

パイロットスケールの気液並流充填層内の  
局所液分布の解析

(課題番号 62550695)

昭和63年度

科学研究費補助金 (一般研究C)

研究成果報告書

平成元年3月

研究代表者 中村正秋

(名古屋大学 工学部 助教授)

## は し が き

重油の水素化分解や水素化脱硫などの工業反応装置として重要な気液下降並流充填層反応器、いわゆる灌液充填層反応器 (Trickle Bed Reactor) は、下表に示すように実験装置から工業装置にいたるスケールアップにおいて、直径比は160倍、面積比は2万5千倍、体積比は50万倍にも及んでいる。

装置規模	直径 [m]	層高 [m]	面積比 [-]	体積比 [-]
実験 (ベンチ)	0.025	0.5	1	1
	0.12	1	23	46
中間 (パイロット)	0.38	2	231	924
	1.25	5	2,500	25,000
工業 (コマーシャル)	4	10	25,600	512,000

このような装置の性能に重大な影響を及ぼすのは、反応流体の流動状態であり、気液の均一分散による局所過熱 (ホットスポット) 防止に尽きると言っても過言ではない。しかし、高温・高圧下で運転される工業装置内の状態を直接観察することは事実上不可能である。そこで、本研究では常温・常圧ではあるが種々の方法により装置内の反応流体の流動状態を測定し、装置設計に有用な知見を得ることを目的とした。

得られた成果をまとめると以下のようなになる。

### 1. 気液下降並流充填層内の半径方向液流量分布の測定

従来、気液向流接触型のガス吸収用充填層では液が層の壁付近を多く流下

すると言われ、気液下降並流型の触媒反応器でも液の壁流が存在するものと憶測されてきた。この点を明らかにするため直径 0.38 m、最大層高 3.0 m のパイロットプラント規模の装置を用い、層内半径方向の液流量分布を測定した。本研究の結果、気液並流接触型で、触媒のように粒子径が小さな充填層では、むしろ壁近傍の液流量が層中心部よりも小さいことを見いだした。

工業触媒は多孔質の成形粒子であるが、実験装置では非多孔質の球形粒子がよく用いられ、往々にして後者による測定結果をもって工業装置の流動状態を予測することがなされている。そこで、本研究では多孔質・成形粒子と非多孔質・球形粒子による層内半径方向液流量分布の結果を比較した。この結果、非多孔質・球形粒子を用いた充填層の半径方向液流量分布は均一になりやすく、多孔質・成形粒子の層では下流に行くに従い、均一分布になり易いことが明らかとなった。

本研究の結果、とくに工業装置のように層径が大きく、多孔質・成形粒子の充填層では液の壁流は存在しないか、あるいは存在しても全流量に占める割合が小さく、重大な問題にならないと考えられる。

## 2. 気液下降並流充填層内の局所液滞留率分布の測定

灌液充填層において、反応流体を半径方向に均一に流すとともに、局所の液滞留率（ホールドアップ）を高めることは触媒との接触効率を高め、高反応率を得るために重要な問題である。そこで、液滞留率分布と液流量分布を同時測定し、層内での気体および液体の流動特性を解明することを目的とした。

液流のみから気液並流に変えると液滞留率が低下するが、とくに液供給流量が大きいほど減少の度合いが大きい。半径方向に分布があるが壁部でとくに大きいということもなかった。一方、前章 1. で壁部の液流量が中心部よりも小さいことが得られたが、本章の実験でも確認された。

気液下降並流の場合、一般に気液供給流量比が大きく、層内通過の駆動力

は気体側の圧力による。したがって、液滞留率の大きいところは気体流れに有効な空隙が減少し、流動抵抗が大きく、結果として液滞留率の小さいところを気体が選択的に流れると考えられる。

### 3. X線CT法による気液下降並流充填層内の液流動の可視化

充填層内の液流量分布や液滞留率分布の同時測定において、多数の測定用プローブを層内に挿入することは、流動の妨げとなり望ましいことではない。そこで、本研究では近年医療用として重要なX線CT (Computed Tomography) 法を利用して、充填層内部の流動状態の”その場 (in situ)” 観察を行った。

医療用X線CT装置を利用するため、小規模装置による限られた条件下の操作であるが、反応流体を模擬した流れの中にX線造影剤を注入し、これを時間的あるいは空間的に追跡し、液流動の可視化が可能となった。この結果、液体が層壁付近を顕著に多く流れるという現象は見いだされないことが、本研究からも明かとなった。

### 4. 充填層内の流動解析

気液下降並流充填層内の流動状態を理論的に解析することは、層内の固体、液体および気体の局所滞留率 (ホールドアップ) 分布があるために現状では極めて困難である。そこで、本研究では第一歩として、ベクトル表示の Ergun 式が局所的に成り立つものとし、空隙率分布がある層に気体または液体の一相のみが流れるときの流動を数値解析した。この結果、粘性支配の流れ (例、粒子レイノルズ数  $Re=1.5$ ) では流線が空隙率の大きい部分に大きく偏り、レイノルズ数の大きい慣性支配の場合には空隙率分布があっても充填層の入口近傍を除き流線が平行となることがわかった。

本解析法を気液下降並流充填層内の流動状態に適用することは今後の課題として残された。

## 研究組織

研究代表者： 中 村 正 秋 （名古屋大学 工学部 助教授）

## 研究経費

昭和62年度 1,000 千円

昭和63年度 400 千円

計 1,400 千円

## 研究発表

### 学会誌等

発表者：Masaaki Nakamura, Yasuki Adachi and Shigeki Toyama

テーマ名：Simultaneous Measurement of Radial Distributions of  
Gas and Liquid Flow Rates in the Trickle Bed

学会名：Intern. Conf. on Mechanics of Two-Phase Flows

年月日：June 12 ~ 15, 1989 （発表予定）

### 口頭発表

発表者：中村正秋

テーマ名：気液並流充填層反応器内の流動

学会名：化学工学協会 岐阜大会

年月日：1988年7月14日

## 研究成果

工業規模の気液並流充填層反応器の合理的な設計・操作のために、研究計画に基づき次の4項目について研究を行った。

- 1) パイロットスケールの充填層内の流動状態、特に液体の半径方向流量分布の測定
- 2) 局所の液滞留率（ホールドアップ）分布の測定
- 3) X線CT（Computed Tomography）法による充填層内部の流動状態の”その場（in situ）”観察
- 4) 気液並流充填層内の流動解析の第一歩として、空隙率分布のある充填層内の単一相の流れの解析

各研究項目ごとに得られた研究成果を、各章に分けて以下に列記した。

## 【1】 気液下降並流充填層内の半径方向液流量分布の測定

### 【1-1】 概要

従来、気液向流接触型のガス吸収用充填層では液が層の壁付近を多く流下すると言われ、気液下降並流型の触媒反応器でも液の壁流が存在するものと憶測されてきた。この点を明らかにするため直径 0.38 m、最大層高 3.0 m のパイロットプラント規模の装置を用い、層内半径方向の液流量分布を測定した。本研究の結果、気液並流接触型で、触媒のように粒子径が小さな充填層では、むしろ壁近傍の液流量が層中心部よりも小さいことを見いだした。

工業触媒は多孔質の成形粒子であるが、実験装置では非多孔質の球形粒子がよく用いられ、往々にして後者による測定結果をもって工業装置の流動状態を予測することがなされている。そこで、本研究では多孔質・成形粒子と非多孔質・球形粒子による層内半径方向液流量分布の結果を比較した。この結果、非多孔質・球形粒子を用いた充填層の半径方向液流量分布は均一になりやすく、多孔質・成形粒子の層では下流に行くに従い、均一分布になり易いことが明らかとなった。

本研究の結果、とくに工業装置のように層径が大きく、多孔質・成形粒子の充填層では液の壁流は存在しないか、あるいは存在しても全流量に占める割合が小さく、重大な問題にならないと考えられる。

### 【1-2】 目的

固体触媒気液相反応を行なわせる気液下降並流充填層反応器、いわゆる灌液充填層反応器の研究は、従来より数多く報告され、基本的な気液の流動特性は明かになってきている。しかしながら、従来の研究報告は充填粒子としてガラスビーズのような非多孔質・球形粒子を用い、比較的層径、層高の小さい

ものがほとんどである。したがって、得られた知見を工業反応装置の設計に適用しようとするとき、その適用限界の妥当性に疑問の余地がある。たとえば、工業触媒は多孔質で、かつ非球形の成形粒子であるため、非多孔質・球粒子で得られた液ホールドアップや液混合拡散係数はそのまま使えるか、球直径を用いて整理されている相関式を非球形粒子にも適用可能か、などの問題点がある。

工業装置と同じ寸法の実験装置で種々の特性を調べることが望ましいが、工業規模の灌液充填層反応器の直径が約 4 m、高さが数ないし十数 m におよび [1, 2]、このような大規模な装置での実験は困難である。本研究はパイロットスケールを想定した直径 0.38 m、最大層高 3.0 m の装置内に 1/16"三葉形の工業触媒を充填し、空気-水系で半径方向液流量分布を測定する。また、比較のために工業触媒と相当径が等しい直径 1.4 mm の球形ガラスビーズを充填した実験を行い、充填粒子の影響も考察する。

### [1-3] 実験装置

図 1-1 に実験装置の概略、表 1-1 に実験条件を示す。

充填層本体は、内径 0.38 m、最大層高 3.0 m のアクリル樹脂製である（写真 1-1）。充填層上部には、気液分散器があり、気液を均一に充填層に供給する役割をしている（写真 1-2）。気液分散器には、2本のガス供給管、液の分散を良くさせるためにH形をした液供給管および、2枚のアクリル製多孔板よりなる。ガス供給口は上に向いており、流入空気はまず上の蓋に吹きつけられた後、下向きに流れを変える。一方、H字形の液供給管には小さな穴が多数明けられており、水が均一に流出するように配慮されている。多孔板には基盤の目状に配列した穴があり、2枚の多孔板の穴が上下に重ならないよう配置してある。



充填層下部には、採取器がある（表1-2、写真1-3）。これは流れを乱さずに気液を同心環状の7つの部分に分割する働きをしている。半径方向の液流量分布の測定は、この採取器によって7つの部分に分けられた液の量を測定して行なった。

実験装置には、これらのほかに流量測定用のローメーター、充填層の圧力損失を測定するための圧力タップ、層内の液滞留量を測定するための締切用バルブなどが装備されている（写真1-4）。また、測定値をパーソナルコンピュータに取り込み、種々の計算処理を同時に行った（写真1-5）。

図1-2は、本研究の気・液供給流量の操作範囲を粒子基準のレイノルズ数で図示したものである。参考のために流動様式を図示したが、本研究の操作範囲は全て trickle flow（灌液流）の領域と思われる [3, 4, 5]。

図1-3は、用いた 1/16” 三葉形（クローバー形）工業触媒粒子（写真1-6）の長さおよび球形ガラス粒子の直径の分布を対数確率紙で図示したもので、代表長さ（直径）として 50 %相当径を採用した。

## [1-4] 実験結果

### (1/16” 三葉形触媒、濡れの進行状況)

工業反応装置に新しく乾いた触媒を充填し操業を開始する場合（スタートアップ）、反応開始に先立ち予備的な操作として触媒に反応液（または反応生成液）を流し、触媒を濡らすことを行う（pre-wetting）。そこで、本実験でも通水開始後どのような経過をたどって触媒の濡れが進行するかを観察した。写真1-7～写真1-14はパイロットスケールに 1/16” 三葉形触媒を充填し、本実験範囲での最大液流量 34 l/h（液空塔速度  $U_{lo}=0.5$  cm/s に相当）で通水したときの写真である。各写真において、やや黒く写っている部分が水に濡れていることを示す。通水開始後、時間経過とともに次第に黒い部分が拡

がり、約 300 min 後（写真 1-14）でも完全に濡れていないことがわかった。

従来、充填層の壁付近では空隙率が大きく、この部分を液がよく流れると言われているが、本写真集を見る限り、かなりの高液流量で水を流したにもかかわらず水は壁部を完全に流れず、むしろ充填層内部の濡れが次第に壁付近へ拡大していると言える。

また、多孔質固体では吸水性が良く、半径方向への拡がりも急速に進行すると予想されているのに対し、約 300 min 後にも乾いた部分が見られたのは意外であった。本観察は、壁部分に限られるが、このような事実は充填層内部においても乾き部分の存在が考えられ、反応器をスタートアップする時の pre-wetting にかなりの長時間を要することがわかった。

#### （半径方向液流量分布、球形ガラス粒子）

層径  $D=0.38$  m のパイロットスケールの装置に、直径  $d_p=1.4$  mm の球形ガラス粒子を層高  $L=0.15 \sim 1.40$  m 充填し ( $L/D=0.4 \sim 3.7$ )、種々の流量で気体および液体を流したときの半径方向液流量分布を測定した（図 1-4 ~ 図 1-7）。各図において充填層高  $L=0$  m の位置に描かれた分布は、粒子を充填しないときに測定した液流量分布である。ついで、各充填層高において測定した分布を同一の図の下方に示し、液が流下する間に分布がどのように変化したかを示した。

液体供給流量が 20 l/h（液空塔速度  $U_{lo}=0.3$  cm/s に相当）以下の時、気体供給流量（空塔速度  $U_{go}$  で表示した）の変化にもかかわらず、半径方向の液流量分布はほぼ均一であった（図 1-4、図 1-5）。

一方、液速度が大きい時（液供給流量 27 ~ 34 l/h）には、層高  $L=0$  m（すなわち、気液分散器の直後）において、すでにかなり半径方向に液流量分布が認められた。しかし、液供給流量 34 l/h（液空塔速度  $U_{lo}=0.5$  cm/s）、充填層高  $L=1.40$  m では、半径方向の液流量分布が均一化することがわかった

(図1-6、図1-7)。

気体供給流量が半径方向液流量分布に及ぼす影響は、全体に顕著でなかった。(図1-4と図1-5の比較)

(半径方向液流量分布、工業触媒粒子)

工業触媒の 1/16" 三葉形粒子を用いた時の液流量の半径方向分布は、球形ガラス粒子を用いた時と異なり、一般に半径方向液流量分布が均一であった(図1-8 ~ 図1-11)。特に、高液供給流量の時でも層出口の液流量分布が半径方向に均一で、気液分散器直後の不均一分布が解消されていたことである(図1-10 ~ 図1-11)。

このように多孔質粒子を用いた場合には、充填層高が比較的低い時 ( $L = 0.40 \text{ m}$ ) でも半径方向の分布が改善され、 $L = 1.00 \text{ m}$  以上ではほぼ均一と見なすことができた。気体供給流量が半径方向液流量分布に及ぼす影響は、液供給流量が多い場合に若干認められ、気体を流さない時(図1-10)よりは、流した方(図1-11)が均一になった。

## [1-5] 結 言

従来より気液下降並流充填層、すなわち灌液充填層反応器の流動特性は種々調べられ、報告も少なくない。しかし、これらの公表された報告を見るかぎりでは、工業用触媒を充填したパイロットスケール以上の規模の報告はほとんどなく、模擬粒子を用いたり、層径も実験室規模のものがほとんどである。

本研究は層径 0.38 m のパイロットスケール装置を用い、工業触媒である 1/16" 三葉形触媒を充填して行い、得られた主な成果は：

1) 工業装置のスタートアップ時の“前処理”の一つである pre-wetting に関連し、乾き触媒粒子が通水後どのような経過をたどって濡れていくかを観察した。観察ができるのは透明壁に接する粒子に限られるが、層内部の状態

も予測できた。通水開始後、約 5 h 経過しても乾いた部分があり、工業装置の pre-wetting に要する時間の目安を知ることができた。

2) 液流量の半径方向分布を測定したところ、低液供給流量（液空塔速度  $< 0.3 \text{ cm/s}$ ）では均一に分布していることがわかった。これより高い液供給流量では、液分散器が良好でなく、層頂部において半径方向に液流量分布ができていたが、層出口では不均一分布が解消し、均一に流出することがわかった。これらの結果より工業触媒粒子を充填した場合の液分散は良好と思われる。

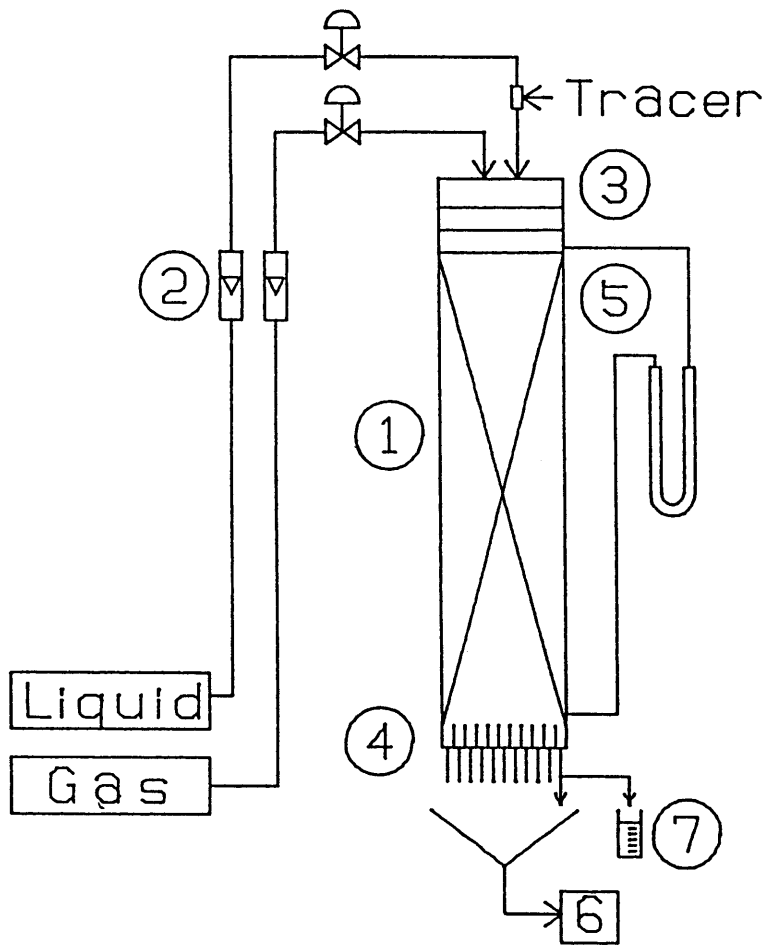
3) 従来、層壁部分の空隙率が大きいために液がこの部分を多く流れる（wall flow）と憶測されているが、顕著な wall flow は認められなかった。

表 1 - 1 実験条件

流体		気体：空気	液体：水
充填粒子		球形ガラス (1.4 mm)、工業触媒 (1/16" 三葉形)	
充填層径	D	38 cm	
充填層高	L	20 ~ 200 cm	
液体供給流速	$U_{lo}$	0.10 ~ 0.50 cm/s	
気体供給流速	$U_{go}$	0 ~ 24.0 cm/s	

表 1 - 2 気液採取器寸法

Section	1	2	3	4	5	6	7
外径 (cm)	3	10	15	20	26	33	38
内径 (cm)	0	3	10	15	20	26	33
面積比 (%)	0.6	6.3	8.7	12.1	19.1	28.6	24.6
出口数	1	4	8	12	12	16	16



- 1 Packed bed
- 2 Rotameter
- 3 Distributor
- 4 Collector
- 5 Pressure tap
- 6 Conductivity meter
- 7 Graduated cylinder

