

複合型トモグラフィ計測システムを用いた  
懸濁重合反応における相逆転現象の機構解明

課題番号：18560731

平成 18 年度～平成 19 年度科学研究費補助金  
(基盤研究 (C)) 研究成果報告書

横浜国立大学附属図書館



12090955

平成 20 年 5 月

研究代表者 上ノ山 周

(国立大学法人 横浜国立大学 大学院工学研究院 教授)

寄贈者：上ノ山周

12090955  
複合型トモグラフィ計測システムを用いた懸濁重合反応における相逆転現象の機

571  
KA

## 目 次

1) はしがき	・ ・ ・ ・ 1
2) 第1篇	・ ・ ・ ・ 3
電気抵抗トモグラフィ計測手法を用いた液液系攪拌槽内における動的分散挙動の検討	
3) 第2篇	・ ・ ・ ・ 26
電気抵抗トモグラフィ計測手法を用いた高濃度液液系攪拌槽内における相逆転現象を伴う分散挙動の検討	
4) 第3篇	・ ・ ・ ・ 50
リアルタイム高速画像処理システムを用いた懸濁重合槽における液液分散挙動に及ぼす各種操作因子の影響の検討	
5) 研究発表	
(1) 雑誌論文	・ ・ ・ ・ 102
(2) 学会発表 (口頭発表)	・ ・ ・ ・ 108
(3) その他	・ ・ ・ ・ 125

横浜国立大学附属図書館



12090955

## は し が き

研究種目名：基盤研究（C）

研究課題： 複合型トモグラフィ計測システムを用いた懸濁重合反応における相逆転現象の機構解明

課題番号： 18560731

研究組織： 研究代表者：上ノ山 周（横浜国立大学 大学院工学研究院 教授）

研究分担者：仁志 和彦（横浜国立大学 大学院工学研究院 准教授）

研究分担者：三角 隆太（横浜国立大学 大学院工学研究院 特別研究教員）

研究経費：	直接経費	間接経費	合計
平成 18 年度	1,700 千円	0 千円	1,700 千円
平成 19 年度	1,300 千円	390 千円	1,690 千円
総計	3,000 千円	390 千円	3,390 千円

研究発表

### (1) 雑誌論文

- 1) 上ノ山 周、仁志和彦、三角隆太：(特集解説) 電気抵抗方式トモグラフィ法を用いた異相系攪拌槽における分散状態の可視化、静電気学会誌、30 巻 4 号、156-160 (2006)

### (2) 学会発表（口頭発表）

- 1) 藤嶋 莉恵子、三角隆太、仁志和彦、上ノ山周：液液攪拌槽における液滴分散挙動に及ぼす分散相濃度の影響、(社)化学工学会第 38 回秋季大会講演要旨集、E208、福岡市（2006 年 9 月 17 日）
- 2) 田河 敦、三角隆太、仁志和彦、上ノ山周：電気抵抗トモグラフィ手法を用いた気-液系攪拌槽における分散状態の計測、(社)化学工学会第 38 回秋季大会講演要旨集、E208、福岡市（2006 年 9 月 17 日）
- 3) 田河 敦、三角隆太、仁志和彦、上ノ山周：トモグラフィ計測による翼周辺ボイド率を用いた高粘度通気攪拌槽内の動力相関の検討、(社)化学工学会第 72 年会講演要旨集、G113、京都（2007 年 3 月 19 日）
- 4) M.Kaminoyama, K.Nishi, R.Misumi, A.Tagawa, "Measurements of Liquid-Liquid Dispersion Phenomena in a Stirred Vessel using Electric Resistance Tomography", 5th World Congress on Industrial Process Tomography, CRE06 (3rd-6th Sep., 2007) Bergen (Norway)
- 5) M.Kaminoyama, K.Nishi, R.Misumi, A.Tagawa, "The Power Consumption Correlation in an Aerated Stirred Vessel with a Void Fraction around the Stirring Impeller based

on Electrical Resistance Tomography Measurements", 5th World Congress on  
Industrial Process Tomography, CRE11 (3rd-6th Sep., 2007) Bergen (Norway)

(3)その他

- 1) 田河 敦、三角隆太、仁志和彦、上ノ山周：電気抵抗トモグラフィー手法を用いた気-液系  
攪拌槽における分散状態の計測、(財)万有生命科学振興国際交流財団 第6回創薬工学シンポ  
ジウム、P-15、東京 (2006年12月1日)

研究成果の概要

本研究では重合反応装置に多用される攪拌槽内における液液系分散の動的挙動を解明するため、トモグラフィー計測手法とリアルタイム高速画像処理システムの2つの可視化手法を用いて検討を行った。

