

---

CTスキャン方式分散状態計測法を用いた精密制御懸濁重合反応  
システムの試作と応用

---

(09450290)

平成9年度～平成12年度科学研究費補助金  
(基盤研究(B)(2))研究成果報告書

横浜国立大学附属図書館



11068287

平成13年9月

研究代表者 上ノ山 周

(横浜国立大学工学部教授)

571  
KA

## は し が き

### 研究組織

- 研究代表者： 上ノ山 周 (横浜国立大学工学部教授)  
研究分担者： 上和野満雄 (横浜国立大学工学部教授)  
研究分担者： 仁志 和彦 (横浜国立大学工学部講師)  
研究分担者： 山本 一巳 (綜研化学(株)装置システム部主任研究員)  
研究分担者： 樽本 淳 (綜研化学(株)研究開発センター副主任研究員)

### 研究経費

平成9年度	3,800千円
平成10年度	4,100千円
平成11年度	3,600千円
平成12年度	2,600千円

計 14,100千円

横浜国立大学附属図書館



11068287

### 研究発表

#### (1) 学会誌等

- 1) Kaminoyama, M., K. Nishi and M. Kamiwano : Tomography Measurements of Suspension and Dispersion States of the Polymerization Field in a Stirred-type Reactor , Proceedings of Nihon Kinsouryugakkai Nennkai-Kouennkai 2001, International Session on Tomography, OS-1, B19 (13<sup>th</sup> -July-2001), Kokura (Japan)

#### (2) 口頭発表

- 1) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦：攪拌槽内における高濃度固体懸濁液の流動・伝熱態、粉体工学会第35回夏期シンポジウム講演論文集、20 神奈川 (1999年8月6日)  
2) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：電気抵抗方式トモグラフィ法を用いた攪拌槽内における塑性流体の流動領域の測定、化学工学会第32回秋季大会講演要旨集、R109 金沢 (1999年9月26日)  
3) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：電気抵抗方式トモグラフィ測定を用いた懸濁重合槽における凝集塊の検出、化学工学会第65年会講演要旨集、A207 東京 (2000年3月30日)  
4) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：電気抵抗方式トモグラフィ測定システムによる懸濁重合反応場における安定操作範囲の決定、化学工学会つくば大会講演要旨集、A108 つくば (2000年7月17日)  
5) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：攪拌槽における種々の塑性流体のカバ

寄贈者：上ノ山 周

ン形成状態のトモグラフィー計測、化学工学会第 33 回秋季大会講演要旨集、J205 浜松(2000 年 9 月 13 日)

6) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：攪拌懸濁重合反応場における液滴分散状態の連続的トモグラフィー計測、化学工学会第 66 年会講演要旨集、G114 広島 (2001 年 4 月 2 日)

7) 上ノ山周、仁志和彦、三角隆太、大森輝繁：電気抵抗方式トモグラフィー計測システムによる懸濁重合場における反応・懸濁状況の制御についての検討、化学工学会神奈川大会講演要旨集、A118 横浜 (2001 年 8 月 8 日)

### (3) 出版物

1) 上ノ山周：攪拌槽内における流動・分散状態の可視化技術－数値シミュレーション手法とトモグラフィー計測法－、化学工学会関東支部 2000 年度鹿島コンビナート講習会「化学装置内の可視化技術」, pp.1-10 (2000 年 11 月 22 日)

2) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：攪拌槽における種々の塑性流体のカバーン形成状態のトモグラフィー計測、化学工学会「熱物質流体工学」特別研究会編、化学工学会シンポジウムシリーズ 75, pp.162-169 (2001 年 2 月 28 日)

# 目次

1 章 緒言	
1. 1 本研究の目的	1
1. 2 既往の研究	1
2 章 計測原理	
2. 1 電圧計測法	2
2. 2 デ・モジュレーション	2
2. 3 画像構成法	4
2. 3. 1 基礎方程式	4
2. 3. 2 基礎方程式の離散化	6
2. 3. 3 前方問題	9
2. 3. 4 Back-Projection 法	10
2. 3. 4. 1 感度行列の算出	10
2. 3. 4. 2 測定電圧の規格化	10
2. 3. 4. 3 抵抗分布の算出	10
3 章 計測システム	
3. 1 はじめに	13
3. 2 計測回路	13
3. 2. 1 ファンクション・ジェネレータ	13
3. 2. 2 電圧制御電流源	13
3. 2. 3 アナログ・マルチプレクサ	14
3. 3. 4 ボルテージ・フォロワおよび可変増幅器	14
3. 3. 5 AD コンバータ	14
3. 3 計測用攪拌槽	14
3. 3. 1 4 段面測定用攪拌槽	14
3. 3. 2 測定断面可動型攪拌槽	15
3. 3. 3 懸濁重合用攪拌槽	15
3. 4 ソフトウェアの開発	15
3. 5 分解能の検討	16

4章 計測システムの検討(予備実験)	
4.1 はじめに	28
4.2 固-液系の測定	28
4.2.1.1 静止系における計測方法	28
4.2.2.2 計測結果および考察	28
4.2.2.1 回転系における計測方法	28
4.2.2.3 計測結果および考察	29
4.3 固体粒子分散状態の計測	29
4.3.1 計測方法	29
4.3.2 計測結果および考察	29
4.4 気-液系の計測	30
4.4.1 計測方法	30
4.4.2 計測結果および考察	30
4.5 通気攪拌における気泡分散状態の計測	30
4.5.1 計測方法	30
4.5.2 計測結果および考察	31
5章 塑性流体のカバーン形成状態のトモグラフィー計測	
5.1 はじめに	44
5.2 計測方法	44
5.3 計測結果および考察	44
5.3.1 カルボキシビニルポリマー水溶液を用いた場合	44
5.3.1.1 可視化実験	44
5.3.1.2 本計測システムによる計測	45
5.3.2 炭酸カルシウム懸濁水を用いた場合	45
5.3.2.1 6枚垂直パドル翼を用いた場合	45
5.3.2.2 4枚傾斜パドル翼を用いた場合	46
5.4 相関式との比較	47
5.5 むすびに	47
6章 電気抵抗方式トモグラフィー計測システムを用いた 懸濁重合槽における凝集塊の検出	
6.1 はじめに	61
6.2 計測方法	61
6.3 計測結果および考察	61
6.3.1 重合反応開始直後における計測	61
6.3.2 モデル的計測	62

6. 4	むすびに	63
7章	電気抵抗方式トモグラフィー計測システムによる懸濁重合反応場における安定操作範囲の決定	
7. 1	はじめに	70
7. 2	計測方法	70
7. 3	計測結果および考察	70
7. 4	液滴分散状態の定量的評価	71
7. 5	むすびに	72
8章	懸濁重合反応場における液滴分散状態の連続的トモグラフィー計測	
8. 1	はじめに	82
8. 2	計測方法	82
8. 3	液滴分散状態の定量的評価	82
8. 4	計測結果および考察	83
8. 5	むすびに	84
9章	総括	
9. 1	総括	92
	使用記号	93
	参考文献	97
添付	研究発表 (1)学会誌等	100
	研究発表 (2)口頭発表	103
	研究発表 (3)出版物	116

## 1章 緒言

### 1.1 本研究の目的

近年、CT(computed tomography)スキャンに代表されるような断面での計測を行うトモグラフィー技術は、急速に発展してきており、x線のみならず超音波や光、NMRを用いたものまで種々開発されている<sup>1-6)</sup>。

トモグラフィー計測手法とは、非接触かつ断面でのスカラー値やベクトル分布を計測する技術を指し、主に医療工学を中心として発展した。また、工学分野への応用もここ数年精力的に試みられ、1999年5月には工業プロセス・トモグラフィーに関する世界会議も開催されるまでになってきている<sup>3-5)</sup>。

本研究では、液相と固相などの各種異相間における電気抵抗値の著しい相違を利用して液相攪拌槽内における異相の懸濁・分散状態を計測する電気抵抗方式トモグラフィー計測システムの試作・開発を行った。同計測システムを用いて、非ニュートン流体におけるカバールの形成状態を検討するとともに、懸濁重合反応場における液滴の分散状態を計測し、同反応を制御する応用についても検討を行った。

### 1.2 既往の研究

電気抵抗画像は、1920年代に、地中に金属電極を挿入する手法として、地球物理学者によって広められた。ある電極間に電流を流し、それ以外すべての電極間の電圧応答を計測することによって、副表面地層のマップを得ることができ、それによって、例えば含油性岩などのより正確な描写ができる<sup>7,8)</sup>。

1970年代後半、円形に配置された電極を用いたトモグラフィー的な抵抗計測技術は、x線スキャナに比べ、低コストかつ形態性に優れたものとして、生物医学エンジニアによって用いられた。それ以降、臨床ERT(electrical resistance tomography)は、断続的に改良され、現在では、与えられた周波数に対して、特定のインピーダンス応答を示す病気組織を検出するために使用されている<sup>9,10)</sup>。しかしながら、それらの装置は、比較的高い空間分解能を持つ臨床x線や磁気共鳴画像(MRI)と比較されることが多い。

近年、DickinとWangら<sup>1)</sup>は、臨床ERTを様々な化学プロセス内での測定に適用するため、使用する電流の振幅や周波数の帯域幅などの問題点を改良した計測装置を用い、液-液攪拌槽内における分散状態の測定を行っている。また、Mannら<sup>2,11)</sup>は、槽径1.5mの攪拌槽を用い、スケールアップの検討を行っている。

## 2章 計測原理

### 2.1 電圧計測法

図 2.1 に、攪拌槽における計測断面概略を示した。槽内における流れを阻害しないように、槽壁円周方向に設置した 16 個の電極により計測を行う。

計測法として、隣接法<sup>1)</sup>を採用した。同法は、まず一对の隣り合った電極間に一定電流を流し、それ以外の隣り合った電極間の電圧を計測する。次に、電流を流す電極対を移動し、同様の電圧計測を行い、これをすべての電極の組み合わせについて走査的に繰り返すものである。このとき、一定電流を流している電極間においては、接触インピーダンスの影響を避けるため、電圧計測は行わない。また、例えば、1-2 電極間で電流を流し、3-4 電極間で電圧を計測したときの値と、3-4 電極間で電流を流し、1-2 電極間で電圧を計測したときの値は等しくなる。

式(1)には、この隣接法による電極の組み合わせ数の算出式を示した。本研究では、電極数を 16 としたため、組み合わせ数は 104 となる。この 104 の計測を組み合わせることで、1 枚の断面画像が構成される。

$$M = \frac{E_n(E_n - 1)}{2} = 104 \quad (E_n = 16 \text{ のとき}) \quad (2-1)$$

ここで、M は電極の組み合わせ数、 $E_n$  は電極数である。

### 2.2 デ・モジュレーション

抵抗媒体を通したことによる余弦波信号の振幅減少と位相シフトは、それらの SNR(Signal to Noise Ratio)に最適化された同位相デ・モジュレーション技術により回復される。Smith ら<sup>8)</sup>は、Gaussian 広域帯ノイズ存在下の理論的な最大 SNR に近い信号を回復するためのデジタル・マッチド・フィルタに基づいたデ・モジュレーション技術について述べている。

Gaussian ノイズによる特別な信号汚染に対して、最良の SNR を与えるフィルタはマッチド・フィルタである。デ・モジュレータがマッチド・フィルタと等しい SNR を持つようにデザインできるならば、このデ・モジュレータは最大 SNR を持つことになる。

図 2.2 に、マッチド・フィルタ・デ・モジュレータのブロック図を示した。入力信号はデジタル化され、サンプルデータの離散値  $V_{in}(i)$  となる。デ・モジュレーションは、デジタ

ル化された入力信号と、余弦、および正弦の「参照」テーブルの積算(積の合計)である。入力信号  $V_{in}(i)$ 、および in-位相と直角位相参照信号  $h_c(i)$ 、 $h_s(i)$  の定義は以下で与えられる。

$$V_{in}(n) = A \cos\left(\frac{2\pi}{N}n + \theta\right) \quad 0 \leq n \leq N-1 \quad (2-2a)$$

$$h_c(n) = \cos\left(\frac{2\pi}{N}n\right) \quad 0 \leq n \leq N-1 \quad (2-2b)$$

$$h_s(n) = \sin\left(\frac{2\pi}{N}n\right) \quad 0 \leq n \leq N-1 \quad (2-2c)$$

(2-2a)式において、A は信号が抵抗媒体を伝播するときを受ける減少であり、 $\theta$  は位相シフトである。十分なサンプリング数  $N(N>2)$  に対して計測した電位の in-位相(実数)部は、次式から求まる。

$$\begin{aligned} \sum_{n=0}^{N-1} h_c(n)V_{in}(n) &= \sum_{n=0}^{N-1} \cos\left(\frac{2\pi}{N}n\right) A \cos\left(\frac{2\pi}{N}n + \theta\right) \\ &= NA \frac{1}{2} \cos(\theta) \end{aligned} \quad (2-3a)$$

直角位相(虚数)部は、

$$\begin{aligned} \sum_{n=0}^{N-1} h_s(n)V_{in}(n) &= \sum_{n=0}^{N-1} \sin\left(\frac{2\pi}{N}n\right) A \cos\left(\frac{2\pi}{N}n + \theta\right) \\ &= NA \frac{1}{2} \sin(\theta) \end{aligned} \quad (2-3b)$$

上式において、本研究では取得速度を考慮して、サンプル数  $N=4$  とした。(2-2b)、(2-2c)式より、 $N=4$  のときの in-位相(余弦波)と直角位相(正弦波)参照波形の離散値は、それぞれ+1、0、-1、0 および 0、+1、0、-1 である。これらの値を(2-3a)、(2-3b)式に代入すると、

$$\begin{aligned} \sum_{n=0}^3 h_c(n)V_{in}(n) &= \sum_{n=0}^3 \cos\left(\frac{\pi}{2}n\right) A \cos\left(\frac{\pi}{2}n + \theta\right) \\ &= A \cos(\theta) - A \cos(\pi + \theta) A \cos\left(\frac{\pi}{2}n + \theta\right) \\ &= 2A \cos(\theta) \end{aligned} \quad (2-4a)$$

直角位相部に対しては、

$$\begin{aligned}
 \sum_{n=0}^3 h_s(n) V_{in}(n) &= \sum_{n=0}^3 \sin\left(\frac{\pi}{2} n\right) A \cos\left(\frac{\pi}{2} n + \theta\right) \\
 &= A \cos\left(\frac{\pi}{2} + \theta\right) - A \cos\left(\frac{3\pi}{2} + \theta\right) A \cos\left(\frac{\pi}{2} n + \theta\right) \\
 &= 2A \sin(\theta)
 \end{aligned} \tag{2-4b}$$

(2-4a)、(2-4b)式より、振幅 A は、

$$\begin{aligned}
 A^2 &= \frac{\left(\sum_{n=0}^3 h_c(n) V_{in}(n)\right)^2}{4} + \frac{\left(\sum_{n=0}^3 h_s(n) V_{in}(n)\right)^2}{4} \\
 &= \frac{(V_{in}(0) - V_{in}(2))^2}{4} + \frac{(V_{in}(1) - V_{in}(3))^2}{4}
 \end{aligned}$$

よって、

$$A = \sqrt{\frac{(V_{in}(0) - V_{in}(2))^2}{4} + \frac{(V_{in}(1) - V_{in}(3))^2}{4}} \tag{2-5}$$

## 2.3 画像構成法

本計測システムにおいて、計測した電圧から槽内の電気抵抗値分布を求める際、画像構成アルゴリズムが必要である。本研究では、数値解析法として有限要素法を採用し、Kotre らが改良した Back-Projection 法<sup>9)</sup>により、槽断面での電気抵抗値分布を求めた。以下に画像構成法の原理を述べる。

### 2.3.1 基礎方程式

攪拌槽内の電気抵抗値分布を有限要素法により解析する際、基礎方程式としてポアソン方程式を用いた<sup>10)</sup>。

$$\nabla \cdot [\sigma \nabla \cdot \mathbf{v}] = 0 \tag{2-6}$$

ここで、 $\sigma$  は導電率である。

境界条件として、

$$\mathbf{v} = 0 \quad (\text{参照点}) \tag{2-7a}$$

$$\int \sigma \frac{\partial v}{\partial n} = +I_0 \quad (\text{電流ソース電極}) \tag{2-7b}$$

$$\int \sigma \frac{\partial v}{\partial n} = -I_0 \quad (\text{電流シンク電極}) \quad (2-7c)$$

ここで、 $n$  は電極に対する法線ベクトルである。

本研究では、(2-2)式から有限要素法により、槽断面の電圧分布を算出する。 $x$ - $y$  座標におけるポアソン方程式は次式で表される。

$$\frac{\partial}{\partial x} \left( \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial y} \right) = 0 \quad (2-8)$$

ここで、 $\sigma^{(e)}$  は要素内で一定であるとする、

$$\sigma^{(e)} \left( \frac{\partial^2 v^{(e)}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v^{(e)}}{\partial y^2} \right) = 0 \quad (2-9)$$

また、要素内の補間関数として 1 次式を考えると、

$$N_i^{(e)}(x,y) = (a_i^{(e)} + b_i^{(e)}x + c_i^{(e)}y) / 2D^{(e)} \quad (2-10a)$$

$$N_j^{(e)}(x,y) = (a_j^{(e)} + b_j^{(e)}x + c_j^{(e)}y) / 2D^{(e)} \quad (2-10b)$$

$$N_k^{(e)}(x,y) = (a_k^{(e)} + b_k^{(e)}x + c_k^{(e)}y) / 2D^{(e)} \quad (2-10c)$$

ここで、 $D^{(e)}$  は要素  $e$  の面積であり、外力ベクトルにより次式で与えられる。

$$2D^{(e)} = (x_j - x_i)(y_k - y_i) - (x_i - x_k)(y_i - y_j) \quad (2-11)$$

また、 $a, b, c$  は節点の座標のみから算出され、

$$a_i^{(e)} = x_j y_k - x_k y_j$$

$$b_i^{(e)} = y_j - y_k \quad (2-12a)$$

$$c_i^{(e)} = x_k - x_j$$

$$a_j^{(e)} = x_k y_i - x_i y_k$$

$$b_j^{(e)} = y_k - y_i \quad (2-12b)$$

$$c_j^{(e)} = x_i - x_k$$

$$a_k^{(e)} = x_j y_i - x_j y_i$$

$$b_k^{(e)} = y_i - y_j \quad (2-12c)$$

$$c_k^{(e)} = x_j - x_i$$

となる。

### 2.3.2 基礎方程式の離散化<sup>11)</sup>

(2-9)式を完全に満足する $v$ が見出せれば、その $v$ を(2-9)式に代入すると $=0$ が成り立つ。しかし、実際は近似解 $v$ が得られるため、この等式は成り立たない。有限要素法により解析した際の残差は時式の $R$ となる。

$$\sigma \left( \frac{\partial^2 \bar{v}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \bar{v}}{\partial y^2} \right) = R \approx 0 \quad (2-13)$$

誤差に重みをつけて評価する方法を重みつき残差法といい、2乗平均誤差や最小2乗法などの考え方を適用した場合、次式のようなになる。

$$\iint_S R^2 ds = 0 \quad (2-14)$$

ガラーキン法は、重みとして補間関数を用いる方法である。すなわち、残差に補間関数を乗じ、それを考察領域に渡って積分し、その結果が $0$ となるように $v$ を定めるものである。一般には、 $v$ は $E$ を要素数として、

$$\begin{aligned} \bar{v}(x, y) &= \sum_{e=1}^E v^{(e)}(x, y) \\ &= \sum_{e=1}^E \{N^{(e)}(x, y)\}^T \{V^{(e)}\} \end{aligned} \quad (2-15)$$

となるので、これを利用してガラーキン重みつき残差法を適用する。

$$\begin{aligned} \iint_S \{N\} R ds &= \iint_S \{N\} \left( \frac{\partial}{\partial x} \sigma \frac{\partial \bar{v}}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial y} \sigma \frac{\partial \bar{v}}{\partial y} \right) ds \\ &= \sum_{e=1}^E \iint_{S^{(e)}} \{N^{(e)}\} \left[ \frac{\partial}{\partial x} \left( \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial y} \right) \right] ds \\ &= 0 \end{aligned} \quad (2-16)$$

ある要素 $e$ に注目すると、第1項は、

$$\iint_{S^{(e)}} \{N^{(e)}\} \frac{\partial}{\partial x} \left( \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial x} \right) ds$$

$$\begin{aligned}
&= \iint_{S^{(e)}} \left[ \frac{\partial}{\partial x} \left( \{N^{(e)}\} \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial x} \right) - \frac{\partial \{N^{(e)}\}}{\partial x} \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial x} \right] ds \\
&= -\iint_{S^{(e)}} \frac{\partial \{N^{(e)}\}}{\partial x} \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial x} ds + \int_{\Gamma^{(e)}} \{N^{(e)}\} \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial x} n_x dl \quad (2-17)
\end{aligned}$$

ここで、 $\Gamma^{(e)}$ は要素  $e$  の周辺、 $n_x$ はその周辺上の法線ベクトルの  $x$  成分である。

同様に、第 2 項は、

$$\begin{aligned}
&\iint_{S^{(e)}} \{N^{(e)}\} \frac{\partial}{\partial y} \left( \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial y} \right) ds \\
&= -\iint_{S^{(e)}} \frac{\partial \{N^{(e)}\}}{\partial y} \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial y} ds + \int_{\Gamma^{(e)}} \{N^{(e)}\} \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial y} n_y dl \quad (2-18)
\end{aligned}$$

(2-17)、(2-18)式より、(2-16)式の 1 要素分  $Ge$  は、

$$\begin{aligned}
Ge &= -\iint_{S^{(e)}} \left( \frac{\partial \{N^{(e)}\}}{\partial x} \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial x} + \frac{\partial \{N^{(e)}\}}{\partial y} \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial y} \right) ds \\
&+ \int_{\Gamma^{(e)}} \{N^{(e)}\} \left( \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial x} n_x + \sigma^{(e)} \frac{\partial v^{(e)}}{\partial y} n_y \right) dl \quad (2-19)
\end{aligned}$$

また、 $\mathbf{v}^{(e)} = \{N^{(e)}\}^T \{V^{(e)}\}$  より、

$$\frac{\partial v^{(e)}}{\partial x} = \frac{\partial \{N^{(e)}\}^T}{\partial x} \{V^{(e)}\} \quad (2-20a)$$

$$\frac{\partial v^{(e)}}{\partial y} = \frac{\partial \{N^{(e)}\}^T}{\partial y} \{V^{(e)}\} \quad (2-20b)$$

従って、 $Ge$  の第 1 項  $Ge_1$  は次式となる。

$$Ge_1 = -\iint_{S^{(e)}} \left( \frac{\partial \{N^{(e)}\}}{\partial x} \sigma^{(e)} \frac{\partial \{N^{(e)}\}^T}{\partial x} + \frac{\partial \{N^{(e)}\}}{\partial y} \sigma^{(e)} \frac{\partial \{N^{(e)}\}^T}{\partial y} \right) \{V^{(e)}\} ds \quad (2-21)$$

ここで、

$$[B^{(e)}] = \begin{bmatrix} \frac{\partial N_i^{(e)}}{\partial x} & \frac{\partial N_j^{(e)}}{\partial x} & \frac{\partial N_k^{(e)}}{\partial x} \\ \frac{\partial N_i^{(e)}}{\partial y} & \frac{\partial N_j^{(e)}}{\partial y} & \frac{\partial N_k^{(e)}}{\partial y} \end{bmatrix} = \frac{1}{2D^{(e)}} \begin{bmatrix} b_i^{(e)} & b_j^{(e)} & b_k^{(e)} \\ c_i^{(e)} & c_j^{(e)} & c_k^{(e)} \end{bmatrix} \quad (2-22)$$

とおくと、(2-22)式は、

$$Ge_1 = -\iint_{S^{(e)}} [B^{(e)}]^T \begin{bmatrix} \sigma^{(e)} & 0 \\ 0 & \sigma^{(e)} \end{bmatrix} [B^{(e)}] \{V^{(e)}\} ds \quad (2-23)$$

Ge の第 2 項 Ge<sub>2</sub> は、要素 e の周辺  $\Gamma^{(e)}$  に関する式であり、ノイマン型境界条件で表現できる。電気抵抗方式トモグラフィにおける境界条件は、各電極に与えられる電流値のみである。従って、

$$Ge_2 = \int_{\Gamma^{(e)}} \{N^{(e)}\} (-i_0) dl \quad (2-24)$$

となる。

(2-23)、(2-24)式を(2-19)式に代入すると、

$$Ge = -\iint_{S^{(e)}} [B^{(e)}]^T \begin{bmatrix} \sigma^{(e)} & 0 \\ 0 & \sigma^{(e)} \end{bmatrix} [B^{(e)}] \{V^{(e)}\} ds - \int_{\Gamma^{(e)}} \{N^{(e)}\} i_0 dl \quad (2-25)$$

よって、(2-16)式は、

$$\sum_{e=1}^E \left( \iint_{S^{(e)}} [B^{(e)}]^T \begin{bmatrix} \sigma^{(e)} & 0 \\ 0 & \sigma^{(e)} \end{bmatrix} [B^{(e)}] \{V^{(e)}\} ds \right) = \sum_{e=1}^E \left( - \int_{\Gamma^{(e)}} \{N^{(e)}\} i_0 dl \right) \quad (2-26)$$

ここで、係数行列  $A^{(e)}$  と外力ベクトル  $C^{(e)}$  を導入する。

$$[A^{(e)}] = \iint_{S^{(e)}} [B^{(e)}]^T \begin{bmatrix} \sigma^{(e)} & 0 \\ 0 & \sigma^{(e)} \end{bmatrix} [B^{(e)}] ds \quad (2-27)$$

$$\{C^{(e)}\} = - \int_{\Gamma^{(e)}} \{N^{(e)}\} i_0 dl \quad (2-28)$$

(2-26)式を整理すると、

$$\sum_{e=1}^E [A^{(e)}] \{V^{(e)}\} = \sum_{e=1}^E \{C^{(e)}\} \quad (2-29)$$

この式が、ポアソン方程式で表される現象の有限要素法解析における離散方程式となる。前項で得られた基礎方程式(2-29)式における、各項の成分を以下に示す。

(1) (2-27)式は、ポアソン方程式の中核をなす 2 階偏微分の項から生ずるものである。

(2-22)式を利用すると、

$$\begin{aligned}
[A^{(e)}] &= \iint_{S^{(e)}} [B^{(e)}]^T \begin{bmatrix} \sigma^{(e)} & 0 \\ 0 & \sigma^{(e)} \end{bmatrix} [B^{(e)}] ds \\
&= \frac{\sigma^{(e)}}{4D^{(e)}} \begin{bmatrix} b_i^{(e)} b_i^{(e)} & b_i^{(e)} b_j^{(e)} & b_i^{(e)} b_k^{(e)} \\ b_j^{(e)} b_i^{(e)} & b_j^{(e)} b_j^{(e)} & b_j^{(e)} b_k^{(e)} \\ b_k^{(e)} b_i^{(e)} & b_k^{(e)} b_j^{(e)} & b_k^{(e)} b_k^{(e)} \end{bmatrix} + \frac{\sigma^{(e)}}{4D^{(e)}} \begin{bmatrix} c_i^{(e)} c_i^{(e)} & c_i^{(e)} c_j^{(e)} & c_i^{(e)} c_k^{(e)} \\ c_j^{(e)} c_i^{(e)} & c_j^{(e)} c_j^{(e)} & c_j^{(e)} c_k^{(e)} \\ c_k^{(e)} c_i^{(e)} & c_k^{(e)} c_j^{(e)} & c_k^{(e)} c_k^{(e)} \end{bmatrix} \quad (2-30)
\end{aligned}$$

(2) (2-28)式は、ノイマン境界条件から生じる項である。三角要素 e の 3 辺のうち、辺 ij が電極であるとする、辺 ij の長さから流れる電流密度  $i_0$  により次式が得られる。

$$\{C^{(e)}\} = -\int_{\Gamma^{(e)}} \{N^{(e)}\} i_0 dl = -\frac{i_0 l_{ij}^{(e)}}{2} \begin{Bmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{Bmatrix} \quad (2-31)$$

すなわち、辺 ij からの全流出量は、辺 ij に流される電流  $i_0$  が 1/2 ずつ両端の節点 i と j に加えられることになる。

### 2.3.3 前方問題<sup>1)</sup>

前項で述べたように、有限要素法を用いてポアソン方程式を解くことは、すなわち以下の線型方程式を解くことになる。

$$[A]\{V_{(i)}\} = \{C_{(i)}\} \quad (i=1 \sim p) \quad (2-32)$$

ここで、n を節点数としたとき、[A]は  $n \times n$  の帯行列、 $\{V_{(i)}\}$ は未知の n 節点電圧ベクトル、 $\{C_{(i)}\}$ は電流値である。

(2-32)式において、境界条件として $\{C_{(i)}\}$ を与え、各要素ごとの電気抵抗値を決めてやると、三角分解法を用いて節点電圧 $\{V_{(i)}\}$ が算出される。これをすべての電流を流す電極対について、すなわち $\{C_{(i)}\}$ を  $i=1 \sim p$  まで条件を変えて解析を行う。p は、電流を流す電極対の組み合わせの数である。算出したすべての節点電圧 $\{V_{(i)} \quad i=1 \sim p\}$ から、2.1 で述べた電圧計測に対応した境界電圧を抽出する。

$$V = T[V^T_{(1)} \quad V^T_{(2)} \quad \dots \quad V^T_{(p)}] \quad (2-33)$$

ここで、 $T(M, n \times p)$ は境界電圧を抽出するための行成分に 1 組の  $\pm 1$  をもつ行列である。

## 2.3.4 Back-Projection 法<sup>9,10)</sup>

### 2.3.4.1 感度行列

(2-33)式より算出した境界電圧から、次式により感度行列の成分を算出する。

$$S^{(e,m)} = \frac{1}{\beta^{(e)}} \frac{V^{(e,m)} - V_{sol}^{(m)}}{V_{obj}^{(m)} - V_{sol}^{(m)}} \quad (2-34)$$

ここで、 $V_{sol}^{(m)}$ は初期状態(計測対象物が何も存在しないとき)の境界電圧、 $V_{obj}^{(m)}$ はすべての要素が計測対象物で満たされているときの境界電圧、 $\beta^{(e)}$ は要素 e における規格化した面積(要素の面積/全要素の面積)である。

### 2.3.4.2 電圧の規格化

計測された境界電圧値  $v_{mes}^{(m)}$  は、次式により規格化される。

$$\overline{v_{mes}^{(m)}} = \frac{v_{mes}^{(m)} - V_{sol}^{(m)}}{V_{obj}^{(m)} - V_{sol}^{(m)}} \quad (2-35)$$

### 2.3.4.3 電気抵抗値分布の算出

(2-34)、(2-35)式を用いて、次式により各要素ごとのグレースケールが算出される。

$$P^{(e)} = \frac{\sum_{m=1}^N S^{(e,m)} \overline{v_{mes}^{(m)}}}{\sum_{m=1}^N S^{(e,m)}} \times 255 \quad (2-36)$$

ここで、P は初期状態の電気抵抗値を 0、計測対象物の電気抵抗値を 255 として、0~255 の値をとる。

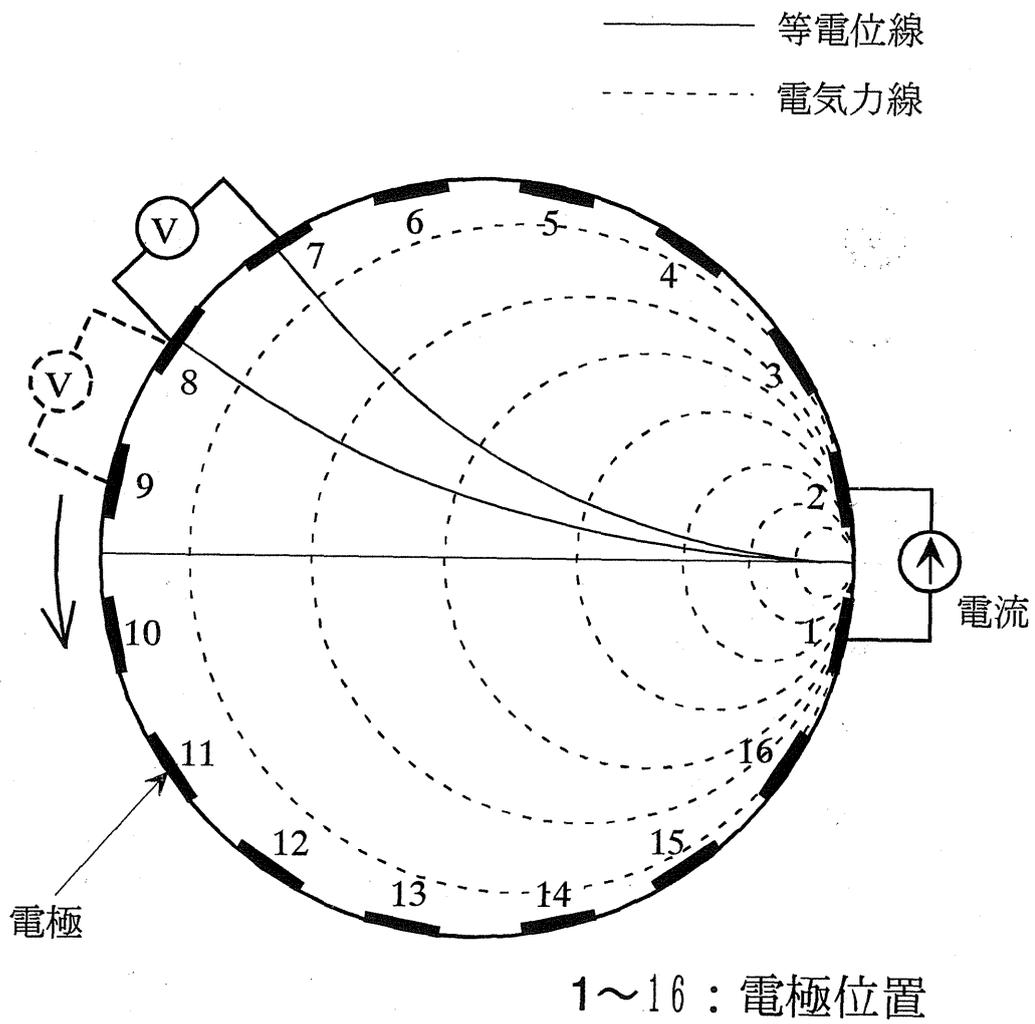


図2.1 攪拌槽における計測断面概略

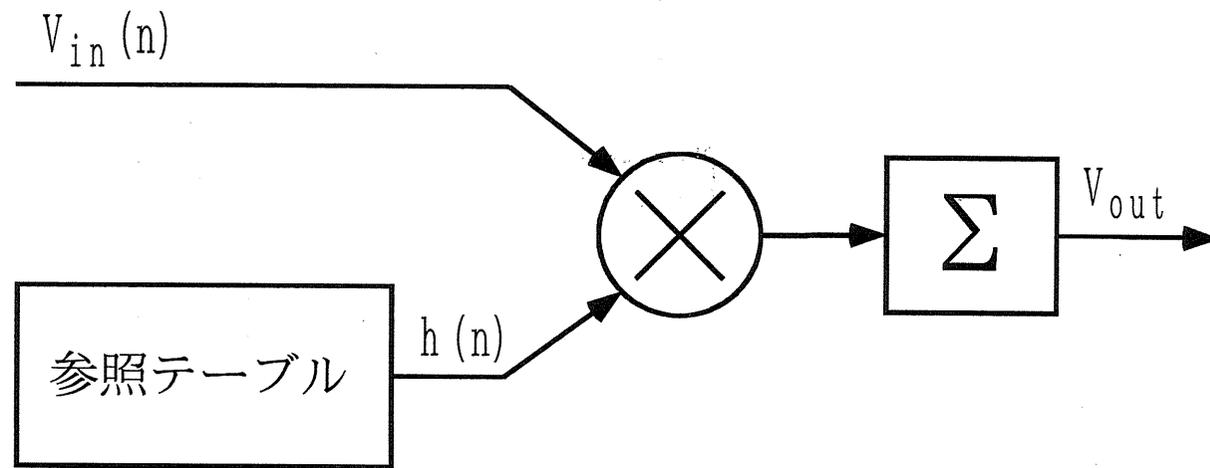


図2.2 マッチド・フィルタ・デ・モジュレータ  
のブロック図

## 3章 計測システム

### 3.1 はじめに

電気抵抗方式を用いた計測システムにおいて、電圧を計測する電極対によって、計測される電圧値のレンジに 100 倍近い差が生じる。しかし、槽断面での電気抵抗値分布の変化に伴う計測電圧の変化は、ごく微小なものである。そのため、計測回路の設計の際に、幅広いレンジへの対応と、微小な電圧差を計測できるだけの分解能が必要となる。また、槽内の流動を阻害しないという利点を生かし、かつ、槽内全域の分散状態の計測を迅速に行うことを可能とするため、電極の設置位置や設置方法、計測時間の高速化の検討を行う必要がある。

上述の事項を考慮した電気抵抗方式トモグラフィー計測システムの概要を以下に示す。

### 3.2 計測回路

図 3.1 に、電気抵抗方式トモグラフィー計測システムの計測回路概略を示す。本計測回路において、ファンクションジェネレータで発生した正弦波は、電圧制御電流源により電流に変換され、一定電流が電極間に供給される。また、計測した電圧はボルテージバッファを通して可変増幅器に送られ、適度に増幅された後 AD コンバータに送られる。本計測回路では、マルチプレクサの制御、および可変増幅器の利得設定をパソコンから行うことができる。また、12 bit の AD コンバータを使用しており、可変増幅器と組み合わせることにより、最高で  $12.5\mu\text{V}$  の分解能が得られる。

本計測回路の基本性能を表 3.1 に示した。また、各計測回路部、およびその周辺機器の詳細を以下に述べる。

#### 3.2.1 ファンクションジェネレータ

本計測回路に供給する信号源として、エヌエフ回路株式会社製 Wave Factory 1946 を用いた。この信号源は、位相シフト可能な 2 チャンネル出力、供給電圧最大 20Vp-p、出力電圧分解能 0.1mv(1V レンジ)を有しており、本計測システムでの使用に対し十分な機能を有しているものとする。

#### 3.2.2 電圧制御電流源

本計測回路に使用した電圧制御電流源の回路部を図 3.2 に示した。本回路部は、

op-amp を利用したポジティブ・フィードバック回路<sup>12)</sup>を採用している。使用した op-amp は、テキサス・インスツルメンツ株式会社製 TL071 である。この部品の性能は、最大電源電圧 $\pm 18V$ 、開ループゲイン  $2 \times 10^5$ 、スルーレート  $13 \pm V/\mu s$ (typ) である。本回路部により、電流を流す電極間のインピーダンスが  $1k\Omega$  までは、一定量  $10mA$  の電流の供給が可能である。

### 3.2.3 アナログ・マルチプレクサ

本計測回路に使用したアナログ・マルチプレクサは、アナログデバイス株式会社製 ADG406 である。この部品の性能は、チャンネル数 16、切り替え速度  $120ns$ (typ)、入力抵抗  $50\Omega$ (typ) であり、パソコンによる TTL 制御が可能である。

### 3.2.4 ボルテージ・フォロワ、および可変増幅器

本計測回路に使用したボルテージ・フォロワ、および可変増幅器の回路部を図 3.3 に示した。本回路部のボルテージ・フォロワには、op-amp を利用した回路を採用している。使用した op-amp は、テキサス・インスツルメンツ株式会社製 TL072 である。これは、電圧制御電流源において使用した同社の TL071 と性能は同等であるが、1 チップに TL071 が 2 個組み込まれている。

また、可変増幅器には、エヌエフ回路株式会社製 CA-406L2 を、また、その制御用に CA-903N を用いた。CA-406L2 は、1,2,5,10,50,100 倍の利得設定が可能である。精度は $\pm 0.1\%$ (typ) であり、同相信号除去比  $90db$  以上となっている。また、CA-903N と組み合わせることにより、パソコンによる TTL 制御が可能である。

### 3.2.5 AD コンバータ

本計測回路に使用した AD コンバータは、マイクロサイエンス株式会社製 ADM-652AT である。分解能は 12bit であり、入力レンジを $\pm 2.5V$  とすることで、 $1.25mV$  までの分解能が得られる。また、サンプリング速度は最大  $256kHz$  である。

## 3.3 計測用攪拌槽

### 3.3.1 4 断面計測用攪拌槽

図 3.4 に、本研究で用いた 4 断面計測用の攪拌槽概略を示した。計測用の攪拌槽は、槽径  $0.19m$  のアクリル製円筒平底槽である。電極にはステンレスを用い、各計測断面ごとに 16 個設置した(形状は表 3.2 参照)。電極に接続されたケーブルは、厚さ  $5mm$  の槽壁にあけられた直径  $2mm$  の穴から外部に出され、計測回路に接続され

る。また、計測断面は4段としており、各断面ごとに電気抵抗値分布を計測することが可能である。

### 3.3.2 計測断面可動型攪拌槽

図 3.5 に、本研究で試作した計測断面可動型攪拌槽概略を示した。計測用の攪拌槽は、槽径 0.2m のアクリル製円筒平底槽である。電極にはステンレスを用い、アクリル製のリングの内壁に 16 個設置した(形状は表 2 参照)。計測断面であるアクリル製リングを攪拌槽内壁に固定することにより、任意の高さにおける計測を行うことが可能である。

### 3.3.3 懸濁重合用攪拌槽

図 3.6 に、本研究で試作した計測断面可動型重合用攪拌槽概略を示した。計測用の攪拌槽は、槽径 0.1m のガラス製円筒丸底槽である。電極にはステンレス、および銅板に金メッキ処理を施したものの2タイプを用いた(形状は表 2 参照)。また、計測断面であるリングには重合場での温度や、有機溶媒などの使用に耐えうる素材であるテフロンを使用し、この内壁に計測用の電極を設置した。この装置においても計測用リングを攪拌槽内壁に固定することにより、任意の高さにおける計測を行うことが可能である。

## 3.4 ソフトウェアの開発

2 章で述べた画像構成のアルゴリズムにもとづいて、画像構成用のソフトウェアを開発した。図 3.7 に、画像構成の際に用いた有限要素メッシュを示した。用いた要素数には 2 種類あり、104 と 344 である。また、本ソフトウェアのフローチャートを図 3.8 に示した。

本ソフトウェアを用いて、オンライン、およびオフラインでの計測が可能であり、いずれの計測においても、1 断面の計測時間は 6ms である。

オンラインでの計測において、パソコンに送られた計測電圧値により、槽断面での電気抵抗値分布が算出され、直ちにモニターに表示される。本計測システムで使用したパソコンの CPU は、Pentium333MHz であり、約 14 フレーム/s の画像表示が可能である。

オフラインでの計測において、パソコンに送られた計測電圧値により、槽断面での電気抵抗値分布が算出され、メモリー上に保存された後、再び電圧計測を行う。これより、1 断面 6ms の計測を連続して行うことが可能である。また、保存された電

気抵抗値分布は、計測終了後にモニターに表示することができる。図 3.9 に、本計測システムの写真概略を示した。

### 3.5 分解能の検討

本計測回路において、電圧計測の際、可変増幅器のゲインを制御することにより、最高  $12.5\mu\text{V}$  までの計測分解能が得られる。

また、本研究にて使用した攪拌翼の翼径は、主に  $0.1\text{m}$  であり、翼回転数は  $3.33\sim 10\text{ s}^{-1}$  なので、攪拌翼先端速度は  $1.05\sim 3.14\text{ m/s}$  程度となる。攪拌槽内の最高速度が攪拌翼先端速度であるとする、1 断面を計測している間 ( $6\text{ms}$ ) の移動距離は、最大約  $0.018\text{m}$  である。よって、要素数を 344 として攪拌した際の空間分解能は、約  $0.02\text{m}$  である。

表 3.1 測定回路の基本性能

信号源	DC~60 kHz (正弦波)
供給電流の振幅	0~10 mA (一定)
測定電圧の分解能	最高 12.5 $\mu$ V
サンプリング周波数	< 256 kHz
一断面の測定時間	6 ms

表 3.2 電極の基本形状

測定断面	槽底からの位置 $h$ [m]	形状 (高さ [mm] × 幅 [mm])
1	0.18	10×20
2	0.10	20×20
3	0.06	10×20
4	0.02	5×20
可動型(0.2m)	可変	10×20
可動型(0.1m)	可変	10×10