図1-1 実験装置の概略

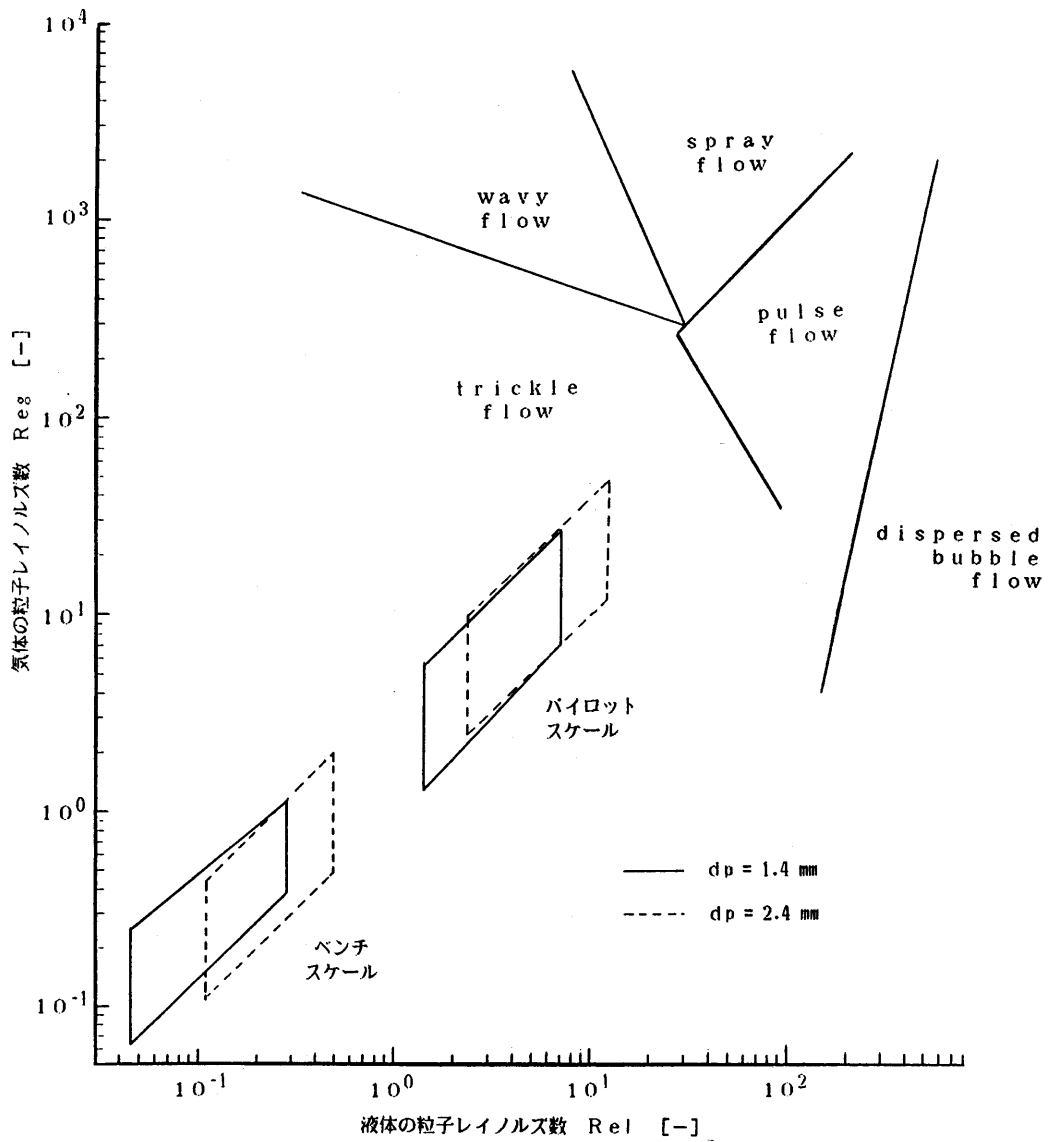


図1-2 気・液供給流量の範囲

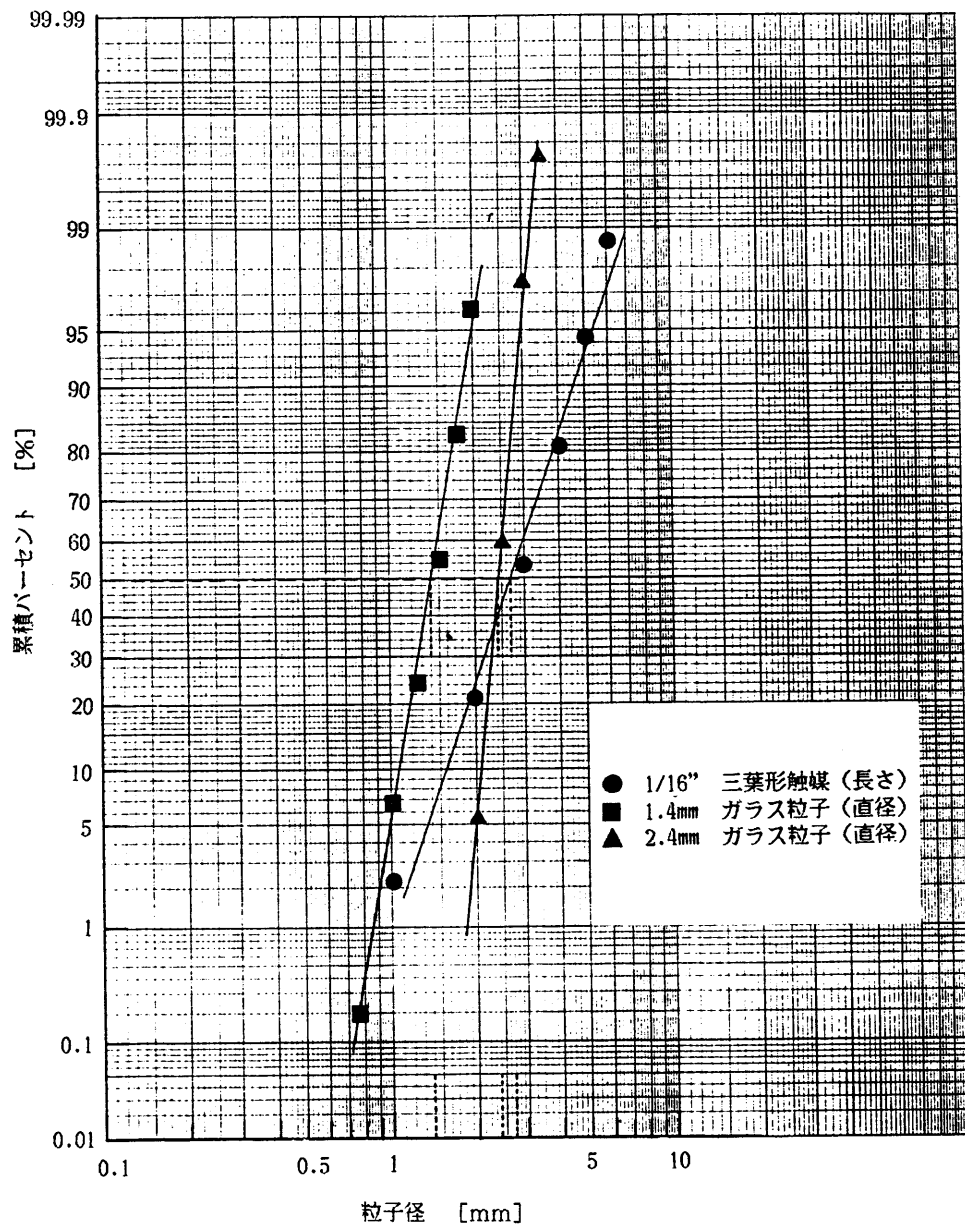
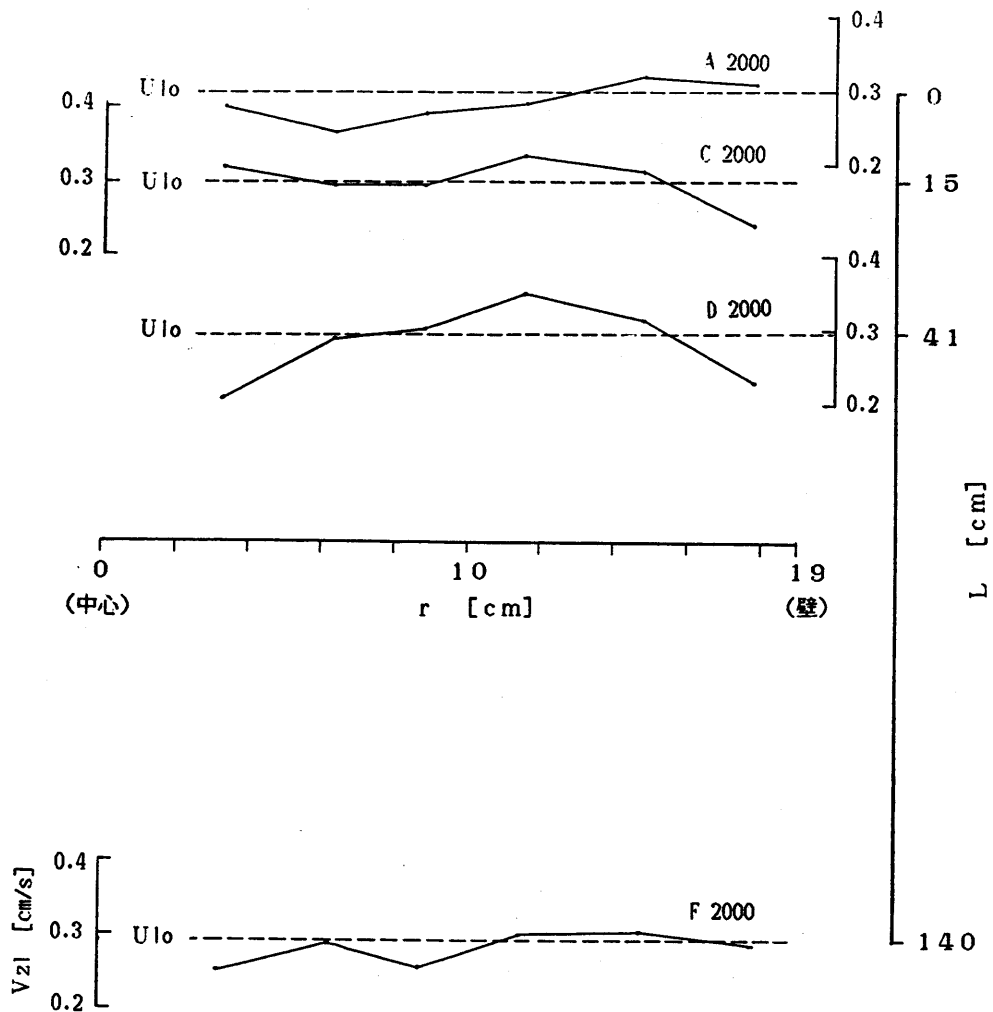


図1-3 充填粒子の長さ・直径の分布 (対数確率紙)

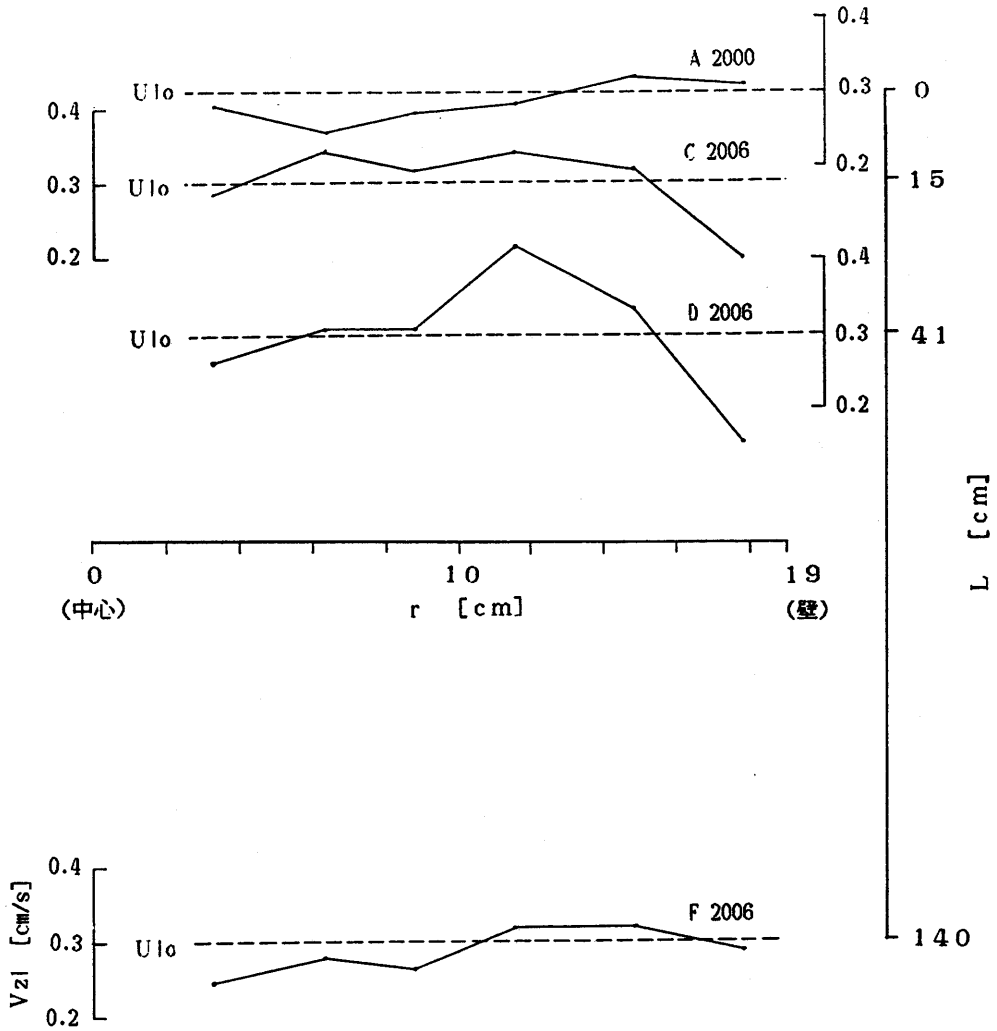




Run No.	$U_{lo}$ [cm/s]	$U_{go}$ [cm/s]	$L$ [cm]	$\frac{L}{D}$
C 2000			15	0.4
D 2000	0.30	0	41	1.1
F 2000			140	3.7

図 1-4 半径方向液流量分布

(1.4 mm 球形ガラス粒子、液单相流  $U_{lo}=0.3$  cm/s )



Run No.	$U_{1o}$ [cm/s]	$U_{go}$ [cm/s]	$L$ [cm]	$\frac{L}{D}$
C 2006	0.30	9.50	15	0.4
D 2006			41	1.1
F 2006			140	3.7

図1-5 半径方向液流量分布

(1.4 mm 球形ガラス粒子、気液二相流  $U_{1o}=0.3$  cm/s、 $U_{go}=9.5$  cm/s)

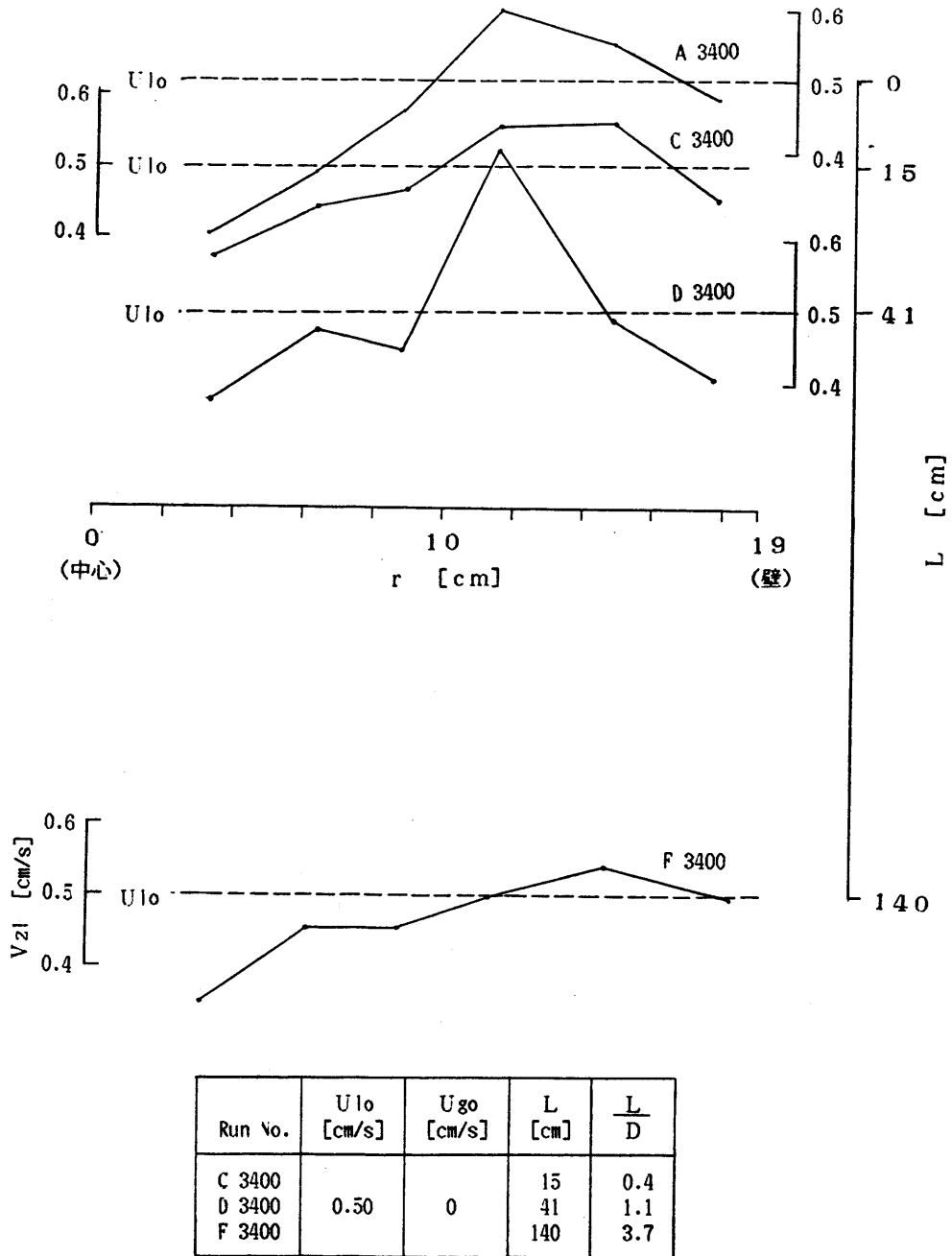
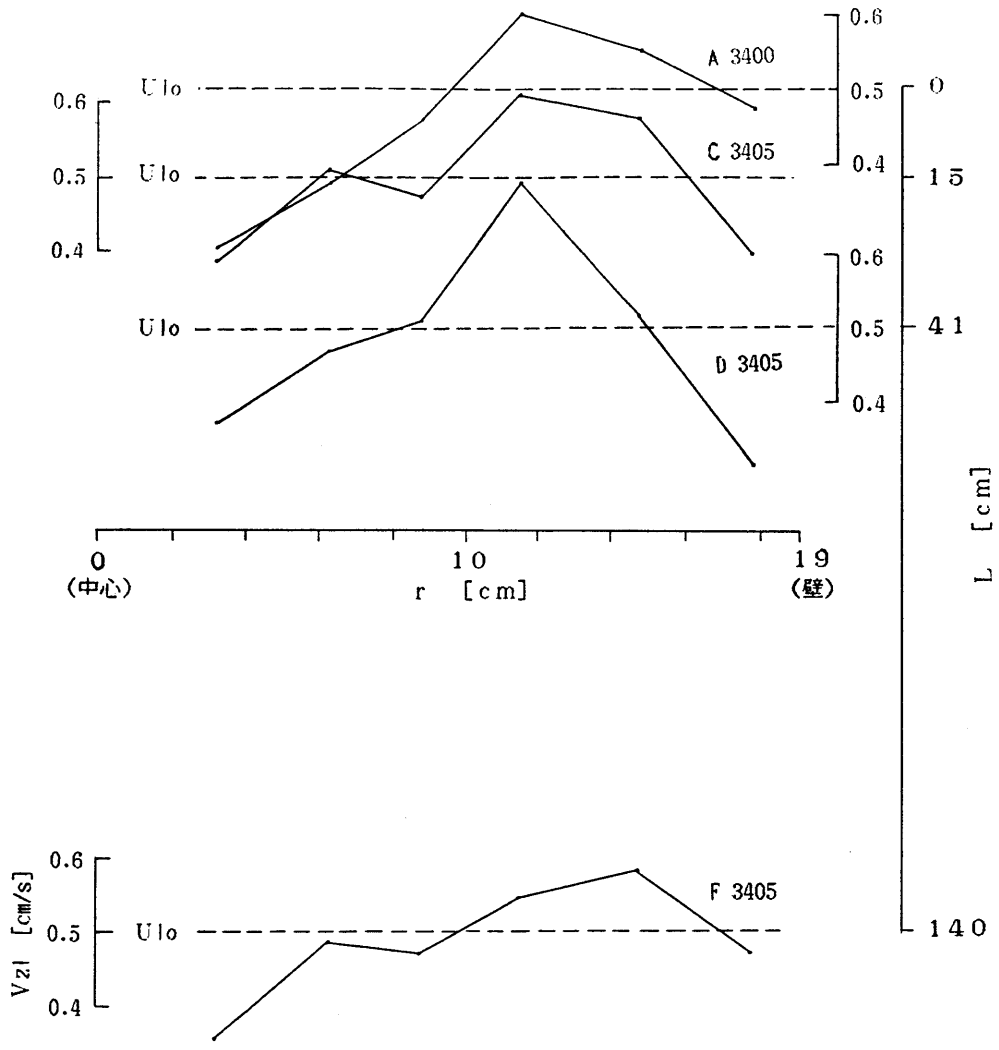


