

# 傾斜平板から流下液膜への物質移動

## 傾斜角度の影響

田中 久弥・田子 修・稲田 邦夫\*

# Mass Transfer to a Falling Liquid Film on an Inclined Plane

Effects of an angle of inclination

Hisaya TANAKA · Osamu TAGO · Kunio INADA

Mass transfer experiments are performed in which benzoic acid plates are dissolved by a falling water film on an inclined plane.

Over the range of  $50 < Re (\equiv \Delta \bar{v} x / \nu) < 1500$ , the mass transfer rates are adequately predicted by the laminar film theory; and the inclined angles have little effects on the mass transfer rates regardless of Froud number. These results show that the concentration boundary layer is so thin that the gravity-controlled roll waves do not penetrate in this layer.

### 緒 言

灌液充填塔は気・液、液・固、気・液・固接触装置として数多く使用されている。これら装置の設計操作の基礎データとして、物質移動係数は非常に重要である。このうち気・液間物質移動係数は従来のガス吸収操作に見られるごとく、物理吸収から反応吸収まで多くの成果が得られており、それらの成果は近年Danckwerts<sup>(1)</sup>が整理し成書にしている。一方固体活性面から液膜への移動速度については研究例も少なく<sup>(2)</sup>、とくに反応を伴う場合についてはその重要性が指摘されながらも、体系的取扱いがなされていないのが現状である。この固・液間移動過程を明らかにするには、その基礎となる傾斜平板表面

から流下液膜への移動速度を知ることが非常に重要である。

本研究では充填塔内の液膜内移動過程にたいする基礎データとするため、Oliver<sup>(2)</sup>らと同じ安息香酸一水系を使用し、傾斜平板表面から流下液膜への固液間物質移動速度を測定した。とくに移動速度にたいする重力波の影響について知見をうるため傾斜角度を変化させた実験を行った。

得られたデータはOliverらの実験 ( $Re (\equiv \bar{v} x \Delta / \nu) \approx 80 \sim 200$ ) にくらべ流動範囲も広く ( $Re \approx 50 \sim 1500$ )、また各種傾斜角にたいし非常にバラツキの少ないすぐれたものであった。また液膜の波立ち(重力波)についても考察し、この実験範囲では液膜表面で発生する重力波は物質移動速度に影響をおよ

\* 神戸製鋼

ばさないことが明らかとなった。

### 1. 境界層理論による物質移動速度の導出

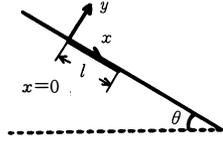


図-1 傾斜平板上における座標系

図-1のように、液Bが傾斜平板に沿って層流液膜をなして流れ、 $0 < x < l$ においてA成分が流体Bにわずかに溶解するとする。いま流れが定常状態にあるとし、A成分の拡散移動はy方向のみとし、x方向を無視すると、拡散方程式は次のようになる

$$\left. \begin{aligned} Vx \frac{\partial C_A}{\partial x} &= D_{AB} \frac{\partial^2 C_A}{\partial y^2} \\ C_A &= 0 \quad \text{at } x = 0 \\ C_A &= C_{Aw} \quad \text{at } y = 0 \\ C_A &= C_{A\infty} \quad \text{at } y = \infty \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

ここでx方向速度成分  $Vx$  [cm/sec] は運動方程式より次のように与えられる。

$$Vx = V_s \left\{ 2 \left( \frac{y}{\Delta} \right) - \left( \frac{y}{\Delta} \right)^2 \right\} \quad (2)$$

ただし、 $V_s$ 、 $\Delta$ は液膜表面速度、液膜厚みであり、それぞれ下記のごとく表わされる。

$$V_s = \rho g \Delta^2 \sin \theta / 2 \mu \quad (3)$$

$$\Delta = (3 \mu L / \rho g W \sin \theta)^{1/2} \quad (4)$$

さらに接触時間 ( $l/V_s$ ) が非常に小さな場合には濃度境界層は平板表面近傍にしか発達せず、この部分での速度成分は近似的に  $Vx \cong 2V_s y/\Delta$  となり、(1)式は次のようになる。

$$2 V_s \frac{y}{\Delta} \frac{\partial C_A}{\partial x} = D_{AB} \frac{\partial^2 C_A}{\partial y^2} \quad (5)$$