本報告書は以下の全3篇からなる。

まず第1篇では、トモグラフィー計測手法を用い、液液(水-油)2相系(油分5, 10vol%)が攪拌槽において初期の分離2層状態から油層が分裂して水層に十分に分散する状態に至るまでの動的挙動を計測し、翼回転数ならびに分散相濃度等の操作条件と分散達成時間との相関関係を得るとともに、油層が分裂し槽全体に分散していく過程を槽内のバルクな流れとの関連において理解可能なものとした。

つづいて水(分散相)/油(連続相)系(油分30vol%)から油(分散相)/水(連続相)系となる相逆転現象を、攪拌翼設置高さの突変により生起させ、同現象をトモグラフィー計測手法により捉えることに成功したことについて述べる。

また第2篇では油分をさらに高濃度にした条件(油分50vol%)において、翼回転数を経時的に変化させることにより、相逆転現象生起させ、同現象をトモグラフィー計測手法により捉えることに成功したことについて述べる。同相逆転現象は、水(分散相)/油(連続相)系と油(分散相)/水(連続相)系とが、ある時点までは可逆的に間断なく入れ替わる状態から、その時点に達すると油(分散相)/水(連続相)に系が固定され不可逆となることを明らかにした。最後に第3篇では、前章までの検討と併行して、リアルタイム高速画像処理システムを用い、重合反応を伴わない場でのモノマー油滴分散状態の動的分散過程に関する検討から始めて、実際の懸濁重合反応場において液滴径分布を経時的に計測することにより、とくに重合反応の進行に伴う平均液滴径の動的変化に関する知見を得たことについて述べる。

今後は、これらの成果を踏まえ、より精緻な計測結果を積み上げることにより、重合反応場における液液分散状態の動的挙動の解明を行うとともに、同場における相逆転現象の把握とその機構解明に繋げることが期待される。

第1篇 電気抵抗トモグラフィー計測手法を用いた液液系攪拌槽  
内における動的分散挙動の検討

# 第 1 章 液－液系攪拌槽における液滴の分散挙動の検討

## 1.1 はじめに

液－液操作は、相互不溶の 2 液を攪拌し、一方の液相を液滴として分散させる操作である。本操作の目的は、2 液相間の物質移動や熱移動の促進を図ること、あるいは懸濁重合やマイクロカプセルの製造のように、球形形状の生成物を得ることにある。

液－液攪拌において液滴は一次滴に応力が加えられ、これが滴全体あるいはその一部を変形させ、次いで表面波が一次滴が数個の滴そして時にはより小さな衛生的に分裂する点まで成長することにより生じる。しかしながらこれらの現象を動的に計測することは困難である<sup>1)</sup>。

また懸濁重合反応において水相を連続相とし、モノマーやポリマーの油滴を分散相とした状態で操作するのが通常であるが、この関係が逆転する相逆転現象を起こす事例が知られている。しかしながら同現象の発現機構はほとんど解明されていない<sup>2,3)</sup>。

本研究では電気抵抗トモグラフィ計測手法を用いて液－液系攪拌槽内の分散状態を高速で計測することにより分散相が 2 層分離している状態から均一に分散するまでの動的な挙動および水が分散相から連続相に変わる相逆転現象の計測について検討する。

## 1.2 液滴の動的分散挙動の計測

### 1.2.1 実験装置および方法

図 1.1.1 には実験装置概略を示した。攪拌槽には槽径 85mm の 4 枚邪魔板付円筒槽を用いた。この攪拌槽には各計測断面の円周上等間隔に電極を 16 個、高さを変えて 3 段設置した。またバッフルにはテフロンコーティングをして絶縁状態とした。攪拌翼には翼径 50mm の 6 枚垂直パドル翼を用いた。翼設置高さは液深の 1/2 とした。表 1.1.1 には実験条件を示した。連続相にはイオン交換水を、分散相にはスチレンを用いた。全液量は 600ml である。また攪拌液と液滴の電気伝導度の差を大きくするために塩化カリウムを添加した。塩化カリウムの量は攪拌液の電気伝導度が 0.122S/m となるように添加した。図 1.1.2 にはスチレンの分散挙動をイラストで示した。実験は図 1.1.2 に示すようなスチレンの分散挙動を攪拌開始から 5 秒間、トモグラフィーを用いて連続計測した。また操作条件として翼回転数と分散相濃度を変えた検討を行った。

図 1.1.3 にはトモグラフィー計測に用いた有限要素メッシュを示した。要素数は 432 である。このメッシュはバッフル幅やバッフル槽壁間の隙間の境界条件を入れ、導電性の攪拌翼を配置して計算ができるように作製した。

