\mu_W$ において H_0 増加に伴い $\langle\alpha_G\rangle$ は減少し，ある H_0 以上において $\langle\alpha_G\rangle$ は一定値に漸近する．この傾向は $\mu_L = \mu_W$ における $\langle\alpha_G\rangle$ の H_0 依存性と一致する． $\mu_L = \mu_W$ における $\langle\alpha_G\rangle$ と $\mu_L = 4.4\mu_W$ における $\langle\alpha_G\rangle$ を比較して， $0.06 \leq J_G \leq 0.10$ m/s においては概ね一致するが， $0.20 \leq J_G \leq 0.30$ m/s においては μ_L 増加に伴い減少している．既存の研究において μ_L 増加に伴い気泡合体が促進されると報告されている[2, 10, 11]． $0.06 \leq J_G \leq 0.10$ m/s においては気泡の数密度が低く， μ_L 増加に伴う気泡合体が促進されにくいことが $\langle\alpha_G\rangle$ が概ね一致する要因と考えられる．一方， $0.20 \leq J_G$

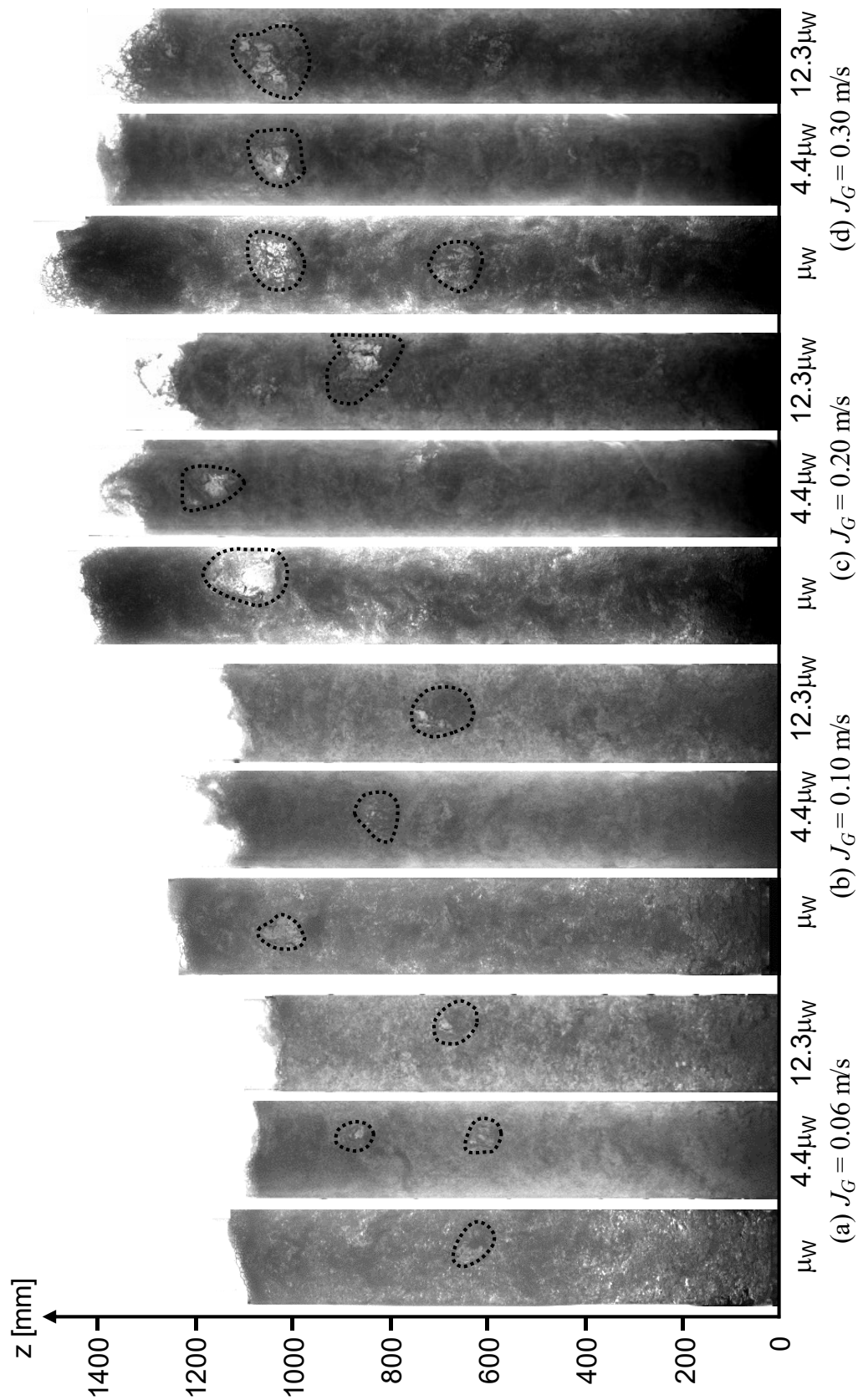


図3.1 液相粘度が気泡塔内流動に及ぼす影響($H_0 = 1000$ mm)

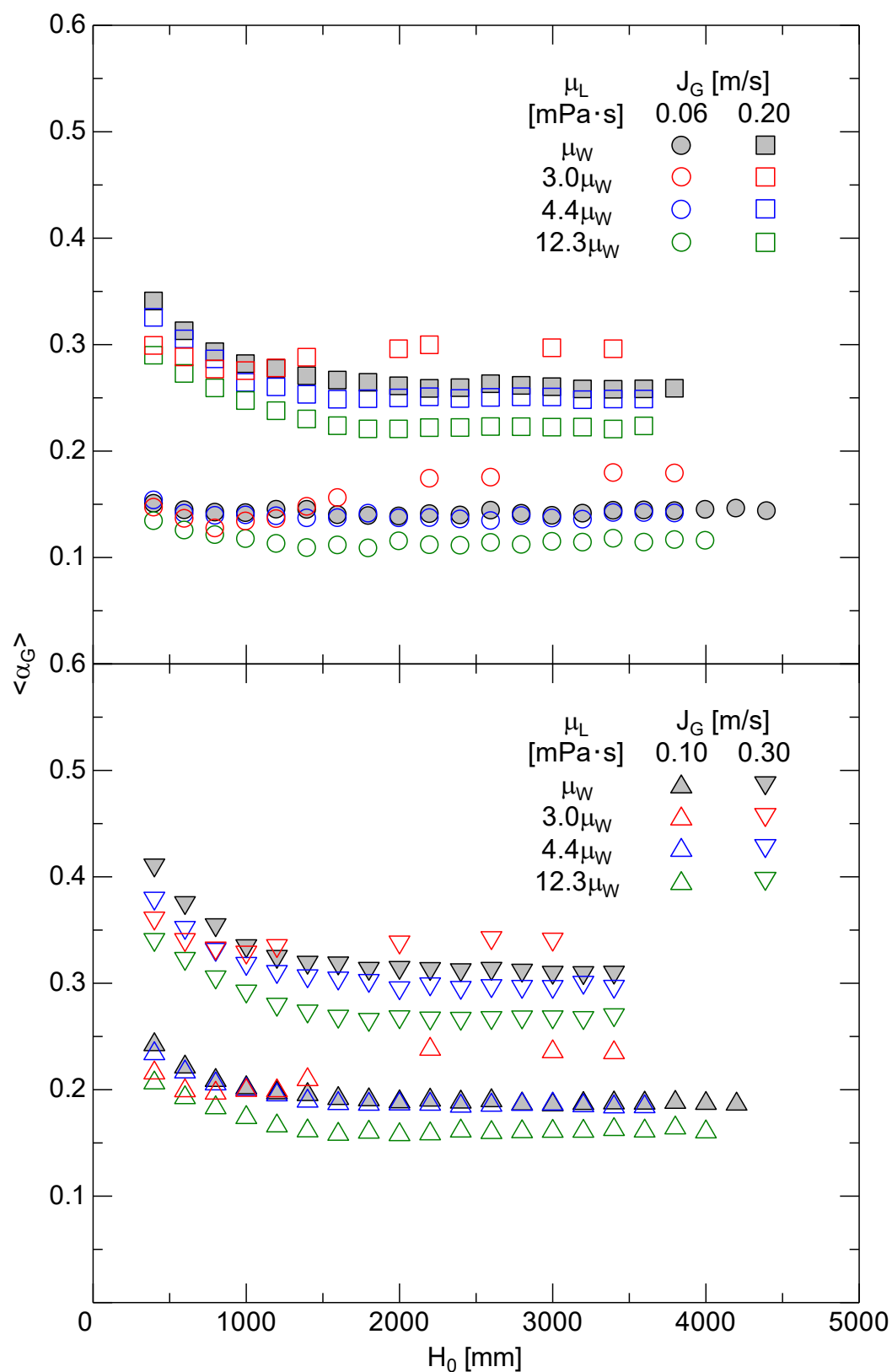


図 3.2 液相粘度が気泡塔内平均ボイド率の初期液位依存性に及ぼす影響

$\leq 0.30 \text{ m/s}$ では気泡数密度が高く、 μ_L 増加に伴い気泡合体が促進され平均気泡径が増加し、気泡上昇速度が増加するため $\langle \alpha_G \rangle$ が減少したと考えられる。 $\mu_L = 12.3\mu_W$ における $\langle \alpha_G \rangle$ は、いずれの J_G においても μ_L 増加に伴い減少している。 $\mu_L = 12.3\mu_W$ では、いずれの J_G においても μ_L 増加に伴い気泡合体が促進されるため、 $\langle \alpha_G \rangle$ が減少したと考えられる。

高液相粘度において H_0 及び J_G が $\langle \alpha_G \rangle$ の μ_L 依存性に及ぼす影響を検討するため、 $\mu_L = \mu_W$ における $\langle \alpha_G \rangle$ を用いて $\mu_L = 4.4\mu_W$ 及び $12.3\mu_W$ における $\langle \alpha_G \rangle$ を次式により規格化する。

$$\langle \alpha_G \rangle^*(H_0, J_G, \mu_L) = \frac{\langle \alpha_G \rangle(H_0, J_G, \mu_L)}{\langle \alpha_G \rangle(H_0, J_G, \mu_W)} \quad (3.2)$$

図 3.3 に $\langle \alpha_G \rangle^*(H_0, J_G, \mu_L)$ と H_0 との関係を示す。 $\mu_L = 12.3\mu_W$, $J_G = 0.06 \text{ m/s}$, $400 \leq H_0 \leq 800 \text{ mm}$ を除いて、いずれの μ_L 及び J_G においても $\langle \alpha_G \rangle^*(H_0, J_G, \mu_L)$ は H_0 に依らず概ね一定となり、 H_0 が $\langle \alpha_G \rangle$ の μ_L 依存性に殆ど影響を及ぼさないことがわかる。

$\langle \alpha_G \rangle^*(H_0, J_G, \mu_L)$ の H_0 平均値である $\langle \alpha_G \rangle^*(J_G, \mu_L)$ を算出し、図 3.4 に J_G との関係を示す。いずれの μ_L においても $\langle \alpha_G \rangle^*(J_G, \mu_L)$ は J_G に依らず概ね一定となり、 J_G が $\langle \alpha_G \rangle$ の μ_L 依存性に殆ど影響を及ぼさないことがわかる。図中の破線は $\langle \alpha_G \rangle^*(J_G, \mu_L)$ の J_G 平均値である $\langle \alpha_G \rangle^*(\mu_L)$ を示しており、 $\mu_L = 4.4\mu_W$ においては 0.97, $\mu_L = 12.3\mu_W$ においては 0.84 である。

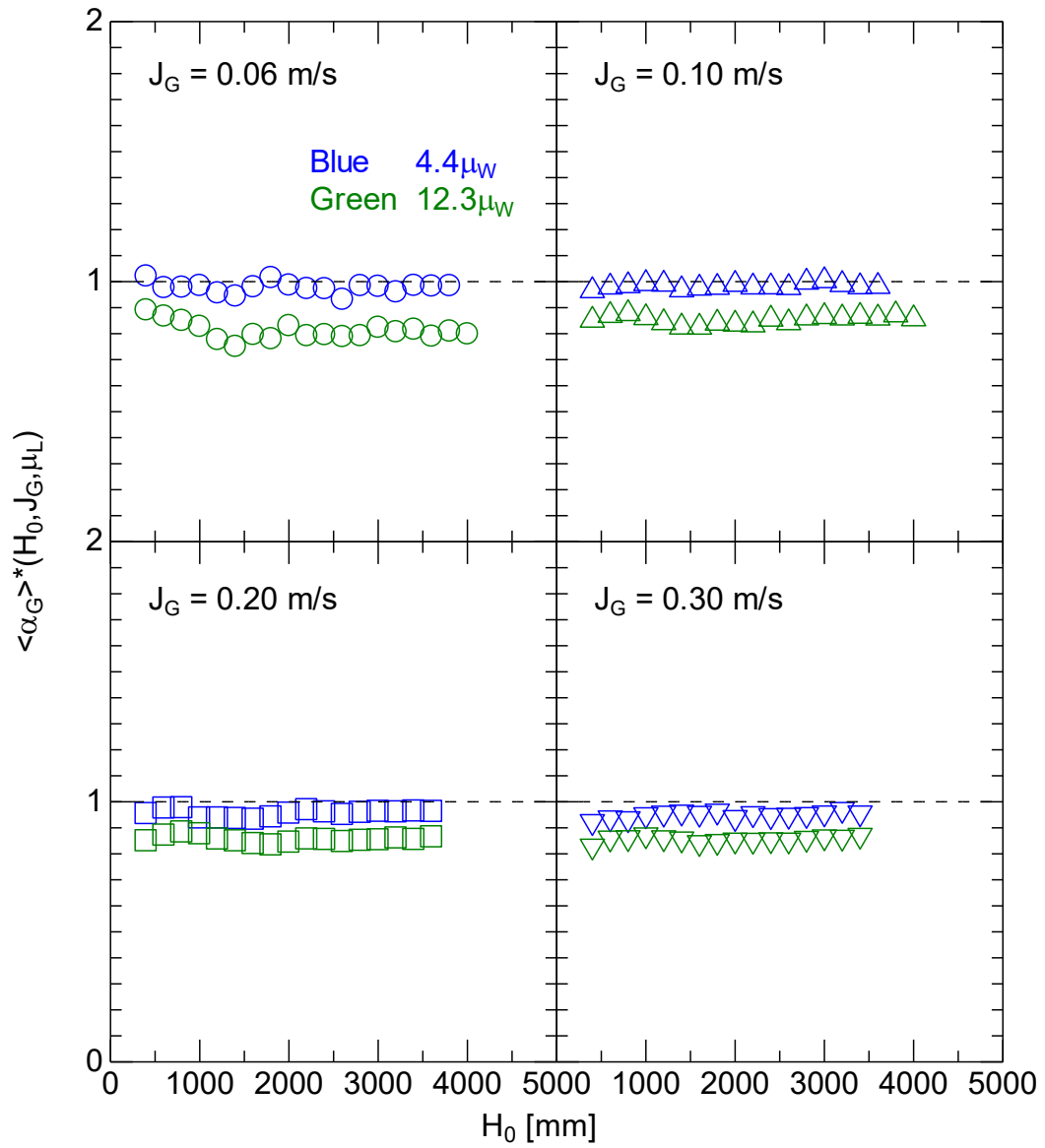


図 3.3 $\langle \alpha_G \rangle^*(H_0, J_G, \mu_L)$ と H_0 の関係

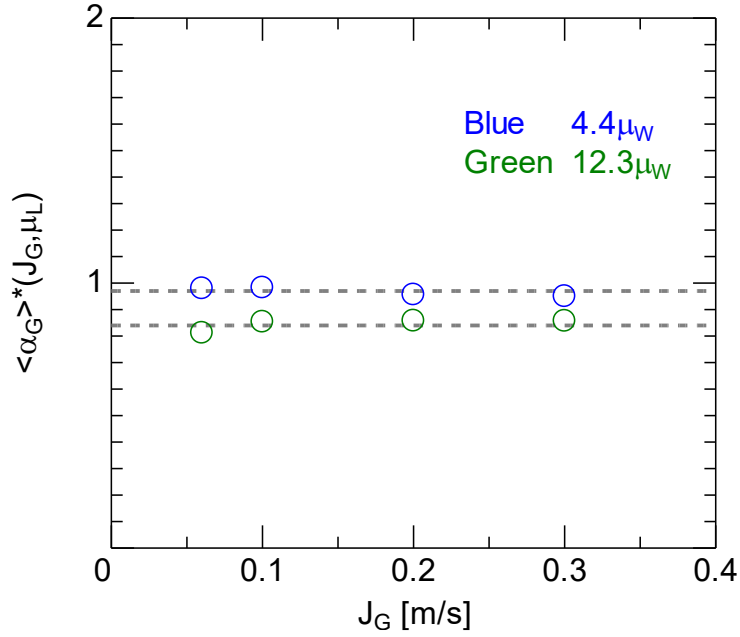


図 3.4 $\langle \alpha_G \rangle^*(J_G, \mu_L)$ と J_G の関係

3.3.2 液相粘度の影響を考慮した気泡塔内平均ボイド率相関式

第2章で導出した2領域モデルに基づく水-空気系気泡塔内平均ボイド率相関式に高液相粘度における液相粘度の影響を考慮する方法を検討する．第2章で導出したボイド率相関式は、

$$\langle \alpha_G \rangle = \frac{\langle \alpha_b \rangle + \langle \alpha_b \rangle \left(\frac{\langle \alpha_f \rangle}{\langle \alpha_b \rangle} - 1 \right) \frac{L_f}{H_0}}{1 + \langle \alpha_b \rangle \left(\frac{\langle \alpha_f \rangle}{\langle \alpha_b \rangle} - 1 \right) \frac{L_f}{H_0}} \quad (3.3)$$