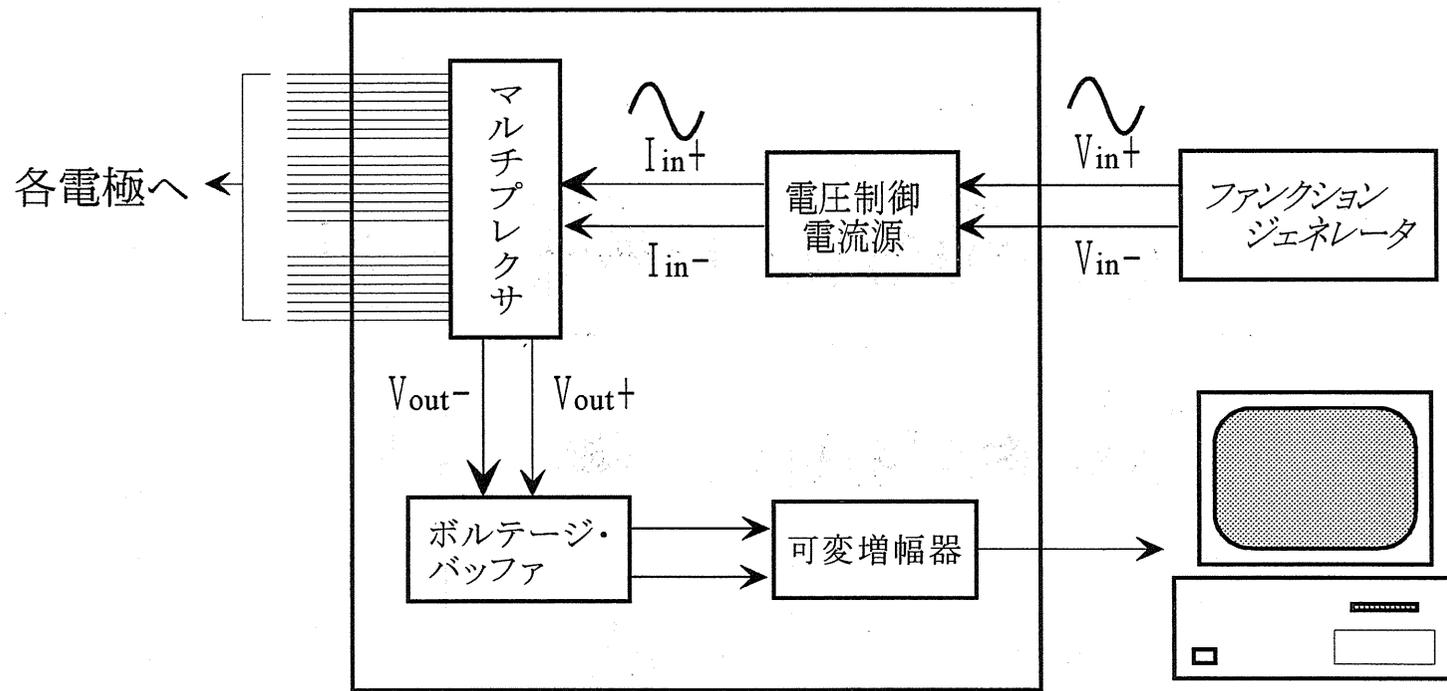


図3.1 本研究で用いたトモグラフィー計測システム用計測回路概略

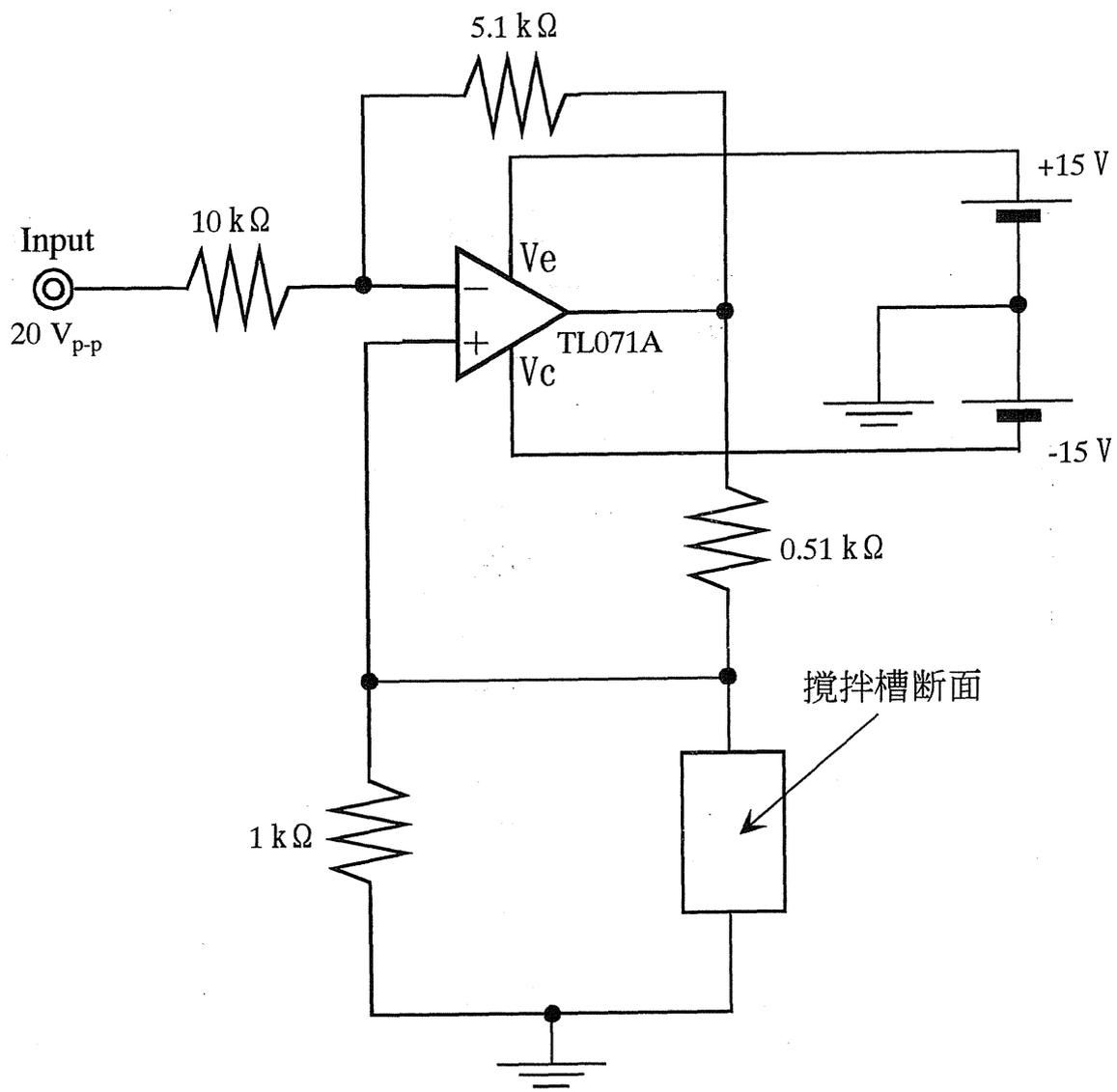


図3.2 電圧制御電流源回路部

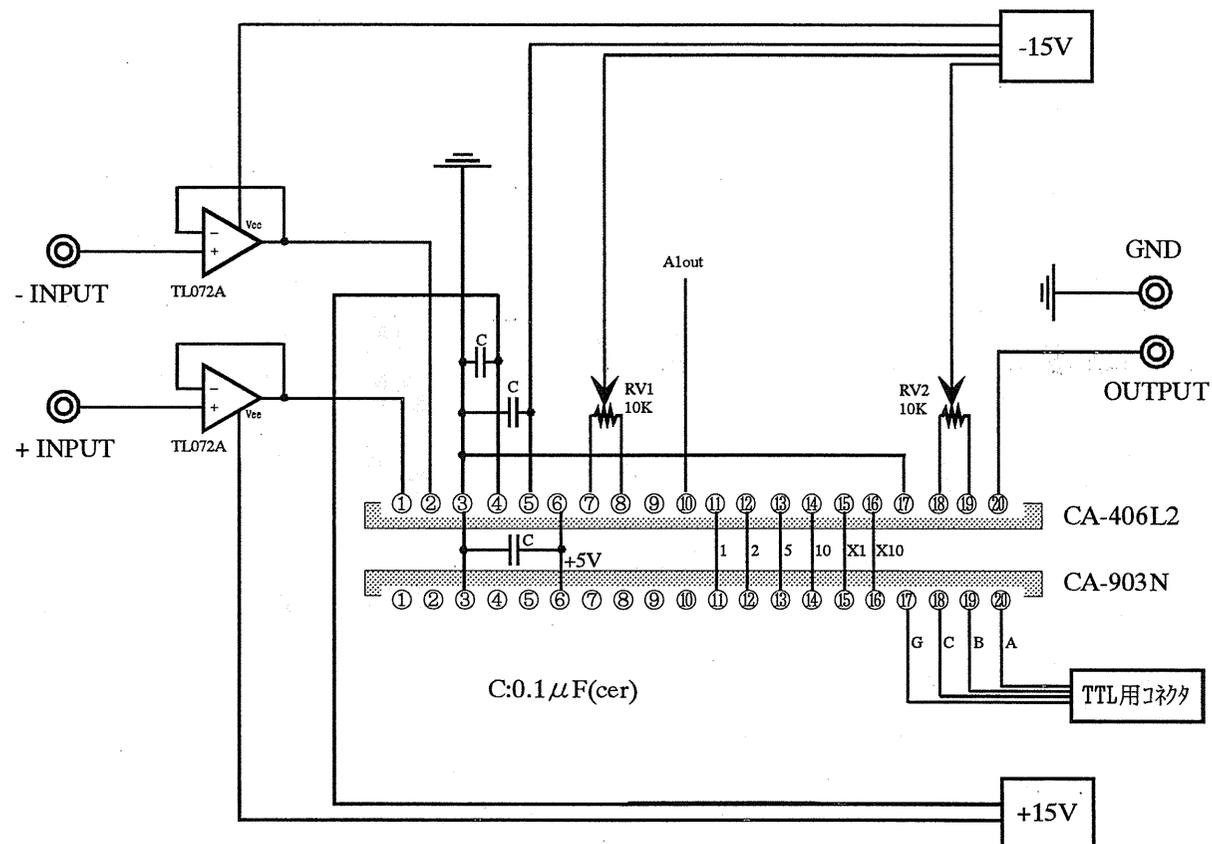


図3.3 ボルテージ・フォロワおよび可変増幅器回路部

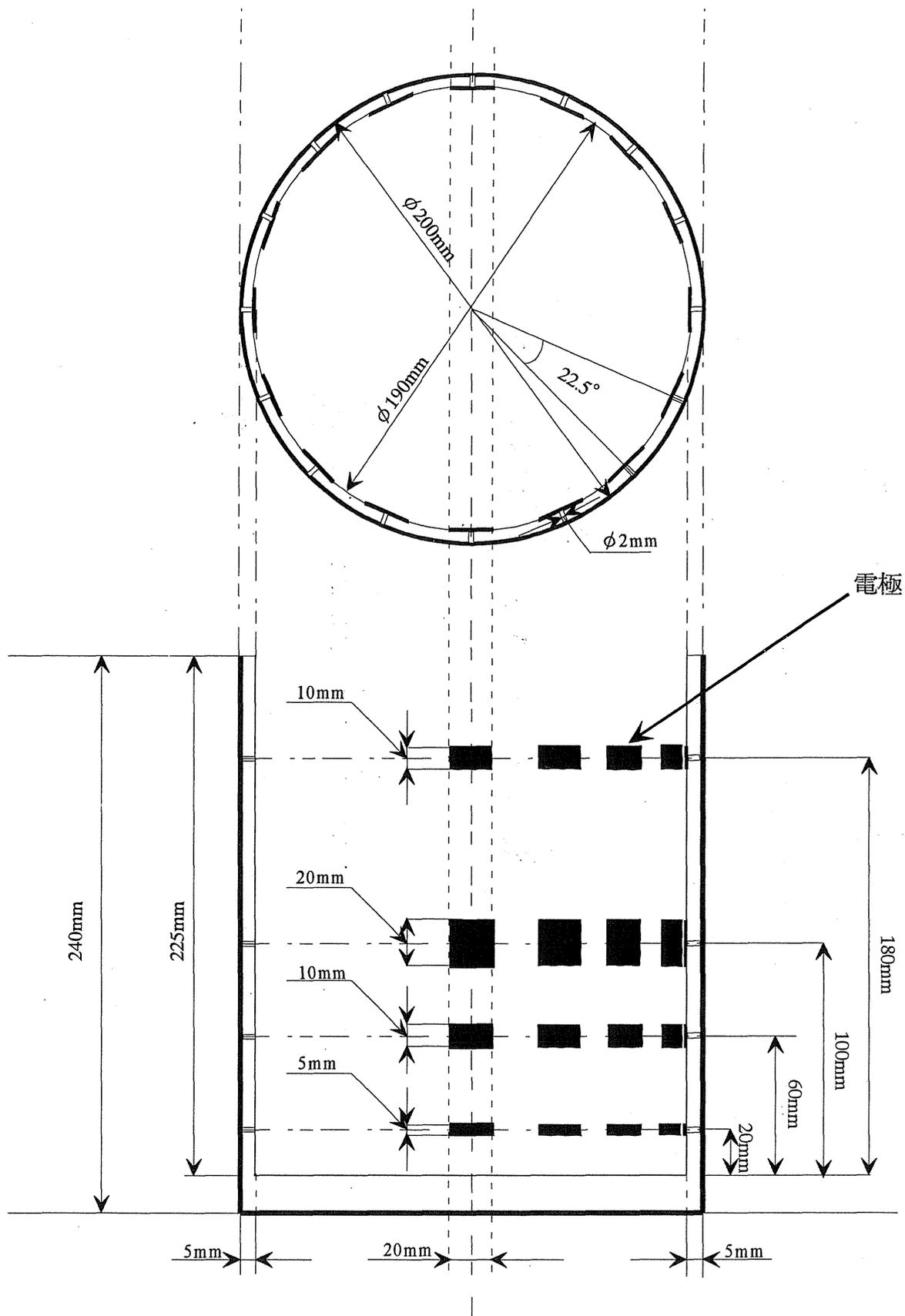


図3.4 4断面計測用攪拌槽概略

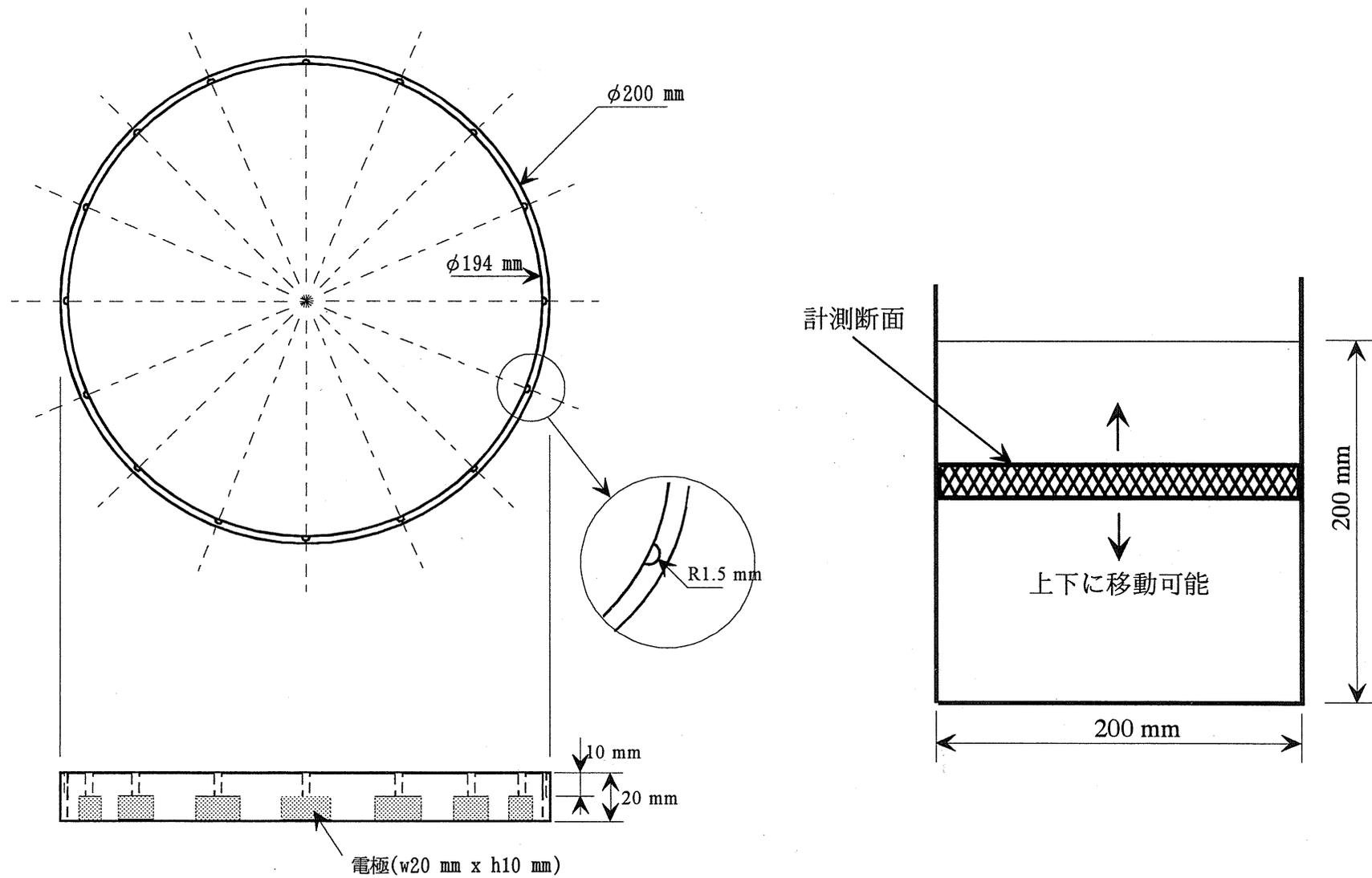


図3.5 計測断面可動型攪拌槽 (0.2 m) 概略

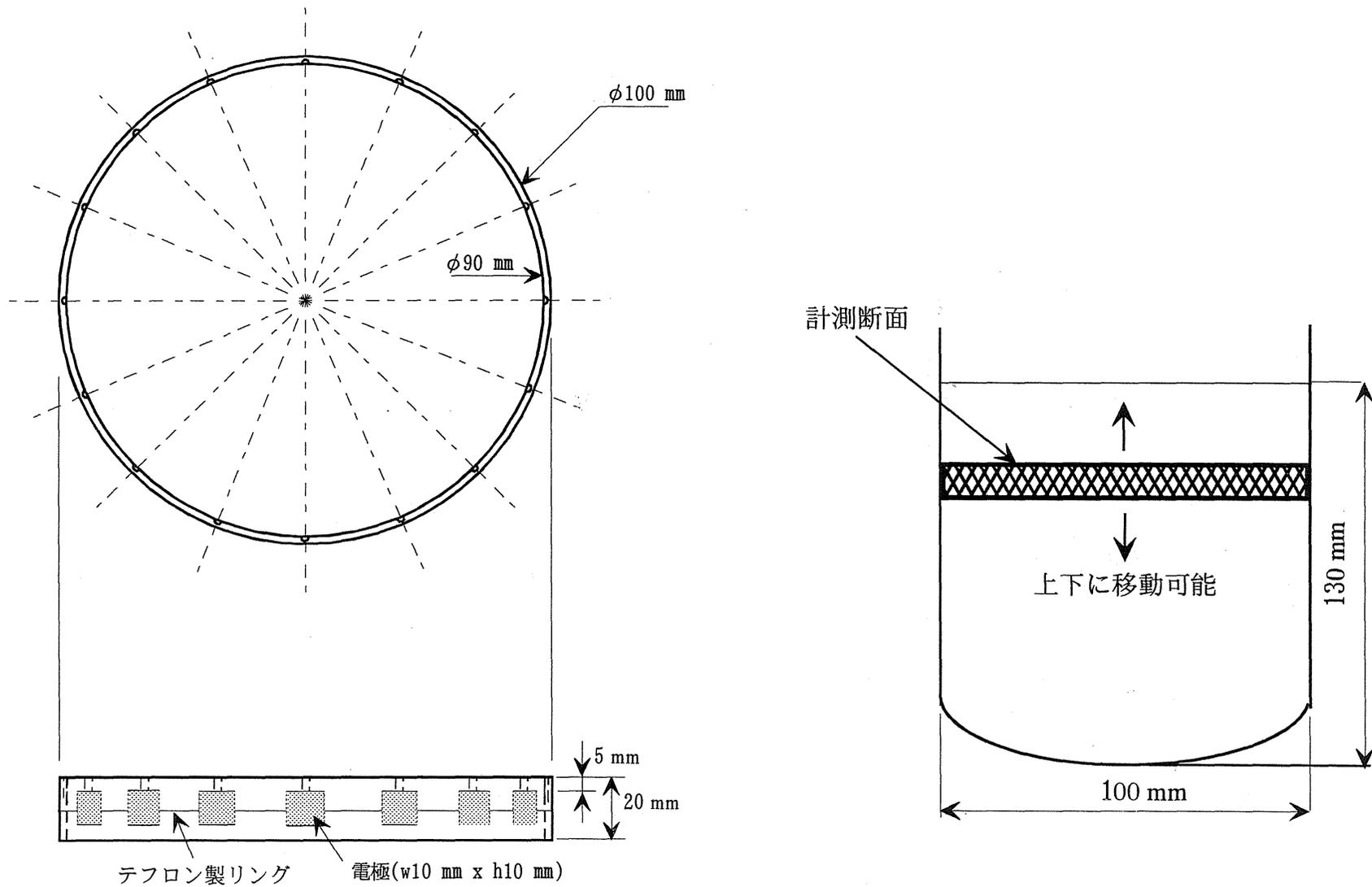
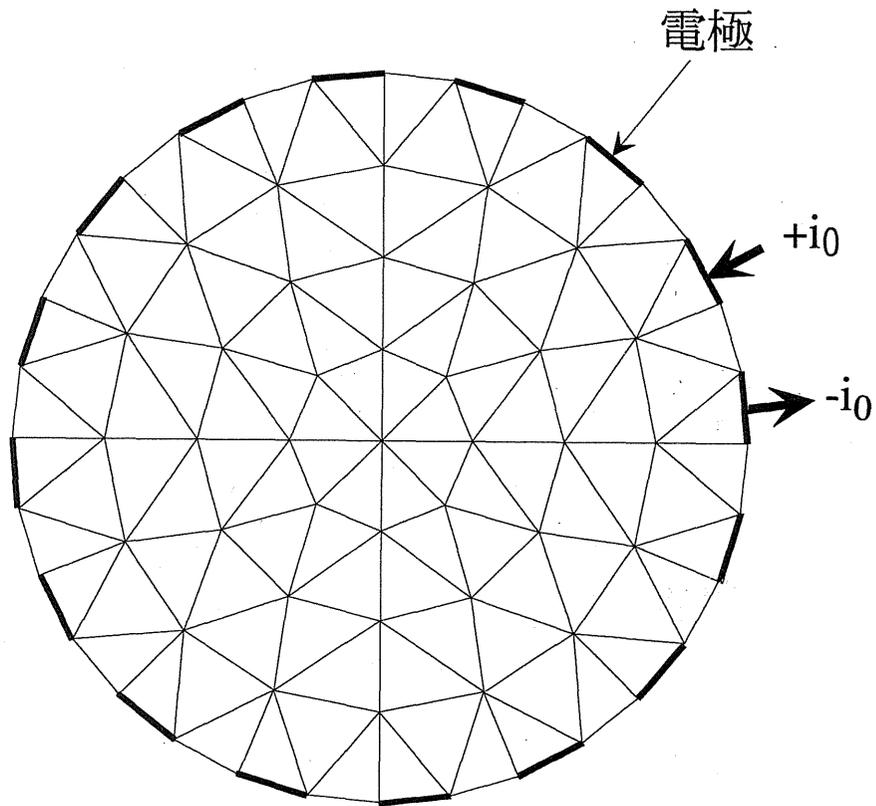
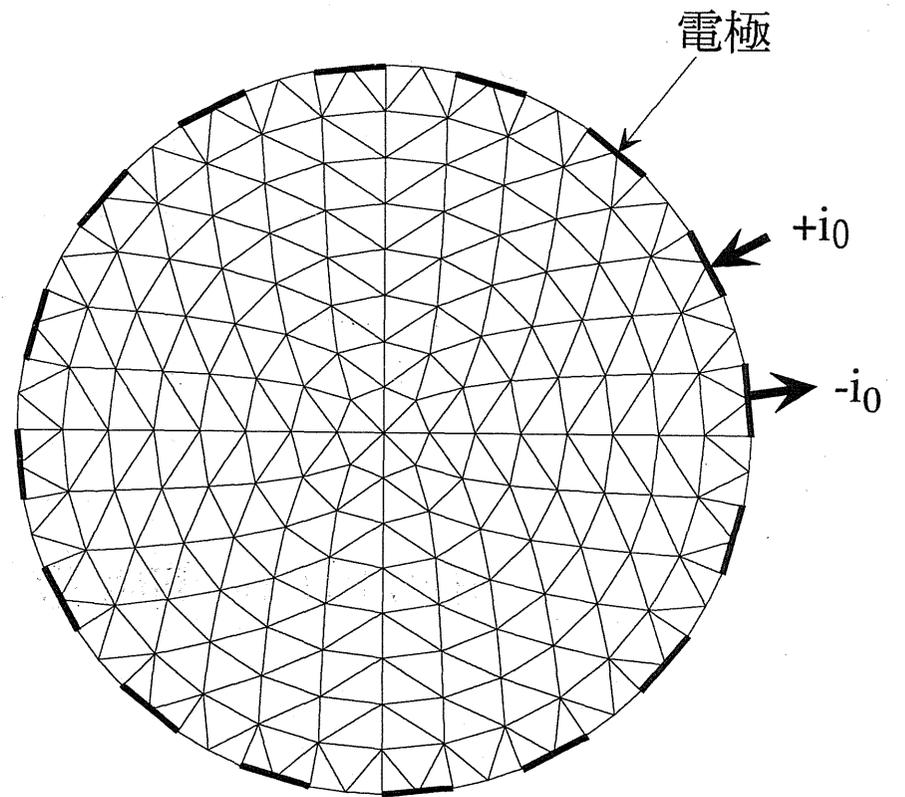


図3.6 計測断面可動型攪拌槽 (0.1m) 概略



a) 要素数104



b) 要素数344

図3.7 画像構成の際に用いた有限要素メッシュ

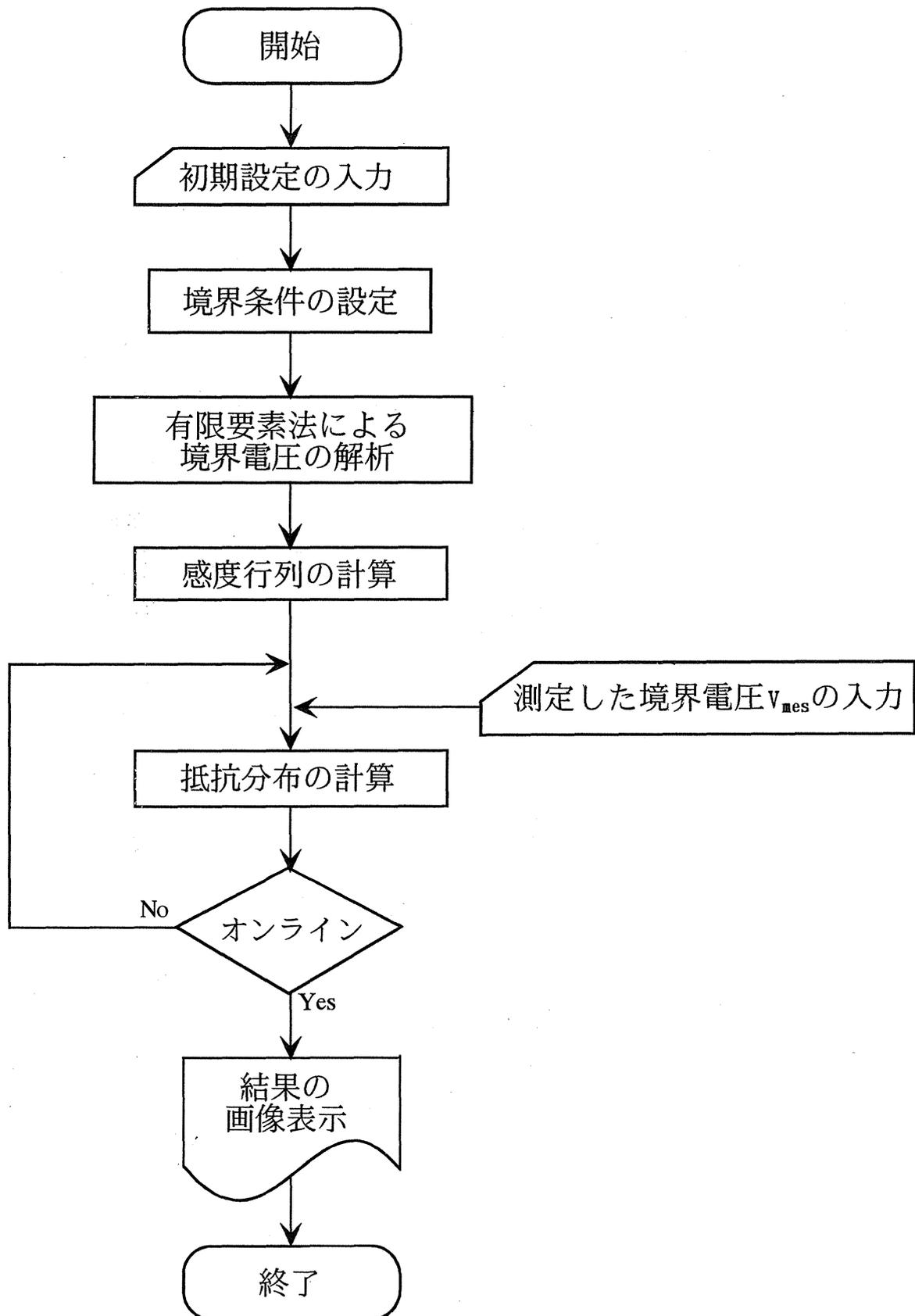


図3.8 画像構成フローチャート



図3.9 当研究室にて試作した電気抵抗方式  
トモグラフィ計測システムの写真概略  
(ステンレス丸棒を挿入・静置させた測定)

## 4章 計測システムの検討(予備実験)

### 4.1 はじめに

本研究で試作した電気抵抗方式トモグラフィ計測システムの妥当性について検討するため、異相系の分散状態の計測を含めた予備実験をいくつか行った。

### 4.2 固-液系の計測

#### 4.2.1.1 静止系における計測方法

静止系における計測の一例として、 $0.01\text{mol/KCl}$  水溶液を満たした槽内にこれに対して、電気抵抗値の高いテフロン丸棒、および電気抵抗値の低いステンレス丸棒を静置した際の計測を行った。図 4.1 に計測方法概略を示した。槽中心から  $50\text{mm}$  の 1・2 電極間に直径  $30\text{mm}$  のテフロン、およびステンレス丸棒を垂直に置き、計測を行った。

#### 4.2.1.2 計測結果および考察

図 4.2 に、槽内にテフロン丸棒、およびステンレス丸棒を静置した際の計測結果の一例を示した。同図中の白円は、実際に丸棒を静置した位置である。また、初期状態を示す青色に対し、テフロン丸棒においては電気抵抗値が大きくなるほど水色、緑色を示し、ステンレス丸棒においては電気抵抗値が小さくなるほど水色、緑色を示す。同図より、得られた画像は計測対象物の位置を明瞭に計測できていることが判った。

また、参考として、付図に Holden らが計測した画像<sup>2)</sup>の一例を合わせて示した。この画像は、食塩水を満たした槽径  $1.5\text{m}$  の攪拌槽内に  $\phi 0.06\text{m}$ (左)、 $\phi 0.11\text{m}$ (右)のアルミニウム円筒、および  $\phi 0.11\text{m}$  のポリ塩化ビニル円筒(上)を静置したものである。同図において、得られた画像は、実際に計測対象物を静置した位置よりもかなり槽壁側に寄っており、本計測システムにより得た画像のほうが計測対象物の位置をより正確に表していることが判った。

#### 4.2.2.1 回転系における計測方法

回転系における計測の一例として、槽内の断面においてアルミ円盤を回転させた計測を行った。図 4.3 にこのときの計測方法概略を示した。槽内を 4.2.2.1 のときと同様に  $0.01\text{mol/KCl}$  で満たし、これに対して電気抵抗値の小さな直系  $40\text{mm}$ 、厚さ  $20\text{mm}$  のア

アルミ円盤を槽中心より 60mm の位置にて円周方向に回転させ、アルミ円盤の経時変化を連続的に計測した。なお、円盤の回転数は  $1.0\text{s}^{-1}$  とした。

#### 4.2.2.2 計測結果、および考察

図 4.4 に、槽内でアルミ円盤を回転させた場合の計測結果を示した。ここで、図中白円部分は、実際にその時刻にアルミ円盤が存在していた位置を示している。同図より、 $1.0\text{s}^{-1}$  後には回転していた円盤が元の位置に戻ってきていることが確認でき、得られたそれぞれの画像は経過時間とともにアルミ円盤が移動していく様子を明瞭にとらえていることが判った。

### 4.3 固体粒子分散状態の計測

#### 4.3.1 計測方法

懸濁重合反応後期の状態を想定して、固-液系粒子分散状態を計測した。図 4.5 に、計測方法概略を示した。攪拌槽には槽径 0.19m のアクリル製円筒平底槽を用いた。また、攪拌翼として、翼径 0.1m の 4 枚傾斜パドル翼を用い、槽底から 0.06m の位置に設置した。ここで、翼回転数は  $1.67\text{s}^{-1}$  とした。

液相には、 $0.01\text{mol/KCl}$  水溶液を用いた。また、固体粒子として、KCl 水溶液との密度差が小さく、槽内全域に十分に分散すると考えられる直径約 1mm のポリスチレン粒子 (密度  $1022\text{kg/m}^3$ ) を用い、粒子濃度を 5, 10, 15, 20, 25, 30 vol% と変化させて計測を行った。

#### 4.3.2 計測結果、および考察

図 4.6 に、ポリスチレン粒子濃度を变化させたときの電気抵抗値分布の一例を示した。同図において、粒子濃度の増加に伴い、槽断面の電気抵抗値が増加しており、粒子濃度の増加に伴う電気抵抗値分布の画像を得られることが判った。また、結果の図示は省略するが、電気抵抗値分布のムラは経時的に変化しており、これは流れの影響により生じる局所的な濃度のムラを計測しているものと考えられる。

## 4.4 気-液系の計測

### 4.4.1 計測方法

気-液系の計測例として、図 4.7 に示すような通気計測を行った。通気用のノズルは同図に示すように、槽中心から 70mm の 1-2 電極間に設置した。

液相として、0.01mol/l KCl 水溶液を用い、また気相として空気を用いた。一度の計測において、空気を 30ml 注入し、気泡が計測断面を通過する様子を計測した。

### 4.4.2 計測結果および考察

図 4.8 に、気泡が計測断面を通過した際の電気抵抗値分布の経時変化の一例を示した。同図 a) の×印で示した通気位置において、気泡の影が見え始めたときを時刻ゼロとした。

時刻ゼロより増え始めた気泡断面積は、0.066s 後に最大面積となり、その後減少していった。同図より、本計測システムは、計測断面を気泡が通過していく様子を連続的に追うことが可能であることが判った。

## 4.5 通気攪拌における気泡分散状態の計測

### 4.5.1 計測方法

通気攪拌における気泡分散状態の計測例として、図 4.9 に示したような通気攪拌を行った。通気用のノズルは、槽底の中心に設置した。攪拌翼として、翼径 0.1m の 6 枚ディスクタービン翼を用い、槽底から 0.06m の位置に設置した。

液相として、ビンガム的なレオロジーを持つ 0.25wt% カルボキシビニルポリマー水溶液(0.01mol/l KCl 添加)を用いた。

レオゴニオメータ(日本レオロジー機器株式会社製、型式 RGM-152-SD)により実測したレオロジー特性を図 4.10 に示した。また、Casson モデル<sup>13)</sup>による粘度構成式を(4-1)式に示した。

$$\text{Casson モデル }^{13)} \quad \tau^{1/2} = \tau_0^{1/2} + (k_c \dot{\gamma})^{1/2} \quad (4-1)$$

$$\tau_0 = 5.09 \text{ Pa} \quad k_c = 0.134 \text{ Pa} \cdot \text{s}$$

気相として空気を用い、通気速度を  $2.5 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$  とした。

#### 4.5.2 計測結果、および考察

図 4.11 に、翼回転数を  $3.33\text{s}^{-1}$  としたときの各計測断面における電気抵抗値分布の一例を示した。また、付図に、このときの可視化によるガス分散状態のスケッチを示した。同図より、翼周りに形成されたキャビティの端から気泡が上昇していく様子が判る。

図 4.12 に、翼回転数を  $10\text{s}^{-1}$  としたときの各計測断面における電気抵抗値分布の一例を示した。また、付図に、このときの可視化によるガス分散状態のスケッチを示した。同図において、得られた画像は付図に示した観察結果とほぼ一致していることが判った。

これらのことから、図 4.11、および 4.12 に示した画像は、実際に現象を比較的明瞭に表しているものと考えられる。

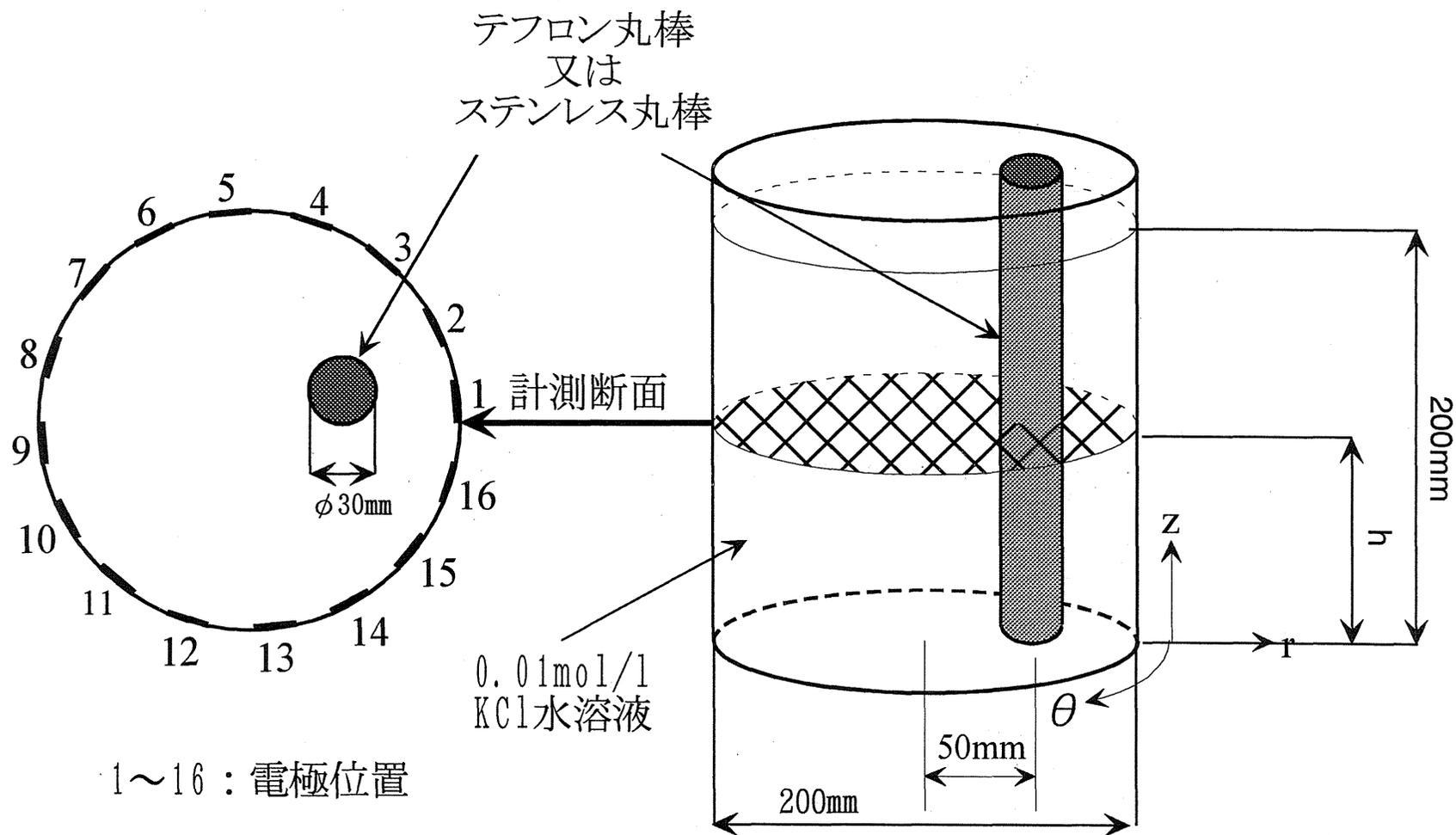
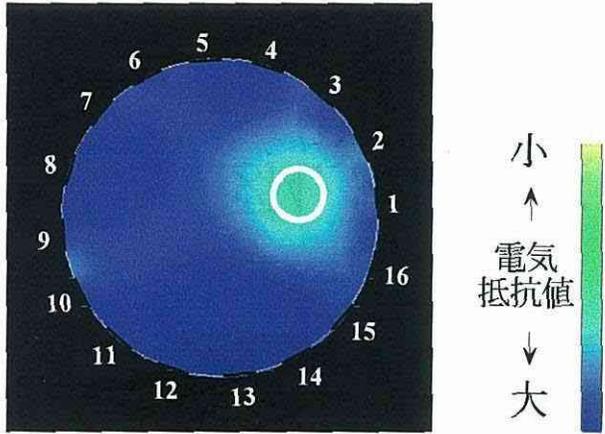
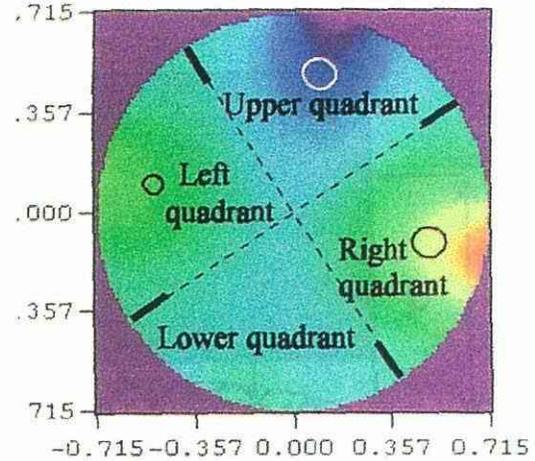


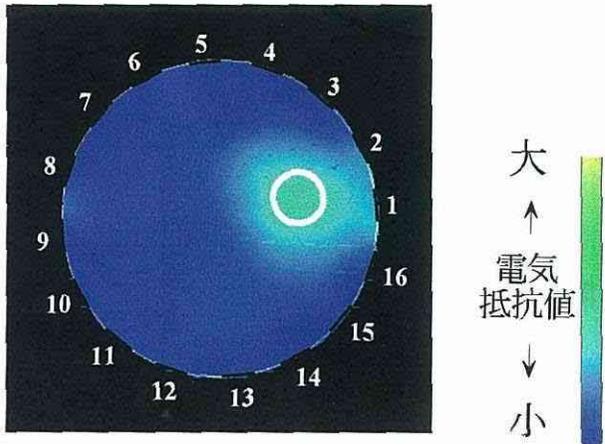
図4.1 静止系における計測方法概略 ( $h=100\text{mm}$ )



a) 計測結果の一例 I-ステンレス丸棒



付図 Holdenらによる抵抗分布の測定例<sup>2)</sup>  
 (φ0.06m(左)、φ0.11m(右)アルミニウム円筒、  
 φ0.11m(上)ポリ塩化ビニル円筒)



b) 計測結果の一例 II-テフロン丸棒

図4.2 槽内にステンレス丸棒およびテフロン丸棒を  
 静置した際の計測結果の一例

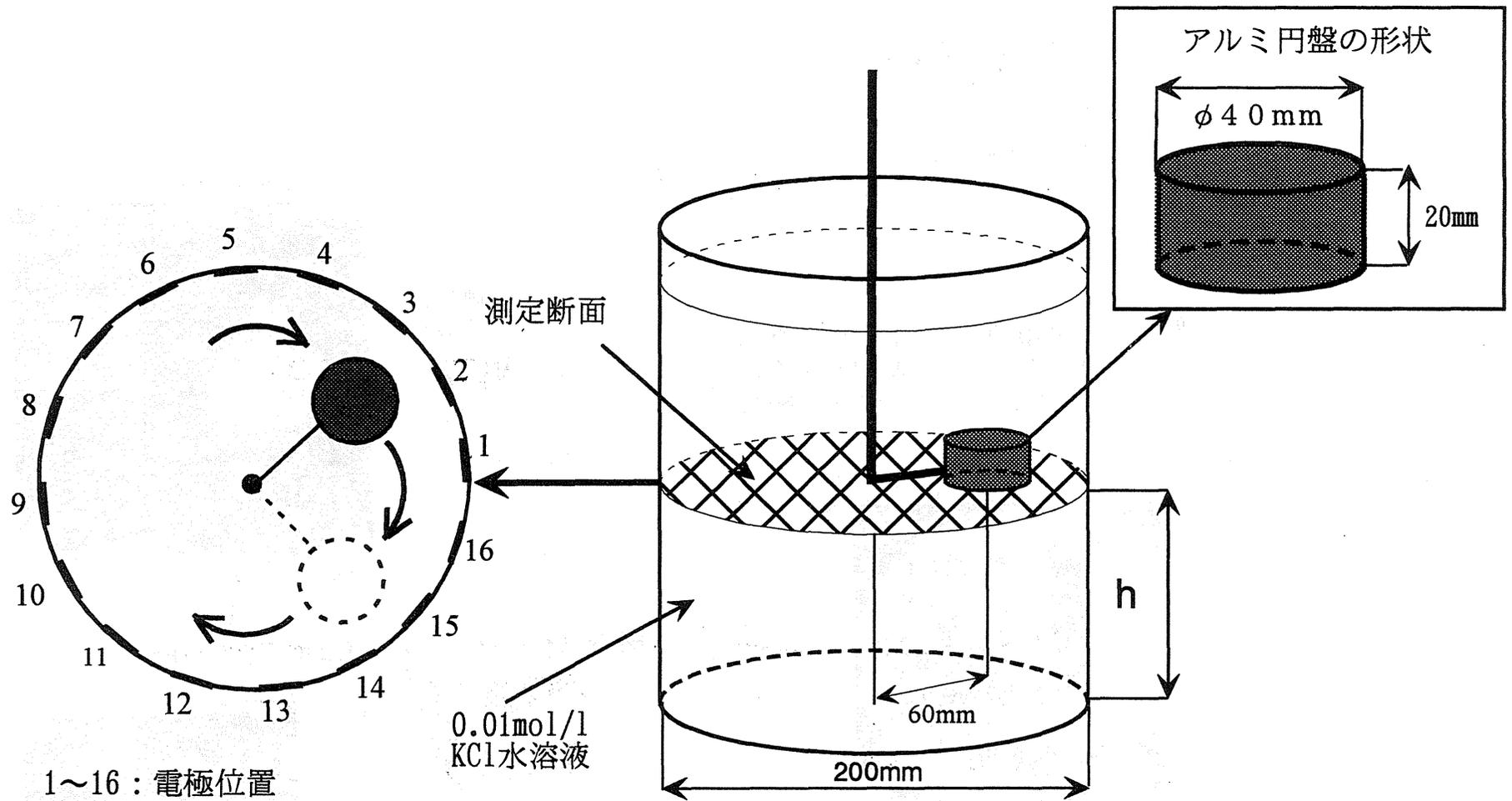


図4.3 回転系における計測方法概略  
(円盤の回転数=1.0 s<sup>-1</sup> h=100mm)

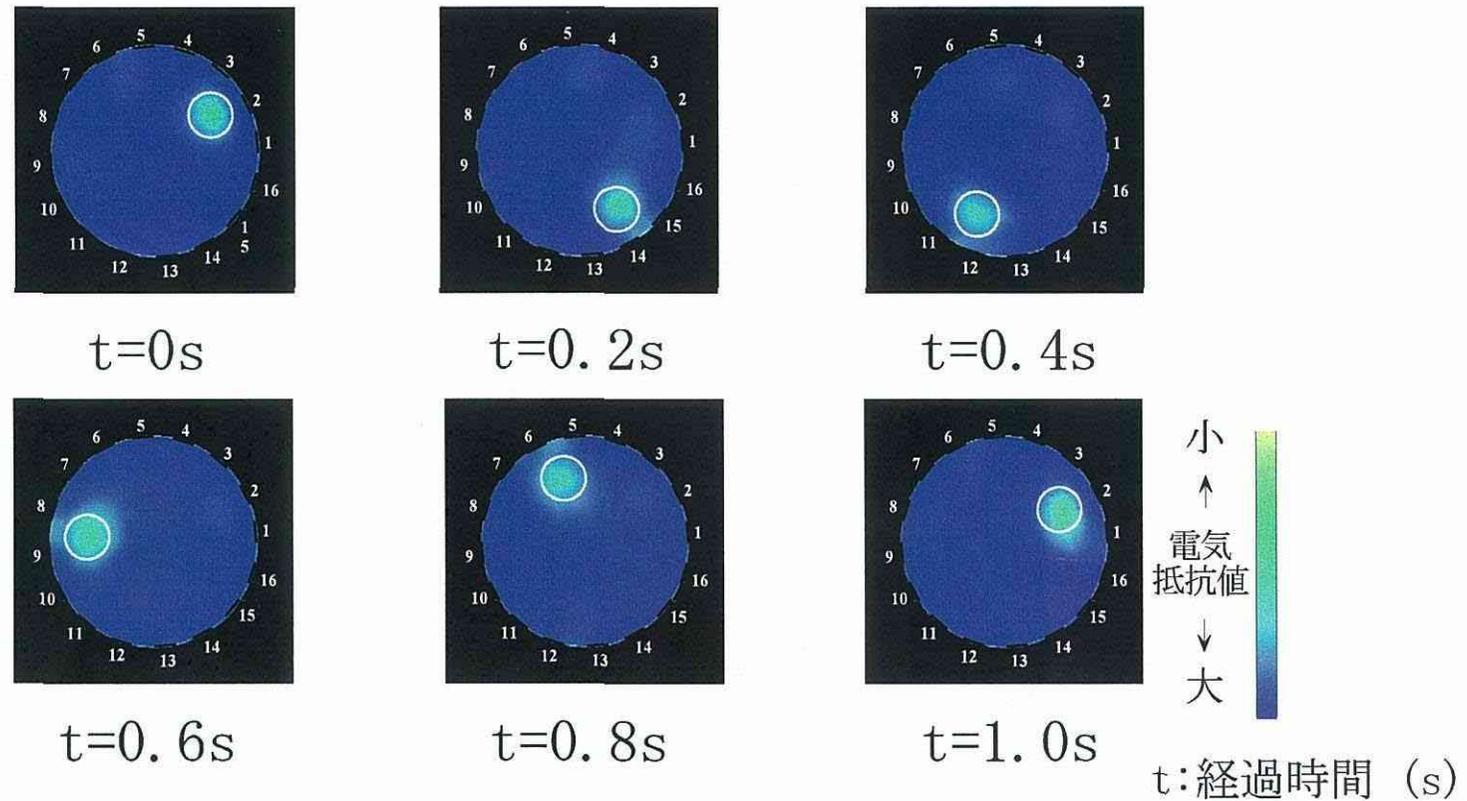


図4.4 槽内においてアルミ円盤を回転させた際の計測結果の一例  
 (円盤の回転数=1.0  $s^{-1}$ )

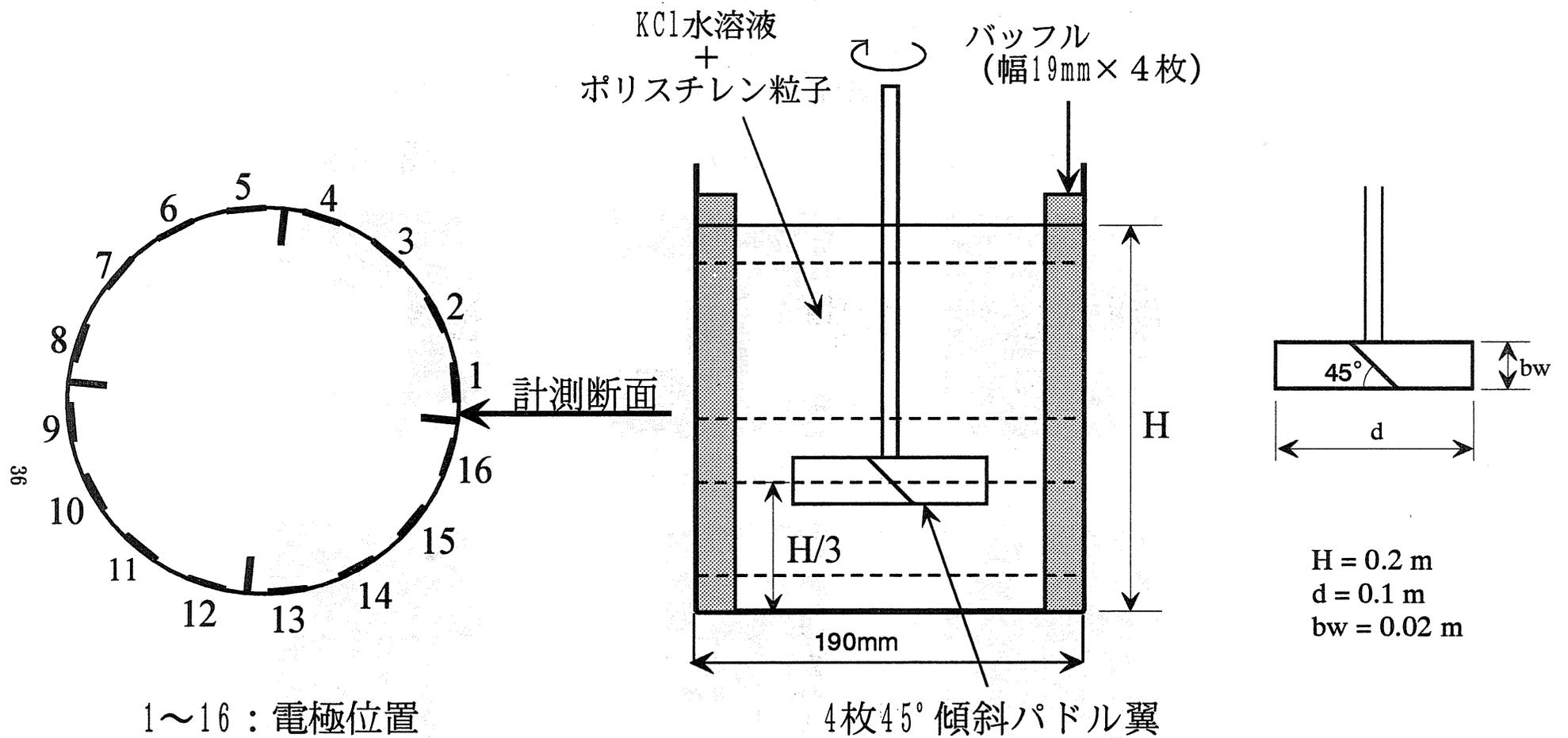
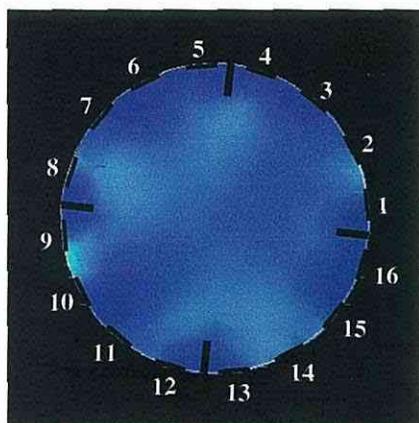
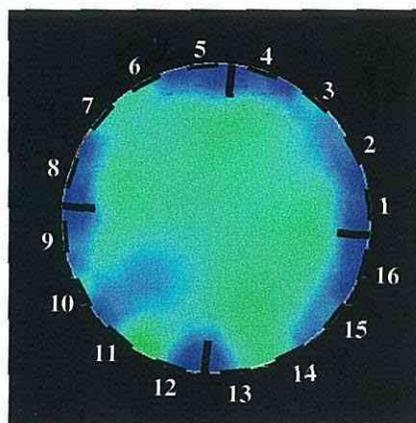


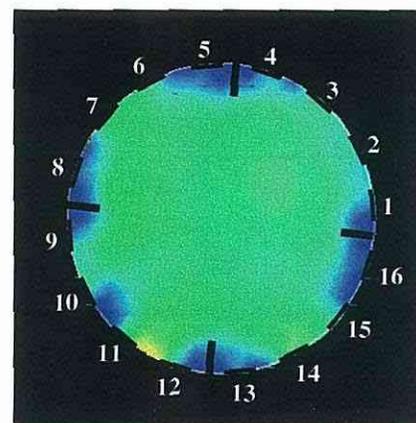
図4.5 固体粒子分散状態の計測方法概略



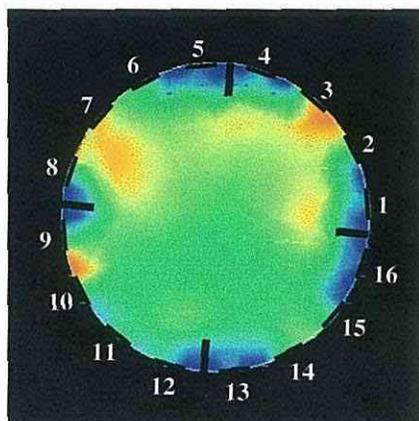
a) 5 vol.%



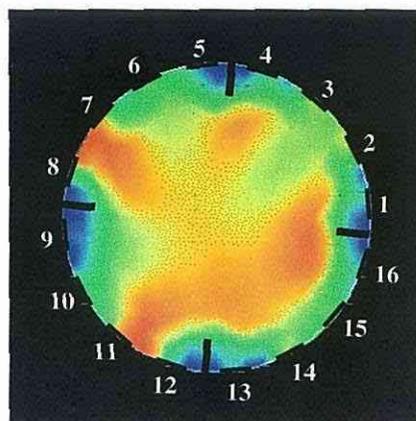
b) 10 vol.%



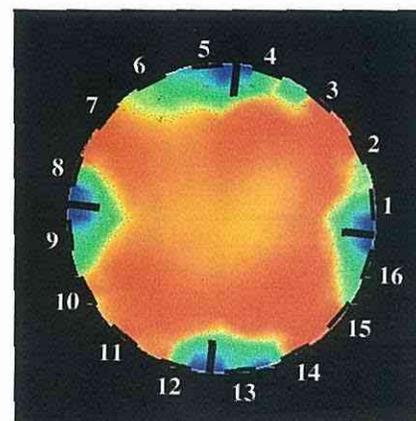
c) 15 vol.%



d) 20 vol.%



e) 25 vol.%



f) 30 vol.%

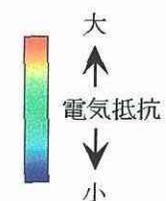


図4.6 ポリスチレン粒子濃度を変化させたときの電気抵抗値分布の一例( $h=0.1$ )

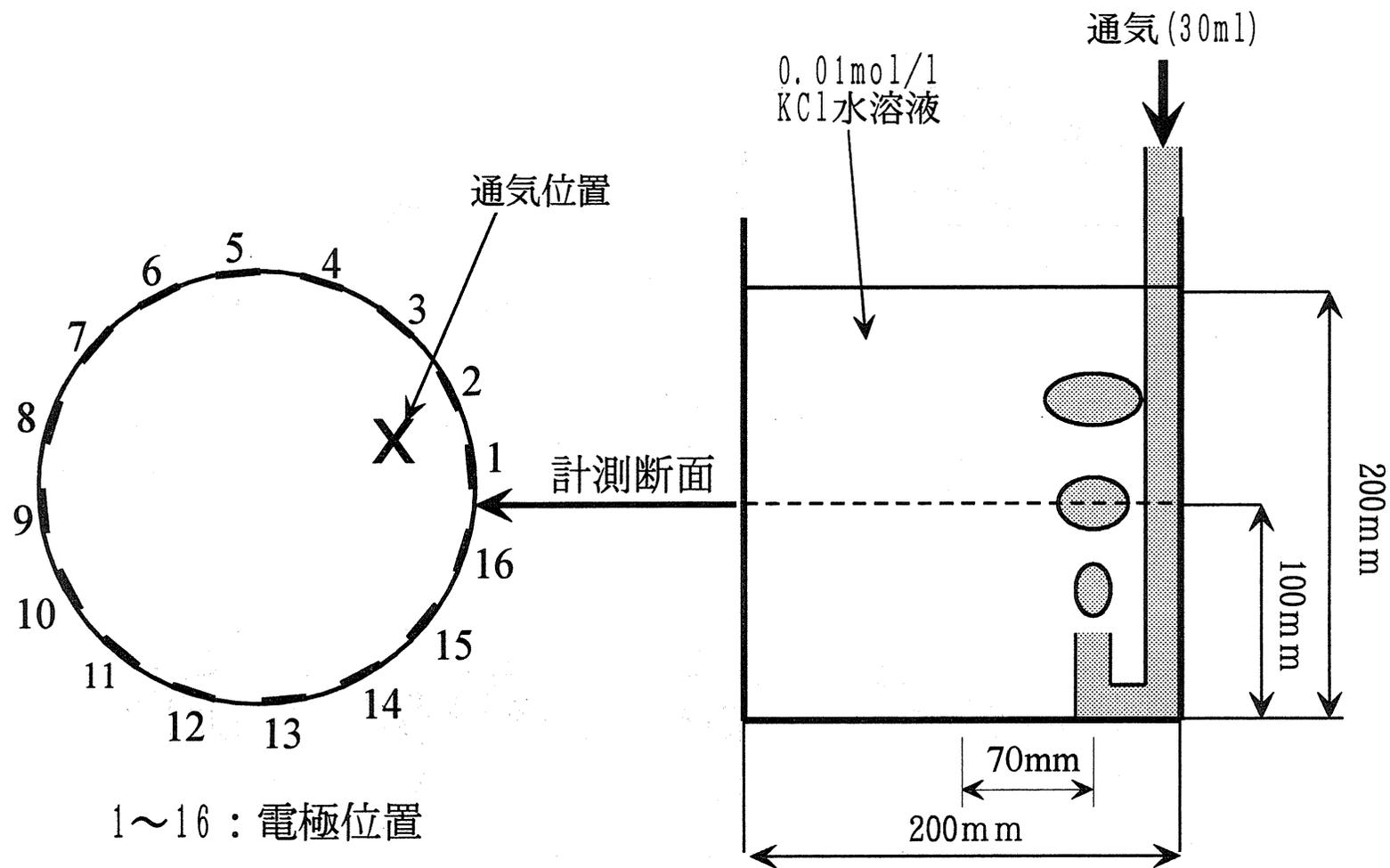
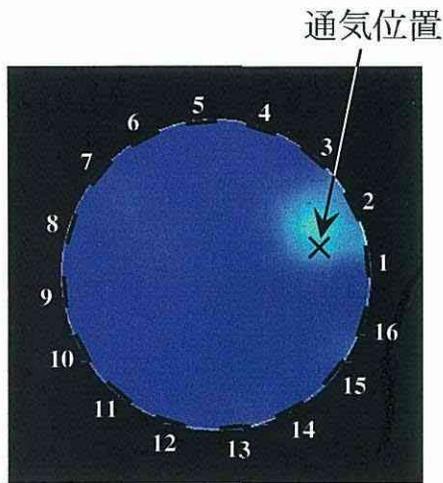
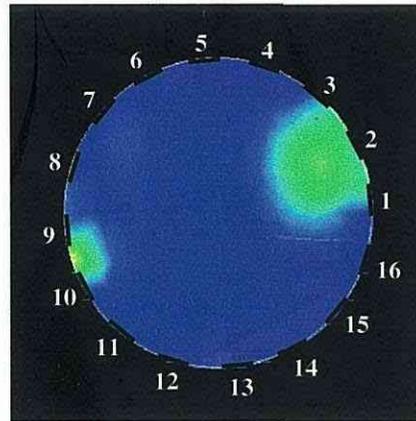