図 1-6 半径方向液流量分布  
(1.4 mm 球形ガラス粒子、液单相流  $U_{10}=0.5$  cm/s)



Run No.	U <sub>10</sub> [cm/s]	U <sub>go</sub> [cm/s]	L [cm]	$\frac{L}{D}$
C 3405	0.50	8.00	15	0.4
D 3405			41	1.1
F 3405			140	3.7

图 1-7 半径方向液流量分布

(1.4 mm 球形ガラス粒子、気液二相流 U<sub>10</sub>=0.5 cm/s、U<sub>go</sub>=8.0 cm/s )

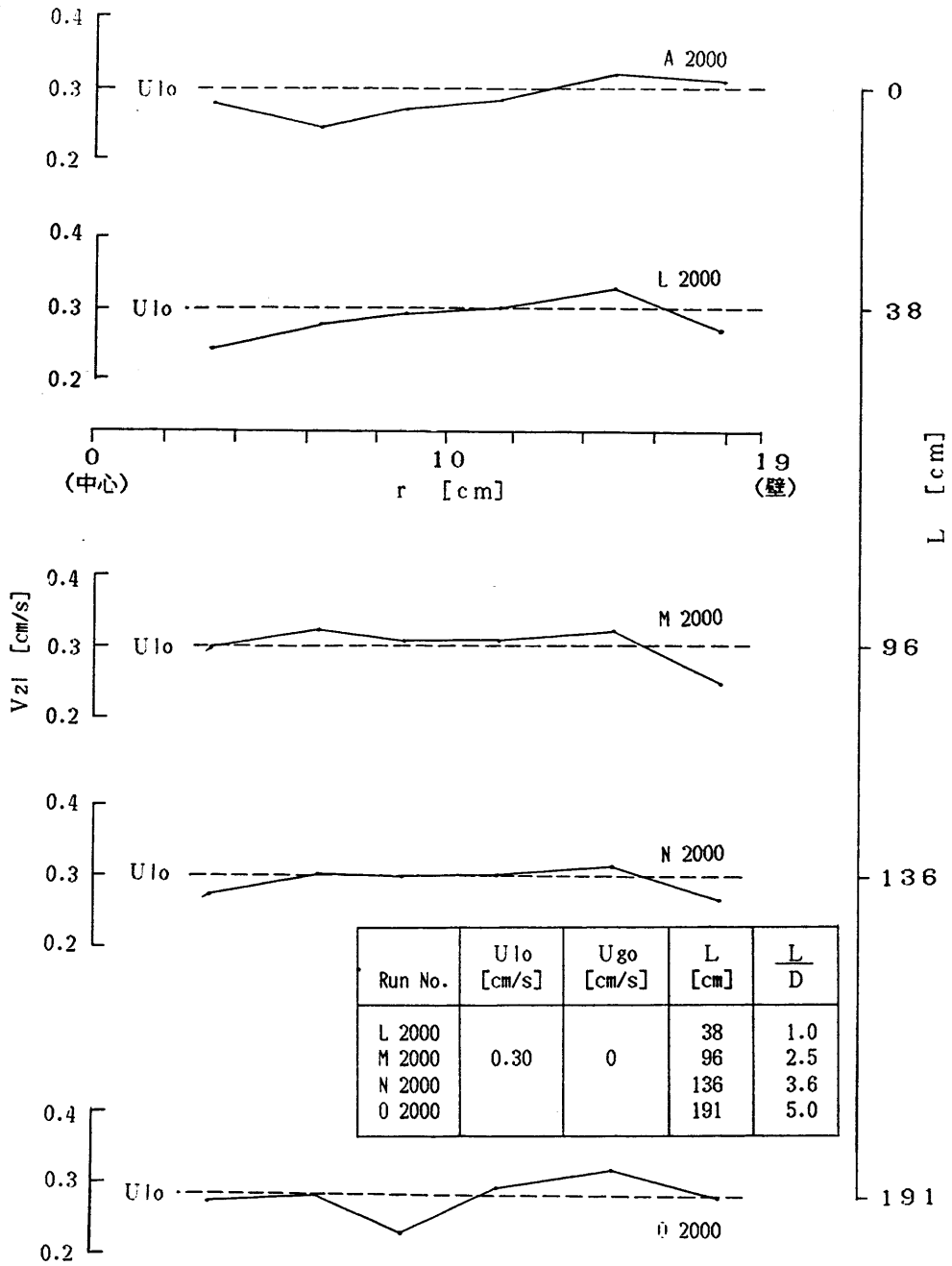


图1-8 半径方向液流量分布

(1/16" 三葉形触媒粒子、液单相流  $U_{10}=0.3$  cm/s )

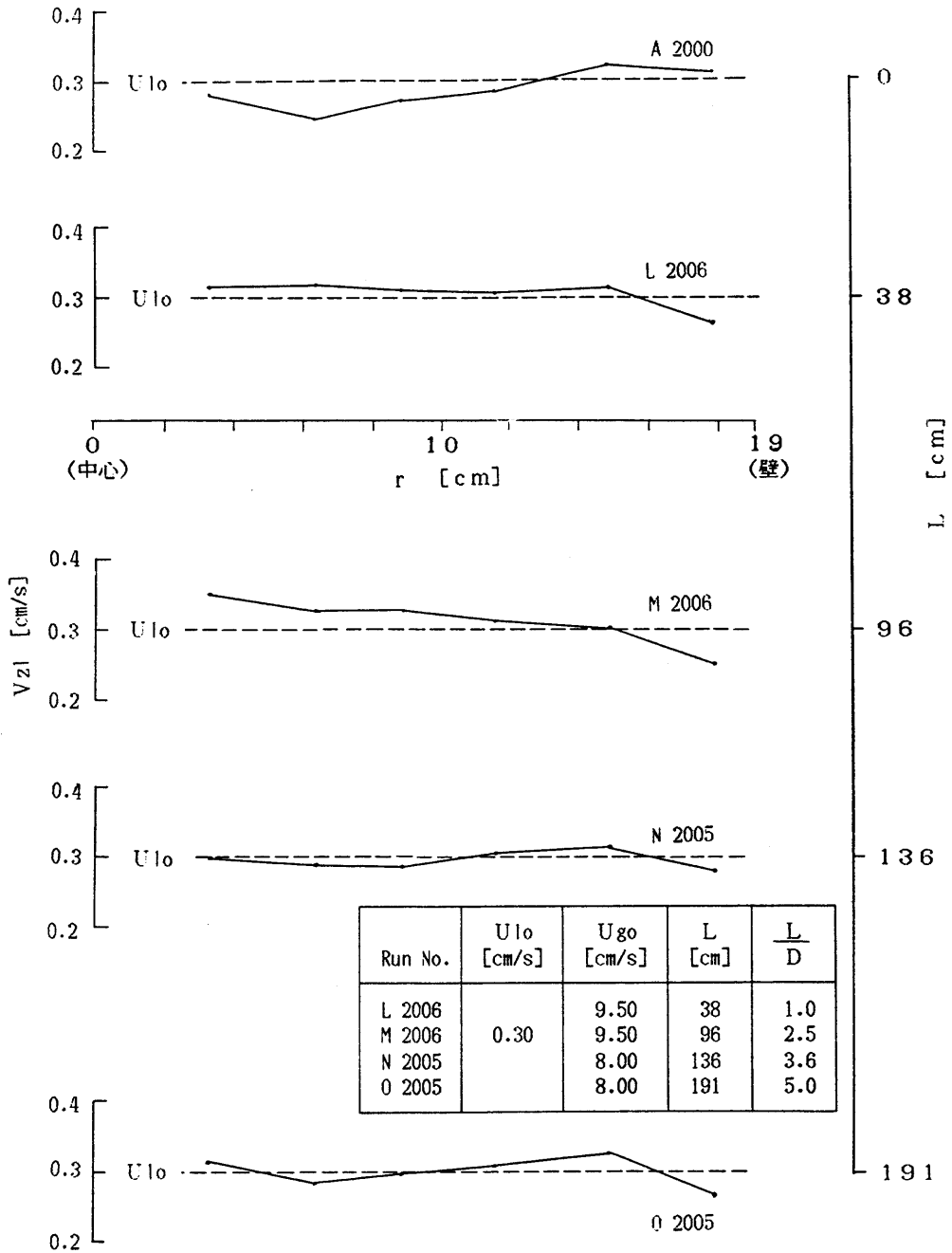


图 1-9 半径方向液流量分布

(1/16" 三葉形触媒粒子、氣液二相流  $U_{10}=0.3$  cm/s、 $U_{90}=8.5-9.5$  cm/s)

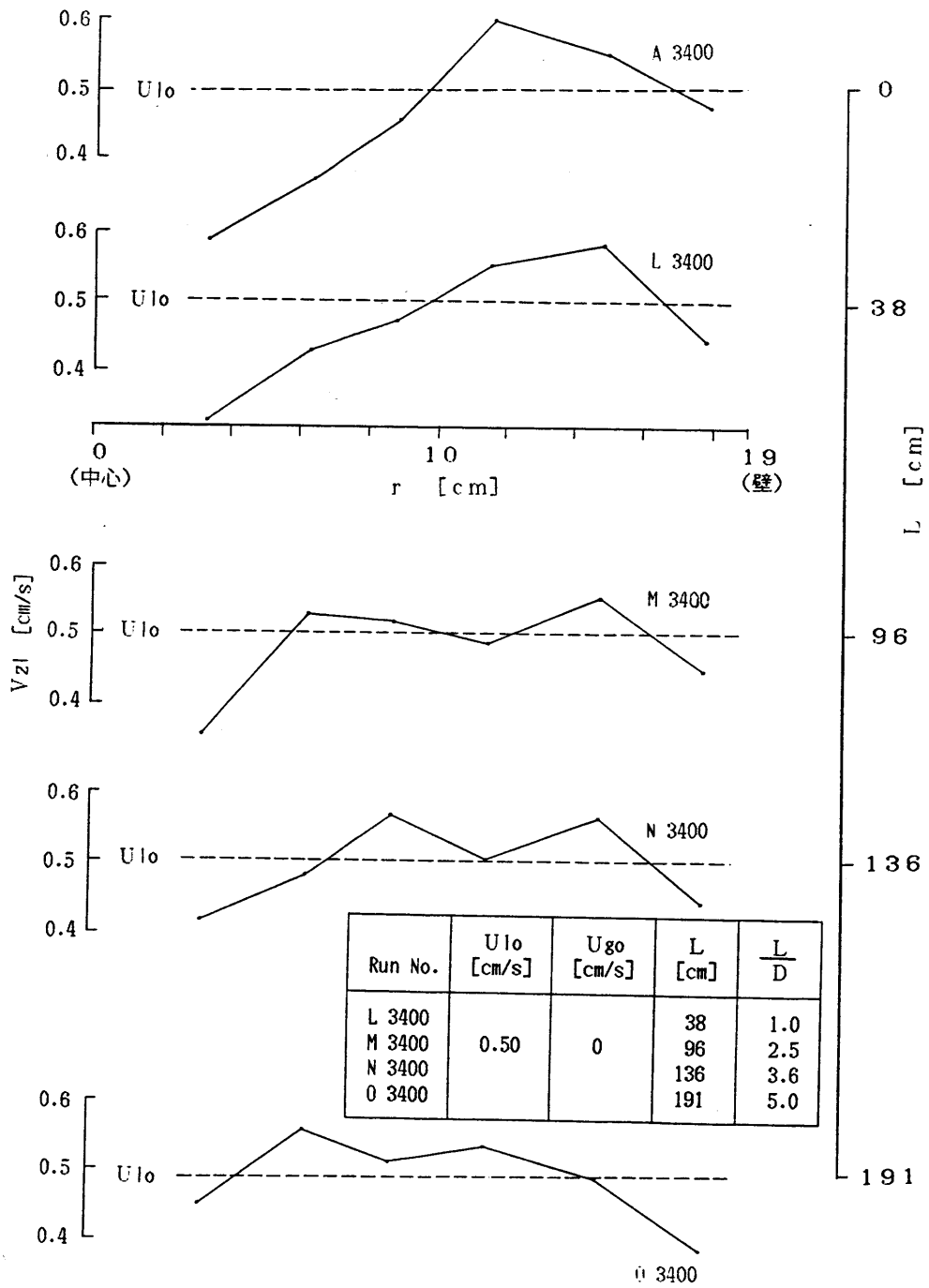


图 1-10 半径方向液流量分布

(1/16" 三葉形触媒粒子、液单相流  $U_{10}=0.5$  cm/s )

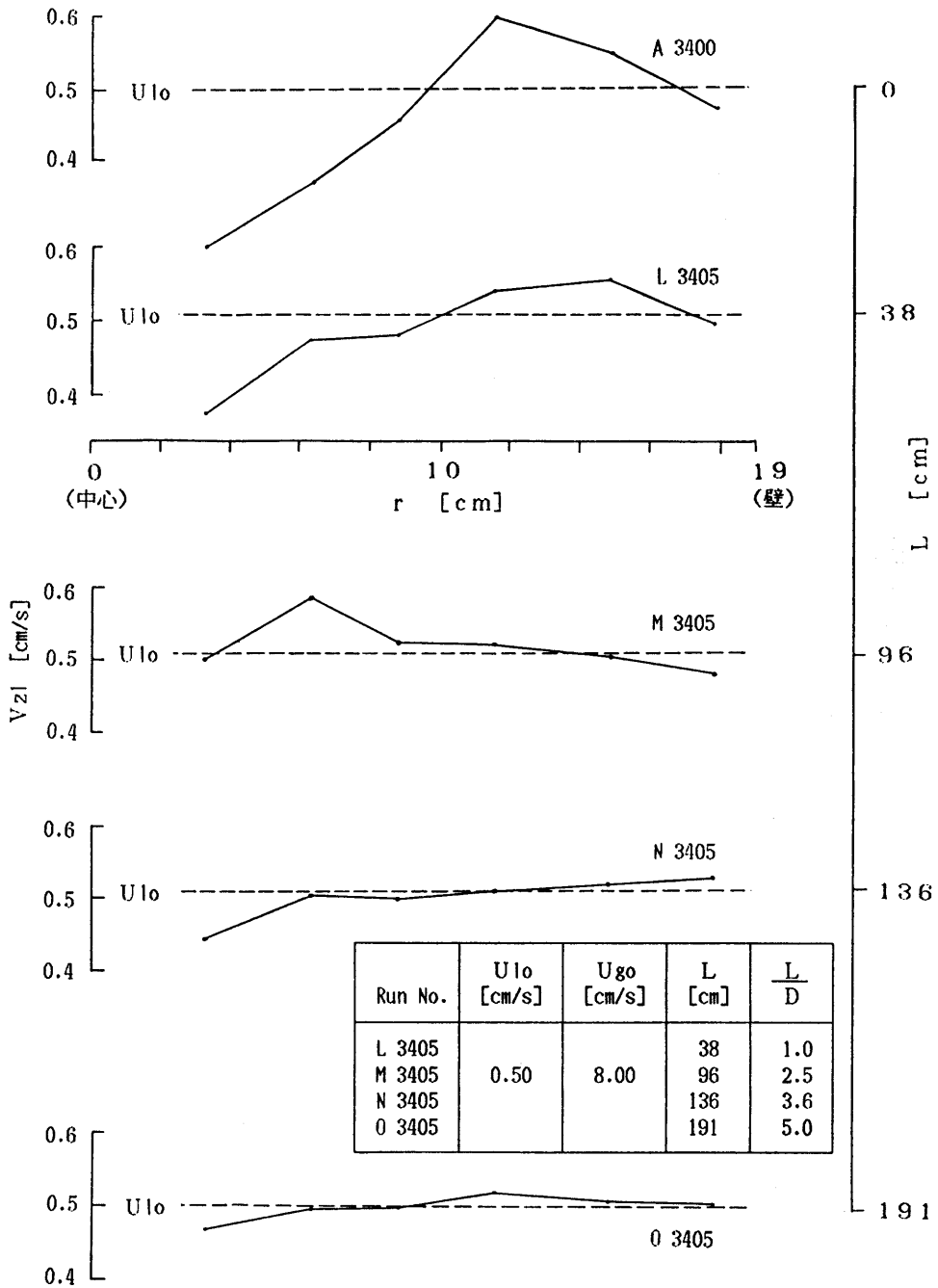


图 1-11 半径方向液流量分布

(1/16" 三葉形触媒粒子、 氣液二相流  $U_{10}=0.5$  cm/s、  $U_{go}=8.0$  cm/s)