## 1.2.2 結果および考察

図 1.1.4 には各断面における分散相体積分率の経時変化およびトモグラフィ一画像を示した。この時の翼回転数は  $5.83\text{s}^{-1}$  である。ここでコンターは青色が電解質であり緑、赤となるにつれ体積分率が高くなることを示している。同図より各計測断面の分散相体積分率は一定値に収束することが判る。また上段と中段においてピークを確認することができる。これはスチレンの層が槽内で循環している状況を捉えているものと考えられる。またこのピーク間の時間は粒子トレーサ実験による循環時間の実測値とほぼ等しくなることを確認している。一方、下段においての体積分率の変化は緩やかであることが確認できる。これは下段にはスチレンの層が入り込まず、小さな液滴が徐々に入り込むためにピークが現れず、緩やかな変化をしていると考えられる。またトモグラフィ一画像よりスチレンが 1.0 秒後に計測断面中央から入り込み、断面全域に分散していく状況を確認することができる。図 1.1.5 には翼回転数が  $4.17\text{s}^{-1}$  の時の、図 1.1.6 には翼回転数が  $5.00\text{s}^{-1}$  の時の各断面における分散相体積分率の経時変化を示した。図 1.1.4、1.1.5、1.1.6 より翼回転数が低くなると分散相体積分率は上段が高く、下段が低くなり槽内に濃度のむらができるため、各断面の分散相体積分率が一つの値に収束しないことが判る。

そこで操作条件を変えた時における槽全体の体積分率の差異を 1 つの指標で

表すために  $\phi^*$  を(1.1)式で定義した。

$$\phi^* = \frac{1}{3} \sum_{j,k} |\phi_j - \phi_k| \quad (1.1)$$

ここで  $j, k$  は上、中、下段の計測断面のいずれか 2 つを表し、すべての組み合わせについて和をとる。 $\phi^*$  の値が小さいほど槽内全域における液滴の分散状態が良好であることを表している。図 1.1.7 には各翼回転数における  $\phi^*$  の経時変化を示した。同図より翼回転数が増加すると槽内の分散状態が良好になることが判る。また時間が経過するにつれ  $\phi^*$  の値は一定値に収束することが判る。ここで  $\phi^*$  の値が最小値の時に槽内の液滴の分散状態が安定し始めると考え、この時間を安定分散時間  $t_{sd}$  と定義した。

図 1.1.8 には翼回転数と  $t_{sd}$  の関係を示した。同図より翼回転数が増加すると  $t_{sd}$  は小さくなることが判る。また分散相濃度が  $t_{sd}$  に与える影響はほとんどみられない。以上より  $t_{sd}$  について以下に示す相関式を得た。

$$t_{sd} = 10.6n^{-0.58} \quad (1.2)$$

### 1.3 相逆転現象の計測

#### 1.3.1 実験装置および条件

図 1.1.9 には実験装置概略を示した。攪拌槽には 85mm の円筒槽を用いた。この攪拌槽には翼設置高さ円周上等間隔に電極を 16 個設置した。攪拌翼には翼径 50mm の 6 枚垂直パドル翼を用いた。表 1.1.2 には実験条件を示した。初期連続相にはスチレンを、初期分散相にはイオン交換水を用いた(相逆転現象は連続相と分散相が逆転するため初期連続相と初期分散相と表記した)。全液量は槽径と液深を等しくするために 482ml とした。また攪拌液と液滴の電気伝導度の差を大きくするために塩化カリウムを添加した。塩化カリウムの量は初期分散相の電気伝導度が 0.122S/m となるように決定した。図 1.1.10 には相逆転現象のイメージ図をイラストで示した。実験はスチレン層に攪拌翼を設置して攪拌を開始し、イオン交換水が分散相、スチレンが連続相(以下、W/O)の状態にする。その後トモグラフィー計測を開始し、攪拌翼を液深の 1/2 に設置することでスチレンが分散相、イオン交換水が連続相(以下、O/W)になる状況について検討する。

#### 1.3.2 結果および考察

図 1.1.11 には相逆転現象の経時変化をトモグラフィー画像で示した。また図 1.1.12 には計測開始 8 秒後からの体積分率の経時変化を示した。ここでコンタ

一は青色が電解質であり緑、赤となるにつれ分散相体積分率が高くなることを示している。トモグラフィ画像は W/O の状態では連続相であるスチレンの電気伝導度が著しく低いため画像は赤く表示される。しかし相逆転が起きることにより O/W の状態になると水が連続相となるために電気伝導度が高くなり、画像は緑になる。両図より相逆転現象は 8.94 秒から 9.38 秒のわずか 0.44 秒間で体積分率が急激に減少する現象であることが判った。またこの現象は水相の体積分率が槽壁近傍で大きくなり、次第に槽中心に水相が入り込むように進行することが判った。

