

水モデル脱ガス挙動に及ぼす攪拌と浴形状の影響

樋口 善彦*・城田 良康*²

Effect of Stirring Condition and Bath Shape on Degassing Behavior in Water Model

Yoshihiko HIGUCHI and Yoshiyasu SHIROTA

Synopsis : Degassing rate constant of CO₂ in gas-stirred or mechanically stirred NaOH aq. system was studied by the water model experiments. Effects of stirring gas-flow rate, pressure of atmosphere, speed of rotor and shape of bath on rate constant, K , was investigated.

The following results were obtained:

(1) Rate constant, K , increased with increase of gas-flow rate, speed of rotor and with decrease of pressure of atmosphere. And K was correlated with stirring power ϵ and ϵ/A .

(2) Calculated K using a single bubble model and surface reaction model showed a good agreement with observed K . Ratio of K s at free surface to overall rate constant K was correlated with ratio of free surface area to volume.

(3) Volumetric coefficient at free surface in RH shape was estimated three times as large as that in Ladle shape.

Key words : gas injection; degassing; gas-liquid mass transfer; volumetric coefficient.

1. 緒言

近年、高純度鋼へのニーズが高まり、二次精錬プロセスにおける真空脱ガスのための処理時間を短縮することが要求されている。処理時間の短縮には、脱ガス操業の改善や脱ガス促進機能の付与を行う必要があるが、実操業の設備を用いた試験はコストおよび時間がかかる。そのため、事前に小型実験で脱ガス挙動を模擬することにより、改善・促進の効果を評価することが望ましい。この脱ガス反応を模擬するために、あらかじめ水溶液中に吸収させた可溶性ガスを攪拌作用により離脱させる実験が取鍋形状あるいはRH形状の水モデルを用いて行われている¹⁻⁸⁾。

取鍋形状での脱ガスに関して、清瀬ら¹⁾は純水-CO₂系での脱ガス速度をモデル計算により検討している。しかし、この検討は自由表面での脱ガス反応（以下表面反応と称す）の寄与を検討していない。一方、Taniguchiら²⁾は純水-CO₂系で自由表面と接する雰囲気中のCO₂分圧を調整することにより液中上昇気泡による脱ガス反応（以下気泡反応と称す）と表面反応の寄与を分離して評価し、表面反応による脱ガス速度を定式化した。雰囲気圧力の影響は検討していない。北村ら³⁾は純水-O₂系および溶鉄-N₂系で実験を行い、ガス吹込み深さや雰囲気圧力の影響を考慮した表面反応速度を検討している。また、Sakaguchiら⁴⁾は純水-CO₂系で真空度や浴深を変更した実験を行い、脱ガス速度

を攪拌動力とガス吹込み位置での静圧を用いて整理できると報告している。しかし、これらの報告間での比較はまだ十分ではない。

また、RH形状の実験では中島ら^{5,6)}が純水-CO₂、NaOH aq.-CO₂両系で、井上ら⁷⁾NaOH aq.-CO₂系で脱ガス速度を測定しているが、気泡反応と表面反応を分離した検討はされていない。

以上から、使用する系や雰囲気圧力などが気泡反応と表面反応に及ぼす影響およびRH形状での脱ガス速度の見積もりについてはまだ不十分な点が多いと考えられる。そこで、本研究では、取鍋形状およびRH形状の水モデルを用いて大気圧下、減圧下での脱ガス速度を測定し、気泡反応と表面反応に及ぼす諸因子の影響を検討した。

2. 実験方法

2.1 取鍋形状水モデル

脱ガス容器はRH真空槽を想定した小容器A（内径 d_L : 0.19 m, 高さ0.15 m）と取鍋を想定した大容器B（内径 d_L : 0.4 m, 高さ0.4 m）との2種類を用い(Fig. 1(a), (b)),いずれも容器中央底部のノズル（内径 d_n : 0.002 m）からArガスを吹き込んだ。容器AおよびB内の0.01 N-NaOH aq.の浴深 h をそれぞれ0.045 m, 0.28 m, 体積 V をそれぞれ $1.26 \times 10^{-3} \text{ m}^3$, $35 \times 10^{-3} \text{ m}^3$ とし、容器内雰囲気圧力 P を $1.8 \times 10^4 \sim 1.01 \times$

平成12年6月22日受付 平成12年8月4日受理 (Received on June 22, 2000; Accepted on Aug. 4, 2000)

* 住友金属工業（株）総合技術研究所 (Corporate Research & Development Laboratories, Sumitomo Metal Industries, Ltd., 16-1 Oaza-Sunayama Hasakimachi Kashimaga-gun Ibaraki-ken 314-0255)

*² 住友金属工業（株）東京本社（現：(財)金属系研究開発センター）(Tokyo Head Office, Sumitomo Metal Industries, Ltd., now The Japan Research and Development Center for Metals)