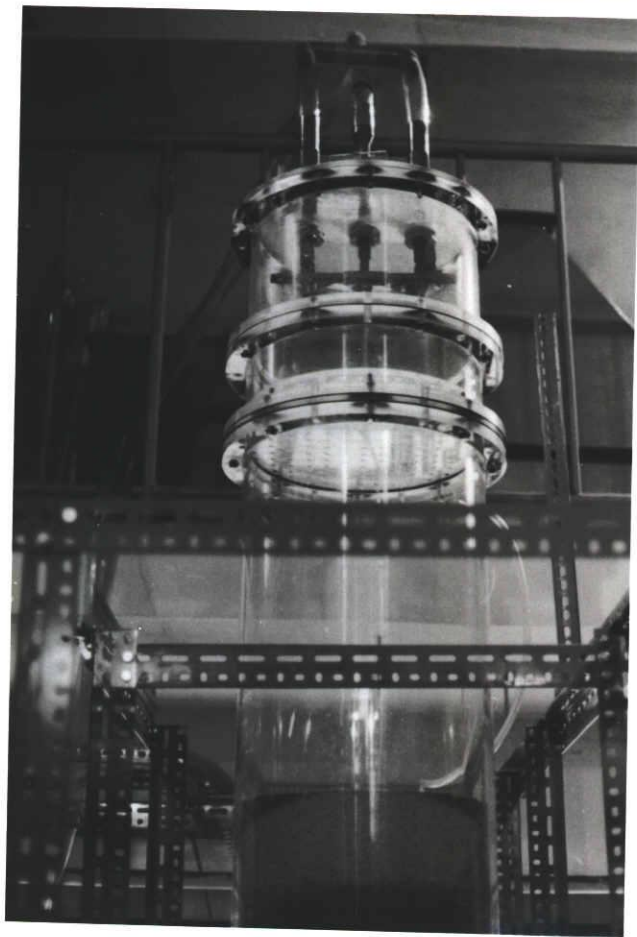


写真1-2 気液分散器

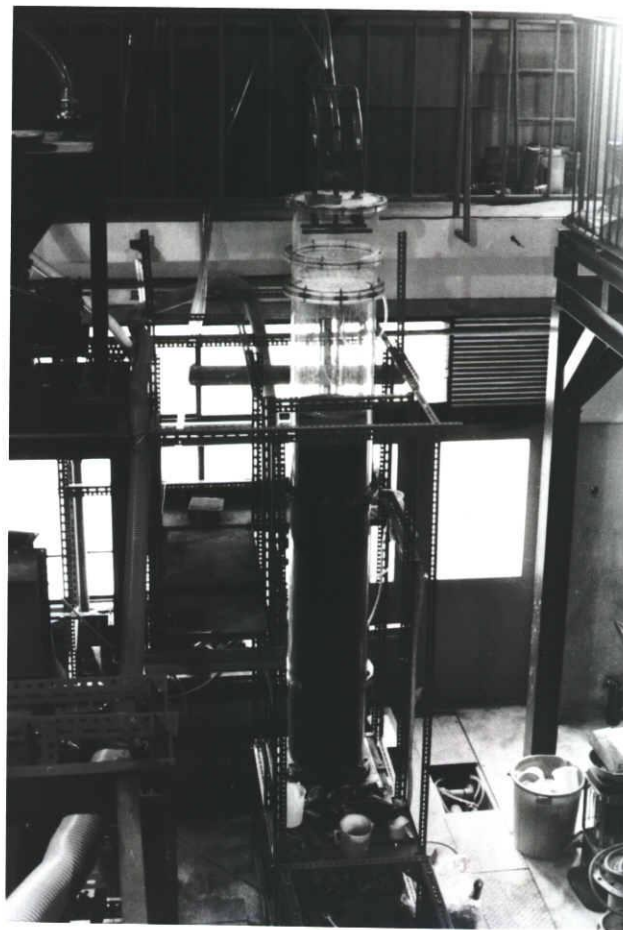


写真1-1 実験装置の全体

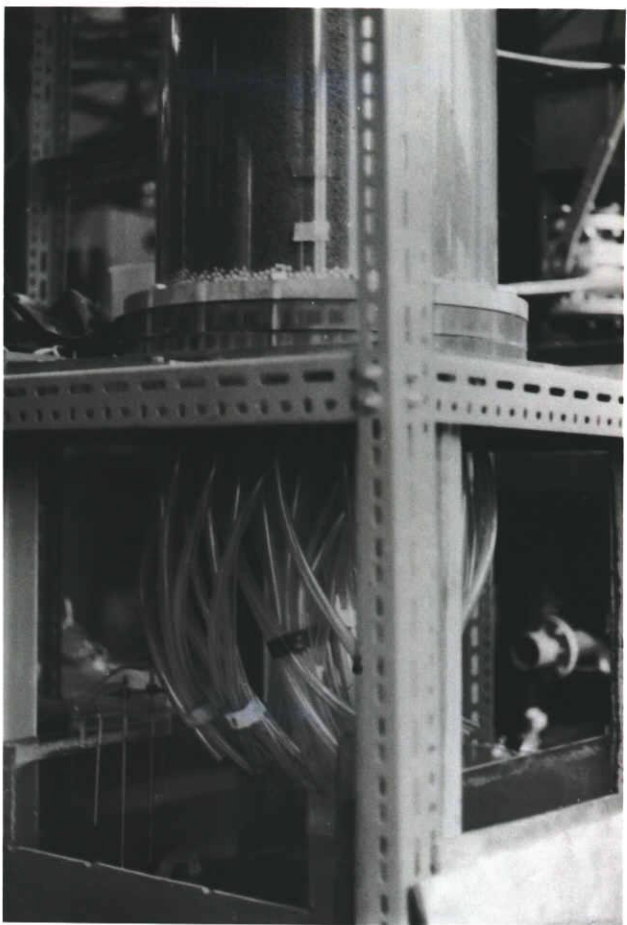


写真1-3 氮气採取器

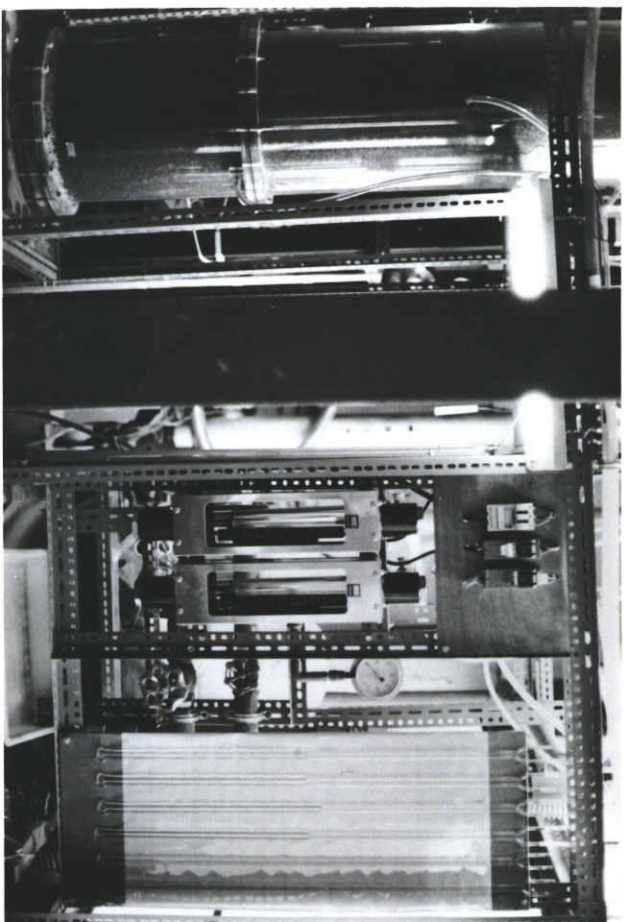


写真1-4 流量測定器



写真1-6 1/16" 三葉形触媒



写真1-5 データ処理装置

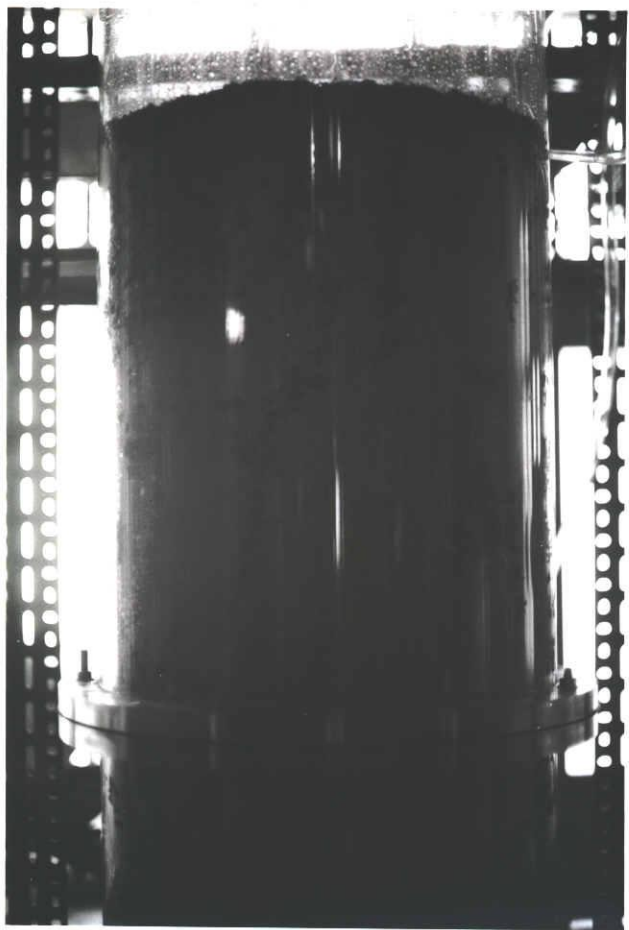


写真1-8 通水開始後の濡れ状態（2 min）

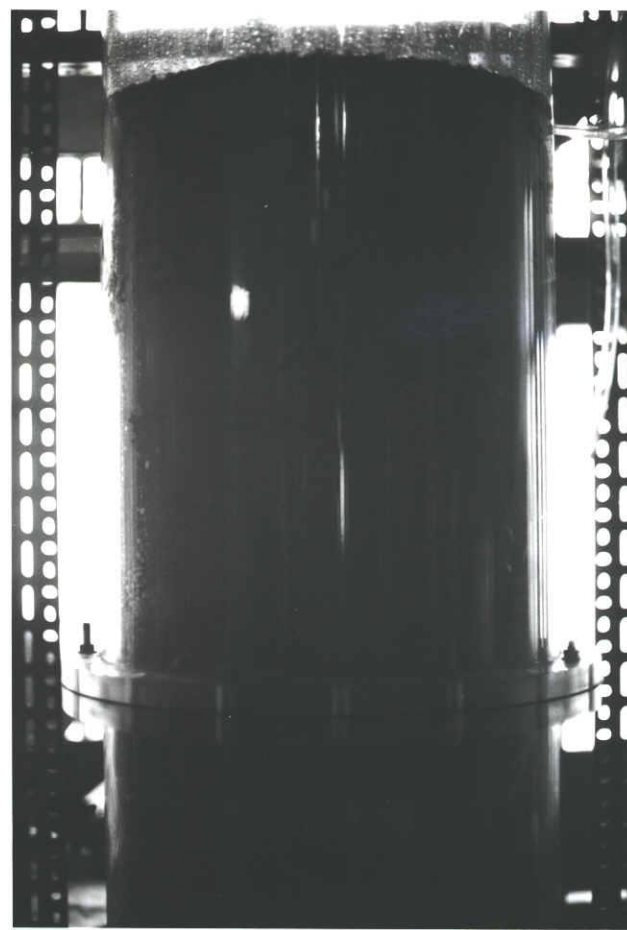


写真1-7 通水開始後の濡れ状態（1 min）



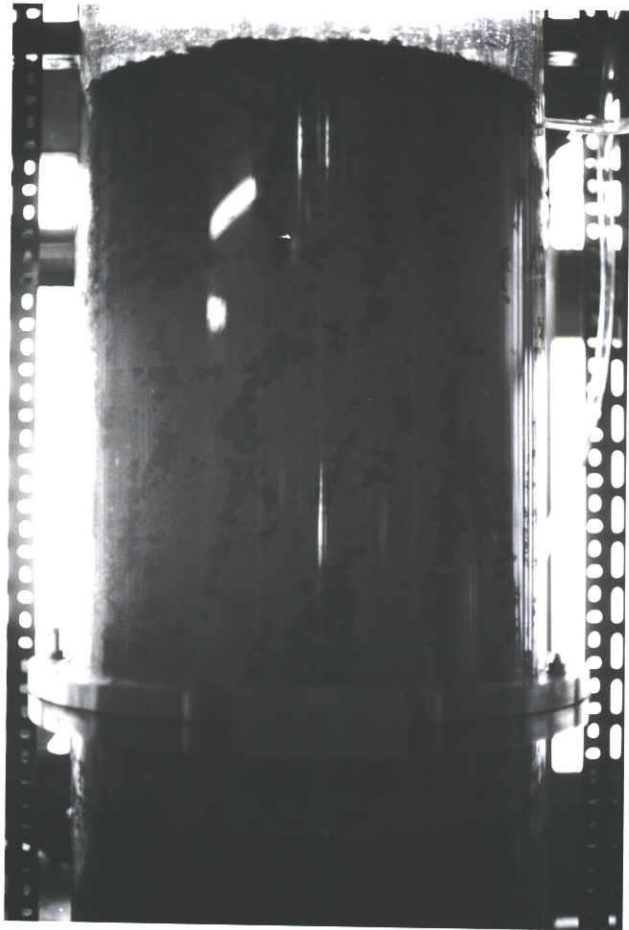


写真 1-10 通水開始後の濡れ状態 ( 10 min )

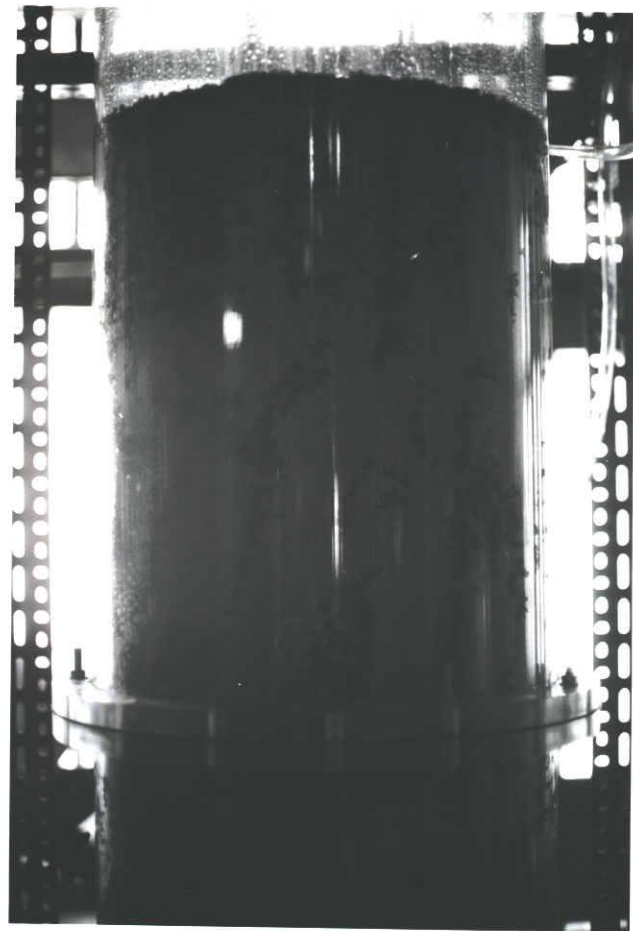


写真 1-9 通水開始後の濡れ状態 ( 4 min )

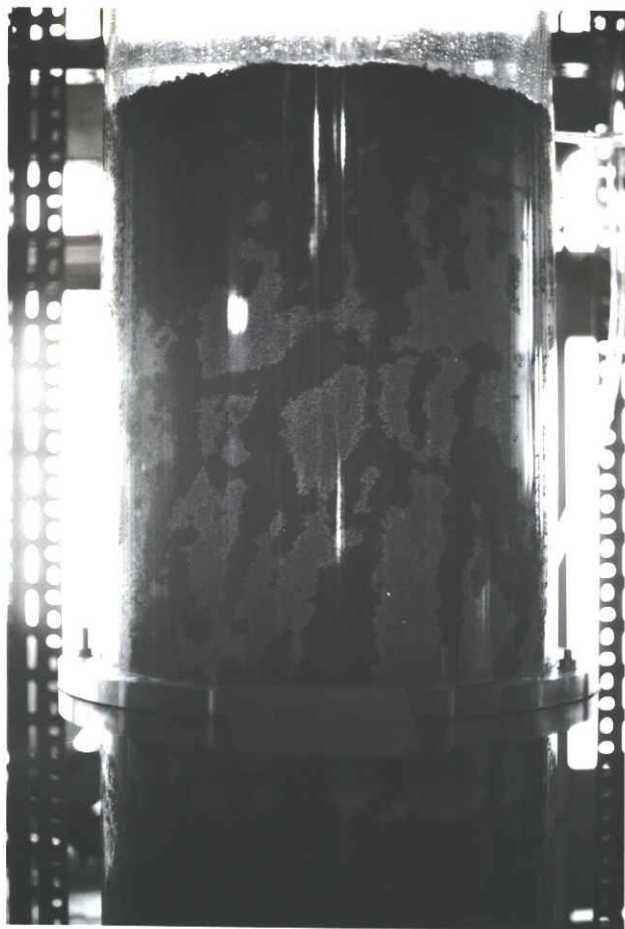


写真 1-12 通水開始後の濡れ状態 ( 120 min )

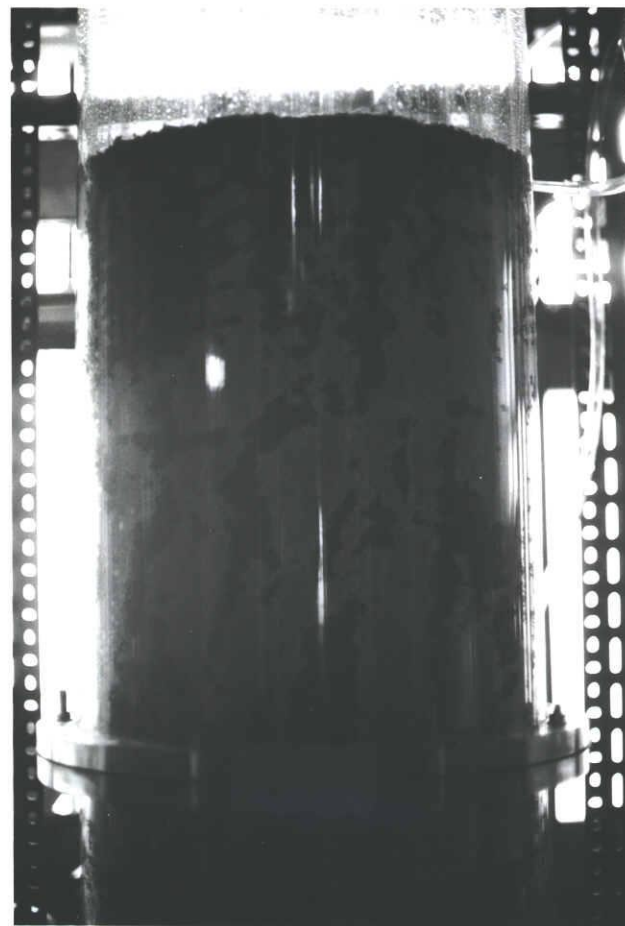


写真 1-11 通水開始後の濡れ状態 ( 60 min )

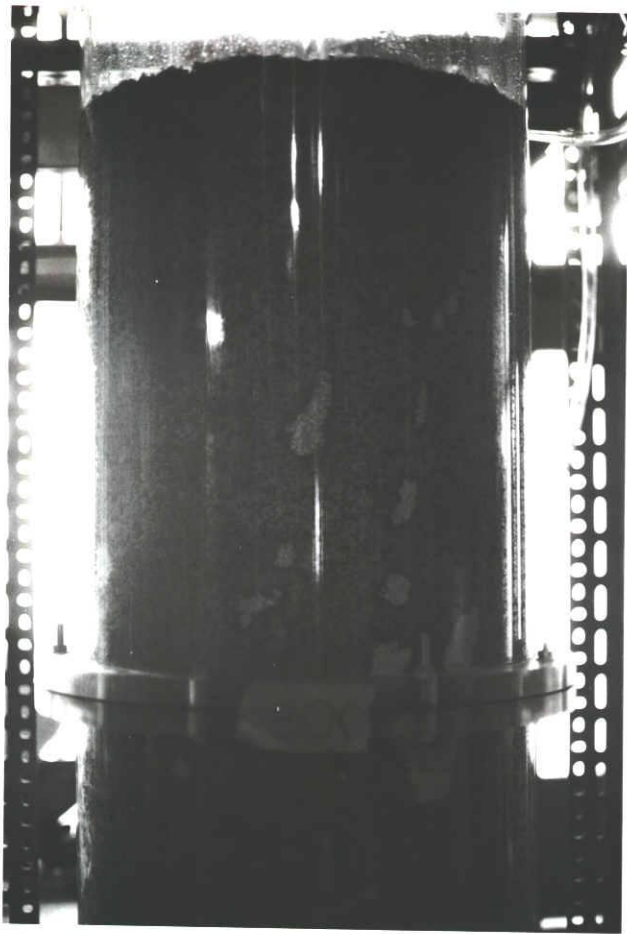


写真 1-14 通水開始後の濡れ状態 ( 300 min )