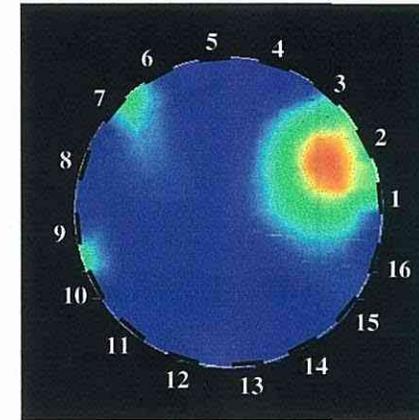
図4.7 気-液系における計測方法概略



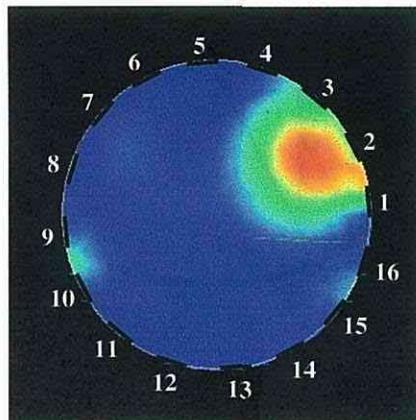
a)  $t = 0\text{s}$



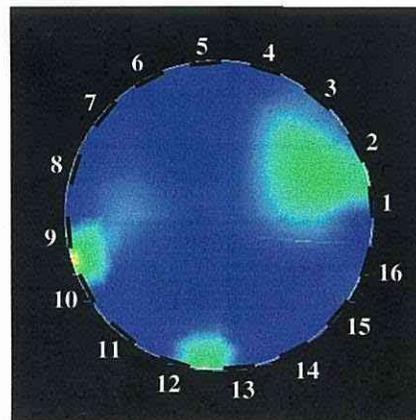
b)  $t = 0.018\text{s}$



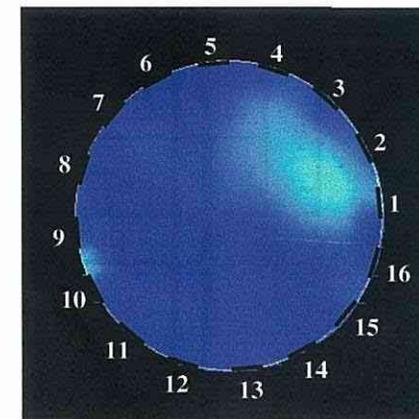
c)  $t = 0.042\text{s}$



d)  $t = 0.066\text{s}$



e)  $t = 0.126\text{s}$



f)  $t = 0.162\text{s}$



図4.8 気泡が計測断面を通過した際の電気抵抗値分布の経時変化の一例

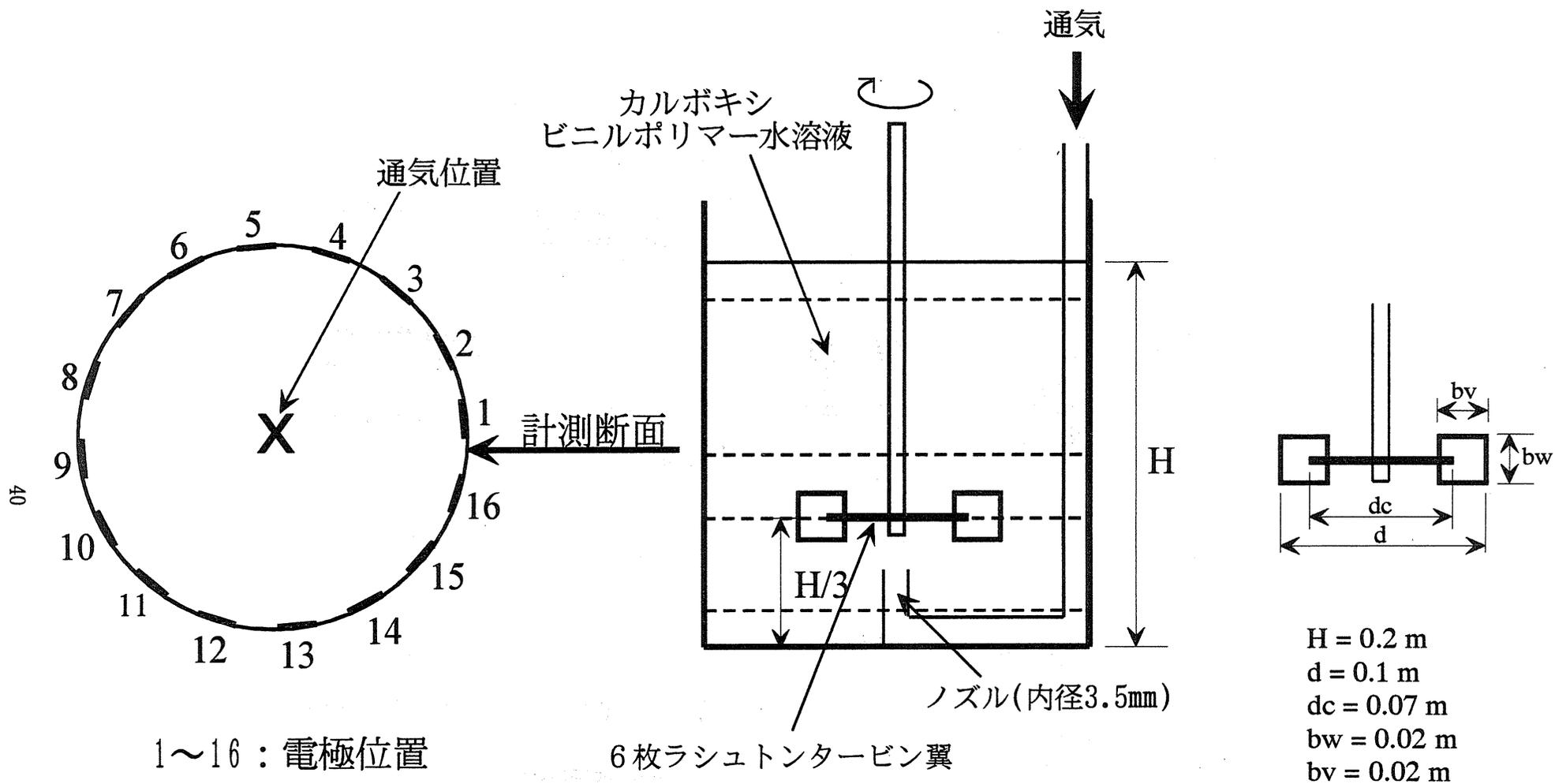


図4.9 通気攪拌における気泡分散状態の計測方法概略

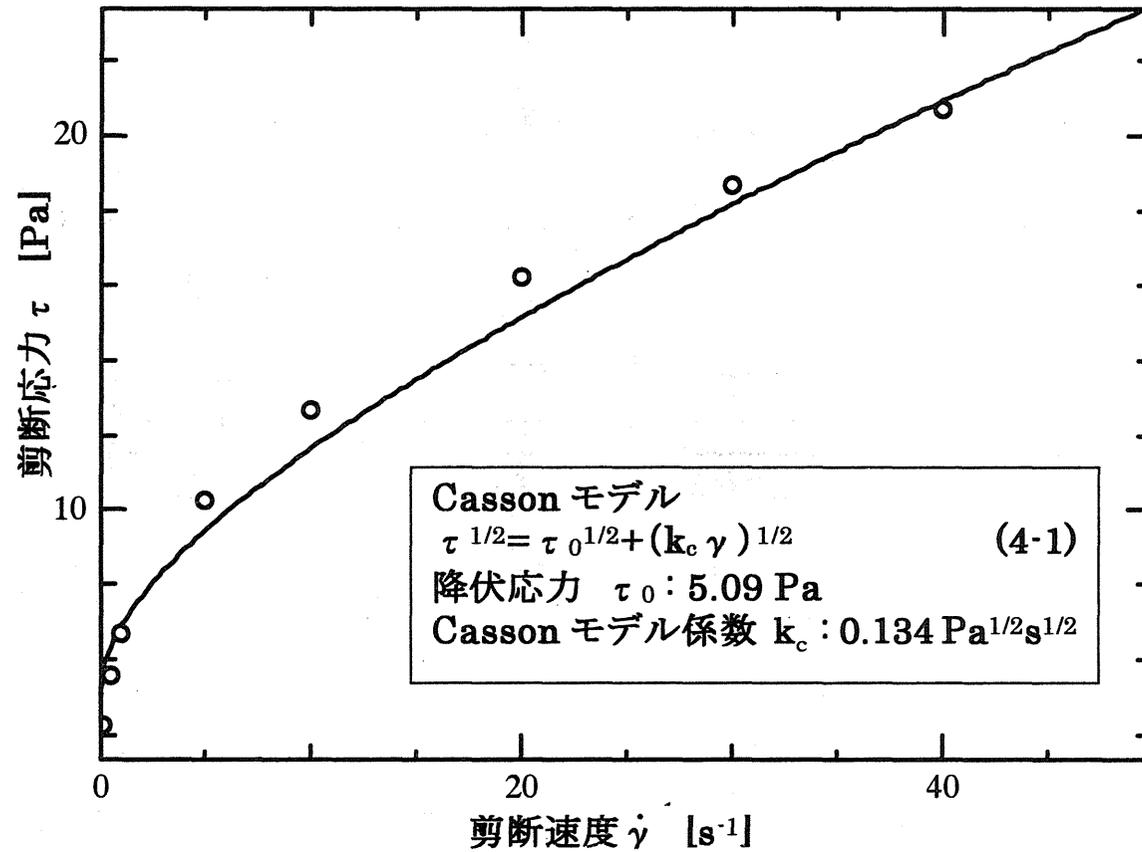
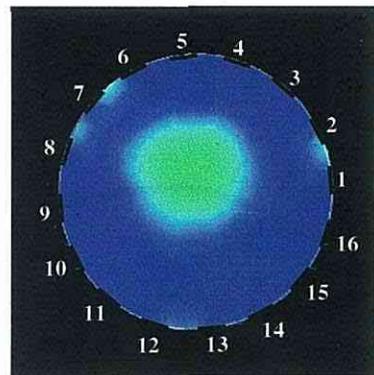
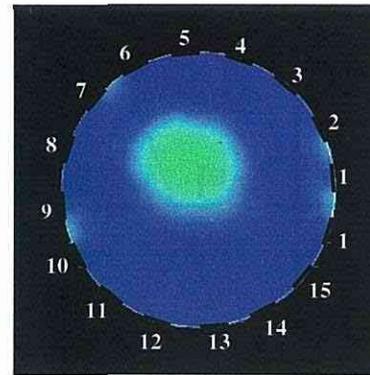
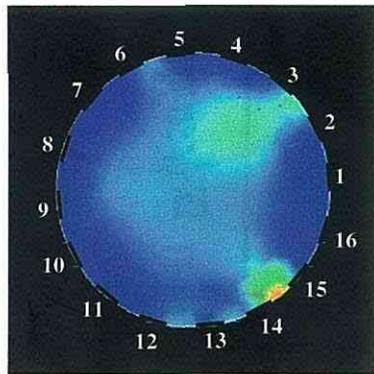
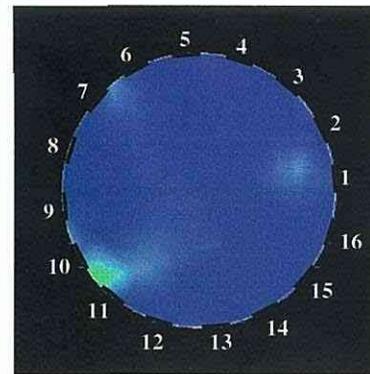
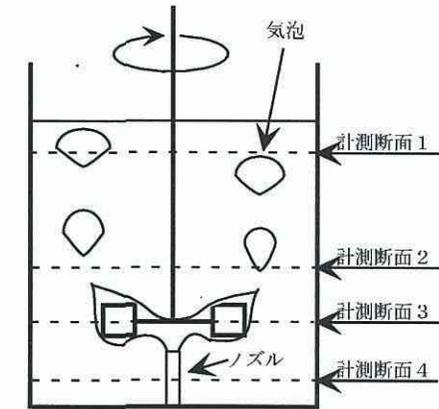
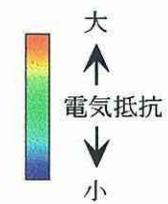
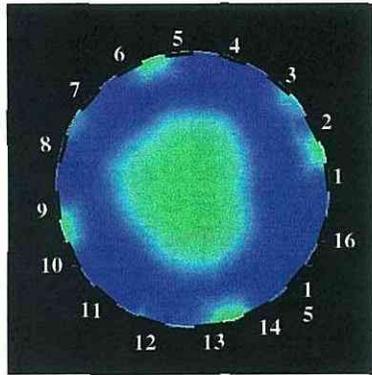
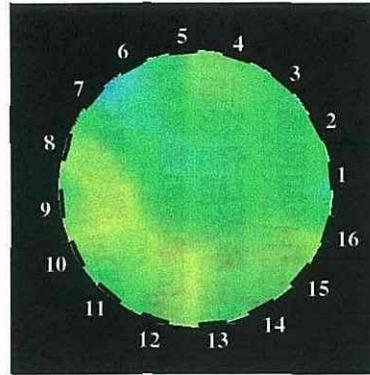


図 4.10 0.25wt.%カルボキシビニルポリマー水溶液のレオロジー特性の一例

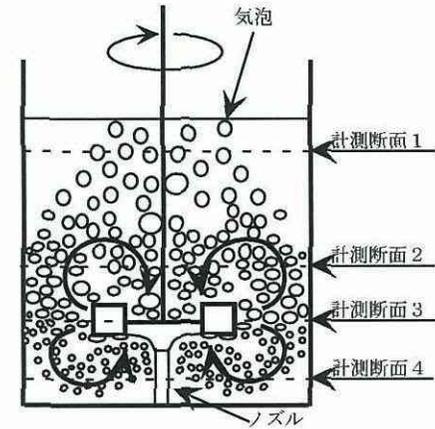
a) 計測断面 1 ( $h=0.18\text{m}$ )b) 計測断面 2 ( $h=0.1\text{m}$ )c) 計測断面 3 ( $h=0.06\text{m}$ )d) 計測断面 4 ( $h=0.02\text{m}$ )付図 ガス分散状態の  
スケッチ図4.11 各計測断面における電気抵抗値分布の一例 ( $n=3.33\text{s}^{-1}$ )



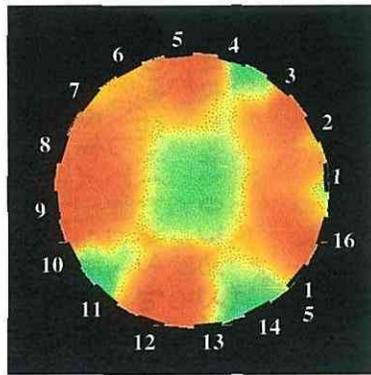
a) 計測断面 1 ( $h=0.18\text{m}$ )



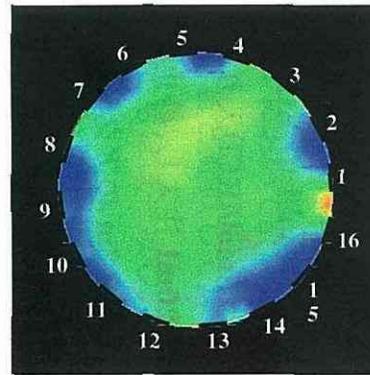
b) 計測断面 2 ( $h=0.1\text{m}$ )



付図 ガス分散状態のスケッチ



c) 計測断面 3 ( $h=0.06\text{m}$ )



d) 計測断面 4 ( $h=0.02\text{m}$ )

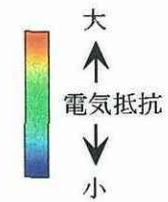


図4.12 各計測断面における電気抵抗値分布の一例 ( $n=10\text{s}^{-1}$ )

## 5章 塑性流体のカバーン形成状態のトモグラフィ計測

### 5.1 はじめに

炭酸カルシウム懸濁水などに代表される塑性流体は、降伏応力を有するため、攪拌条件によっては翼廻りのみで流動するカバーンと呼ばれる領域を形成する 경우가少なくない<sup>1)</sup>。報告者らは、これまでに電気伝導度法<sup>1)</sup>、熱的判定法<sup>2)</sup>等を用いてカバーンの計測を行ってきた。本研究では、カバーン内に電解質溶液を注入し、カバーンと、そのまわりの静止領域との電気伝導度に差異を作ることにより、攪拌槽内における種々の塑性流体のカバーン形成状態を、本研究で試作した電気抵抗方式トモグラフィ計測システムを用いて3次元的に計測した<sup>3,4)</sup>。

### 5.2 計測方法

図 5.1 に、本計測システムによるカバーン形成状態の計測方法概略を示した。計測に用いる流体にはあらかじめ  $0.01\text{mol/l}$  の  $\text{KCl}$  を添加しており、これが初期濃度となる。これに対し、高濃度電解質( $0.25\text{mol/lKCl}$ )入りのトレーサー液を、確実にカバーンであると判断される攪拌翼近傍に  $20\text{ml}$  注入し、静止領域との間に電気伝導度の差異を作り計測した。また、攪拌槽には槽径  $0.2\text{m}$  のアクリル製円筒平底槽を用い、攪拌翼には翼経  $0.1\text{m}$  の6枚垂直パドル翼を用いた。

図 5.2 には、計測に用いた塑性流体のレオロジーを示し、表 5.1 にはレオメータ(日本レオロジー機器株式会社製: RGM-152-SD)などを用い測定した各流体の物性値を示した。なお、粘度構成式には、Casson モデル<sup>5)</sup>((5-1))式を用いた。

### 5.3 計測結果および考察

#### 5.3.1 カルボキシビニルポリマー水溶液を用いた場合

##### 5.3.1.1 可視化実験

まずはじめに、対象流体として  $0.4\text{wt}\%$ カルボキシビニルポリマー(和光純薬社製ハイビスワコー<sup>®</sup>105: 以下 Carbopol と称す)水溶液( $0.01\text{mol/lKCl}$  添加)を用いた。同流体は無色透明であり、カバーン内に着色剤を注入することにより、カバーンと静止領域との境界が外部から可視化可能である。図 5.3 に、カバーン可視化写真の一例を示した。なお、着色剤には食紅(共立食品会社製)を用い、翼回転数  $N=4.0\text{ s}^{-1}$  にて攪拌を行った。同図において、点線

で囲まれた部分がカバーンである。これより、カバーンは、幅(Cw) 150mm、高さ (Ch) 110mm の形状で存在していることが判った。また、カバーンの形成状態は、上下対称であることが確認されたことから、本計測システムによる計測は、槽上半分のみとした。この可視化による計測結果を本計測システムによる結果の比較対象とした。

### 5.3.1.2 本計測システムによる計測

図 5.4 に、本計測システムにより得られたカバーン計測結果を示した。計測条件は、先に示した可視化写真(図 5.3)と同様である。初期濃度を示す青色に対し、トレーサー液を注入したカバーン内は初期濃度より電気伝導度が高いことを表す緑色を示している。ここで、カバーンと静止領域との境界を本研究では、濃度階調の数値が 200 であると規定した(同図中カラーバー参照)。図 5.5 には、KCl 濃度、電気伝導率、および本計測システムにおける濃度階調の関係<sup>6)</sup>を示す。これより、カバーンは高さ方向では槽底から 150~160mm 付近まで存在していることが判る。これは、可視化写真での結果(図 5.3)とほぼ一致している。図 5.6 には、図 5.4 における計測断面高さ(h)=100mm において計測した結果を示す。濃度階調が 200 である部分を囲んで算出した面積を円相当と近似して算出したカバーンの直径は 148mm であり、これは、可視化写真(図 5.3)ともほぼ一致し、これより、境界を濃度階調 200 としたことの妥当性が確認された。図 5.7 には、本計測システムにより得られた画像をもとにした 3 次元画像構成図を示す。

## 5.3.2 炭酸カルシウム懸濁水を用いた場合

### 5.3.2.1 6 枚垂直パドル翼を用いた場合

次に、対象流体を不透明な炭酸カルシウム懸濁水に変えて計測を行った。図 5.8 に懸濁濃度 57.2wt%、図 5.9 に 63.2wt%における計測結果を示した。なおカバーンと静止領域との境界は可視化により妥当性が確認された濃度階調の数値が 200 をもって、その判定基準とした。図 5.8、および 5.9 より、翼回転数が増加するに連れて、カバーンが半径方向、高さ方向ともに増加していることが判る。さらに、図 5.8 と 5.9 を比較して、同じ翼回転数であっても、懸濁濃度の高いほうがカバーンは小さく形成されていることが判る。さらに、各計測断面におけるカバーンの直径を用い、カバーンを円筒近似して算出したカバーン液体積を併せて示した。( )内の値は、後述の熱的判定法(計測方法を図 5.10 に示した。)により導出した相関式<sup>7,8)</sup>により算出したカバーン液体積である。

本計測システムによる結果のほうが液体積を大きく捉える傾向があるが、これは、カバー

ンの上下先端部分を、本計測システムでは厳密に捉え切れていないことが原因と考えられる。図 5.11 には、このようにして得られた画像を元に作成した各懸濁濃度ごとの 3 次元画像構成図を示す。翼回転数の増加により液体積が増加し、また、同じ翼回転数でも懸濁濃度が高いほうが液体積が小さくなる様子が判る。

### 5.3.2.2 4 枚傾斜パドル翼を用いた場合

図 5.12 には、攪拌翼に 4 枚傾斜パドル翼を用いた場合のカバーン形成状態を示す。塑性流体には、懸濁濃度 62.0wt% の炭酸カルシウム懸濁水を用いた。同図 a) は下向き吐出が起きる、攪拌翼を槽上部から見て時計回りに回転させた場合で、同図 b) は逆に反時計回りに回転させた場合のカバーン形成状態である。

同図 a) より、カバーンが攪拌翼を中心に上下非対称に形成され、攪拌翼上部にカバーンが大きく形成されることが判った。また、熱的判定法との結果と比較し、計測結果の違いをふまえた上でもほぼ一致することが判った。

同図 b) より、攪拌翼の回転方向を変えると、攪拌翼下部にカバーンが大きく形成されることが判り、カバーン形成状態に違いが見られた。

これは羽根が傾斜していることにより、攪拌翼上部と下部での流動、および剪断状態に違いが生じ、カバーン形成状態に影響しているためと考えられるが、今後各種攪拌翼での定量的な検討をしていきたい。

## 5.4 相関式との比較

本計測システムにより得られた画像を基に算出したカバーン液体積を、熱的判定法により導出した相関式<sup>7,8)</sup>による結果と比較した。導出した相関式は(5-2)式にて示される。

$$V^* = 1.22 \times 10^{-2} Np Re^{0.74} Bi_c^{-0.72} \quad (5-2)$$

$$V^* = \frac{V_c}{V_t} \quad Np = \frac{P}{\rho n^3 d^5} \quad Re_c = \frac{\rho n d^3}{\eta_c} \quad Bi_c = \frac{\tau_c}{\eta_c n}$$

図 5.13 に、比較の結果として、 $Re_c$  と  $V^*/NpBi_c^{-0.72}$  の関係を示した。実線で示されているものが相関式の結果である。また、本計測システムにより得られたカバーン液体積を用いたものが各懸濁濃度ごとに△、○のプロットにて示されている。これより、本計測

システムのほうが全体的に大きく捉える傾向があるものの、ほぼ一致する結果が得られた。

## 5.5 むすびに

当研究室で試作した電気抵抗方式トモグラフィ計測システムを用い、二、三の塑性流体の流動状態を多断面にて計測することで、カバーン形成状態を3次元的に計測した。光透過な塑性流体を用いた可視化実験による検証を行うとともに、従来、他の測定法で導出したカバーン液体積の相関式と、本計測システムにより算出したカバーン液体積を比較し、良好に一致することを検証した。これより、本計測システムを用いて、攪拌槽における塑性流体のカバーン形成状態を良好に把握できることが判った。

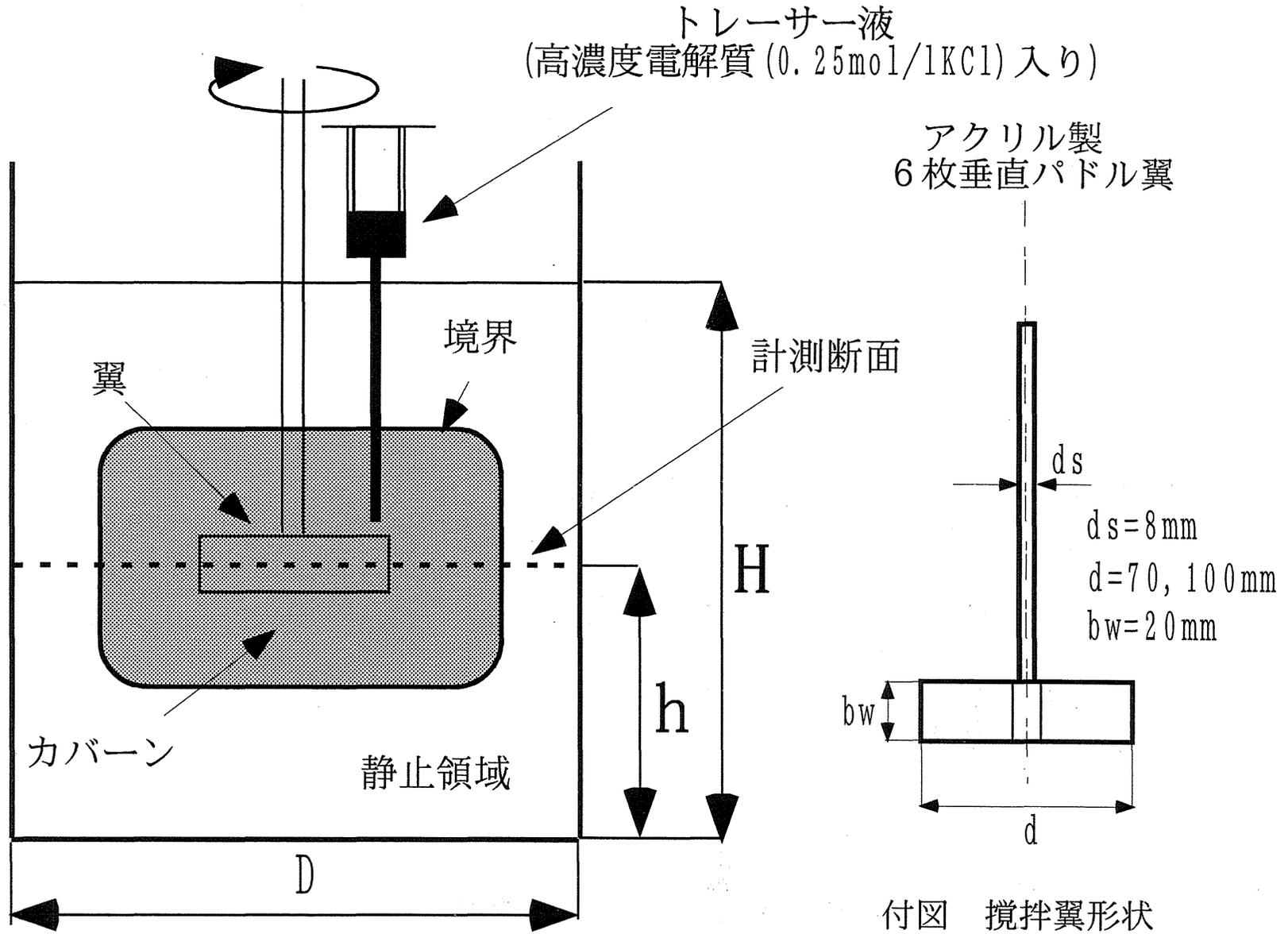
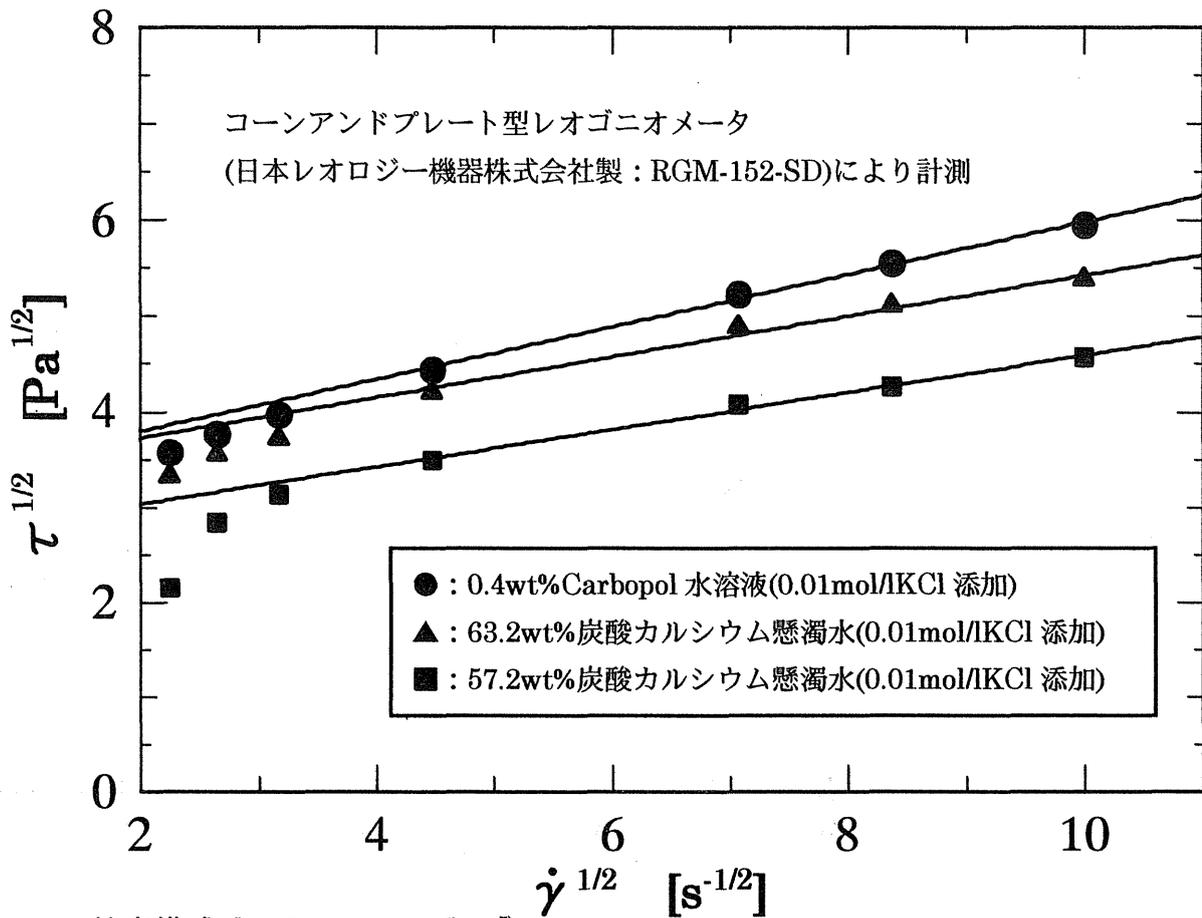


図5.1 カバーストリーサー計測方法概略



粘度構成式 Casson モデル<sup>5)</sup>

$$\tau^{1/2} = \tau_c^{1/2} + (\eta_c \dot{\gamma})^{1/2} \quad (5-1)$$

$\tau_c$  : Casson 降伏値[Pa]  
 $\eta_c$  : Casson 粘度[Pa · s]

図 5.2 対象流体のレオロジー特性の一例

表 5.1 対象流体の物性値の一例

試料 物性値	0.4wt%Carbopol 水溶液	57.2wt%炭酸 カルシウム懸濁水	63.2wt%炭酸 カルシウム懸濁水
$\tau_c$ [Pa]	10.54	6.69	10.87
$\eta_c$ [Pa · s]	0.075	0.042	0.045
$\rho$ [kg/m <sup>3</sup> ]	1000	1601	1667

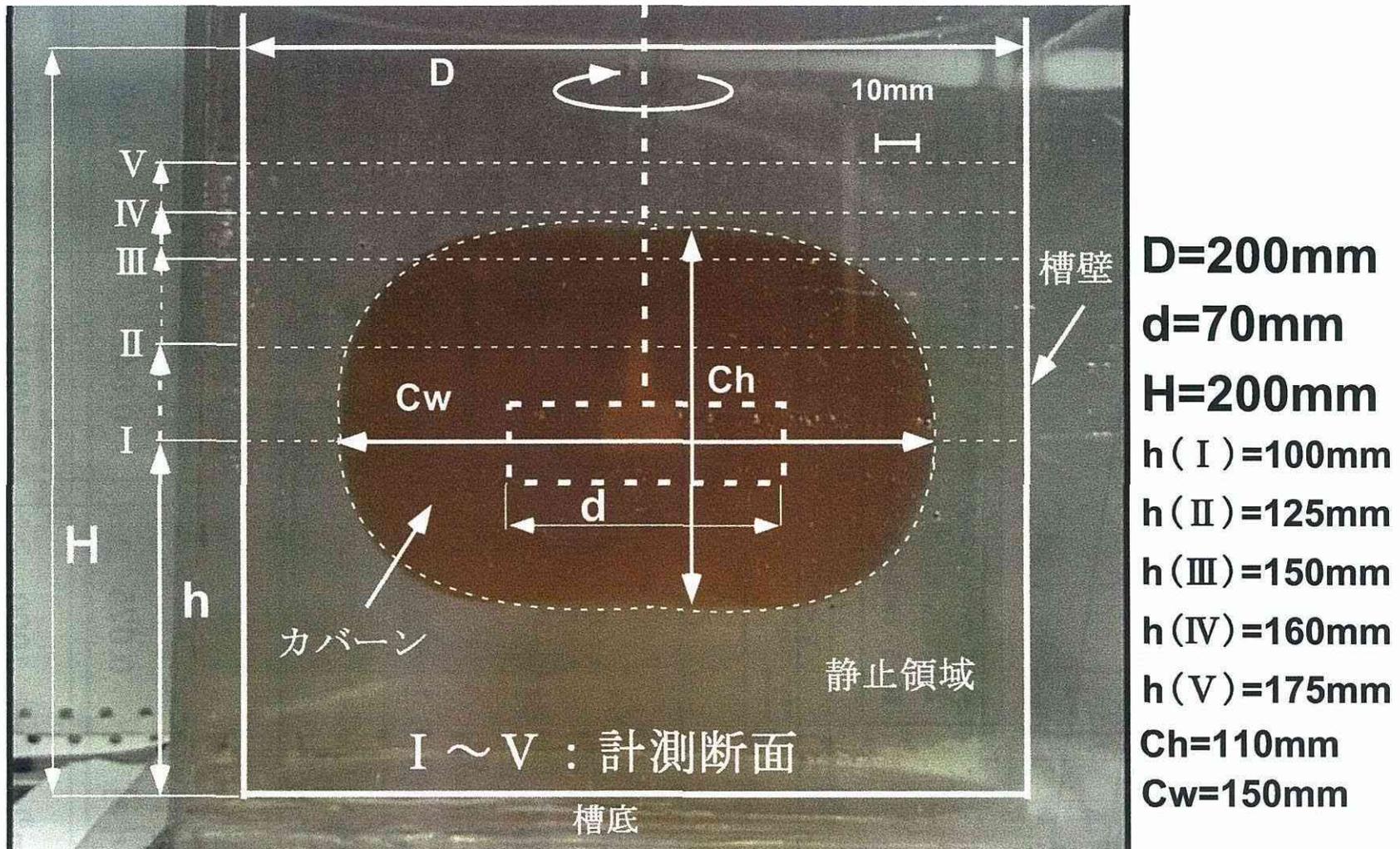


図5.3 カバーン可視化写真の一例  
 (0.4wt% Carbopol水溶液(0.01mol/l KCl入り)を $4.0\text{s}^{-1}$ で攪拌)

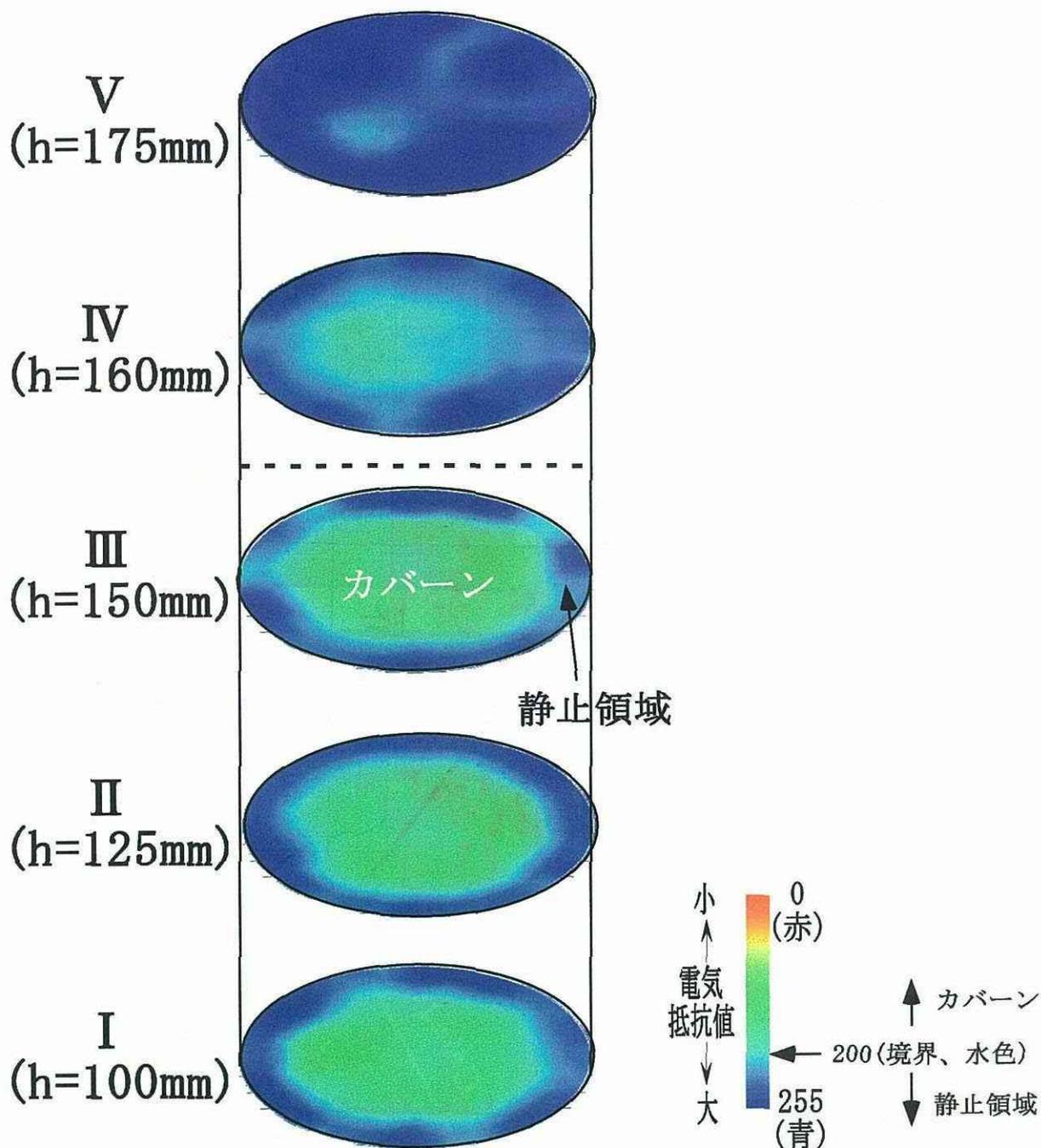


図5.4 0.4wt%Carbopol水溶液  
 (0.01mol/1KCl入り)を用いた  
 場合におけるカバーン計測結果  
 (斜度 $60^\circ$ にて表示、 $N=4.0s^{-1}$ で攪拌)

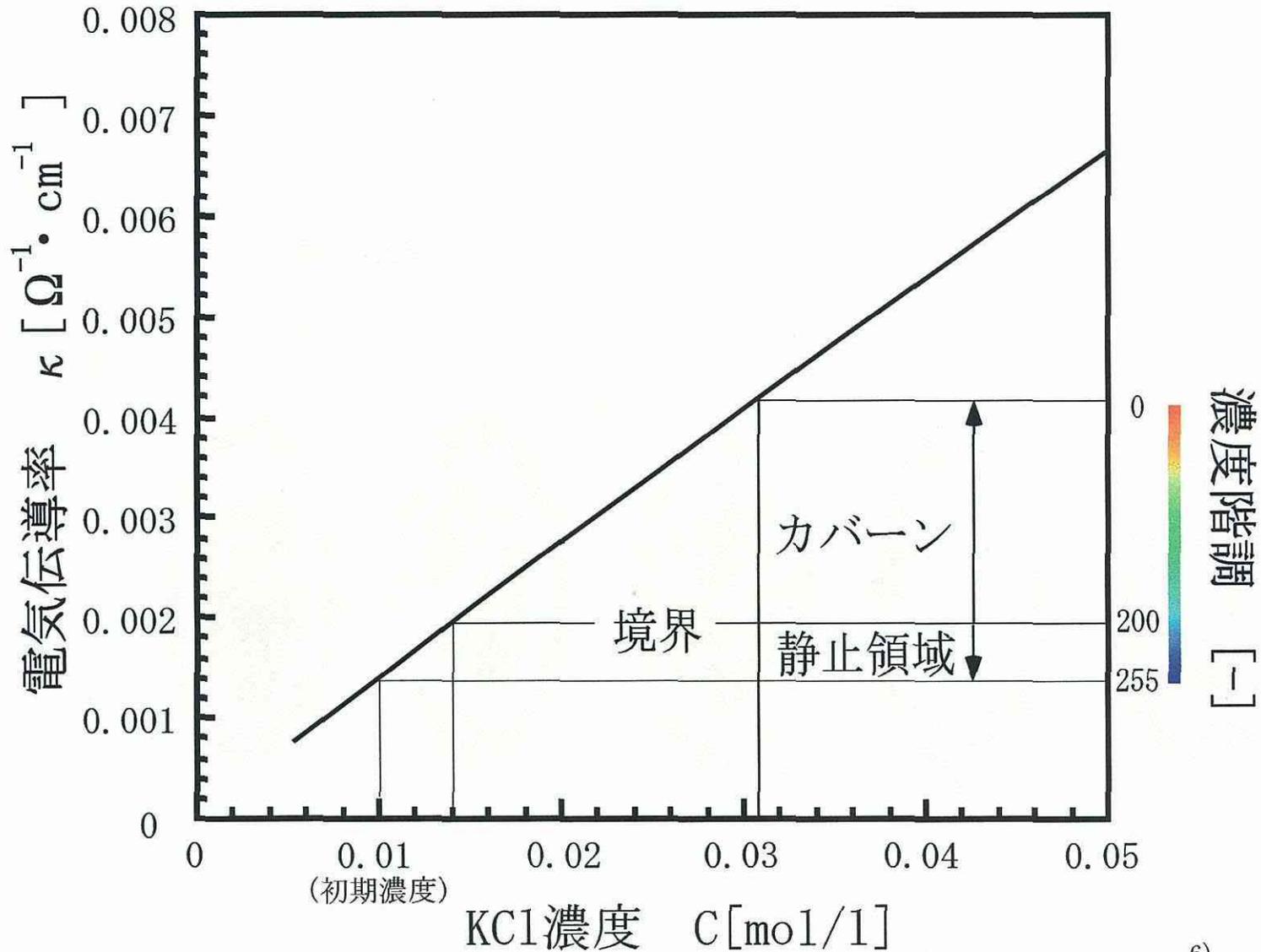


図5.5 KCl濃度・電気伝導率・濃度階調の関係<sup>6)</sup>

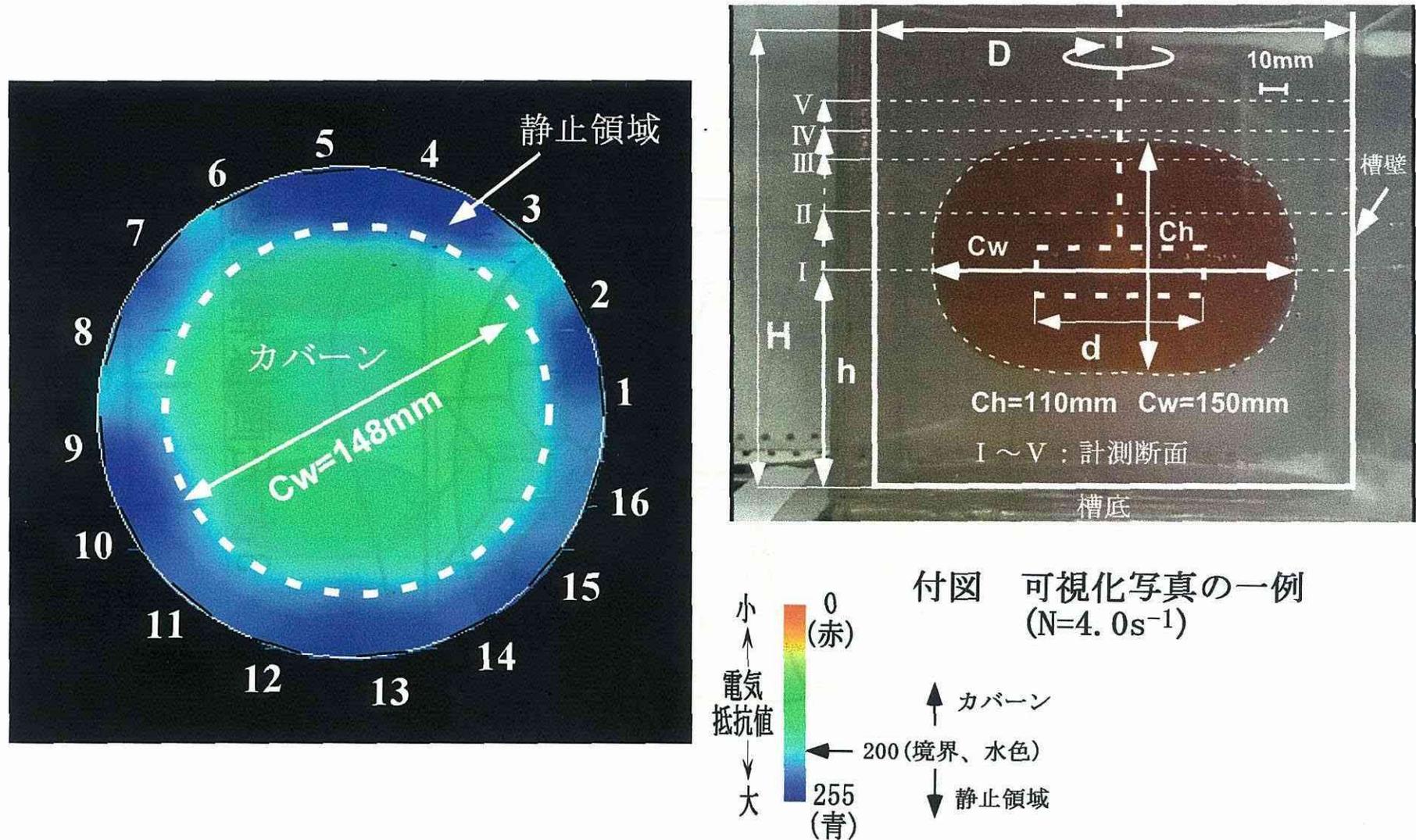


図5.6 計測断面 I ( $h = 100\text{mm}$ ) における測定結果  
(0.4wt% Carbopol 水溶液 (0.01mol/l KCl 入り) を  $4.0\text{s}^{-1}$  で攪拌)

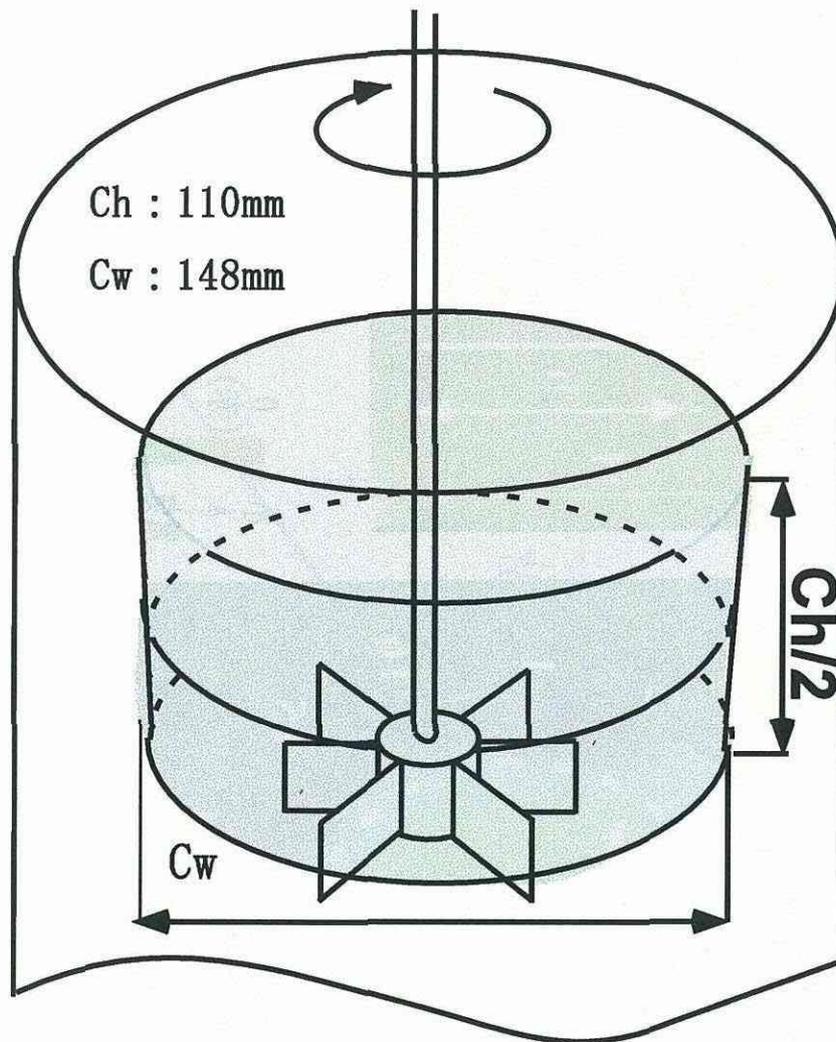


图5.7 3次元画像構成図

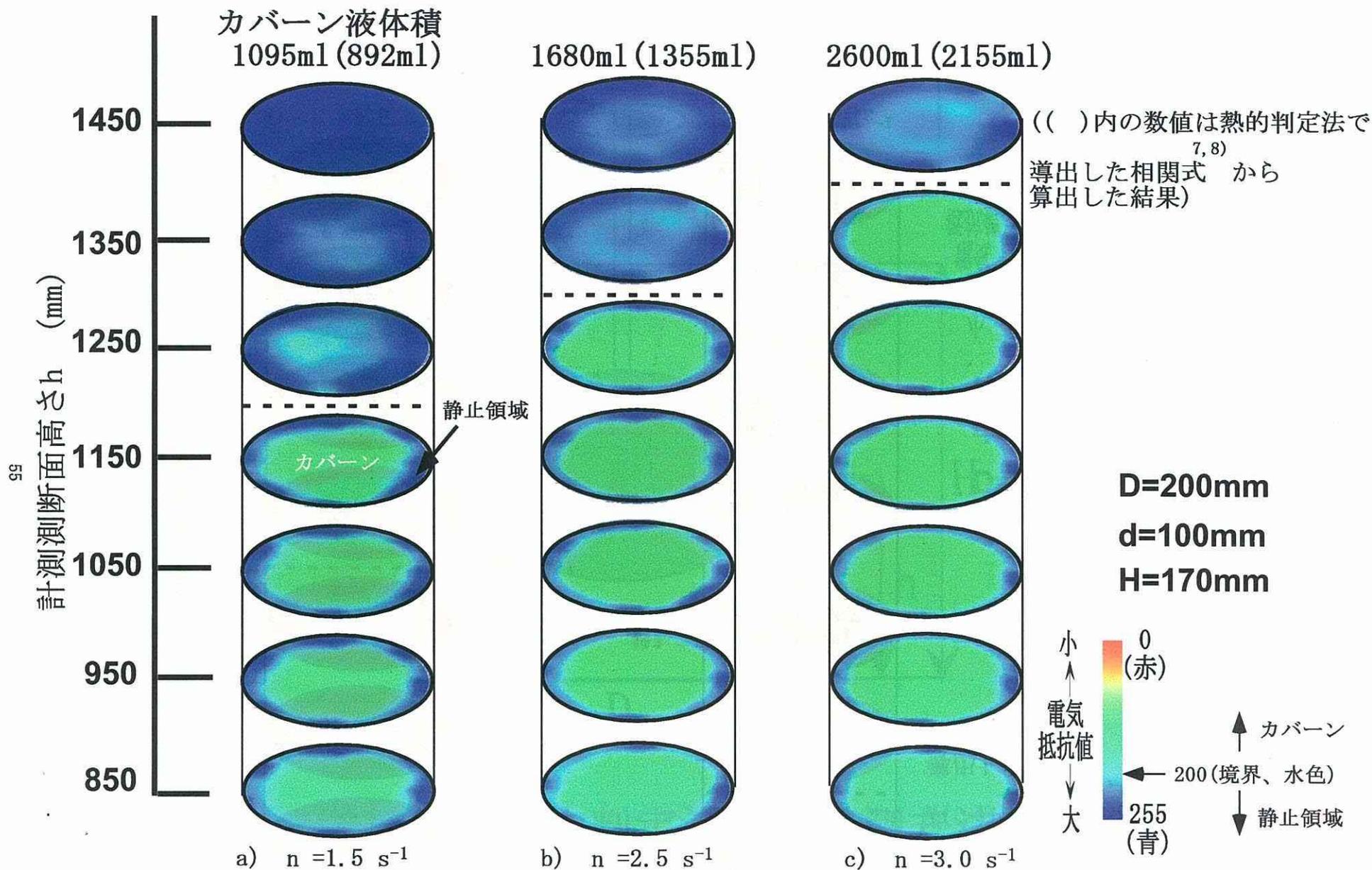


図5.8 57.2wt%炭酸カルシウム懸濁水におけるカバール計測結果の一例  
(斜度 $60^\circ$ にて表示)

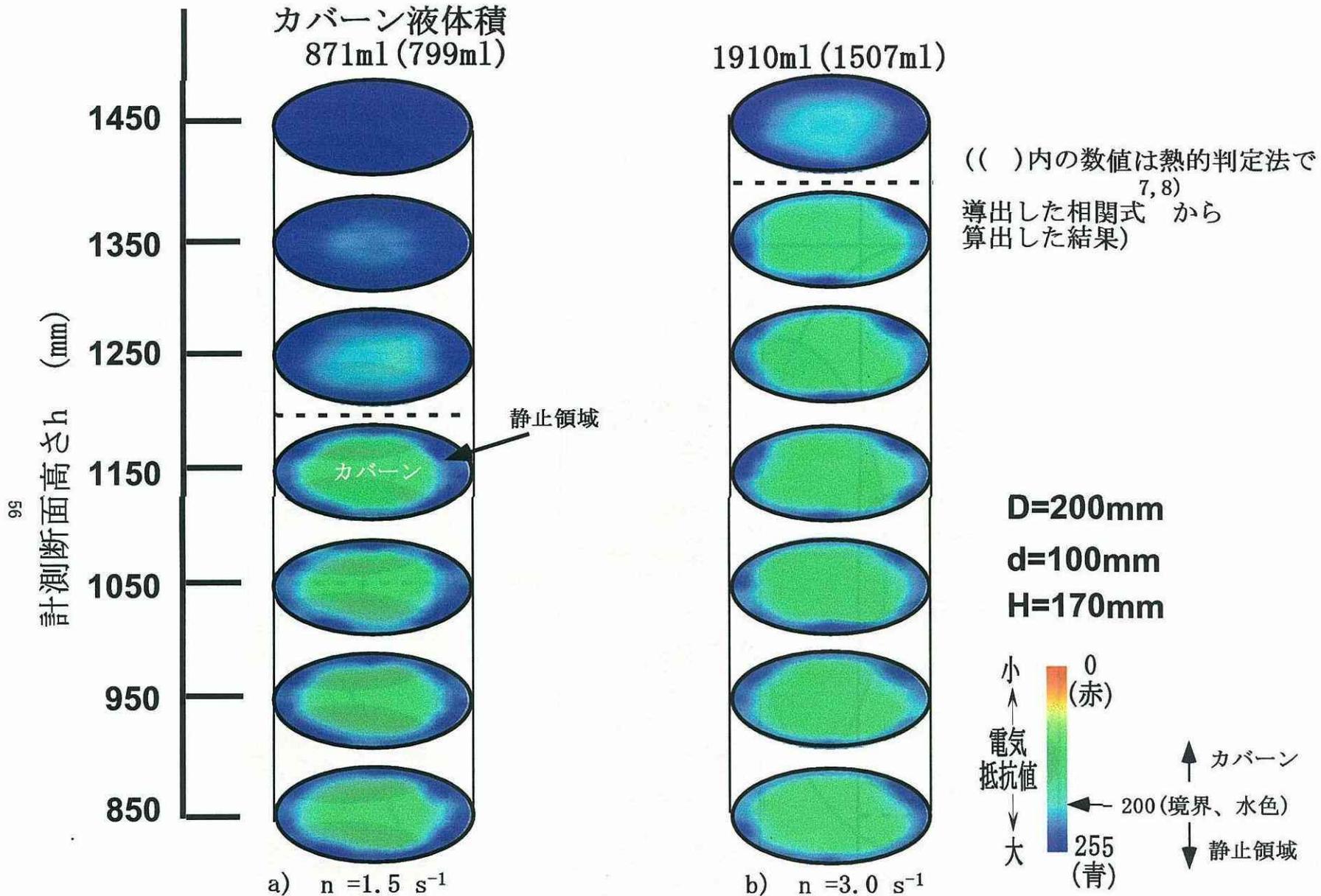


図5.9 63.2wt%炭酸カルシウム懸濁水におけるカバーン計測結果の一例  
(斜度60°にて表示)