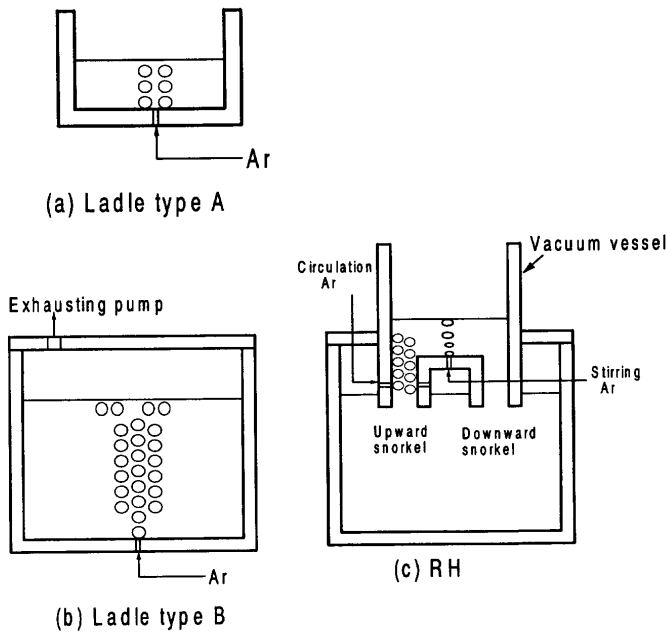


Fig. 1. Schematic view of experimental apparatus.

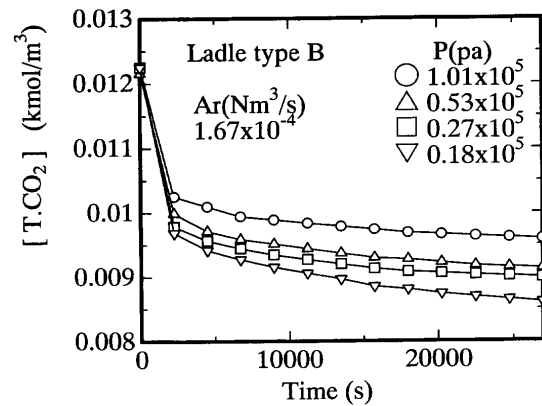
10^5 Paの範囲で、攪拌 Ar 流量 Q を $8.3 \times 10^{-5} \sim 3.33 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$ の範囲で調整した。NaOH aq. にあらかじめ CO_2 を pH が 7 になるまで吹込み、その後 Ar 吹込みにより脱ガス処理を行った。pH 計を用いて連続的に液中 pH を測定し、後で述べる稲田ら⁹⁾の方法で液中 CO_2 濃度を算出した。

2.2 RH 形状水モデル

RH 脱ガス装置は、上記の容器 A と B との間を 2 本の浸漬管（内径 D_s : 0.05, 0.075 m）で接続して構成した (Fig. 1(c))。実際の RH では真空槽内は減圧下、取鍋は大気圧下におかれる。一方、本実験では取鍋に密閉蓋を設置して加圧状態とし、真空槽内は大気雰囲気とした。実際の RH と同様な構成とした場合、真空槽内圧力を常時監視して調整する必要があり、実験上煩雑となるためである。なお、真空槽内浴深さは 0.045 m とした。0.01 N-NaOH aq. の体積 V は $43 \times 10^{-3} \text{ m}^3$ とした。液体の環流のため上昇管の内壁下部にガス吹込み口（内径 d_n : 0.002 m）を 6 カ所設置し、環流ガスとして Ar を $8 \times 10^{-5} \sim 4 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$ の範囲で流した。また真空槽内の攪拌のため、真空槽底面の中央部に内径 0.002 m のノズルを設置し、攪拌ガスとして Ar を $1.7 \times 10^{-4} \sim 3.3 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$ の範囲で流した。RH 脱ガス処理中には取鍋形状と同様の方法で取鍋内の液中 CO_2 濃度を求めた。

2.3 機械攪拌による脱ガス試験

ガス攪拌とは攪拌形態が全く異なるインペラーによる機械攪拌での脱ガス試験を比較のために容器 B で実施した。インペラー軸は取鍋中心軸と一致させ、インペラー径 d は 0.06 m、インペラー高さは取鍋底部から 0.1 m とした。インペラーは電動モータを用いて回転させ、回転数 n は 8.3–250 rps の範囲で設定した。また、ガス攪拌と機械攪拌の併用による脱ガス促進効果を検討するため、取鍋底面で取鍋

Fig. 2. Change in total CO_2 concentration during argon bubbling.

中心と容器壁との中間位置に内径 0.002 m のノズルを設置し Ar ガスを流量 Q $8.3 \times 10^{-5} \sim 3.3 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$ の範囲で流した。

2.4 浴中 CO_2 濃度算出方法

稲田ら⁹⁾によれば、 CO_2 溶解時の液中イオンの 298K での平衡定数は次式で与えられる。

$$[\text{HCO}_3^-] \cdot [\text{H}^+] / [\text{H}_2\text{CO}_3] = K_1 = 10^{-6.352} \dots \dots \dots (1)$$

$$[\text{CO}_3^{2-}] \cdot [\text{H}^+] / [\text{HCO}_3^-] = K_2 = 10^{-10.329} \dots \dots \dots (2)$$

$$[\text{H}^+] \cdot [\text{OH}^-] = K_{\text{H}_2\text{O}} = 10^{-14.0} \dots \dots \dots (3)$$