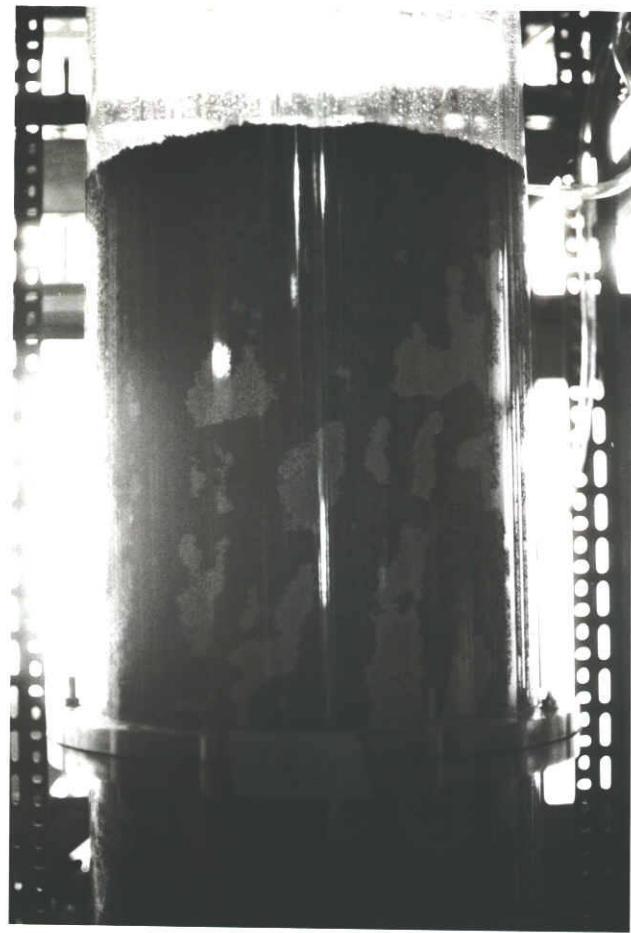


写真 1-13 通水開始後の濡れ状態 ( 180 min )

## 【2】 気液下降並流充填層内の局所液滞留率分布の測定

### 【2-1】 概要

灌液充填層において、反応流体を半径方向に均一に流すとともに、局所の液滞留率（ホールドアップ）を高めることは触媒との接触効率を高め、高反応率を得るために重要な問題である。そこで、液滞留率分布と液流量分布を同時測定し、層内での気体および液体の流動特性を解明することを目的とした。

液流のみから気液並流に変えると液滞留率が低下するが、とくに液供給流量が大きいほど減少の度合いが大きい。半径方向に分布があるが壁部でとくに大きいということもなかった。一方、前章【1】で壁部の液流量が中心部よりも小さいことが得られたが、本章の実験でも確認された。

気液下降並流の場合、一般に気液供給流量比が大きく、層内通過の駆動力は気体側の圧力による。したがって、液滞留率の大きいところは気体流れに有効な空隙が減少し、流動抵抗が大きく、結果として液滞留率の小さいところを気体が選択的に流れると考えられる。

### 【2-2】 目的

気液並流充填層反応器、いわゆる灌液充填層反応器において、反応流体を半径方向に均一に流すことは反応器の効率を向上させるために必須の条件であり、前章においてパイロットスケールの装置を用い、半径方向液流量分布を検討した。

一般に、重質油の水素化分解や水素化脱硫は反応気体が液相に溶解し、液相反応物質と触媒に接触して反応するものと考えられる [3]。したがって、個々の触媒粒子が反応に有効に寄与するためには、局所の液滞留率（ホールドアップ）を多くし、反応流体と触媒との接触効率を高めることが重要な問題で



ある。半径方向液流量分布は、いわば充填層全体の巨視的な液の分散状態を示すものである。そこで、微視的（局所的）液滞留率分布ならびに気・液流量分布を測定し、層内での気体および液体の微視的な流動特性を解明することを目的とした。

### 〔2-3〕 実験装置

実験装置の概略を図2-1に示した。充填層本体はアクリル樹脂製で、層径 12 cm、最大層高 100 cm である。使用した充填粒子、その他の実験条件を表2-1にまとめて示した。

気体および液体の半径方向流量分布の測定は以下のようにして行った。図2-1の充填層③を流下した気・液流は、底部に設置した同心環状の採取器④で6つの部分（表2-2）に分割された後、それぞれ気液分離器⑤で気体と液体に分離される。分離器内の液面および気体圧力は制御器⑥、⑦で6つとも同じ値に保たれている。分離器を出た気体および液体は、ストップウォッチと秤量器⑧でそれぞれの流量が測定される。

局所的な液滞留率（ホールドアップ）の測定は、充填層内9ヵ所に挿入された白金板電極⑨（3.5×4.0 mm、間隔 10 mm）間の電気抵抗の変化に基づく電圧変化を測定して求めた。電極の詳細を図2-2に、測定回路の原理を図2-3に示す。空隙が液で満たされる分率（液飽和度  $S$  と言う）が 100 % のときの白金電極間にかかる電圧  $V_0$  の測定値を表2-3に示した。液飽和度  $S$  を種々に変えた粒子層を用意し、図2-3の回路で電圧  $V$  を測定し、 $S-V$  検量線を予め作成した（図2-4）。

### 〔2-4〕 実験結果

図2-5は、充填層に気体あるいは液体のみを流した場合の層出口における

半径方向の流量分布を、充填層高 $L=0$ 、16、35、65 cm について示す。

図2-5と同様な表し方の図を以下に多く掲げるので、軸方向の速度 $V_z$ の算出法と問題点について述べる。層底部に設置した気液採取器は、表2-2に示す環状の隔壁からなる6部分に分割され、各部に流入した流量と断面積から平均速度 $V_z$  (=流量/断面積)を計算した。しかし、表に見られるように層中心付近の第1および第2部分の断面積は小さく、この部分の流量がわずかに変動したり、わずかの測定誤差が平均速度 $V_z$  (=流量/断面積)の計算値に大きな影響を及ぼすこととなる。図ではたんに測定値を折れ線により結んだが、何らかの方法により測定値の平滑化処理を行う必要があるが、現状ではこれを行っていない。以上のことに、配慮しつつ結果を考察する。

図2-5(1)は気体のみを、図2-5(2)は液体のみを流した場合の流速 $V_z$ の分布を示す。ここで、層高 $L=0$ の場合は、分散器による気液分散状態を意味する。液体はほぼ均一な分散がなされているが、気体の分散がやや悪いようであるが、上記の点を考慮すれば、一応満足して実験を進めることとした。特にここで注目したのは、ガス吸収塔などの大きな充填物のときに起こるとされる壁付近の流れが多くなる現象 (wall flow) が、触媒粒子のように粒子径が小さい場合にも発生するか、という点である。図2-5によれば(本実験の場合、1.0 mm 球形ガラス粒子)、層高が大きくなっても液体はほぼ半径方向に均一に流れ、液流が壁部へ偏るという wall flow の現象は見られなかった。また、透明壁を通した目視でも壁部の液流が大きいということは観察されなかった。

図2-6は、気液を並流で流した場合の半径方向の流速分布を、気体および液体の両方について同時測定した結果を示す。図2-6(1)は気体の、図2-6(2)は液体の流速分布を示すが、気液並流の場合も液の wall flow は見られず、むしろ気体が壁部を多く流れていることを示している。

図2-7は液単相流の、図2-8は気液二相流の場合の半径方向液飽和度分布を示す。液単相流の場合は液体供給速度 $U_{l0}$ によって液飽和度 $S$ は大きく変化し、気液二相流の場合の液飽和度は液単相流の値に比べて減少し、とくに液体供給速度が大きいほど減少の割合が大きい。

以上の結果より、次のように考えられる。

触媒のような比較的小さな粒子の充填層では、液の壁流 (wall flow) は存在しないと考えられる。一般に、気液下降並流の気液供給流量比は大きく、層内通過の駆動力は気体側の圧力によると思われる。液飽和度の大きい部分は気体流れに有効な空隙が減少し、気体の流動抵抗が増すため、液飽和度の小さいところを気体が優先的に流れると考えられる（あるいは、気体が多く流れるために液体が排除されて液飽和度が小さくなると考えられる）。

図2-7および図2-8において、半径方向の液飽和度の分布は、どの実験の場合もある一定の範囲におさまっていたので、半径方向9点の平均値 $\bar{S}$ と各操作条件との関連を図2-9～図2-11に示した。液飽和度 $\bar{S}$ は、液体供給速度 $U_{l0}$ の増加に対して増加し（図2-9）、気体供給速度 $U_{g0}$ の増加に対して減少し（図2-10）、充填層高 $L$ に関してはあまり変化しなかった（図2-11）。

## [2-5] 結 言

層内の局所飽和度分布と層出口における気液流量分布の同時測定を行った。工業触媒粒子を想定し、直径 1.0 mm の球形ガラス粒子を用いた本研究では、半径方向および軸方向の液飽和度（液滞留率）分布はかなり均一で、液の壁流 (wall flow) は存在しないと考えられる。気液下降並流の気液供給流量比は大きく、層内通過の駆動力は気体側の圧力によると思われるので、液飽和度の大きい部分は気体流れに有効な空隙が減少し、気体の流動抵抗が増すため、液飽和度の小さいところを気体が優先的に流れると考えられる。

表2-1 実験条件

流体		気体：空気	液体：水
充填粒子	$d_p$	1.0 mm 球形ガラス粒子	
充填層径	$D$	12 cm	
充填層高	$L$	16 ~ 100 cm	
液体供給流速	$U_{lo}$	0.10 ~ 0.40 cm/s	
気体供給流速	$U_{go}$	0 ~ 12.0 cm/s	

表2-2 気液採取器寸法

Section	1	2	3	4	5	6
外径 ( cm )	2.5	4.5	6.5	8.5	10.5	12.0
内径 ( cm )	0	2.5	4.5	6.5	8.5	10.5
面積比 (%)	4.3	9.7	15.3	20.8	26.4	23.4

表2-3 液飽和度  $S = 1$  のときの各電極の電圧

電極	1	2	3	4	5	6	7	8	9
電圧 $V_o$ ( mV )	117	115	112	123	128	126	124	119	111

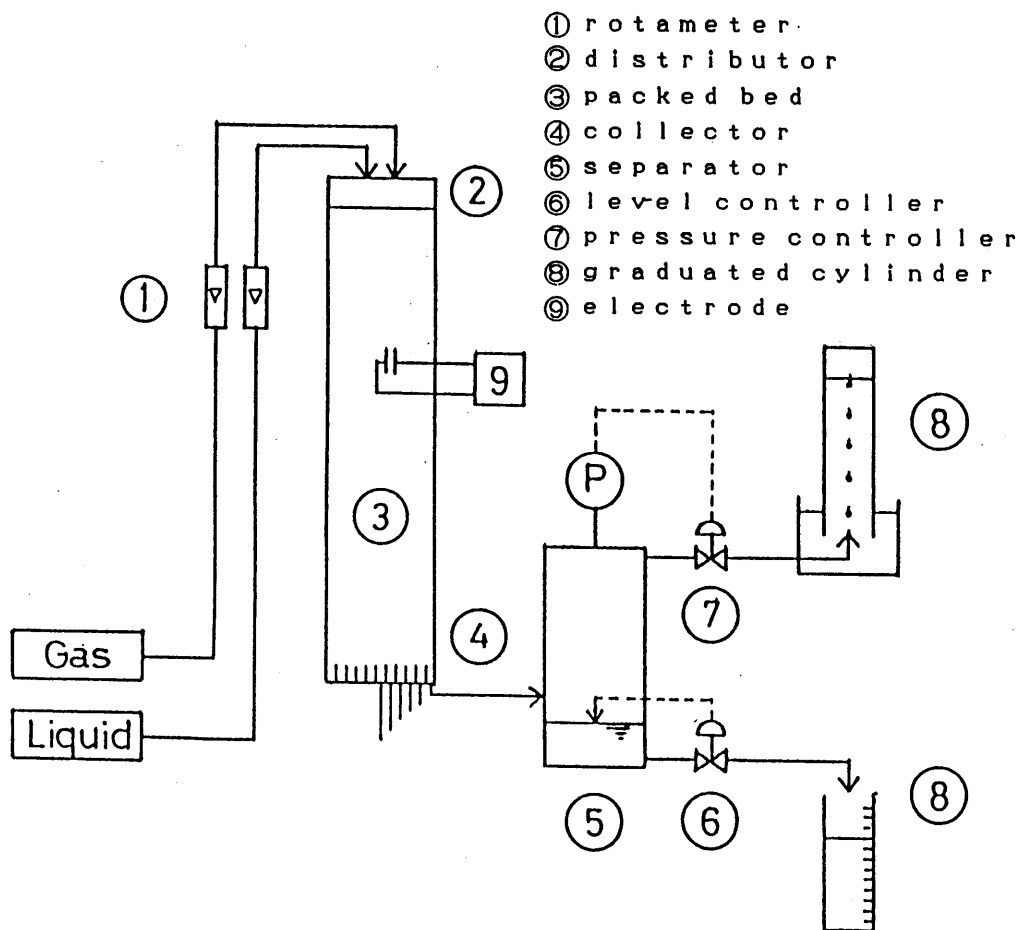


図2-1 実験装置の概略

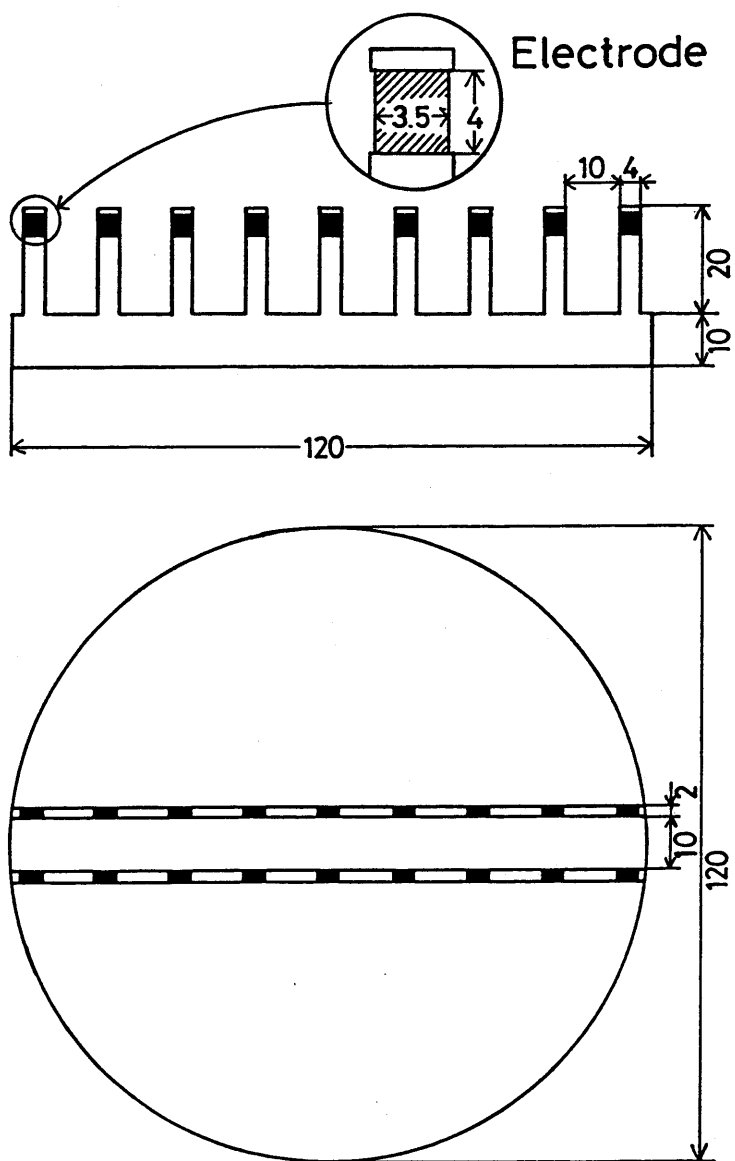


図2-2 局所液滞留率分布の測定用白金電極（単位 mm）

# Kohlrusch's bridge

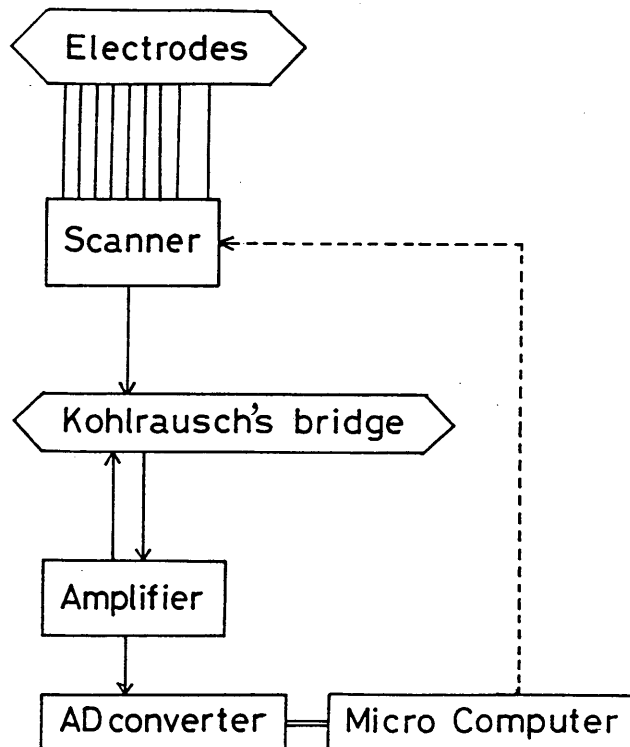
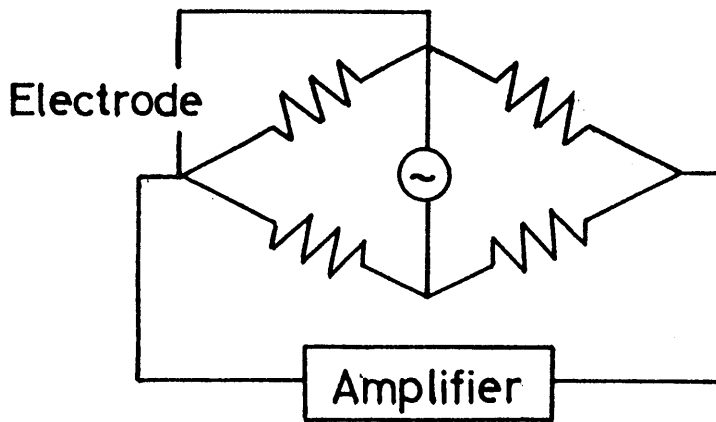