次に無次元化濃度  $C = C_A/C_{Aw}$  および無次元相似変数  $\eta = y (2V_s/9D_{AB}\Delta x)^{1/2}$  を使って(5)式を変形すると次式をうる。

$$\left. \begin{aligned} \frac{d^2 C}{d\eta^2} + 3\eta^2 \frac{dC}{d\eta} &= 0 \\ C &= 1 \quad \text{at } \eta = 0 \\ C &= 0 \quad \text{at } \eta = \infty \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

上式の解は次のようになる。

$$C = \frac{C_A}{C_{Aw}} = \frac{\int_0^\infty \eta^2 \exp(-\eta^3) d\eta}{\int_0^\infty \exp(-\eta^3) d\eta} \quad (7)$$

$$\frac{dC}{d\eta} = - \frac{\exp(-\eta^3)}{\int_0^\infty \exp(-\eta^3) d\eta} \quad (8)$$

したがって局所および平均物質移動速度  $N_{Ax}$ 、 $\bar{N}_A$  はそれぞれ次式となる。

$$\begin{aligned} N_{Ax} &= -D_{AB} \left( \frac{\partial C_A}{\partial y} \right)_{y=0} = D_{AB} \frac{C_{Aw} (2V_s/9D_{AB}\Delta x)^{1/2}}{\Gamma(4/3)} \\ \bar{N}_A &= \frac{1}{l} \int_0^l N_{Ax} dx = \frac{3}{2} D_{AB} \frac{C_{Aw} (2V_s/9D_{AB}\Delta l)^{1/2}}{\Gamma(4/3)} \end{aligned} \quad (10)$$

また物質移動速度と物質移動係数の関係  $\bar{N}_A = \bar{k}_L (C_{Aw} - C_{A\infty})$  より次式をうる。

$$\bar{k}_L = 2D_{AB} (2V_s/9D_{AB}\Delta l)^{1/2} / \Gamma(4/3) \quad (11)$$

さらに  $\bar{V}_x = \frac{2}{3} V_s$  および無次元数  $Sh \equiv \bar{k}_L \Delta / D_{AB}$ 、 $Sc \equiv \nu / D_{AB}$ 、 $Re$  等を用いて整理すると、傾斜平板表面から流下液膜中への物質移動速度にたいするつぎの相関式が得られる。

$$Sh = 1.17 Re^{1/2} Sc^{1/3} \left( \frac{\Delta}{l} \right)^{1/2} \quad (12)$$

こゝで  $Re \cdot Sc \cdot (\Delta/l) \equiv Gz (= \bar{V}_x \Delta^2 / D_{AB} l)$  とおくと、次式となり、

$$Sh = 1.17 Gz^{1/2} \quad (12')$$

層流液膜への移動現象にたいする Graetz-Nusselt の一般的層流理論式とみなせる。

### 2. 実験装置および方法

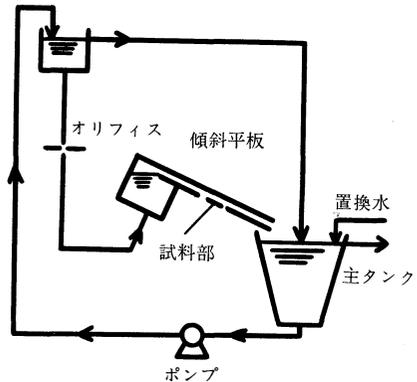


図-2 実験装置

本研究で使用した実験装置の概略図を図-2に示す。装置はすべてアクリル製である。平板は横巾30cmで試料部分の中5cmにたいし十分広くとってあり壁効果は無視できると考えられる。さらに overflow edge から試料部分まで長さ25cmの助走部を取り、測

定部で流れが十分発達するようにした。

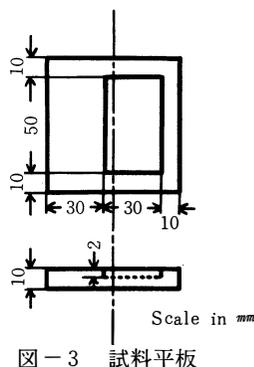


図-3 試料平板

図-3で示される試料平板の本体への取り付けははめ込み式になっており、平板本体にたいする傾斜角の誤差は $0.5^\circ$ 以内である。また平板本体の傾斜角は自由に変化させることができ、本研究では $4.4^\circ$ 、 $15.4^\circ$ 、 $17.0^\circ$ 、 $45.3^\circ$ の各傾斜角で行った。なお傾斜角の測定は精度 $0.1^\circ$ 以内の水準器で行った。