<使用記号>

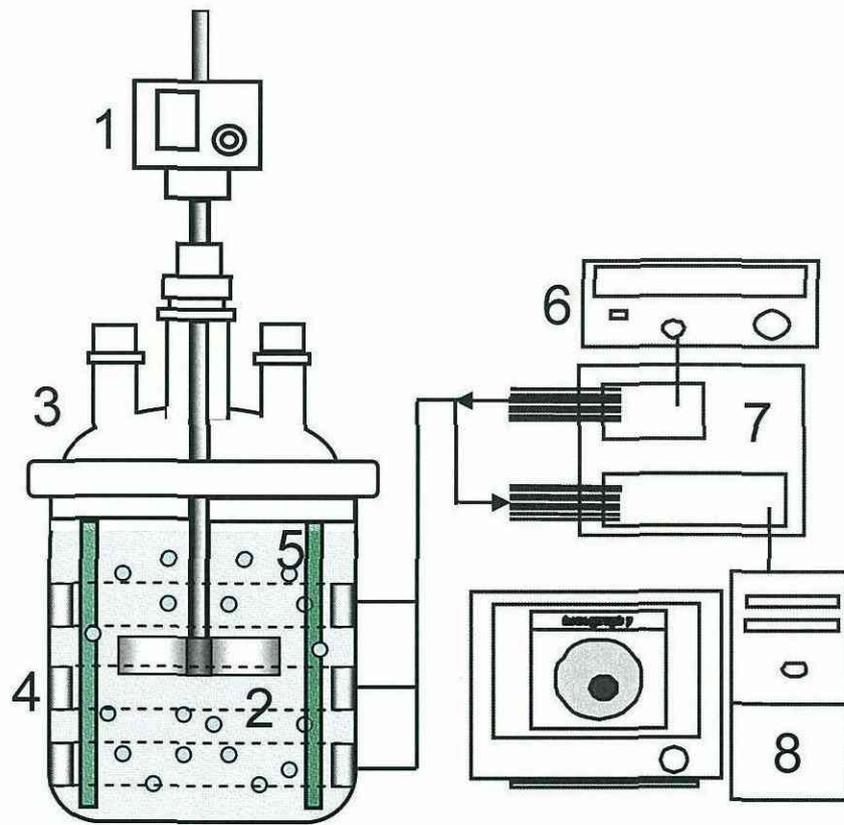
n	:	翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
t	:	時間	[s]
$\phi$	:	断面の体積分率	[-]
$\phi^*$	:	分散状態の指標	[-]

<添字>

sd	:	安定分散状態
----	---	--------

<参考文献>

- 1) N.Harnby, M.F.Edwards, A.W.Nienow : Mixing in the Process Industries,  
日刊工業新聞社(1989)
- 2) A.W Pacek, I.P.T.Moore, A.W.Nienow : Video technique for measuring  
dynamics of liquid-liquid dispersion during phase Inversion, AIChE Journal,  
40(12), 1940-1949(1994)
- 3) M.Tidhar, J.C.Merchuk, A.N.Sembira, D.Wolf : characteristics of a  
motionless mixer for dispersion of immiscible fluids- II .phase inversion of  
liquid-liquid systems, Chemical Engineering Science, 41, 457-462(1986)