である．ここで、 $\langle \alpha_b \rangle$ はバルク領域の体積平均ボイド率、 $\langle \alpha_f \rangle$ はフォーム領域の体積平均ボイド率、 L_f はフォーム領域の長さ [mm]である．第2章では、次に示す諸式により水-空気系の $\langle \alpha_G \rangle$ を良好に評価できることを示した．

$$\frac{\langle \alpha_b \rangle}{(1 - \langle \alpha_b \rangle)^4} = 0.24 \left(\frac{\rho_L g D_H^2}{\sigma} \right)^{1/8} \left(\frac{\rho_L^2 g D_H^3}{\mu_L^2} \right)^{1/12} \frac{J_G}{\sqrt{g D_H}} \quad (3.4)$$

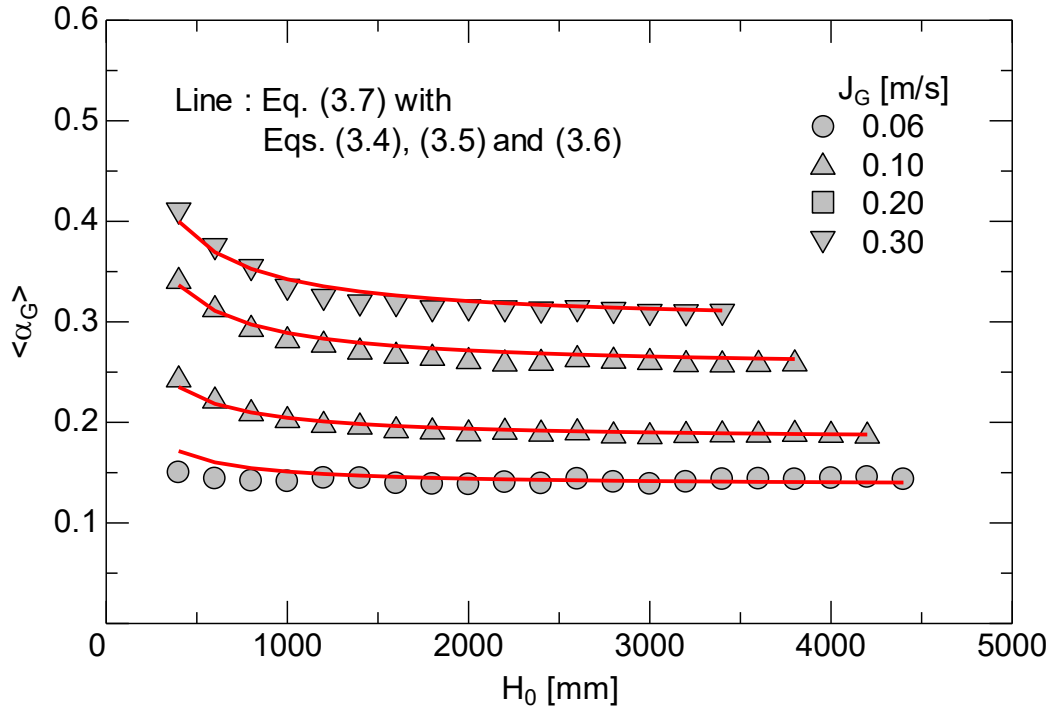
$$\langle \alpha_f \rangle = 0.18 \left[\left(\frac{\rho_L g D_H^2}{\sigma} \right)^{1/8} \left(\frac{\rho_L^2 g D_H^3}{\mu_L^2} \right)^{1/12} \frac{J_G}{\sqrt{g D_H}} \right]^{0.47} \quad (3.5)$$

$$L_f^* = \tanh(1.8 J_G^*) \quad (3.6)$$

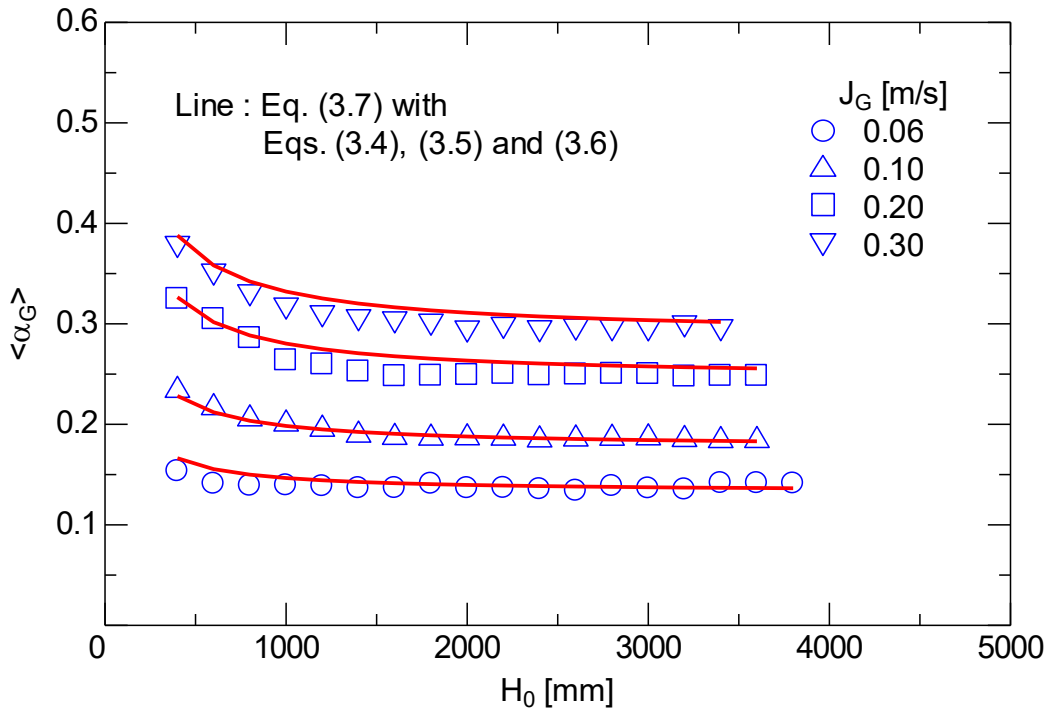
ここで、 D_H は塔径 [m]、 L_f^* は $J_G = 0.20$ m/s における L_f で規格化されたフォーム領域の長さ、 J_G^* は $J_G = 0.20$ m/s で規格化された気相体積流束を表す。前節で示したように H_0 及び J_G は $\langle \alpha_G \rangle$ の μ_L 依存性に殆ど影響を及ぼさない。従って、 μ_L が $\langle \alpha_G \rangle$ に及ぼす影響を表す $\langle \alpha_G \rangle^*(\mu_L)$ を式(3.3)に乗ずることで液相粘度の影響を考慮した以下のボイド率相関式が得られる。

$$\langle \alpha_G \rangle = \langle \alpha_G \rangle^*(\mu_L) \left[\frac{\langle \alpha_b \rangle + \langle \alpha_b \rangle \left(\frac{\langle \alpha_f \rangle}{\langle \alpha_b \rangle} - 1 \right) \frac{L_f}{H_0}}{1 + \langle \alpha_b \rangle \left(\frac{\langle \alpha_f \rangle}{\langle \alpha_b \rangle} - 1 \right) \frac{L_f}{H_0}} \right]_W \quad (3.7)$$

ここで、下付添字の W は水-空気系における値を表し、 $\langle \alpha_G \rangle^*(\mu_W) = 1$ 、 $\langle \alpha_G \rangle^*(4.4\mu_W) = 0.97$ 、 $\langle \alpha_G \rangle^*(12.3\mu_W) = 0.84$ である。図 3.5 に実験との比較を示す。式(3.4), (3.5), (3.6), (3.7)により μ_L が $\langle \alpha_G \rangle$ に及ぼす影響を良好に評価できている。全 μ_L における $\langle \alpha_G \rangle$ の実験値と計算値との比較を図 3.6 に示す。全実験データの 88%を誤差+5%以内で評価できている。

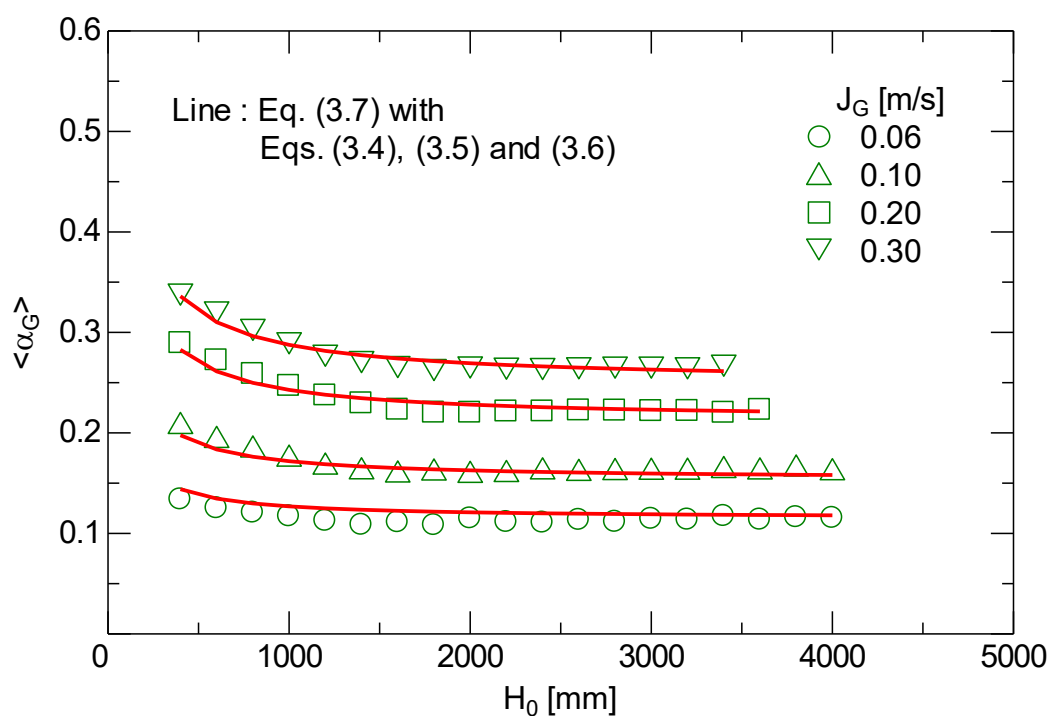


(a) $\mu_L = \mu_W$



(b) $\mu_L = 4.4\mu_W$

図 3.5 $\langle \alpha_G \rangle$ と式(3.4), (3.5), (3.6)及び(3.7)との比較



(c) $\mu_L = 12.3\mu_W$

図 3.5 Continued

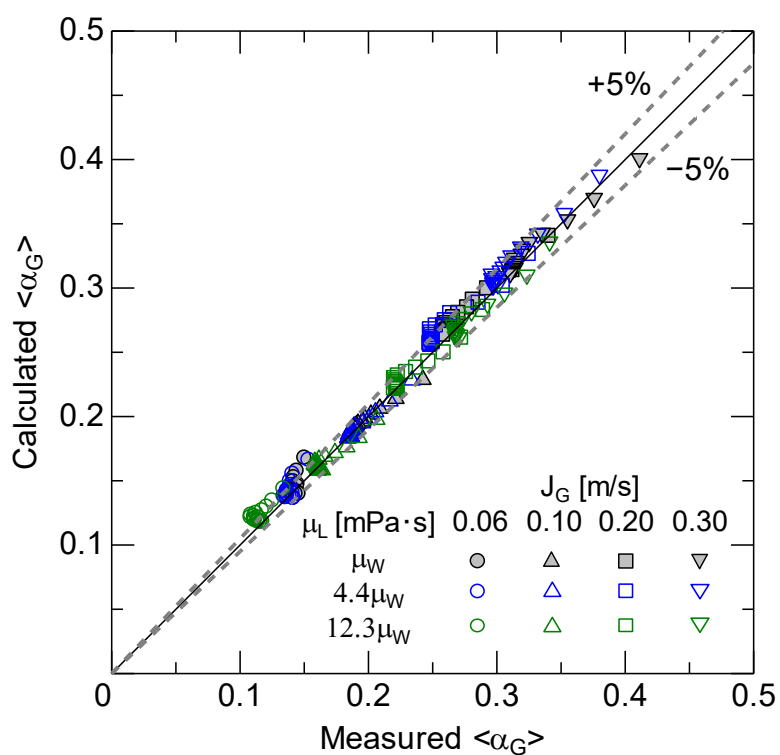


図 3.6 $\langle \alpha_G \rangle$ の実験値と計算値との比較

3.4 結言

本章では，グリセリン水溶液を液相に用いて，種々の液相粘度及び初期液位において気泡塔内平均ボイド率測定実験を実施し，液相粘度がボイド率に及ぼす影響を調べた．また，第 2 章において提案した水-空気系気泡塔内平均ボイド率相関式に液相粘度の影響を考慮する方法を検討した．得られた知見を以下に示す．

- (1) 幅広い初期液位において液相粘度が気塔内平均ボイド率に及ぼす影響に関する実験データベースを構築した．
- (2) 高液相粘度においては液相粘度増加に伴い気泡塔内平均ボイド率は減少する．この原因として，液相粘度増加に伴う気泡合体の促進によるボイド率の減少が抗力増加によるボイド率の増加よりも優位に働くことが考えられる．
- (3) 高液相粘度において初期液位及び気相体積流束はボイド率の液相粘度依存性に殆ど影響を及ぼさない．
- (4) 水-空気系用に提案した気泡塔内平均ボイド率相関式に液相粘度効果の乗数を導入することにより，水の 12 倍程度の高粘性流体までボイド率相関式を適用できる．

第 3 章の参考文献

- [1] 小島博光，気泡塔の工業的使用状況，化学装置 (2010).
- [2] Besagni, G., Inzoli, F., Guido, G.D., Pellegrini, L.A., The dual effect of viscosity on bubble column hydrodynamics, Chem. Eng. Sci. 158, pp. 509–538 (2017).
- [3] Olivieri, G., Russo, M.E., Simeone, M., Marzocchella, A., Salatino, P., Effects of viscosity and relaxation time on the hydrodynamics of gas-liquid systems, Chem. Eng. Sci. 66, pp. 3392–3399 (2011).