ここで、全 CO_2 濃度 $[\text{T.CO}_2]$ (kmol/m^3) は物質収支と電荷収支から求まる (4) 式⁹⁾ に NaOH 濃度 X (kmol/m^3) と pH から求まる $[\text{H}^+]$ を代入すれば計算できる。また、(1)~(4) 式を用いて $[\text{H}_2\text{CO}_3]$, $[\text{HCO}_3^-]$, $[\text{CO}_3^{2-}]$ も計算した。

$$\begin{aligned} [\text{T.CO}_2] &= [\text{H}_2\text{CO}_3] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{2-}] \\ &= \{[\text{H}^+] + X - K_{\text{H}_2\text{O}} / [\text{H}^+]\} \cdot (k_1 \cdot k_2 + k_1 [\text{H}^+] + [\text{H}^+]^2) \\ &\quad / (2 \cdot k_1 \cdot k_2 + k_1 [\text{H}^+]) \dots \dots \dots (4) \end{aligned}$$

3. 実験結果

3.1 取鍋脱ガス実験結果

3.1.1 到達全 CO_2 濃度

脱ガス時の到達 $[\text{T.CO}_2]$ を調査するため、大容器 B にて雰囲気圧力 P : $1.8 \times 10^4 \sim 1.01 \times 10^5$ Pa, 攪拌ガス流量 Q : $1.67 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$ の条件で脱ガス実験を行なった。その結果を Fig. 2 に示すが、 $[\text{T.CO}_2]$ が 0.01 kmol/m^3 以下で脱ガス速度が低下するものの、脱ガス反応は停止せず 2.7×10^4 s 程度の時間では平衡到達値を得ることができなかった。

3.1.2 ガス流量および真空度の影響

大容器 B を用いて、攪拌アルゴン流量 Q : $8.3 \times 10^{-5} \sim 3.3 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$, 真空度 P : $2.7 \times 10^4 \sim 1.01 \times 10^5$ Pa の条件で脱ガス実験を行った。いずれの条件も、 $[\text{T.CO}_2]$ を用いると前節と同様に 0.01 kmol/m^3 近傍で脱ガス速度は低下した。

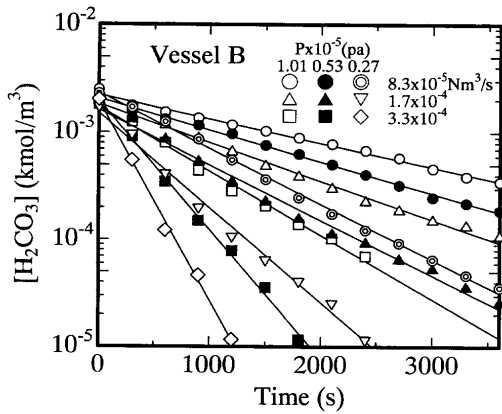


Fig. 3. Change in H_2CO_3 concentration during argon bubbling.

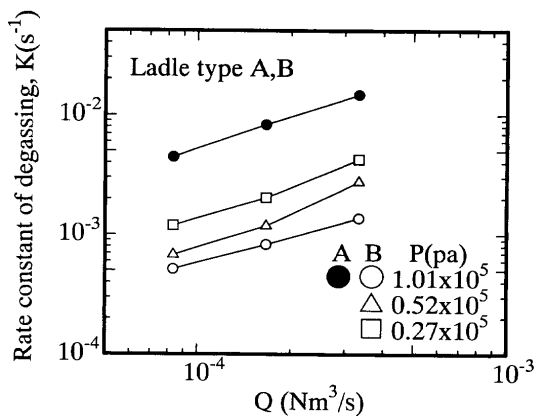


Fig. 4. Effect of pressure and gas flow rate on degassing rate constant.

一方、 $[T.CO_2]$ の代わりに $[H_2CO_3]$ を用いて整理すると、ほぼ一次反応式で整理できた(Fig. 3)。 $[H_2CO_3]$ を(5)式に代入して脱ガス速度定数 $K (s^{-1})$ を求め、攪拌ガス流量で整理した。その結果をFig. 4に示すが、ガス流量の増加および真空度の向上とともに脱ガス速度定数 K は増加した。

$$d[H_2CO_3]/dt = -K \cdot [H_2CO_3] \dots \dots \dots (5)$$

3.2 RH脱ガス実験結果

浸漬管径 D_s を0.05 m, 0.075 mとし、環流用Arのみを流した条件で測定した $[H_2CO_3]$ の経時変化と(5)式から脱ガス速度定数 K を求めた。その結果をFig. 5に示すが、環流ガス流量 $Q (Nm^3/s)$ および浸漬管径 $D_s (m)$ の増加によって K は増加した。また、環流ガス流量 Q が $1.7 \times 10^{-4} Nm^3/s$ の場合に真空槽内ガス攪拌を行った結果、脱ガス速度促進効果が得られた。

3.3 機械攪拌脱ガス実験結果

機械攪拌時の $[H_2CO_3]$ 経時変化から求めた脱ガス速度定数 K をインペラー回転数 $n (rpm)$ で整理した。その結果をFig. 6に示すが、回転数 n の増加とともに K は増加した。また、Ar攪拌併用時には機械攪拌単独の場合よりも K は増加したが、 n が大きくなるほどその促進効果は小さく

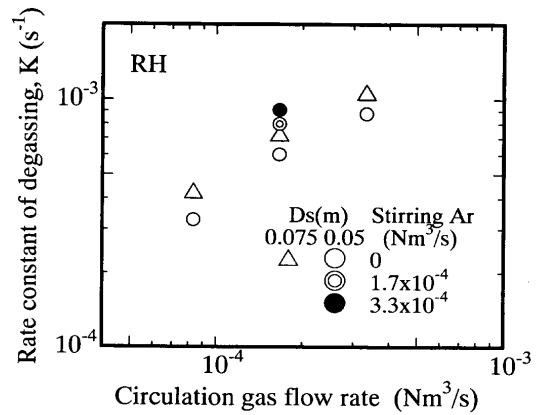


Fig. 5. Effect of gas flow rate for RH circulation on degassing rate constant.