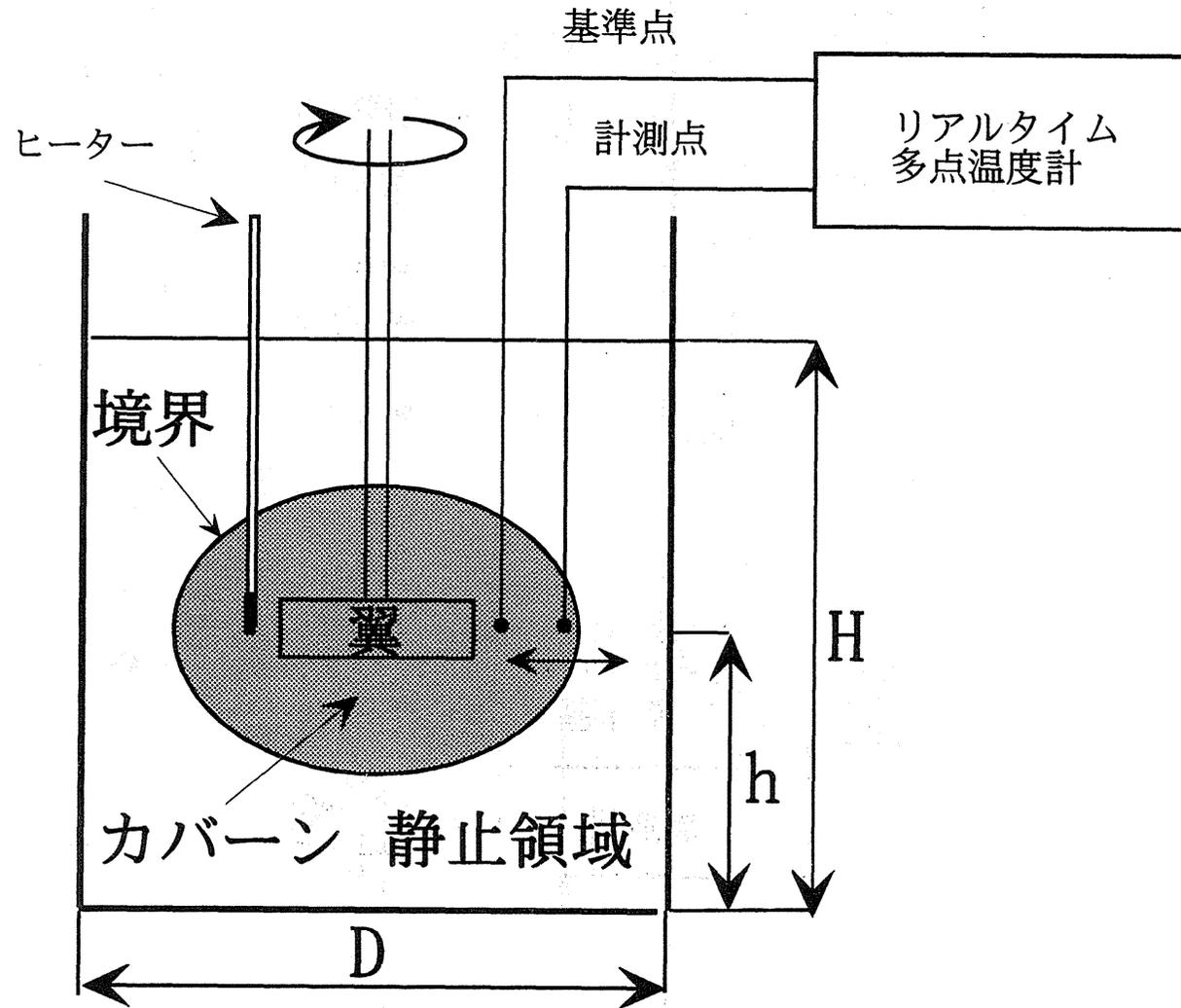


図5.10 熱的判定法<sup>7,8)</sup>の計測方法概略

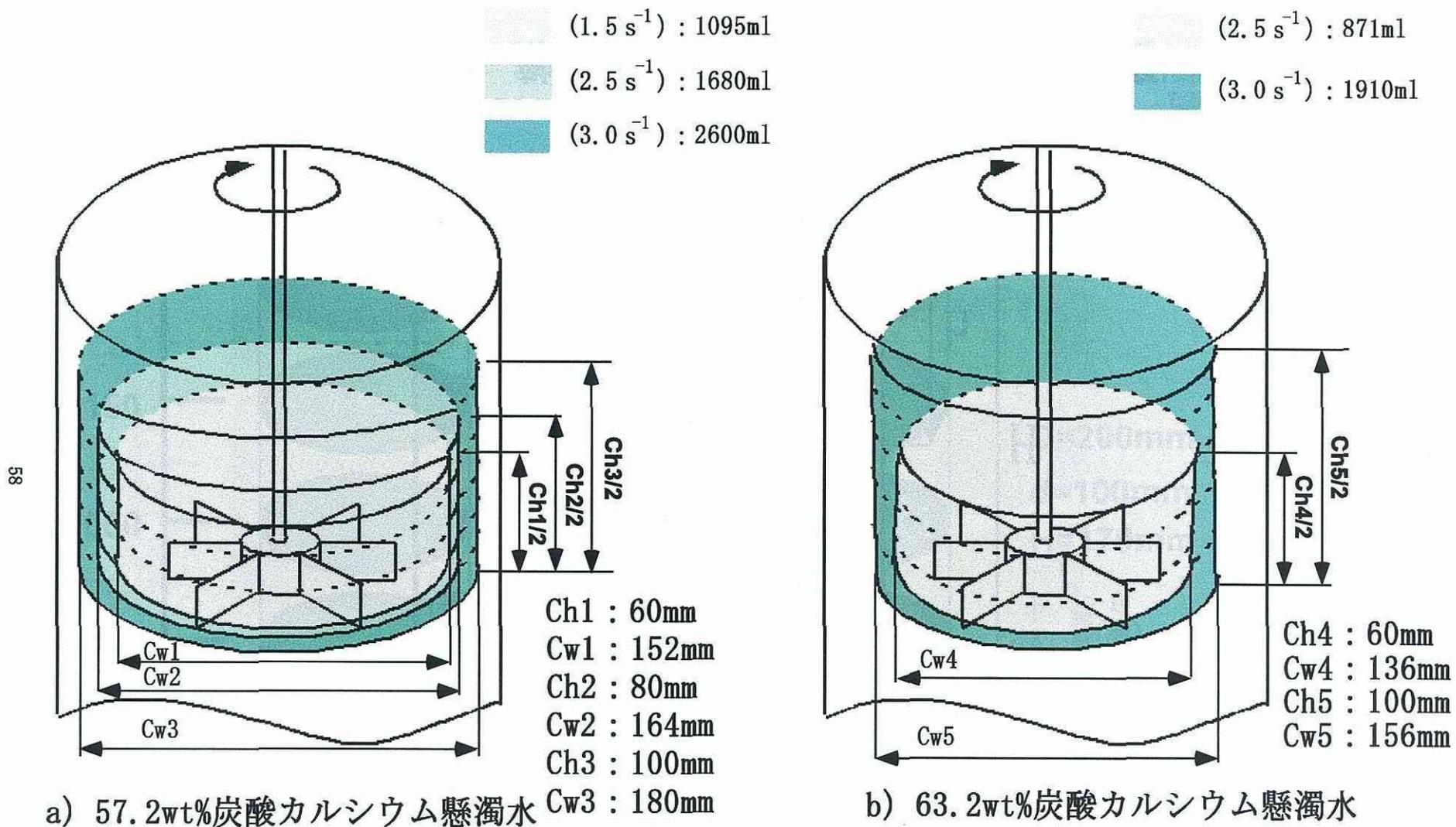


図5.11 炭酸カルシウム懸濁水における3次元画像構成図

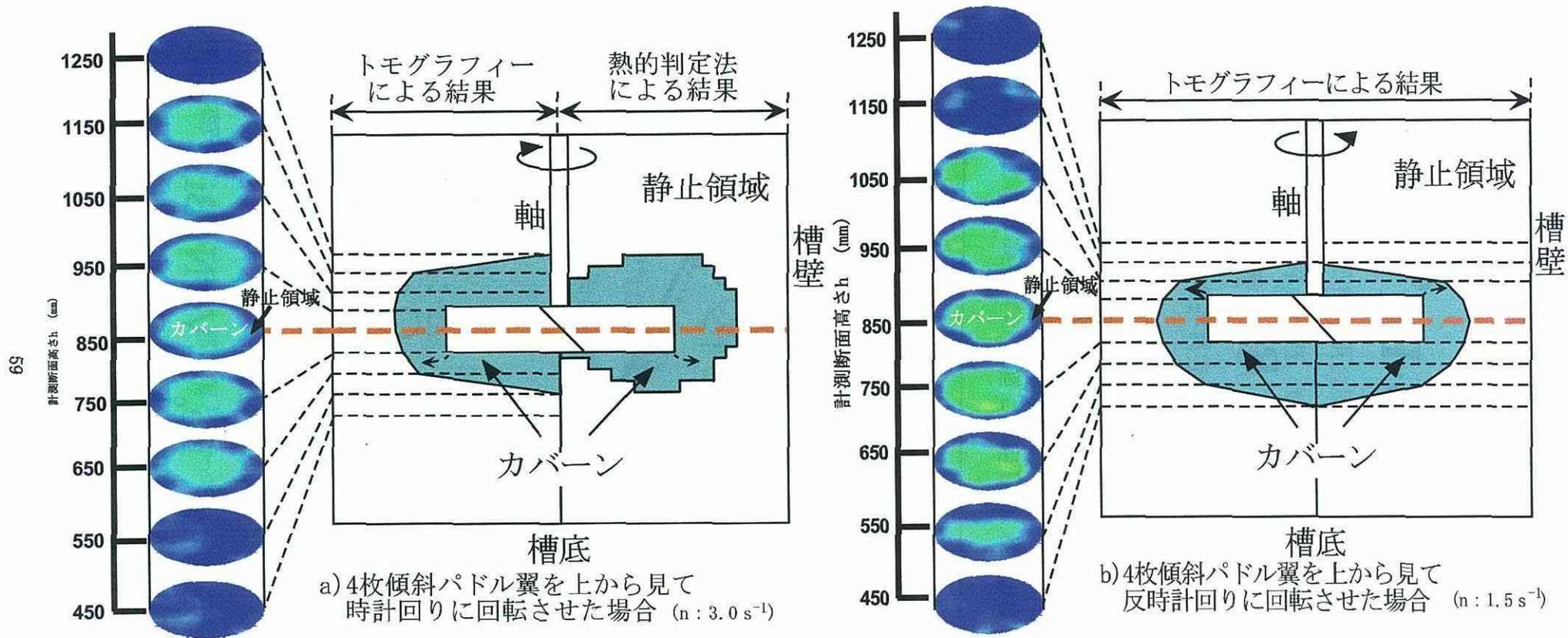


図5.12 4枚傾斜パドル翼を用いた場合のカバーン形成状態  
(62.0wt%炭酸カルシウム懸濁水)

カバーン液体積の相関式<sup>7,8)</sup>(6枚垂直パドル翼の場合)

$$V^* = 1.22 \times 10^{-2} \cdot Np \cdot Re_c^{0.74} \cdot Bi_c^{-0.72} \quad (5-2)$$

$$V^* = \frac{V_c}{V} \quad Np = \frac{P}{\rho n^3 d^5} \quad Re_c = \frac{\rho n d^2}{\eta_c} \quad Bi_c = \frac{\tau_c}{n \eta_c}$$

$Bi_c$  : 修正ビンガム数[-]、 $d$  : 翼径[m]、 $n$  : 翼回転数[s<sup>-1</sup>]、 $P$  : 攪拌所要動力[W]  
 $Re_c$  : 修正レイノルズ数[-]、 $V^*$  : 無次元流動領域液体積[-]、 $V$  : 攪拌槽体積[m<sup>3</sup>]  
 $V_c$  : 流動領域液体積[m<sup>3</sup>]、 $\rho$  : 流体密度[kg/m<sup>3</sup>]、 $\eta_c$  : Casson 粘度[Pa · s]  
 $\tau_c$  : Casson 降伏値[Pa]

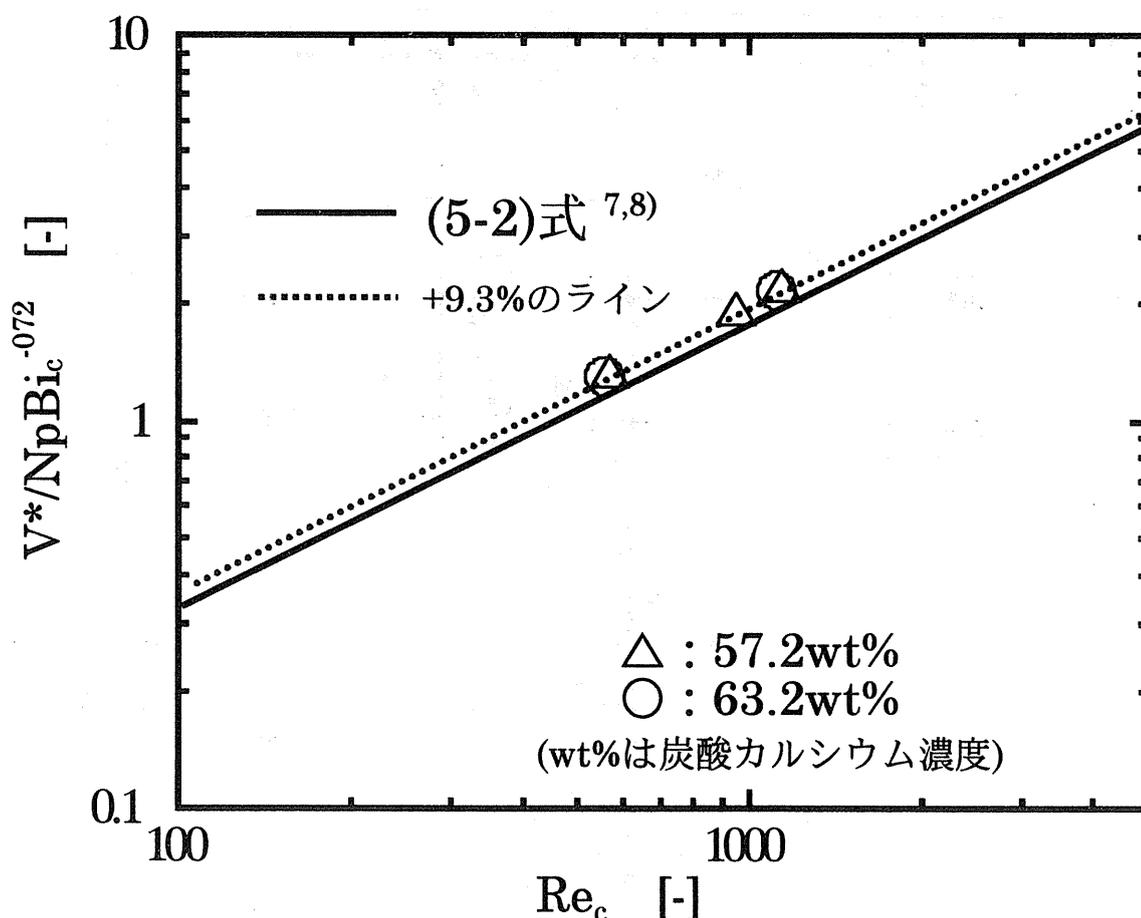


図 5.13  $Re_c$  と  $V^*/NpBi_c^{-0.72}$  の関係

## 6章 電気抵抗方式トモグラフィー計測システムを用いた懸濁重合槽における凝集塊の検出<sup>1)</sup>

### 6.1 はじめに

汎用ポリマー製造法のひとつである懸濁重合反応操作において、重合反応がある程度進行し、分散相である液滴粘度が上昇した際、翼回転数が不適当な場合など、反応操作条件に不備<sup>2,3)</sup>があると、分裂と合一を繰り返していた液滴が合一支配となる。さらに、この合一現象が急激になると、液滴は攪拌翼等に付着し、凝集塊としてそのまま固体化する可能性がある(図 6.1 参照)。

本研究では、槽壁円周方向に設置した電極により、電気抵抗値の差を利用して攪拌槽内断面の流動・分散状態を計測する電気抵抗方式トモグラフィー計測システムを懸濁重合反応を遂行するに際し問題となる凝集塊の計測に適用し、これを迅速に検出して防止するための基礎的な知見を得た。

### 6.2 計測方法

図 6.2 に、計測方法概略を示し、表 6.1 に計測条件を示した。重合槽には槽径 100mm のガラス製円筒丸底槽を用いた。攪拌翼には翼径 50mm のステンレス製 6 枚羽根ディスクタービン翼を用い、液深の 1/2 に設置した。なお、対象とする反応はスチレンの懸濁重合反応である。

また、計測用の電極の付いたリングは、温度や有機溶媒の使用に耐えられる素材であるテフロンを用いた。リングは液深方向に移動可能であり、任意の断面における計測が可能である。

### 6.3 計測結果および考察

#### 6.3.1 重合反応開始直後における計測

図 6.3 に、分散相分率( $\phi$ )=0.1、翼回転数( $N$ )= $2.5\text{s}^{-1}$ における重合反応開始直後の液滴分散状態の一例を示した。同図 a)には、このときの液滴分散状態の可視化写真を示した。これより、分散相であるスチレンは、連続相である水に対してほとんど分散していないことが判る。さらに、スチレンが攪拌槽上部に層となって存在していることが判る。同図 b)は、a)に示した状態でのそれぞれの計測断面(I~III)における液滴分散状態のトモグ

ラフィー画像の一例を示した。計測断面 I において、中心部分にスチレンの存在が確認できる(スチレンの層を形成)が、計測断面 II、III ではスチレンがほとんど分散していないことが判る。これは可視化写真における状況とよく一致した結果であり、得られた画像は明瞭に実際に現象をとらえていることが判った。

図 6.4 は、 $\phi=0.1$ 、 $N=3.5s^{-1}$  における重合反応開始直後の液滴分散状態の一例を示した。同図 a) の可視化写真において、槽内には、徐々に分散相であるスチレンが連続相である水に対して分散し始めていることが判るが、まだ十分ではないことが判る。同図 b) には、a) で示した状態でのそれぞれの計測断面(I~V)における液滴分散状態のトモグラフィー画像の一例を示した。計測断面 I、II では分散相であるスチレンの存在が確認でき、また、可視化写真からも判るように II の方が領域が小さくなっていることも判る。計測断面 III~V からは、分散相が、まだ十分ではないものの分散しは始めていることが判る。これより、得られた画像は可視化写真ともよく一致していることが判った。また、このような状態で重合反応を進行していくと、図 6.5 に示すように分散相は反応途中において、攪拌翼に付着し、凝集塊となってしまうことも確認した。

図 6.6 は、 $\phi=0.1$ 、 $N=4.5s^{-1}$  における重合反応開始直後の液滴分散状態の一例を示した。同図 a) の可視化写真において、分散相であるスチレンは、攪拌槽内全域にほぼ均一に分散していることが判る。同図 b) には、a) で示した状態でのそれぞれの計測断面(I~III)におけるトモグラフィー画像の一例を示した。

### 6.3.2 モデル的計測

重合反応過程において、反応途中で凝集塊が生成したことを想定したモデル的な計測を行った。図 6.7 に、凝集塊が生成したことを想定したモデル的なトモグラフィー画像の一例を示した。同図 c) は、付図に示したような凝集塊が攪拌翼に付着・生成したと考えられる場合の画像の一例である。同図より、凝集塊が存在していると考えられる場所はその周りに比べて明らかに電気抵抗値が大きくなることが判った。これより今後、反応過程において凝集塊が付着・生成した場合、本計測システムではどのような画像として得ることができるのかについて基礎的な知見を得た。

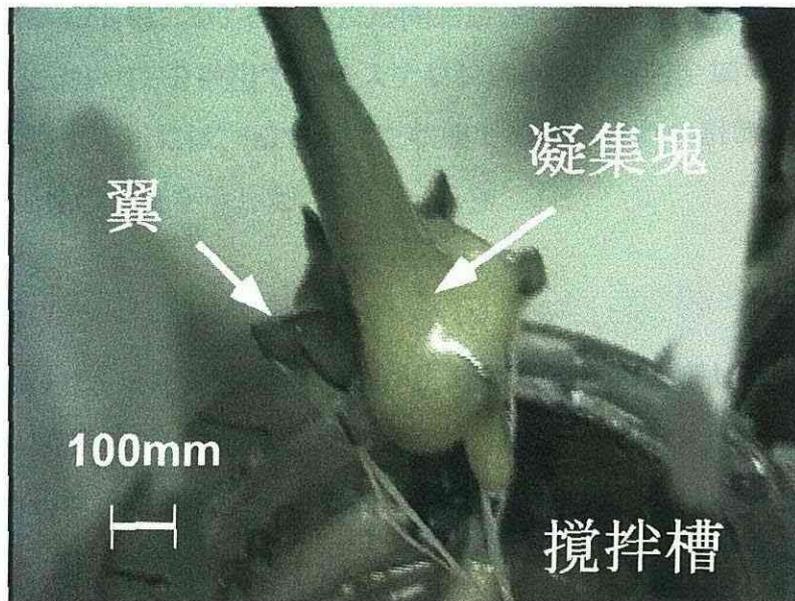
#### 6.4 むすびに

電気抵抗値の差を利用して、攪拌槽内断面における流動・分散状態を、画像として表示する電気抵抗方式トモグラフィー計測システムを用い、懸濁重合反応場における凝集塊の計測に、同計測システムを適用することを検討した。

凝集塊検出の手始めとして、重合開始直後の液滴の分散状態を翼回転数を変えて各計測断面にて計測し、可視化写真との比較の結果、各翼回転数や各計測断面の液滴の分散状態を良好に画像として得られることが判った。



a) 粒子として生成した場合  
(50倍にて撮影)



b) 凝集塊として生成した場合

図6.1 重合反応終了後に生成した  
ポリマー(ポリスチレン)の写真例

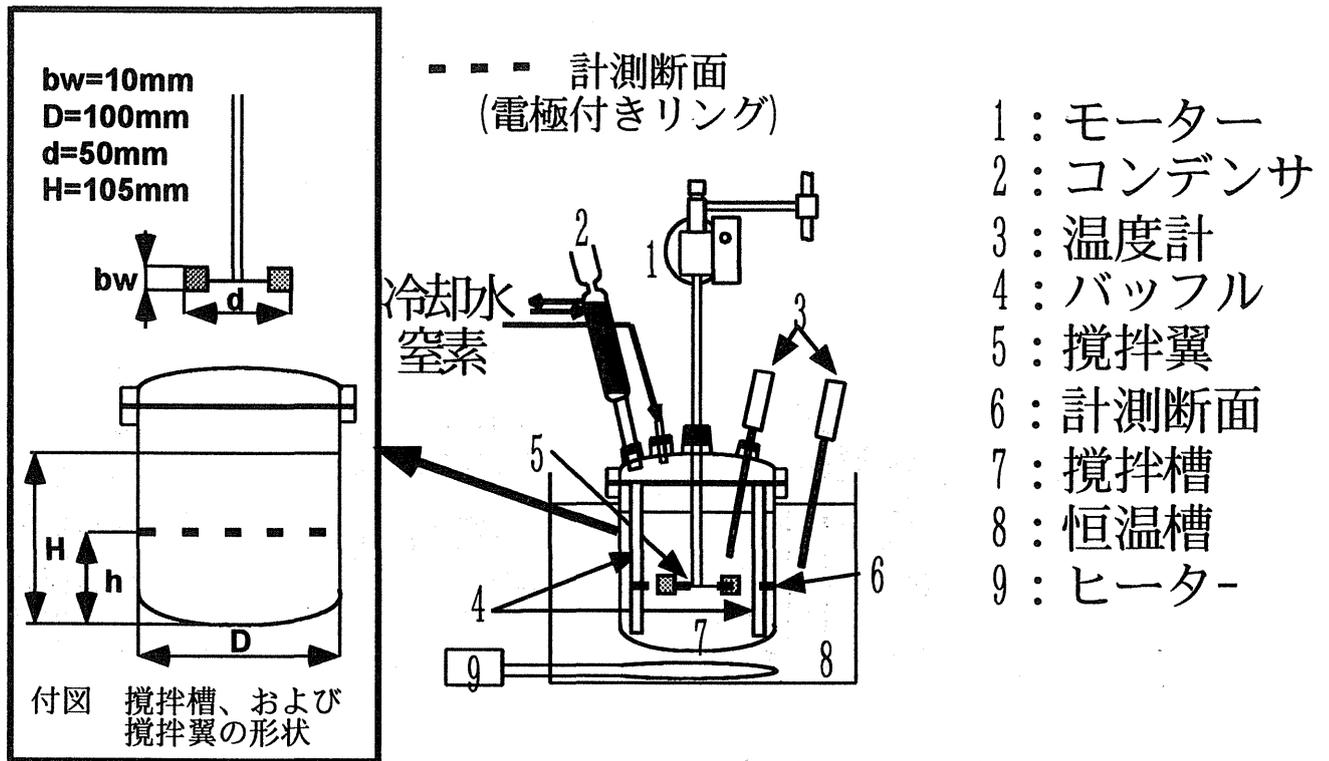


図6.2 計測方法概略

表6.1 計測条件

連続相: イオン交換水 720ml

懸濁安定剤 (磷酸カルシウム) 0.05wt%

KCl 0.01mol/l-イオン交換水

分散相: スチレン 80ml

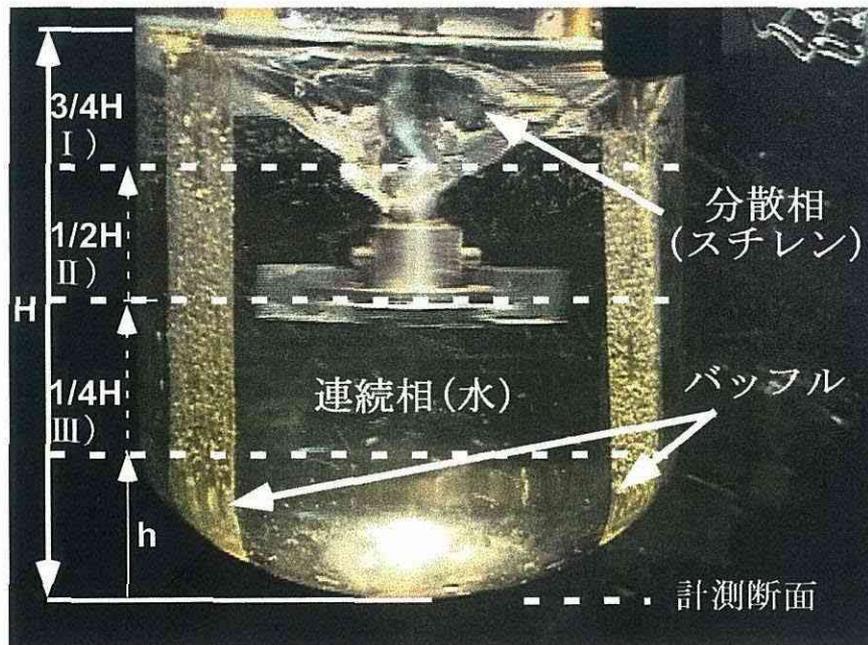
重合開始剤 (AIBN) 0.04mol/l-スチレン

攪拌翼: 6枚ディスクタービン翼 (液深の1/2に設置)

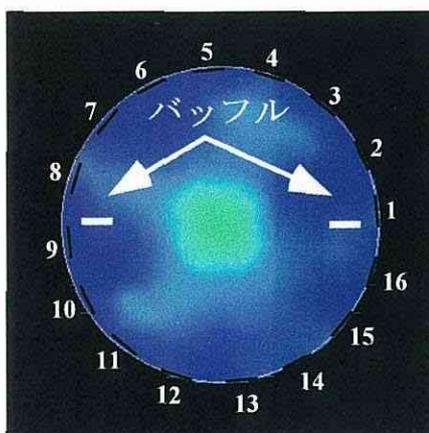
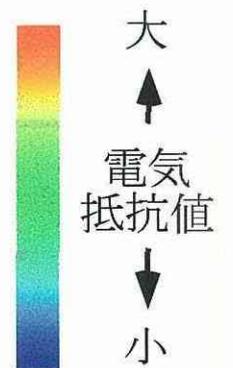
翼回転数: 2.5、3.5、4.5 s<sup>-1</sup>

重合温度: 353K

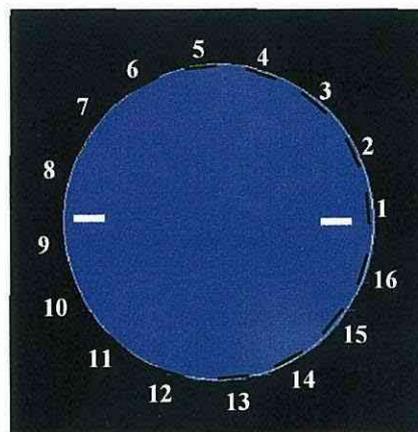
(液表面からの気泡の巻き込みを防ぐため、バッフルを2枚設置した。)



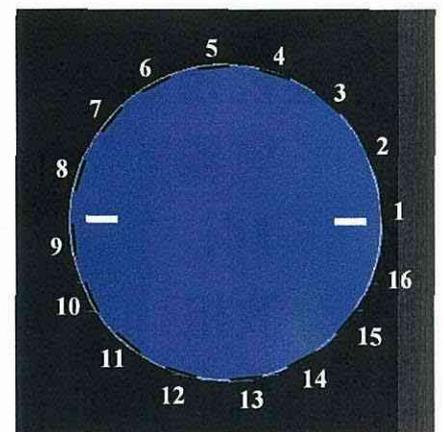
a) 可視化写真の一例



I)  $h=3/4H$



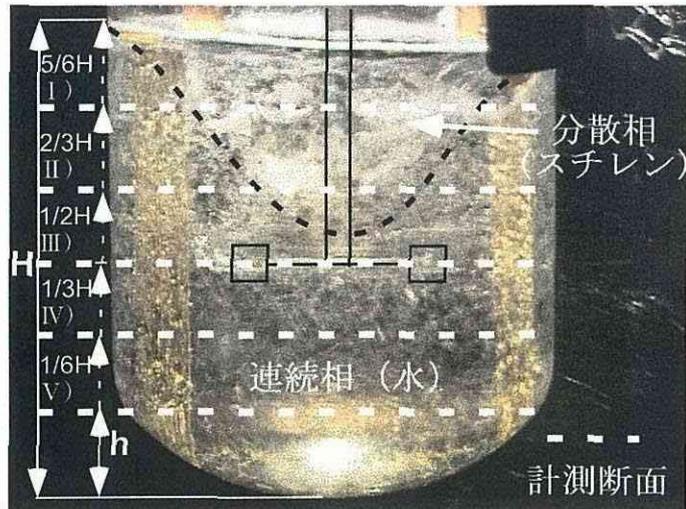
II)  $h=1/2H$



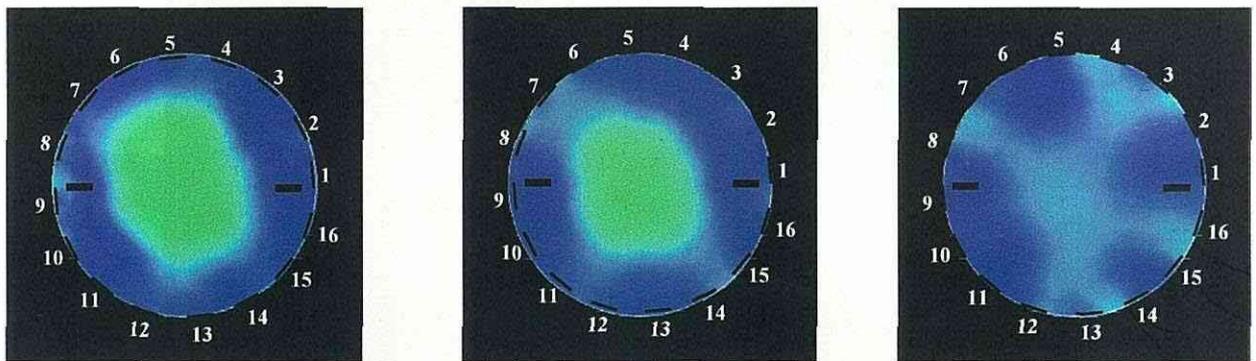
III)  $h=1/4H$

b) それぞれの計測断面 (h) における液滴分散状態の  
トモグラフィ画像の一例

図6.3 重合反応開始直後の分散状態の一例  
(翼回転数=2.5  $s^{-1}$ )



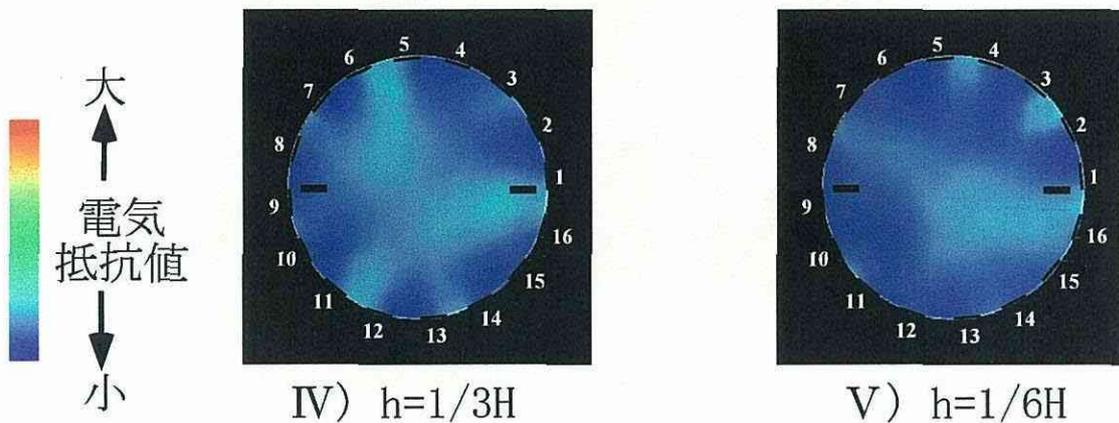
a) 可視化写真の一例



I)  $h=5/6H$

II)  $h=2/3H$

III)  $h=1/2H$



IV)  $h=1/3H$

V)  $h=1/6H$

b) それぞれの計測断面 (h) における液滴分散状態の  
トモグラフィー画像の一例

図6.4 重合反応開始直後における分散状態の一例  
(翼回転数=3.5  $s^{-1}$ )

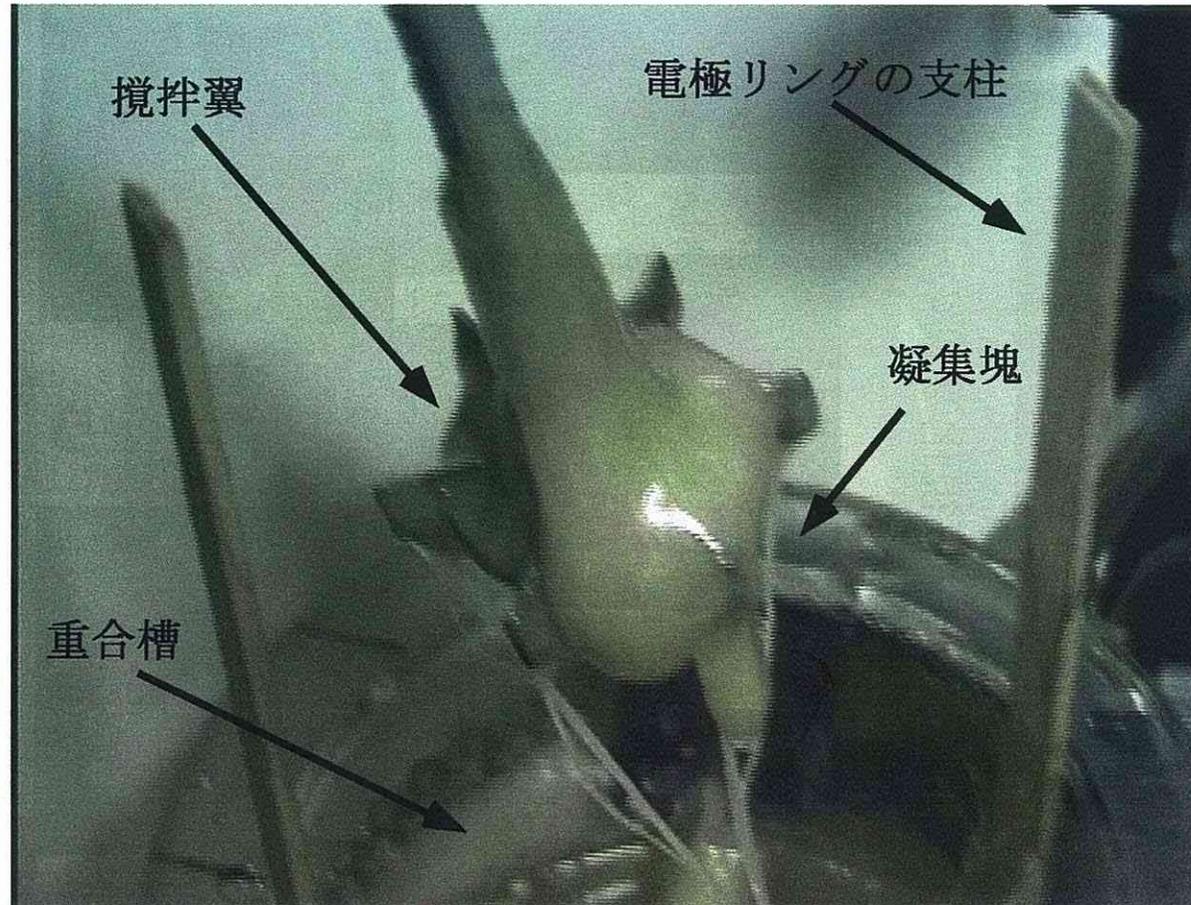
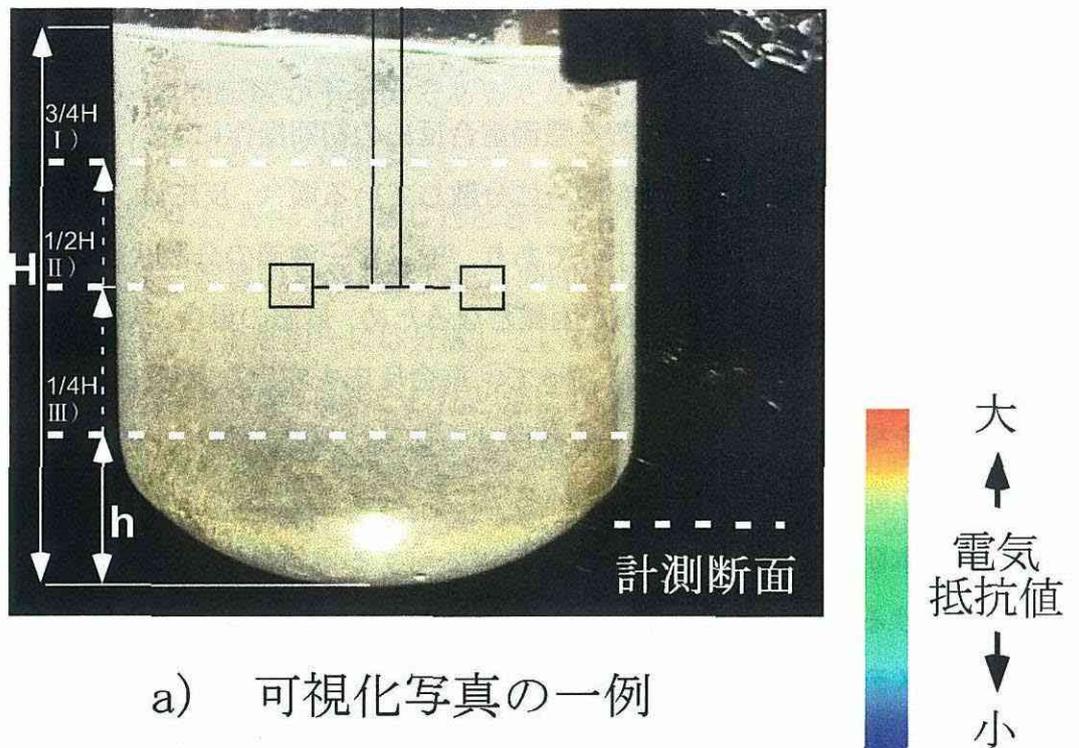
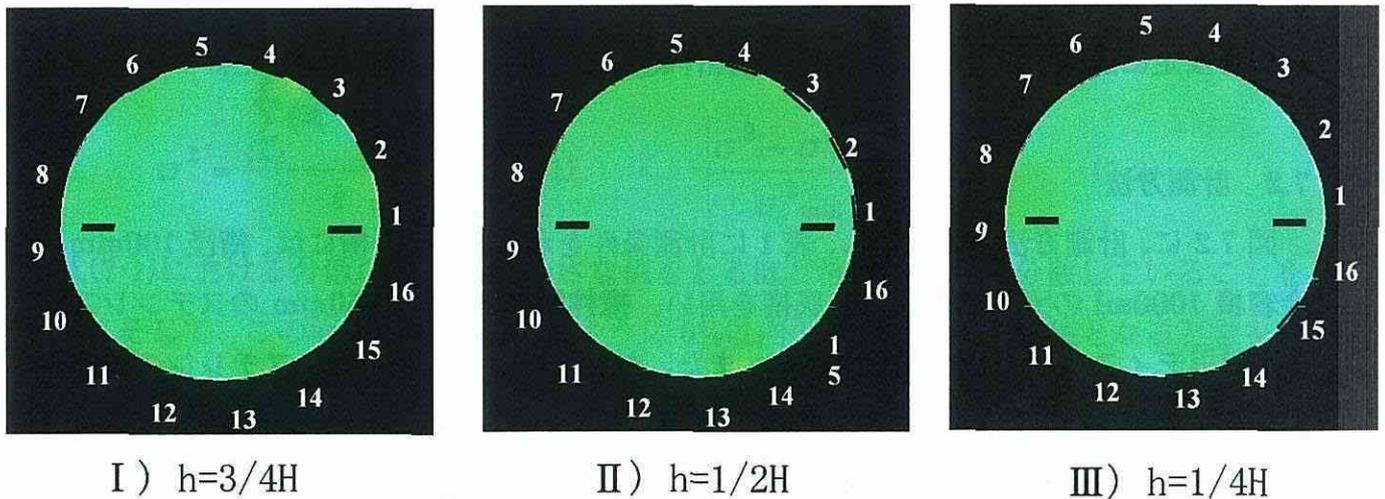


図6.5 攪拌翼に付着・生成した凝集塊の一例



a) 可視化写真の一例



b) それぞれの計測断面 ( $h$ ) における液滴分散状態の  
トモグラフィ画像の一例

図6.6 重合反応開始直後の分散状態の一例  
(翼回転数= $4.5 \text{ s}^{-1}$ )

## 7章 電気抵抗方式トモグラフィー計測システムによる懸濁重合反応場における安定操作範囲の決定<sup>1)</sup>

### 7.1 はじめに

代表的なポリマー製造法である懸濁重合反応の初期操作において、攪拌が十分にあり、モノマー液滴が攪拌槽内全域を均一に分散している場合、反応は、設定した重合温度にて進行する。しかし、攪拌が不十分であり、モノマー液滴の分散状態に偏りが生じる場合、熱溜まりが生じ、反応熱の除去が困難となるため、最悪の場合には暴走反応を引き起こす可能性がある<sup>2,3)</sup>(図 7.1 参照)。従って、重合反応を安定な状態で遂行させるため、モノマー液滴を攪拌槽内全域に均一分散させることは重要であり、そのような分散状態を達成する操作範囲の決定が望まれている<sup>4)</sup>。

そこで本研究では、モノマー液滴の水に対する電気抵抗値の差を利用して、攪拌槽内断面における分散状態を計測し、これを画像として表示する電気抵抗方式トモグラフィー測定システムを試作した。

さらに、同計測システムを用いて、懸濁重合反応場における液滴分散の均一・偏り・凝集などの状況を種々の操作条件において計測した。次いで、その結果に基づき、重合反応を安定に遂行するための定量化した操作範囲を決定する手法を検討した。

### 7.2 計測方法

図 7.2 に、計測方法概略を示し、表 1 に計測条件を示した。攪拌槽には、槽径 100mm、全容積 1000ml のガラス製円筒丸底槽を用い、攪拌翼には、翼径 50mm のステンレス製 6 枚羽根ディスクタービン翼を用いた。また、対象とする重合反応は、スチレンの懸濁重合反応である。同図に示す状況にて、翼回転数( $N=2.5\sim 9.0\text{ s}^{-1}$ )、および分散相分率( $\phi=0.1\sim 0.3$ )を操作条件として重合反応を開始し、各操作条件における液滴の分散状態を多断面にて計測した。なお、重合温度( $T$ )は  $80^{\circ}\text{C}$  とし、連続相(水)には  $0.01\text{ mol/l KCl}$  を添加した。また、分散剤にはリン酸カルシウム( $0.1\text{wt}\%\cdot\text{水}$ )、開始剤には  $\text{AIBN}(0.04\text{ mol/l}\cdot\text{スリ})$  を用いた。

### 7.3 計測結果、および考察

図 7.3 に、操作条件を分散相分率( $\phi$ )= $0.1$ 、翼回転数( $N$ )= $2.5\text{ s}^{-1}$  としたときにおける重合反応開始直後における可視化写真とトモグラフィー画像の一例を示した。トモグラフ

イー画像において、初期状態では画像は青色を示している。この初期状態に対して電気抵抗値の大きなモノマーが存在すると画像の色は青から緑、黄色へとカラーバーに示すように変化する。同図より、翼回転数が不十分であるため、モノマーは槽内に分散せず攪拌槽上部に層となって存在していることが判る。

図 7.4 に、操作条件を  $\phi=0.1$ 、 $N=3.5\text{s}^{-1}$  としたときにおける重合反応開始直後における可視化写真とトモグラフィ画像の一例を示した。同図より、モノマーは徐々に攪拌槽内に分散しはじめているものの、まだ均一には分散していないことが判る。

図 7.5 に、操作条件を  $\phi=0.1$ 、 $N=4.5\text{s}^{-1}$  としたときにおける重合反応開始直後における可視化写真とトモグラフィ画像の一例を示した。同図より、いずれの計測断面での画像もほぼ一様な電気抵抗値分布を示しており、モノマーは攪拌槽内を均一に分散していることが判る。

#### 7.4 液滴分散状態の定量的評価

7.3 において得られた画像をもとに液滴の分散状態を定量的に評価する手法について検討した。この評価に式(7-1)、(7-2)を用いた。

$$\sigma^2 = \frac{\sum_{i=1}^e (A - a_e)^2}{e} \quad (7-1) \quad \left| \frac{\sigma^2 - \sigma_{\min}^2}{\sigma_{\min}^2} \right| \leq 0.05 \quad (7-2)$$

式(7-1)における分散の値( $\sigma^2$ )が小さな値をとるほど液滴は均一に分散していることを示す。そして、この値が式(7-2)に示すように 5%以内の誤差範囲で一定値となることを安定操作範囲であるとした。

このような検討を行った一例として、図 7.6 に、 $\phi=0.1$  における翼回転数( $N$ )と分散( $\sigma^2$ )の関係を示した。同図より、徐々に翼回転数を増加させていき、 $N=4.5\text{s}^{-1}$  に達したとき、液滴ははじめて均一分散をしていることが判った。ここで、翼回転数を増加させていき、はじめて均一分散を達成した翼回転数を  $N_{\min}$  とした。また、逆に翼回転数を増加させすぎると、今度は気泡の巻き込みが発生する。そこで、この巻き込みが起らない最大の翼回転数を  $N_{\max}$  とした(このときの  $\sigma^2$  が  $\sigma_{\min}^2$  となる)。これより、 $\phi=0.1$  において均一な分散状態を達成する範囲は翼回転数が  $4.5\sim 8.0\text{s}^{-1}$  であることが判った。

次に、このような検討を他の  $\phi$  についても行った。図 7.7 に、反応開始直後の液滴分散状態から決定した安定操作範囲の一例を示した。斜線で示される部分が安定操作範囲である。

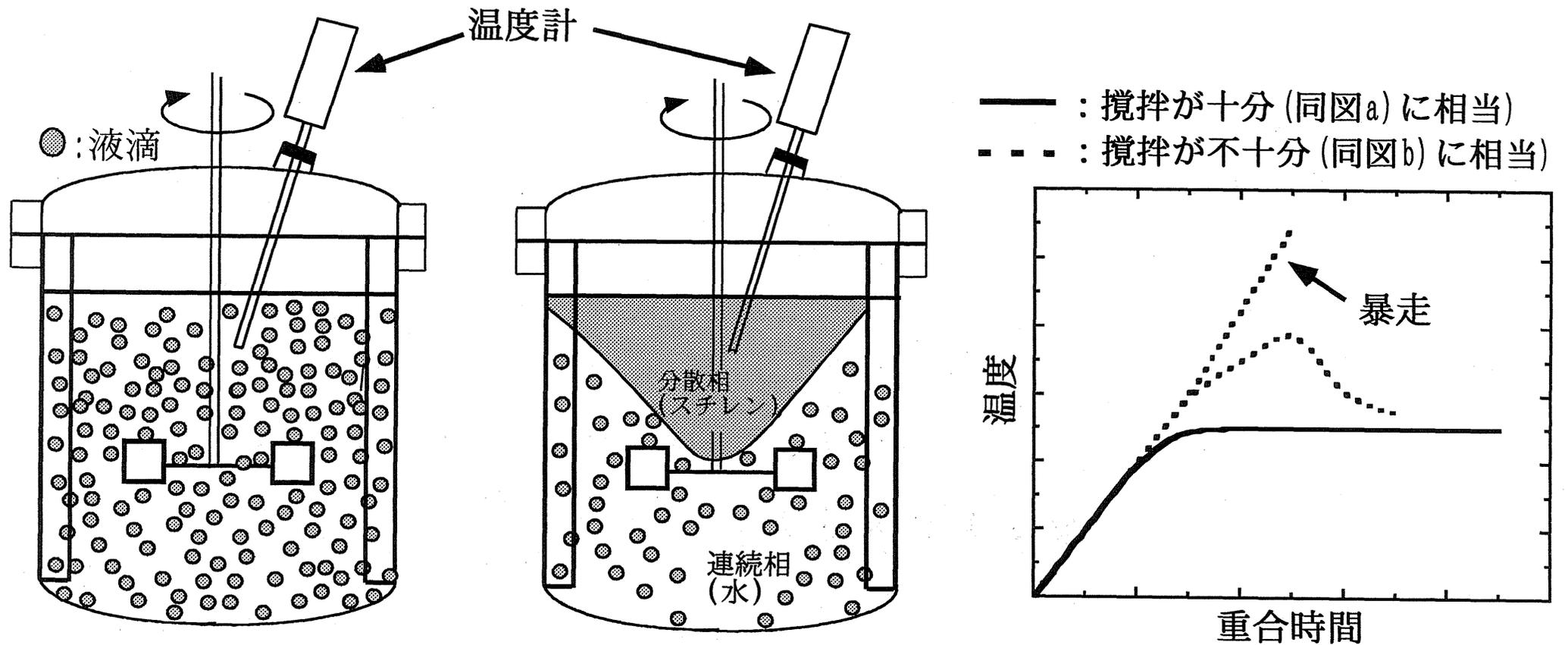
また、図 7.8 に、この安定操作範囲内で重合反応を最後まで行い、生成したポリマーの拡大写真の一例を示した。各操作条件にて得られるポリマー粒子は粒径は異なるものの、重合反応自体は液滴の集塊もなく、安定に行えることが判った。また、安定操作範囲外で行った一例である④では、液滴が反応途中で集塊してしまったことも確認した。このことから本研究にて決定した安定操作範囲の妥当性が確認できた。

## 7.5 むすびに

電気抵抗方式トモグラフィー計測システムを、懸濁重合反応場に適用し、重合反応開始直後における液滴の分散状態を各操作条件にて計測した。

各操作条件にて得られたトモグラフィー画像から、(7-1)式に示す分散( $\sigma^2$ )、および(7-2)式に示す判定式を用いることで、重合反応を安定な状態で遂行するための定量化した操作範囲を決定する手法を提示することができた。

決定した安定操作範囲内で重合反応を行い、ポリマー粒子を生成することができた。逆に、安定操作範囲外では、液滴の凝集が起こることも確認した。これより、本研究にて決定した安定操作範囲が妥当であることが判った。



- a) 攪拌が十分な場合における液滴分散状態のスケッチ
- b) 攪拌が不十分な場合における液滴分散状態のスケッチ
- c) それぞれの攪拌条件における重合時間と温度の関係<sup>2)</sup>

図7.1 異なる攪拌条件における液滴分散状態のスケッチ、および重合時間と温度の関係

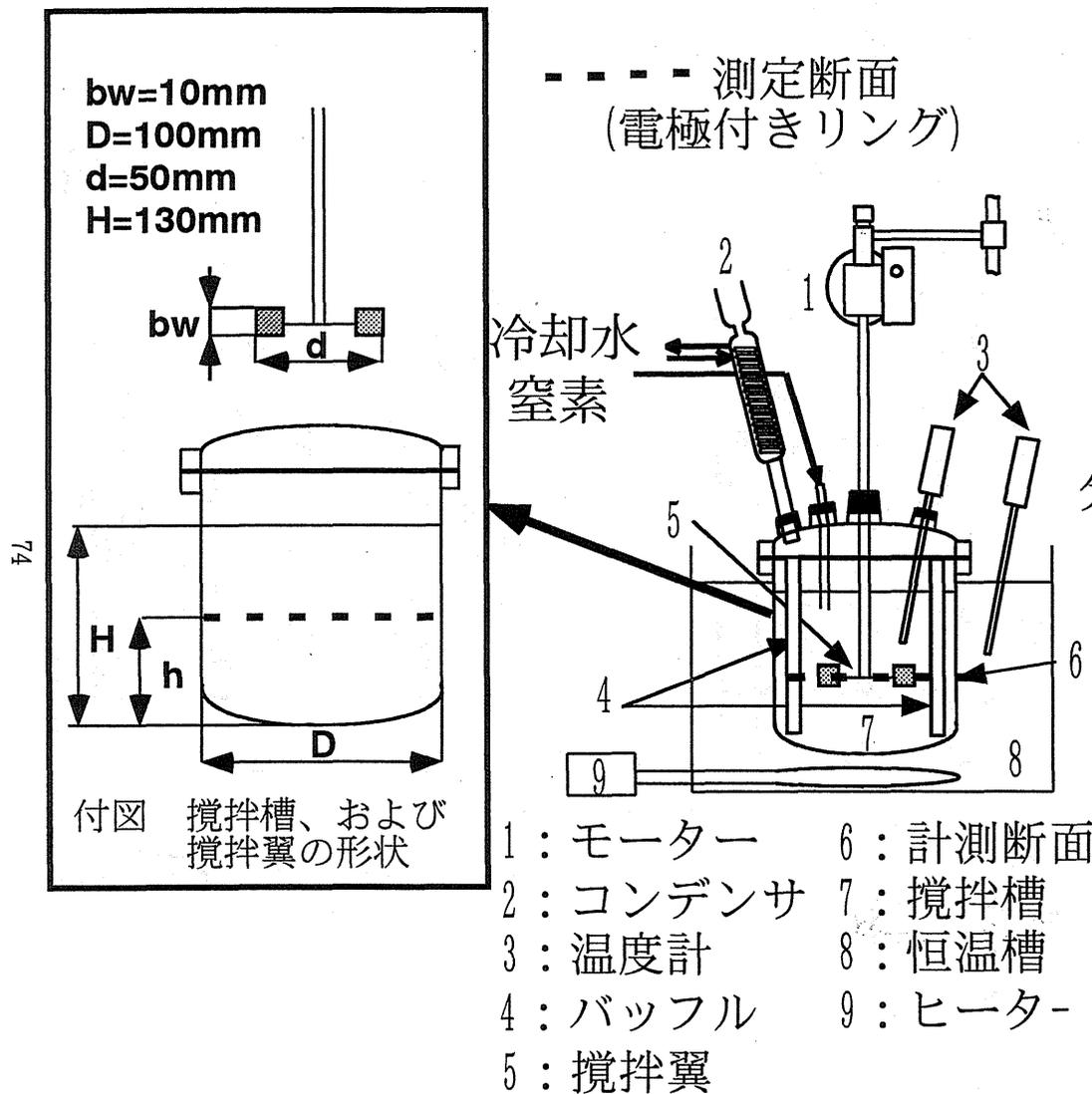
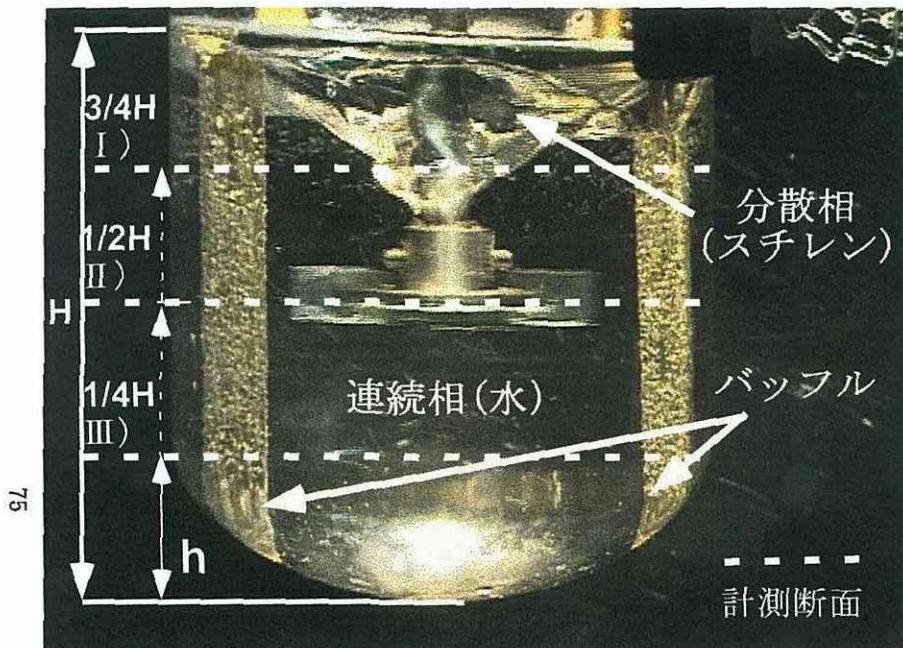