- [4] Ruzicka, M.C., Drahoš, J., Mena, P.C., Teixeira, J.A., Effect of viscosity on homogeneous-heterogeneous flow regime transition in bubble columns, *Chem. Eng. J.* 96, pp. 15–22 (2003).
- [5] Yoshida, F., Akita, K., Performance of gas bubble columns: volumetric liquid-phase mass transfer coefficient and gas holdup, *AIChE J* 11, pp. 9-13 (1965).
- [6] Hwang, S.J., Cheng, Y.L., Gas holdup and liquid velocity in three-phase internal-loop airlift reactors, *Chem. Eng. Sci.* 52, pp. 3949–3960 (1997).
- [7] Zahradník, J., Fialova, M., Ruzicka, M., Drahoš, J., Kaštánek, F., Thomas, N. H., Duality of the gas-liquid flow regimes in bubble column reactors, *Chem. Eng. Sci.* 52, pp. 3811–3826 (1997).
- [8] Yang, J.H., Yang, J.I., Kim, H.J., Chun, D.H., Lee, H.T., Jung, H., Two regime transitions to pseudo-homogeneous and heterogeneous bubble flow for various liquid viscosities, *Chem Eng Process* 49, pp. 1044–1050 (2010).
- [9] Mouza, A.A., Dalakoglou, G.K., Paras, S.V., Effect of liquid properties on the performance of bubble column reactors with fine pore spargers, *Chem. Eng. Sci.* 60, pp. 1465–1475 (2005).
- [10] Eissa, S.H., Schügerl, K., Holdup and backmixing investigations in cocurrent and countercurrent bubble columns, *Chem. Eng. Sci.* 30, pp. 1251–1256 (1975).
- [11] Xing, C., Wang, T., Wang, J., Experimental study and numerical simulation with a coupled CFD–PBM model of the effect of liquid viscosity in a bubble column, *Chem. Eng. Sci.* 95, pp. 313–322 (2013).
- [12] Kuncová, G., Zahradník, J., Gas holdup and bubble frequency in a bubble column reactor containing viscous saccharose solutions, *Chem Eng Process* 34, pp. 25–34 (1995).
- [13] Kim, J.H., Kim, B., Nho, N.S., Go, K.S., Kim, W., Bae, J.W., Jeong, S.W., Epstein, N., Lee, D.H., Gas holdup and hydrodynamic flow regime transition in bubble columns, *J Ind Eng Chem* 56, pp. 450–462 (2017).
- [14] 佐々木翔平, 気泡塔内ガスホールドアップに関する研究, 神戸大学博士論文 (2017).
- [15] Lin, S.Y., Mckeigue, K., Maldarelli, C., Diffusion-controlled surfactant adsorption studied by pendant drop digitization, *AIChE J* 36, pp. 1785–1795 (1990).

- [16]Pan, R., Green, J., Maldarelli, C., Theory and experiment on the measurement of kinetic rate constants for surfactant exchange at an air/water interface, *J. Colloid Interface Sci.* 205, pp. 213–230 (1998).

第 4 章

気泡塔内大・小気泡群のボイド率

4.1 緒言

現在、気泡塔設計において数値計算の活用が進められており、精度良い数値計算手法の開発が重要課題となっている。工業的に利用される気泡塔内の流動の多くは非均質気泡流であり[1], 気泡合体・分裂により気泡径分布の幅は大きい流れとなる。非均質気泡流において、大気泡の存在は塔内流動を理解する上で重要な因子であると考えられる。気相体積流束増加に伴い形成される大気泡の大きさが増大し、塔径規模の大気泡が生じることが報告されており[2], 気相体積流束増加に伴い大気泡が流動に及ぼす影響は大きくなると推測される。また、初期液位及び液相粘度の増加は気泡合体頻度の増加をもたらし、気泡塔内の大気泡の割合を増加させると考えられる。従って、数値予測精度の向上を図る上で、高気相体積流束において初期液位や液相粘度が大気泡群のボイド率に及ぼす影響を把握しておくことが重要である。大気泡群のボイド率を実験的に取得する方法として、大・小気泡の速度差に基づいた Dynamic gas disengagement (DGD) 法[3]があり、この方法を用いて大気泡群のボイド率が取得されてきた[4-18]。しかしながら、既存の研究においては初期液位及び塔径が気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響がほとんど考慮されておらず、高気相体積流束において初期液位や液相粘度が大・小気泡群のボイド率に及ぼす影響に関する系統的なデータは未だに得られていない。

本章では、塔径が塔内平均ボイド率に影響を及ぼさない塔径 200 mm の気泡塔に

において、高気相体積流束、種々の初期液位及び液相粘度における大・小気泡群のボイド率の実験データベース構築する。得られた実験データを基に初期液位、気相体積流束、液相粘度が大・小気泡群の体積流束とボイド率に及ぼす影響を考察する。

4.2 実験装置及び測定方法

4.2.1 実験装置及び実験条件

実験装置は第2章に示した気泡塔と同一である。気相には空気、液相には水道水及び水道水の4.4倍及び12.3倍の液相粘度のグリセリン水溶液を用いた。使用した液相の物性は第3章と同一である。

4.2.2 Dynamic gas disengagement(DGD)法

気泡塔内の大・小気泡群のボイド率をDGD法により取得した。DGD法では、気相供給を急停止した後の液面高さの減少速度を測定し、上昇速度に大きな差がある大・小気泡群のボイド率を決定する。通気時液面高さの時間平均値から気泡塔内平均ボイド率 $\langle\alpha_G\rangle$ を算出し、DGD法により大・小気泡群のボイド率を取得した。高速度ビデオカメラ(IDT, Motion Pro X-3)を用いて通気中の液面を30 s間撮影した後、気相供給を急停止し、液面高さの変化を撮影した。得られた連続画像に第2章に示した画像処理を適用し液面高さの時間変化を算出した。図4.1に水-空気系における液面高さ H の時間変化の一例を示す。ここで、 H_0 は初期液位 [mm]、 J_G は気相体積流束 [m/s]、 t は時間 [s]を表す。通気停止後($t \geq 0$ s)、大気泡及び小気泡は液中から大気中に放出されるため H は急激に減少する(Region 1)。大気泡の放出後は小気泡のみの放出となり、 H の減少は緩やかになる(Region 2)。Region 1における液面変化の勾配の絶対値は大・小気泡群の体積流束に相当し、通気時の気相体積流束と等しくなる[19, 20]。このため、Region 1における H の変化は、勾配を $-J_G$ 、切片を通気時液面高さの時間平均値とした直線で近似した。Region 2における液面高さのデータに対し最小二乗法による線形回帰を行った。Region 1及びRegion 2の近似直線の切片の値を H_1 及び H_2 、各Regionの近似直線の交点における液面高さを H_3 とする。Region 2における近似直線の傾きの絶対値が小気泡群体積流束 $J_{G,S}$ に相当する。また、大気泡群体積流束は $J_{G,L} = J_G - J_{G,S}$ となる。Region 1における大・小気泡

群の液面高さへの寄与はそれぞれ $H_1 - H_2$, $H_2 - H_3$ と表される. Region 2 における小気泡群の液面高さへの寄与は $H_3 - H_0$ と表される. 従って, 塔内平均ボイド率 $\langle \alpha_G \rangle$, 大気泡群のボイド率 $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ 及び小気泡群のボイド率 $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ を以下の諸式より算出できる.

$$\langle \alpha_G \rangle = \frac{H_1 - H_0}{H_1} \quad (4.1)$$

$$\langle \alpha_{G,L} \rangle = \frac{H_1 - H_2}{H_1} \quad (4.2)$$

$$\langle \alpha_{G,S} \rangle = \frac{H_2 - H_0}{H_1} \quad (4.3)$$

各ボイド率は5回の測定値の平均値とした. $\langle \alpha_G \rangle$, $\langle \alpha_{G,L} \rangle$, $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ の標準偏差の最大値はそれぞれ 0.0053, 0.0056, 0.0066 である. 以下, 各図中のエラーバーは95%信頼区間を表す.

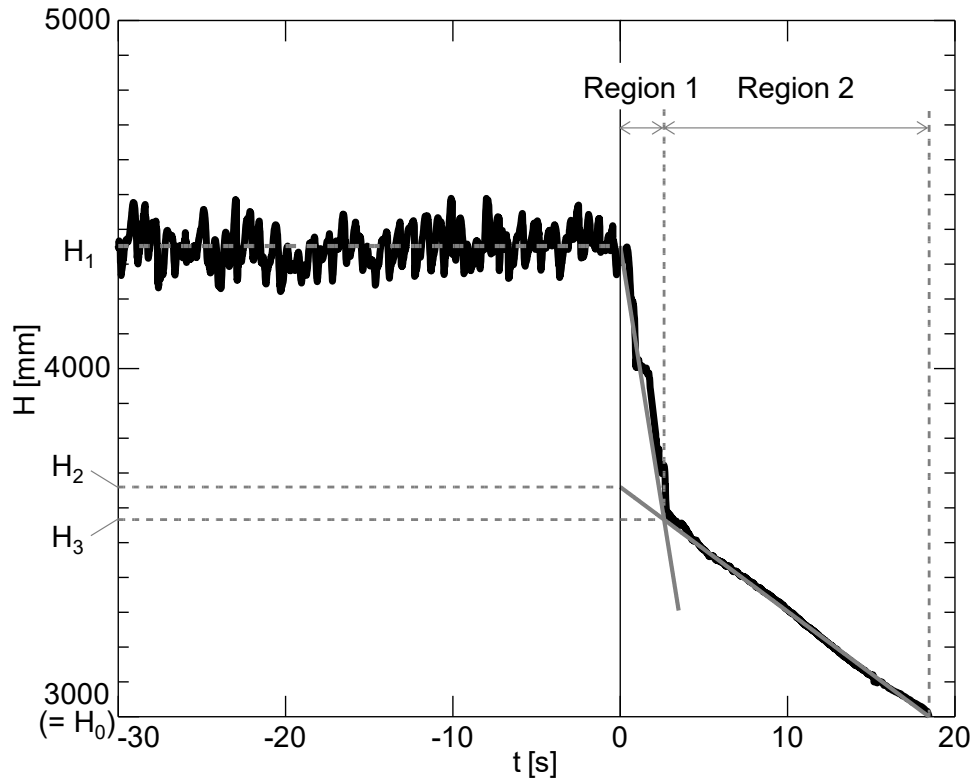


図 4.1 DGD 法における H の時間変化 ($H_0 = 3000$ mm, $J_G = 0.30$ m/s)

4.3 実験結果及び考察

$\langle\alpha_G\rangle$ の H_0 依存性が無視できる $H_0=2400$ mmにおいて, J_G が水-空気系の $\langle\alpha_G\rangle$ 及び $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ に及ぼす影響を図4.2に示す. ここで, μ_L は液相粘度 [mPa・s], μ_W は水道水の粘度 [mPa・s]である. J_G 増加に伴い $\langle\alpha_G\rangle$ 及び $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ は増加する. J_G 増加に伴い気泡数密度が増加し, 気泡間距離が減少する. その結果, 気泡合体頻度が増加するため $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ が増加したと考えられる. また, $\langle\alpha_G\rangle$ と $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ の差である $\langle\alpha_{G,S}\rangle$ も J_G 増加に伴い多少増加している. $H_0=3000$ mm 及び $\langle\alpha_G\rangle$ が H_0 に依存する $H_0=800, 1600$ mm においても $\langle\alpha_G\rangle$, $\langle\alpha_{G,L}\rangle$, $\langle\alpha_{G,S}\rangle$ に関して同様の J_G 依存性を確認した.

図4.3に種々の H_0 が水-空気系の $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ に及ぼす影響を示す. $J_G\leq 0.10$ m/s において H_0 増加に伴い $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ は減少し, $H_0\geq 2400$ mm では $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ は概ね一定となる. 一方, $J_G\geq 0.20$ m/s において $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ は H_0 に依らず概ね一定となる. 図4.4に各 H_0 における大気泡群体積流束 $J_{G,L}$ を示す. J_G 増加に伴い $J_{G,L}$ は増加し, いずれの H_0 においても $J_{G,L}$ は概ね一定である. 従って, H_0 は $J_{G,L}$ に殆ど影響を及ぼさない. 図4.5に $H_0=800$ 及び 3000 mm において, 高さ $H_1/2$ で通気時に観察された最大程度の大気泡を示す. 破線は大気泡の界面を表す. $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ が減少する領域である $H_0=800$ mm, $J_G\leq$

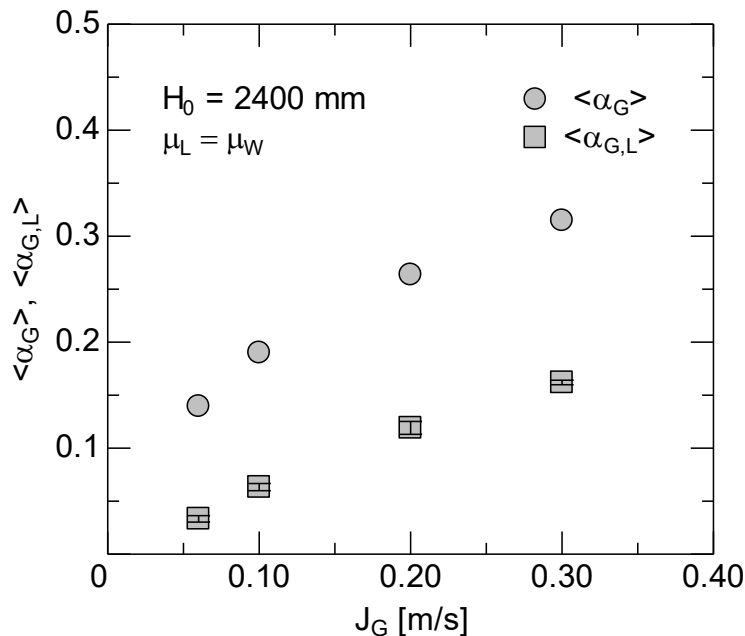


図4.2 J_G が $\langle\alpha_G\rangle$ 及び $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ に及ぼす影響

0.10 m/s において大気泡の横幅は塔半径以下である．一方， $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ が概ね一定となる $H_0 = 800$ mm, $J_G \geq 0.20$ m/s 及び $H_0 = 3000$ mm のいずれの J_G においても，大気泡の横幅は塔半径以上であり， H_0 または J_G の増加に伴い大気泡長さは増加している．大気泡の横幅と H_0 及び J_G の関係をより詳細に検討するため，DGD 法で使用した流動画像において観察できた大気泡に対し，その横幅が最も大きくなる瞬間の水平方向サイズ W [m]をピクセル数から算出した． W は 10 個以上の測定値の平均値とした．大気泡の水平方向サイズと塔径 D_H [m]の比 W/D_H と H_0 の関係及び W/D_H と J_G の関係をそれぞれ図 4.6 及び図 4.7 に示す． H_0 及び J_G の増加に伴い W/D_H は増加する． H_0 増加に伴い $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ が減少する領域において W/D_H は 0.5 未満であり， $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ が概ね一定となる領域において W/D_H は 0.5 程度以上となる．

図 4.4，図 4.6 及び図 4.7 の結果を基に，図 4.3 における H_0 が $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ に及ぼす影響について考察する．気泡径 d [m]を代表長さとしたエトベス数 Eu は次式で表される．