図2-3 局所液滞留率分布の測定用回路

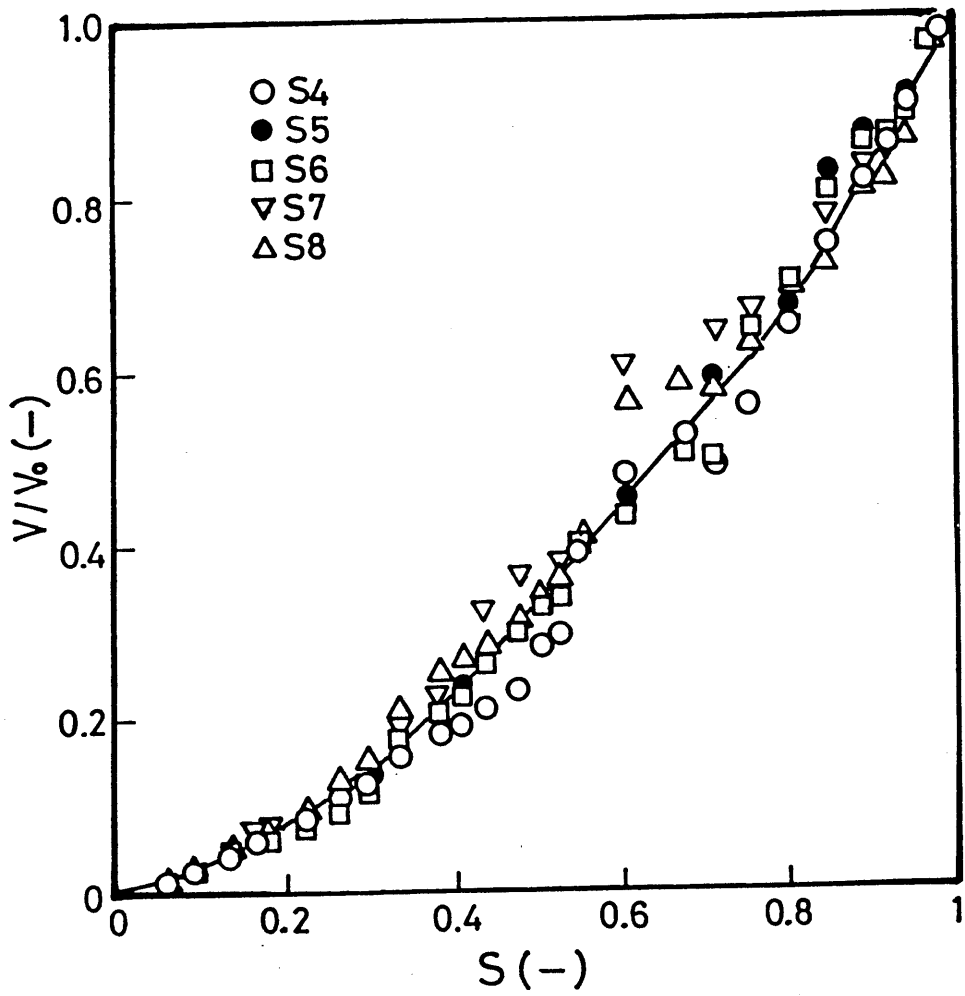
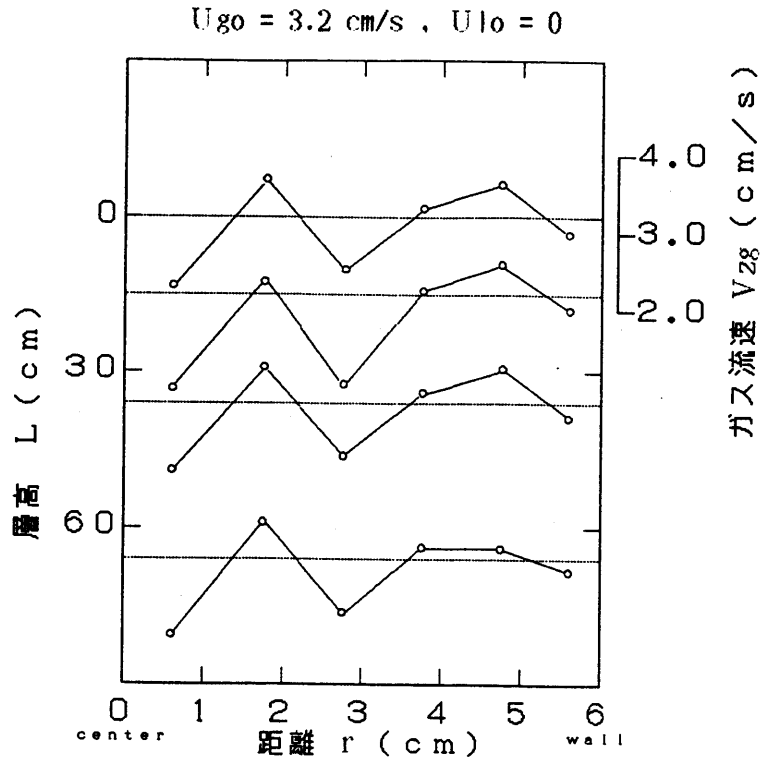
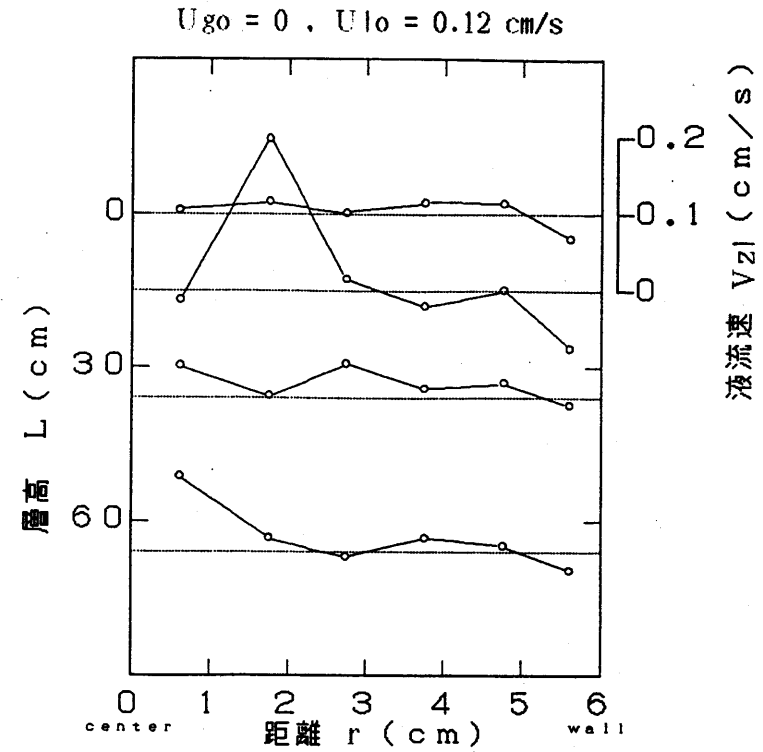


図2-4 液飽和度S 对 電極間電圧V/V₀ 檢量線





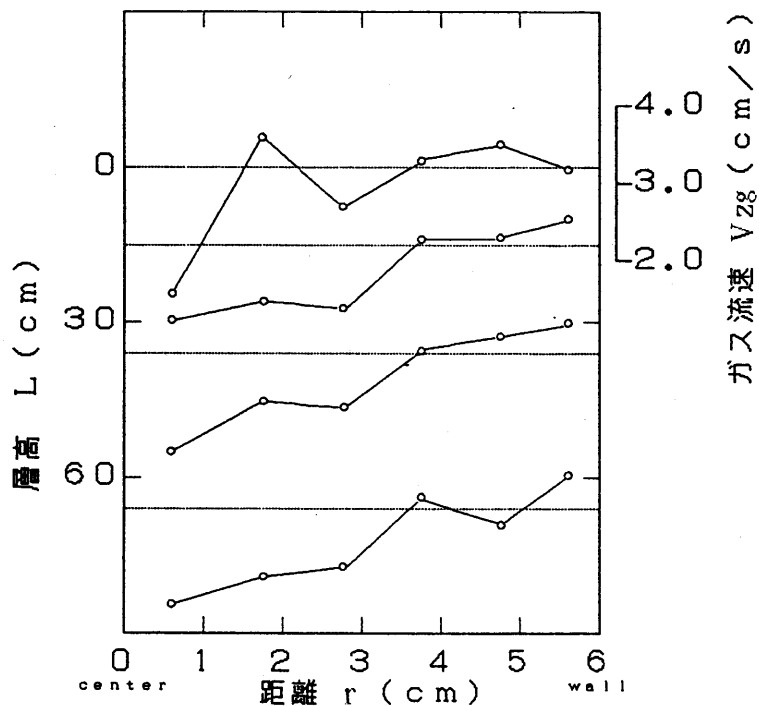
(1) 気流の速度分布



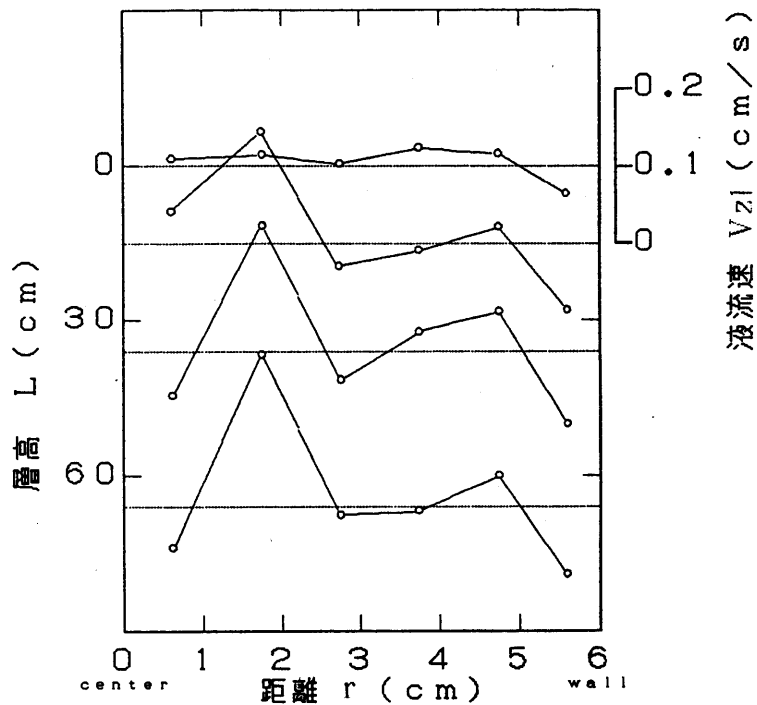
(2) 液流の速度分布

図2-5 半径方向流速分布 (单相流)

$U_{go} = 3.2 \text{ cm/s}$  ,  $U_{lo} = 0.1 \text{ cm/s}$



(1) 気流の流速分布



(2) 液流の流速分布

図2-6 半径方向流量分布 (気液二相流)

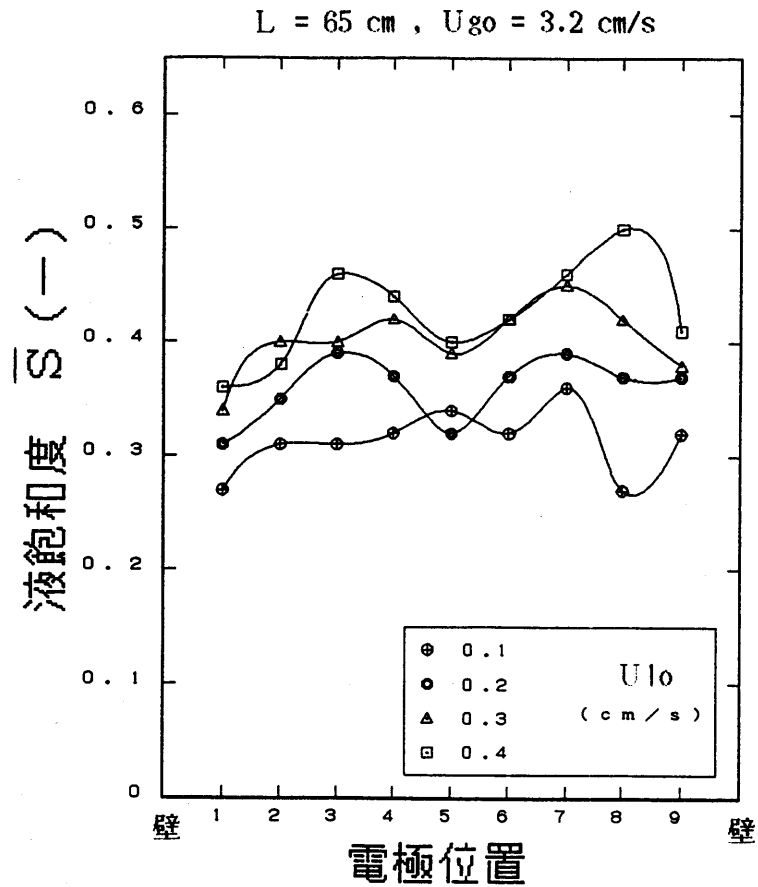


圖2-8 半径方向液飽和度分布 (氣液二相流)

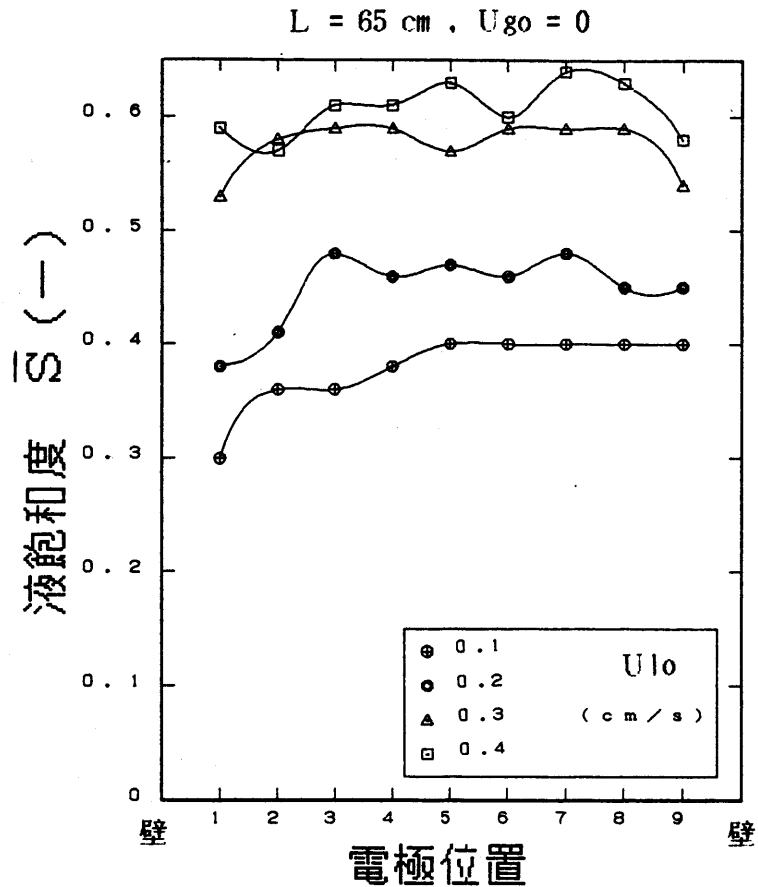


圖2-7 半径方向液飽和度分布 (液单相流)

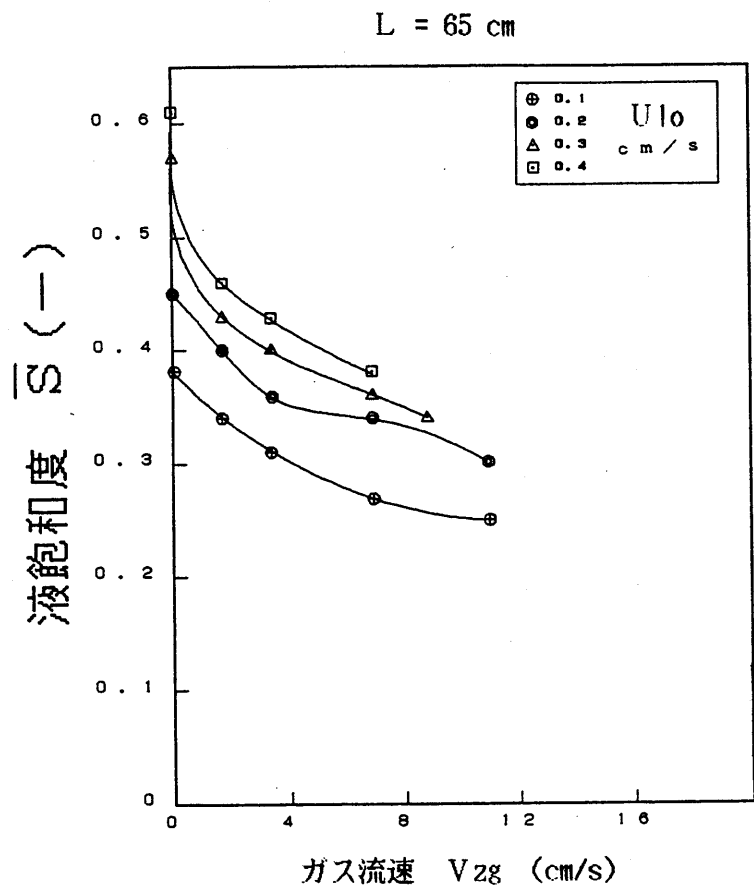


図2-10 平均液飽和度 对 气体供給速度

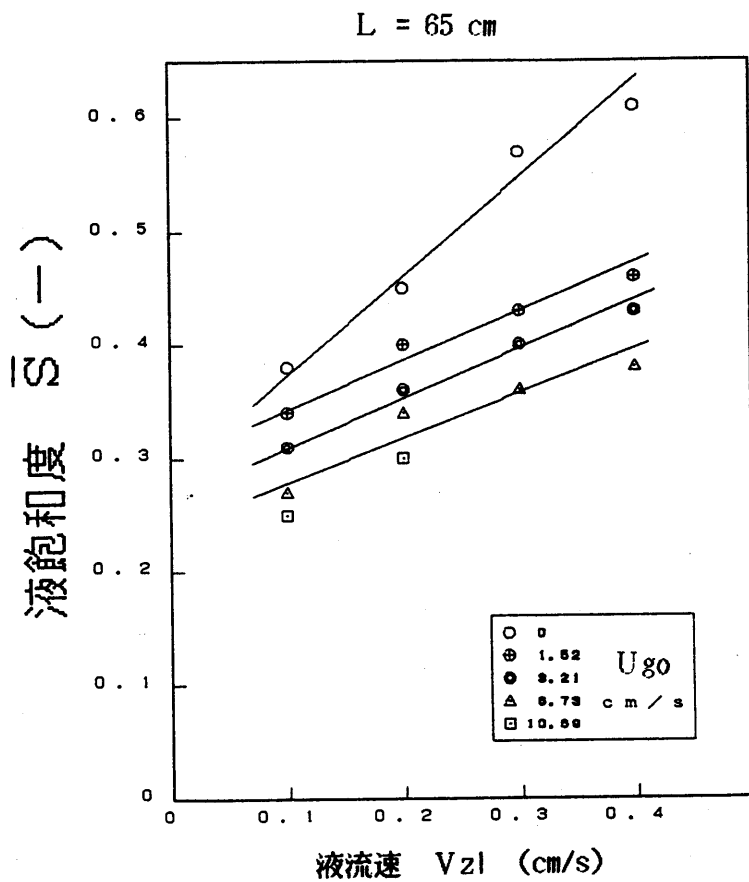
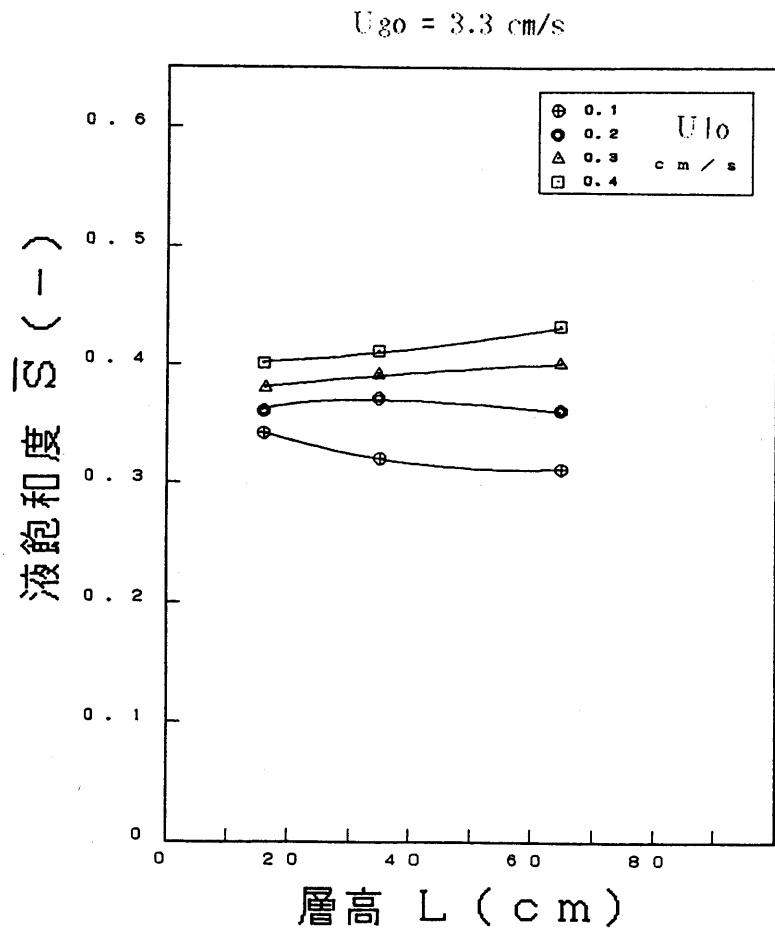
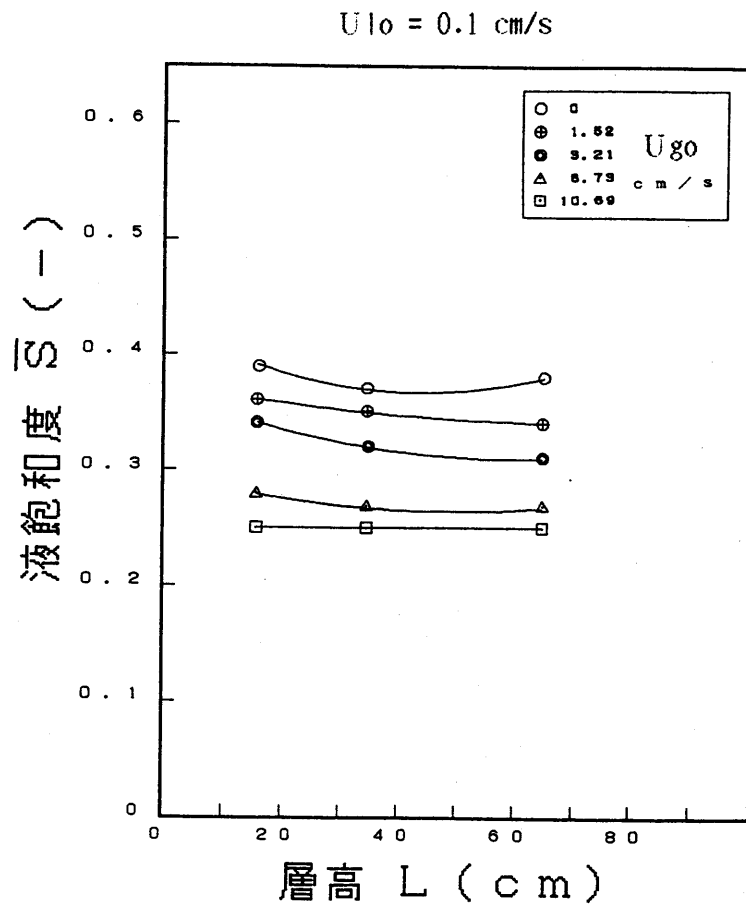