1. 攪拌モータ 2. 6枚パドル翼 3. 攪拌槽 4. 電極  
 5. 邪魔板(4枚) 6. ファンクションジェネレータ  
 7. 計測回路 8. PC

図 1.1.1 実験装置概略

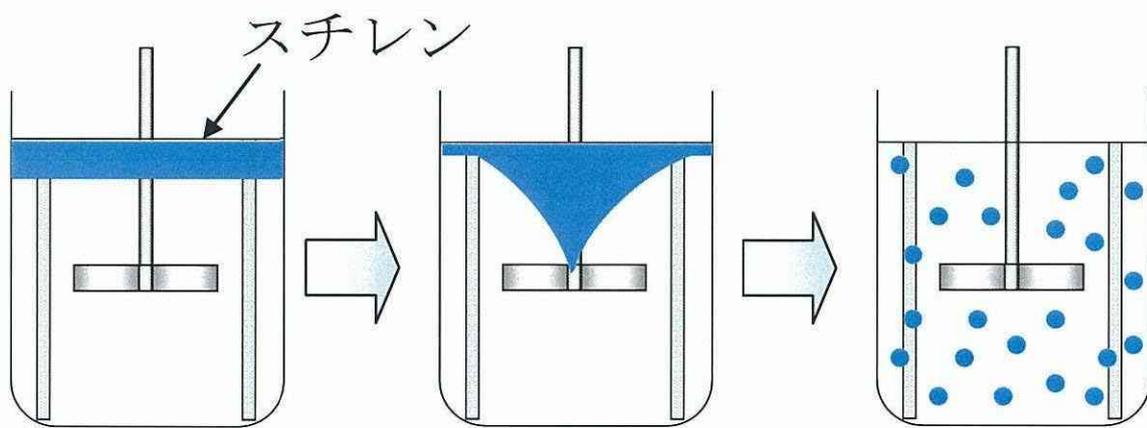


図 1.1.2 スチレン分散挙動

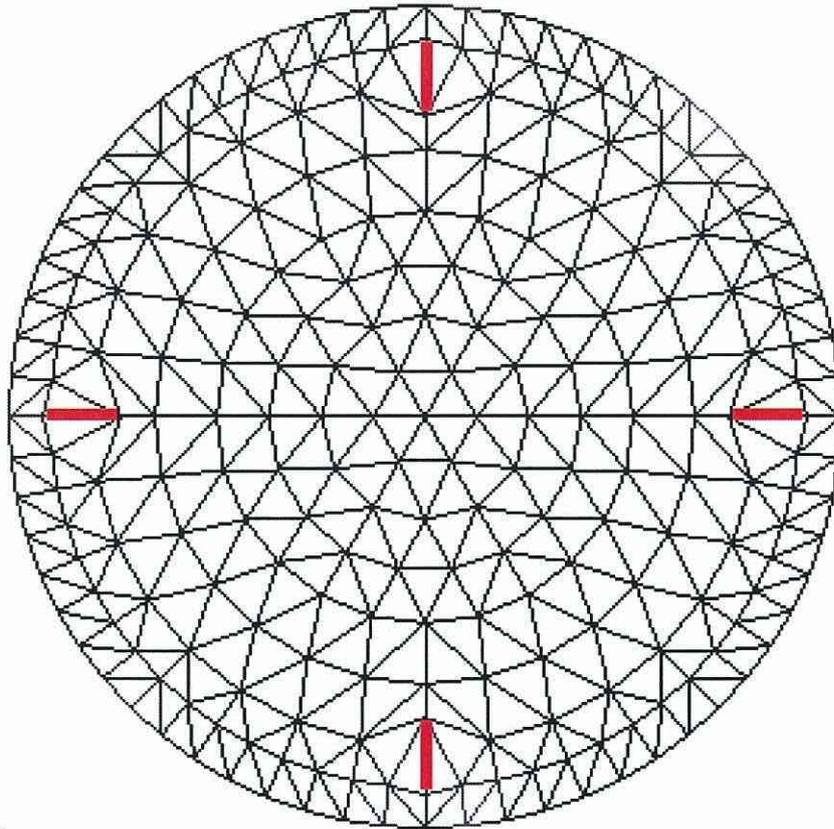