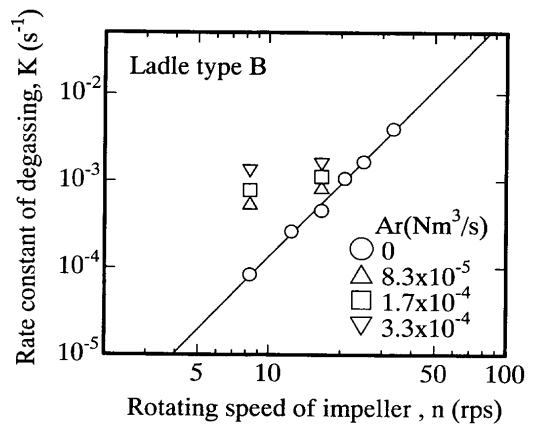


Fig. 6. Effect of Rotating speed of impeller on degassing rate constant.

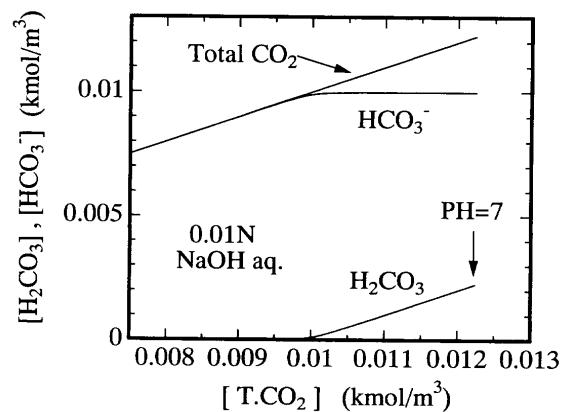


Fig. 7. Relation between total CO_2 concentration and H_2CO_3 , HCO_3^- concentration.

なった。

4. 考察

4.1 溶解 CO_2 の存在形態

脱ガス処理時に水溶液中に存在する CO_2 の内訳(H_2CO_3 , HCO_3^- , CO_3^{2-})を式(1)~(4)から計算した。その結果をFig. 7に示す。 $[T.CO_2]$ が $0.01 \sim 0.0122 kmol/m^3$ の範囲では

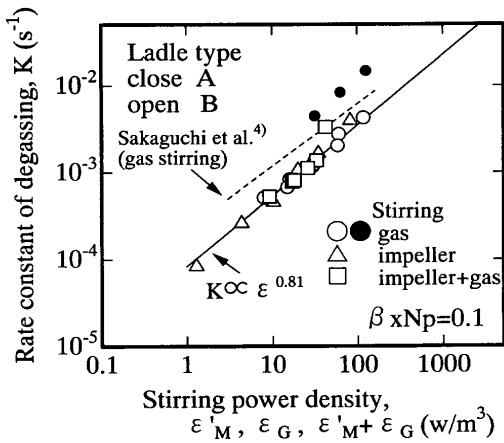


Fig. 8. Effect of stirring power density, ϵ on K .

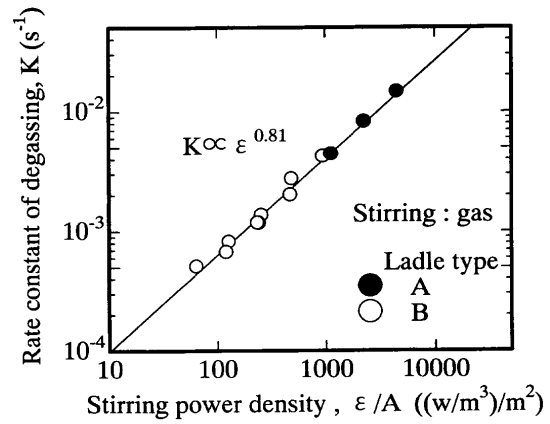


Fig. 9. Effect of stirring power density, ϵ/A on K .

$[\text{HCO}_3^-]$ は変化せず $[\text{T}\cdot\text{CO}_2]$ 変化量と $[\text{H}_2\text{CO}_3]$ 変化量とがほぼ等しいこと、 0.01 kmol/m^3 以下では H_2CO_3 の存在量は極めて少なく $[\text{T}\cdot\text{CO}_2]$ と $[\text{HCO}_3^-]$ とがほぼ一致することがわかる。なお、 $[\text{CO}_3^{2-}]$ は $[\text{H}_2\text{CO}_3]$ や $[\text{HCO}_3^-]$ と比べて微量であったため図示しなかった。脱ガス反応が溶液中 H_2CO_3 の気泡あるいは自由表面への物質移動で律速されると仮定すれば、 $[\text{T}\cdot\text{CO}_2]$ が 0.01 kmol/m^3 以下で脱ガス速度が低下する実験結果と合致する。