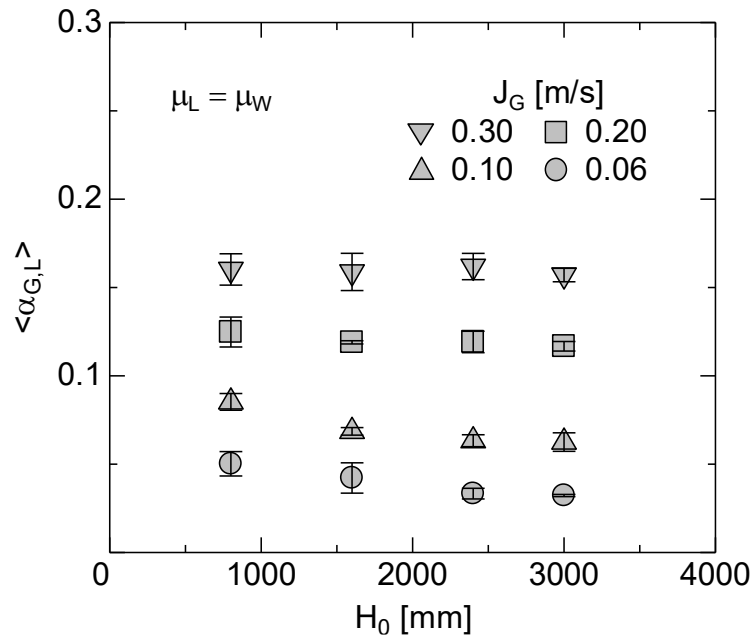
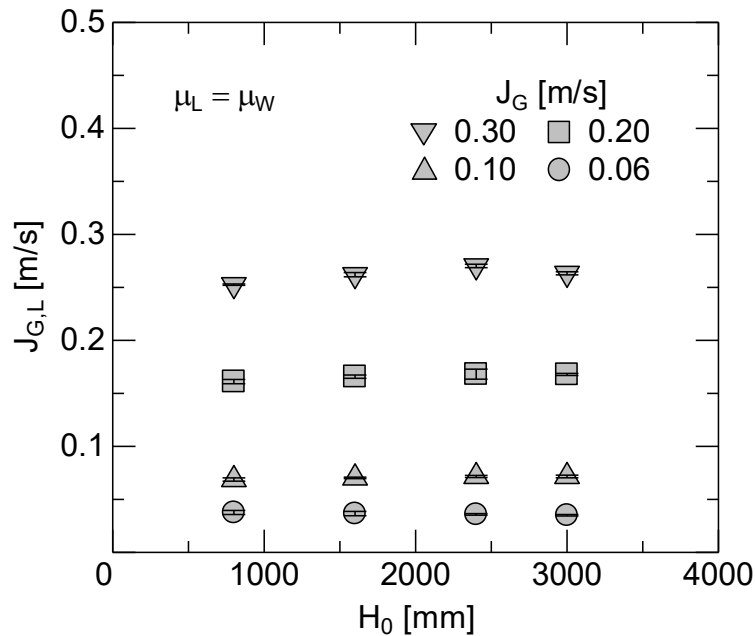


図 4.3 H_0 が $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ に及ぼす影響

$$Eo = \frac{(\rho_L - \rho_G)gd^2}{\sigma} \quad (4.4)$$

ここで、 ρ_L は液相密度 [kg/m^3], ρ_G は気相密度 [kg/m^3], g は重力加速度 [m/s^2], σ は表面張力 [N/m]である. 管内を上昇する Eo が 40 以上の単一気泡の終端速度に係る代表長さは, 気泡径が管径の約 0.6 倍以下の場合には気泡径となり, それよりも大きい場合は管径となる[21]. 気泡径支配領域では, 終端速度は気泡径の増加に伴い管径支配領域の終端速度に漸近するように増加する[21]. $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ が減少する領域においては W/D_H は 0.5 未満であり, H_0 増加に伴い大気泡の横幅が増加するため, 気泡径が増加し, 気泡径増加により上昇速度が増加する. 加えて, $J_{G,L}$ が H_0 に依存しないことから, H_0 増加に伴い $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ が減少したと考えられる. $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ が概ね一定となる領域では, W/D_H は 0.5 程度以上であるため, 大気泡の上昇速度は気泡径に依存しないといえる. また, この領域においても $J_{G,L}$ は H_0 に依存しない. このため, $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ が概ね一定となったといえる.


 図 4.4 H_0 が $J_{G,L}$ に及ぼす影響

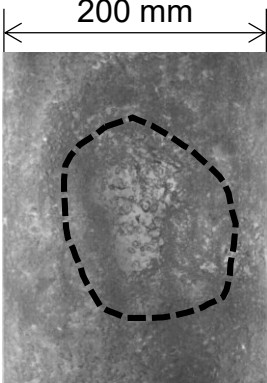
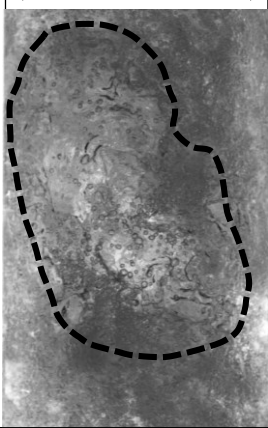
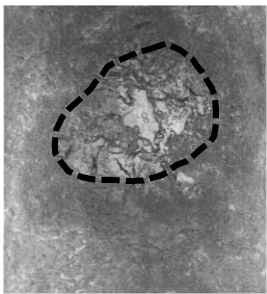
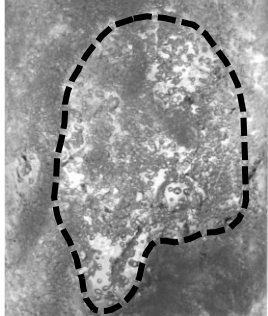
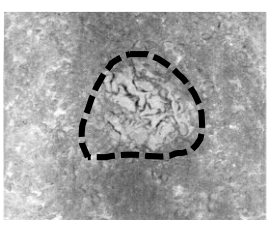
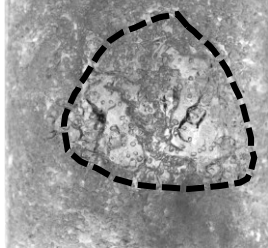
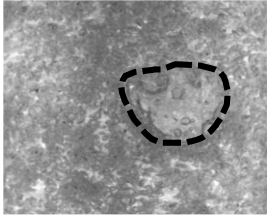
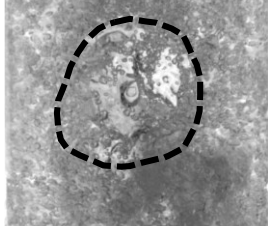
J_G [m/s]	$H_0 = 800$ mm	$H_0 = 3000$ mm
0.30		
0.20		
0.10		
0.06		

図 4.5 通気時に観察された大気泡($\mu_L = \mu_W$)

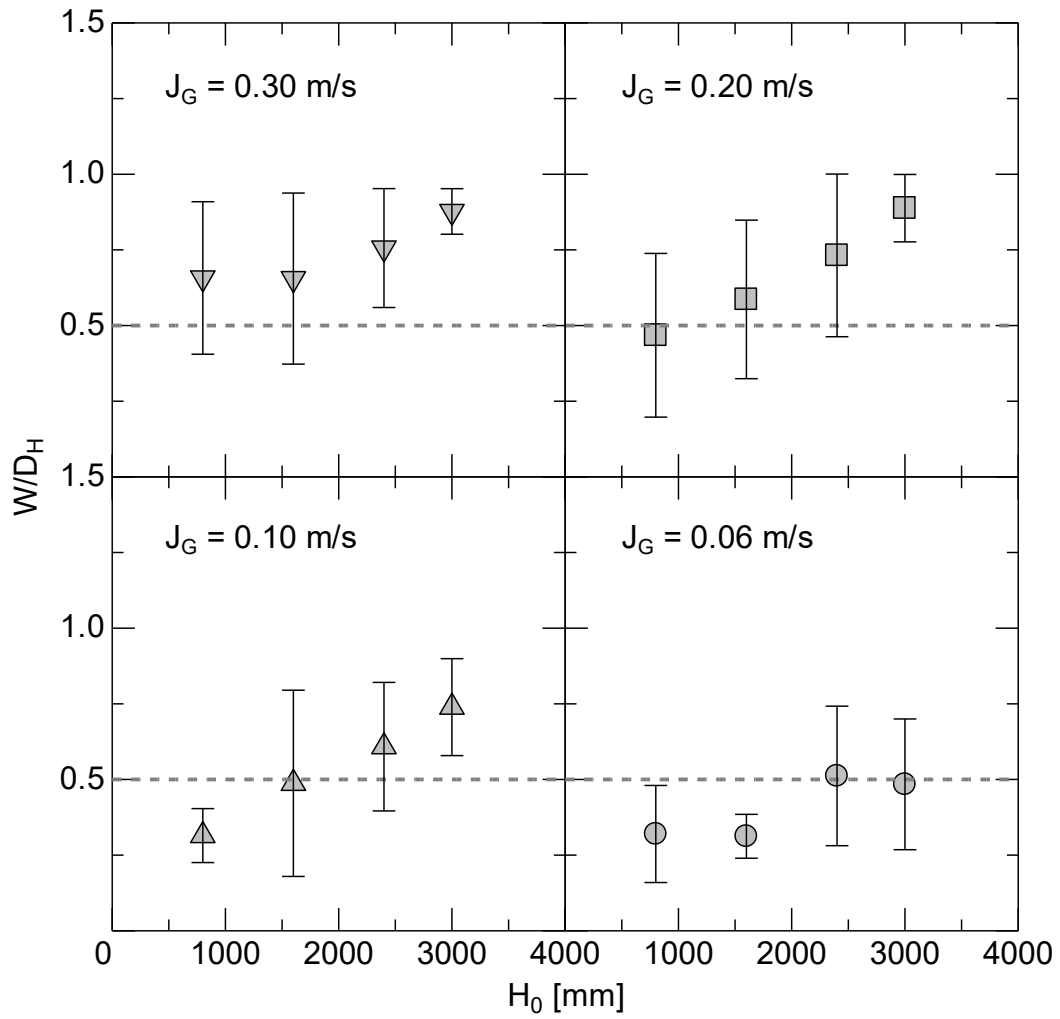


図 4.6 H_0 が W/D_H に及ぼす影響($\mu_L = \mu_W$)

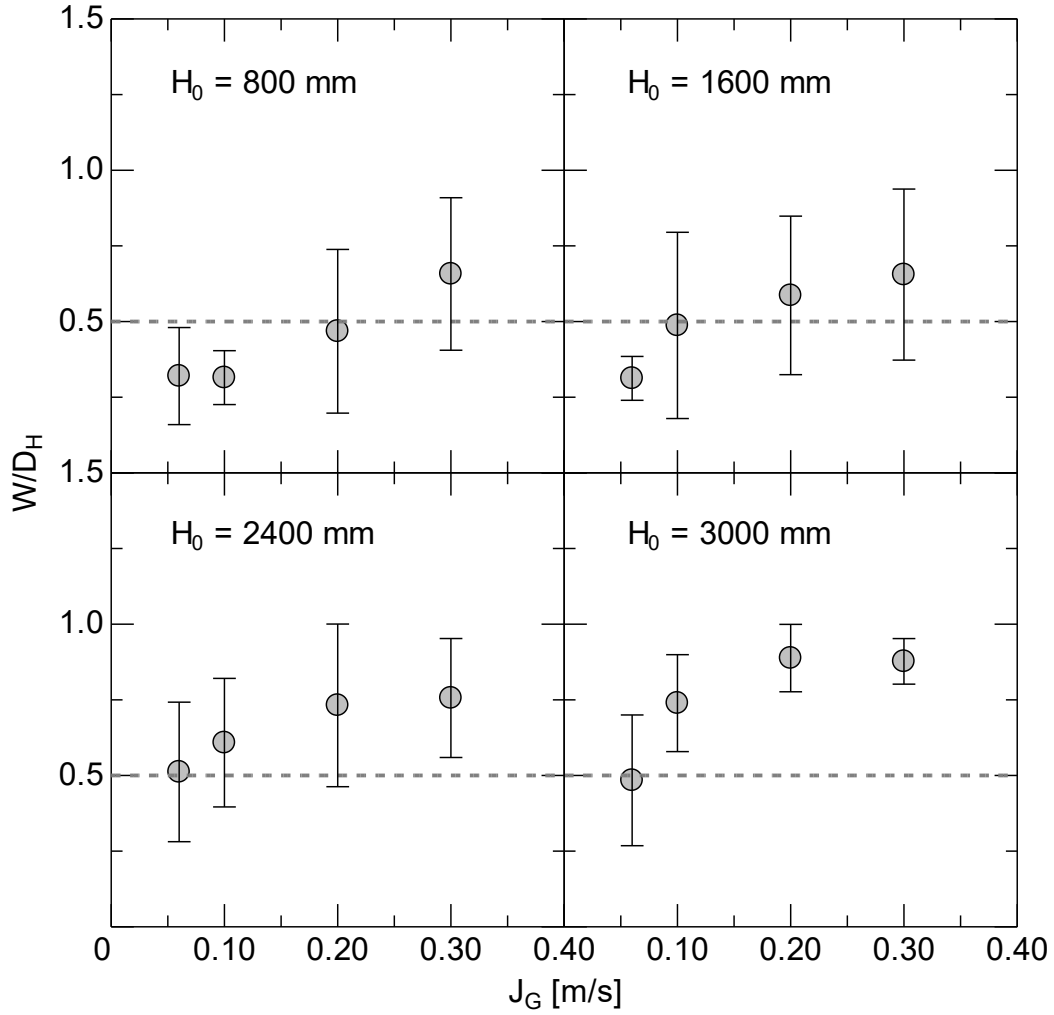
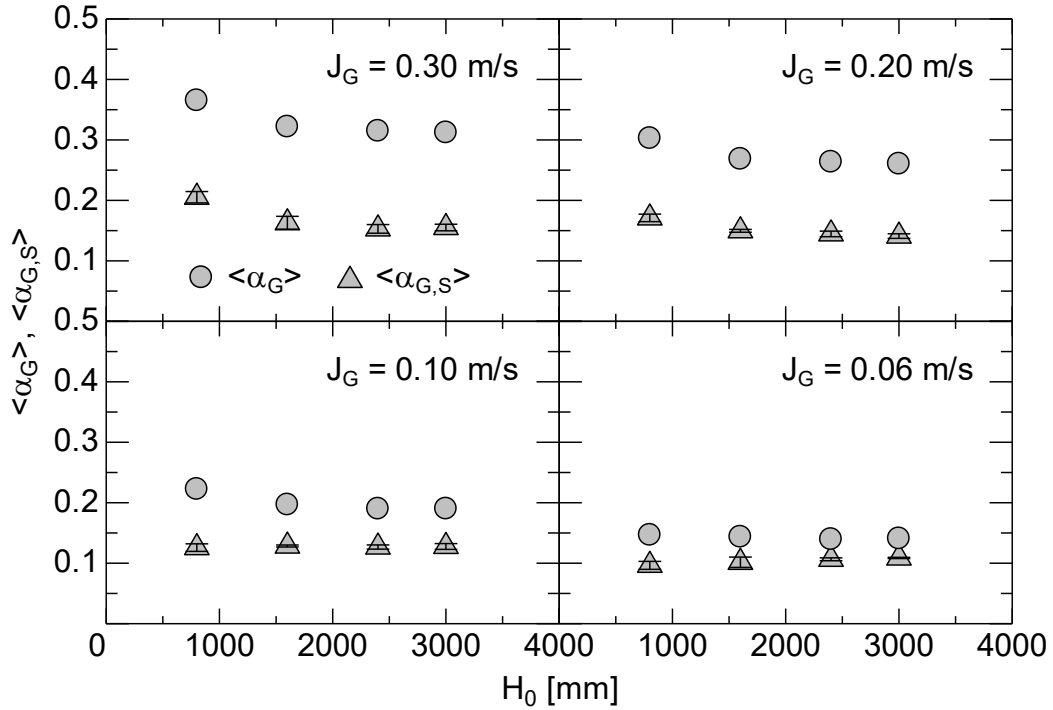

 図 4.7 J_G が W/D_H に及ぼす影響($\mu_L = \mu_W$)

図 4.8 に種々の H_0 及び J_G における $\langle \alpha_G \rangle$ と $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ の関係を示す．いずれの J_G においても H_0 増加に伴い $\langle \alpha_G \rangle$ は減少し，ある H_0 以上において $\langle \alpha_G \rangle$ は H_0 に依らず一定となる． $J_G = 0.06$ m/s においては H_0 増加に伴い $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ はわずかに増加する． H_0 増加に伴い $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ は $H_0 < 2400$ mm において減少し， $H_0 \geq 2400$ mm において概ね一定であった． $H_0 < 2400$ mm において H_0 増加に伴う $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ の減少率は $\langle \alpha_G \rangle$ の減少率よりも大きいため， $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ はわずかに増加する． $J_G = 0.10$ m/s においては $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ は H_0 に依らず概ね一定となる． H_0 増加に伴い $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ は $H_0 < 2400$ mm において減少し， $H_0 \geq 2400$ mm において概ね一定であった． $H_0 < 2400$ mm において H_0 増加に伴う $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ の減少率は $\langle \alpha_G \rangle$ の減少率と同程度であるため， $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ は H_0 に依らず概ね一定とな


 図 4.8 $\langle \alpha_G \rangle$ と $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ の関係 ($\mu_L = \mu_W$)

る. $J_G \geq 0.20 \text{ m/s}$ においては H_0 増加に伴い $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ は減少する. $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ が H_0 に対して一定であるため, $\langle \alpha_G \rangle$ と $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ の H_0 依存性は同様となる.