図 1.1.3 有限要素メッシュ

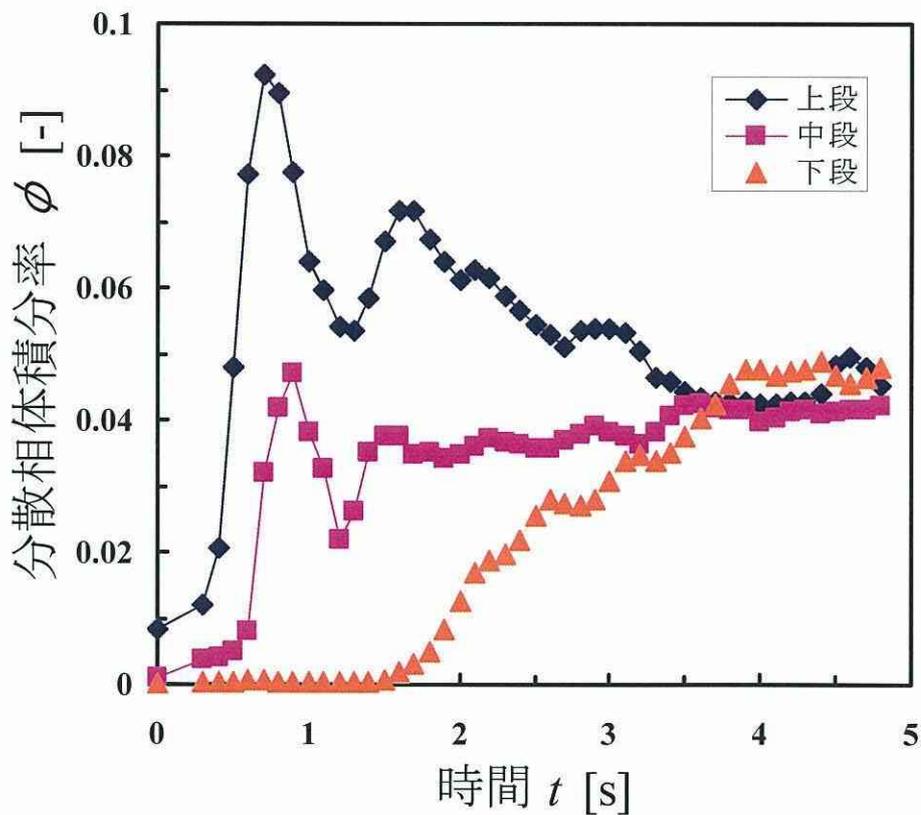
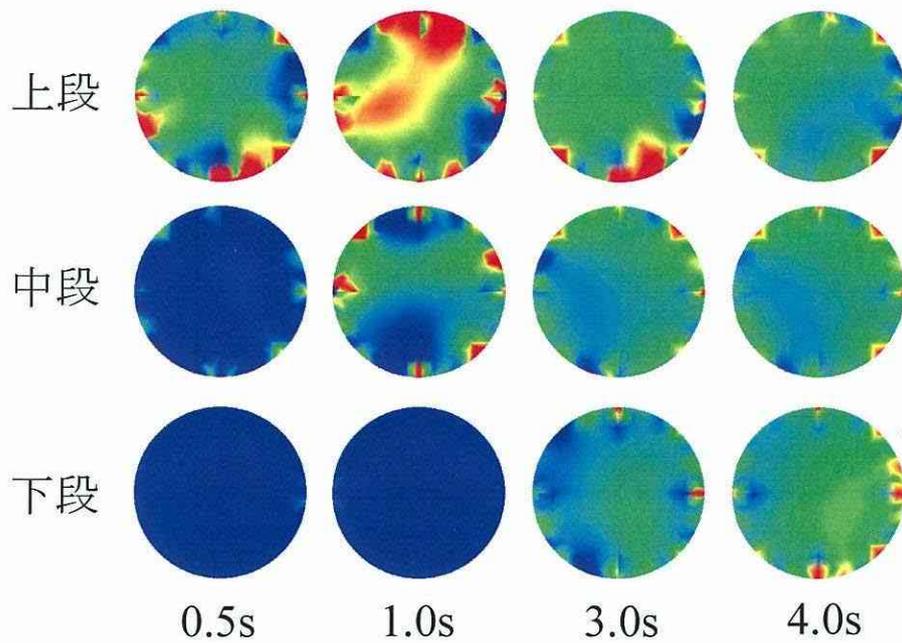


図 1.1.4 各断面における分散相体積分率の経時変化

(分散相濃度 5vol%, 翼回転数  $5.83\text{s}^{-1}$ )