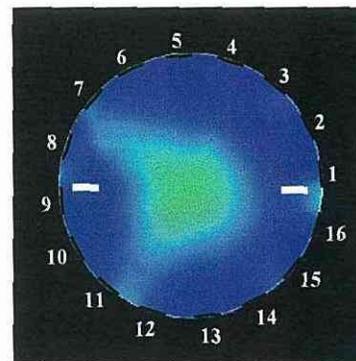
表1 計測条件

連続相:	イオン交換水	700~900ml
懸濁安定剤:	0.1wt%-イオン交換水 (燐酸カルシウム)	
	KCl:	0.01mol/l-イオン交換水
分散相:	スチレン	$\phi=0.1\sim0.3$ (分散相分率)
重合開始剤 (AIBN):	0.04mol/l-スチレン	
攪拌翼:	6枚ディスクタービン翼 (液深の1/2に設置)	
翼回転数:	$N=2.5\sim9.0\text{ s}^{-1}$	
重合温度:	$T=353\text{K}$	

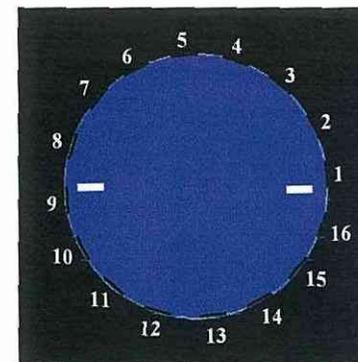
図7.2 計測方法概略



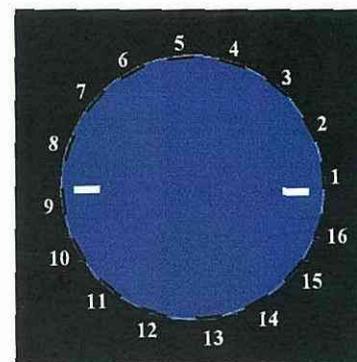
a) 可視化写真の一例



b) 計測断面 I  
( $h=3/4H$ )



c) 計測断面 II  
( $h=1/2H$ )



d) 計測断面 III  
( $h=1/4H$ )

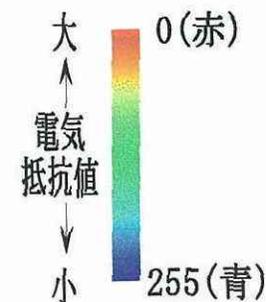
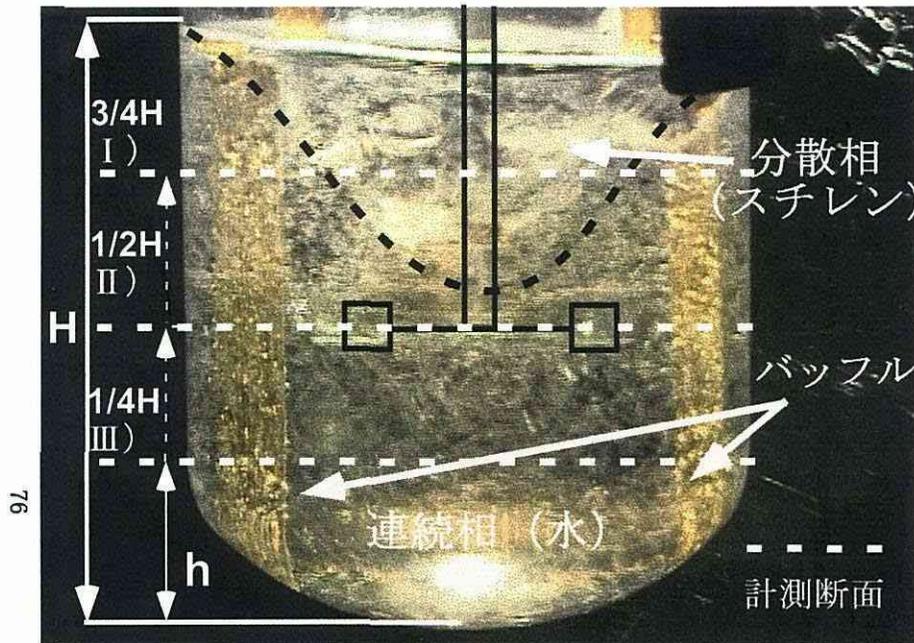
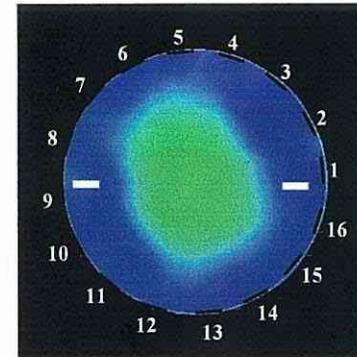


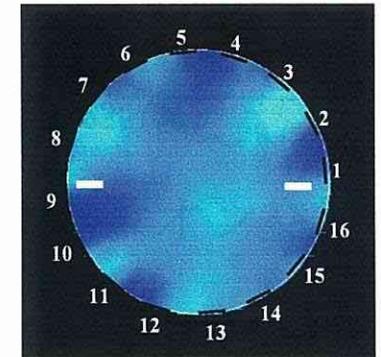
図7.3 反応開始直後における液滴分散状態の可視化写真およびトモグラフィ画像の一例 ( $N=2.5\text{s}^{-1}$ ,  $\phi=0.1$ ,  $T=80^\circ\text{C}$ )



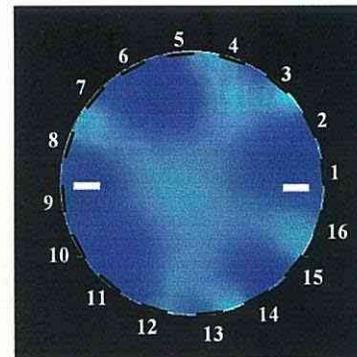
a) 可視化写真の一例



b) 計測断面 I  
( $h=3/4H$ )



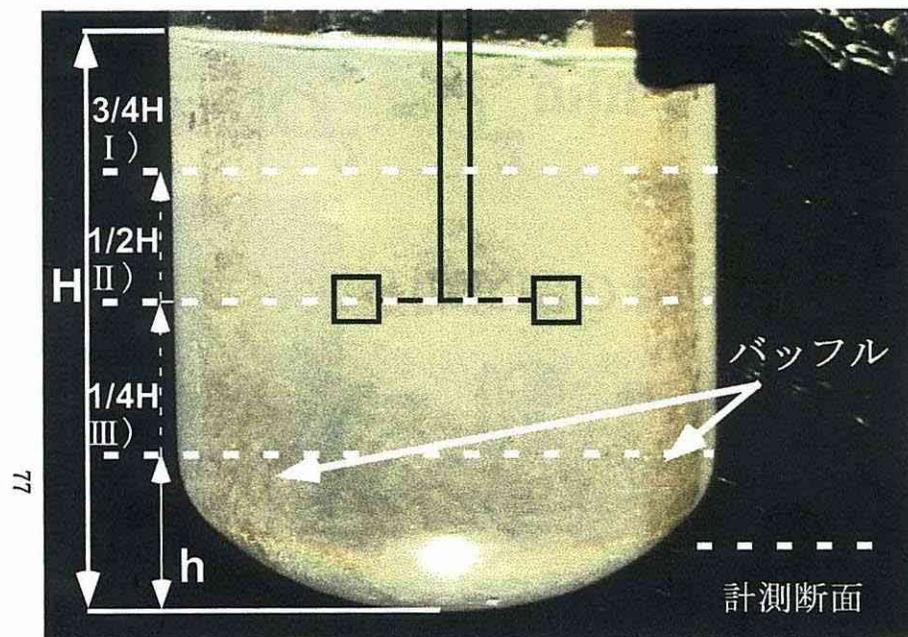
c) 計測断面 II  
( $h=1/2H$ )



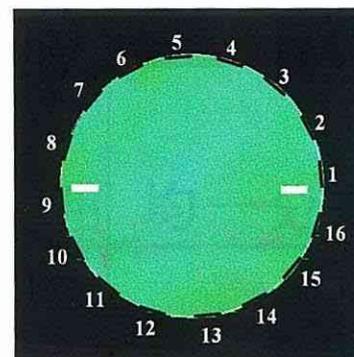
d) 計測断面 III  
( $h=1/4H$ )



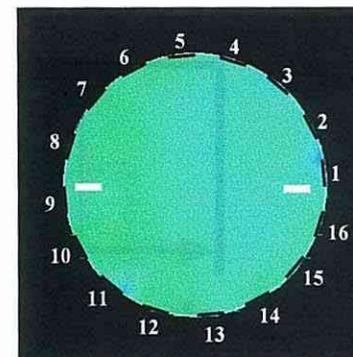
図7.4 反応開始直後における液滴分散状態の可視化写真およびトモグラフィ画像の一例 ( $N=3.5\text{s}^{-1}$ ,  $\phi=0.1$ ,  $T=80^\circ\text{C}$ )



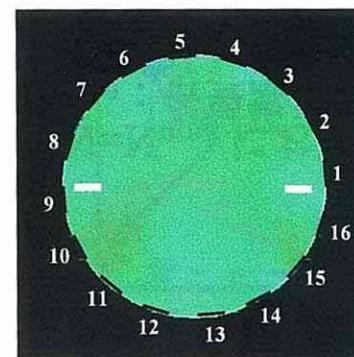
a) 可視化写真の一例



b) 計測断面 I  
( $h=3/4H$ )



c) 計測断面 II  
( $h=1/2H$ )



d) 計測断面 III  
( $h=1/4H$ )

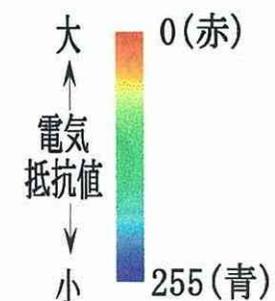


図7.5 反応開始直後における液滴分散状態の可視化写真およびトモグラフィ画像の一例 ( $N=4.5\text{ s}^{-1}$ ,  $\phi=0.1$ ,  $T=80^\circ\text{C}$ )

分散( $\sigma^2$ )の定義式

$$\sigma^2 = \frac{\sum_{i=1}^e (A - a_e)^2}{e} \quad (7-2)$$

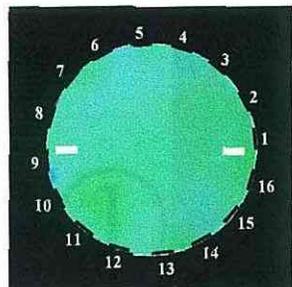
小 ←  $\sigma^2$  → 大  
良好 ← 分散状態 → 不良

A :  $N=N_{\max}$  における  $a_1 \sim a_e$  の平均値[-]  
 $a_1 \sim a_e$  : 各要素における電気抵抗値の変化量[-]  
e : 要素数[-]  
N : 翼回転数 [ $s^{-1}$ ]  
 $N_{\max}$  : 液自由表面からの気泡の巻き込みの  
起こらない最大の翼回転数 [ $s^{-1}$ ]  
 $\sigma^2$  : 分散[-]

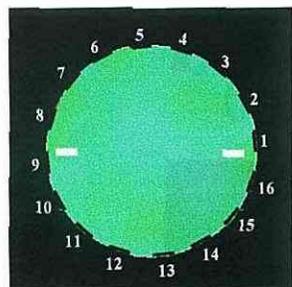
安定な液滴分散状態の判定式

$$\left| \frac{\sigma^2 - \sigma_{\min}^2}{\sigma_{\min}^2} \right| \leq 0.05 \quad (7-3)$$

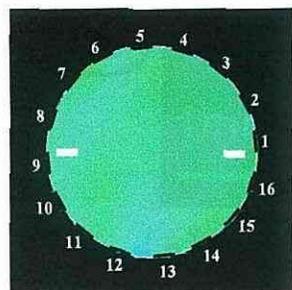
$\sigma_{\min}^2$  :  $N=N_{\max}$  における  $\sigma^2$  の値[-]



a) 計測断面 I



b) 計測断面 II



c) 計測断面 III



付図  $N=N_{max}$  ( $8.0s^{-1}$ ) における  
 トモグラフィ画像の一例  
 ( $\phi=0.1, T=80^{\circ}C$ )

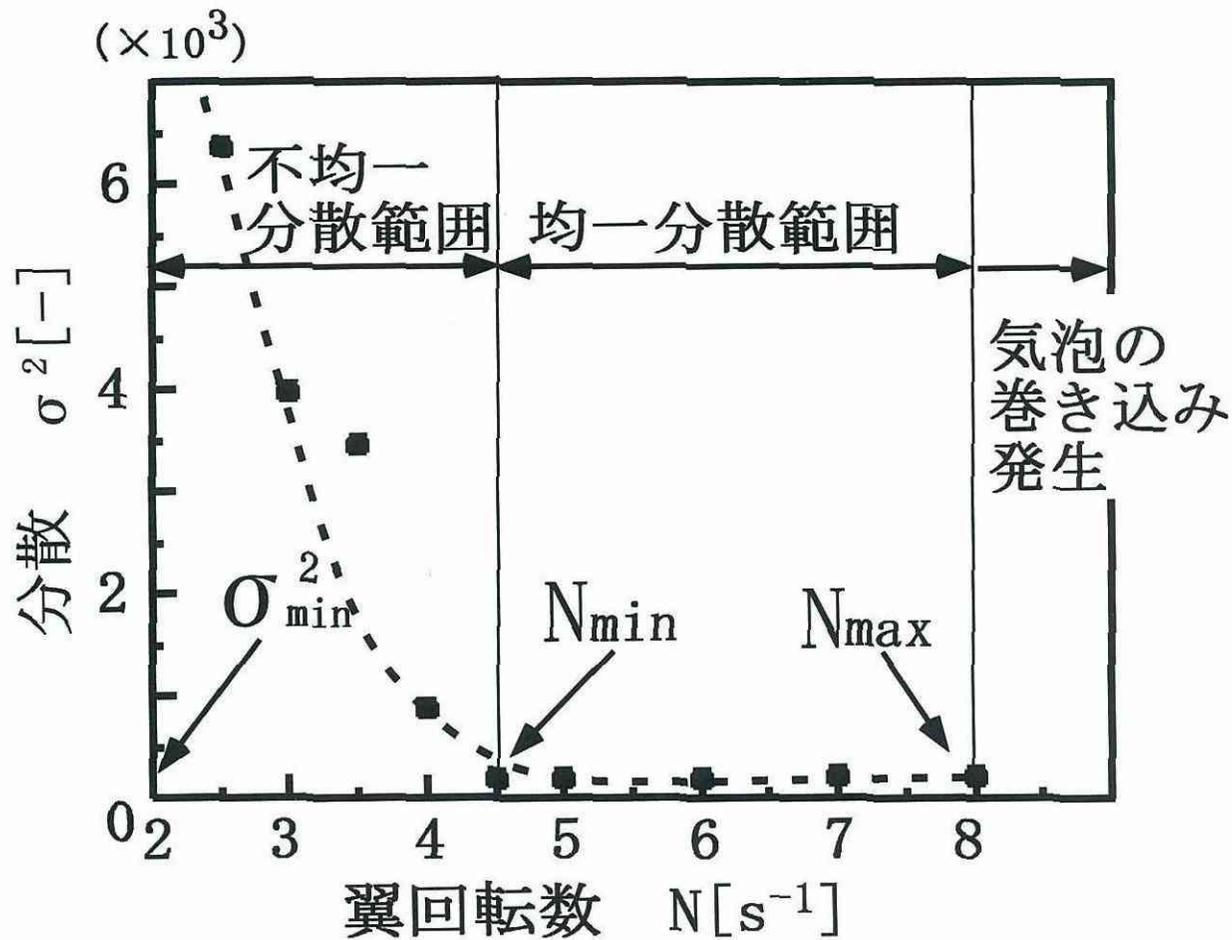


図7.6  $\phi=0.1$  における  $N$  と  $\sigma^2$  の関係

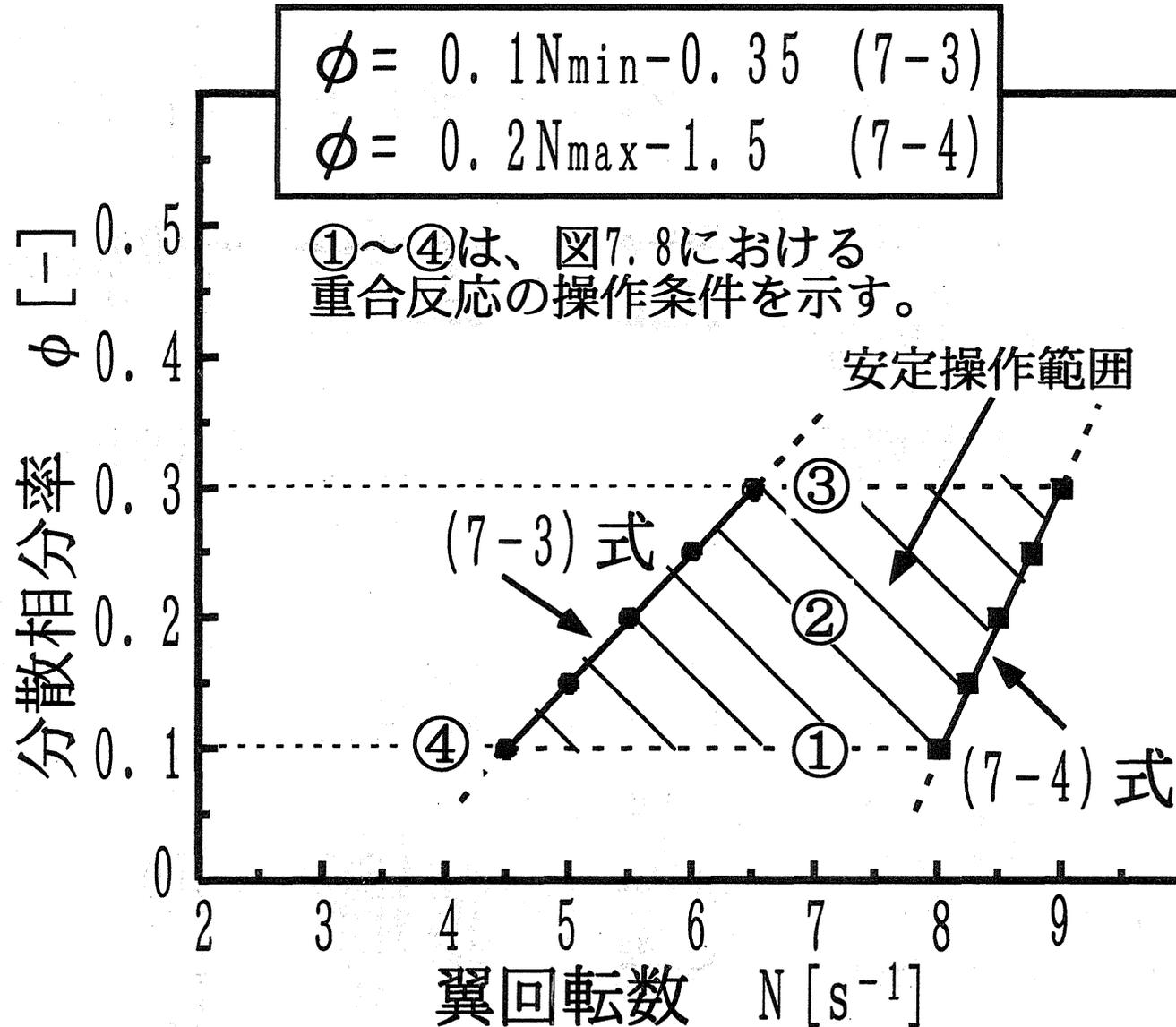
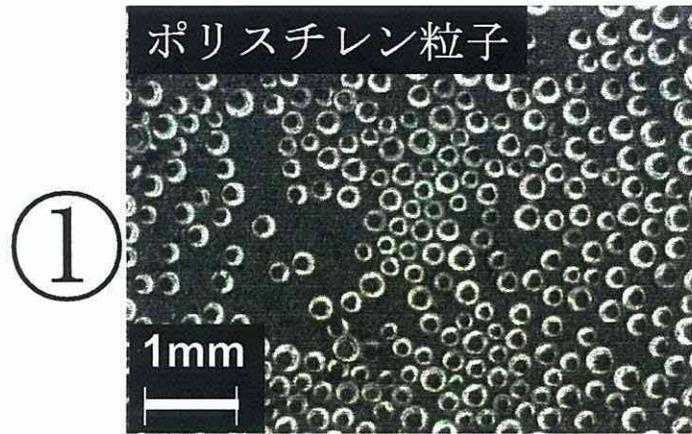
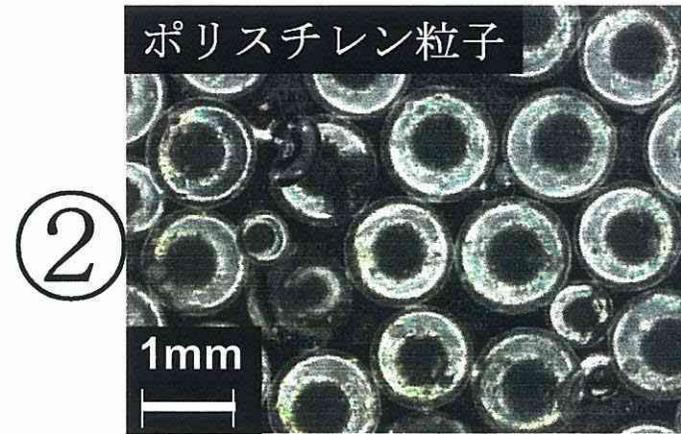


図7.7 反応開始直後の液滴分散状態から決定した安定操作範囲の一例

(重合温度、開始剤濃度、懸濁安定剤濃度は表1参照)



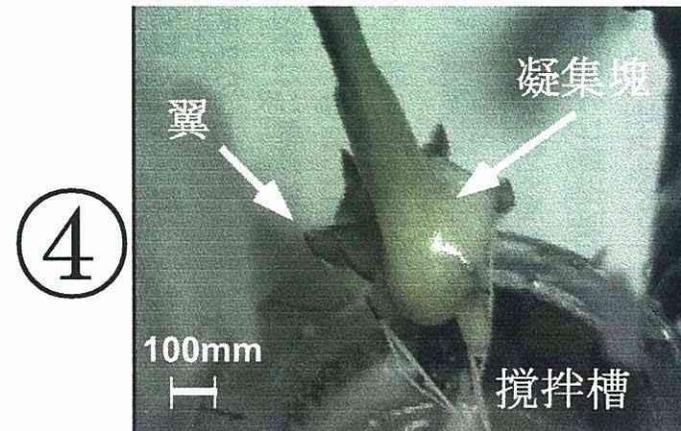
a) 操作条件が①のとき  
( $N=7.0 \text{ s}^{-1}$ ,  $\phi=0.1$ ,  $T=80^\circ\text{C}$ )



b) 操作条件が②のとき  
( $N=7.0 \text{ s}^{-1}$ ,  $\phi=0.2$ ,  $T=80^\circ\text{C}$ )



c) 操作条件が③のとき  
( $N=7.0 \text{ s}^{-1}$ ,  $\phi=0.3$ ,  $T=80^\circ\text{C}$ )



d) 操作条件が④のとき  
( $N=4.0 \text{ s}^{-1}$ ,  $\phi=0.1$ ,  $T=80^\circ\text{C}$ )

a)~c)は50倍で撮影

図7.8 本研究にて決定した安定操作範囲内にて生成した  
ポリマー粒子、および範囲外にて生成した凝集塊の写真例  
(同図中①~④は図7.7参照。開始剤濃度、懸濁安定剤濃度は表1参照。)

## 8章 懸濁重合反応場における液滴分散状態の連続的トモグラフィ計測<sup>1)</sup>

### 8.1 はじめに

前章までに電気抵抗方式トモグラフィ計測システムを用いて、コールドモデル(重合反応開始直後)における液滴分散状態を種々の操作条件において計測し、その結果より重合反応を安定に遂行するための定量化した操作範囲を決定した。

本章ではさらに、実際の懸濁重合反応場において、液滴の集塊化が起こりやすくなる反応中期から後期を含んだ連続的な液滴分散状態の計測を行い、安全に重合反応を遂行するための知見を得た。

### 8.2 計測方法

図 8.1 に、計測方法概略を示した。攪拌槽には槽径 100mm、全容積 1000ml のガラス製円筒丸底槽を用い、攪拌翼には、翼径 50mm のステンレス製 6 枚羽根ディスクタービン翼を用い液深の 1/2 に設置した。また、対象とする重合反応は、スチレンの懸濁重合反応である。

同図に示す状況にて、翼回転数(N)、および分散相分率( $\phi$ )などを操作条件として重合反応を開始し、各操作条件における液滴の分散状態を計測した。なお、重合温度(T)は 80°Cとし、連続相(水)には 0.01mol/l KCl を添加した。また、分散剤には PVA、および燐酸カルシウム、開始剤には過酸化ベンゾイルを用いた。表 8.1 に、計測条件を示した。

### 8.3 液滴分散状態の定量的評価

本計測システムにて得られた画像より、攪拌槽内における液滴の分散状態を定量的に評価するため、(8-1)式に示す分散( $\sigma^2$ )を用いた。

$$\sigma^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (A - a_i)^2}{n} \quad (8-1)$$

この  $\sigma^2$  の値が小さな値を示すほど計測断面における電気抵抗値分布のムラが少なく、液滴が槽内を均一に分散していることを示す。

#### 8.4 計測結果、および考察

図 8.2 に、分散相分率と濃度階調の関係を示す。濃度階調の値(255~0)が小さくなるほど槽内の電気抵抗値が大きく、スチレンの懸濁濃度が高いことを示す。

図 8.3~8.5 に、各反応時間における液滴分散状態の画像の一例を示す。いずれの画像も計測断面は、翼設置位置である  $h=1/2H$  の位置とした。

図 8.3 は反応が最後まで良好に進行し、完全にポリマー粒子が得られた(付図参照)操作条件である(付表参照)。得られた画像はいずれの反応時間においてもほぼ一様な電気抵抗値分布を示している。これは、 $\sigma^2$  がほぼ一定値を示していることから確認できる。

図 8.4 は 8.3 に対し、翼回転数を下げ、また、分散剤(このときは磷酸カルシウムを用いた。)量も減らしたときにおける画像の一例である(操作条件については付表参照)。ポリマー粒子は得られた(付図参照)ものの、粒子径は図 8.3 のときに比べてやや大きく、また収率も悪くなることを確認した。その分、液自由表面付近の攪拌軸などには凝集塊が生成した(付図参照)。得られた画像も、反応開始より 120 分までは一様な電気抵抗値分布を示しているが、180 分後には電気抵抗値が全体的に小さくなり、初期状態に近くなっている。 $\sigma^2$  もこの状態を反映し、やや大きな値となった。これは 120 分~180 分の間で液滴が重合反応により高粘度となり、分散剤の量が不足していたため、液自由表面で液滴を良好に分散しきれず、凝集塊として攪拌軸に付着してしまったためであると考えられる。

図 8.5 は 8.4 と翼回転数は同値とし、分散剤量をさらに減らしたときにおける画像の一例である(操作条件については付表参照)。このとき液滴は最終的にバッフルなどに大きな凝集塊として付着してしまい、ポリマー粒子は得られなかった。これは、分散剤量が不足していたことが最大の原因であると考えられる。得られた画像も 120 分までは良好な分散状態を示していたが、180 分後にはバッフル位置に凝集塊が生成していることを示している。このとき、 $\sigma^2$  は 6057 と格段に大きな値となった。

図 8.6 に各操作条件における反応時間に対する  $\sigma^2$  の変化を示した。反応が良好に進行する際は  $\sigma^2$  はほぼ一定値となるが、凝集塊が生成してしまう場合は格段に大きくなることが判る。さらに両者の中間段階の状態(図中△印)を検知することができた。同状態で、分散剤の再投入や、翼回転数を変化させることで、重合反応を制御できるものと期待される。

これより、本計測システムを用いることで、重合反応過程における操作条件の違いによる凝集塊生成の有無を判別することができ、本計測システムを懸濁重合反応場における

液滴分散状態の計測さらには同反応の制御に適用できることが判った。

## 8.5 むすびに

本研究で試作した電気抵抗方式トモグラフィー測定システムを、懸濁重合反応場に適用し、反応過程を連続的に計測した。

得られた画像をもとに、分散( $\sigma^2$ )を用いることで、液滴が均一に分散しているか否かを定量的に判別することができた。

また、反応過程中期から後期において、操作条件によっては、液滴の集塊化が起こり、反応が良好に進行しない場合を、トモグラフィー画像として得ることができた。

これより、今後、本計測システムにより得られる画像をもとに、重合反応を常に安定な状態で遂行することができるよう、精密に制御するシステムを構築するための骨格を得ることができた。

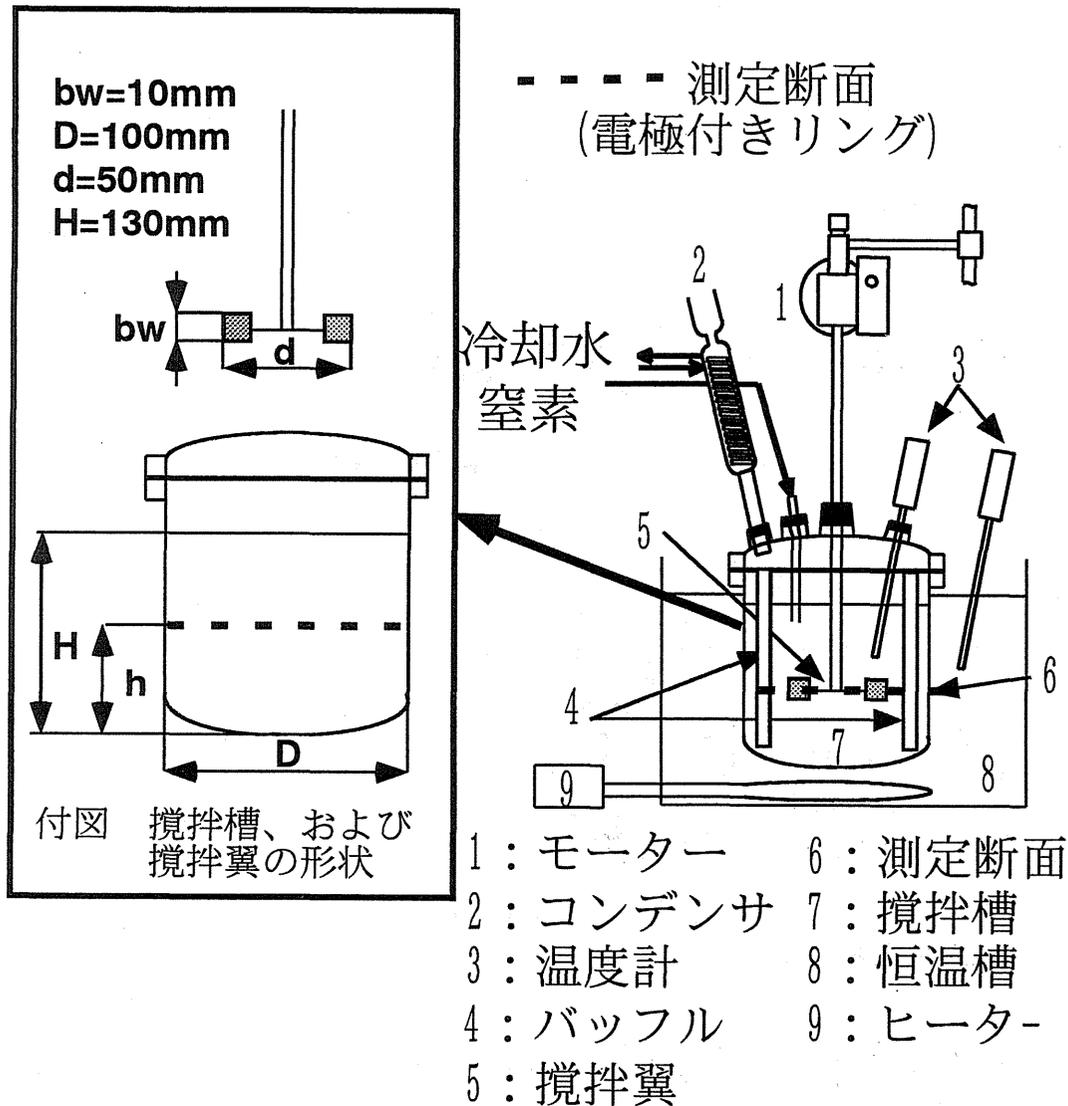


表8.1 測定条件

連続相:	イオン交換水	700~900ml
懸濁安定剤:	C=0.01~0.1wt%-イオン交換水 (ポリビニルアルコール, 燐酸カルシウム)	
	KCl:	0.01mol/l-イオン交換水
分散相:	スチレン	$\phi=0.1\sim0.3$ (分散相分率)
重合開始剤:	0.04mol/l-スチレン (過酸化ベンゾイル)	
攪拌翼:	6枚ディスクタービン翼 (液深の1/2に設置)	
翼回転数:	$N=2.5\sim9.0\text{ s}^{-1}$	
重合温度:	$T=353\text{K}$	

図8.1 測定方法概略

分散( $\sigma^2$ )の定義式

$$\sigma^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (A - a_i)^2}{n} \quad (8-1)$$

小 ←  $\sigma^2$  → 大  
良好 ← 分散状態 → 不良

A :  $N=N_{\max}$  における  $a_1 \sim a_i$  の平均値[-]  
 $a_1 \sim a_i$  : 各要素における電気抵抗値の変化量[-]  
n : 要素数[-]  
N : 翼回転数[s<sup>-1</sup>]  
 $N_{\max}$  : 液自由表面からの気泡の巻き込みの  
起こらない最大の翼回転数[s<sup>-1</sup>]  
 $\sigma^2$  : 分散[-]

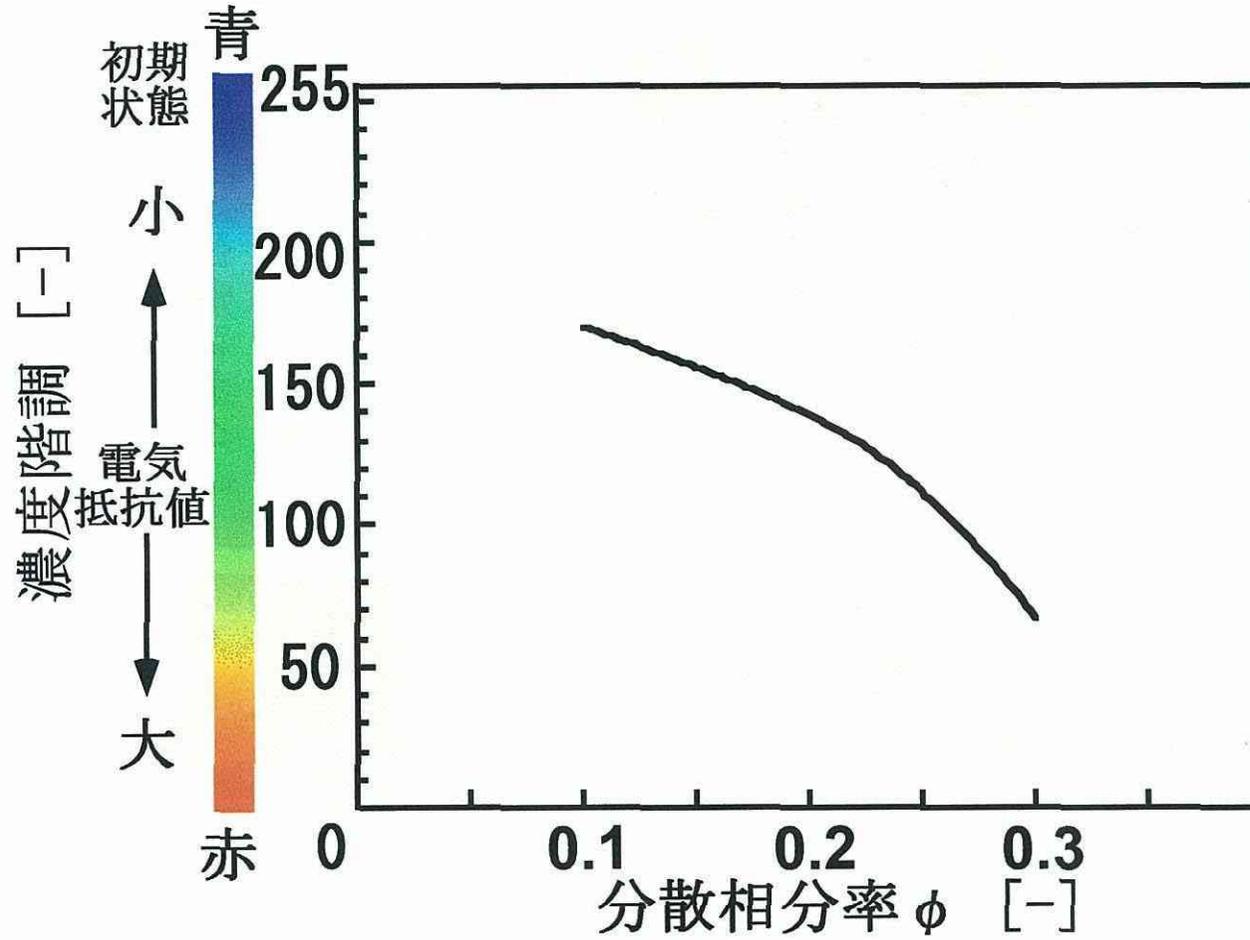
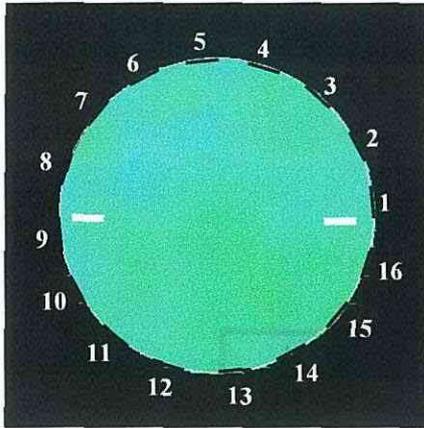
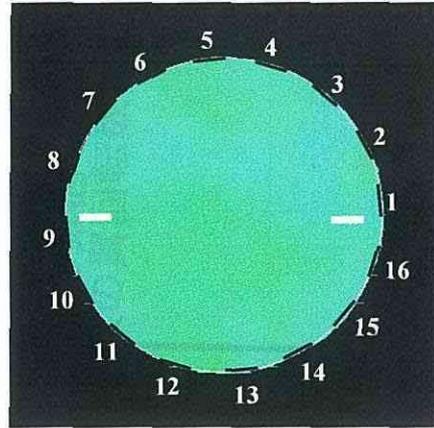


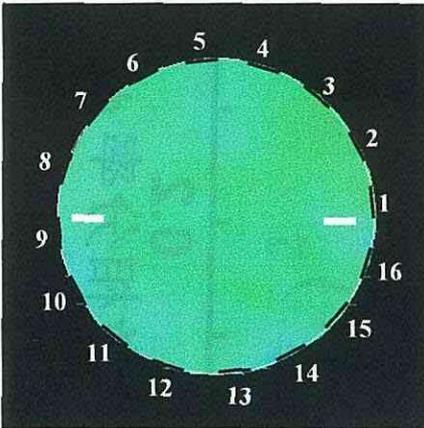
図8.2 分散相分率と濃度階調の関係



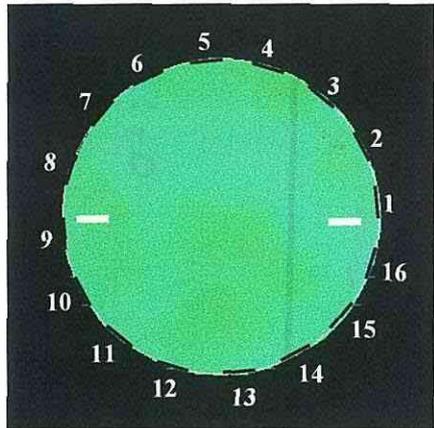
a) 60分後  
 $\sigma^2 = 203$



b) 120分後  
 $\sigma^2 = 204$

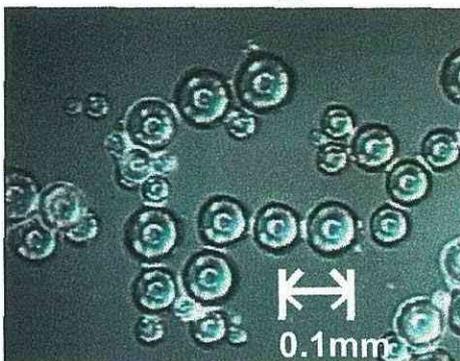


c) 180分後  
 $\sigma^2 = 210$



d) 240分後(反応終了)  
 $\sigma^2 = 203$

84



付図 得られたポリマー写真の一例

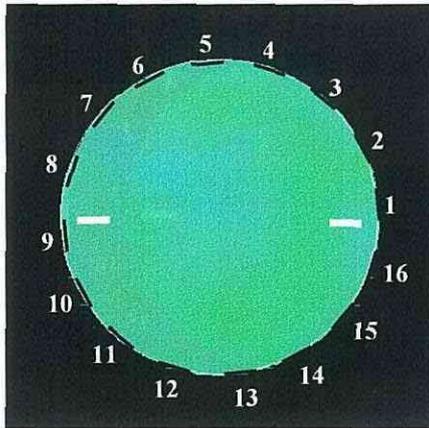
付表 主な操作条件

分散相分率( $\phi$ ) : 0.1

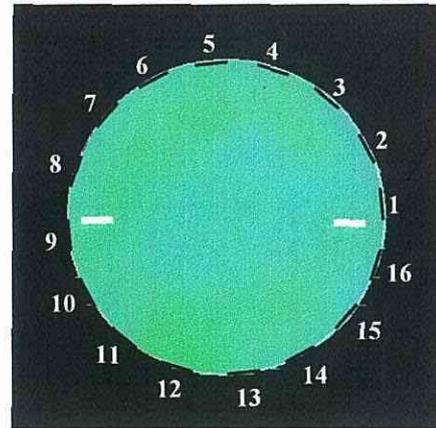
翼回転数(N) : 8.0 s<sup>-1</sup> (Nmax)

分散剤濃度(C) : 0.1wt%-水  
(ポリビニルアルコール)

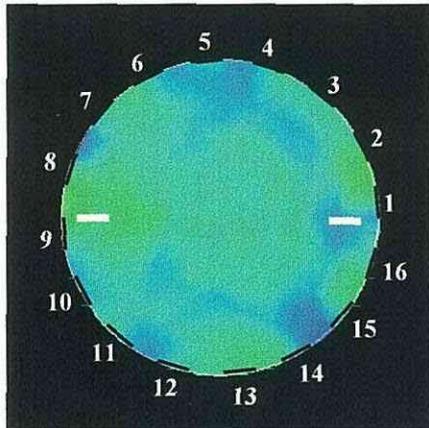
図8.3 各反応時間における液滴分散状態の画像の一例 (h=1/2H)



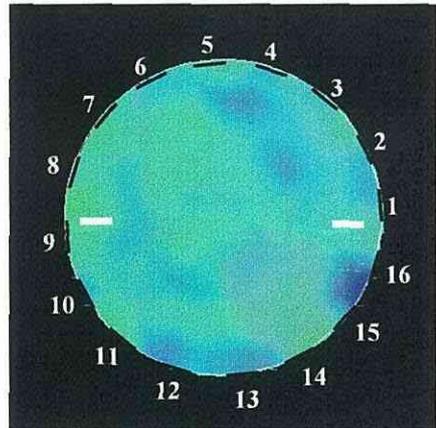
a) 60分後  
 $\sigma^2 = 205$



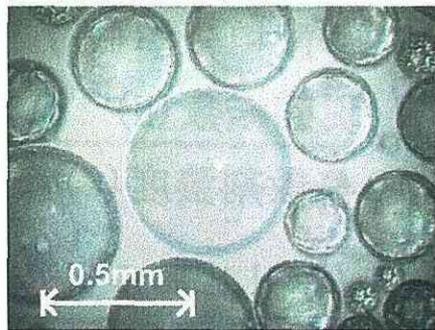
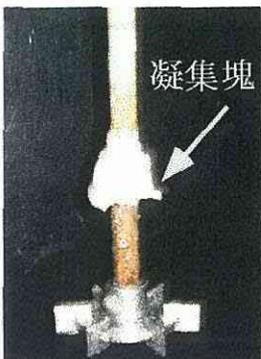
b) 120分後  
 $\sigma^2 = 201$



c) 180分後  
 $\sigma^2 = 763$



d) 240分後(反応終了)  
 $\sigma^2 = 720$

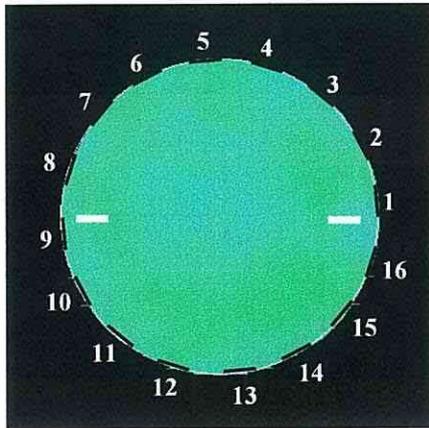


付表 主な操作条件

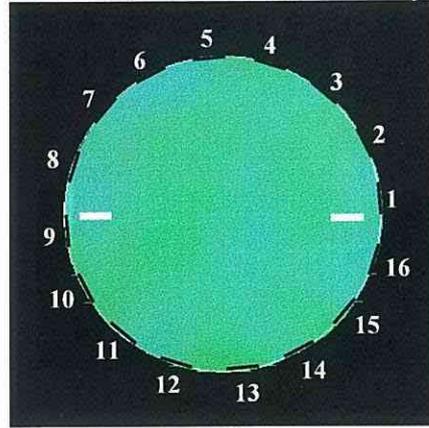
分散相分率 ( $\phi$ )	: 0.1
翼回転数 (N)	: $5.5 \text{ s}^{-1}$
分散剤濃度 (C)	: 0.05wt% -イオン交換水 (磷酸カルシウム)

付図 反応終了後の攪拌翼と軸の写真、  
および得られたポリマー写真の一例

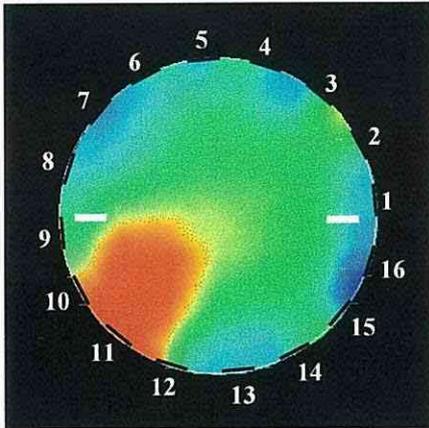
図8.4 各反応時間における  
液滴分散状態の画像の一例 ( $h=1/2H$ )



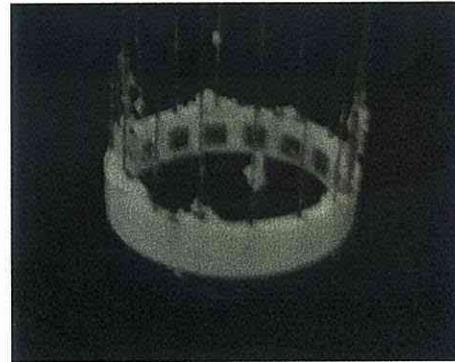
a) 60分後  
 $\sigma^2 = 205$



b) 120分後  
 $\sigma^2 = 208$



c) 180分後  
 $\sigma^2 = 6057$



付図1 180分後における  
電極リングの写真例



付図2 180分後におけるバッフルに  
付着した凝集塊の写真例

付表 主な操作条件

分散相分率( $\phi$ ) : 0.1

翼回転数(N) : 5.5 s<sup>-1</sup>

分散剤濃度(C) : 0.01wt%  
-イオン交換水  
(ポリビニルアルコール)

図8.5 各反応時間における  
液滴分散状態の画像の一例

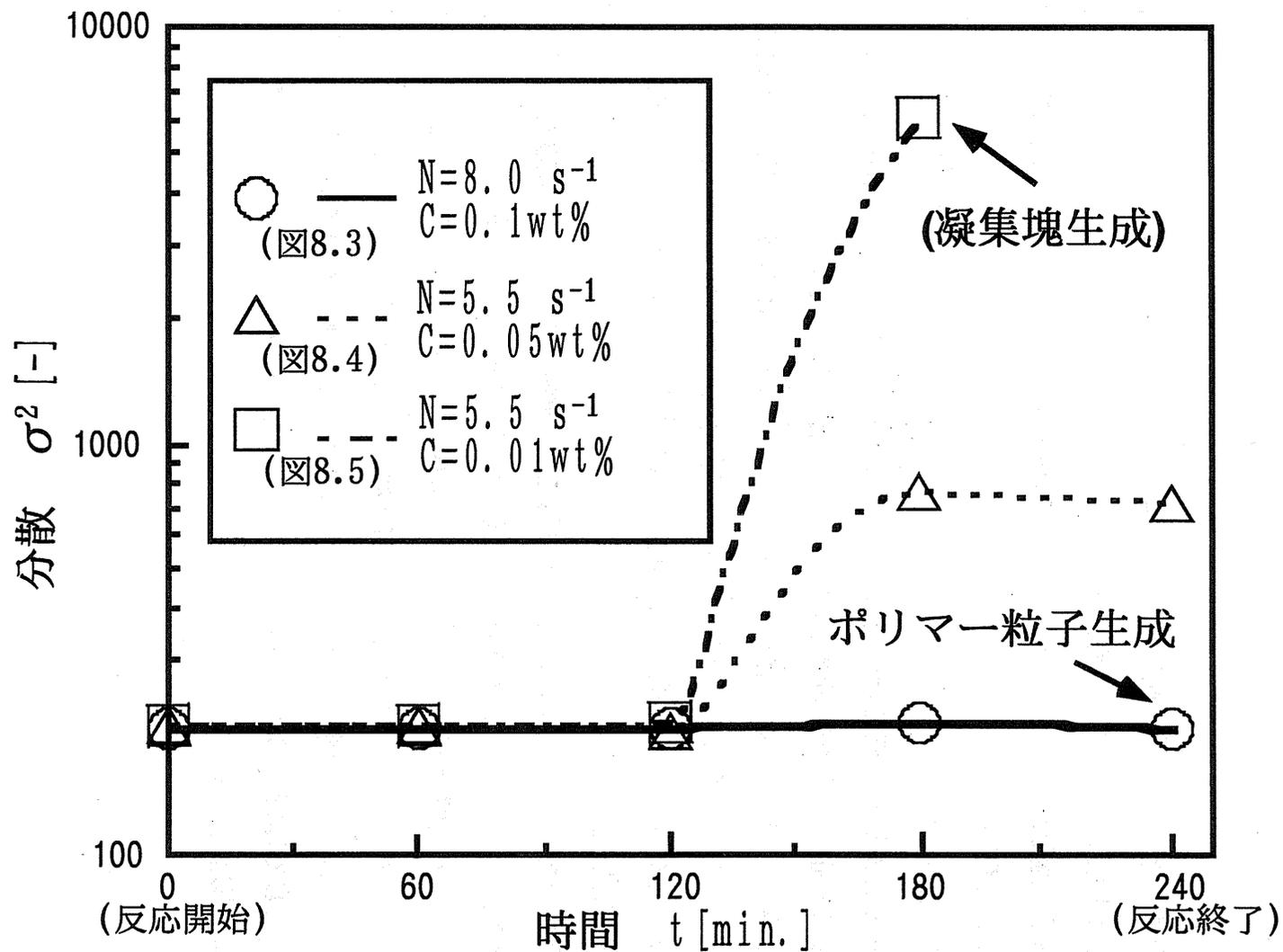


図8.6 反応時間 ( $t$ ) に対する分散 ( $\sigma^2$ ) の変化

## 9章 総括

CT スキャンの技術を応用した電気抵抗方式トモグラフィー計測システムの試作・検討を行った。第2章、第3章では、計測回路、計測用攪拌槽、および画像構成用ソフトウェアの各々について検討を行った。

以下の章では本計測システムを用いて、液相攪拌槽内における異相懸濁状態の計測を行った。

まず、第4章では、予備実験として、液相がニュートン流体のときにおける固・液系、気・液系の計測を行った。また、液相が非ニュートン流体のときにおける気・液系の計測を行い、得られた画像は、それぞれについて攪拌槽内における流動・分散状態を良好に把握していることが判った。

第5章では本計測システムを、塑性流体のカバーン形成状態の計測に用いた。可視化実験や熱的判定法との比較を行い、翼回転数や、流体のレオロジーなどの違いによるカバーン形成状態の違いを明瞭に画像として得られることが判った。

第6章、第7章では、本計測システムを懸濁重合反応場における液滴分散状態の計測に用いた。操作条件を各種変えた場合における重合反応開始直後(コールドモデル)の液滴分散状態のトモグラフィー画像より、重合反応を安定に遂行していくための定量化した操作範囲を決定した。

さらに第8章では、重合反応過程全体を通して連続的に液滴分散状態を計測した。反応が最後まで良好に進行する際の液滴分散状態の画像を得ることができた。これに対し、翼回転数や分散剤濃度などをパラメータとする操作条件によっては、反応過程において、液滴の集塊化が発生した。この様子の一例を画像として得ることもできた。

これより、今後、本計測システムによる計測から得られる画像をもとに、重合反応を常に安定な状態で遂行することができるよう、精密に制御するシステムの構築を検討するための基本構造を形成することができた。

<使用記号>

(2章)

M	:	電極の組み合わせ数	[-]
$E_n$	:	電極数	[-]
N	:	サンプル数	[-]
N	:	補間関数	[-]
$\theta$	:	位相シフト量	[rad]
$I_0, i_0$	:	電流	[A]
$\sigma$	:	導電率	$[\Omega^{-1} \cdot m^{-1}]$
$v, v$	:	要素内の解析による電圧値	[V]
n	:	節点数	[-]
a	:	補間関数で用いられる係数	[-]
b	:	補間関数で用いられる係数	[-]
D	:	各要素の面積	$[m^2]$
R	:	残差	[-]
V	:	解析による境界電圧	[-]
A	:	係数行列(= $\Sigma [A^{(e)}]$ )	$[1/\Omega]$
$n_x$	:	法線ベクトルの x 成分	[-]
$n_y$	:	法線ベクトルの y 成分	[-]
C	:	外力ベクトル(= $\Sigma [C^{(e)}]$ )	[I]
$\beta$	:	規格化した要素面積(各要素/全要素)	[-]
S	:	感度行列	[-]
$v_{mes}$	:	計測した境界電圧	[V]
P	:	初期状態からの電気抵抗値分布の変化量	[-]

(3章)

h	:	計測断面高さ	[m]
I	:	電流	[A]
V	:	電圧	[V]

$V_{mes}$  : 計測した境界電圧 [V]

(4 章)

$b_v$  : 羽根径 [m]

$b_w$  : 羽根高さ [m]

$D$  : 槽径 [m]

$d$  : 翼径 [m]

$d_c$  : ディスク径 [m]

$k_c$  : Casson 粘度 [ $\text{Pa}^{1/2}\text{s}^{1/2}$ ]

$H$  : 液深 [m]

$h$  : 計測断面高さ [m]

$n$  : 翼回転数 [ $\text{s}^{-1}$ ]

$t$  : 経過時間 [s]

$\tau$  : せん断応力 [Pa]

$\tau_0$  : Casson 降伏値 [Pa]

$\gamma$  : せん断速度 [ $\text{s}^{-1}$ ]

(5 章)

$Bi_c$  : 修正ビンガム数 [-]

$b_w$  : 羽根高さ [m]