図2-9 平均液飽和度 对 液体供給速度



(1) 気体供給速度一定



(2) 液体供給速度一定

图2-11 平均液飽和度 对 充填層高

### 【3】 X線CT法による気液下降並流充填層内の液流動の可視化

#### 【3-1】 概要

充填層内の液流量分布や液滞留率分布の同時測定において、多数の測定用プローブを層内に挿入することは、流動の妨げとなり望ましいことではない。そこで、本研究では近年医療用として重要なX線CT (Computed Tomography) 法を利用して、充填層内部の流動状態の "その場 (in situ)" 観察を行った。

医療用X線CT装置を利用するため、小規模装置による限られた条件下の操作であるが、反応流体を模擬した流れの中にX線造影剤を注入し、これを時間的あるいは空間的に追跡し、液流動の可視化が可能となった。この結果、液体が層壁付近を顕著に多く流れるという現象は見いだされないことが、本研究からも明らかとなった。

#### 【3-2】 目的

気液並流充填層反応器、いわゆる灌液充填層反応器内の気液の流動状態は、触媒との接触効率に影響を及ぼすので、その把握が重要である。このため前章では、層底部に設けた同心環状部を持つ気液採取器による半径方向流量分布や白金電極による電気抵抗変化から局所液滞留率分布を測定し、充填層内部の状態をよく把握することができたが、検出器を挿入する方法のために同時に、広い範囲にわたって測定するのに不自由であった。

近年、医療の画像診断に用いられているX線CT (Computed Tomography) 法は、測定用プローブを層内に設置することなく充填層内部の流動状態を可視化し、"その場 (in situ)" 観察できる有利さがあると考えられ本研究に適用した。医療用のX線CT装置を用いるため、実験としては人体と同程度の大きさの小規模装置による限られた条件下のもので、工業反応装置の操作条件と

は若干異なるものとならざるをえなかった。反応流体を模擬した流れの中に X線を吸収する造影剤を注入し、これを時間的あるいは空間的に追跡し、X線写真撮影をする。得られた写真を画像解析し、反応器内の液流れの状態を解析することを目的とした。

### [3-3] 実験方法

気液下降並流充填層内の内部では固体、液体および気体の局所滞留率（ホールドアップ）分布がある。気液固三相共存下の局所 X線吸収係数は、その部分における各相固有の X線吸収係数と滞留率との積の代数和に等しい。一方、各相固有の X線吸収係数は、固体>液体>気体の順であり、固相あるいは液相の滞留率が大きいほど局所の X線吸収係数は大きく、X線 CT像に濃淡を生じる [6]。X線造影剤を使用することによって CT像の濃淡をさらに強調し、充填層内の流動状態を観察する。

充填層本体は、内径 120 mm、高さ 200 mm のアクリル樹脂製で、充填粒子には断面が楕円状のアクリル樹脂ペレット（約 2 × 3 × 4 mm）を用いた。気体には酸素、液体には水を用いた。所定流量の酸素と水を供給し、定常流となった後、液側に X線造影剤アジピオドン少量ステップ状に供給すると同時に、X線による連続撮影を開始した。

X線撮影は、充填層の直径を通る厚さ 2 mm の縦断面で行われ、有効視野 420 mmφ、画像マトリックス数 320 × 320、空間分解能 0.75 mm（100%コントラスト）、濃度分解能 3 mm（0.5%コントラスト）の性能を持つ。

得られた X線 CT像を CCDカメラ（画素数 512 × 512）によって取り込み、画像解析システム LA-500（㈱ ピアス）にかけ、撮影像の濃淡度の数値化、バックグラウンドの消去、画像間の演算処理などを行った。

### [3-4] 実験結果

図3-1(1)は、充填層に水を一杯入れた後、重力だけで脱水した状態に水のみを流量 21.7 ml/s (空塔速度  $U_{lo}=0.192$  cm/s) で流したときのCT像である。黒い部分ほど充填粒子および水が多く存在していることを示す。

図3-1(2)は、造影剤 (流量 0.333 ml/s、水との流量比=1 : 65) が充填層に流入開始した直後 (経過時間  $t=0$  s) の状態であり、画面の上部に濃い部分が増し始めているが、目視では十分にこれを識別できない。そこで、画面間の差を明瞭に示すために、画像解析装置で図(2)の画面から図(1)の画面を減算処理したものが図3-1(3)である。図(3)によれば上部に造影剤が流入し始めたことが明瞭に判別できる。

同様に、造影剤の供給開始後の画像を処理し、造影剤の流れを可視化したものを図3-1(4)~(12)に示す。図(8)は経過時間  $t=15$  s で、この時造影剤の供給を停止した。したがって、図(9)から図(12)は、再び水のみを流している状態であり、造影剤が排出された上部より画面が再び白くなっている。これらの画像より、造影剤、すなわち液体は一部に流れの悪いところが見受けられるが、半径方向にほぼ均一に流下していることがわかった。

図3-2(1)~(6)は、気液下降並流の場合の造影剤の動きを示したときのCT像である。気体供給流量 250 ml/s (空塔速度  $U_{go}=2.21$  cm/s)、液体供給流量 21.7ml/s (空塔速度  $U_{lo}=0.192$  cm/s)、造影剤供給流量 0.333 ml/s であり、気液流量比は 11.5 : 1、造影剤と水との流量比は 1 : 65であり、図3-1との違いは気体の流れを伴っている点である。図3-2の場合も、造影剤、すなわち液体の流れは半径方向にほぼ均一であり、図3-1に比べ造影剤の進行速度が早いのは気流の存在により液滞留率が減少し、層内の真の液速度が増加しているためである。

図3-3(1)~(6)は、図3-2と同じ気・液供給流量を流している充填層内

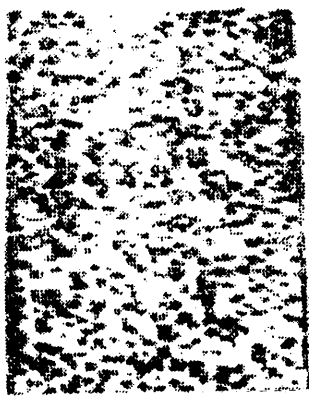


の一点から注射針によって造影剤を流量 0.167 ml/s で流したときの定常流の C T 像である。ただし、図 3-1 および図 3-2 と異なり、装置を載せた台を 1 cm ごとに移動させ、各断面における造影剤の分散状態を観察したものである。気液並流充填層内の熱移動 [7,8] ならびに物質移動 [9,10] の研究において、下降並流の半径方向液混合が上昇並流のそれに比べて大きくないことが知られているが、本研究においてもこれが確認された。

### 【3-5】 結 言

気液並流充填層の液流側に X 線造影剤をステップ的に注入し、層内の液流れを可視化した結果、半径方向にほぼ均一に流れ、壁付近を液が多く流れるという wall flow の現象は本実験によっても認められなかった。

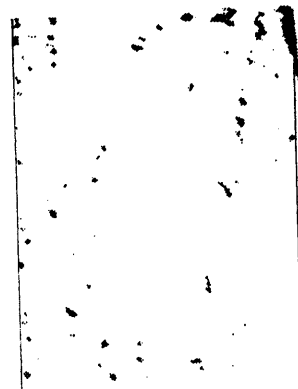
本実験は X 線 C T 法により充填層の直径を通る一断面の観察を行い、定性的に液の流動状態を可視化することができたが、気液の流動を定量的に把握することは今後に残された課題である。



(1)  $t = -3 \text{ s}$  (原画)



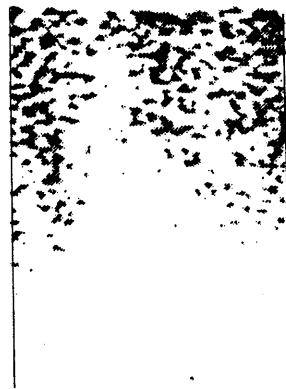
(2)  $t = 0 \text{ s}$  (原画)



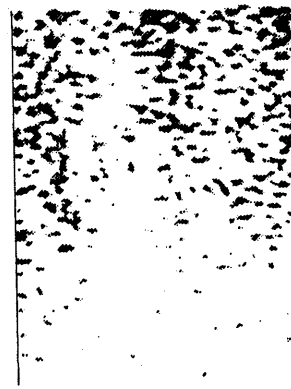
(3)  $t = 0 \text{ s}$



(4)  $t = 3 \text{ s}$



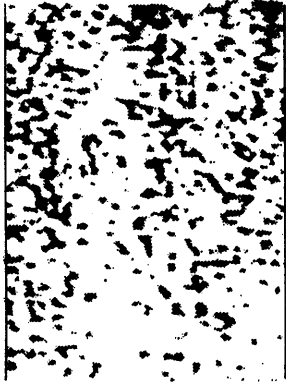
(5)  $t = 6 \text{ s}$



(6)  $t = 9 \text{ s}$

図3-1 X線CT法による充填層内の液流れの可視化 (液单相流)

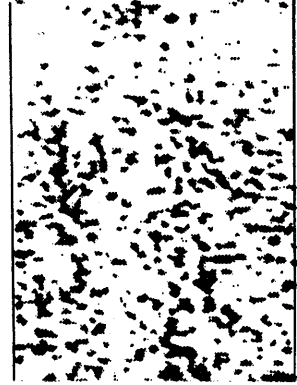
(空塔速度  $U_{10} = 0.192 \text{ cm/s}$ )



(7)  $t = 12 \text{ s}$



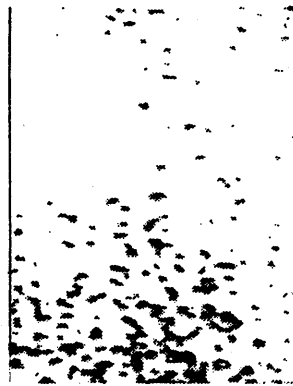
(8)  $t = 15 \text{ s}$



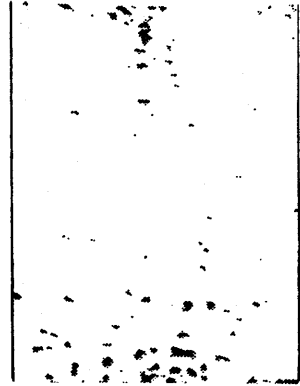
(9)  $t = 17 \text{ s}$



(10)  $t = 20 \text{ s}$



(11)  $t = 23 \text{ s}$



(12)  $t = 30 \text{ s}$

図3-1 (その2)

(空塔速度  $U_{10} = 0.192 \text{ cm/s}$ )

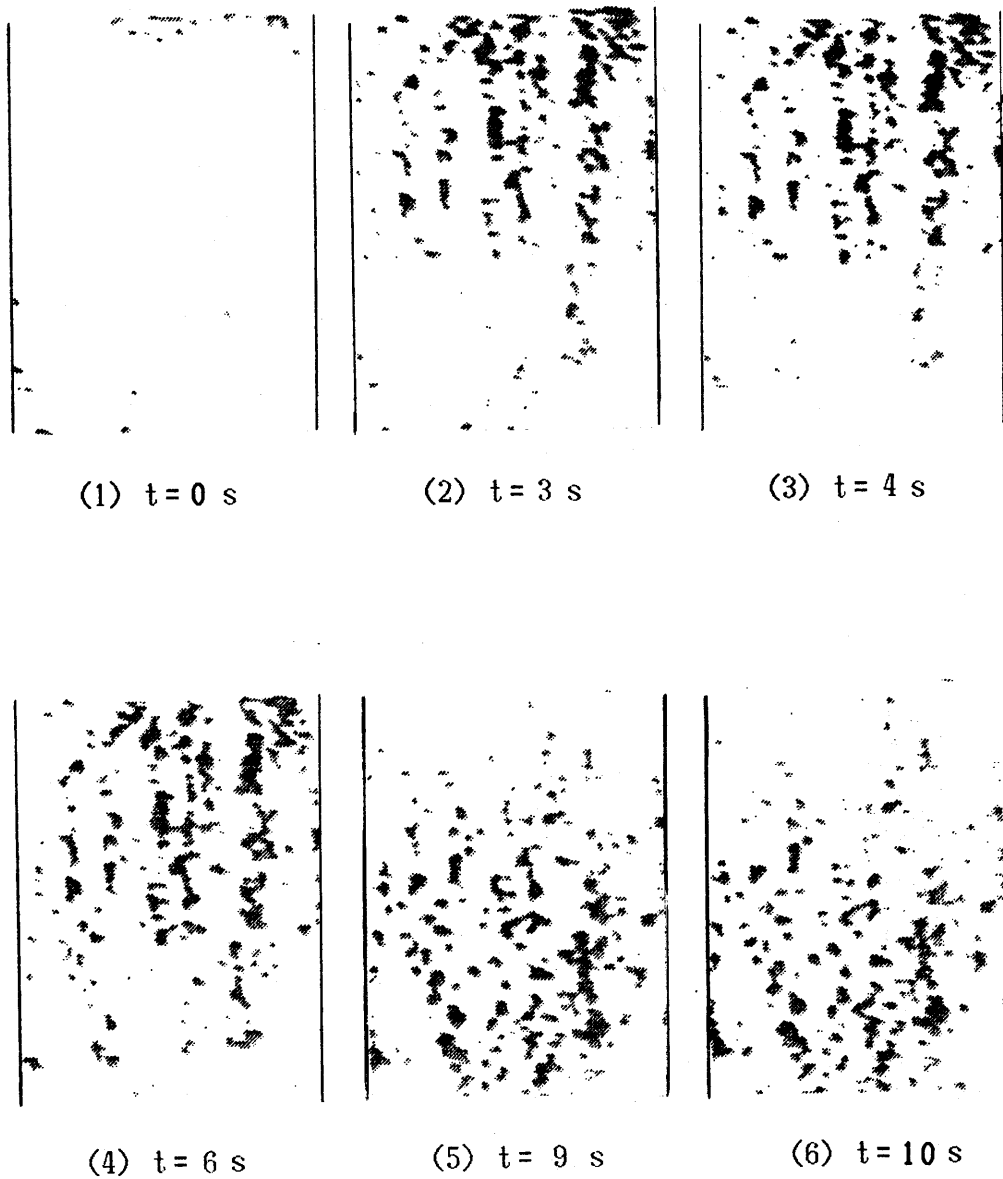
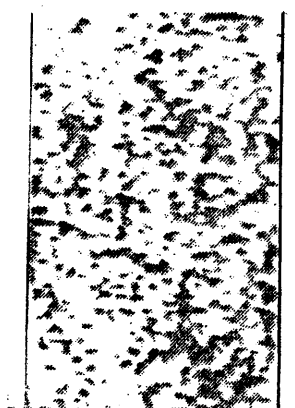
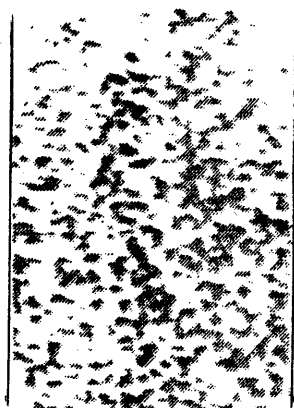


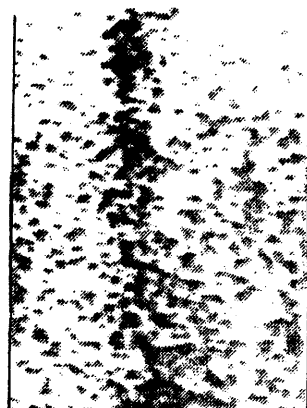
図3-2 X線CT法による充填層内の液流れの可視化（気液二相流）  
 （空塔速度  $U_{go} = 2.21 \text{ cm/s}$ 、 $U_{lo} = 0.192 \text{ cm/s}$ ）



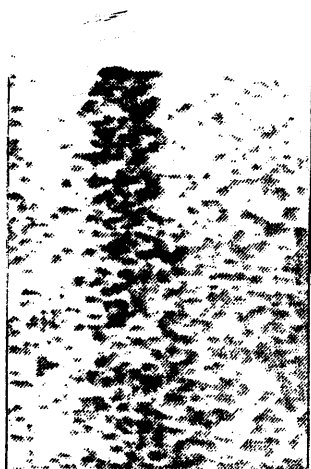
(1) 位置 = - 3.0 cm



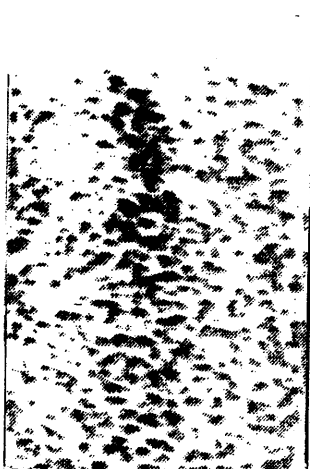
(2) 位置 = - 2.0 cm



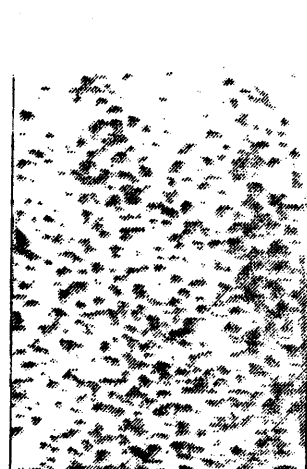
(3) 位置 = - 1.0 cm



(4) 位置 = + 0.0 cm



(5) 位置 = + 1.0 cm



(6) 位置 = + 2.0 cm

図3-3 X線CT法による充填層内の液流れの可視化（造影剤 点源注入）

（空塔速度  $U_{go}=2.21$  cm/s 、  $U_{lo}=0.192$  cm/s ）

## 【4】 充填層内の流動解析

### 【4-1】 概 要

気液下降並流充填層内の流動状態を理論的に解析することは、層内の固体、液体および気体の局所滞留率（ホールドアップ）分布があるために現状では極めて困難である。

そこで、本研究では第一歩として、ベクトル表示の Ergun 式が局所的に成り立つものとし、空隙率分布がある層に気体または液体の一相のみが流れるときの流動を数値解析した。この結果、粘性支配の流れ（例、レイノルズ数  $Re=1.5$ ）では流線が空隙率の大きい部分に大きく偏り、レイノルズ数の大きい慣性支配の場合には空隙率分布があっても充填層の入口近傍を除き流線が平行となることがわかった。