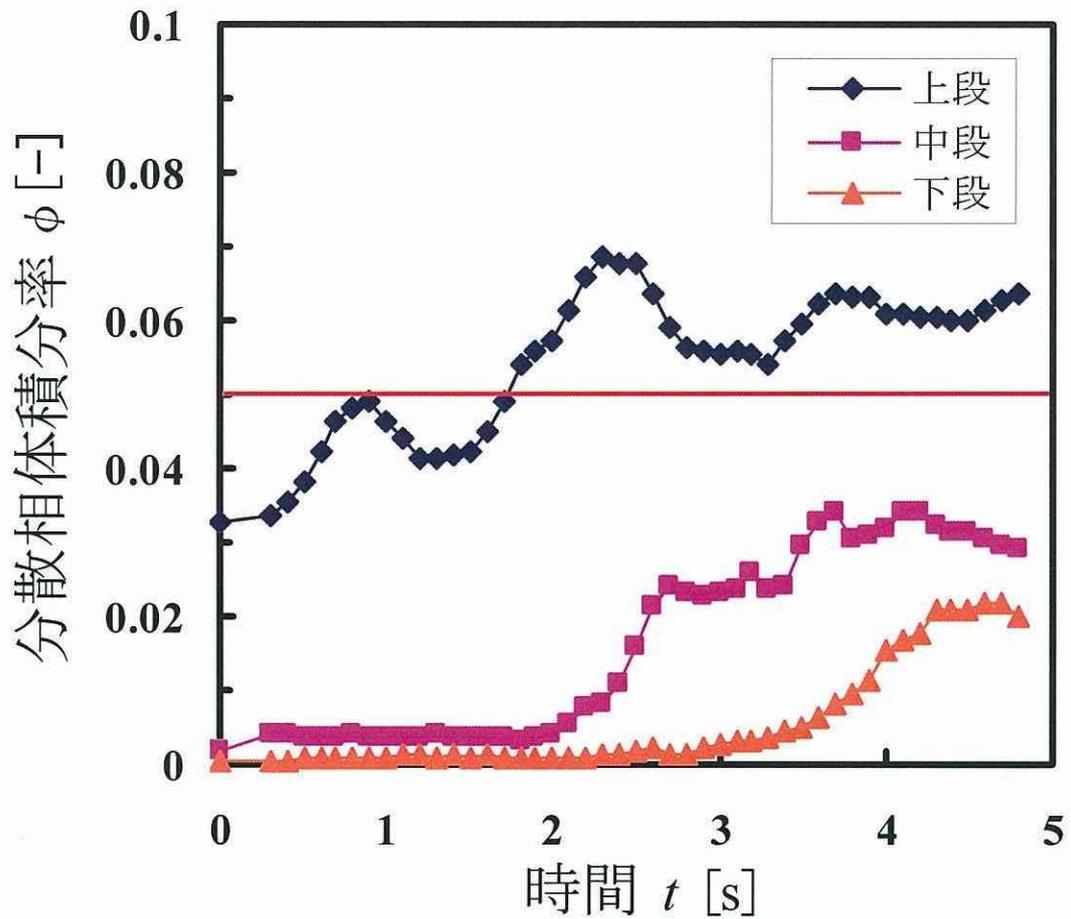


図 1.1.5 各断面における分散相体積分率の経時変化

(分散相濃度 5vol%, 翼回転数  $4.17\text{s}^{-1}$ )