$\langle \alpha_G \rangle$ の H_0 依存性が無視できる $H_0 = 2400 \text{ mm}$ において, μ_L が $\langle \alpha_G \rangle$ 及び $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ の J_G 依存性に及ぼす影響を図 4.9 に示す. μ_L 増加に伴い $\langle \alpha_G \rangle$ は減少する. 一方, $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ は μ_L に依らず同程度の値となる. 従って, $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ は μ_L 増加に伴い減少する. いずれの μ_L においても J_G 増加に伴い $\langle \alpha_G \rangle$, $\langle \alpha_{G,L} \rangle$, $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ は増加する. $\langle \alpha_G \rangle$ が H_0 に依存する $H_0 = 800$ 及び 1600 mm においても $\langle \alpha_G \rangle$, $\langle \alpha_{G,L} \rangle$, $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ は同様の μ_L 及び J_G 依存性を示すことを確認した.

図 4.10 に μ_L が $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ に及ぼす影響を示す. いずれの H_0 及び J_G においても, μ_L は $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ に影響を及ぼしていない. 図 4.11 に各 H_0 における μ_L と $J_{G,L}$ の関係を示す. μ_L は $J_{G,L}$ に殆ど影響を及ぼしていない. 種々の μ_L における W/D_H と H_0 の関係及び W/D_H と J_G の関係をそれぞれ図 4.12 及び図 4.13 に示す. $\mu_L = 4.4\mu_W$ 及び $12.3\mu_W$ において, $\mu_L = \mu_W$ の場合と同様に H_0 及び J_G の増加に伴い W/D_H は増加し, H_0 増加に伴い $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ が減少する領域において W/D_H は 0.5 未満であり, $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ が概ね一定となる領域において W/D_H は 0.5 程度以上となる. また, μ_L 増加に対し W/D_H は増加あるいは

は概ね一定となる．ここで，モルトン数 M 及び D_H を代表長さとしたエトベス数 Eo_D は次式で表される．

$$M = \frac{\mu_L^4 (\rho_L - \rho_G) g}{\rho_L^2 \sigma^3} \quad (4.5)$$

$$Eo_D = \frac{(\rho_L - \rho_G) g D_H^2}{\sigma} \quad (4.6)$$

本実験条件において $\log M \leq -6.2$ であり Eo_D は 5400 以上と極めて大きいため，大気泡上昇速度は慣性力支配であり，液相粘度の影響は無視できる[22, 23]．以上， $J_{G,L}$ 及び上昇速度が μ_L に依存しないため $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ が μ_L に依存しないことがわかった．

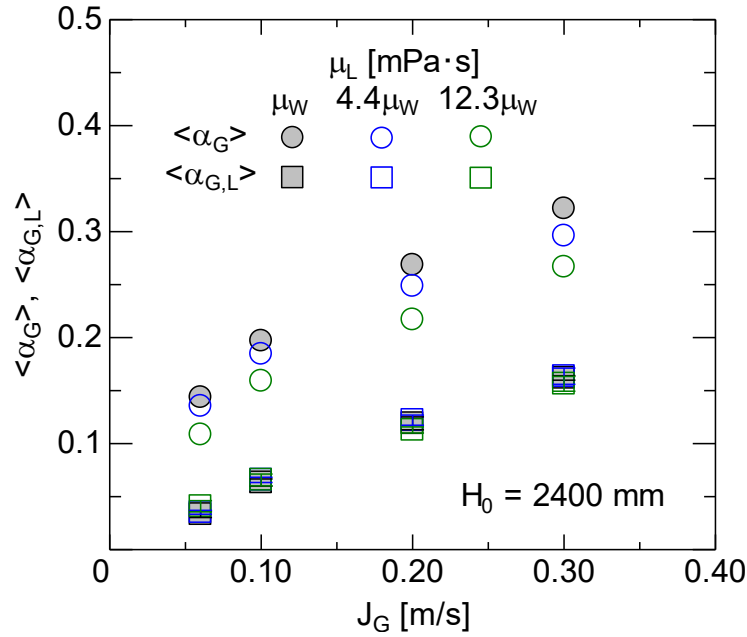


図 4.9 μ_L が $\langle \alpha_G \rangle$ 及び $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ の J_G 依存性に及ぼす影響

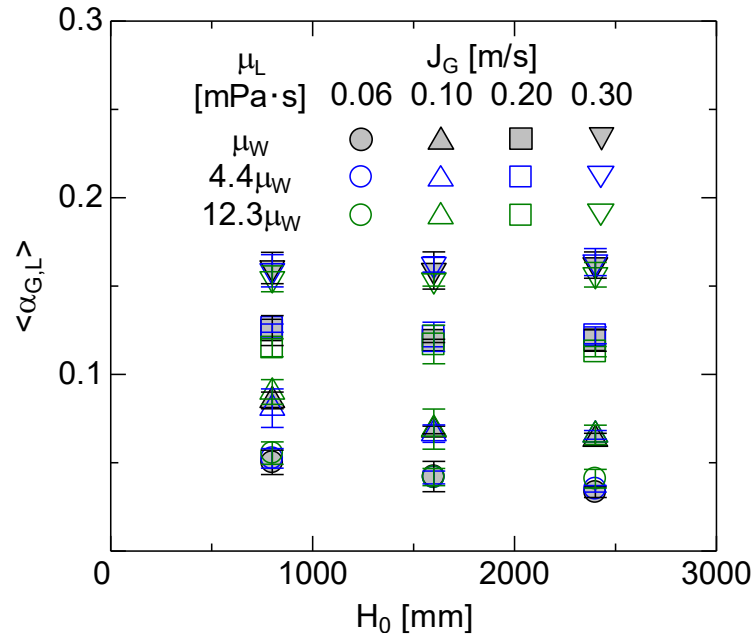


図 4.10 μ_L が $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ に及ぼす影響

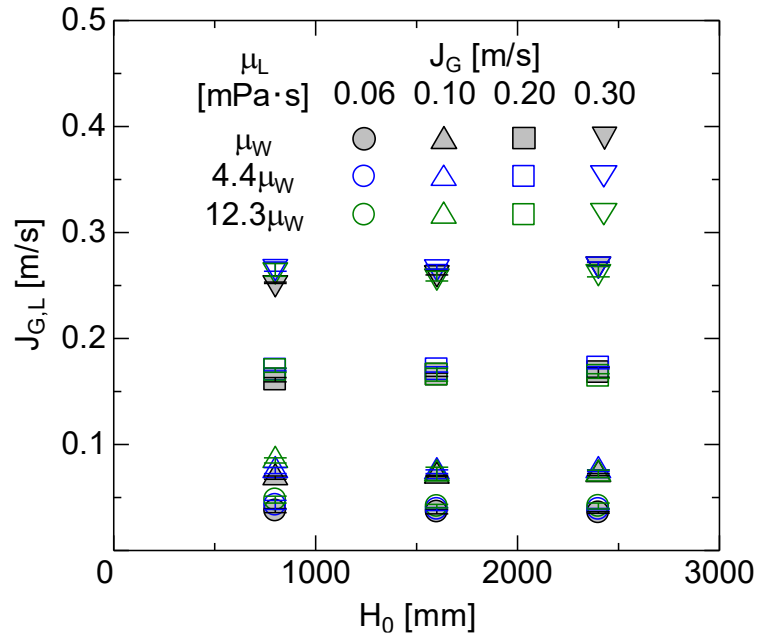


図 4.11 μ_L が $J_{G,L}$ に及ぼす影響

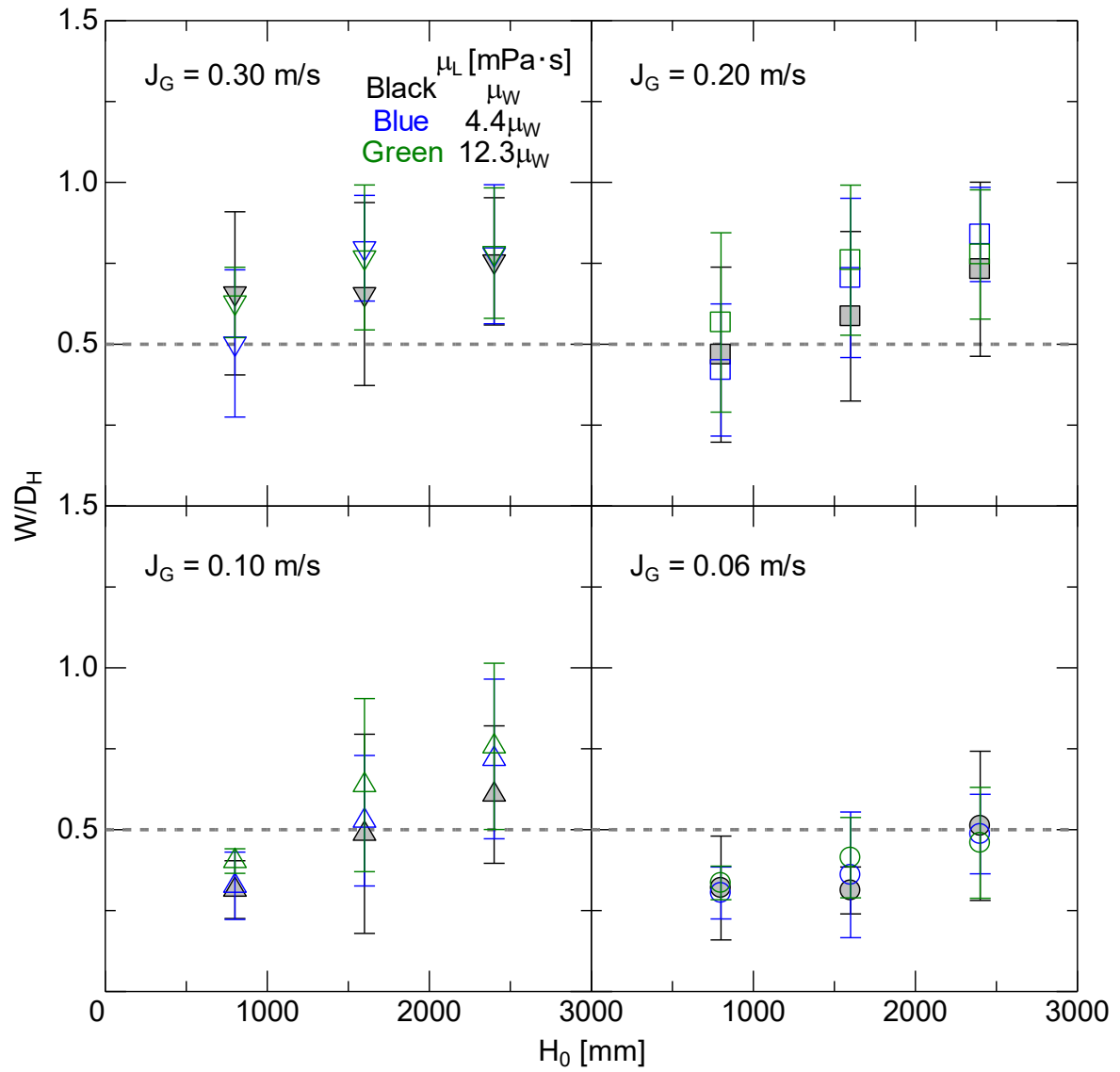


図 4.12 μ_L が W/D_H の H_0 依存性に及ぼす影響

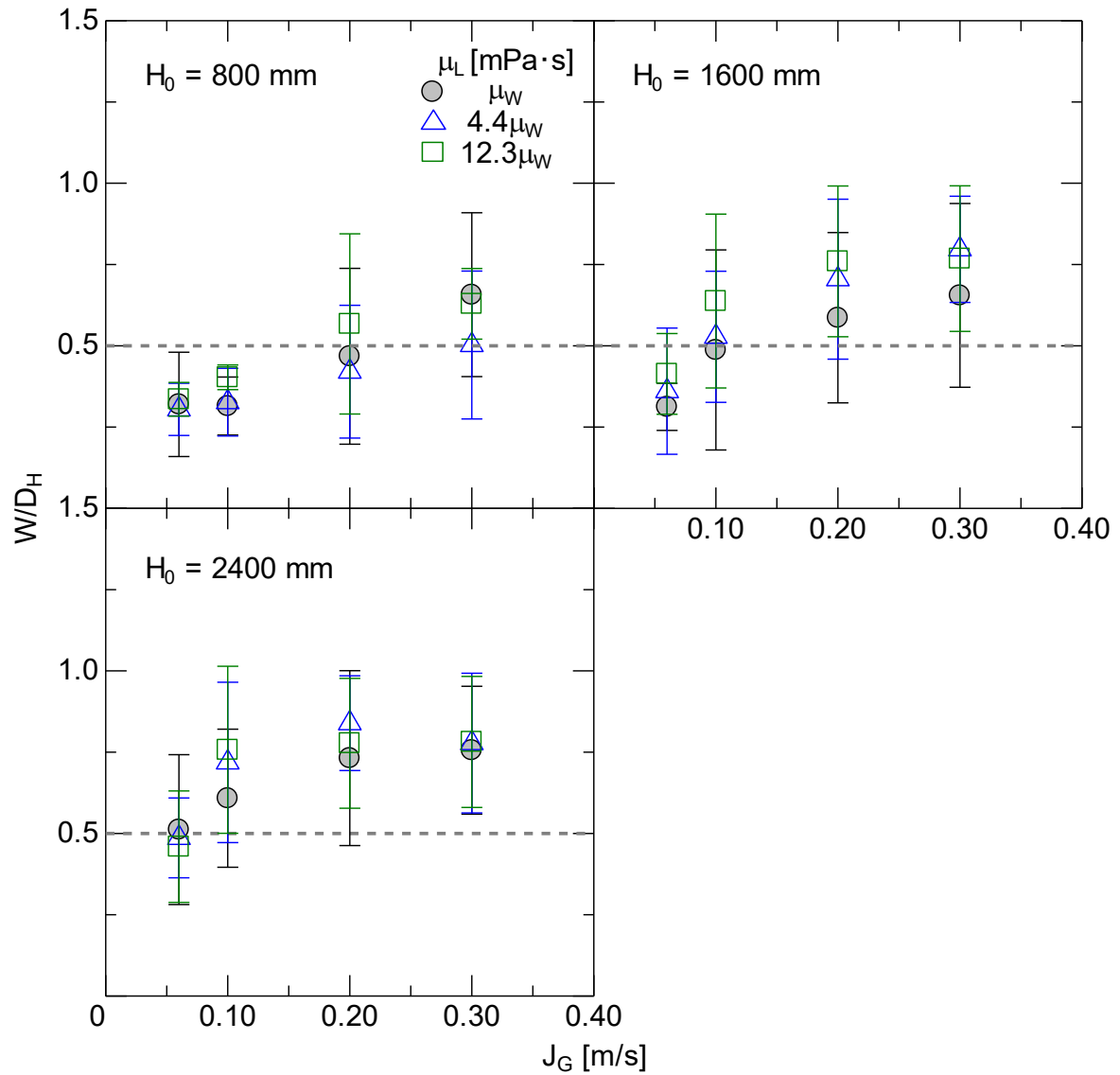


図 4.13 μ_L が W/D_H の J_G 依存性に及ぼす影響

図 4.14 に $\mu_L = 4.4\mu_W$ 及び $12.3\mu_W$ における $\langle\alpha_G\rangle$ と $\langle\alpha_{G,s}\rangle$ の関係を示す. いずれの μ_L においても H_0 増加に伴い $\langle\alpha_G\rangle$ は減少する. H_0 増加に伴い $J_G = 0.06$ m/s では $\langle\alpha_{G,s}\rangle$ はわずかに増加し, $J_G = 0.10$ m/s では $\langle\alpha_{G,s}\rangle$ は概ね一定であり, $J_G \geq 0.20$ m/s では $\langle\alpha_{G,s}\rangle$ は減少する. 第 3 章に示したように $\langle\alpha_G\rangle$ の H_0 依存性は各 μ_L で同様の傾向を示し, $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ は μ_L に依存しない. 従って, $\langle\alpha_{G,s}\rangle$ の H_0 依存性は μ_L に依らない.