本解析法を気液下降並流充填層内の流動状態に適用することは今後の課題として残された。

### 【4-2】 目 的

気液下降並流充填層内の内部では固体、液体および気体の局所滞留率（ホールドアップ）分布があることが前章の X 線 CT 像に濃淡があることより明かである。すなわち、気液固三相共存下の局所 X 線吸収係数は、その部分における各相固有の X 線吸収係数と滞留率との積の代数和に等しいので、CT 像に濃淡が生じたのである [6]。

このように三相の滞留率分布がある状態で、気体および液体がどのように流動しているかを理論的に予測することは現状では極めて困難である。そこで、本研究では第一歩として、充填層の圧力損失を求める相関式として定着している Ergun 式が局所的に成り立つものとし [11]、ベクトル表示の Ergun 式と

流れの連続の式とを連立して解くこととした。

### [4-3] 理論

充填層の圧力損失 $\Delta P$ の相関式として従来よりよく使われている Ergun 式は、流体の空塔速度 $U_0$ 、充填層長さ $L$ のとき次式で表される。

$$\Delta P/L = f_1 U_0 + f_2 U_0^2 \quad (4-1)$$

ここに、係数  $f_1$  および  $f_2$  は次式で定義される。

$$f_1 = 150 \mu (1-\varepsilon)^2 / \varepsilon^3 d_p^2 \quad (4-2)$$

$$f_2 = 1.75 \rho (1-\varepsilon) / \varepsilon^3 d_p \quad (4-3)$$

充填層内部で空隙率 $\varepsilon$ の分布が存在するとき、局所的にも Ergun 式が成立するものと考え、式(4-1)は次式のようにベクトル形式で表される [11]。

$$-\text{grad } P = -\nabla P = f_1 \vec{V} + f_2 |\vec{V}| \vec{V} \quad (4-4)$$

ここに、 $\nabla P$  は圧力 $P$ の勾配、 $\vec{V}$  は速度ベクトルを表す。

充填層内を流れる流体が非圧縮性のとき、流れの連続の式は次式となる。

$$\text{div } \vec{V} = \nabla \cdot \vec{V} = 0 \quad (4-5)$$

空隙率分布を考慮して式(4-4)と式(4-5)を連立して解けば、充填層内の流動状態が求められるわけであるが、未知数が圧力 $P$ と速度 $\vec{V}$ の2変数であるので、簡便にするために以下の変形を行って、圧力 $P$ を消去する。

式(4-4)に演算  $\nabla \times$  を施すと、

$$-\nabla \times \nabla P = \nabla \times (f_1 + f_2 |\vec{V}|) \vec{V} = 0 \quad (4-6)$$

式(4-6)を整理すると、次式となる。

$$\nabla \times \vec{V} - \vec{V} \times \nabla \ln(f_1 + f_2 |\vec{V}|) = 0 \quad (4-7)$$

解くべき基礎式は式(4-7)となった。

円筒(円柱)座標を用いると充填層内部は軸対象と考えられ、速度は半径方向成分  $V_r$  および軸方向成分  $V_z$  のみを考慮すればよい。しかし、式(4-7)を2成分  $V_r$  および  $V_z$  で書き直すと連立方程式となり、いまだ煩雑である。そこで、式(4-5)を満足する流れ関数  $\psi$  を次式で定義する。

$$V_z = -\frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} \quad V_r = \frac{1}{r} \frac{\partial \psi}{\partial z} \quad (4-8)$$

式(4-8)の流れ関数  $\psi$  を導入すれば、式(4-7)は次式となる。

$$\begin{aligned} & f_1 \left[ \left( \frac{\partial \psi}{\partial r} \right)^2 + \left( \frac{\partial \psi}{\partial z} \right)^2 \right]^{1/2} \\ & \times \left[ \frac{\partial^2 \psi}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} + \left( \frac{\partial \ln f_1}{\partial r} - \frac{1}{r} \right) \frac{\partial \psi}{\partial r} + \frac{\partial \ln f_1}{\partial z} \frac{\partial \psi}{\partial z} \right] \\ & + \frac{f_2}{r} \left[ \left\{ 2 \left( \frac{\partial \psi}{\partial r} \right)^2 + \left( \frac{\partial \psi}{\partial z} \right)^2 \right\} \frac{\partial^2 \psi}{\partial r^2} + \left\{ \left( \frac{\partial \psi}{\partial r} \right)^2 + 2 \left( \frac{\partial \psi}{\partial z} \right)^2 \right\} \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2} \right. \\ & \left. + \left\{ \left( \frac{\partial \psi}{\partial r} \right)^2 + \left( \frac{\partial \psi}{\partial z} \right)^2 \right\} \left\{ \left( \frac{\partial \ln f_2}{\partial r} - \frac{2}{r} \right) \frac{\partial \psi}{\partial r} + \frac{\partial \ln f_2}{\partial z} \frac{\partial \psi}{\partial z} \right\} \right. \\ & \left. + 2 \frac{\partial^2 \psi}{\partial r \partial z} \frac{\partial \psi}{\partial r} \frac{\partial \psi}{\partial z} \right] = 0 \quad (4-9) \end{aligned}$$



数値計算は、次の手順によって行う。

- (1) 式(4-9)を境界条件のもとに、流れ関数 $\psi$ が収束するまで計算する。
  - (2) 得られた $\psi$ をもとに、式(4-8)より速度成分 $V_r$ と $V_z$ を求める。
- なお、数値計算は名古屋大学大型計算機センターにおいて行った。

#### [4-4] 数値解析結果

充填層入口に流入する流体の速度 $U_0$ が半径方向に一様である、とする境界条件のもとに数値解析した結果を図4-1～図4-3に示す。これらの図において、速度は $U_0$ で、距離は充填層の半径 $D/2$ で割って無次元化をしてある。

一般に、充填層の壁部では中心部に比べ空隙率 $\varepsilon$ が大きいと言われ、種々の分布が提出されている。ここでは、各図の上段に示したような空隙率 $\varepsilon$ の分布を仮定し、有限差分法によって式(4-9)を数値解析した結果が中段の図である。充填層入口(軸方向無次元距離 $Z = 0$ )に流入する速度分布が一様であるとする境界条件のもとに、流れ関数 $\psi$ を求めた。ついで、得られた流れ関数 $\psi$ を式(4-8)に代入し、数値微分を行って軸方向無次元速度 $V_z$ を求めたものが下段の図である。

図4-1は、粒子径 $d_p$ および流入速度 $U_0$ を基準とした粒子レイノルズ数 $Re = d_p U_0 / \nu = 1.5$ の場合であり、粘性支配の流れである。すなわち、式(4-1)あるいは式(4-4)で、係数 $f_1$ を持つ速度の1乗の項が圧力損失に重要である。この場合、充填層内の流線 $\psi$ は大きく壁の方に偏り、速度 $V_z$ は壁付近で平均速度( $V_z = 1$ )を非常に上回ることがわかった。

図4-2は、粒子レイノルズ数 $Re = 15$ の場合であり、流れが粘性と慣性の両方の影響を受ける領域である。すなわち、式(4-1)あるいは式(4-4)で、係数 $f_1$ を持つ速度の1乗の項と係数 $f_2$ を持つ速度の2乗の項とが圧力損失に共に影響を及ぼす。この場合、充填層内の流線 $\psi$ の偏り、軸方向速度 $V_z$ のピークの高さは、図4-1に比べてやや緩和されている。

図4-3は、粒子レイノルズ数 $Re = 150$ の場合であり、流れが慣性の影響を強く受ける領域である。すなわち、式(4-1)あるいは式(4-4)で、係数 $f_2$ を持つ速度の2乗の項が圧力損失に支配的となる。この場合、充填層内の流線 $\psi$ の偏り、速度 $V_z$ のピークの高さは、図4-1および図4-2に比べてかなり小さくなり、壁付近の偏流がかなり解消されていることがわかった。

#### [4-5] 結 言

局所的に空隙率分布がある充填層に気体または液体の一相のみが流れるときの流動状態を、ベクトル表示の Ergun 式を用いることによって解析することができた。この結果、粘性支配の流れでは空隙率の大きい部分への偏流が激しく、慣性支配の流れでは空隙率分布の存在にもかかわらず偏流が緩和されることがわかった。

気液並流充填層内の気体および液体の流動解析にあたり、局所液滞留率分布を空隙率分布に置き換えることによって解析しうる可能性が見いだされたが、これは今後の課題である。

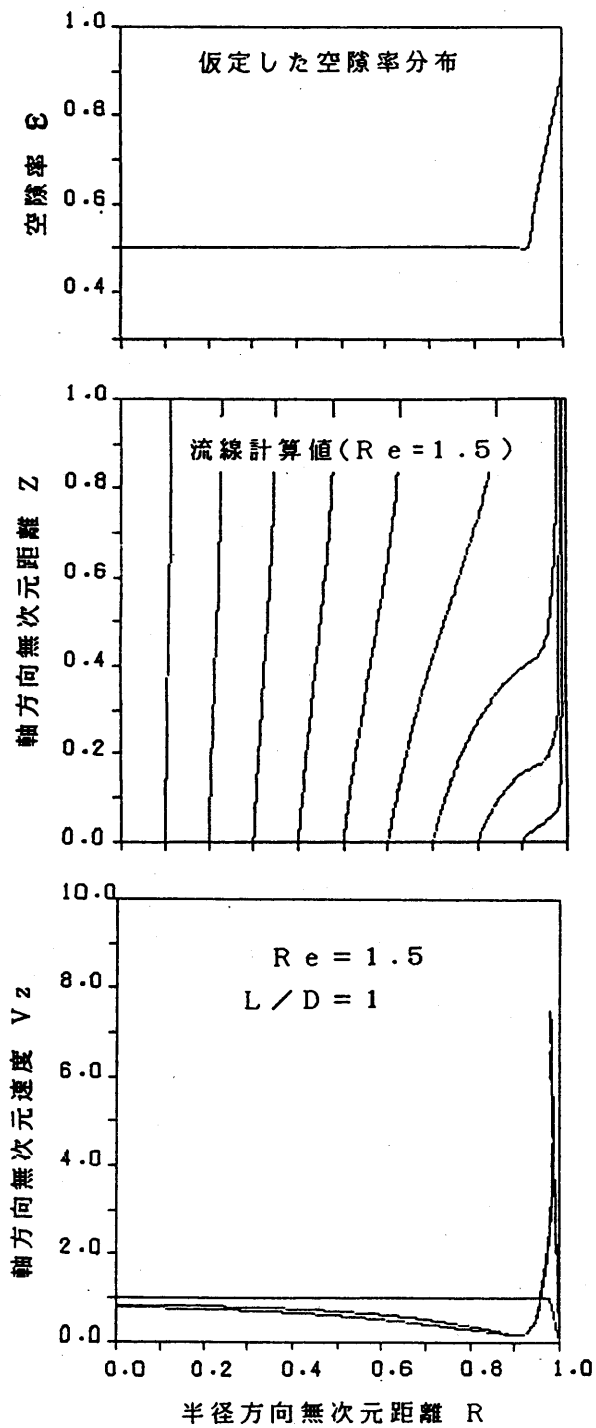


図4-1 空隙率分布のある充填層内の流動解析  
 (粒子レイノルズ数  $Re = d_p U_0 / \nu = 1.5$ )

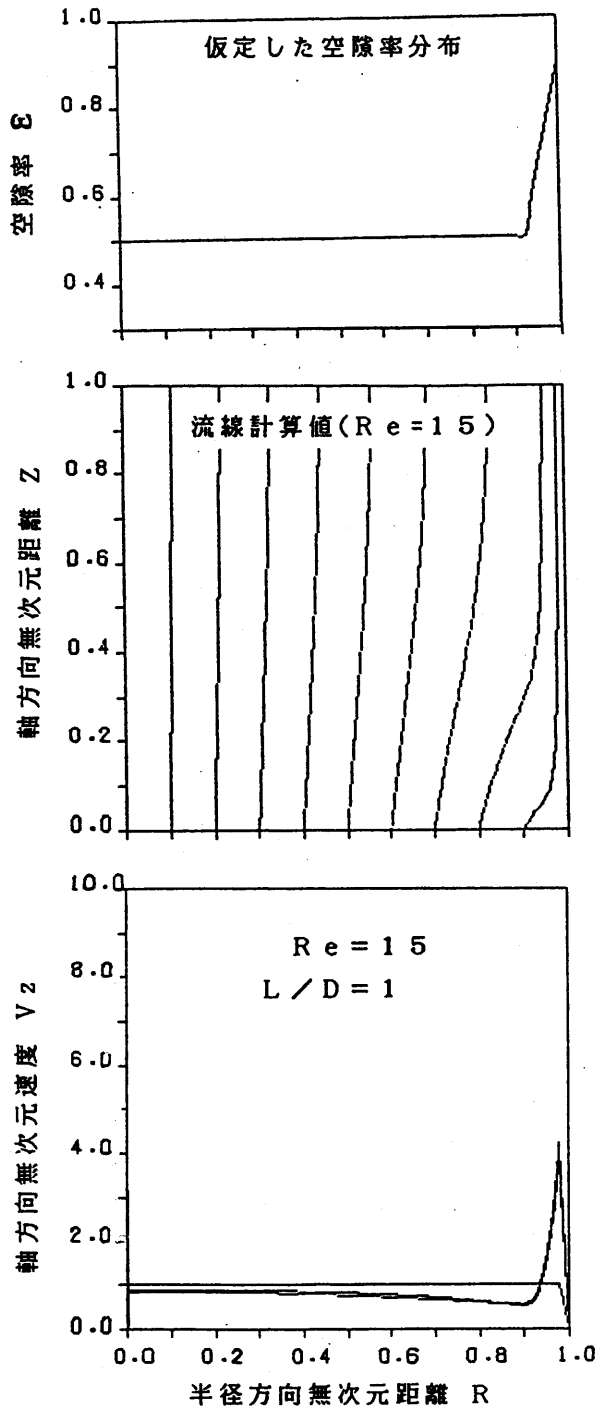


図4-2 空隙率分布のある充填層内の流動解析  
 ( 粒子レイノルズ数  $Re = d_p U_0 / \nu = 15$  )

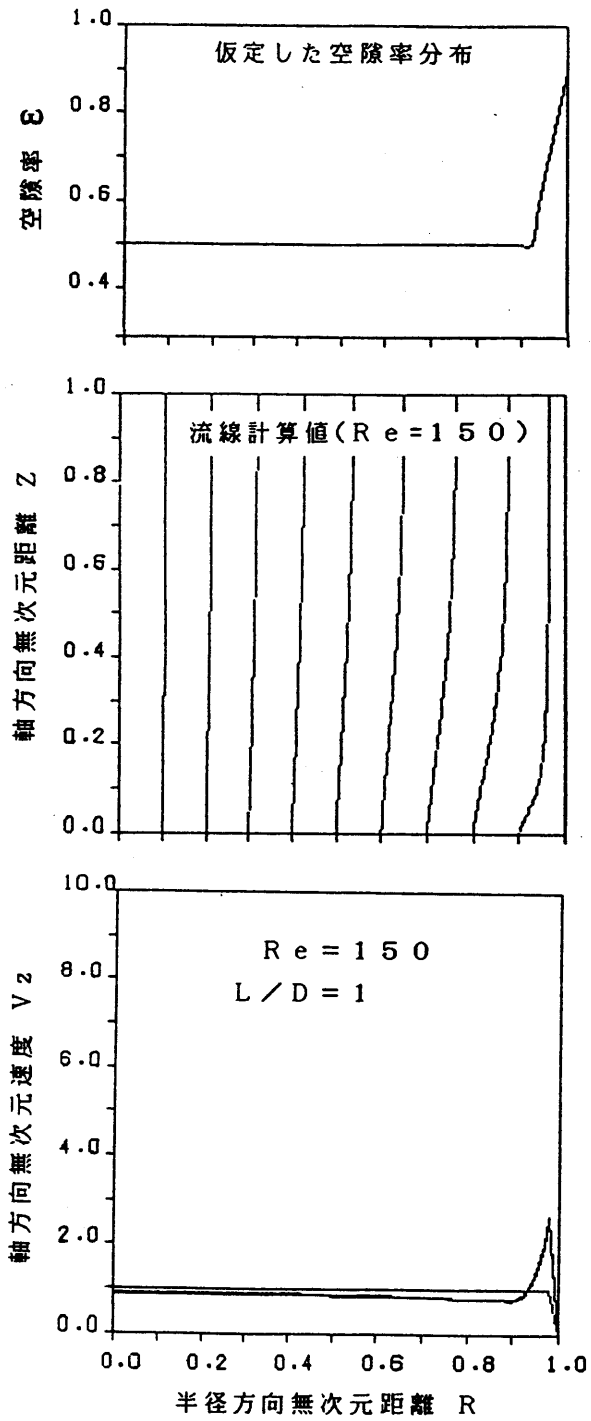


図4-3 空隙率分布のある充填層内の流動解析  
 ( 粒子レイノルズ数  $Re = d_p U_0 / \nu = 150$  )

## 使用記号

$D$	充填層径	[m]
$d_p$	充填粒子径	[m]
$f$	Ergun 式の係数	
$L$	充填層高	[m]
$P$	圧力	[Pa]
$R$	無次元半径方向距離	[-]
$Re$	粒子レイノルズ数 ( $d_p U_0 / \nu$ )	[-]
$r$	半径方向距離	[m]
$S$	液飽和度	[-]
$\bar{S}$	平均液飽和度	[-]
$t$	時間	[s]
$U_0$	空塔速度 (供給流量基準)	[m/s]
$V$	速度	[m/s]
$V$	電圧	[V]
$V_0$	液飽和度 $S = 1$ のときの電圧	[V]
$Z$	無次元軸方向距離	[-]
$z$	軸方向距離	[m]
$\varepsilon$	空隙率	[-]
$\mu$	粘度	[Pa · s]
$\nu$	動粘度	[m <sup>2</sup> /s]
$\rho$	密度	[kg/m <sup>3</sup> ]
$\psi$	流れ関数	

添字  $g$  : 気体       $l$  : 液体       $r$  : 半径方向       $z$  : 軸方向

## 引用文献

- 1) Hofmann, H.: Int. Chem. Eng., 17, 19 - 28 (1977)
- 2) Nakamura, M.: Kagaku Kogaku, 46, 199 - 202 (1982)
- 3) Satterfield, C.N.: AIChE Journal, 21, 209 - 228 (1975)
- 4) Kato, Y. and Hirose, T.: Kagaku Kogaku, 46, 215 - 217 (1982)
- 5) Nakamura, M.: "Encyclopedia of Fluid Mechanics", N.P.Cheremisinoff ed., Vol.3, 1121 - 1135, Gulf Pub. Co. (1985)
- 6) Tanimoto, Y. et al : Kagaku Kogaku, 51, 505 - 508 (1987)
- 7) Nakamura, M. et al : Kagaku Kogaku Ronbunshu, 7, 71 - 76 (1981)
- 8) Nakamura, M. et al : Heat Transfer - Japanese Research, 10, 92 - 99 (1981)
- 9) Nakamura, M. et al : Kagaku Kogaku Ronbunshu, 7, 151 - 156 (1981)
- 10) Nakamura, M. et al : Int. Chem. Eng., 23, 307 - 314 (1983)
- 11) Stanek, K.V. and Szekely, J.: AIChE Journal, 20, 974 - 980 (1974)