以上から脱ガス速度を評価するためには、 CO_2 濃度として $[\text{H}_2\text{CO}_3]$ を用いることが有効であると考えられ、これ以降では断らない限り H_2CO_3 濃度を CO_2 濃度と呼ぶことにする。

4.2 攪拌動力

化学工学の分野では機械攪拌時の気液反応の容量係数を単位容積あたりの攪拌動力、攪拌動力密度 ϵ (W/m^3)で整理することが多いため¹⁰⁾、ガス攪拌を含めて脱ガス速度定数 K を ϵ で整理した。インペラー攪拌時の攪拌動力密度 ϵ_M (W/m^3)、ガス攪拌時の攪拌動力密度 ϵ_G (W/m^3)はそれぞれ(6)¹⁰⁾、(7)¹¹⁾式で表される。

$$\epsilon_M = Np \cdot n^3 \cdot d^5 / V \dots \dots \dots (6)$$

$$\epsilon_G = 0.103 \cdot (Q/V) \cdot T \cdot \ln(1 + p \cdot g \cdot h/P) \dots \dots \dots (7)$$

ただし、 Np : 動力数 (-), T : 浴温度 (K), p : 浴密度, g : 重力加速度 (m/s^2), h : ガス吹込深さ (m), である。

なお、(7)式中右辺には雰囲気気圧 P の項があり、減圧条件でのガス膨張による攪拌動力の増大効果が考慮されることになる。ここで、 ϵ_M と ϵ_G が脱ガス処理に対して等価である保証がないため機械攪拌時には脱ガス効率 β を導入し、換算動力密度として ϵ'_M (W/m^3)を(8)式で定義した。

$$\epsilon'_M = \beta \cdot \epsilon_M = (\beta \cdot Np) \cdot n^3 \cdot d^5 / V \dots \dots \dots (8)$$

なお、同一の ϵ'_M と ϵ_G に対して脱ガス速度定数 K が一致するように $(\beta \cdot Np)$ を実験結果より定めた。その結果をFig.

8に示すが、ガス攪拌では雰囲気気圧に関わらず攪拌動力密度で整理でき、機械攪拌では $\beta \cdot Np$ を0.1とすることによりガス攪拌と同様の整理が可能であった。また、ガス・機械両攪拌を併用した場合は両攪拌動力密度の和 $\epsilon'_M + \epsilon_G$ で整理できた。したがって、機械攪拌時にガス攪拌を付与した場合、機械攪拌のインペラー回転数が高いほどガス攪拌の寄与が小さくなったという実験結果は、全攪拌動力密度に対してガス攪拌による攪拌動力密度が相対的に小さくなったことで説明できる。

ガス攪拌および機械攪拌時の K は攪拌動力密度の0.7~0.8乗に比例^{4,10)}するという報告がある。Fig. 8に示すように、本実験での脱ガス速度定数 K は攪拌動力密度の約0.8乗に比例しており従来の知見と一致した。さらに、図中には浴形状の異なる容器Aの結果を黒丸で示したが、脱ガス速度定数は浴形状が異なると同一攪拌動力では整理できないことがわかる。

矢田ら¹²⁾は浴形状の影響を解明するため、安息香酸を含浸させた流動パラフィンから水への溶出速度を液液間反応速度として測定し、その際の速度定数が浴表面積あたりの攪拌動力密度 ϵ/A で整理できることを報告している。なお、機械攪拌による脱ガス実験では反応サイトは浴表面と推定されるが、攪拌時には浴面が下に凸の複雑な形状を示したので反応界面積を正確に評価できなかった。そこで、自由表面が比較的平坦なガス攪拌のデータのみを使用して脱ガス速度定数を ϵ/A で整理した。その結果をFig. 9に示すが、浴形状の異なる条件の結果も統一的に整理できることがわかる。以上から、マクロ的には攪拌動力密度あるいは浴表面積あたりの攪拌動力密度を用いればガス攪拌や機械攪拌における脱ガス速度を統一的に評価できると考えられる。

4.3 気泡反応モデル

前節で示した攪拌動力は脱ガス速度のマクロ評価には利用できるが、自由表面や気泡が脱ガス速度に及ぼす寄与については不明であるため、本節では気泡反応モデルによる検討を行った。清瀬ら¹⁾は水モデルの脱ガス速度は単一気泡モデルの計算値とほぼ一致すること、北村ら³⁾は水モデ

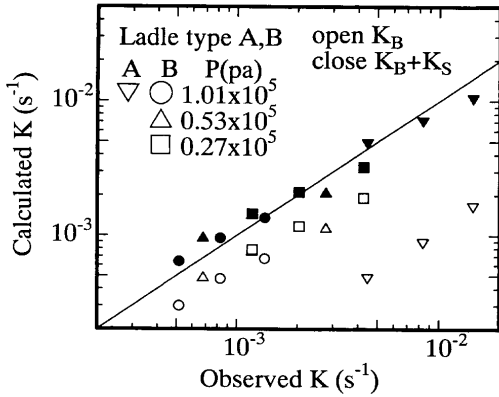


Fig. 10. Comparison of calculated K and observed K .