$C$  : KCl 濃度 [mol/l]

$C_h$  : カバーン高さ [m]

$C_w$  : カバーン幅 [m]

$D$  : 槽径 [m]

$d$  : 翼径 [m]

$H$  : 液深 [m]

$h$  : 計測断面高さ [m]

$N, n$  : 翼回転数 [ $\text{s}^{-1}$ ]

$N_p$  : 動力数 [-]

$P$  : 攪拌所要動力 [W]

$Re_c$	:	修正レイノルズ数	[-]
$V$	:	攪拌槽体積	[m <sup>3</sup> ]
$V^*$	:	無次元カバーン液体積	[-]
$V_c$	:	カバーン液体積	[m <sup>3</sup> ]
$\gamma$	:	せん断速度	[s <sup>-1</sup> ]
$\kappa$	:	電気伝導率	[ $\Omega^{-1}cm^{-1}$ ]
$\eta_c$	:	Casson 粘度	[Pa·s]
$\rho$	:	密度	[kg/m <sup>3</sup> ]
$\tau$	:	せん断応力	[Pa]
$\tau_c$	:	Casson 降伏値	[Pa]

### (6 章)

$bw$	:	羽根高さ	[m]
$D$	:	槽径	[m]
$d$	:	翼径	[m]
$H$	:	液深	[m]
$h$	:	計測断面高さ	[m]
$N$	:	翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
$T$	:	反応温度	[K]
$\phi$	:	分散相分率	[-]

### (7 章)

$A$	:	$N=N_{max}$ における $a_1 \sim a_e$ の平均値	[-]
$a_1 \sim a_e$	:	各要素における電気抵抗値の変化量	[-]
$bw$	:	羽根高さ	[m]
$D$	:	槽径	[m]
$d$	:	翼径	[m]
$e$	:	要素数	[-]
$H$	:	液深	[m]
$h$	:	計測断面高さ	[m]

N	:	翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
Nmax:		液自由表面からの気泡の巻き込みの起こらない 最大の翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
Nmin:		はじめて均一分散が達成されたときの翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
T	:	反応温度	[K]
$\sigma^2$	:	分散	[-]
$\sigma^2$ min:		N=Nmaxにおける $\sigma^2$ の値	[-]
$\phi$	:	分散相分率	[-]

(8章)

A	:	N=Nmaxにおけるa <sub>1</sub> ~a <sub>e</sub> の平均値	[-]
a <sub>1</sub> ~a <sub>e</sub> :		各要素における電気抵抗値の変化量	[-]
bw	:	羽根高さ	[m]
C	:	分散剤濃度	[wt%]
D	:	槽径	[m]
d	:	翼径	[m]
e	:	要素数	[-]
H	:	液深	[m]
h	:	計測断面高さ	[m]
N	:	翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
Nmax:		液自由表面からの気泡の巻き込みの起こらない 最大の翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
Nmin:		はじめて均一分散が達成されたときの翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
T	:	反応温度	[K]
t	:	反応時間	[min.]
$\sigma^2$	:	分散	[-]
$\sigma^2$ min:		N=Nmaxにおける $\sigma^2$ の値	[-]
$\phi$	:	分散相分率	[-]

## <参考文献>

### (1章)

- 1) F. Dickin, M. Wang ; Electrical Resistance Tomography for Process Applications, Meas. Sci. Technol., 7, 247-260(1996)
- 2) P. J. Holden, M. Wang, R. Mann, et al. ; Imaging Stirred-Vessel Macromixing Using Electrical Resistance Tomography, AIChE Journal, 44, 780-789(1998)
- 3) R.Mann et al. : 1st World Congress on Industrial Process Tomography,78-83,(1999)
- 4) T.Dyakowski et al. : 1st World Congress on Industrial Process Tomography,113-119,(1999)
- 5) M.Machida et al. : 1st World Congress on Industrial Process Tomography,560-562,(1999)
- 6) M.B.Utomo、内田ら : 化学工学会第 65 年会要旨集,C103,(2000,東京)
- 7) Campus Resistivity Products, Campus Geophysical Instruments Ltd, Vincent Drive, Edgbaston, Birmingham B15 2SQ
- 8) P. Tsourlos, J. E. Szymanski, R. Ogilivy and P. Jackson ; Inversion of earth resistivity data from the multi-electrodes RESCAN system 57th EAEG Meeting, Glasgow, June 1995 submitted (1995)
- 9) B. H. Bown, D. C. Barber, W. Wang, L. Lu, L. H. Leathard, R. H. Smallwood, A. R. Hampshire, R. Mackay and K. Hatzigalanis ; Multi-frequency imaging and modelling of respiratory related electrical impedance changes, Physiol. Meas., A15, 1-12(1994)
- 10) P. M. Record, ; Single-plane multifrequency electrical impedance instrumentation, Physiol. Meas., A15, 29-36(1994)
- 11) R. Mann, F. Dickin, M. Wang, et al. ; Application of electrical resistance tomography to interrogate mixing processes at plant scale, Chem. Eng. Sci., vol.52, 13, 2087-2097(1997)

(2 章)

- 1) F. Dickin, M. Wang ; Electrical Resistance Tomography for Process Applications, Meas. Sci. Technol., 7, 247-260(1996)
- 2) R. W. M. Smith, I. L. Freeston, B. H. Brown and A. M. Sinton ; Design of a phase-sensitive detector to maximize signal-to-noise ratio in the presence of Gaussian wideband noise, Meas. Sci. Technol., 3, 1054-1062(1992)
- 3) C. J. Kotre ; EIT image reconstruction using sensitivity weighted filtered backprojection, Phys. Meas., A15, 125-136(1994)
- 4) R. A. Williams, M. S. Beck : Process Tomography -Principles, Techniques And Applications-, p.301(1995)
- 5) 小貫 天, 根本 佐久良雄 : パソコンコンピュータによる 有限要素法入門, オーム社(1986)

(3 章)

- 1) D. J. Nowicki and J. G. Webster ; A one-amp current source for electrical impedance tomography, Proc. Ann. Int. Conf. IEEE Eng. Med. Biol. Soc., 11, 457-458(1989)

(4 章)

- 1) P. J. Holden, M. Wang, R. Mann, et al. ; Imaging Stirred-Vessel Macromixing Using Electrical Resistance Tomography, AIChE Journal, 44, 780-789(1998)
- 2) P. J. Solomon, T. P. Elson, A. W. Nienow ; Chem. Eng. Commun., 11, 143-164(1981)

(5 章)

- 1) 新井、上ノ山、上和野ら : 化学工学論文集,16,946-952,(1990)
- 2) 上和野、上ノ山、仁志、水島 : 化学工学論文集,26,669-674,(2000)
- 3) 上和野、上ノ山、仁志、和田 : 化学工学会第 32 回秋季大会要旨集,R109,(1999,金沢)
- 4) 上和野、上ノ山、仁志、和田 : 化学工学会第 33 回秋季大会要旨集,J205,(2000,浜松)

- 5) P. J. Solomon, T. P. Elson, A. W. Nienow ; Chem. Eng. Commun., 11, 143-164(1981)
- 6) 電気化学協会：第4版電気化学便覧,P81,丸善,(1985)
- 7) 上和野、上ノ山、仁志、佐々木：化学工学会第64年会要旨集,S116,(1999,名古屋)
- 8) 上和野、上ノ山、仁志、佐々木：化学工学会第65年会要旨集,A304,(2000,東京)

(6章)

- 1) 上和野、上ノ山、仁志、和田：化学工学会第65年会要旨集,A207,(2000,東京)
- 2) 上和野監修,鷺見ら：“攪拌・混合におけるトラブル発生要因と防止対策”,245-248,  
(技術情報協会,1996)
- 3) 宮田ら：化学工学論文集,25(5),789-795,(1999)

(7章)

- 1) 上和野、上ノ山、仁志、和田：化学工学会関東大会要旨集,D108,(2000,つくば)
- 2) 上和野監修,鷺見ら：“攪拌・混合におけるトラブル発生要因と防止対策”,245-248,  
(技術情報協会,1996)
- 3) 宮田ら：化学工学論文集,25(5),789-795,(1999)
- 4) R.Sinnar et al. : Ind.Eng.Chem,6,479-484,(1961)

(8章)

- 1) 上和野、上ノ山、仁志、和田：化学工学会第66年会要旨集,G114,(2000,広島)

添付 研究発表 (1)学会誌等

- 1)Kaminoyama, M., K. Nishi and M. Kamiwano : Tomography Measurements of Suspension and Dispersion States of the Polymerization Field in a Stirred-type Reactor , Proceedings of Nihon Kongsouryugakkai Nennkai-Kouennkai 2001, International Session on Tomography, OS-1, B19 (13<sup>th</sup> -July-2001), Kokura (Japan)

# Tomography Measurements of Suspension and Dispersion States of the Polymerization Field in a Stirred-type Reactor

Kaminoyama Meguru, Nishi Kazuhiko, Kamiwano Mitsuo

Yokohama National University

**Abstract** We measured, in a continuous manner using a tomographic technique, the dispersion state of suspension polymer products in a stirred-type reactor. We found, quantitatively, the relationship between the quality of the reaction state in polymerization and the operating conditions, such as impeller rotational speeds and concentrations of dispersion reagents. We obtained, thereby, information useful for performing suspension polymerization stably in a reactor and, further, for controlling the reaction finely to obtain polymer products of higher quality.

**Keywords:** Tomography Measurement, Suspension Polymerization, Dispersion State

## 1. INTRODUCTION

It was important to uniformly disperse the droplets of liquid monomer in the whole region of the stirred vessel [1,2], so that we were able to perform suspension polymerization stably, which is a typical polymerization reaction method. In this study, we applied the Electrical Resistance Tomography Method to the suspension polymerization field. We utilized the difference in electrical resistance between the aqueous phase, i.e., the reaction solvent, and the oil phase, both monomer and polymer[3]. We measured in a continuous manner, the dispersion states of liquid droplets, that is, the reaction states from the initial stage to the middle stage, when the polymer droplets are apt to agglomerate, and through to the last stage in the polymerization. The measurements of electrical resistance were made by electrodes set circumferentially along the inner surface of the vessel. We obtained, thereby, information useful for performing suspension polymerization stably in a reactor.

## 2. PRINCIPLE OF MEASUREMENT

Figure 1. shows the schematic diagram of the cross section for the measurements in a stirred vessel [4,5]. We set 16 electrodes at equal intervals along a Teflon ring with a diameter nearly equal to the diameter of the vessel (i.e., 100 mm). We were able to freely move the ring along the direction of the liquid depth. We inserted the ring into the stirred vessel, measured the voltage between the electrodes in the horizontal cross section and reconstructed the image of the resistance distribution corresponding to the dispersion state of the liquid droplets. We adopted the adjacent method for the voltage measurement. The horizontal cross section for the tomography measurement was divided into 344 triangular elements. The change in electrical resistance from an initial state was determined for each element. We used the index  $\sigma^2$ , the variance, shown in Eq.(1) to quantitatively evaluate the dispersion state of liquid droplets in the measurement section from the image reconstructed by the back projection method[4,5]. The smaller the value of  $\sigma^2$  is, the more uniformly the liquid droplets are dispersed in the vessel

## 3. EXPERIMENTAL APPARATUS AND METHOD

Figure 2. shows the schematic diagram of the experimental apparatus used for the measurement. We used a glass vessel with a round bottom, with a diameter of 100 mm and a total volume of 1000 ml, fitted with a stainless steel, 6-blade, Rushton-turbine impeller 50 mm in diameter. The reaction measured in this study was a suspension polymerization of

styrene. We began the polymerization reaction under the operating conditions of impeller rotational speed,  $N$ , and concentration of the dispersion reagent,  $C$ , shown in Tables 1-3 and measured the dispersion state of oil-phase droplets in each condition. We kept the reaction temperature,  $T$ , at 353K, and used a 0.01 mol/l KCl aqueous solution as the continuous phase. We used PVA or  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$  as a dispersion and stabilizing agents and benzoyl peroxide as an initiator.

## 4. EXPERIMENTAL RESULTS AND DISCUSSION

Figure 3. shows example images reconstructed for operating conditions shown in Table 1 under which the reaction proceeded satisfactorily to the final stage to completely produce high quality polymer particles. We see that each image indicates a uniform distribution of electrical resistance and that  $\sigma^2$  kept constant, i.e., 205.

Figure 4. shows example images reconstructed for different operating conditions than the previous case, i.e., a lower rotational speed and a lower concentration of dispersion reagent  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$  shown in Table 2. Though we were able to produce polymer particles, the particle diameters were rather larger than in the previous case, and the product yields were worse. This was because agglomeration occurred around the rotational impeller shaft in the vicinity of the liquid surface (Refer to the attached photograph). The images reconstructed indicate a uniform distribution up to 120 min from the beginning of the polymerization reaction. The value of electrical resistance at 180 min, however, was reduced in the direction of the initial reaction stage due to the increase in viscosity.

Figure 5. shows example images reconstructed for operating conditions where the rotational speed is the same as, and the concentration of dispersion reagents lower than the Fig. 4 case shown in Table 3. Under these operating conditions, the polymer droplets finally attached as a large lump of agglomeration around the baffles, and we were not able to produce polymer particles. The images reconstructed indicate a satisfactory dispersion state up to 120 min., but the image at 180 min. indicates clearly the presence of the agglomeration in the vicinity of the baffles. The value of  $\sigma^2$  was very large, i.e., 6057.

Figure 6. shows the dynamic changes of  $\sigma^2$  for the reaction for each set of operating conditions. We were able to obtain three patterns corresponding to the reaction states, (1) a good reaction (Fig. 3), (2) agglomeration of polymer and no particles (Fig. 5), and (3) the case intermediate between them (Fig. 4).

## 5. CONCLUSIONS

We applied an electrical resistance tomography measurement system to the styrene suspension polymerization and measured the reaction states in a continuous manner. We were able to judge quantitatively, using the value of  $\sigma^2$  calculated by Eq. (1), based on the reconstructed image, whether the droplets were well dispersed or not. We were able to obtain three cases of reconstructed tomography images corresponding to the reaction states, (1) a good reaction, (2) agglomeration of polymer and no particles, (3) the case intermediate between them. We obtained, thereby, information useful for performing suspension polymerization stably in a reactor and, further, for controlling the reaction finely to obtain polymer products of higher quality

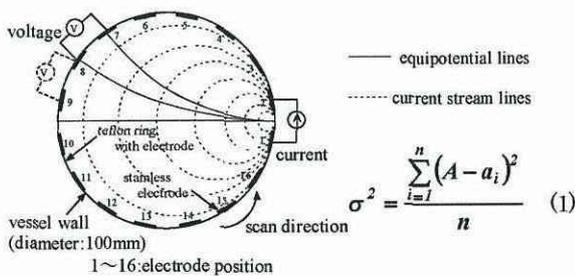


Fig.1 Schematic diagram of measuring section

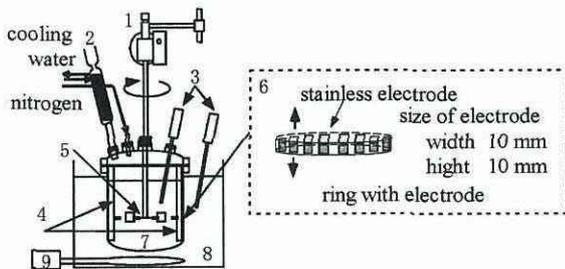


Fig.2 Schematic diagram of measuring equipment  
1-motor;2-reflux;3-thermometer;4-baffle(2plates);  
5-impeller;6-ring with electrode;7-stirred vessel;  
8-temperature controlled bath;9-heater

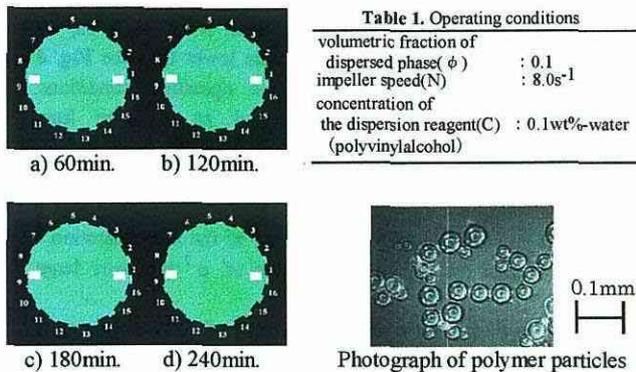


Fig.3 State of droplet dispersion at each time under the Table1 conditions

volumetric fraction of dispersed phase( $\phi$ )	: 0.1
impeller speed(N)	: $8.0s^{-1}$
concentration of the dispersion reagent(C)	: 0.1wt%-water (polyvinylalcohol)

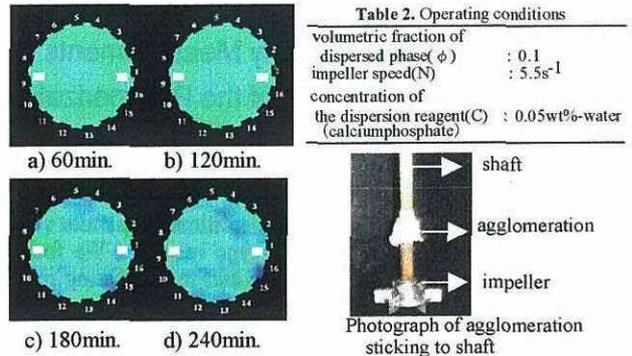


Fig.4 State of droplet dispersion at each time under the Table2 conditions

volumetric fraction of dispersed phase( $\phi$ )	: 0.1
impeller speed(N)	: $5.5s^{-1}$
concentration of the dispersion reagent(C)	: 0.05wt%-water (calciumphosphate)

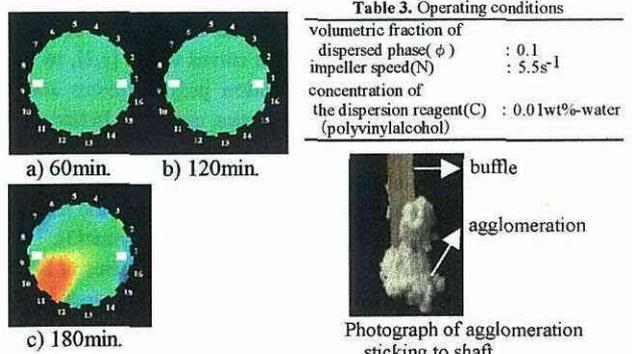


Fig.5 State of droplet dispersion at each time under the Table3 condition

volumetric fraction of dispersed phase( $\phi$ )	: 0.1
impeller speed(N)	: $5.5s^{-1}$
concentration of the dispersion reagent(C)	: 0.01wt%-water (polyvinylalcohol)

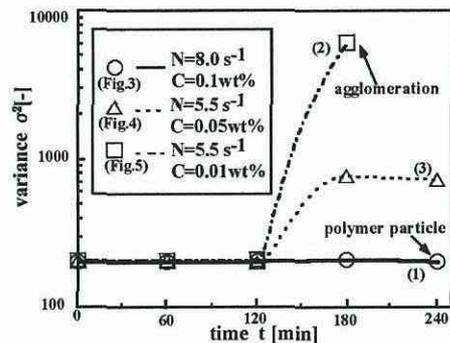


Fig.6 Dynamic changes of  $\sigma^2$  for the reaction for each set of operating conditions

## Nomenclature

C: concentration of the dispersion reagent [wt%]  
N: impeller speed [ $s^{-1}$ ]  
n: number of element [-]  
t: time [s]  
 $\sigma^2$ : variance [-]  
 $\phi$ : volumetric fraction of dispersed phase [-]

## References

- [1] Kamiwano, M., M. Kaminoyama, K. Nishi, T. Wada: Proc. 65th Annual Meeting of Soc. Chem. Eng. Japan, A207, Hamamatsu, Japan (2000)
- [2] Kamiwano, M., M. Kaminoyama, K. Nishi, T. Wada: Proc. Kanto Meeting of Soc. Chem. Eng. Japan, Tsukuba, Japan (2000)
- [3] Kamiwano, M., M. Kaminoyama, K. Nishi, T. Wada: Proc. 66th Annual Meeting of Soc. Chem. Eng. Japan, G114, Hiroshima, Japan (2001)
- [4] F. Dickin et al.: Meas. Sci. Technol., 7, 247-260, (1996)
- [5] C. J. Kotre et al.: Phys. Meas., A15, 1-12, (1994)

## 添付 研究発表 (2) 口頭発表

- 1) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦：攪拌槽内における高濃度固体懸濁液の流動・伝熱態、粉体工学会第 35 回夏期シンポジウム講演論文集、20 神奈川 (1999 年 8 月 6 日)
- 2) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：電気抵抗方式トモグラフィー法を用いた攪拌槽内における塑性流体の流動領域の測定、化学工学会第 32 回秋季大会講演要旨集、R109 金沢 (1999 年 9 月 26 日)
- 3) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：電気抵抗方式トモグラフィー測定を用いた懸濁重合槽における凝集塊の検出、化学工学会第 65 年会講演要旨集、A207 東京 (2000 年 3 月 30 日)
- 4) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：電気抵抗方式トモグラフィー測定システムによる懸濁重合反応場における安定操作範囲の決定、化学工学会つくば大会講演要旨集、A108 つくば (2000 年 7 月 17 日)
- 5) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：攪拌槽における種々の塑性流体のカバン形成状態のトモグラフィー計測、化学工学会第 33 回秋季大会講演要旨集、J205 浜松 (2000 年 9 月 13 日)
- 6) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：攪拌懸濁重合反応場における液滴分散状態の連続的トモグラフィー計測、化学工学会第 66 年会講演要旨集、G114 広島 (2001 年 4 月 2 日)
- 7) 上ノ山周、仁志和彦、三角隆太、大森輝繁：電気抵抗方式トモグラフィー計測システムによる懸濁重合場における反応・懸濁状況の制御についての検討、化学工学会神奈川大会講演要旨集、A118 横浜 (2001 年 8 月 8 日)

1999年

第35回 夏期シンポジウム講演論文集

35th Summer Symposium

<テーマ>

粒 子 ・ 流 体 間 相 互 作 用

日 時：1999年8月5日（木）～ 7日（土）

会 場：生産性国際交流センター

神奈川県三浦郡葉山町湘南国際村

TEL. (0468) 58-2900

粉 体 工 学 会

**The Society of Powder Technology, Japan**

京都市左京区田中関田町2-7

〒606-8203 思文閣会館33号

TEL. (075)751-0195, (075)761-7123

FAX. (075)751-2851

(横浜国立大・工) 上野満雄・○上ノ山 周・仁志 和彦

はじめに 報告者らは、電気抵抗方式トモグラフィー計測システムならびにリアルタイム多点計測器を開発・試作し、これらを用い懸濁重合を想定した異相系分散状態の測定を目指して、液相攪拌槽内における沈降性固体粒子の懸濁・伝熱状態ならびに非沈降性固体粒子の懸濁・流動形成状態を検討してきた。

本稿ではそれらの測定事例を基に、粒子-流体間相互作用についても考察を試みたので以下に報告する。

### 1. トモグラフィー・システムによる計測

トモグラフィー計測手法とは無接触かつ断面でのスカラー値やベクトル分布を計測する技術を指し、医療工学を中心として発展した。工学分野への応用もここ数年精力的に試みられ、この5月には工業プロセス・トモグラフィーに関する世界会議<sup>1)</sup>も開催されるまでになってきている。

同手法には、超音波や光、x線さらにはNMRを用いたものまで種々開発されている<sup>2, 3)</sup>が、本稿では、液相と固相の電気抵抗の著しい相違を利用する電気抵抗方式トモグラフィー計測システムの試作・開発を行い、攪拌槽における固液系分散状態の測定への適用を検討した。

#### 1.1 沈降性固体粒子の懸濁状態

**測定原理** 図1には攪拌槽における水平断面を示す。電気抵抗方式トモグラフィー計測では、まず同図に示す隣り合った電極間に電流を流し、それ以外の隣接する電極間の電位差を測定する。次に電流を流す電極対を移動させ、同様の電圧測定を全組み合わせについて繰り返す。こうして得られた境界電圧値から、槽内部の抵抗値分布を有限要素法を用いて解析することにより画像として再構成する。同再構成の手法には内部抵抗値分布を推定して解析した結果得られる境界電圧値が、今述べた測定値に収束するまで、同分布を修正して反復計算を行うものと、収束計算は行わず感度行列を利用して抵抗値分布を求めるBack-Projection法<sup>4)</sup>とがあるが、本研究では後者によった。

図2に同法による画像再構成のためのフローチャートを示す。抵抗値分布は感度行列と境界電圧の測定値の積から求められる。

**測定方法** 図3に本研究で用いた攪拌槽の概略を示す。測定用の攪拌槽は、槽径0.19mの亚克力製円筒平底槽であり、電極にはステンレスを用い、各測定断面毎に16個配置している(形状は表1参照)。測定断面は4段としており、各断面毎に抵抗値分布を測定することができる。

攪拌翼には翼径0.1mの4枚傾斜バドル翼を用い、槽底からH/3の位置に設置した。翼回転数は $1.67s^{-1}$ とした。液相としては0.01mol/l KCl水溶液(比抵抗 $8.33 \Omega m$ )を用いる。また、固体粒子として、KCl水溶液とほとんど密度差がなく、槽内全域に十分に分散する直径1mmのポリスチレン粒子(密度 $1022 kg/m^3$ 、比抵抗 $10^{14} \Omega m$ )を用いる。粒子濃度は5 vol.%から10, 15, 20, 25, 30 vol.%まで変化させた。

なお同測定を行う前に直径30mmのテフロン丸棒を対象とした予備実験を行い、これが鮮明に画像化されることを確認している。

**測定結果および考察** 図4に、ポリスチレン粒子濃度を変化させたときの抵抗分布の一例を示す。

Kaminoyama Meguru, Tel and Fax ; 045-339-3999, E-Mail; kaminoyama@chemeng.bsk.ynu.ac.jp

全ての濃度図において、上下左右に白い箇所が存在するが、これはバッフルの位置に相当している。

同図から粒子濃度の増加に伴い、槽断面の抵抗値が増加しており、粒子濃度の変化に伴う抵抗値分布として妥当な画像の得られていることが判る。また抵抗値分布のむらが経時的に変化していることを確認しているが（結果の図示は本稿では省略）、これは流れの影響により生じる局所的な粒子濃度のむらを捉えているものと判断している。

## 1.2 非沈降性固体粒子の懸濁・流動領域

本節の測定に関しては、原理方法は前節に準じる。また対象流体は第 2.2 節に述べる炭酸カルシウム懸濁水であり、翼廻りに形成される流動域を電気抵抗方式トモグラフィー手法を用いて計測した。本結果については会場にて示す。

## 2. リアルタイム多点温度測定システムによる計測

### 2.1 攪拌槽壁側局所熱伝達係数に及ぼす濃厚沈降性固体粒子の流動状態の影響

高粘度液へ沈降性固体粒子を濃厚に懸濁させた液における伝熱は、槽内における吐出流と循環流れ、固体粒子による温度境界層の攪乱、さらには固体粒子を含む懸濁液の熱的物性値<sup>5)</sup> およびレオロジーなど多くの要因によって左右される。

本節ではその中でも最も重要と思われる流動状態に関連する要因と熱伝達係数との関連性についてリアルタイム多点温度計測システム<sup>6)</sup> による測定を基に検討し、知見を得たので以下に述べる。

**実験装置および方法** 図5に実験装置の概略を示す。本測定に使用した攪拌槽は、蓋付円筒平底攪拌槽であり、アルミニウム製輪切り円筒 5 個、その円筒間に断熱材を挟み込み、重ね合わせて構成したものである。各円筒の外周に巻いたシースヒータより攪拌槽を加熱する。攪拌翼は 4 枚 45°傾斜パドル翼を用い、槽底から高さ 25mm の位置に設置した。攪拌槽内にはピッチ 30mm の冷却コイルを取り付けた。報告者らが開発したリアルタイム多点温度計測装置<sup>6)</sup> を用いて定常状態における槽壁およびバルクの温度を測定し、槽液深方向に沿った槽壁側局所熱伝達係数の計算を行う。

対象の液相としてグリセリン、Carboxy Methyl Cellulose 水溶液 (C.M.C) および Hydroxy Ethyl Cellulose 水溶液 (H.E.C) を、固体相としてガラスビーズ、ジルコニアビーズおよび鋼球を使用する。固体粒子濃度  $\phi_v$  は 20vol% まで変化させた。ここで、伝熱量  $Q$  は図5の⑨に示したサイリスタで一定量に制御する。

**実験結果** 図6に母液がニュートン流体であるグリセリン-ガラスビーズ系の結果を示す。縦軸  $H^*$  は攪拌槽高さを無次元化して表示したものであり、横軸は槽壁側局所熱伝達係数  $h_i$  を示す。吐出流による強い流動を受けている攪拌翼付近の  $H^*$  において  $h_i$  が最も高い値を示し、上部になるに従って流動も弱くなるため、 $h_i$  は減少している。また固体粒子であるガラスビーズの濃度  $\phi_v$  が増加すると  $h_i$  の値は高くなる傾向を示している。特に  $H^*=0.5$  で大きな差が生じるのは、後述のように流動による影響があるためと推察される。

図7には非ニュートン流体である 1.5wt%H.E.C-ガラスビーズ系での結果を示す。攪拌翼付近の  $H^*$  で  $h_i$  が最も高い値を示し、上部になるに従って  $h_i$  が小さい値を示す傾向は前図のグリセリンの場合と同様である。固体粒子濃度が与える影響はグリセリンよりも大きく、特に攪拌翼付近において著しい。また、 $H^*=0.5$  における固体粒子濃度の影響は、液相がグリセリンの場合では  $h_i$  が増加する傾向にあるが、1.5wt%H.E.C では逆に  $h_i$  は減少する傾向を示している。

これは付図に示したようにニュートン流体と非ニュートン流体では槽内の流動および槽高さ方向における局所粒子濃度が大きく異なるためであると考えられる。特に母液が非ニュートン擬塑性流体の場合、次節で述べるような、翼廻りのみ流動が良好となるいわゆる cavern 状態<sup>7, 8)</sup> が形成されているものと推測される。

## 2.2 幾何学的相似系攪拌槽内における塑性流体の流動域形成状態

塑性流体は降伏応力を有するため、攪拌が不十分であると槽内に静止域を生じる場合がある<sup>7, 8)</sup>。

本節では、モデル槽およびこれと幾何学的相似で寸法が2倍の大型化槽である2つの攪拌槽について、リアルタイム多点温度計測器を用いた熱的判定法による、流動域体積の計測を行った結果について述べる。また流動域体積の所要動力、流体のレオロジー等の因子による定式化についても検討した。**実験装置および方法** 図8に実験装置概略および攪拌槽1, 2の詳細を示す。攪拌槽は、槽中心に6枚垂直パドル翼を設置した蓋付円筒平底槽である。また翼径が流動域体積に与える影響を調べるために、相似条件からわずかに偏倚させた場合(攪拌槽1, 翼径0.12m)の測定も行う。流動域を加熱する熱源として、ヒーターを攪拌槽1では翼の下側に、攪拌槽2では翼吐出部に設置した。槽内の任意の点の温度と、これと比較するため確実に流動していると判断される翼先端近傍の基準点における温度を熱電対を用いて測定する。

各熱電対における温度の経時変化を測定し、基準点と測定点の温度差 $\Delta T$ をとる。 $\Delta T$ の経時変化が $\partial(\Delta T)/\partial t \leq 0$ となる場合は、対流熱伝達によって伝熱が行われている流動域、逆に $\partial(\Delta T)/\partial t > 0$ となる場合は、伝熱が熱伝導支配となっている静止域と判断する<sup>9)</sup>。測定領域は、6枚垂直パドル翼では槽内は上下ほぼ対称な流動をしているとみなし、槽断面の1/4とした(図8参照)。測定間隔は攪拌槽1では5mm、攪拌槽2では10mm間隔で行う。

試料には塑性流体である炭酸カルシウム( $D_{50}=3.1 \mu m$ )懸濁水およびカルボキシビニルポリマー水溶液を用いる。なおレオロジー特性の表示には Casson モデル( $\tau^{1/2} = \tau_0^{1/2} + \eta_0^{1/2} \cdot \dot{\gamma}^{1/2}$ )を用いる。**実験結果および考察** 図9に攪拌槽2における翼回転速度の増加に伴う流動域の変化の一例を示す。必ずしも円筒形状ではない形で流動領域の形成されている様子が判る。また翼回転速度に伴い、流動域が拡大していく様子が観察される。

図10には流動域体積  $V_c$  と動力数  $N_p$ 、修正レイノルズ数  $Re_{\eta_0} (= \rho n d^2 / \eta_0)$ 、修正ビンガム数  $Bi_{\eta_0} (= \tau_0 / n \eta_0)$  との相関関係を示す。ここで、 $V_c$  は測定によって得られた流動域の断面形状の回転体として求めた。図中には、流動域体積  $V_c$  を上記無次元数にて整理した相関式も示している。同図から、流体のレオロジー、翼径等が若干異なる場合についても同式により $\pm 25\%$ の精度でほぼ相関されていることが判る。

むすびに 報告者らが開発・試作した電気抵抗方式トモグラフィー計測システムならびにリアルタイム多点計測器を用いて、液相攪拌槽内における沈降性固体粒子の懸濁・伝熱状態ならびに非沈降性固体粒子の懸濁・流動形成状態を検討した結果について述べた。今後さらに両計測システムを用いて、攪拌槽内における固相分散状態が伝熱ならびに流動に及ぼす影響についての測定事例を蓄積することにより、粒子-流体間相互作用についての考察を深めて行きたい。

謝辞 本研究の一部は、文部省科学研究費補助金(基盤研究(B) 09450290)の支援により遂行されたことをここに記し謝意を表する。

参考文献 1) Procs. of 1st World Congress on Industrial Process Tomography, Buxton, Derbyshire, U.K. (1999), 2) F. Dickin, M. Wang; Electrical Resistance Tomography for Process Applications, Meas. Sci. Technol., 7, 247-260 (1996), 3) P. J. Holden, M. Wang, R. Mann, et al.; Imaging Stirred-Vessel Macromixing using Electrical Resistance Tomography, AIChE Journal, 44, 780-789 (1998), 4) R. A. Williams, M. S. Beck; "Process Tomography -Principles, Techniques and Applications", p.301, Butterworth-Heinemann (1995), 5) Peter Kurpiers et al.; Ger. Chem. Eng., 8, 48 (1985), 6) 上和野、上ノ山ら: 化学工学論文集, 21, 760-765 (1995), 7) 新井、上ノ山、上和野ら: 化学工学論文集, 16, 946-952 (1990), 8) Hirata et al.: Trans. IChemE, 74, 438-444 (1996), 9) 上和野、上ノ山、仁志、水島: 化学工学会群馬大会要旨集, B210(1997)

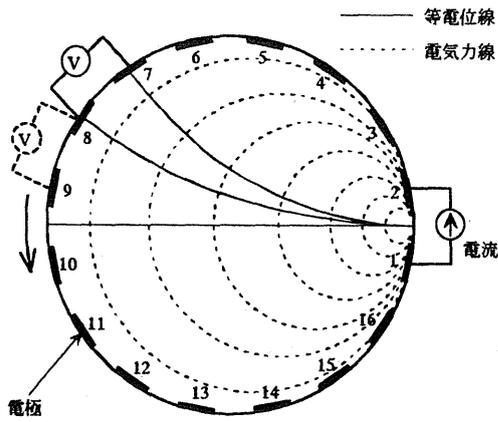


図1 攪拌槽における測定断面

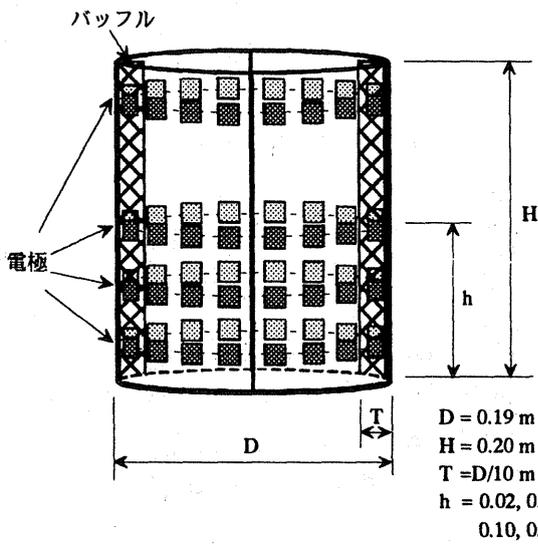


図3 4断面測定用攪拌槽

D = 0.19 m  
 H = 0.20 m  
 T = D/10 m  
 h = 0.02, 0.06, 0.10, 0.18 m

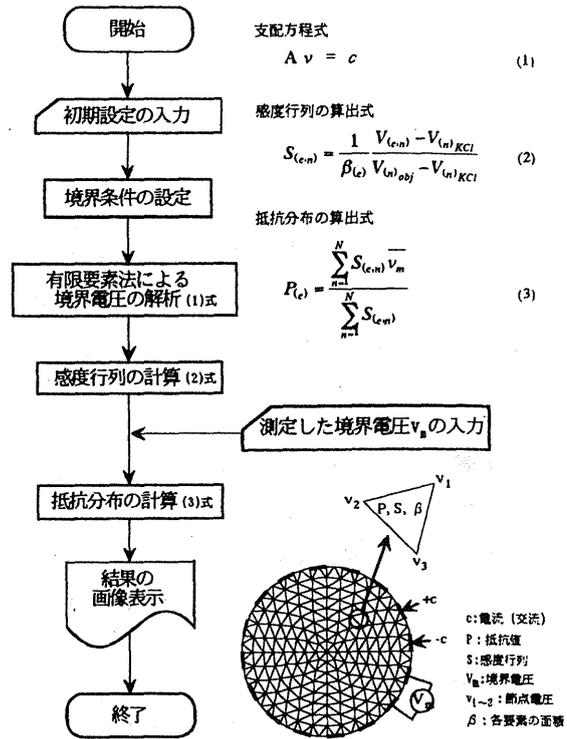


図2 画像再構成フローチャート<sup>4)</sup>

表1 測定条件

1断面の電極数	16
電極のサイズ	高さ 10mm × 幅 20mm
信号源	正弦波 (50 kHz)
電流値	10 mA
1断面の測定時間	6 ms

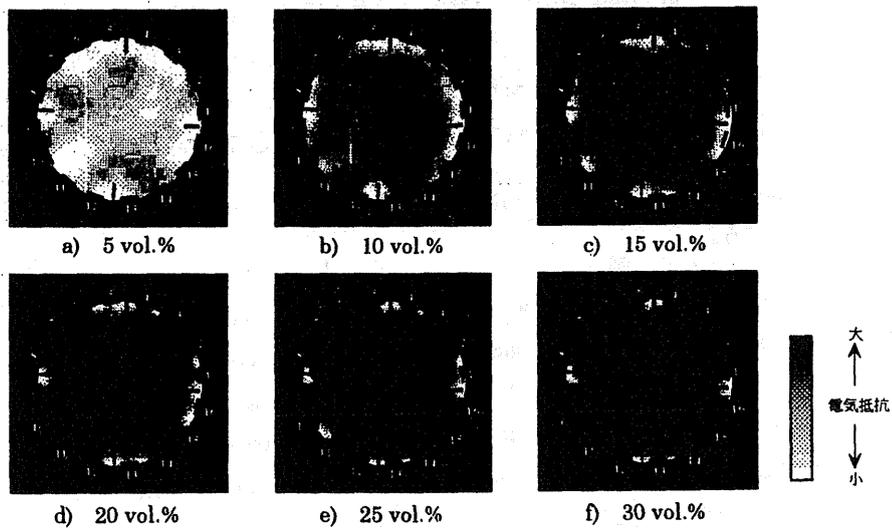


図4 ポリスチレン粒子濃度を変化させたときの抵抗分布の一例 (h=0.1m)

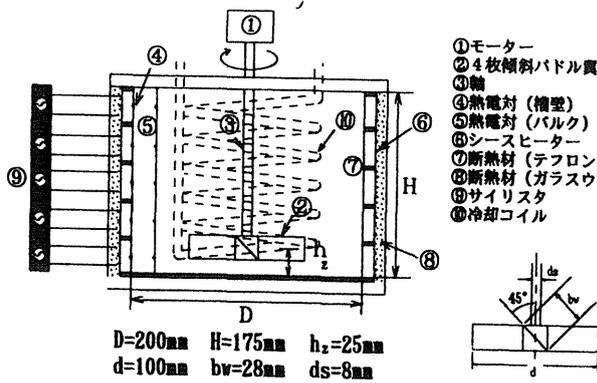


図5 沈降性固体粒子系  
実験装置概略

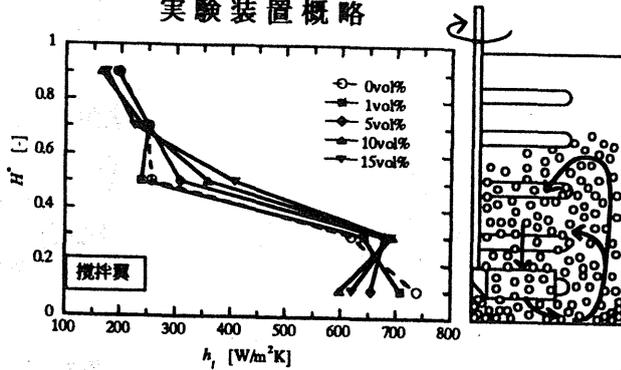


図6 槽高さ方向に沿った局所熱伝達係数の変化 (グリセリン-ガラスビーズ2mm系)

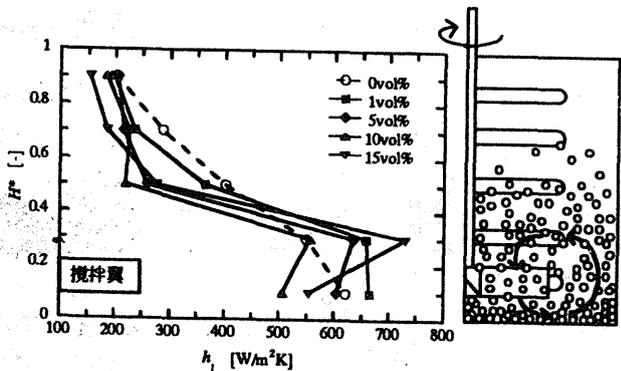


図7 槽高さ方向に沿った局所熱伝達係数の変化 (1.5wt% H.E.C 水溶液-ガラスビーズ 2mm系)

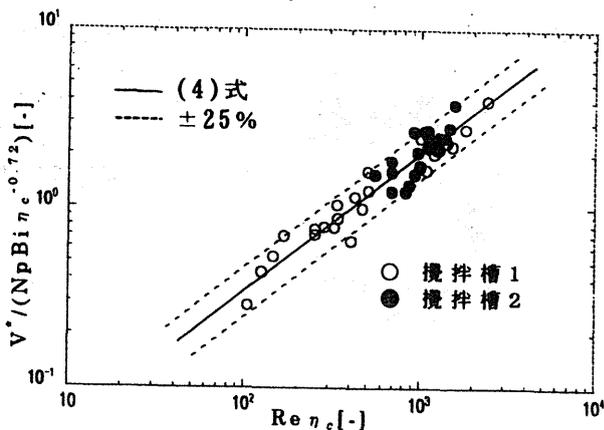


図10 攪拌槽内における流動領域液体積  $V_c$  の無次元数との相関

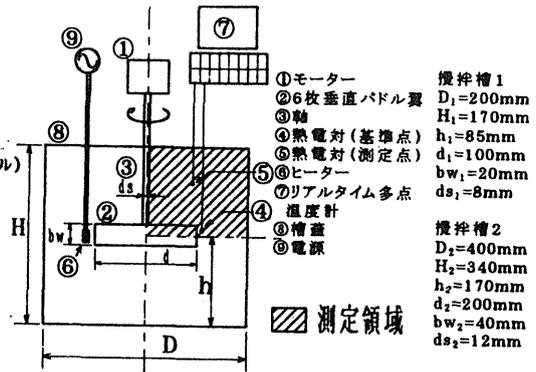
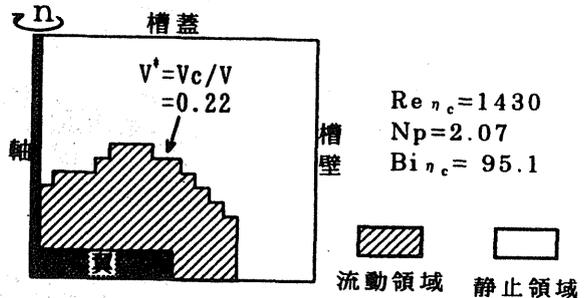
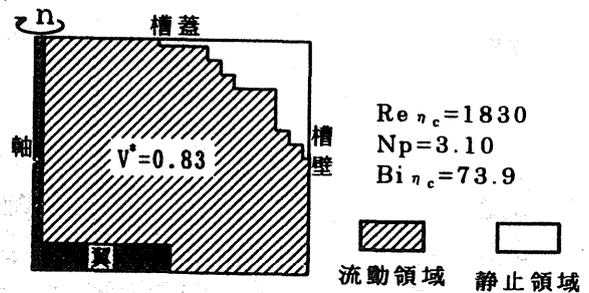


図8 非沈降性固体粒子系  
実験装置概略



a)  $n=1.17\text{s}^{-1}$



b)  $n=1.50\text{s}^{-1}$

図9 翼回転速度の増加に伴う  
流動領域の変化例 (攪拌槽2)

$$V^* = 1.22 \times 10^{-2} N_p Re \eta_c^{0.74} Bi \eta_c^{-0.72} \quad (4)$$

ここで

流動領域液体積:  $V^* = V_c/V$

動力数:  $N_p = P/\rho n^3 d^5$

修正レイノルズ数:  $Re \eta_c = \rho n d^2/\eta_c$

修正ピンガム数:  $Bi \eta_c = \tau_c/n \eta_c$

# 電気抵抗方式トモグラフィ法を用いた攪拌槽内における 塑性流体の流動領域の測定

(横国大・工)(正)上和野満雄・(正)上ノ山周\*・(正)仁志和彦○(学)和田剛史

**はじめに** 近年、CT スキャンに代表されるようなトモグラフィ測定技術が急速に発展してきており、工学分野への応用も精力的に試みられている<sup>1,2)</sup>。同測定技術は、非接触にして断面の状態を測定することが可能であるなど様々な利点をもつ。一方、塑性流体は降伏応力を有するため、攪拌が不十分であると攪拌槽内に流動および静止領域を生じる場合がある<sup>3)</sup>。当研究室ではこれまでに、このような塑性流体の流動領域の測定に熱的判定法<sup>4)</sup>などを用いてきた。本研究では、電気抵抗値の差を利用して槽断面における流動状態を、画像として表示する電気抵抗方式トモグラフィ測定システムの試作・検討を行い、塑性流体の流動領域の測定に適用し、検討を行ったので報告する。

**1.測定原理** 図1に、攪拌槽における測定断面を示す。槽内の流れを阻害しないよう槽壁に設置した電極により電流を流し、境界電圧を測定する。境界電圧の測定には、隣り合った電極間に電流を流し、①で示すように、それ以外の隣り合った電極間の電圧差を測定し、以後②で示すように電流を流す電極対を移動し、同様の電圧測定を行う隣接法<sup>1)</sup>を用いた。本システムでは、画像再構成アルゴリズムとして、初期電気抵抗値分布からの変化量を算出する Back-Projection 法<sup>2)</sup>を用いた。図2に画像再構成フローチャートを示す。空間分解能向上のため、有限要素メッシュ数を344とした。

**2.測定システム** 図3に、本研究で用いた測定システムの概略を示し、表1に測定条件を示す。同図 a)に示す測定用の攪拌槽は槽径 0.2m のアクリル製円筒平底槽である。ステンレス製の電極を円周方向に16個、等間隔に設置したアクリル製電極リングを槽内壁に固定することにより、任意の高さにおける測定を行うことができる。また、同図 b)に測定回路を示す。測定した境界電圧は、分解能向上のため、可変増幅器にて適度に増幅した後、パソコン内に取り込まれる。本測定回路における測定境界電圧の分解能は最大 12.5  $\mu\text{V}$  であり、1断面の測定時間は最高 6ms である。

**3.測定方法** 予備実験として、槽内に径が既知のステンレス丸棒を挿入した測定を行い、明確な画像が得られることを確認した。(詳細は省略)図4に、流動領域測定方法概略を示す。対象流体として、61.5wt%炭酸カルシウム懸濁水(白色粉体、 $D_{50}=3.1\mu\text{m}$ 、0.01 mol/KCl 添加)を用い、攪拌翼として翼径 50mm のアクリル製6枚垂直バドル翼を用いた。流動領域が確実に生じていると判断される翼近傍にトレーサー液として 1.3 mol/KCl を含んだ炭酸カルシウム懸濁水を 10ml 注入し、流動領域の電気抵抗値を静止領域に対し変化させ、測定を行った。

**4.実験結果** 図5に、流動領域測定における画像の一例を示す。黄緑色、緑色で示した部分を流動領域、青色で示した部分を静止領域、水色で示した部分を境界とみなした。同図 a)、b)より、翼回転数の増加に伴い、流動領域が増加している様子が判る。ここで、結果の図示は省略するが、流動領域の境界が経時的にゆらいでいることを確認している。また、同図 c)より翼回転数 5.00  $\text{s}^{-1}$  では、ほぼ測定断面全域が流動領域であることが判る。今後は、流動領域の可視化、および他の流動領域測定法<sup>4)</sup>との比較などを通して、本測定における流動領域の境界判定基準を決定し、得られた画像の妥当性について検討していきたい。

**むすびに** 電気抵抗方式トモグラフィ測定システムの試作・検討を行い、同システムを塑性流体の流動領域の測定

に適用した。得られた画像は流動領域を明瞭にとらえていることが判った。今後は、得られた画像の妥当性について検討を行い、本システムを、固-液系、気-液系など他の系への測定に適用していきたい。

**謝辞** 本研究は、文部省科学研究費補助金(基盤研究(B)09450290)の支援により遂行されたことをここに記し謝意を表す。

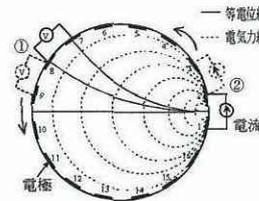
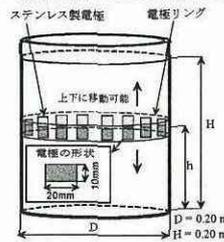
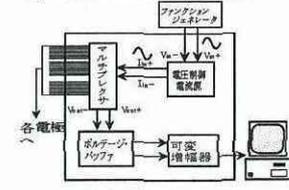


図1 攪拌槽における測定断面



a) 電極リング付き攪拌槽



b) 測定回路

図3 測定システム概略

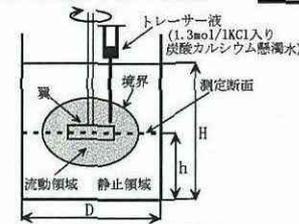


図4 流動領域測定方法概略

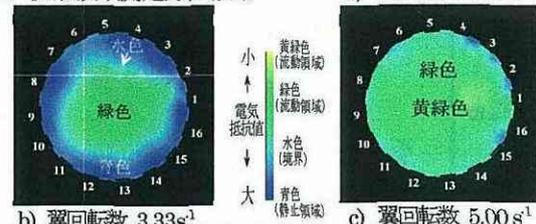


図5 流動領域測定における画像の一例( $h=0.1\text{m}$ )  
(会場では、カラーにて表示する。)

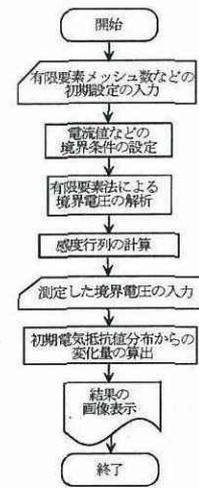


図2 画像再構成フローチャート

表1 測定条件

有限要素メッシュ数	344
測定断面の電極数	16
電極のサイズ	高さ10mm×幅20mm
信号源	正弦波(50kHz)
電流値	10mA
測定境界電圧の分解能	12.5 $\mu\text{V}$
1断面の測定時間	6ms

【使用記号】 D:槽径[m], H:液高さ[m], h:測定断面高さ[m], V:境界電圧[V]  
 【参考文献】 1)E.Dickinら: Meas.Sci.Techol.,7,247-260,(1996) 2)1st.World Congress on Industrial Process Tomography,(1999) 3)新井ら:化学工学論文集,16,946-952,(1990) 4)水島ら:化学工学第30回秋季大会要旨集, R320,(1997) 5)C.J.Kotreら: Phys.Meas.,A15,1-12,(1994)

\*Tel,045-339-3999 Fax,045-339-3999 E-mail:kaminoyama@chemeng.bsk.ynu.ac.jp

# 電気抵抗方式トモグラフィ測定システムを用いた懸濁重合槽における凝集塊の検出

(横国大・工)(正)上和野満雄・(正)上ノ山周\*・(正)仁志和彦・○(学)和田剛史

**はじめに** 懸濁重合反応操作において、重合反応がある程度進行し、分散相である液滴粘度が上昇した際、反応操作条件に不備<sup>1,2)</sup>があると、分裂と合一を繰り返していた液滴が合一支配となる。更に、この合一が急激になると液滴は餅状となり、攪拌翼や軸、およびバップル等に付着し、凝集塊としてそのまま固体化する場合がある(図1の一例参照)。

一方、当研究室では前回、電気抵抗方式トモグラフィ測定システムの試作・検討、およびその妥当性について報告した<sup>3)</sup>。同測定システムは、例えば固-液系攪拌槽において、固相の液相に対する電気抵抗値の差を利用して攪拌槽内断面における流動・分散状態を測定し、これを画像として表示するシステムであり、可視化困難な系を非接触して測定することが可能であるなどの利点を持つ。本研究では、同測定システムを、懸濁重合反応を遂行するに際し問題となる凝集塊の測定に適用し、これを迅速に検出して防止するための基礎的な知見を得たので報告する。

**1.測定原理** 図2に、攪拌槽における測定断面を示す。槽壁に設置した電極から一定電流を流し、電極間電圧を測定する。電極間電圧の測定には、隣接法<sup>4)</sup>を用いた。また、本測定システムでは、画像再構成アルゴリズムとして、有限要素メッシュ数を344としたBack-Projection法<sup>5)</sup>を用いた。図3に、同法による画像再構成のフローチャートを示す。

**2.測定システム** 図4に、本研究で用いた測定装置・システムの概略を示す。同図a)に示す重合用攪拌槽は、槽径 $1.0 \times 10^{-1}$  m、全容積 $1.0 \times 10^{-3}$  m<sup>3</sup>のガラス製円筒丸底槽である。また、液深の1/2の高さに翼径 $5.0 \times 10^{-2}$  mの6枚ディスクタービン翼を設置し、槽壁に高さ、幅とも $1.0 \times 10^{-2}$  mのステンレス製電極を円周方向に16個、等間隔に設置した。なお、各電極はリングに取り付けられており、上下に移動可能である。同図b)に測定回路を示す。本測定回路における測定電極間電圧の分解能は最大 $1.25 \times 10^{-5}$  Vであり、1断面の走査時間は、最も高速な場合で $6.0 \times 10^{-3}$  sである。

**3.測定条件および方法** 表1に、本研究における測定条件を示す。槽内に適度の電気伝導性を与えるため、連続相に対しKClを $1.0 \times 10^{-2}$  mol/l添加した。なお、このKClを加えたことによる重合反応への影響は無視できることを事前に確認した。図5に、測定状況概略を示す。初期状態を①に示すような分散相と連続相に分離した状態とし、②、③に一例として示すような分散状態を測定した。

**4.測定結果** 図6に、攪拌翼位置を測定断面としたときの分散状態の画像の一例を示す。同図a)は、液滴が均一に分散していると推測される画像の一例であり(図5 ②)に相当)、b)は、攪拌翼周辺に凝集塊が生成していると推測される画像の一例である(図5 ③)に相当)。青色から赤色にいくほど分散相濃度が高いことを示す。なお、詳細は会場にて示す。**むすびに** 電気抵抗方式トモグラフィ測定システムを、懸濁重合槽における凝集塊の検出に適用し、凝集塊が生成している様子を画像として表示できることが判った。今後は、測定断面を上下に移動してより詳細に測定を行い、凝集塊の液深方向における生成状況の確認、および防止について検討していきたい。