試料部分は1級安息香酸を250kgの力で圧縮成型したものであり、その表面はナイフでけずり平滑にした。なお試料部分の縦の長さは3cmである。

溶解液には水道水を使用した。液は主タンクよりポンプで定水位槽に送られ、オリフィスマーターをへて平板上部の整流部に入り、そこからオーバーフローして平板上へ流れる。主タンクでは一部新しい水道水と置換され、循環液中の溶質の濃度増加を防止すると同時に実験中の水温変化をさけるようにした。

溶解速度の測定は試料平板を溶解前後に真空デシケーター内に90分間づつ放置した後秤量し、その前後の秤量差より求めた。なお溶解量は秤量誤差が数%内におさまるように、約 $0.2g$ 程度とした。

### 3. 実験結果ならびに考察

実験データを整理するにあたり、密度 $\rho [g/cm^3]$ 、動粘度 $\nu [cm^2/sec]$ 等の値は純水にたいする値を用いた。Sc数はLintonおよびSherwood<sup>(3)</sup>らの値を使用し安息香酸の拡散係数 $D_{AB} [cm^2/sec]$ はこのSc数と動粘度の値より計算した。安息香酸の水にたいする溶解度 $C_{Aw} [g/cm^3]$ は化学便覧の値を用いた。

平均物質移動係数 $\bar{k}_L [cm/sec]$ は本実験条件下では安息香酸の溶解量がきわめて少ないので次式により計算した。

$$\bar{k}_L = \Delta W / \tau A C_{Aw} \quad (13)$$

ここで $\Delta W [g]$ は溶解時間 $\tau [sec]$ における安息香酸の溶解量で $A [cm^2]$ は溶解前の表面積である。

本実験条件下では流下液膜の純層流から波状層流、乱流への流動機構への遷移に関係するFroud数 $(\bar{V}x / (g\Delta)^{1/2})$ 、Weber数 $(\bar{V}x / (\sigma / \rho\Delta)^{1/2})$ の各上限値はほぼ9および3であり、重力波と表面張力波の共存域(とくに重力波が大きい)であること、また $Re$ 数の上限値からみれば乱流域に入っていることがわかる。Froud数ならびにWeber数にたいする傾斜角の影響は前者にたいして $(\sin\theta)^{1/2}$ であるのにたいして後者にたいして $(\sin\theta)^{1/2}$ であり、傾斜角を変えた結果は移動速度にたいする重力波の付加的な影響の有無を明らかにするものと見られる。

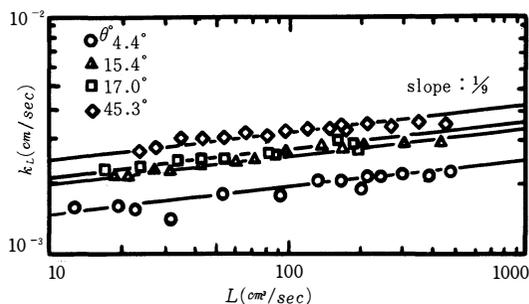


図-4 傾斜平板表面からの平均物質移動係数

図-4は4種類の傾斜角における実測の物質移動係数 $\bar{k}_L$ を液流量 $L [cm/sec]$ にたいしてプロットしたものである。

$\bar{k}_L$ にたいする理論解(11)にたいし、 $V_s = \frac{3}{2}\bar{V}x$ ならびに $\bar{V}x = L/W\Delta$ を代入し、 $\Delta = (3\mu L / \rho g W \sin\theta)^{1/2}$ を用いると

$$\bar{k}_L = \frac{2D_{AB}}{\Gamma(\frac{1}{2})} \left( \frac{2}{9D_{AB}l} \right)^{1/2} \left( \frac{3L}{2W} \right)^{1/2} \left( \frac{\rho g W \sin\theta}{3\mu L} \right)^{1/2} \quad (14)$$

と変形でき、液流量ならびに傾斜角度について次のような関係が得られる。

$$\bar{k}_L \sim L^{1/2} (\sin\theta)^{1/2} \quad (15)$$

図中の平行直線群の勾配はいずれも $1/2$ 、であり、移動係数 $\bar{k}_L$ が流量 $L$ の $1/2$ 乗に比例し、(15)式で示される理論的關係と一致することが確かめられた。

さらに平行直線群の同一流量における各切片を傾斜角に対してプロットした結果を図-5に示す。この場合も層流液膜理論による $1/2$ の勾配によく一致し、傾斜角による液面の重力波などによる付加的な影響