ルの気泡反応速度は表面反応速度よりも1桁大きいことを報告している。そこで、支配的と考えられる気泡反応の寄与をモデル計算で検討した。

なお、機械攪拌にガス攪拌を併用すると表面反応に気泡反応が加わるが、気泡は旋回しながら浴内を上昇するという複雑な運動をするため本報では詳細な検討はしなかった。両攪拌併用時のモデル計算は今後の課題である。したがって、以降ではガス攪拌時の脱ガス挙動について考察した。

脱ガスの律速段階をAr気泡界面への液中CO₂の物質移動と仮定すると、脱ガス速度は(9), (10)¹³⁾式で表される。なお、気泡径¹⁴⁾、気泡スリップ速度¹¹⁾はいずれも従来の報告に基づき定めた。

$$dN_{CO_2}/dt = K_L \cdot \pi \cdot d_B^2 \cdot (C_{CO_2} - C_{CO_2}^*) \quad (9)$$

$$K_L = 2 \cdot (D_L \cdot Us / \pi d_B)^{1/2} \quad (10)$$

ただし、 N_{CO_2} : 気泡中CO₂モル数 (kmol), K_L : 液側物質移動係数(m/s), d_B : 気泡径 (m), C_{CO_2} : 液中CO₂濃度 (kmol/m³), $C_{CO_2}^*$: 気泡中CO₂分圧に平衡するCO₂濃度 (kmol/m³), D_L : 液相拡散係数 (m²/s), Us : 気泡スリップ速度 (m/s), である。

ここで、 $C_{CO_2}^*$ はヘンリー定数 H (Pa·m³·mol⁻¹), CO₂分圧 P_{CO_2} (Pa)を用いて(11)式¹⁰⁾で与えられる。NaOH aq.のヘンリー定数 H は純水での値 H_w とは厳密には異なるが、0.01 Nという希薄水溶液の場合では両者の差は極めて小さい¹⁰⁾ことから $H=H_w$ とおいた。

$$C_{CO_2}^* = P_{CO_2} / H \quad (11)$$

また、気泡反応の反応時間を規定する気泡の液中滞留時間は浴深 h を気泡上昇速度 U_G で除することにより求まる。気泡上昇速度 U_G は佐野ら¹¹⁾が(12), (13)式で与えた液側上昇速度 U_L を用いて(14)式で表せる。なお、液側上昇速度は後で述べる沢田ら¹⁵⁾の報告もあるが、雰囲気気圧の影響が考慮できない。本実験は減圧下条件も含むため、雰囲気気圧力を考慮可能な佐野ら¹¹⁾の(12)式で評価することにした。

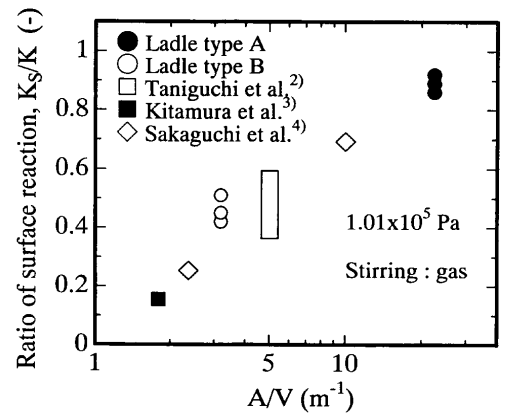


Fig. 11. Relation between ratio of surface reaction and A/V .

$$U_L = 1.17(Q_M \cdot g \cdot h / Ap)^{0.346} \quad (12)$$

$$Ap = \pi \cdot (0.37h)^2 / 4 \quad (13)$$

$$U_G = U_L + U_S \quad (14)$$

ただし、 Q_M : ガス吹込位置での圧力と雰囲気気圧力から求まる対数平均圧力におけるガスの体積流量 (m³/s), Ap : 気泡上昇流域の断面積 (m²), である。

以上の式を用いてAr気泡が液中を上昇する間に気泡内に移動したCO₂モル数 $N_{CO_2}^*$ (kmol)を求めた。さらに、気泡中Arモル数 N_{Ar} (kmol)および吹込Arモル流量 Q^* (kmol/s)を用いて浴中CO₂濃度低下速度を $(N_{CO_2}^* / N_{Ar}) \cdot Q^* / V$ から計算した。この計算値から浴中CO₂濃度の経時変化を求め、気泡反応による脱ガス速度定数 K_B (s⁻¹)の計算値を得た。この計算値と実験値と比較した結果をFig.10に示す。計算値は実験値である K よりも小さく、気泡反応だけでは脱ガス速度は説明できなかった。

脱ガス速度が ε/A で整理できることはすでに述べたが、これは表面反応の関与を示唆している。したがって、気泡反応単独で脱ガス速度が説明できないという結果は妥当と考えられる。一方、清瀬ら¹⁾は単一気泡モデル計算値と実験値がほぼ一致したと報告している。しかし、清瀬らは静止浴を仮定し、気泡の上昇速度を U_G ではなく U_S と評価することにより気泡の浴内滞留時間を実際よりも長く見積もっている。それが、本報と異なる結果を得た理由と考えられる。