**謝辞** 本研究は、文部省科学研究費補助金(基盤研究(B) 09450290)の支援により遂行されたことをここに記し謝意を表する。



図1 攪拌翼周辺に生成した凝集塊の一例

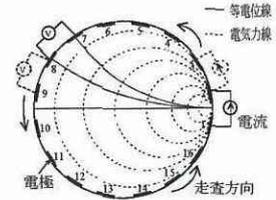


図2 攪拌槽における測定断面

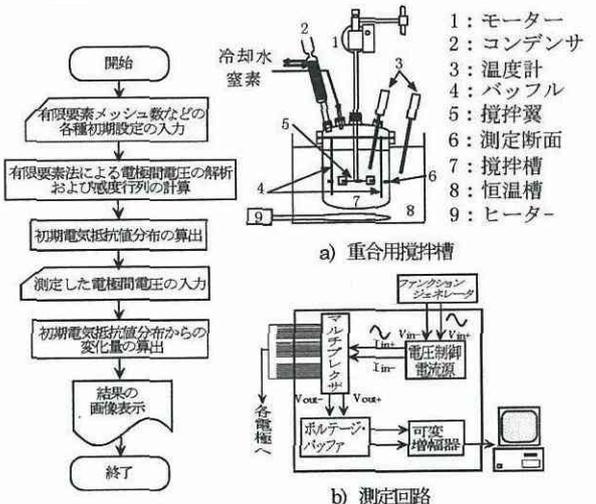


図3 Back-Projection法による画像再構成のフローチャート<sup>5)</sup>

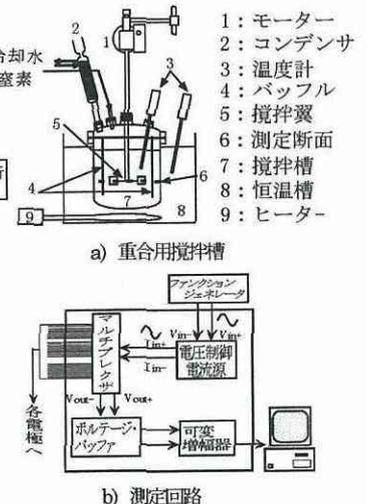


図4 測定装置・システムの概略

表1 測定条件

連続相:イオン交換水	900ml
懸濁安定剤(磷酸カルシウム)	0.05wt%
KCl	0.01mol/l-イオン交換水
分散相:スチレン	100ml
重合開始剤(AIBN)	0.04mol/l-スチレン
攪拌翼:	6枚ディスクタービン翼
翼回転数:	4.0r/s
重合温度:	353K
(液表面からの気泡の巻き込みを防ぐため、バップルを2本設置した。)	

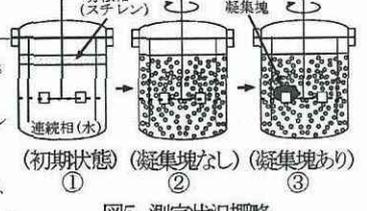
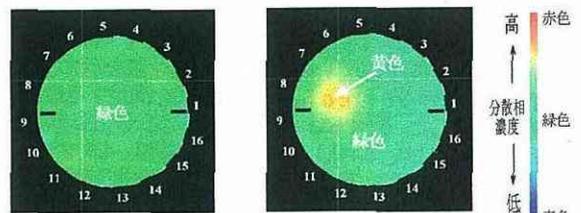


図5 測定状況概略



a) 均一に分散 (図5 ②)に相当) b) 凝集塊の一例 (図5 ③)に相当)  
図6 攪拌翼位置を測定断面としたときの分散状態の画像の一例 (会場ではカラーにて表示する。)

**【使用記号】** I:電流[A] V:電極間電圧[V]  
**【参考文献】** 1) 上和野監修, 鷲見ら:“攪拌・混合におけるトラブル発生要因と防止対策”,245-248,(1996) 2) 宮田ら:化学工学論文集25(5),789-795,(1999) 3) 上和野,上ノ山,仁志ら:化学工学会第32回秋季大会要旨集R109,(1999) 4) F.Dickin et al.,:Meas.Sci.Technol.,7,247-260,(1996) 5) C.J.Kotter et al.: Phys.Meas.,A15,1-12,(1994)

Tel:045-339-3999 Fax:045-339-3999 E-mail:kaminoyama@chemeng.bsk.ynu.ac.jp

# 電気抵抗方式トモグラフィ測定システムによる懸濁重合反応場における安定操作範囲の決定

(横国大・工)(正)上野満雄・(正)上ノ山周\*・(正)仁志和彦・○(学)和田剛史

**はじめに** 代表的なポリマー製造法である懸濁重合反応操作において、重合反応を安定な状態で遂行させるため、モノマー液滴やポリマー粒子を撹拌槽内全域に均一分散させることは重要であり、そのような分散状態を達成する操作範囲の決定が望まれている<sup>1)</sup>。そこで当研究室では、モノマー液滴やポリマー粒子の水に対する電気抵抗値の差を利用して、撹拌槽内断面における分散状態を測定し、これを画像として表示する電気抵抗方式トモグラフィ測定システム<sup>2,3)</sup>を試作した。さらに、本研究では、同測定システムを用いて懸濁重合反応場における液滴分散の均一、偏り、凝集などの状況を種々の操作条件において測定した<sup>3)</sup>。次いで、その結果に基づき、重合反応を安定に遂行するための定量化した操作範囲を決定する手法を検討したので以下に報告する。

**1.測定原理** 図1に、撹拌槽における測定断面概略<sup>4,5)</sup>を示す。槽径とほぼ等しい径(100mm)をもつテフロン製のリングに、測定用の電極(形状は図2参照)を等間隔に16個設置した。この電極付きリングを撹拌槽内に挿入し、断面における電極間電圧を測定することで、槽内の分散状態を画像構成する。なお、電極付きリングは、液架方向に移動可能である。測定断面は、344個の三角要素に分割されており、各要素ごとに初期状態に対する電気抵抗値の変化量が決定され、これが6msごとに画像として表示される(詳細省略)。

**2.測定装置および方法** 図2に、測定装置概略を示す。撹拌槽には、槽径100mm、全容積1000mlのガラス製円筒丸底槽を用い、撹拌翼には、翼径50mmのステンレス製6枚羽根ディスクタービン翼を用いた。また、対象とする重合反応は、スチレンの懸濁重合反応である。同図に示す状況にて、翼回転数(N=2.5~9.0 s<sup>-1</sup>)、および分散相分率(φ=0.1~0.3)を操作条件として重合反応を開始し、各操作条件における液滴の分散状態を多断面にて測定した。なお、重合温度(T)は80℃とし、連続相(水)には0.01 mol/l KClを添加した。また、分散剤にはリン酸カルシウム(0.1wt%-水)、開始剤にはAIBN(0.04 mol/l-スチレン)を用いた。

**3.測定結果** 図3a)にN=3.5 s<sup>-1</sup>、φ=0.1としたときの反応開始直後における液滴分散状態のスケッチ、およびこのときに得られたトモグラフィ画像の一例を示す。同図i, ii, iii)より、液滴は槽内に均一分散されていないことが判る。図3b)にN=8.0 s<sup>-1</sup>、φ=0.1としたときの一例を示す。ここでN=8.0 s<sup>-1</sup>は、φ=0.1において液自由表面が水平を保ち、同表面からの気泡の巻き込みが起らない最大の翼回転数であることを確認した(これをN<sub>max</sub>とする)。同図i, ii, iii)より、液滴は槽内に均一分散されていることが判る。

**4.分散状態の定量的検討** 各操作条件において得られたトモグラフィ画像より、液滴の分散状態を定量的に検討するため、(1)式に示す分散(σ<sup>2</sup>)を用いた。σ<sup>2</sup>は、槽内を液滴が均一分散しているときほど小さな値を示す。ここで、N<sub>max</sub>におけるσ<sup>2</sup>をσ<sup>2</sup><sub>min</sub>とし、(2)式を満足する最小のNをN<sub>min</sub>とした。図4に、φ=0.1におけるNとσ<sup>2</sup>の関係を示す。同図より、φ=0.1においてN<sub>min</sub>は、4.5 s<sup>-1</sup>であることが判った。次に、異なるφについても同様の検討を行った。図5には、このようにして得られた結果を基に決定した安定操作範囲の一例を示す。同図枠内に示す(3)式はN<sub>min</sub>とφの関係式であり、(4)式はN<sub>max</sub>とφの関係式である。また、斜線範囲は液滴分散の安定操作範囲であることを示す。ここで、○印にて示す操作条件にて重合反応を進めていくと、反応が最後まで安定に遂行できることを確認した。一方、×印で示す操作条件では、重合反応中に液滴の凝集が発生し、安定に遂行できないことも確認した。今後は、重合反応の進行過程における同様の手法を用いた検討を行いたい。さらに、生成したポリマー粒子の粒径分布を測定し<sup>6)</sup>、所望

する分布を持つポリマー粒子を生成するための安定操作範囲について検討を行いたい。

**むすびに** 当研究室で試作した電気抵抗方式トモグラフィ測定システム<sup>2,3)</sup>を、懸濁重合反応場に適用し、重合開始直後における液滴の分散状態を測定した。得られたトモグラフィ画像より、安定操作範囲を定量的に検討する手法を提示することができた。

**謝辞** 本研究は、文部省科学研究費補助金(基盤研究(B) 09450290)の支援により遂行されたことをここに記し謝意を表する。

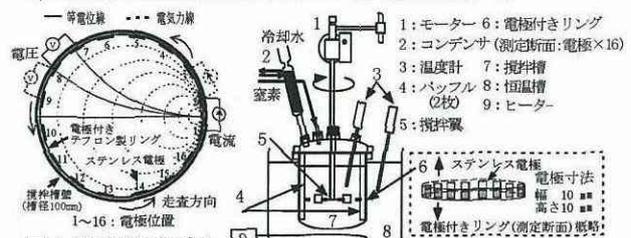


図2 測定装置概略

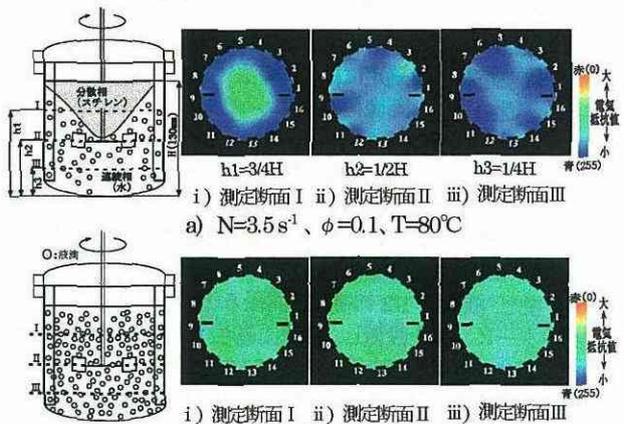


図3 反応開始直後における液滴分散状態のスケッチ、およびトモグラフィ画像の一例

$$\sigma^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (A - a_i)^2}{n} \quad (1) \quad \left| \frac{\sigma^2 - \sigma_{\min}^2}{\sigma_{\min}^2} \right| \leq 0.05 \quad (2)$$

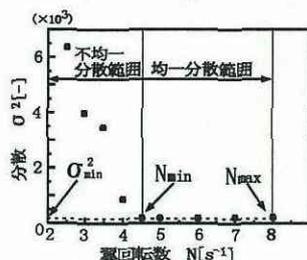


図4 φ=0.1におけるNとσ<sup>2</sup>の関係

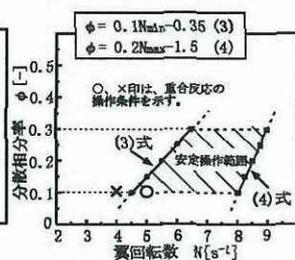


図5 安定操作範囲の一例

**【使用記号】** A: N=N<sub>max</sub>におけるa<sub>1</sub>~a<sub>n</sub>の平均値 | a<sub>1</sub>~a<sub>n</sub>: 各要素における電気抵抗値の変化量[-] H: 液深[mm] h1-h3: 測定断面高さ[mm] N: 翼回転数[s<sup>-1</sup>] n: 要素数[-] T: 重合温度[℃] V: 電極間電圧[V] σ<sup>2</sup>: 分散[-] φ: 分散相分率[-]  
**【参考文献】** 1) R.Shinnar et al.: Ind.Eng.Chem. 6,479-484,(1961) 2) 上野, 上ノ山, 仁志, 和田: 化学工学学会第32回秋季大会要旨集R109,(1999) 3) 上野, 上ノ山, 仁志, 和田: 化学工学学会第62年会要旨集A207,(2000) 4) F.Dickin et al.: Meas.Sci.Technol. 7,247-260,(1996) 5) C.J.Kotter et al.: Phys.Meas. 15, 1-12,(1994) 6) 城田, 上野, 上ノ山, 仁志, 清水: 化学工学論文集, 25, 1015-1023,(1999)

\*Tel:045-339-3999 Fax:045-339-3999 E-mail:kaminoyama@chemeng.bsk.ynu.ac.jp

# 攪拌槽における種々の塑性流体のカバーン形成状態の トモグラフィー計測

(横国大・工)(正)上和野満雄・○(正)上ノ山周\*・(正)仁志和彦・(学)和田剛史

はじめに 降伏応力をもつ塑性流体を攪拌するとき、翼廻りのみで流動するカバーン領域を形成する場合がある<sup>1)</sup>。当研究室では、これまでに電気伝導法<sup>2)</sup>、熱的判定法<sup>3)</sup>などを用いて同領域の測定を行ってきた。本報告では、同領域に電解質溶液を注入し、静止領域との電気伝導度の差異を作ることににより、攪拌槽内における種々の塑性流体のカバーン形成状態を、当研究室にて試作した電気抵抗方式トモグラフィー測定システム<sup>3,4)</sup>を用いて、3次元的に計測した。その結果、カバーンの形成状態を把握できることが判ったのでここに報告する。

**1.測定原理** 図1に、攪拌槽における測定断面概略を示す。アクリル製のリングに、測定用の電極を等間隔に16個設置した。この電極付きリングは、液深方向に移動可能である。本リングを攪拌槽内に挿入し、断面における電極間電圧を測定し、これを境界条件として槽内の流動状態を有限要素法により画像構成する。測定断面は、344個の三角要素に分割されており、各要素ごとに初期状態に対する電気抵抗値の変化量が決定され、これが6msごとに画像として表示される(詳細省略<sup>5)</sup>)。

**2.測定装置および方法** 図2に、本研究で用いた測定装置概略を示す。攪拌槽には、槽径、液深とも200mmのアクリル製円筒平底槽を用いた。攪拌翼には、翼径70mmのアクリル製6枚垂直パドル翼を用い、液深の1/2に設置した。対象とする塑性流体には、0.4wt%カルボキシルポリマー(和光純薬社製ノビスワコー<sup>®</sup>105;以下Carbopolと称す)水溶液(0.01mol/l KCl添加)を用いた。Carbopol水溶液は、もともと無色透明であり、カバーン領域内を着色剤にて着色することで外部からの可視化が可能である。図3に、本測定システムによる測定方法概略を示す。確実にカバーン領域であると判断される翼近傍に、トレーサー液として0.25mol/l KClを含んだCarbopol水溶液を20ml注入し、カバーン領域の電気抵抗値を静止領域に対し変化させて測定を行った。

**3.測定結果** 図4に、カバーン領域形成状態の可視化写真の一例を示す。翼中心に対してほぼ左右上下に対称な楕円状と同領域が形成されていることが判る。図5、6に、本測定システムによる測定結果を示す。ここでは図4の結果から、槽上半分のみを測定対象とした。各高さ位置において、ほぼ同心円状に流動の良・不良となる領域の境界が識別される。これらの結果を基に、図7に、カバーン形成状態を3次元的に画像構成したものを示す。図4に示した可視化例と比較して、形状はややいびつで円筒状ではあるが、ほぼ正確にカバーン領域の大きさが把握されていることが判る。

なお、本測定システムを用いて、65wt%炭酸カルシウム懸濁水を対象としたカバーン領域の測定も行い、結果を得ているが、これについては熱的判定法<sup>3)</sup>による実測値との照合を含めて会場にて示す。

今後は、このようにして得られた結果を基に、カバーン領域の液体量の算出を、他の測定法<sup>2)</sup>との比較を通して行い、その妥当性について検討するとともに石炭粉末懸濁水やバイオセルロース液等、他の塑性流体を対象として、同様の検討を行いたい。

**むすび**に 当研究室にて試作した電気抵抗方式トモグラフィー測定システム<sup>3,4)</sup>を用いて、塑性流体の流動状態を3次元的に計測し、カバーン領域の形成状態を良好に把握できることを示した。

**謝辞** 本研究は、文部省科学研究費補助金(基礎研究(B) 09450290)の支援により遂行されたことをここに記し謝意を表する。

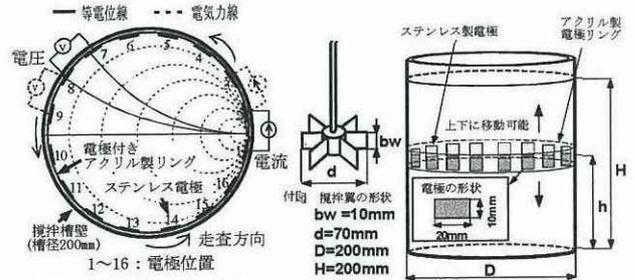


図1 攪拌槽における測定断面概略<sup>5)</sup>

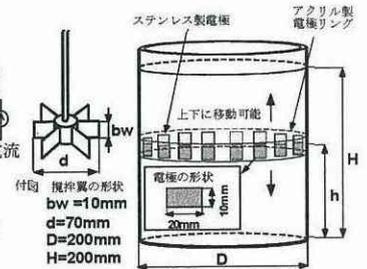


図2 測定装置概略

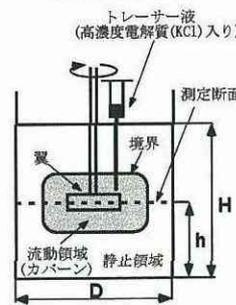


図3 測定方法概略<sup>3)</sup>

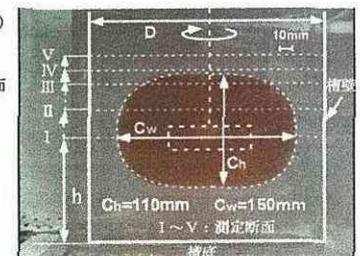


図4 可視化写真の一例 (Carbopol水溶液, N=4.0 s<sup>-1</sup>)

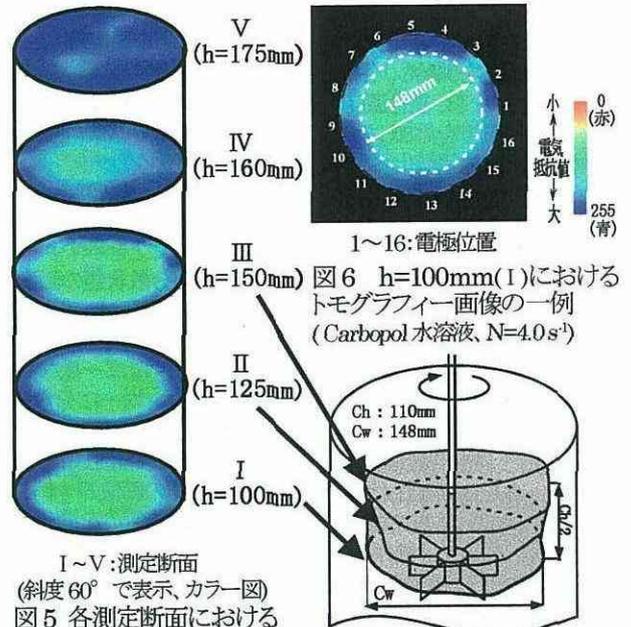


図7 三次元画像構成図

**【使用記号】** bw: 羽根高さ[mm] Ch: カバールン領域高さ[mm] Cw: カバールン領域径[mm] D: 槽径[mm] d: 翼径[mm] H: 槽高さ[mm] h: 測定断面高さ[mm] N: 翼回転数[s<sup>-1</sup>]

**【参考文献】** 1) 新井、上ノ山、上和野ら: 化学工学論文集, 16, 946-952, (1990) 2) 上和野、上ノ山、仁志、水島: 化学工学論文集, 26, (2000, 印刷中) 3) 上和野、上ノ山、仁志、和田: 化学工学学会第32回秋季大会要旨集, R109, (1999) 4) 上和野、上ノ山、仁志、和田: 化学工学学会第65年会要旨集, A207, (2000) 5) F. Dickin et al.: Meas. Sci. Technol., 7, 247-260, (1996) 6) 上和野、上ノ山、仁志、佐々木: 化学工学学会第64年会要旨集, S116, (1999)

\*Tel: 045-339-3999 Fax: 045-339-3999 E-Mail: kaminoyama@chemeng. bsk.ynu.ac.jp

# 攪拌懸濁重合反応場における液滴分散状態の連続的トモグラフィ計測

(横国大・工)(正)上和野満雄・○(正)上ノ山周\*・(正)仁志和彦・(学)和田剛史

**はじめに** 当研究室では、前回までに電気抵抗方式トモグラフィ測定システム<sup>1)</sup>を用いて、コールドモデルにおける液滴分散状態を種々の操作条件において測定し、その結果より重合反応を安定に遂行するための定量化した操作範囲を決定した<sup>2)</sup>。

今回はさらに、実際の懸濁重合反応場において、液滴の集塊化が起こりやすくなる反応中期から後期を含んだ連続的な液滴分散状態の測定を行い、安全に重合反応を遂行するための知見を得たので報告する。

**1.測定原理** 図1に、攪拌槽における測定断面概略<sup>3,4)</sup>を示す。槽径とほぼ等しい径(100mm)をもつテフロン製のリング(液架方向に移動可能)に、測定用の電極を等間隔に16個設置した。この電極付きリングを攪拌槽内に挿入し、断面における電極間電圧を測定することで、槽内の液滴分散状態を画像構成する。測定断面は、344個の三角要素に分割されており、各要素ごとに初期状態に対する電気抵抗値の変化量が決定される(詳細省略)。

このようにして得られた画像より、液滴の分散状態を定量的に評価するため、(1)式に示す分散( $\sigma^2$ )を用いた。この値が小さな値を示すほど液滴が槽内を均一に分散していることを示す。

**2.測定装置および方法** 図2に、測定装置概略を示す。攪拌槽には、槽径100mm、全容積1000mlのガラス製円筒丸底槽を用い、攪拌翼には、翼径50mmのステンレス製6枚羽根ディスクタービン翼を用いた。また、対象とする重合反応は、スチレンの懸濁重合反応である。同図に示す状況にて、翼回転数(N)、および分散相分率( $\phi$ )などを操作条件として重合反応を開始し、各操作条件における液滴の分散状態を測定した。なお、重合温度(T)は80℃とし、連続相(水)には0.01 mol/l KClを添加した。また、分散相にはPVA(0.1wt%-水)、開始剤には過酸化ベンゾイル(0.04 mol/l-スチレン)を用いた。

**3.測定結果** 図3に、分散相分率と濃度階調の関係を示す。濃度階調の値(255~0)が小さくなるほど槽内の電気抵抗値が大きく、スチレンの懸濁濃度が高いことを示す。

図4に、コールドモデルにおける液滴分散状態の画像の一例を示す(会場ではカラーにて表示)。同図は、高さを変えた各測定断面(I~III)にて得られたものを同一の円の中で示した。各測定断面にて得られた画像はほぼ一様な濃度階調の値(170)を示しており、液滴が槽内を均一に分散していることが判る。このとき、槽全体では、 $\sigma^2=209$ であった。

次に、液滴分散状態を反応過程全体を通して測定した。図5に、各反応時間(t)における液滴分散状態の画像の一例を示す。同図は各反応時間( $t_1 \sim t_2$ )にて得られたものを同一の円の中で示した。操作条件は図4に示したものと同様であり、測定断面は槽中央断面である。このとき、 $\sigma^2$ は小さな値を示したまま反応が進行し、これより反応過程全体を通して液滴が槽内を均一分散していることが判る。また、240 min.後にはポリマー粒子が生成したことも確認した(付図の写真例参照)。

図6に、反応過程において攪拌翼に液滴が付着し、集塊化したことを想定したモデル画像の一例を示す。同図は、それぞれ大きさの異なる凝集塊を用いて行ったものであるが、小さな凝集塊が存在する場合(同図b))においても、 $\sigma^2$ は均一分散が達成されていたとき(図5)の値よりも20倍近く大きな値となった。これより、 $\sigma^2$ を用いて液滴分散状態の良否を判別することができ、実際の重合反応場にも適用する見通しを得た。なお、詳細は会場にて示す。今後は、操作条件をさら

に各種変えた場合における連続的な測定を行ってきたい。

**むすびに** 当研究室で試作した電気抵抗方式トモグラフィ測定システム<sup>1)</sup>を用い、攪拌懸濁重合反応場における液滴分散状態を連続的に測定することができた。また、 $\sigma^2$ を用いることにより、重合反応が安定に遂行する場合と液滴の集塊化が起こる場合を判別することができた。(特許出願予定)

**謝辞** 本研究は、文部省科学研究費補助金(基礎研究(B) 09450290)の支援により遂行されたことをここに記し謝意を表する。

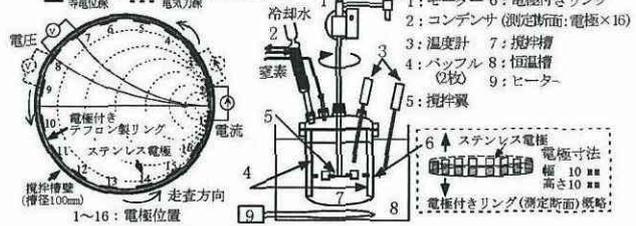


図1 攪拌槽における測定断面概略<sup>3,4)</sup>

図2 測定装置概略

$$\sigma^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (A - a_i)^2}{n} \quad (1)$$

小 ←  $\sigma^2$  → 大  
均一 ← 分散状態 → 不均一

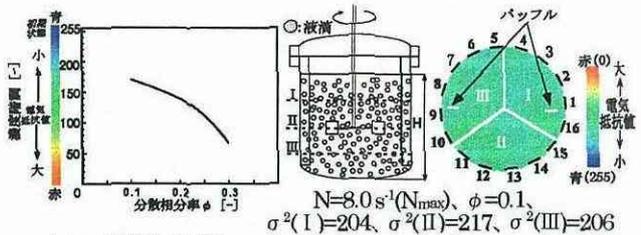


図3 分散相分率と濃度階調の関係

図4 コールドモデルにおける液滴分散状態の画像の一例( $\sigma^2=209$ )

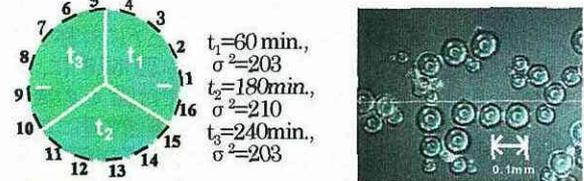


図5 各反応時間における付図生成したポリマー粒子の写真例  
液滴分散状態の画像の一例

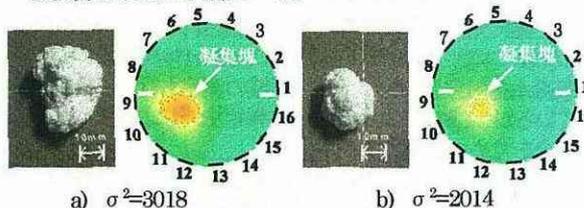


図6 液滴の集塊化を想定したモデル画像の一例( $\phi=0.1$ )

**【使用記号】** A:  $N=N_{max}$  における  $a_i - a_i$  の平均値 |  $a_i - a_i$ : 各要素における電気抵抗値の変化量 | H: 液架 [mm] | N: 翼回転数 [ $s^{-1}$ ] |  $N_{max}$ : 液自由表面からの気泡の巻き込みの起こらない最大の翼回転数 | n: 要素数 | T: 重合温度 [°C] | t: 反応時間 [min] | V: 電極間電圧 [V] |  $\sigma^2$ : 分散 |  $\phi$ : 分散相分率 |  
**【参考文献】** 1) 上和野, 上ノ山, 仁志, 和田: 化学工学会第 65 年会要旨集, A207, (2000) 2) 上和野, 上ノ山, 仁志, 和田: 化学工学会関東大会要旨集, D108, (2000) 3) F. Dickin et al.: Meas. Sci. Technol., 7, 247-260, (1996) 4) C. J. Kotre et al.: Phys. Meas., A15, 1-12, (1994)

Tel: 045-339-3999 Fax: 045-339-3999 E-mail: kaminoyama@chemeng.bsk.ynu.ac.jp

# 電気抵抗方式トモグラフィー計測システムによる懸濁重合場における 反応・懸濁状況の制御についての検討

(横国大院工) (正)上ノ山周\*・(正)仁志和彦・(正)三角隆太・○(学)大森輝繁

**はじめに** これまでに電気抵抗方式トモグラフィー計測システム<sup>1)</sup>を懸濁重合場に適用し、液滴の分散状態を連続的に計測し、良好に重合反応を遂行するための知見を得た<sup>2,3)</sup>。本研究では、重合途中に操作条件を変化させたときの液滴の分散状態を連続的に計測した。これにより、重合を安定にかつ良好に進行させるための制御についての検討を行ったので報告する。

**1.計測原理** 図1に、攪拌槽における計測断面概略<sup>4,5)</sup>を示す。槽径とほぼ等しい径(100mm)をもつ、液深方向に移動可能なテフロン製のリングに、計測用の電極を等間隔に16個設置した。この電極付きリングを攪拌槽内に挿入し、水平断面における電極間電圧を計測することで、槽内の液滴分散状態を画像構成する。計測断面は、344個の三角要素に分割されており、各要素ごとに初期状態に対する電気抵抗値の変化量が決定される<sup>6)</sup>(詳細省略)。このようにして得られた画像より、液滴の分散状態を定量的に評価するため、(1)式に示す分散 $\sigma^2$ を用いた。この値が小さな値を示すほど液滴が槽内を均一に分散していることを示す(付表参照)。

**2.実験装置および方法** 図2に、実験装置概略を示す。攪拌槽には、槽径100mm、全容積1000mlのガラス製円筒丸底槽を用い、攪拌翼には、翼径50mmのステンレス製6枚ディスクタービン翼を用いた。対象とする重合反応は、スチレンの懸濁重合反応である。開始剤にはAIBN、分散剤にはポリビニルアルコールを用い、重合温度は80°Cで行った。連続相(水)には電気伝導性を持たせるため、0.01mol/l KClを添加した(表1参照)。実験は、重合開始時(t=0)に分散剤0.1wt%を一括投入する場合と、重合開始時(t=0)と重合途中に0.05wt%ずつ分割投入する場合を行い、それぞれトモグラフィー計測を行った。なお、重合途中の分散剤投入時刻は、トモグラフィー計測結果をもとに行なった。

**3.実験結果** 図3には、t=0に分散剤を一括投入した場合のトモグラフィー画像の一例を示した。これより重合反応全体を通して、良好な反応・懸濁状況であったと考えられる。図4には、t=0,120にそれぞれ分散剤を分割投入した場合のトモグラフィー画像の一例を示した。同図b)より、t=120において、凝集が起こる兆候を捉えたため、同時刻で分散剤を投入した。その結果、良好な反応・懸濁状況に制御され、これ以降、重合を良好に行うことができた。図5には、計測結果をもとに、(1)式より求めた $\sigma^2$ の経時変化を示した。これより、分散剤を一括投入した場合(図3参照)、 $\sigma^2$ はおよそ1000で一定値を示した。一方、分散剤を分割投入した場合(図4参照)、 $\sigma^2$ はt=120まで高い値を示したが、同時刻に分散剤の投入後は、 $\sigma^2$ が分散剤を一括投入した場合の値に近づいた。今後は、以上の知見をもとに、懸濁重合場でのより精緻な検討を行いたい。

**むすびに** 電気抵抗方式トモグラフィー計測システムを用いて、懸濁重合場における液滴の分散状態を、操作条件を変化させ連続的に計測した。これより、同システムを用いて反応・懸濁状況の制御を行うことができた。

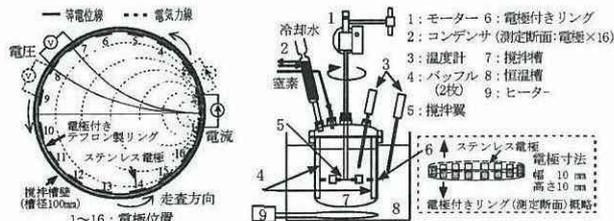


図1 攪拌槽における計測断面概略<sup>4,5)</sup>

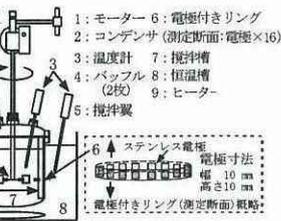


図2 実験装置概略

表1 実験条件

連続相	イソ交換水	720ml
分散相	スチレン	80ml
分散剤	0.05wt%-イソ交換水	
	0.1wt%-イソ交換水	
開始剤	AIBN	0.04mol/l-スチレン
	KCl	0.01mol/l-イソ交換水
重合温度		80°C
攪拌翼		6枚ディスクタービン翼
翼回転速度		5.5s <sup>-1</sup>

$$\sigma^2 = \frac{\sum_{i=1}^n (A - a_i)^2}{n} \quad (1)$$

付表 式(1)と分散状態の関係

$\sigma^2$	小	←	→	大
分散状態	均一	←	→	不均一

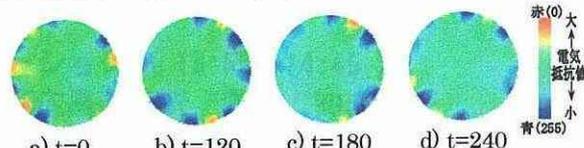


図3 t=0に分散剤を一括投入した場合のトモグラフィー画像の一例

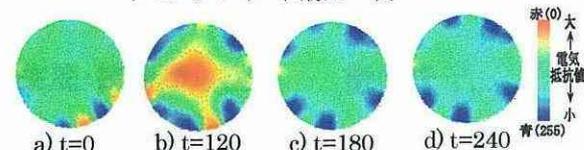


図4 t=0,120に分散剤を分割投入した場合のトモグラフィー画像の一例

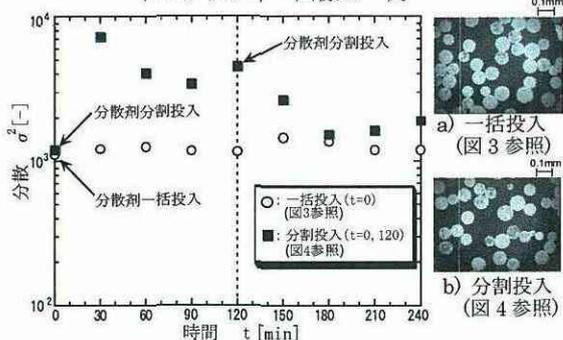


図5 分散剤を重合途中に投入することによる分散状態への影響

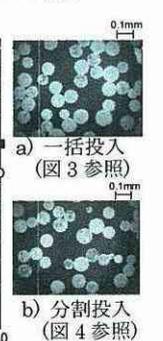


図6 生成粒子の写真例

【使用記号】 A:  $a_1 \sim a_n$ の平均値<sup>1)</sup>  $a_1 \sim a_n$ : 各要素における電気抵抗値の変化量<sup>1)</sup> n: 要素数<sup>1)</sup> t: 反応時間<sup>1)</sup> V: 電極間電圧<sup>1)</sup>  $\sigma^2$ : 分散<sup>1)</sup> 【参考文献】 1) 上ノ山, 上ノ山, 仁志, 和田: 化学工学会第65年会要旨集, A207, (2000) 2) 上ノ山, 上ノ山, 仁志, 和田: 化学工学会第66年会要旨集, G114, (2001) 3) 上ノ山, 仁志, 上ノ山: 日本混相流学会年會講演会 2001 要旨集, B19, (2001) 4) F. Dickin et al.: Meas. Sci. Technol., 7, 247-260, (1996) 5) C. J. Kotre et al.: Phys. Meas., A15, 1-12, (1994)

\*Tel:045-339-3999 FAX:045-339-3999 E-mail:kaminoyama@chemeng.bsk.ynu.ac.jp

## 添付 研究発表 (3) 出版物

- 1) 上ノ山周：攪拌槽内における流動・分散状態の可視化技術－数値シミュレーション手法とトモグラフィ計測法－、化学工学会関東支部 2000 年度鹿島コンビナート講習会「化学装置内の可視化技術， pp.1-10 (2000 年 11 月 22 日)
  
- 2) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：攪拌槽における種々の塑性流体のカバーン形成状態のトモグラフィ計測、化学工学会「熱物質流体工学」特別研究会編、化学工学会シンポジウムシリーズ 75, pp.162-169 (2001 年 2 月 28 日)

# 2000年度 鹿島コンビナート講習会 「化学装置内の可視化技術」

【開催日 2000年11月22日(水)】

【開催場所 三菱化学(株)鹿島事業所】

主催：(社)化学工学会関東支部

## プログラム

1 開会の辞 ( 13:00~13:05 )

三菱化学(株)鹿島事業所 満岡 三信 氏

2 攪拌槽内における流動・分散状態の可視化技術—数値シミュレーション手法とトモグラフィ計測法— ( 13:05~13:55 )

横浜国立大学工学部 上ノ山 周 氏 ..... (1)

3 ポリマー反応器のモデリング/シミュレーション ( 13:55~14:45 )

三菱重工業(株)広島研究所 桑田 知江 氏 ..... (11)

4 ニューラルネットワーク (NN) 技術を利用した重合器内のポリマー物性の推定 ( 14:45~15:35 )

三井化学(株)生産・技術部 松尾 徹 氏 ..... (17)

5 近赤外分光法による熔融ポリマーのオンライン分析 ( 15:50~16:40 )

横河電機(株)環境機器事業部技術部 渡 正博 氏 ..... (22)

6 加熱炉管の余寿命予測 ( 16:40~17:30 )

日揮(株)技術・ビジネス開発本部 細谷 敬三 氏 ..... (25)

7 閉会の辞 ( 17:30~17:35 )

東洋エンジニアリング(株) 牧野 功 氏



社団法人 化学工学会 関東支部

〒112-0006 東京都文京区小日向4丁目6番19号 (共立会館)

電話 03-3943-3527

<http://www.kanto.scej.or.jp/>

# 攪拌槽内における流動・分散状態の可視化技術 —数値シミュレーション手法とトモグラフィー計測法—

横浜国立大学工学部 上ノ山 周

はじめに 本稿では、化学装置の中でも中枢的な役割を担っている攪拌槽を取り上げ、可視化手法の1つとして同槽内における流動現象を数値解析する手法について解説する。併せて可視化手法のもう1つの手法として、最近とみに注目されるようになってきた、装置の断面計測法を取り扱うトモグラフィー計測法について解説する。

前者の流動解析では、重合反応槽を指向するものとして高粘性非ニュートン流体の内、特に擬塑性流体の場合を取り上げる。後者のトモグラフィー計測では、液相槽内における沈降性ならびに非沈降性固体粒子の分散・流動状態への適用例について述べる。

## 1. 攪拌槽内における高粘度擬塑性流体の流動シミュレーション

1.1 数値解析手順 攪拌槽内における流動シミュレーション<sup>1)</sup>を行う際に解くべき基礎方程式は、一般の化学装置と同様、(1)式に示す連続の式と(2)式に示す運動の式である。

$$(\nabla \cdot \mathbf{v}') = 0 \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{v}'}{\partial t} + (\mathbf{v}' \cdot \nabla) \mathbf{v}' + \underbrace{2(\boldsymbol{\omega} \times \mathbf{v}') + \boldsymbol{\omega} \times (\boldsymbol{\omega} \times \mathbf{r})}_{\text{}} \\ = -\frac{1}{\rho} \nabla p - \frac{1}{\rho} [\nabla \cdot \boldsymbol{\tau}] + \mathbf{g} \end{aligned} \quad (2)$$

(1)式は流れ場における質量保存則であり、流体の密度、 $\rho$ を一定とする非圧縮性の仮定をおいている。(2)式は運動量保存則をベクトル表示したものであり、左辺第1項、第2項はそれぞれ時間変化項、対流項を、右辺第1項、第2項、第3項は順に圧力項、粘性応力項、重力項を表す。(1)式の非圧縮性の仮定は温度が一様で、高粘性の流れ場においては、ほぼ妥当である。しかし、槽内に温度分布がある場合には、温度による密度変化を無視し得なくなることから、この仮定は不具合となり、(2)式においてある補正を施す必要が生じるが、これについては省略する。(1)、(2)式は、攪拌槽の装置構造を考慮して、翼に固定された回転円筒座標系を用いて表示されている。上式において速度ベクトル、 $\mathbf{v}$ に'をつけていることが、同座標系での速度ベクトルであることを意味している。(2)式において $\underbrace{\quad}$ を付した項は、コリオリ

力と付加遠心力を表しており、回転座標系を用いる際に現れる。(2)式右辺第2項中の剪断応力テンソル、 $\tau$ は、速度の空間的な勾配を表す剪断速度テンソル、 $\Delta$ と(3)式の関係にある。

$$\tau = -\eta \Delta \quad (3)$$

(3)式中の見かけ粘度、 $\eta$ はニュートン流体では、剪断速度の大きさに依らず一定となり、通常 $\eta$ ではなく $\mu$ で表示されるのに対して、非ニュートン流体では、 $\eta$ は剪断速度の関数となる。非ニュートン流体の中でも高分子水溶液の多くに見られる擬塑性流体のレオロジー特性は、剪断速度の増大とともに剪断応力の増大の割合が減少し、(3)式中の見かけ粘度、 $\eta$ が低下することにある。この特性を表現するための粘度構成方程式は種々提示されている<sup>3)</sup>が、著者らは(4)式で示される3定数のべき指数法則モデル<sup>3)</sup>を用いている。

$$\eta = a / (1 + b\dot{\gamma}^c) \quad (4)$$

(4)式中、分子のパラメータ、 $a$ は零剪断粘度に相当する。同式においては $\dot{\gamma} = (1/2 (\Delta : \Delta))^{1/2}$ であり、これは各メッシュ内での代表剪断速度を表す。ここで $(\Delta : \Delta)$ は、変形速度テンソルの第2不変量と呼ばれ、円筒座標系では具体的には(5)式で計算される。

$$\begin{aligned} 1/2 (\Delta : \Delta) = & 2 \left\{ \left( \frac{\partial v_r'}{\partial r'} \right)^2 + \left( \frac{1}{r'} \frac{\partial v_\theta'}{\partial \theta'} + \frac{v_r'}{r'} \right)^2 + \left( \frac{\partial v_z'}{\partial z'} \right)^2 \right\} \\ & + \left\{ r' \frac{\partial}{\partial r'} \left( \frac{v_\theta'}{r'} \right) + \frac{1}{r'} \frac{\partial v_r'}{\partial \theta'} \right\}^2 + \left( \frac{1}{r'} \frac{\partial v_z'}{\partial \theta'} + \frac{\partial v_\theta'}{\partial z'} \right)^2 \\ & + \left( \frac{\partial v_r'}{\partial z'} + \frac{\partial v_z'}{\partial r'} \right)^2 \end{aligned} \quad (5)$$

即ち $\dot{\gamma}$ は本来テンソル量として表現される剪断速度をスカラー量にて代表するものと考えれば良い。(5)式はここでは回転座標系にて表示したが、通常の静止座標系を用いて計算しても同じ値となり、 $(\Delta : \Delta)$ が不変量と呼ばれる所以である。

図1に示すように、流動解析は攪拌槽内における円周方向の周期的対称性を考慮し、隣合う翼の間隙のみを解析対象に設定すればよい。計算に当たっては、先ず上述の解析領域を幾つかのメッシュに分割する。このとき攪拌翼の面が、分割されたメッシュの面で表現されるよう工夫する必要がある。重合反応槽に多用される、らせん帯翼のように緩やかな曲線形状のものについては、ある程度メッシュを多く刻めば、この座標系を用いても表現可能であり、許容できる精度の計算結果が期待できる<sup>4)</sup>。しかしながら、メッシュ数を増大させるほど、計算時間は長大となり、また分割幅が小さくなるほど後述の収斂計算は不安定なものとなるため、個々の

問題に応じた適切なメッシュの刻み方が肝要となる。速度境界条件としては、液自由表面においてのみ、この面に対する法線方向の速度の空間勾配を零とする、いわゆるすべり有り壁の条件を設定する。攪拌軸、槽底、槽壁には、流体が高粘性であることを踏まえ、これらの面における流速は零とする、すべり無し壁の条件を設定する。また翼を内包する2つの鉛直断面では圧力ならびに速度分布がともに両断面において等しいとおく、周期的境界条件を設定する。初期条件は速度場零、即ち槽内の流体が静止の状態から、時刻零で翼に $\omega (=2\pi n)$ の回転速度を与え、非定常的に計算を立ち上げる。

図2に計算のフローチャートを示す。解析領域を分割した各メッシュについて運動の式(2)を差分法等により離散化し、各タイムステップ内で連続の式、(1)式を満たすように圧力速度の補正計算を行う。即ち連続の式は(2)式を求解する際の拘束条件となる。以上に述べたメッシュ分割から、圧力速度の収斂計算に至るまでの、流れ解析のための計算スキームは種々提案されている<sup>5-9)</sup>。各タイムステップ内での圧力速度の計算が全メッシュについて収斂したのち、回転座標系 $(r', \theta', z')$ での速度ベクトルを(6)式に従って静止座標系 $(r, \theta, z)$ での速度ベクトルに変換する。

$$\mathbf{v} = \mathbf{v}' + \boldsymbol{\omega} \times \mathbf{r} \quad (6)$$

ここで $\mathbf{r}$ は半径方向における各メッシュの位置ベクトルを表す。圧力速度緩和計算の収斂判定については、徒らに厳しくする必要はないが、逆に甘過ぎると定常状態に至るまでの計算過程で収斂不安定を引き起こす原因となる。著者らは(1)式が $5 \times 10^{-3} \text{s}^{-1}$ で満たされることを目安としている。こうして次のタイムステップに移り、以下同様の計算を流速場が定常と見なせるようになるまで繰り返す。ただし本稿では非ニュートン流体を取り扱っているため、各タイムステップの冒頭、圧力速度の収斂計算に入る前に、前回値の速度分布から、各メッシュにおける見かけ粘度を(4)、(5)式を用いて算出しておく必要がある。

1.2 数値解析条件 擬塑性流体には1.0wt%ヒドロキシエチルセルローズ(H.E.C.)水溶液を想定し、その粘度構成方程式には上述の(4)式を用いた。同式中のパラメータの各値はコーンアンドプレート型レオゴニオメータによる実測により求めた値<sup>10)</sup>、 $a=4.234 \text{Pa}\cdot\text{s}$ 、 $b=0.4473 \text{s}^c$ 、 $c=0.6514$ を用いる。

図3にはこのようにして求めた同流体のレオロジー特性曲線を示す。槽径は0.2mとし、翼には図1に示すように、小型翼の代表としてパドルを、大型翼の代表としてアンカーの各翼を用いる。解析領域当たりのメッシュ数は、パドル翼では $20 \times 6 \times 40$ の計4800メッシュ、アンカー翼では $20 \times 9 \times$

40の計7200メッシュとした。また翼回転速度は、Metzner-Ottoの手法<sup>11,12)</sup>を用いて計算される攪拌レイノルズ数、 $Re_d$ が60となるように設定する。その際、各翼に対する比例定数 $B$ の値<sup>13)</sup>は、パドル翼では13、アンカー翼では25とした。

1.3 数値解析結果とその考察 図4、5に各種翼付き槽における数値解析結果の例として、槽鉛直断面における(a)流速ベクトル、(b)剪断速度、(c)見かけ粘度、(d)消費動力の各分布を示す。パドル翼槽では翼からの吐出流が槽壁に衝突後、槽上下に2つの循環流となって槽内部に回帰している様子が判る(a)。アンカー翼付き槽では槽中上部ではほとんど上下方向の流れはなく、槽底部の翼による掻き上げ流が認められる(a)。またどちらの翼槽においても剪断速度は翼廻り近傍で極大となる(b)のに対して、見かけ粘度は流体の擬塑性的な性状から、これとは逆に同領域で極小となる(c)。さらに槽内の局所的な所要動力は、翼廻りにおいて大となることから、同変数量は粘性ではなく剪断速度支配であることが判る(d)。

## 2. 攪拌槽内における固液系分散状態のトモグラフィー計測法

トモグラフィー計測手法とは無接触かつ断面でのスカラー値やベクトル分布を計測する技術を指し、医療工学を中心として発展した。工学分野への応用もここ数年精力的に試みられ、昨年5月には工業プロセス・トモグラフィーに関する世界会議<sup>13)</sup>も開催されるまでになってきている。同手法には、超音波や光、X線さらにはNMRを用いたものまで種々開発されている<sup>14,15)</sup>が、本稿では、液相と固相の電気抵抗が著しい相違を示すことを利用する電気抵抗方式トモグラフィー計測システムの試作・開発を行い、同システムを攪拌槽における固液系分散状態の測定への適用することを検討した。

### 2.1 沈降性固体粒子の懸濁状態

2.1.1 測定原理 図6には攪拌槽における水平断面を示す。槽内壁に沿って16個の電極が装着されている。電気抵抗方式トモグラフィー計測では、まず16個の内、1組の隣り合った電極間に電流を流し、それ以外の隣接する電極間の電位差を順次測定する。次に電流を流す電極対を移動させ、同様の電圧測定を全ての組み合わせについて繰り返す。こうして得られた境界電圧値から、槽内部の抵抗値分布を有限要素法を用いて解析することにより画像として再構成する。同再構成の手法には内部抵抗値分布を推定して解析した結果得られる境界電圧値が、今述べた測定値に収束するまで、同分布を修正して反復計算を行うものと、収斂計算は行わず感度行列

を利用して抵抗値分布を求めるBack-Projection法<sup>10)</sup>とがあるが、本研究では後者によった。

図7に同法による画像再構成のためのフローチャートを示す。抵抗値分布は感度行列と境界電圧の測定値の積から求められる。

2.1.2 測定方法 図8に本研究で用いた攪拌槽の概略を示す。測定用の攪拌槽は、槽径0.19mの亚克力製円筒平底槽であり、電極にはステンレスを用い、各測定断面毎に16個配置している(形状については表1参照)。測定断面は4段としており、各断面毎に抵抗値分布を測定することができる。

攪拌翼には翼径0.1mの4枚傾斜パドル翼を用い、槽底からH/3の位置に設置した。翼回転数は $1.67\text{s}^{-1}$ とした。液相としては0.01mol/l KCl水溶液(比抵抗 $8.33\Omega\text{m}$ )を用いる。また、固体粒子として、KCl水溶液とほとんど密度差がなく、槽内全域に十分に分散する直径1mmのポリスチレン粒子(密度 $1022\text{kg/m}^3$ 、比抵抗 $10^{14}\Omega\text{m}$ )を用いる。粒子濃度は5 vol.%から10, 15, 20, 25, 30 vol.%まで変化させた。

なお同測定を行う前に直径30mmのテフロン丸棒を対象とした予備実験を本測定システムを用いて行い、丸棒が鮮明に画像化されることを確認している。

2.1.3 測定結果および考察 図9に、ポリスチレン粒子濃度を変化させたときの抵抗分布の一例を示す。全ての濃度図において、上下左右に白い箇所が存在するが、これはパドルの位置に相当している。同図から粒子濃度の増加に伴い、槽断面の抵抗値が増加しており、粒子濃度の変化に伴う抵抗値分布として妥当な画像の得られていることが判る。また抵抗値分布のむらが経時的に変化していることを確認しているが(結果の図示は本稿では省略)、これは流れの影響により生じる局所的な粒子濃度のむらを捉えているものと判断される。

## 2.2 非沈降性固体粒子の懸濁・流動領域

本節の測定原理・方法は前節に準じる。対象流体は2種の濃度の炭酸カルシウム懸濁水であり、これらは零剪断速度で降伏応力をもつ塑性流体となる。ここではパドル翼廻りに形成されるカバーンと呼ばれる流動域の大きさの計測を試みる。カバーン内に予め0.25mol/l KCl水溶液を注入し、カバーンの外側の静止領域と電気伝導度の差を作りことにより、流動・静止の境界を電気抵抗方式トモグラフィー手法を用いて計測する。

図10に測定結果の一例を示す。翼廻りのカバーンの形成状況が明確に捉えられている。同結果は熱的判定法<sup>11)</sup>によって測定したカバーン領域の占める容積と比較してほぼ良好に一致している。

さらに光透過性の塑性流体であるカルボキシビニルポリマー水溶液におけるトモグラフィー測定ならびに食紅を用いた可視化実験結果との照合<sup>10)</sup>によっても、同手法の信頼性を確認している。

図11には前図に得られた結果を立体的に構成した画像を示す。回転数の増大とともにカバンの成長する様子とともに、炭酸カルシウムの濃度が高くなるほど、カバン領域は小さなものとなる様子が判る。

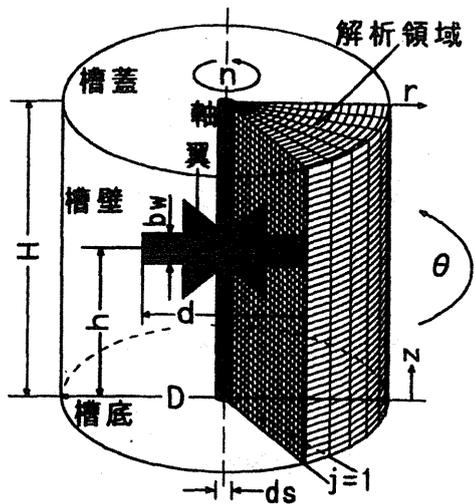
むすびに 攪拌槽内におけるの諸現象の数値解析手法の内、高粘度擬塑性流体の流動状態を数値解析する手法とその適用例について述べた。また筆者らが開発・試作した電気抵抗方式トモグラフィー計測システムを用いて、液相攪拌槽内における沈降性固体粒子の分散・懸濁状態ならびに非沈降性固体粒子の懸濁・流動形成状態を検討した結果について述べた。

今後これらの手法をさらに精緻なものとし発展させるとことにより、懸濁重合反応槽の安定化操作や同装置の大型化の検討に資する研究・検討を遂行していきたい。

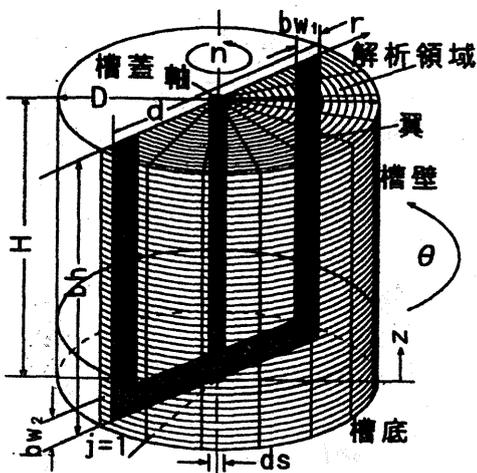
謝辞 本稿のトモグラフィー計測手法については、文部省科学研究費補助金（基盤研究（B）09450290）の支援により遂行されたことをここに記し謝意を表する。