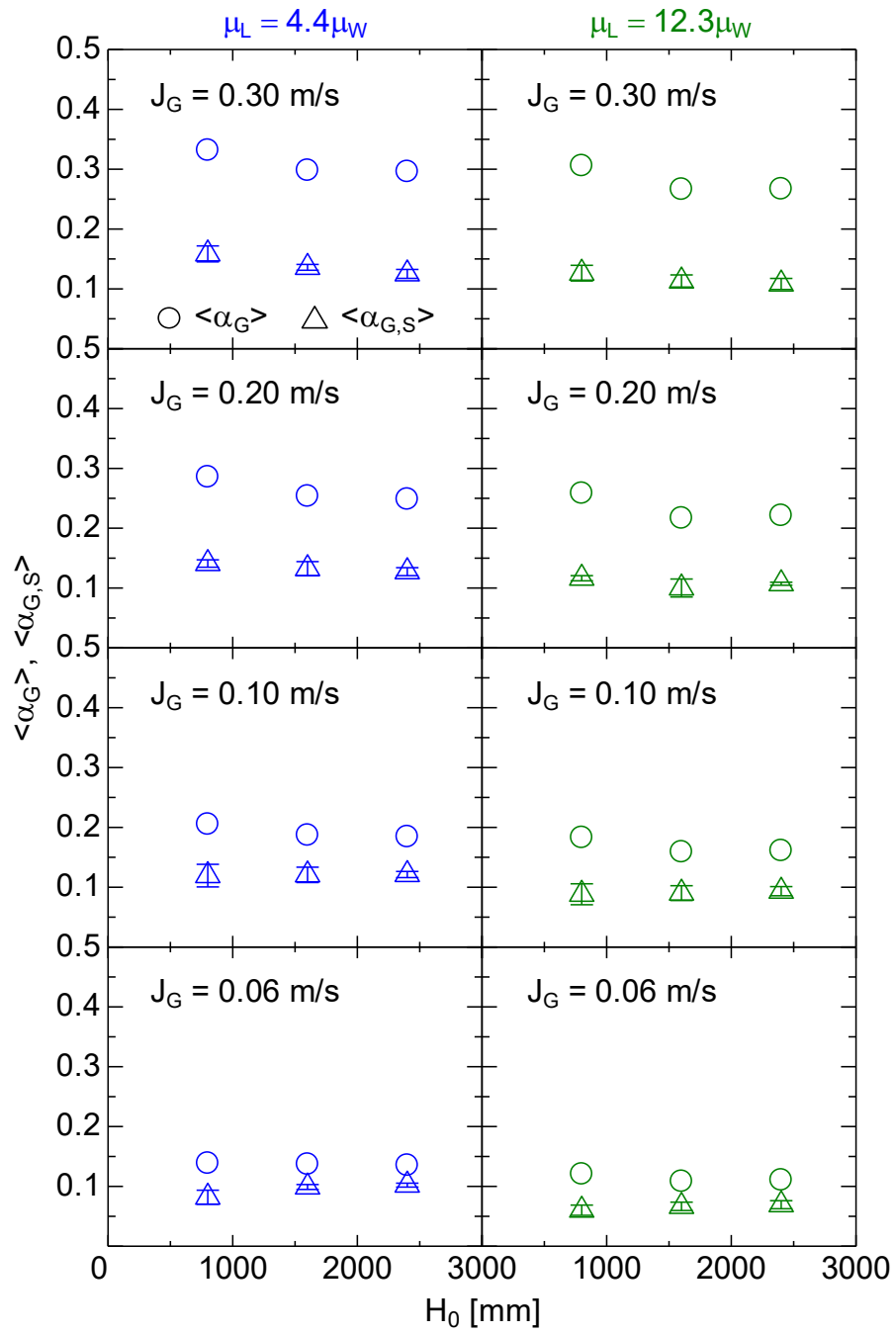

 図 4.14 α_G と $\alpha_{G,s}$ の関係 ($\mu_L = 4.4$ and $12.3\mu_W$)

図 4.15 に各 H_0 , J_G , μ_L における $\langle\alpha_G\rangle$ に対する $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ の割合 $\langle\alpha_{G,L}\rangle/\langle\alpha_G\rangle$ を示す. いずれの H_0 においても J_G 及び μ_L 増加に伴い $\langle\alpha_{G,L}\rangle/\langle\alpha_G\rangle$ は増加する. $J_G \leq 0.10$ m/s において, H_0 増加に伴い $\langle\alpha_{G,L}\rangle/\langle\alpha_G\rangle$ は減少する. $J_G \geq 0.20$ m/s において, H_0 増加に伴い $\langle\alpha_{G,L}\rangle/\langle\alpha_G\rangle$ は増加し, $H_0 \geq 1600$ mm で $\langle\alpha_{G,L}\rangle/\langle\alpha_G\rangle$ は概ね一定となる. これらの結果は数値計算手法の検証に活用できると考えられる. 本実験で得られた $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ 及び $\langle\alpha_{G,S}\rangle$ を付録 A.6 に整理しておく.

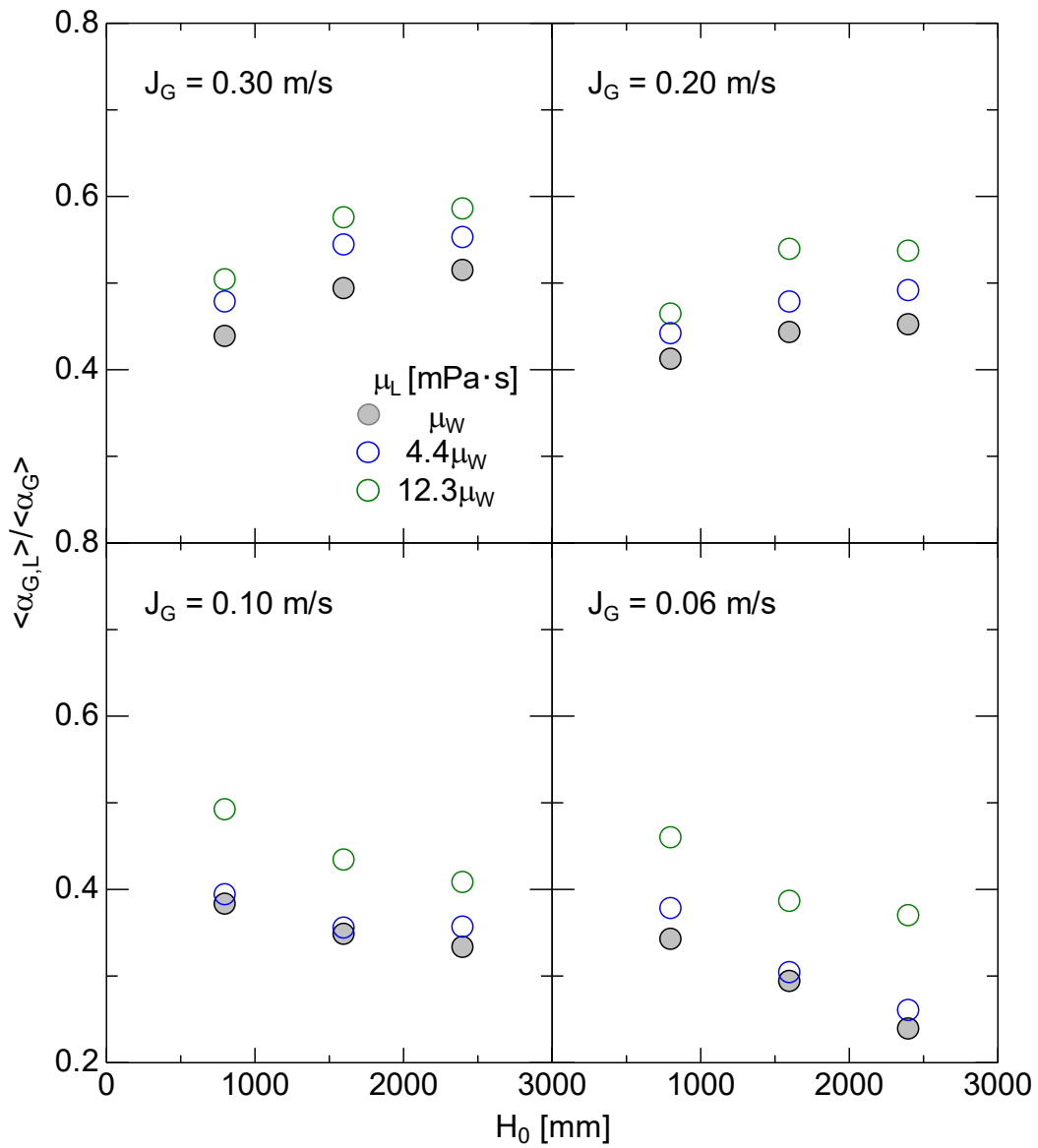


図 4.15 $\langle\alpha_G\rangle$ に対する $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ の割合

4.4 結言

本章では、塔径が塔内平均ボイド率に影響を及ぼさない塔径 200 mm の気泡塔において、高気相体積流束、種々の初期液位及び液相粘度における大・小気泡群のボイド率の実験データベース構築した。得られた実験データを基に初期液位 H_0 、気相体積流束 J_G 、液相粘度 μ_L が大・小気泡群の体積流束とボイド率に及ぼす影響を考察した。得られた知見を以下に示す。

- (1) 高気相体積流束、種々の初期液位及び液相粘度において大・小気泡群のボイド率の実験データベースを得た。
- (2) H_0 が一定 ($800 \leq H_0 \leq 3000$ mm) の場合、 J_G 増加に伴い大・小気泡群のボイド率は増加する。
- (3) 塔半径程度未満の横幅を有する大気泡が形成される J_G において、大気泡群体積流束は H_0 に依存せず、 H_0 増加に伴う大気泡の気泡径増加による上昇速度増加のため、大気泡群のボイド率 $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ は H_0 増加に伴い減少する。また、この J_G において H_0 増加に伴う気泡径増加により大気泡の横幅が塔半径程度以上となるため、ある H_0 以上においては $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ は概ね一定となる。一方、塔半径程度以上の横幅を有する大気泡が形成される J_G においては、大気泡の上昇速度が気泡径に依存しないため、 $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ は H_0 に依存せず概ね一定となる。
- (4) 大気泡群体積流束及び上昇速度が μ_L に依存しないため、 μ_L は $\langle \alpha_{G,L} \rangle$ に影響を及ぼさない。
- (5) 小気泡群のボイド率 $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ は塔内平均ボイド率と大気泡群のボイド率の差であるため、 $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ の H_0 依存性は J_G 増加に伴い正の依存性から負の依存性に变化した。
- (6) μ_L 増加に伴い $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ は減少するが、 $\langle \alpha_{G,S} \rangle$ の H_0 依存性は μ_L に依らない。これは、

μ_L 増加に伴い $\langle\alpha_{G,S}\rangle$ が減少するとともに、その H_0 依存性は変化せず、 $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ は μ_L に依存しないためである。

第4章の参考文献

- [1] Krishna, R., Ellenberger, J., Gas holdup in bubble column reactors operating in the churn-turbulent flow regime, *AIChE J* 42, pp. 2627–2634 (1996).
- [2] Sasaki, S., Uchida, K., Hayashi, K., Tomiyama, A., Effects of Liquid Height on Gas Holdup in Air–Water Bubble Column, *Exp. Therm. Fluid Sci.* 72, pp. 67–74 (2016).
- [3] Sriram, K., Mann, R., Dynamic Gas Disengagement: a New Technique for Assessing the Behavior of Bubble Columns, *Chem. Eng. Sci.* 32, pp. 571–580 (1977).
- [4] Ellenberger, J., Krishna, R., A unified approach to the scale-up of gas–solid fluidized bed and gas–liquid bubble column reactors, *Chem. Eng. Sci.* 49, pp. 5391–5411 (1994).
- [5] Krishna, R. de Swart, J.W.A., Ellenberger, J., Martina, G.B., Maretto, C., Gas holdup in slurry bubble columns: effect of column diameter and slurry concentrations, *AIChE J* 43, pp. 311–316 (1997).
- [6] Krishna, R., Urseanu, M. I., de Swart, J.W.A., Ellenberger, J., Gas hold-up in bubble columns: Operation with concentrated slurries versus high viscosity liquid, *Can J Chem Eng* 78, pp. 442–448 (2000).
- [7] Krishna, R., van Baten, J. M., Urseanu, M.I., Ellenberger, J., Design and scale up of a bubble column slurry reactor for Fischer–Tropsch synthesis, *Chem. Eng. Sci.* 56, pp. 537–545 (2001).
- [8] Li, H., Prakash, A., Influence of slurry concentrations on bubble population and their rise velocities in three-phase slurry bubble column, *Powder Technol* 113, pp. 158–167 (2000).
- [9] Pjontek, D., Hackman, L.P., Landry, J., McKnight, C.A., Macchi, A., Effect of a dispersed immiscible liquid phase on the hydrodynamics of a bubble column and ebullated bed, *Chem. Eng. Sci.* 66, pp. 2224–2231 (2011).
- [10] Xing, C., Wang, T., Wang, J., Experimental study and numerical simulation with a coupled CFD–PBM model of the effect of liquid viscosity in a bubble column, *Chem.*

- Eng. Sci. 95, pp. 313–322 (2013).
- [11] Yang, J.H., Yang, J.I., Kim, H.J., Chun, D.H., Lee, H.T., Jung, H., Two regime transitions to pseudo-homogeneous and heterogeneous bubble flow for various liquid viscosities, *Chem. Eng. Process.: Process Intensif.* 49, pp. 1044–1050 (2010).
- [12] Behkish, A., Lemoine, R., Sehabiague, L., Oukaci, R., Morsi, B. I., Gas hold-up and bubble size behavior in a large-scale slurry bubble column reactor operating with an organic liquid under elevated pressures and temperatures., *Chem. Eng. J.* 128, pp. 69–84 (2007).
- [13] Cooke, M., Heggs, P.J., Rodgers, T.L., The effect of solids on the dense phase gas fraction and gas–liquid mass transfer at conditions close to the heterogeneous regime in a mechanically agitated vessel, *Chem Eng Res Des* 86, pp. 869–882 (2008).
- [14] Fransolet, E., Crine, M., Marchot, P., Toye, D., Analysis of Gas Holdup in Bubble Columns with Non-Newtonian Fluid Using Electrical Resistance Tomography and Dynamic Gas Disengagement Technique, *Chem. Eng. Sci.* 60, pp. 6118–6123 (2005).
- [15] Grund, G., Schumpe, A., Deckwer, W.D., Gas-liquid mass transfer in a bubble column with organic liquids, *Chem. Eng. Sci.* 47, pp. 3509–3516 (1992).
- [16] Jin, H., Yang, S., Zhang, T., Tong, Z., Bubble behaviour of a large-scale bubble column with elevated pressure, *Chem. Eng. Technol.* 27, pp. 1007–1013 (2004).
- [17] Hyndman, C.L., Larachi, F., Guy, C., Understanding gas-phase hydrodynamics in bubble columns: a convective model based on kinetic theory, *Chem. Eng. Sci.* 52, pp. 63–77 (1997).
- [18] Jordan, U., Saxena, A.K., Schumpe, A., Dynamic gas disengagement in a high-pressure bubble column, *Can. J. Chem. Eng.* 81, pp. 491–498 (2003).
- [19] Schumpe, A., Grund G., The Gas Disengagement Technique for Studying Gas Holdup Structure in Bubble Columns., *Can J Chem Eng.* 64, pp. 891–896 (1986).
- [20] Vermeer, D.J., Krishna, R., Hydrodynamics and Mass Transfer in Bubble Columns Operating in the Churn-Turbulent Region, *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.* 20, pp. 475–482 (1981).
- [21] Clift, R., Grace, J.R., Weber M.E., *Bubbles, Drops, and Particles*, 172–236, Dover publications, INC., New York (2005).