ところで、気泡反応と表面反応を分離して評価した北村ら³⁾やTaniguchiら²⁾およびSakaguchiら⁴⁾は、表面反応による脱ガス速度定数 K_S (s⁻¹)と実測した脱ガス速度 K との比 K_S/K をそれぞれ0.2程度、0.39~0.56、0.25~0.7と報告している。本実験では K_S を実測してはいないが、計算で得られた気泡反応の脱ガス速度定数 K_B を用いて、 K_S/K を(15)式で表し、従来の報告値と比較した。

$$K_S/K = 1 - (K_B/K) \quad (15)$$

(15)式から求めた K_g/K は攪拌ガス流量により若干変化するが、小容器Aで約0.9, 大容器Bで約0.45となった。これらの K_g/K を浴自由表面の比表面積(A/V)で整理した結果を他研究者の報告値とともにFig.11に示す。この図から A/V が大きいほど、すなわち浴が“shallow”であるほど表面反応の比率が増加することがわかる。

4.3.1 表面反応の見積もり

前節の計算から気泡反応だけでは全体の脱ガス速度を説明できないことが判明したため、表面反応について検討した。Taniguchiら²⁾は大気圧下ガス攪拌時の自由表面における物質移動について水モデル実験を行い表面反応の容量係数 ak_s (m^3/s)が(16)式で表せるとしている。

$$ak_s = 13.8 \cdot D_L^{1/2} \cdot Q^{1/2} \cdot d_L/2 \dots\dots\dots(16)$$

原典では大気圧条件を対象としているが、本報では減圧条件に適用するため、攪拌ガス流量 Q として(12)式と同様に対数平均圧力におけるガスの体積流量を用いた。(16)式で計算した ak_s を $K_g = ak_s/V$ なる関係に代入して K_g を求め、前節で求めた K_B との合計値 $K_B + K_g$ を脱ガス速度定数 K の実測値と比較した。その結果をFig.10に示すが、容器形状、真空度、攪拌ガス流量に関わらず計算値と実験値はよく一致した。以上から、(16)式は圧力補正することにより減圧下へも拡張して使用できると考えられる。ところで、北村ら³⁾はTaniguchiら²⁾とは別に表面反応速度を定式化しており、それは大気圧の場合には(17)式で表される。

$$ak_s = 40 \cdot \{(G + \gamma \cdot S) \cdot Up\} \cdot D_L^{1/2} \dots\dots\dots(17)$$

ここで、 S : 吹込みガスが広がり角片側12度で広がるとした時の気泡活性面積 (m^2), G : それ以外の自由表面積 (m^2), γ : 気泡活性面の活性化率, Up : 底吹き円筒容器での気液二相域での液体の上昇速度 (m/s)である。

液体の上昇速度 Up は(12)式でも評価可能だが、北村らは(17)式を得る際に沢田ら¹⁵⁾の推算式(18)式を用いており、(12)式を用いると北村らと異なる値が算出される可能性がある。そこで(17)式を用いる場合の液体の上昇速度は(18)式で評価した。

$$Up = 34.4 \cdot Q^{0.52} \cdot h^{0.2} / d_L \dots\dots\dots(18)$$

これを用いて、(17)式と(16)式の比をとると、(19)式が得られる。

$$\frac{ak_s(17)}{ak_s(16)} = 20 \cdot Q^{0.02} \cdot h^{0.2} \cdot \{0.785 + 0.14(\gamma - 1) \cdot (h/d_L)^2\} \dots\dots\dots(19)$$

北村らが水モデル実験に対して与えた $\gamma = 4.78$, および、本実験条件の Q, h, d_L を(19)式に代入するとこの比は8~14と大きな値となり、北村らの推算式で本実験結果を説明することはできなかった。このような大きな差異が生じた理

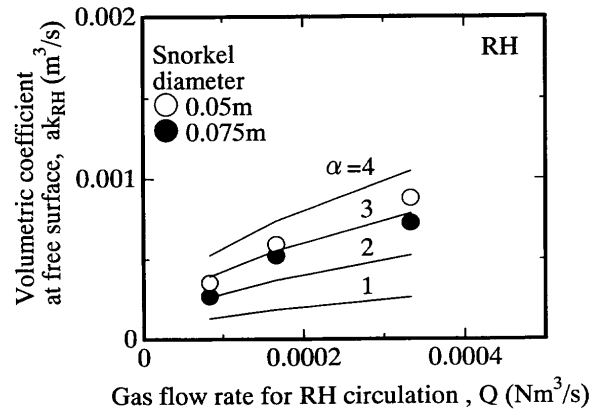


Fig. 12. Effect of gas flow rate on ak_s in RH vacuum vessel.

由については不明であり、今後の検討課題である。

4.4 RH脱ガス速度

取鍋で用いたのと同様の手法を用い、RH上昇管内での気泡反応による脱ガス速度を算出した。なお、取鍋ガス攪拌では取鍋中央部に吹込ガスの上昇域が存在し、その外側に液体下降域が存在するのに対し、RH上昇管内は全体にガス気泡があり液体下降域が存在しない。したがって、取鍋ガス攪拌を対象として導かれた(12), (18)式では十分な評価ができないと考えられた。そこで、上昇管内の液側上昇速度 U_L は以下の方法で求めた。RH環流速度 Q_w (m^3/s), 環流ガス流量 Q (m^3/s)はそれぞれ(20), (21)式で表せ、 U_L と U_G の関係は(14)式で表せる。

$$Q_w = (1 - \phi) \cdot So \cdot U_L \dots\dots\dots(20)$$

$$Q = \phi \cdot So \cdot U_G \dots\dots\dots(21)$$

ただし、 ϕ : ガスホールドアップ(-), So : 浸漬管内水平断面面積(m^2), である。

Kuwabaraら¹⁶⁾の式から得られる Q_w と既知の環流ガス流量 Q を用いて(14), (20), (21)式を連立すれば U_L が算出でき、取鍋の場合と同様に気泡反応による単位時間あたりの脱ガス量 R_B ($kmol/m^3 \cdot s$)が計算できる。