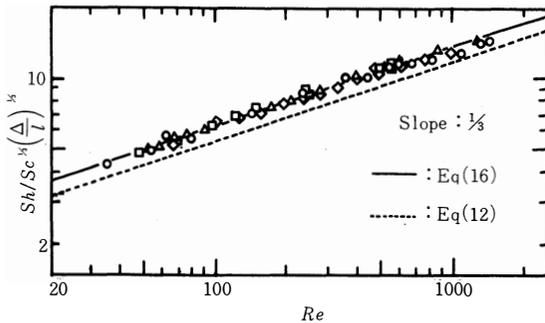


図-6 無次元相関関係

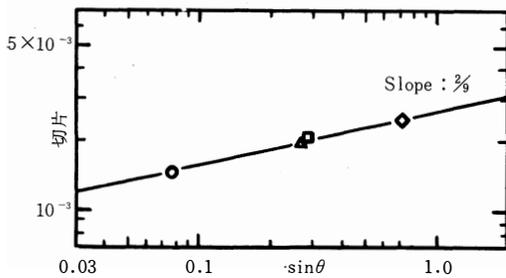


図-5 物質移動速度にたいする傾斜角の影響

が全く見られないことがわかった。

図-6 は実験結果を(12)式に従って  $Sh/Sc^{1/2}(\Delta/l)^{1/2}$  対  $Re$  数でプロットしたものである。図中の点線は(12)式を示している。この図より明らかなように、本実験範囲 ( $Re=50\sim 1500$ ) においては傾斜角度に関係なく、勾配が理論値と同じ  $1/2$  となることが確かめられた。

次に液膜の乱れについて考察すると、重力作用により流下する傾斜平板上の液膜内において、下記の3つの異った流域が実験的に観察されている。<sup>(4),(5)</sup>

(I)  $20\sim 30 > Re$  では定常的な粘性支配流れであり、液膜厚みは一定である。

(II)  $30\sim 50 > Re$  ではいわゆる波状層流域にはいり、重力波と呼ばれる重力作用による rippling 現象がおり、その流動は重畳現象を伴う。なお通常流下水膜では  $Fr > We$  となり重力波が表面張力波に先行する。

(III)  $Re \approx 250\sim 500$  以上では層流域から乱流域に移る。

以上のように  $Re$  数が  $30\sim 50$  以上乱流への遷移域にかけて、波長の長い重力波により液膜表面に徐々に乱れが生じ、液流量の増大とともにその乱れが大き

なるが、図-6 の実測値にはこのような液膜表面の乱れの影響が全くみられない。このことは安息香酸の  $Sc$  数が非常に大きいので、その乱れが濃度境界層まで浸透していないといえる。

以上、液膜の広い範囲の流動状態における物質移動速度について調べた結果、次のような相関式を得ることができた。

$$Sh = 1.35 Re^{1/2} \cdot Sc^{1/2} \left( \frac{\Delta}{l} \right)^{1/2} \quad (16)$$

この関係を図-6 に実線で示す。

## 結 言

本研究では傾斜平板を用いて流下液膜の流動状態傾斜角に対する物質移動速度への影響を調べた。その結果次のことが確認された。

(1) 各傾斜角度にたいする実測値を  $\bar{k}_L$  対  $L$  でプロットした結果、勾配が  $1/2$  の直線群が得られた。それら直線の同一流量に対する切片を  $\sin\theta$  でプロットした結果  $2/3$  の勾配が得られた。これら二つの関係は層流液膜の移動現象にたいする理論的關係と一致して

おり、傾斜角による液面の重力波などの付加的影響が全く見られないことがわかった。

(2) 実測値を  $Sh/Sc^{1/2}(\Delta/l)^{1/2}$  対  $Re$  でプロットした結果、その勾配は  $1/2$  を示し、層流境界層理論より求められる勾配の値と一致した。

(3) これらの関係と流動状態の考察から、高  $Sc$  数域では重力波と呼ばれる rippling による液膜の乱れは物質移動速度に影響しないことが確認された。

(4) かくして液膜の広い流動範囲の流動状態  $Re \approx 50\sim 1500$  において、(16)式で示される相関式を得た。

## 参 考 文 献

- (1) Danckwerts, P.V. 'Gas-liquid reactions' McGraw Hill Co. (1970)
- (2) Oliver, D.R. and Atherinos, T.E. : *Chem. Eng. Sci.*, **23**, 525 (1968)
- (3) Linton, W.H. and Sherwood : *Ind. Eng. Chem.*, **43**, 703. (1951)
- (4) Friedman, S. and Mayer, C. *Ind. Eng. Chem.*, **33**, 885 (1941)
- (5) Fulford, G.D. : "Advances in Chemical Engineering," vol 5. 151, Acad. Press (1964)