- [22] Hayashi, K., Kurimoto, R., Tomiyama, A., Terminal Velocity of a Taylor Drop in a Vertical Pipe, *Int. J. Multiph. Flow.* 37, pp. 241–251 (2011).
- [23] Kurimoto, R., Hayashi, K., Tomiyama, A., Terminal Velocities of Clean and Fully-Contaminated Drops in Vertical Pipes, *Int. J. Multiph. Flow.* 49, pp. 8–23 (2013).

第 5 章

結論

気泡塔型反応装置は液相を満たした塔型容器底部の気相分散器から気相を気泡として連続的に液相に流入させ気液間の化学反応を行う装置であり、様々な化学工業プロセスに利用されている。気泡塔の装置性能は塔内流動に強く依存するため、その設計、スケールアップ、操業条件の最適化等のためには塔内流動の把握が重要である。塔内流動には塔径程度の大規模スケールの現象から気泡径程度の小スケールの現象までの幅広いスケールの現象が混在し相互に作用するため、塔内には非常に複雑な流れが形成される。最も構造が単純な標準型気泡塔や、固気液三相系よりも現象が単純な気液二相系気泡塔でさえ塔内流動の十分な理解は得られていない。気泡塔内流動を評価する最も基本的な因子の一つとして気泡塔内平均ボイド率があるが、様々なパラメータが気泡塔内平均ボイド率に影響を及ぼすことが知られている。このため、種々のパラメータが気泡塔内平均ボイド率に及ぼす影響の把握が重要であるが、未だ十分な理解には至っていない。

現在、数値計算を活用した気泡塔設計が進められており、精度良い数値計算技術の開発が重要課題となっている。工業的に利用される気泡塔内流動の多くは非均質気泡流であり、非均質気泡流において大気泡の存在は塔内流動を理解する上で重要な因子であると考えられる。気相体積流束増加に伴い大気泡が流動に及ぼす影響が大きくなるため、数値予測精度の向上を図る上で、高気相体積流束における大気泡群のボイド率を把握しておくことが重要である。しかしながら、高気相体積流束において初期液位や液相粘度が大気泡群のボイド率に及ぼす影響に関する系統的知

見は未だ得られていない。

そこで本研究では、非均質気泡流において初期液位、気相体積流束及び液相粘度が塔内平均ボイド率及び大気泡群のボイド率に及ぼす影響に関する実験的知見の取得と理解を目的とした。

第 2 章では、水-空気系気泡塔において、幅広い初期液位及び気相体積流束における気泡塔内平均ボイド率を取得した。また、局所ボイド率の測定値を基に初期液位及び気相体積流束が流動構造に及ぼす影響を把握し、流動構造に基づいたボイド率の合理的モデル化を試みた。その結果、気泡塔内平均ボイド率の初期液位依存性はある初期液位以上において無視できるようになり、その初期液位は気相体積流束の関数で表されることがわかった。気泡塔上部のフォーム領域及び塔中部のバルク領域の平均ボイド率は初期液位に依存しないこと、フォーム領域の長さは初期液位に依存しないことがわかった。初期液位増加に伴いフォーム領域の長さと初期液位の比が減少するため、気泡塔内平均ボイド率の初期液位依存性は消失した。水-空気系気泡塔において、幅広い初期液位及び気相体積流束に適用可能な 2 領域モデルに基づくボイド率相関式を構築した。その結果、気泡塔内平均ボイド率を良好に評価できた。

第 3 章では、グリセリン水溶液を液相に用いて、種々の液相粘度、初期液位及び気相体積流束において気泡塔内平均ボイド率測定実験を実施し、液相粘度がボイド率に及ぼす影響を調べた。また、第 2 章において提案した水-空気系気泡塔内平均ボイド率相関式に液相粘度の影響を考慮する方法を検討した。その結果、高液相粘度において液相粘度増加に伴い気泡塔内平均ボイド率は減少した。この原因として、液相粘度増加に伴う気泡合体の促進によるボイド率の減少が抗力増加によるボイド率の増加よりも優位に働くことが考えられる。平均ボイド率に影響を及ぼさない塔径及び気泡塔内平均ボイド率の算出に通気時の液面高さをを用いたため、高液相粘度において初期液位及び気相体積流束はボイド率の液相粘度依存性に殆ど影響を及ぼさないことがわかった。さらに、水-空気系用に提案した気泡塔内平均ボイド率相関式に液相粘度効果の乗数を導入することにより、水の 12 倍程度の高粘性流体までボイド率相関式を適用できた。

第4章では、高気相体積流束、種々の初期液位及び液相粘度における大・小気泡群のボイド率を取得し、得られた実験データを基に初期液位、気相体積流束及び液相粘度が大・小気泡群の体積流束とボイド率に及ぼす影響を考察した。その結果、初期液位が一定の場合、気相体積流束増加に伴い大・小気泡群のボイド率は増加した。塔半径程度未満の横幅を有する大気泡が形成される気相体積流束において、大気泡群体積流束は初期液位に依存せず、初期液位増加に伴う大気泡の気泡径増加による上昇速度増加のため、大気泡群のボイド率は初期液位増加に伴い減少した。また、この気相体積流束において初期液位増加に伴う気泡径増加により大気泡の横幅が塔半径程度以上となるため、ある初期液位以上においては大気泡群のボイド率は概ね一定となった。一方、塔半径程度以上の横幅を有する大気泡が形成される気相体積流束においては、大気泡の上昇速度が気泡径に依存しないため、大気泡群のボイド率は初期液位に依存せず概ね一定となった。大気泡群体積流束及びその上昇速度が液相粘度に依存しないため、液相粘度は大気泡群のボイド率に影響を及ぼさないことがわかった。小気泡群のボイド率は塔内平均ボイド率と大気泡群のボイド率の差であるため、小気泡群のボイド率の初期液位依存性は気相体積流束増加に伴い正の依存性から負の依存性に変化した。さらに、液相粘度増加に伴い小気泡群のボイド率は減少するが、小気泡群のボイド率の初期液位依存性は液相粘度に依らないことがわかった。

以上、本研究では非均質気泡流において初期液位、気相体積流束、液相粘度が気泡塔内平均ボイド率及び大気泡群ボイド率に及ぼす影響に関する実験的知見を取得し、各パラメータがボイド率に及ぼす影響を明らかにした。

付録

A.1 局所ボイド率分布

図 A.1 に $H_0 = 600$ mm, $J_G = 0.06$ 及び 0.10 m/s における気泡塔内局所ボイド率 α_G , 図 A.2 に $H_0 = 1000$ mm, $J_G = 0.06$ 及び 0.10 m/s における α_G をそれぞれ示す. ここで, x [mm]は塔中央からの水平方向, z [mm]は散気板上面からの高さ, $\bar{H}$ は平均液面高さを表す.

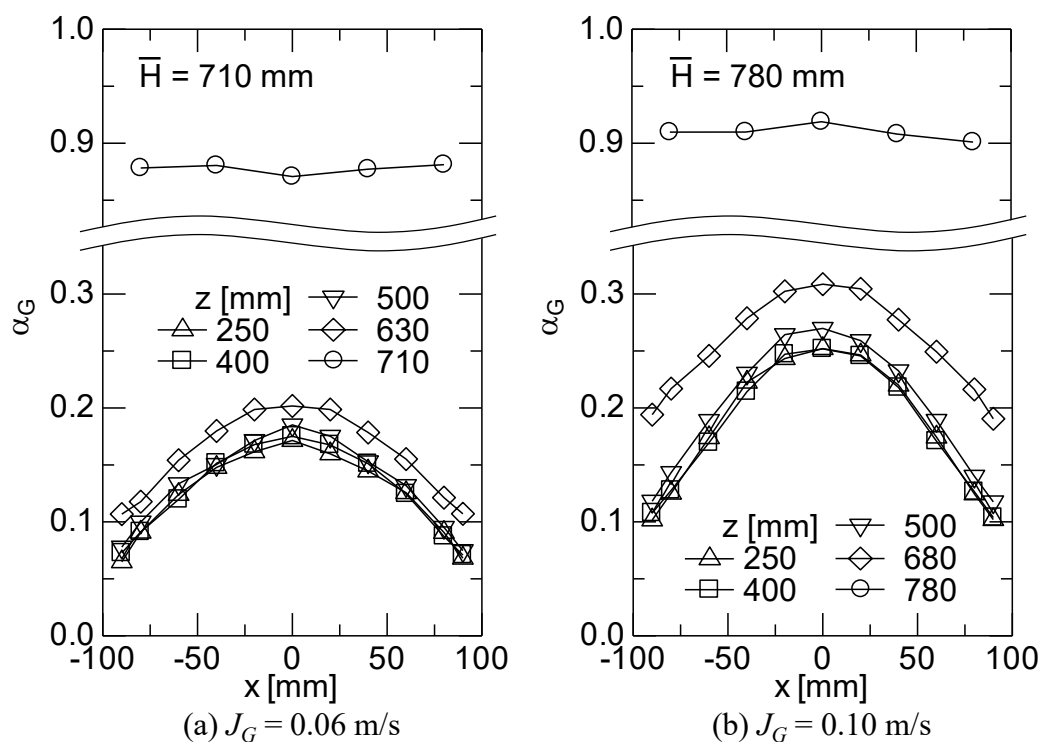
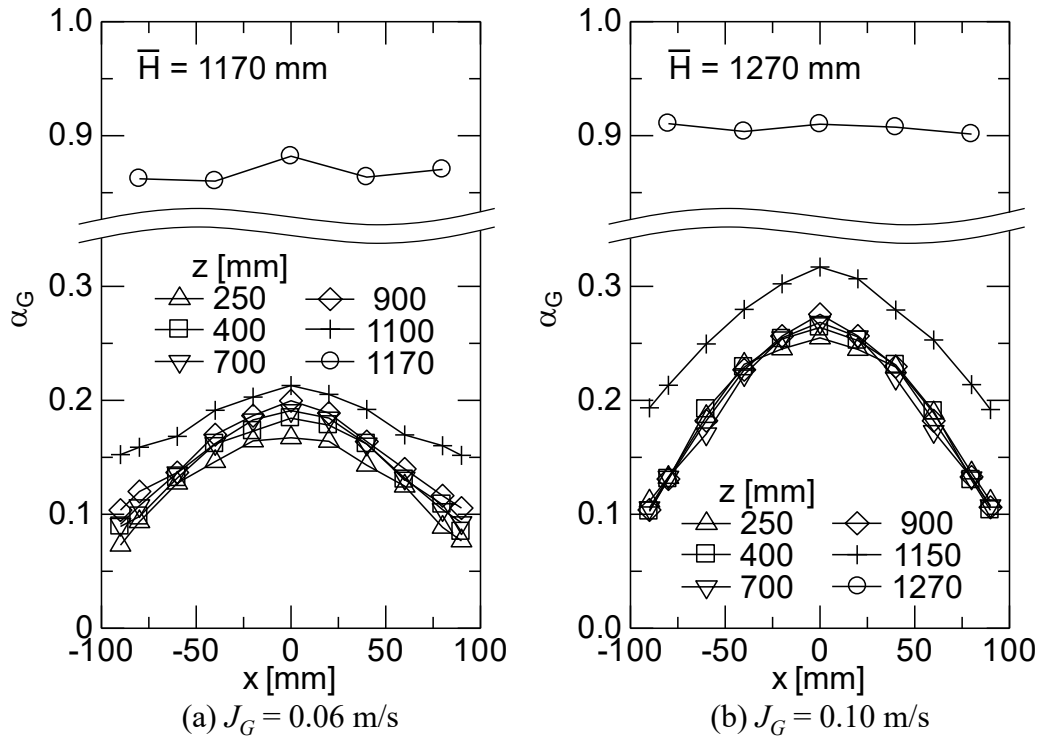


図 A.1 局所ボイド率分布($H_0 = 600$ mm)

図 A.2 局所ボイド率分布($H_0 = 1000$ mm)

A.2 断面平均ボイド率を用いた気泡塔内平均ボイド率の算出方法

断面平均ボイド率 $\bar{\alpha}_G$ を用いて塔内平均ボイド率 $\langle \alpha_G \rangle$ を以下の手順で算出した．図 A.3 に $\bar{\alpha}_G$ 分布を示す．はじめに隣接する二点の測定点を通る直線を算出する．次に縦軸と直線で囲まれる台形の面積を計算する．最後に台形の面積の総和を平均液面高さ $\bar{H}$ で除することで $\langle \alpha_G \rangle$ を算出した．

$$\langle \alpha_G \rangle = \frac{1}{\bar{H}} \sum_{n=1}^N \int_{Z_{n-1}}^{Z_n} f_{n,n-1}(z) dz \quad (\text{A1})$$

ここで、 N は最大測定点数、 Z_n は n 番目の測定点、 $f_{n,n-1}$ は n 番目と $n-1$ 番目の測定点の線形補間関数である．なお、 $z = 0$ mmにおける断面平均ボイド率の値は1番目