#### 参考文献

- 1) 上ノ山周、斎藤文良、上和野満雄：化学工学論文集、14, 786(1988)
- 2) 平井英二：化学技術者のためのレオロジー、化学技術社、p.31(1978)
- 3) Williams, M.L., R.F. Landel and J.D. Ferry: J. Amer. Chem. Soc., 77, 3701(1955)
- 4) Kaminoyama, M. and M. Kamiwano: Proc. of 8th European Conference on Mixing, p.541 (1994)
- 5) 村田健郎、小国力、三好俊郎、小柳義夫：工学における数値シミュレーション—スーパーコンピュータの応用—、丸善、p.179(1988)
- 6) S.V. バタンカー著、水谷幸夫、香月正司訳：コンピュータによる熱移動と流れの数値解析、森北出版(1983)
- 7) 棚橋隆彦：GSMAC-FEM 数値流体力学の基礎とその応用、アイピーシー(1991)
- 8) 高橋亮一：コンピュータによる流体力学〈演習〉、構造計画研究所、p.214(1985)
- 9) Hirt, C.W., B.D. Nichols, N.C. Romero: LA-5852(1975)
- 10) Kaminoyama, M., M. Watanabe, K. Nishi and M. Kamiwano: J. Chem. Eng. Japan, 32, 23(1999)
- 11) Metzner, A.B. and R.E. Otto: AIChE J., 3, 3(1957)
- 12) Metzner, A.B., R.H. Feehs, H.L. Ramos, R.E. Otto and J.D. Tuthill: AIChE J., 7, 3(1961)
- 13) Procs. of 1st World Congress on Industrial Process Tomography, Buxton, Derbyshire, U.K. (1999)
- 14) F. Dickin, M. Wang; Electrical Resistance Tomography for Process Applications, Meas. Sci. Technol., 7, 247-260 (1996)
- 15) P.J. Holden, M. Wang, R. Mann, et al.; Imaging Stirred-Vessel Macromixing using Electrical Resistance Tomography, AIChE Journal, 44, 780-789 (1998)
- 16) R. A. Williams, M. S. Beck; "Process Tomography - Principles, Techniques and Applications", p.301, Butterworth-Heinemann (1995)
- 17) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、水島彩子：化学工学論文集、26, 669-674(2000)
- 18) 上和野満雄、上ノ山周、仁志和彦、和田剛史：化学工学会第33回秋季大会研究発表講演要旨集、J205(2000)



(a)パドル翼



(b)アンカー翼

図1 攪拌槽の解析領域概略

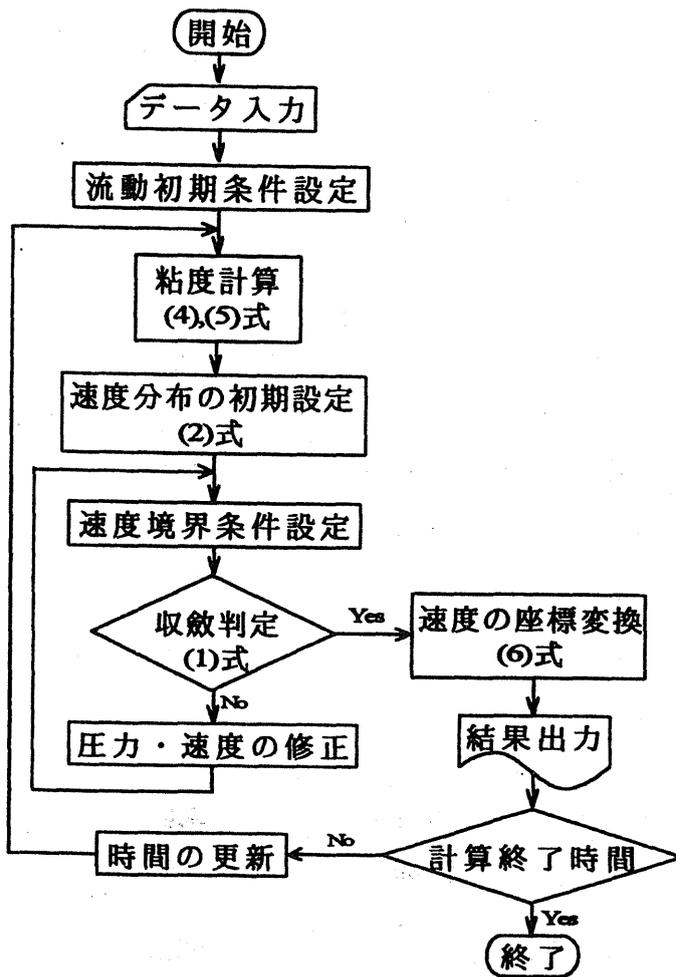


図2 攪拌槽内における流動シミュレーションのフローチャート

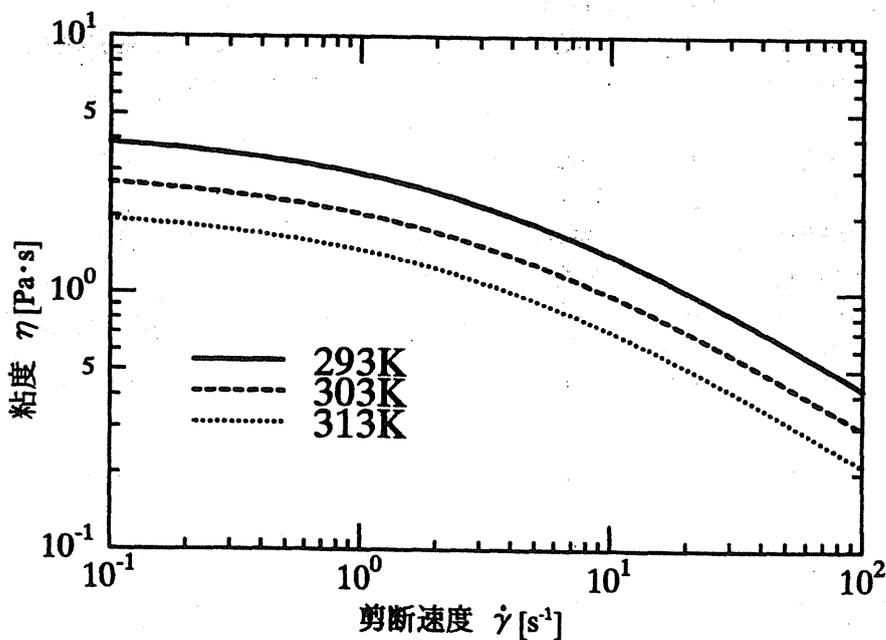
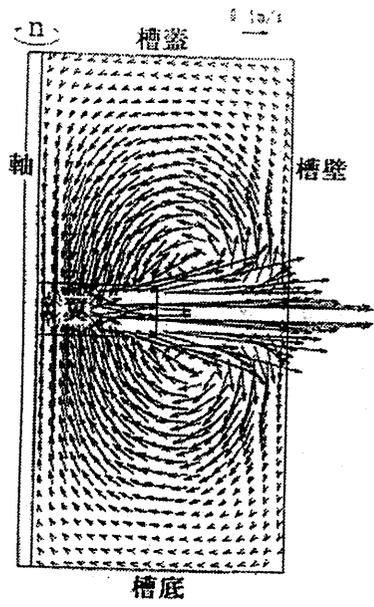
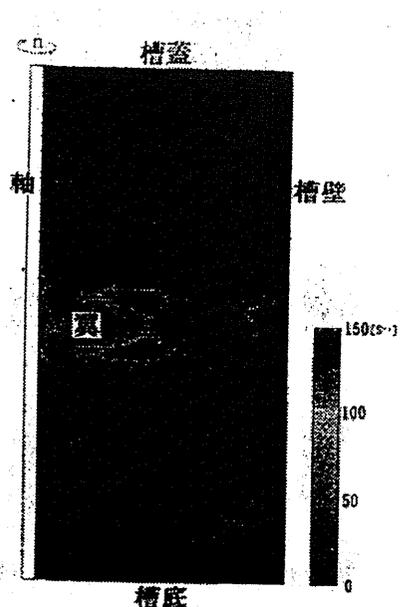


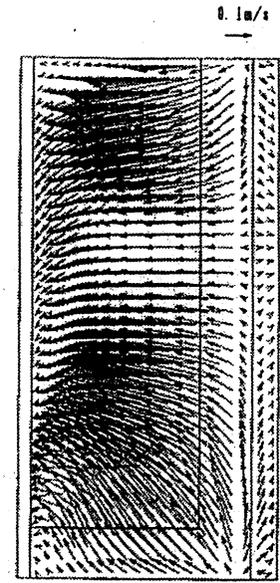
図3 1.0wt.%H.E.C.水溶液のレオロジー曲線



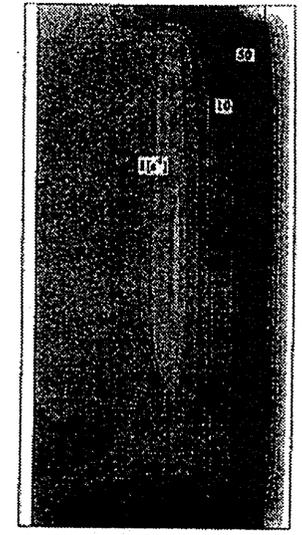
(a)速度ベクトル



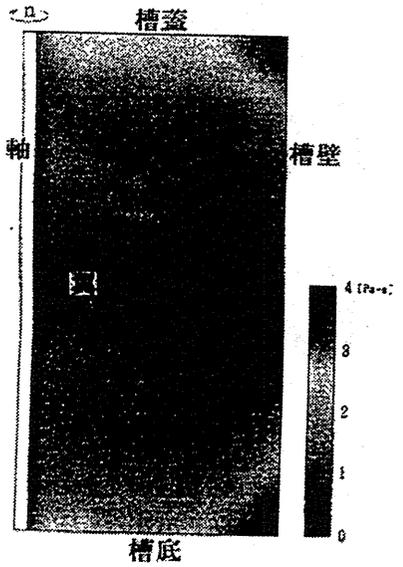
(b)剪断速度分布( $\dot{\gamma}_{ijk}$ )



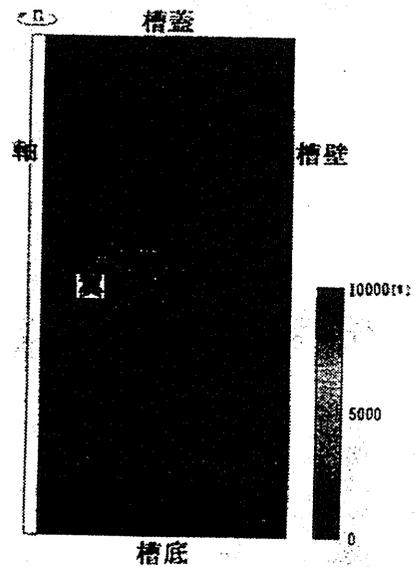
(a)速度ベクトル



(b)剪断速度分布( $\dot{\gamma}_{ijk}$ )

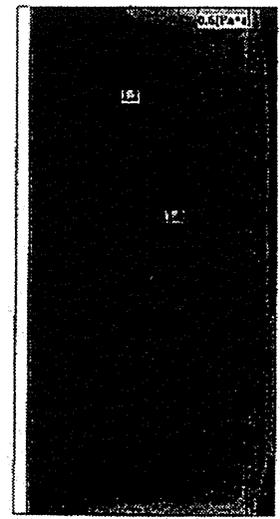


(c)見掛け粘度分布( $\eta_{ijk}$ )

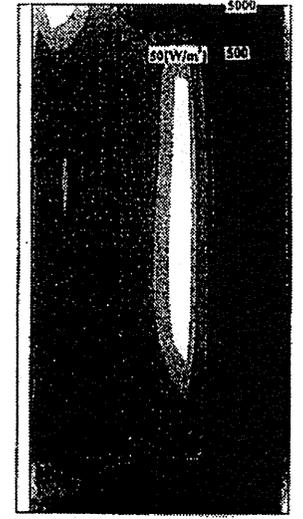


(d)単位体積当たりの消費動力分布  
( $\dot{\gamma}_{ijk}^2 \eta_{ijk}$ )

図4 バドル翼付攪拌槽の各分布図(D=0.2m,  $Re_s=60$ , 鉛直断面 j=1)



(c)見掛け粘度分布( $\eta_{ijk}$ )



(d)単位体積当たりの消費動力分布  
( $\dot{\gamma}_{ijk}^2 \eta_{ijk}$ )

図5 アンカー翼付攪拌槽の各分布図(D=0.2m,  $Re_s=60$ , 鉛直断面 j=1)

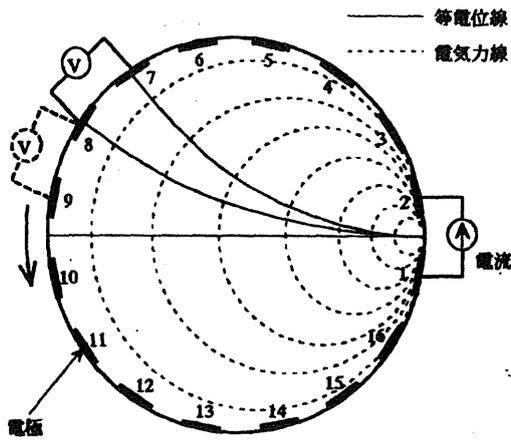


図 6 攪拌槽における測定断面

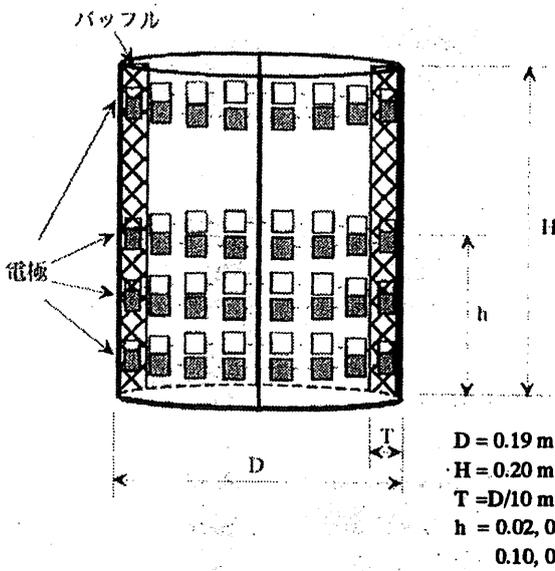


図 8 4断面測定用攪拌槽

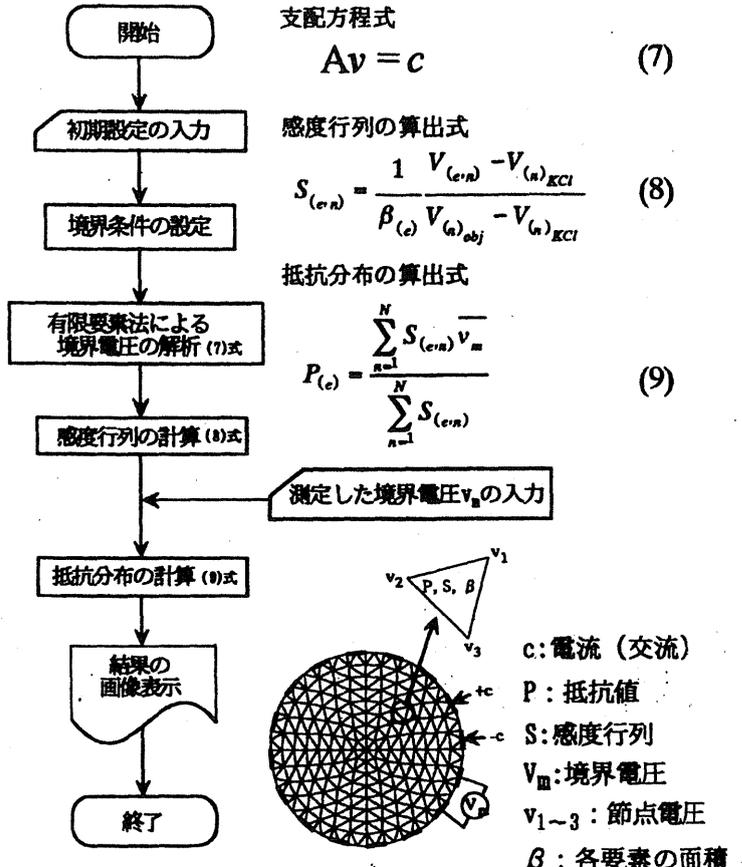


図 7 画像再構成フローチャート<sup>16)</sup>

表 1 測定条件

1断面の電極数	16
電極のサイズ	高さ 10mm × 幅 20mm
信号源	正弦波 (50 kHz)
電流値	10 mA
1断面の測定時間	6 ms

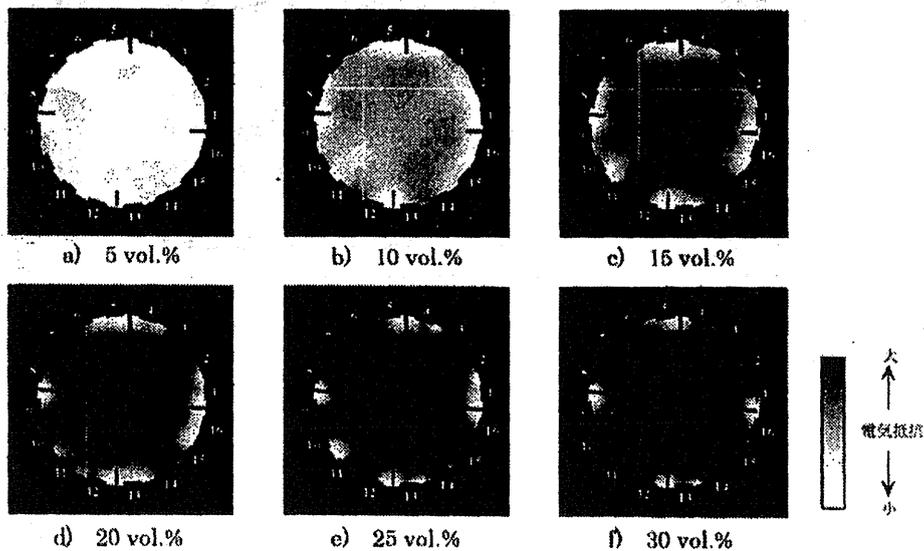


図 9 ポリスチレン粒子濃度を変化させたときの抵抗分布の一例 ( $h=0.1 \text{ m}$ )

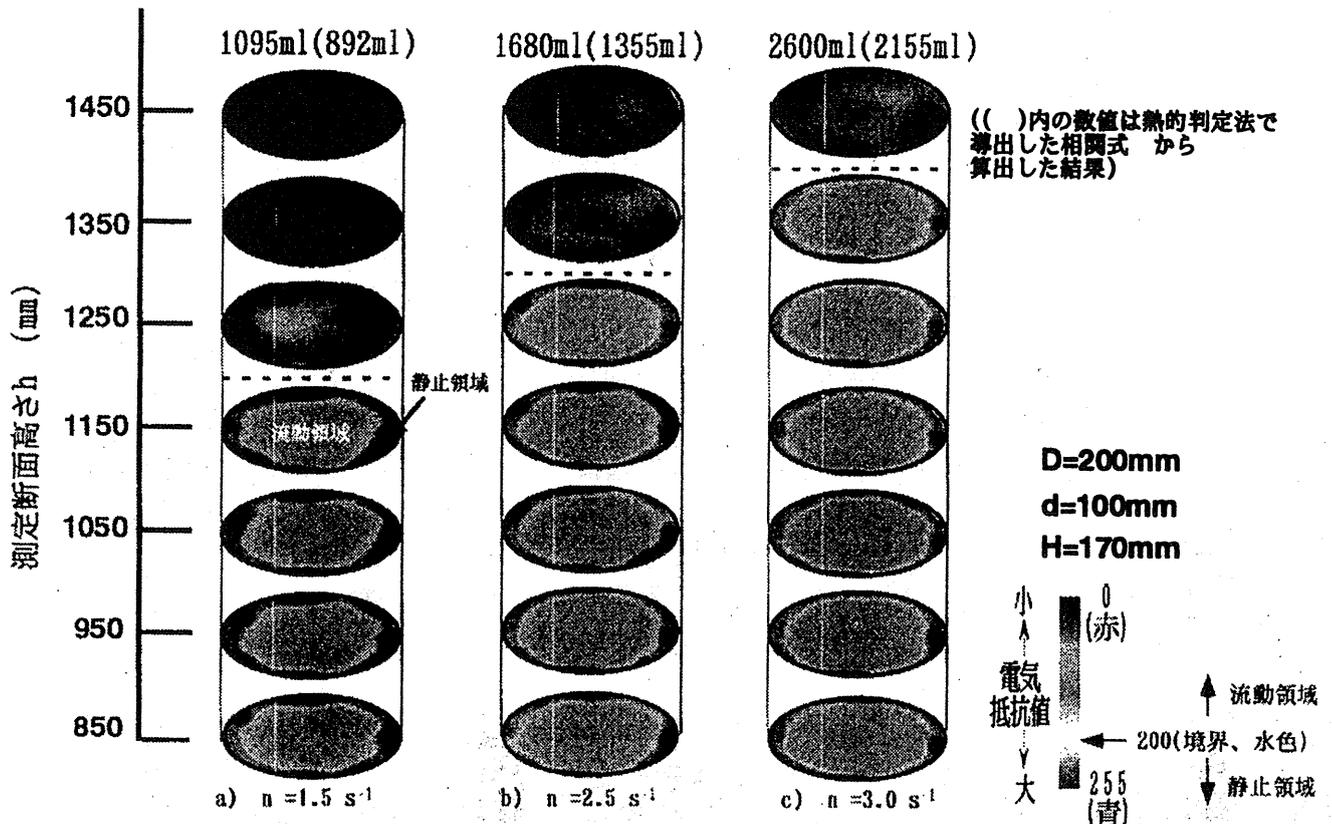


図10 57.2wt%炭酸カルシウム懸濁水における流動(カバーン)領域測定結果の一例 (斜度60°にて表示)

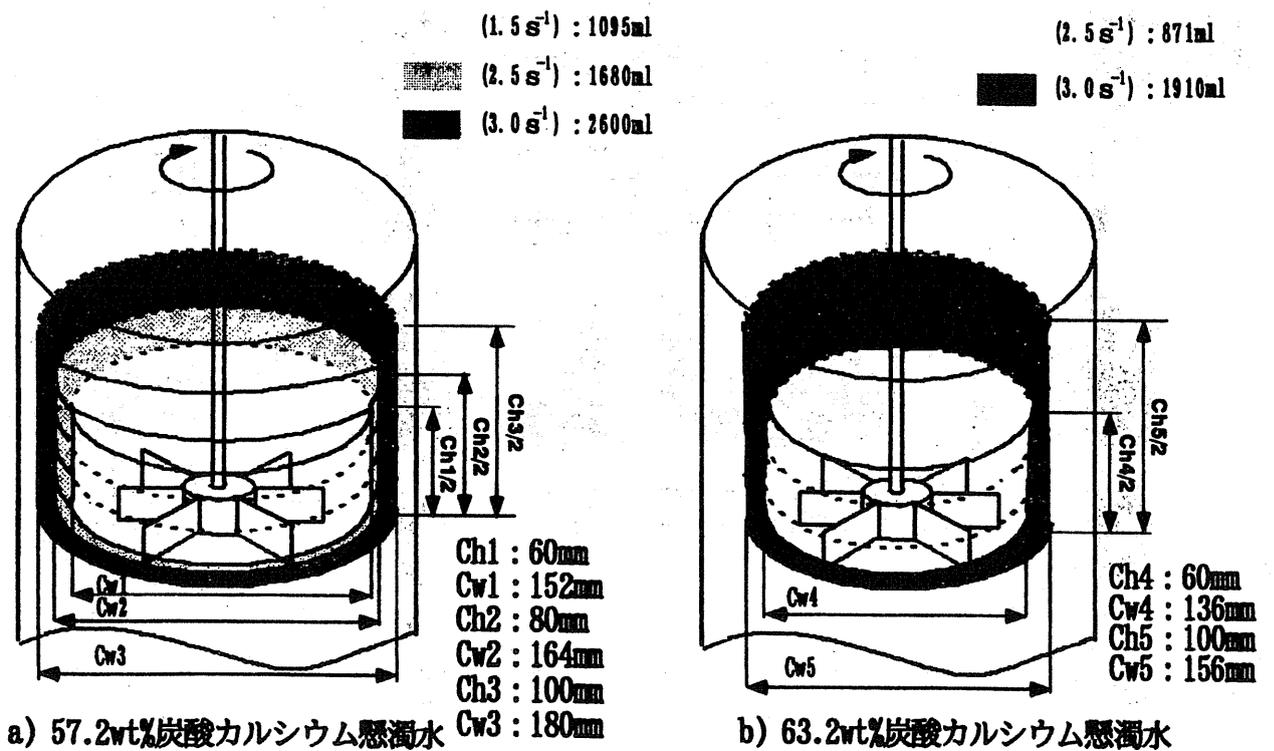


図 11 炭酸カルシウム懸濁水における 3 次元画像構成図

# 攪拌槽における種々の塑性流体のカバーン形成状態の トモグラフィー計測

横浜国立大学 工学部 物質工学科  
上野満雄 上ノ山周 仁志和彦 和田剛史

塑性流体は、降伏応力を有するため、攪拌が不十分であると翼廻りのみで流動するカバーン領域を形成する 경우가少なくない。本研究では、種々の塑性流体において、このようなカバーンの形成状態を把握するため、著者らが試作した電気抵抗方式トモグラフィー測定システムを用いた。本測定システムは、流体の持つ電気伝導度の差を利用することで攪拌槽内断面における流動状態を画像として表示することができる。はじめに、外部からの可視化が可能な塑性流体であるカルボキシビニルポリマー(Carbopol)水溶液を用い、可視化測定による結果と本測定システムにて得られた結果を比較し、検討を行った。次に、可視化が不能な塑性流体である炭酸カルシウム懸濁水を用いて同様の測定を行った。さらにその結果を、既に著者らが検討し、報告している熱的判定法によるカバーン測定結果と比較し良好な結果を得た。

## 1.はじめに

炭酸カルシウム懸濁水などに代表される塑性流体は、降伏応力を有するため、攪拌が不十分であると、翼廻りのみで流動するカバーンと呼ばれる領域を形成する 경우가少なくない[1]。当研究室では、これまでに電気伝導度法[1]、熱的判定法[2]などを用いて同領域の測定を行ってきた。

一方、化学装置内の諸現象を、非接触にしてかつ断面的に計測するトモグラフィー計測手法が近年、種々報告されるようになってきた[3~6]が、当研究室では、これまでに電気伝導度の差異を利用することで、攪拌槽内断面における流動状態を画像として表示する電気抵抗方式トモグラフィー測定システムを開発・試作してきた[7,8]。

本報告では、同領域に電解質溶液を注入し、カバーン領域と静止領域との電気伝導度の差異を作ることにより、攪拌槽内における種々の塑性流体のカバーン形成状態を、同測定システムを用いて3次元的に計測することを試み、その結果の妥当性についても検証したので以下に報告する。

## 2.測定原理

図1に、攪拌槽における測定断面を示す。槽内の流動を阻害しないように、槽壁円周方向に設置した16個の電極により測定を行う。測定には隣接法[9]を用いた。同法は、まず一対の隣り合った電極間に一定電流を流し、それ以外の隣り合った電極間の電圧を測定する。次に、電流を流す電極対を移動し、同様の電極間電圧の測定を行い、これをすべての電極の組み合わせについて走査的に繰り返す方法である。

$$n = \frac{m(m-3)}{2} = 104 \quad (1)$$

(m=16のとき)

m : 電極数    n : 電極の組み合わせ数

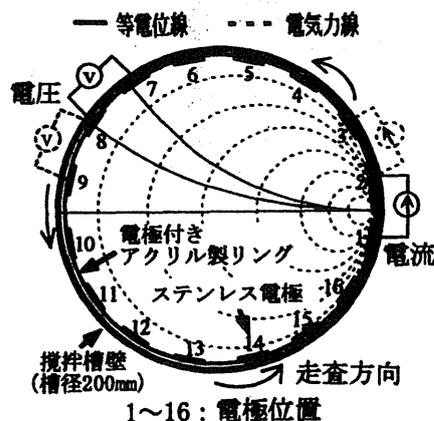


図1 攪拌槽における測定断面概略[9]

式(1)には、この隣接法による電極の組み合わせ数の算出式を示す。本測定システムでは、電極数を 16 としたので、この組み合わせ数は 104 となり、同数の測定を組み合わせることで 1 断面の画像が構成される

### 3. 画像構成

図 2 に、隣接法により測定した電極間電圧から画像を構成するためのフローチャート[10,11]を示す。まずはじめに、有限要素法により電極間電圧の解析を行う。メッシュ数などの各種初期設定値を入力した後、支配方程式として(2)式に示すポアソン方程式を用い、解析を行う。

$$AV = c \quad (2)$$

このようにして解析した電極間電圧( $V_{(e,n)}$ 、 $V_{(n)fir}$ 、 $V_{(n)obj}$ )と、隣接法により測定した電極間電圧から画像を構成する手法として、感度行列( $S_{(e,n)}$ )を利用した Back-Projection 法[10,11]を用いた。感度行列は(3)式にて示される。

$$S_{(e,n)} = \frac{1}{\beta_{(e)}} \frac{V_{(e,n)} - V_{(n)fir}}{V_{(n)obj} - V_{(n)fir}} \quad (3)$$

測定断面は、付図に示すような 344 の有限要素メッシュに分割されており、感度行列、および初期状態における電極間電圧と測定した電極間電圧の差( $v_m$ )から、(4)式を用いることで、各要素毎に初期電気抵抗値分布からの変化量が算出され、これが画像として表示される。

$$R_{(e)} = \frac{\sum_{i=1}^n S_{(e,n)} v_m}{\sum_{i=1}^n S_{(e,n)}} \quad (4)$$

### 4. 測定システム

図 3 に、当研究室にて試作した電気抵抗方式トモグラフィー測定システム[7,8]の概略を示す。同図 a)に示すように、測定用の攪拌槽は、槽径 200mm のアクリル製円筒平底槽である。また、測定用の電極(形状は同図参照)は、ほぼ槽径と等しい大きさ(200mm)のアクリル製のリングに設置されており、これを上下に移動させることで任意の断面における測定が可能となる。

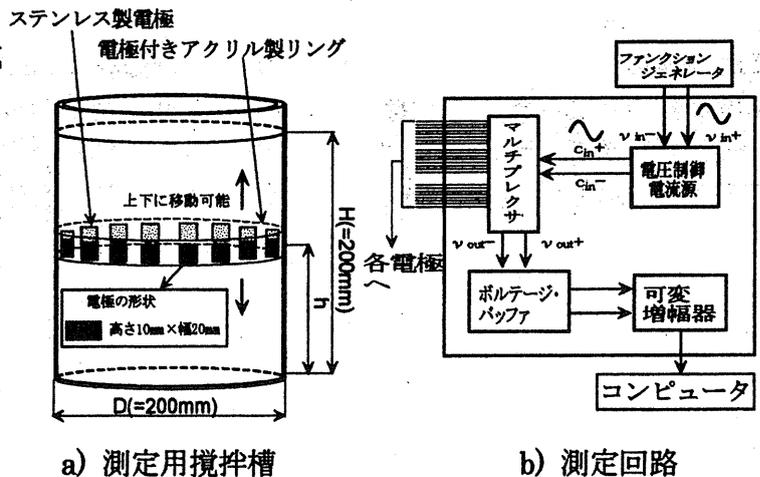


図 3 電気抵抗方式トモグラフィー測定システム概略

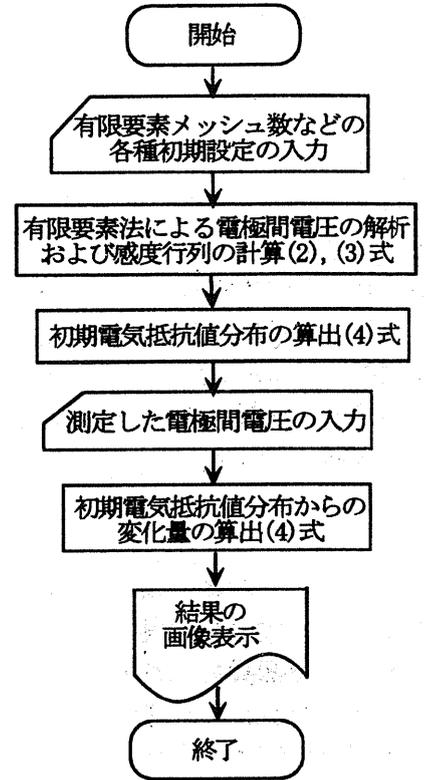
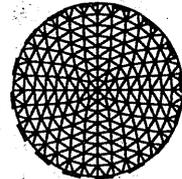


図 2 画像構成フローチャート



付図 有限要素メッシュ(e=344)

同図 b)に示した測定回路において、ファンクションジェネレータで発生した正弦波は電圧制御電流源により一定電流 10mA に変換され、槽内に供給される。また、測定した電極間電圧はボルテージバッファを通して可変増幅器に送られ、適度に増幅された後、コンピュータ内に取り込まれる。AD コンバータには 12bit のものを使用しており、可変増幅器と組み合わせることにより、最高  $12.5\mu\text{V}$  の分解能が得られる。また、1 断面の測定に必要な時間、すなわち、1 枚の画像を得るために必要な時間は最速で 6ms である。

## 5. 予備実験

### 5.1 測定方法

本測定システムにより得られる画像の妥当性を検討するため、予備実験として、 $0.01\text{mol/l}$  KCl 水溶液を満たした攪拌槽内に、これと比較して電気抵抗値の格段に小さなステンレス丸棒を静置した際の測定を行った。図 4 に、予備実験方法概略を示す。同図に示すように槽中心から 50mm 離れた 1-2 電極間に直径 30mm のステンレス丸棒を垂直に静置し、槽中央断面での測定を行った。

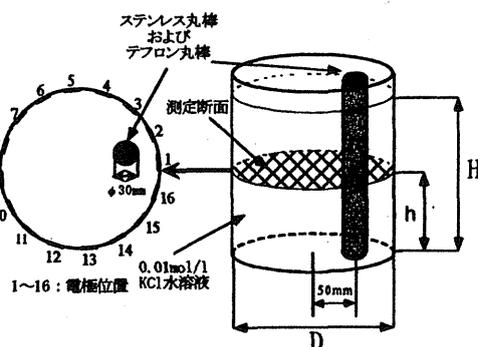


図 4 予備実験方法概略

### 5.2 測定結果

図 5 に、予備実験測定結果を示した。初期状態である  $0.01\text{mol/l}$  KCl 水溶液で満たされた部分は青色を示し、これに対して電気抵抗値の小さなステンレス丸棒で満たされた部分は緑色を示す。また、同図中における白円部分は実際に丸棒を静置した位置を示す。これより、得られた画像は、静置した丸棒の位置を明瞭に表していることが判った。

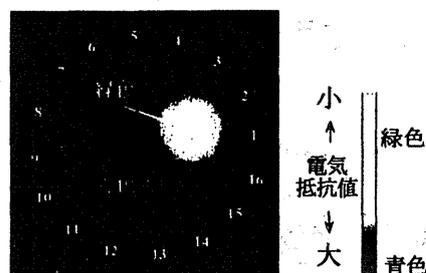


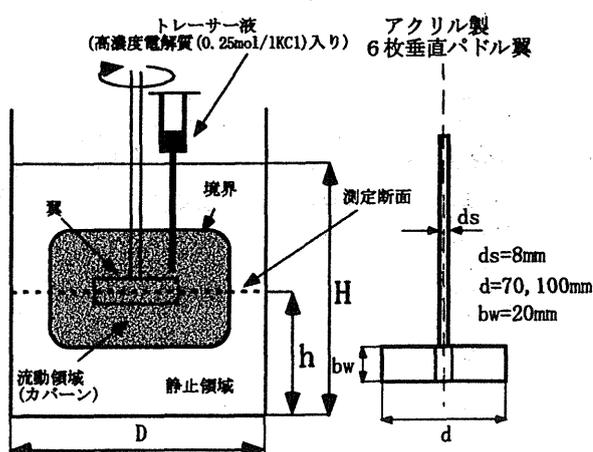
図 5 予備実験測定結果(槽中央断面)

## 6. 実験装置および方法

図 6 に、塑性流体のカバーン領域測定方法概略を示す。測定に用いた塑性流体には、あらかじめ  $0.01\text{mol/l}$  KCl が添加されており、これが初期濃度、すなわち初期状態となる。なお、電解質を注入したことによる流体のレオロジーの変化は、電解質が微量であることから無視できることを確認した。

これに対し、高濃度電解質入り ( $0.25\text{mol/l}$ ) のトレーサー液を、確実にカバーン領域であると判断される攪拌翼近傍に 20ml 注入し、静止領域との電気伝導度の差異を作ることにより測定を行った。また、攪拌翼にはアクリル製の 6 枚垂直パドル翼を用いた。

図 7 には、測定に用いた塑性流体のレオロ



付図 攪拌翼形状

図 6 カバールン領域測定方法概略

ジーを示し、表 1 にはレオメータなどを用いて測定した各流体の物性値を示した。

なお、粘度構成式には、Casson モデル((5)式)[12]を用いた。

粘度構成式 Casson モデル[12]

$$\tau^{1/2} = \tau_c^{1/2} + (\eta_c \dot{\gamma})^{1/2} \quad (5)$$

$\tau_c$  : Casson 降伏値[Pa]

$\eta_c$  : Casson 粘度[Pa · s]

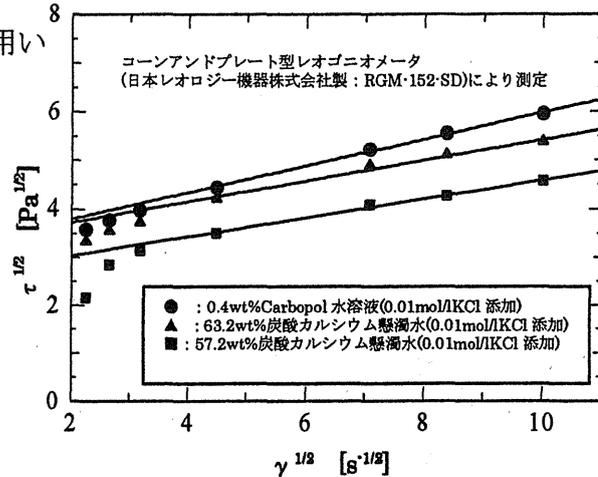


図 7 対象流体のレオロジー特性の一例

表 1 対象流体の物性値の一例

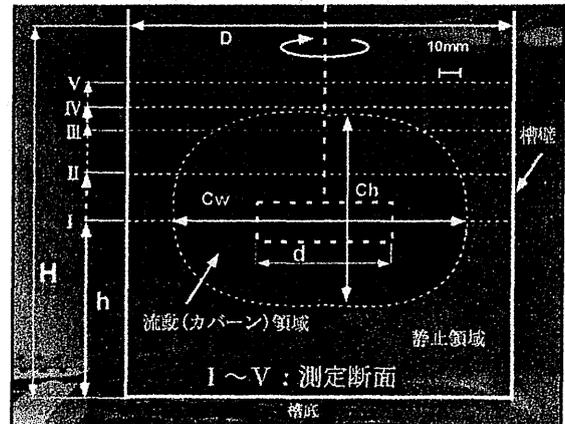
	0.4wt%Carbopol 水溶液	57.2wt%炭酸 カルシウム懸濁水	63.2wt%炭酸 カルシウム懸濁水
$\tau_c$ [Pa]	10.54	6.69	10.87
$\eta_c$ [Pa · s]	0.075	0.042	0.045
$\rho$ [kg/m <sup>3</sup> ]	1000	1601	1667

## 7.測定結果

### 7.1 Carbopol 水溶液を用いた場合

#### 7.1 .1 可視化実験

まずはじめに、対象流体として 0.4wt%Carbopol 水溶液(0.01 mol/lKCl 添加)を用いた。同流体は無色透明であり、カバーン領域内に着色剤を注入することにより、カバーン領域と静止領域との境界が外部から可視化可能である。図 8 に、カバーン領域可視化写真の一例を示した。なお、着色剤には食紅(共立食品会社製)を用い、翼回転数  $N=4.0 \text{ s}^{-1}$  にて攪拌を行った。同図において、点線で囲まれた部分がカバーン領域である。これより、カバーン領域は、幅( $C_w$ ) 150mm、高さ ( $Ch$ ) 110mm の形状で存在していることが判った。また、カバーン領域の形成状態は、上下対称であることが確認されたことから、本測定システムによる測定は、槽上半分のみとした。この可視化による測定結果を本測定システムによる結果の比較対象とした。



$D=200\text{mm}$     $d=70\text{mm}$     $H=200\text{mm}$   
 $h(\text{I})=100\text{mm}$     $h(\text{II})=125\text{mm}$     $h(\text{III})=150\text{mm}$   
 $h(\text{IV})=160\text{mm}$     $h(\text{V})=175\text{mm}$   
 $Ch=110\text{mm}$     $Cw=150\text{mm}$

図 8 カバーン領域可視化写真の一例 (0.4wt%Carbopol 水溶液(0.01mol/lKCl 添加)を  $N=4.0 \text{ s}^{-1}$  にて攪拌)

### 7.1.2 本測定システムによる測定

図 9 に、本測定システムにより得られたカバーン領域測定結果を示した。測定条件は、先に示した可視化写真(図 8)と同様である。初期濃度を示す青色に対し、トレーサー液を注入したカバーン領域は初期濃度より電気伝導度が高いことを表す緑色を示している。ここで、カバーン領域と静止領域との境界を本研究では、濃度階調の数値が 200 であるときとした(同図中カラーバー参照)。図 10 には、KCl 濃度、電気伝導率、および本測定システムにおける濃度階調の関係[13]を示す。これより、カバーン領域は高さ方向では槽底から 150~160mm 付近まで存在していることが判る。これは、可視化写真での結果(図 8)とほぼ一致している。図 11 には、図 9 における  $h=100\text{mm}$  において測定した結果を示す。濃度階調が 200 である部分を囲んで算出した面積を円相当と近似して算出したカバーン領域の直径は 148mm であり、これは、可視化写真(図 8)ともほぼ一致し、これより、境界を濃度階調 200 としたことの妥当性が確認された。図 12 には、本測定システムにより得られた画像をもとにした 3 次元画像構成図を示す。

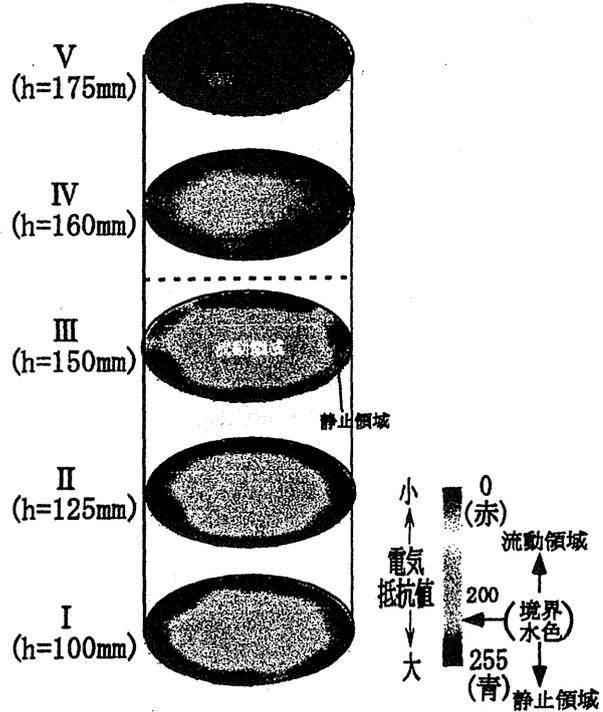


図 9 0.4wt% Carbopol 水溶液を用いた場合におけるカバーン領域測定結果(斜度  $60^\circ$  にて表示、 $N=4.0\text{s}^{-1}$  で攪拌)

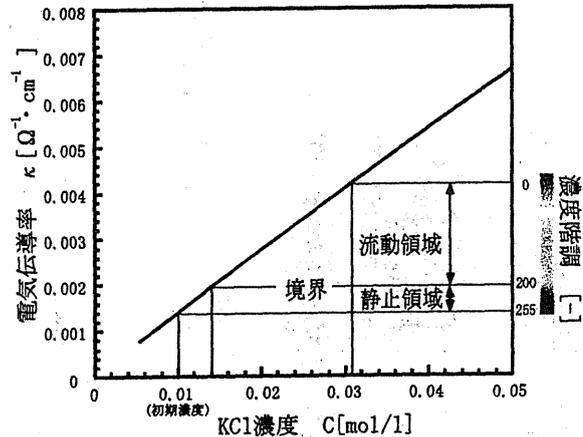


図 10 KCl 濃度・電気伝導率・濃度階調の関係[13]

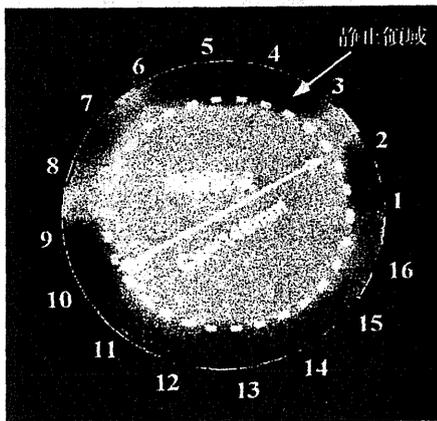


図 11 測定断面(I)  $h=100\text{mm}$  における測定結果(1~16: 電極位置)

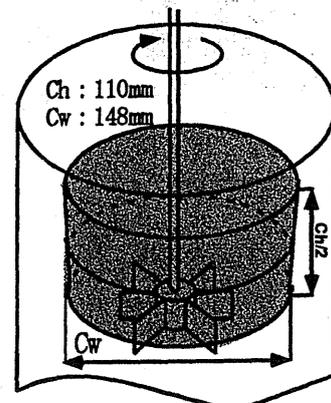


図 12 3次元画像構成図

## 7.2 炭酸カルシウム懸濁水を用いた場合

次に、対象流体を不透明な炭酸カルシウム懸濁水に変えて測定を行った。図 13 a)に懸濁濃度 57.2wt%、b)に 63.2wt%における測定結果を示した。なおカバーン領域と静止領域との境界は可視化により妥当性が確認された濃度階調の数値が 200 をもって、その判定基準とした。同図より、翼回転数が増加するに連れて、カバーン領域が半径方向、高さ方向ともに増加していることが判る。さらに、同図 a)、b)を比較して、同じ翼回転数であっても、懸濁濃度の高いほうがカバーン領域は小さく形成されていることが判る。各測定断面におけるカバーン領域の直径を用い、カバーン領域を円筒近似して算出したカバーン領域液体積を併せて示した。( )内の値は、後述の熱的判定法により導出した相関式[14,15]により算出したカバーン領域液体積である。本測定システムによる結果のほうが液体積を大きく捉える傾向があるが、これは、カバーン領域の上下先端部分を、本測定システムでは厳密に捉え切れていないことが原因と考えられる。図 14 には、このようにして得られた画像を元に作成した各懸濁濃度ごとの 3 次元画像構成図を示す。翼回転数の増加により液体積が増加し、また、同じ翼回転数でも懸濁濃度が高いほうが液体積が小さくなる様子が判る。

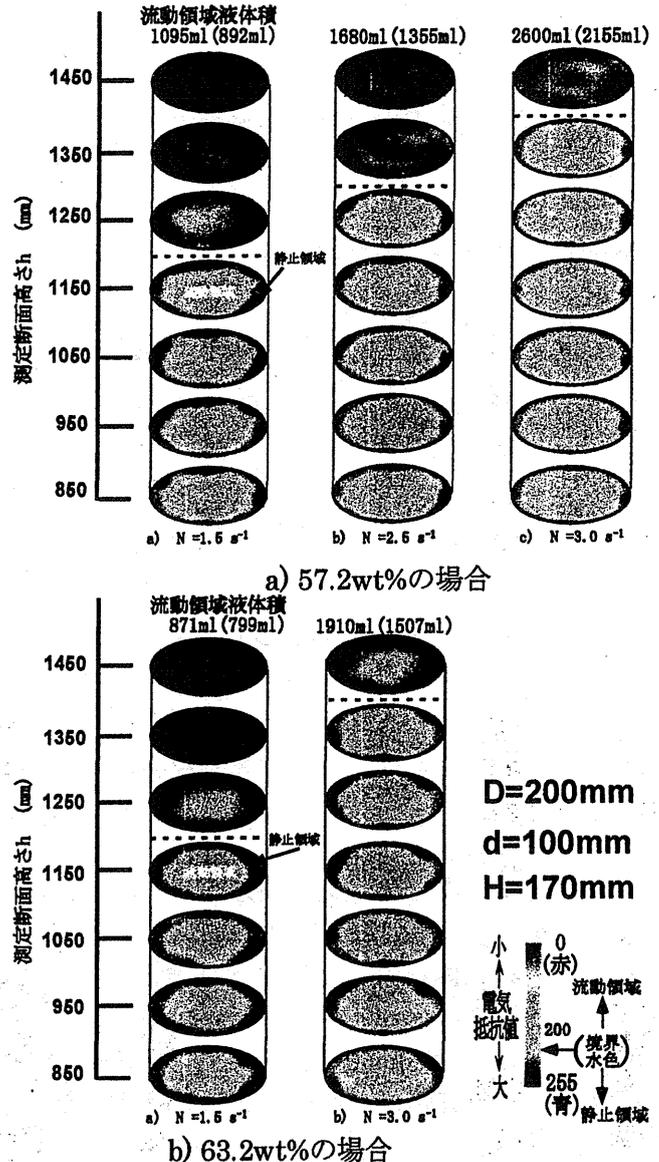


図 13 炭酸カルシウム懸濁水におけるカバーン領域測定結果の一例(斜度 60°)

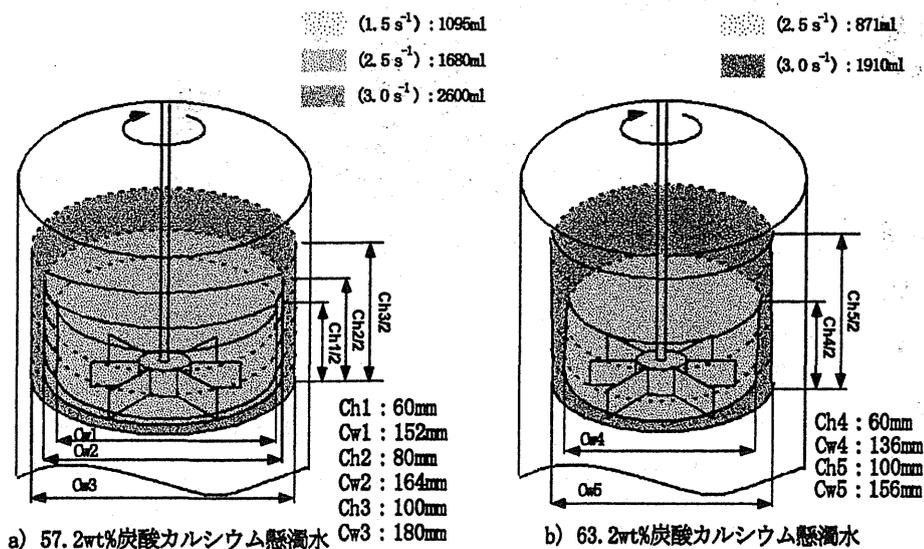


図 14 炭酸カルシウム懸濁水における 3 次元画像構成図

### 7.3 相関式との比較

本測定システムにより得られた画像を基に算出したカバーン領域液体積を、著者らが熱的判定法により導出した相関式[14,15]による結果と比較した。導出した相関式は(6)式にて示される。

$$V^* = 1.22 \times 10^{-2} Np Re_c^{0.74} Bi_c^{-0.72} \quad (6)$$

$$V^* = \frac{V_c}{V_t} \quad Np = \frac{P}{\rho n^3 d^5}$$

$$Re_c = \frac{\rho n d^3}{\eta_c} \quad Bi_c = \frac{\tau_c}{\eta_c n}$$

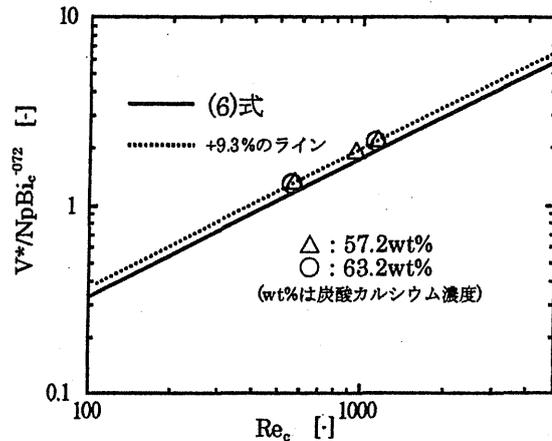


図 15  $Re_c$  と  $V^*/NpBi_c^{-0.72}$  の関係

図 15 に、比較の結果として、 $Re_c$  と  $V^*/NpBi_c^{-0.72}$  の関係を示した。実線で示されているものが相関式の結果である。また、本測定システムにより得られたカバーン領域液体積を用いたものが各懸濁濃度ごとに△、○のプロットにて示されている。これより、本測定システムのほうが全体的に大きく捉える傾向があるものの、ほぼ一致する結果が得られた。

#### おわりに

著者らが試作した電気抵抗方式トモグラフィ測定システムを用い、二、三の塑性流体の流動状態を多断面にて測定することで、カバーン領域形成状態を 3 次元的に計測した。光透過な塑性流体を用いた可視化実験による検証を行うとともに、従来、著者らが他の測定法で導出したカバーン領域液体積の相関式と、本測定システムにより算出したカバーン領域液体積を比較し、良好に一致することを検証した。これより、本測定システムを用いて、攪拌槽における塑性流体のカバーン領域形成状態を良好に把握できることが判った。

#### <謝辞>

本研究は、文部省科学研究費補助金(基礎研究(B)09450290)の支援により遂行されたことをここに記し謝意を表す。

#### <使用記号>

A: 係数行列[ $\Omega^{-1}$ ]  $Bi_c$ : 修正ビンガム数[-] bw: 羽根高さ[m] C: KCl 濃度[mol/l] c: 電流[A] Ch: カバーン高さ[m] Cw: カバーン幅[m] D: 槽径[m] d: 翼径[m] ds: 軸径[-] e: 要素数[-] H: 液深[m] h: 測定断面高さ[m] m: 電極数[-] N: 翼回転数[ $s^{-1}$ ] Np: 動力数[-] n: 電極の組み合わせ数[-] P: 攪拌所要動力[W] R: 初期状態からの電気抵抗値の変化量[-]  $Re_c$ : 修正レイノルズ数[-] S: 感度行列[-] V: 解析による電極間電圧[V]  $V_t$ : 攪拌槽液体積[ $m^3$ ]  $V_c$ : カバーン領域液体積[ $m^3$ ]  $V^*$ : 無次元カバーン領域液体積[-]  $v_m$ : 初期状態における電極間電圧と測定による電極間電圧の差[V]  $\beta$ : 要素面積[ $m^2$ ]  $\kappa$ : 電気伝導率[ $\Omega^{-1} \cdot cm^{-1}$ ]  $\eta_c$ : Casson 粘度[ $Pa \cdot s$ ]  $\rho$ : 流体密度[ $kg/m^3$ ]  $\gamma$ : せん断速度[ $s^{-1}$ ]  $\tau$ : 降伏応力[Pa]  $\tau_c$ : Casson 降伏値[Pa]

<参考文献>

- 1) 新井、上ノ山、上和野ら：化学工学論文集,16,946-952,(1990)
- 2) 上和野、上ノ山、仁志、水島：化学工学論文集,26,669-674,(2000)
- 3) M.B.Utomo、内田ら：化学工学会第 65 年会要旨集,C103,(2000,東京)
- 4) R.Mann et al. : 1st.World Congress on Industrial Process Tomography,78-83,(1999)
- 5) T.Dyakowski et al. : 1st.Congress on Industrial Process Tomography,113-119,(1999)
- 6) M.Machida et al. : 1stst.Congress on Industrial Process Tomography,560-562,(1999)
- 7) 上和野、上ノ山、仁志、和田：化学工学会第 32 回秋季大会要旨集,R109,(1999,金沢)
- 8) 上和野、上ノ山、仁志、和田：化学工学会第 65 年会要旨集,A207,(2000,東京)
- 9) F.Dickin et al. : Meas.Sci.Technol.,7,247-260,(1996)
- 10) R.A.Williams et al. : Process Tomography-Principles,Techniques and Applications, 301,Butterworth-Heinemann,(1995)
- 11) C.J.Kotre et al. : Phys.Meas.,A15,1-12,(1994)
- 12) N.Casson : Rheology of Disperse Systems,P84,Pergamon Press(1959,London)
- 13) 電気化学協会：第 4 版電気化学便覧,P81,丸善,(1985)
- 14) 上和野、上ノ山、仁志、佐々木：化学工学会第 64 年会要旨集,S116,(1999,名古屋)
- 15) 上和野、上ノ山、仁志、佐々木：化学工学会第 65 年会要旨集,A304,(2000,東京)