RH真空槽内と取鍋内を完全混合と仮定した場合のそれぞれの濃度変化速度を住田ら¹⁷⁾の方法で表し、気泡反応項と表面反応項を分離して表すと(22), (23)式となる。

$$V \cdot (dC_V/dt) = Q_w \cdot (C_L - C_V) - R_B - ak_{RH} \cdot (C_V - C_e) \dots\dots\dots(22)$$

$$V \cdot (dC_V/dt) = Q_w \cdot (C_V - C_L) \dots\dots\dots(23)$$

ただし、 C_V : 真空槽内濃度 ($kmol/m^3$), C_L : 取鍋内濃度 ($kmol/m^3$), ak_{RH} : 真空槽内表面反応の容量係数 (m^3/s)。

なお、脱ガスサイトは上昇管内の気泡表面と真空槽内自由表面であると仮定した。取鍋表面が反応サイトとなる可能性もあるが、取鍋は蓋で密閉加圧されていること、RH処理中の取鍋表面の流動が極めて小さいこと、から無視した。

両式に上述の計算で得られる R_B を代入すると、実測の取鍋内濃度変化に適合する ak_{RH} が求まる。得られた ak_{RH} を環流ガス流量で整理した結果をFig.12に示す。図中には(16)式から求めた ak_s に定数 α を乗じた値を実線で示した。環流ガス流量や浸漬管径にかかわらず、いずれの実験値も α を3とした場合の計算値と一致した。取鍋条件では(16)式がそのまま利用できたのに対し、RH真空槽ではその3倍に見積もる必要があった理由は不明だが、自由表面の流動形態が異なることなどが考えられる。したがって、今後両条件における表面流速の平均値や時間変動成分の検討が必要と考えられる。

5. 結言

取鍋およびRH形状の水モデルを用いてNaOH aq.に溶解したCO₂のガス攪拌あるいは機械攪拌による脱ガス速度を調査した。その結果、以下の知見を得た。

(1) 機械攪拌の脱ガス速度は脱ガス効率を考慮することによりガス攪拌と同様に攪拌動力で整理できた。また、浴表面積あたりの攪拌動力を用いることにより浴形状に関わらず脱ガス速度を統一的に整理できた。

(2) 取鍋形状では、脱ガスの気泡反応を液側上昇速度を考慮した計算モデルで求め、表面反応をTaniguchiらの実験式を減圧下に拡張して評価することにより、実測の脱

ガス速度を説明することが可能であった。

(3) RH形状における真空槽内の表面反応はTaniguchiらの実験式から得られる値の3倍で評価する必要があることが判明した。

文 献

- 1) A.Kiyose, H.Goto and S.Ogibayashi: *CAMP-ISIJ*, **4** (1991), 971.
- 2) S.Taniguchi, Y.Okada, A.Sakai and A.Kikuchi: Proc. of 6th Int. Iron and Steel Cong. (6th IISC), Vol. 1, ISIJ, Tokyo, (1990), 394.
- 3) S.Kitamura, K.Miyamoto and R.Tsujino: *Tetsu-to-Hagané*, **80** (1994), 101.
- 4) K.Sakaguchi and K.Ito: *ISIJ Int.*, **35** (1995), 1348.
- 5) J.Nakashima, R.Tsujino, M.Hirai and M.Uchimura: *Tetsu-to-Hagané*, **73** (1987), S178.
- 6) J.Nakashima, R.Tsujino, M.Hirai, J.Ogura, H.Goto and S.Onoyama: *CAMP-ISIJ*, **2** (1989), 1225.
- 7) S.Inoue, T.Usui, Y.Furuno and J.Fukumi: *CAMP-ISIJ*, **3** (1990), 164.
- 8) A.K.Sinha and A.K.Lahiri: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **27** (1987), 560.
- 9) S.Inada and T.Watanabe: *Tetsu-to-Hagané*, **62** (1976), 807.
- 10) 化学工学便覧, 化学工学協会編, 丸善, 東京, (1988).
- 11) M.Sano and K.Mori: *Tetsu-to-Hagané*, **68** (1982), 2451.
- 12) Y.Yada, T.Komori, J.Nakagawa and M.Morita: *CAMP-ISIJ*, **2** (1989), 135.
- 13) R.Higbie: *Trans. Am. Inst. Chem. Eng.*, **31** (1935), 65.
- 14) M.Sano, K.Mori and Y.Fujita: *Tetsu-to-Hagané*, **65** (1979), 1140.
- 15) I.Sawada and T.Ohashi: *Tetsu-to-Hagané*, **73** (1987), 669.
- 16) T.Kuwabara, K.Umezawa, K.Mori and H.Watanabe: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **28** (1988), 305.
- 17) N.Sumida, T.Fujii, Y.Oguchi, H.Morishita, K.Yoshimura and F.Sudo: *Kawasaki Steel Giho*, **15** (1983), 152.