と 2 番目に低い測定点における値から外挿した。

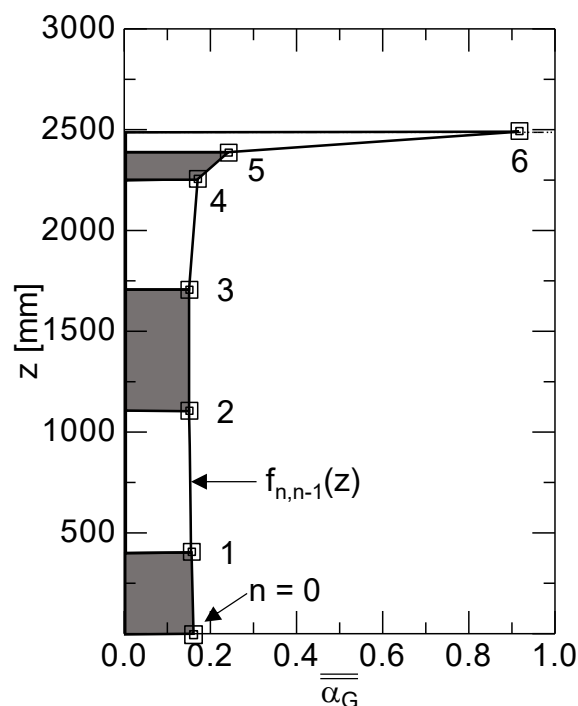


Fig. A.3 $\overline{\alpha_G}$ を用いた $\langle \alpha_G \rangle$ の算出 ($H_0 = 2000$ mm, $J_G = 0.10$ m/s)

A.3 水–空気系気泡塔内平均ボイド率の実験値

第 2 章に示した水–空気系気泡塔における気泡塔内平均ボイド率を整理する．実験装置には塔径 200 mm の円筒気泡塔を用いた．液相には水道水，気相には空気を用いた．水道水の密度，液相粘度，表面張力は各々 998 kg/m^3 ， $1.0 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ ， 0.072 N/m であり，気相密度及び粘度は各々 1.2 kg/m^3 及び $1.8 \times 10^{-2} \text{ mPa} \cdot \text{s}$ である．初期液位 H_0 は 400–4400 mm とし，気相体積流束 J_G は 0.06–0.30 m/s とした．本研究において取得したボイド率データを表 A.1 に示す．

表 A.1 水-空気系における気泡塔内平均ボイド率

J_G [m/s]	H_0 [mm]							
	400	600	800	1000	1200	1400	1600	1800
0.06	0.150	0.144	0.142	0.141	0.145	0.144	0.139	0.139
0.10	0.242	0.221	0.209	0.202	0.197	0.195	0.192	0.191
0.20	0.340	0.312	0.293	0.281	0.277	0.270	0.266	0.264
0.30	0.411	0.376	0.355	0.335	0.325	0.320	0.319	0.314

表 A.1 Continued

J_G [m/s]	H_0 [mm]							
	2000	2200	2400	2600	2800	3000	3200	3400
0.06	0.138	0.140	0.139	0.144	0.141	0.139	0.141	0.144
0.10	0.189	0.190	0.188	0.190	0.187	0.186	0.187	0.188
0.20	0.261	0.258	0.259	0.262	0.261	0.260	0.258	0.257
0.30	0.315	0.314	0.313	0.314	0.312	0.310	0.310	0.310

表 A.1 Continued

J_G [m/s]	H_0 [mm]				
	3600	3800	4000	4200	4400
0.06	0.144	0.143	0.145	0.146	0.143
0.10	0.187	0.188	0.187	0.186	-
0.20	0.258	0.258	-	-	-

A.4 ペンダントバブル法による表面張力の測定

第3章及び第4章において、表面張力 σ [N/m]はペンダントドロップ法[1]の原理を応用したペンダントバブル法[2]により測定した。図 A.4 に実験装置の概略図を示す。試験液体中に鉛直上向きに設置したノズルの先端にシリンジを用いて気泡を生成し、高速度ビデオカメラ(Redlake, Motion Pro HS-1)を用いて静止状態の気泡を撮影した。気泡形状は気液両相の密度、気泡径、 σ に依存する。撮影画像から気泡の形状に関するパラメータを取得すれば σ を算出できる。図 A.4 に示すように気泡水平断面の最大直径を d_e [m]、気泡の上端から d_e [m]だけ鉛直下方における気泡の水平

断面の直径を d_s とすると σ は次式で与えられる[1].

$$\sigma = \frac{\Delta \rho g d_e^2}{Q} \quad (\text{A.2})$$

$$\frac{1}{Q} = f(s) = f\left(\frac{d_s}{d_e}\right) \quad (\text{A.3})$$

ここで, $\Delta \rho$ [kg/m³] は気液の密度差, g [m/s²] は重力加速度, $1/Q$ は $s (= d_s/d_e)$ の関数であり, 次式に示す Misak の式[3]を用いて算出した.

$$\frac{1}{Q} = \begin{cases} \left(\frac{0.33}{s^{2.57}}\right) - 0.98s^2 + 0.84s - 0.18 & \text{for } 0.401 \leq s \leq 0.46 \\ \left(\frac{0.32}{s^{2.60}}\right) - 0.47s^2 + 0.50s - 0.13 & \text{for } 0.46 < s \leq 0.59 \\ \left(\frac{0.32}{s^{2.62}}\right) - 0.12s^2 + 0.16s - 0.053 & \text{for } 0.59 < s \leq 0.68 \\ \left(\frac{0.31}{s^{2.64}}\right) - 0.092s^2 + 0.15s - 0.059 & \text{for } 0.68 < s \leq 0.9 \\ \left(\frac{0.31}{s^{2.85}}\right) - 0.69s^3 + 1.1s^2 + 0.18s - 0.21 & \text{for } 0.9 < s \leq 1.0 \end{cases} \quad (\text{A.4})$$

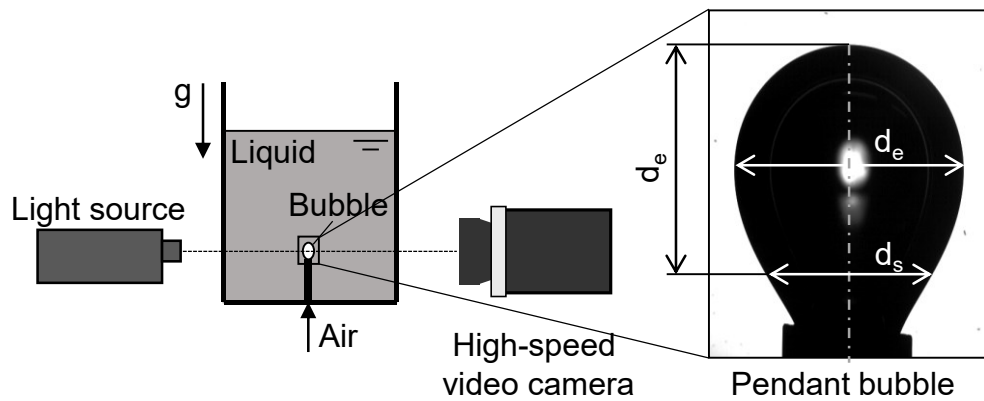


図 A.4 ペンダントバブル法[2]による表面張力の測定

A.5 グリセリン水溶液–空気系気泡塔内平均ボイド率の実験値

第 3 章に示したグリセリン水溶液–空気系気泡塔における気泡塔内平均ボイド率を整理する．実験装置には塔径 200 mm の円筒気泡塔を用いた．液相にはグリセリン水溶液，気相には空気を用いた．水道水の密度，液相粘度，表面張力は各々 998 kg/m³，1.0 mPa·s，0.072 N/m であり，気相密度及び粘度は各々 1.2 kg/m³ 及び 1.8×10^{-2} mPa·s である．初期液位 H_0 は 400–3800 mm とし，気相体積流束 J_G は 0.06–0.30 m/s とした．グリセリン水溶液の濃度は，その粘度が水道水の粘度の 4.4 及び 12.3 倍となるように調整した．本研究において取得したボイド率データを表 A.2 及び A.3 に示す．ここで， μ_L は液相粘度 [Pa·s]， μ_W は水道水の粘度 [Pa·s] である．

表 A.2 グリセリン水溶液–空気系における気泡塔内平均ボイド率($\mu_L = 4.4\mu_W$)

J_G [m/s]	H_0 [mm]							
	400	600	800	1000	1200	1400	1600	1800
0.06	0.153	0.141	0.139	0.139	0.138	0.137	0.137	0.141
0.10	0.234	0.217	0.205	0.200	0.195	0.189	0.187	0.186
0.20	0.325	0.305	0.286	0.264	0.260	0.253	0.248	0.248
0.30	0.380	0.352	0.332	0.319	0.311	0.307	0.305	0.303

表 A.2 Continued

J_G [m/s]	H_0 [mm]							
	2000	2200	2400	2600	2800	3000	3200	3400
0.06	0.136	0.137	0.135	0.134	0.139	0.136	0.135	0.142
0.10	0.187	0.186	0.185	0.185	0.186	0.187	0.185	0.184
0.20	0.249	0.250	0.249	0.250	0.250	0.250	0.248	0.248
0.30	0.296	0.299	0.296	0.298	0.297	0.297	0.301	0.297

表 A.2 Continued

J_G [m/s]	H_0 [mm]	
	3600	3800
0.06	0.141	0.141
0.10	0.184	-
0.20	0.248	-

表 A.3 グリセリン水溶液-空気系における気泡塔内平均ボイド率($\mu_L = 12.3\mu_W$)

J_G [m/s]	H_0 [mm]							
	400	600	800	1000	1200	1400	1600	1800
0.06	0.134	0.125	0.121	0.117	0.112	0.109	0.111	0.108
0.10	0.206	0.193	0.183	0.174	0.166	0.161	0.158	0.160
0.20	0.289	0.272	0.259	0.247	0.237	0.229	0.223	0.220
0.30	0.341	0.323	0.306	0.293	0.280	0.274	0.269	0.266

表 A.3 Continued

J_G [m/s]	H_0 [mm]							
	2000	2200	2400	2600	2800	3000	3200	3400
0.06	0.115	0.111	0.111	0.113	0.112	0.114	0.114	0.117
0.10	0.158	0.159	0.161	0.160	0.161	0.161	0.161	0.163
0.20	0.220	0.221	0.221	0.222	0.222	0.222	0.222	0.220
0.30	0.269	0.267	0.267	0.268	0.268	0.268	0.268	0.270

表 A.3 Continued

J_G [m/s]	H_0 [mm]		
	3600	3800	4000
0.06	0.114	0.116	0.115
0.10	0.161	0.164	0.160
0.20	0.223	-	-

A.6 大・小気泡群のボイド率の実験値

第4章に示した大・小気泡群のボイド率を整理する。各初期液位 H_0 [mm]及び気

相体積流束 J_G [m/s]における $\langle\alpha_{G,L}\rangle$ を液相粘度 μ_L [mPa·s]毎に表 A.4-A.9 にまとめる。

表 A.4 大気泡群のボイド率($\mu_L = \mu_W$)

J_G [m/s]	H_0 [mm]			
	800	1600	2400	3000
0.06	0.050	0.0422	0.0333	0.0323
0.10	0.085	0.0686	0.0633	0.0625
0.20	0.125	0.1190	0.1192	0.1167
0.30	0.160	0.1588	0.1620	0.1571

表 A.5 大気泡群のボイド率($\mu_L = 4.4\mu_W$)

J_G [m/s]	H_0 [mm]		
	800	1600	2400
0.06	0.052	0.042	0.035
0.10	0.081	0.066	0.066
0.20	0.126	0.121	0.122
0.30	0.159	0.162	0.164

表 A.6 大気泡群のボイド率($\mu_L = 12.3\mu_W$)

J_G [m/s]	H_0 [mm]		
	800	1600	2400
0.06	0.049	0.042	0.041
0.10	0.090	0.069	0.066
0.20	0.115	0.117	0.113
0.30	0.154	0.153	0.156

表 A.7 小気泡群のボイド率($\mu_L = \mu_W$)

J_G [m/s]	H_0 [mm]			
	800	1600	2400	3000
0.06	0.096	0.102	0.106	0.109
0.10	0.126	0.128	0.127	0.128
0.20	0.171	0.150	0.145	0.141
0.30	0.205	0.163	0.153	0.155

表 A.8 小気泡群のボイド率($\mu_L = 4.4\mu_W$)

J_G [m/s]	H_0 [mm]		
	800	1600	2400
0.06	0.071	0.092	0.095
0.10	0.106	0.108	0.113
0.20	0.130	0.122	0.119
0.30	0.140	0.126	0.118

表 A.9 小気泡群のボイド率($\mu_L = 12.3\mu_W$)

J_G [m/s]	H_0 [mm]		
	800	1600	2400
0.06	0.060	0.067	0.069
0.10	0.088	0.090	0.093
0.20	0.116	0.100	0.107
0.30	0.126	0.113	0.108

付録の参考文献

- [1] 村瀬正典, 松原秀次, 森康彦, 長島昭, 多成分蒸気と接する液体の表面張力および2液間の界面張力の懸滴法による測定, 日本機械学会論文集(B編), 51, pp. 2638–2646 (1985).
- [2] Pan, R., Green, J., Maldarelli, C., Theory and experiment on the measurement of kinetic rate constants for surfactant exchange at an air/water interface, J. Colloid Interface Sci. 205, pp. 213–230 (1998).
- [3] Misak, M.D., Equations for determining $1/H$ versus S values in computer calculations of interfacial tension by the pendant drop method, J. Colloid Interface Sci. 27, pp. 141–142 (1968).

本研究に関連する学術論文・講演論文

- [1] Kobayashi N., Adomi S., Kurimoto, R., Hayashi, K., Tomiyama, A., Effect of initial liquid height on total and local gas holdups in an air–water bubble column, *Multiph. Sci. Technol.* 33, pp. 87–101 (2021).
- [2] Kobayashi N., Kurimoto R., Hayashi K., Tomiyama A., Effect of initial liquid height and liquid viscosity on total gas holdup in a bubble column, *Multiph. Sci. Technol.* 34, pp. 1–13 (2022).
- [3] 小林暢也，栗本遼，林公祐，富山明男，気泡塔内大・小気泡群のボイド率に関する研究，*混相流* 37, (2023).

謝辞

本学位論文の執筆にあたり，ご多忙の中本論文の丁寧な査読をしていただきました神戸大学大学院工学研究科 浅野等 教授，今井陽介 教授，林公祐 准教授に謹んで感謝の意を表します。

本研究の遂行にあたり日々懇切丁寧なご指導を賜りました神戸大学大学院工学研究科 富山明男 教授に深く感謝申し上げます。先生には公私にわたり幅広い知識と教養を得る機会を与えていただきました。また，日々の議論の中で数え切れないほど多くのことを学ばせていただきました。常日頃の研究遂行にあたり適宜貴重なご指導，ご助言を賜りました神戸大学大学院工学研究科 林公祐 准教授，栗本遼 助教に深く感謝申し上げます。

混相流工学研究室(前：エネルギー環境工学研究室)で共に学生生活を過ごした諸先輩方，後輩に感謝致します。皆様のおかげで大変充実した学生生活を送ることができました。特に，同じチームとして直接ご指導いただいた橋田昌明さん(現：住友化学株式会社)，実験や研究を共にした小林雅和君，安富舜君に深く感謝致します。皆様のご指導・ご協力なくして本研究を遂行することはできませんでした。研究室同期の大崎侑君(現：日本プロセス)，島村長幸君(現：パナソニック株式会社)に感謝致します。公私にわたり仲良くしてくれて本当にありがとう。上記以外にも数えきれないほど多くの方々のご指導，ご協力があったて本研究を遂行することができました。ここに記して感謝の意を示します。

最後に，私の長い研究生生活をあらゆる面で支えてくださいました両親に心から感謝致します。

2023 年 1 月 小林 暢也

神戸大学博士論文

「気泡塔内ボイド率に及ぼす初期液位の影響に関する研究」

全 93 頁

提出日：2023 年 1 月 20 日

本博士論文が神戸大学機関リポジトリ **Kernel** にて掲載される場合、掲載登録日（公開日）はリポジトリの該当ページ上に掲載されます。

© 小林 暢也

本論文の内容の一部あるいは全部を無断で複製・転載・翻訳することを禁じます。