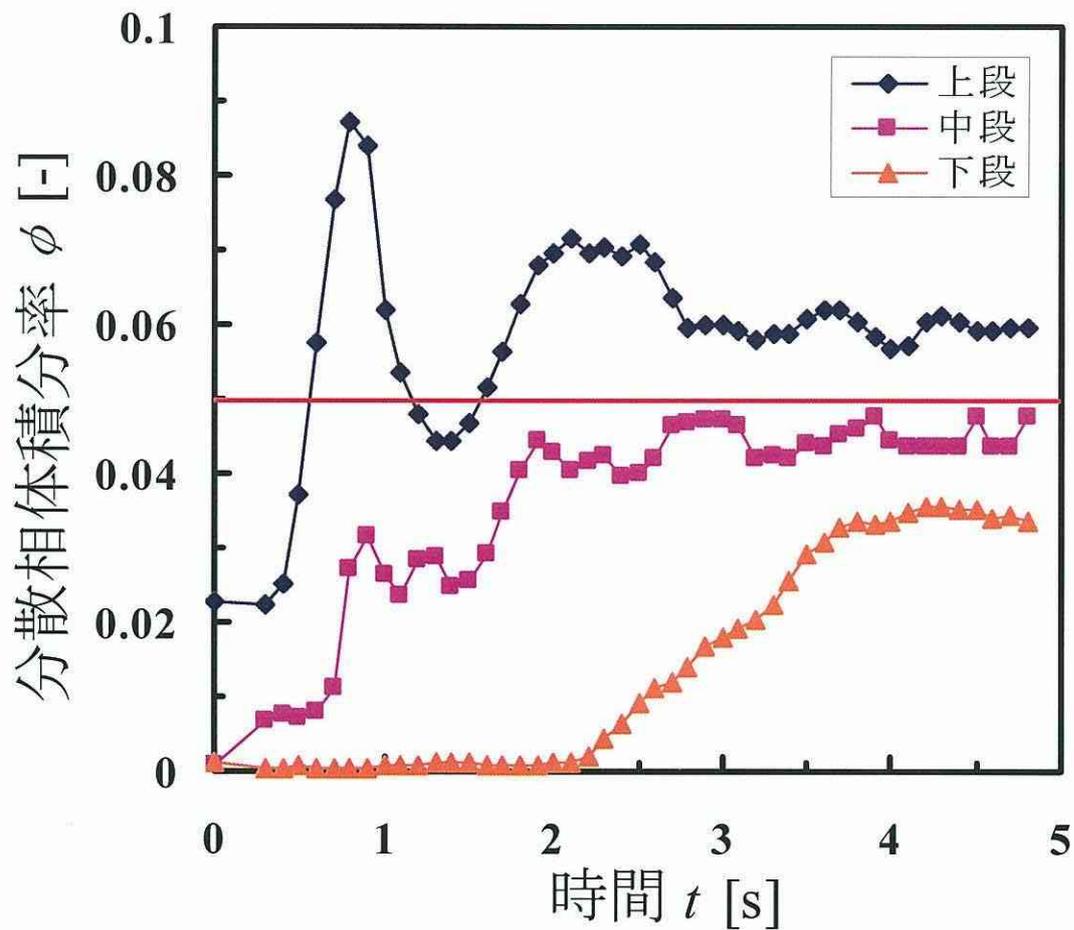


図 1.1.6 各断面における分散相体積分率の経時変化

(分散相濃度 5vol%, 翼回転数  $5.00\text{s}^{-1}$ )

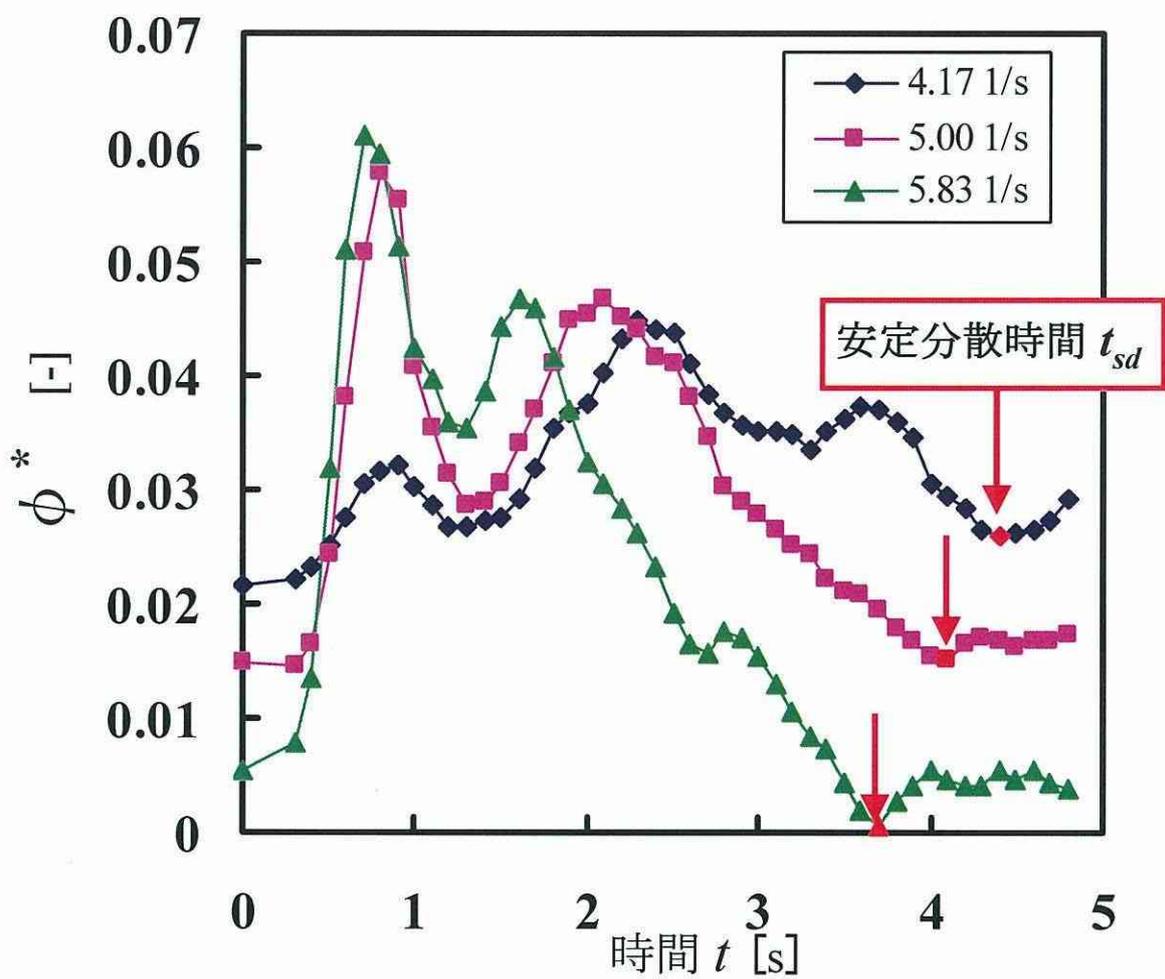


図 1.1.7  $\phi^*$  の経時変化  
(分散相濃度 5vol%)

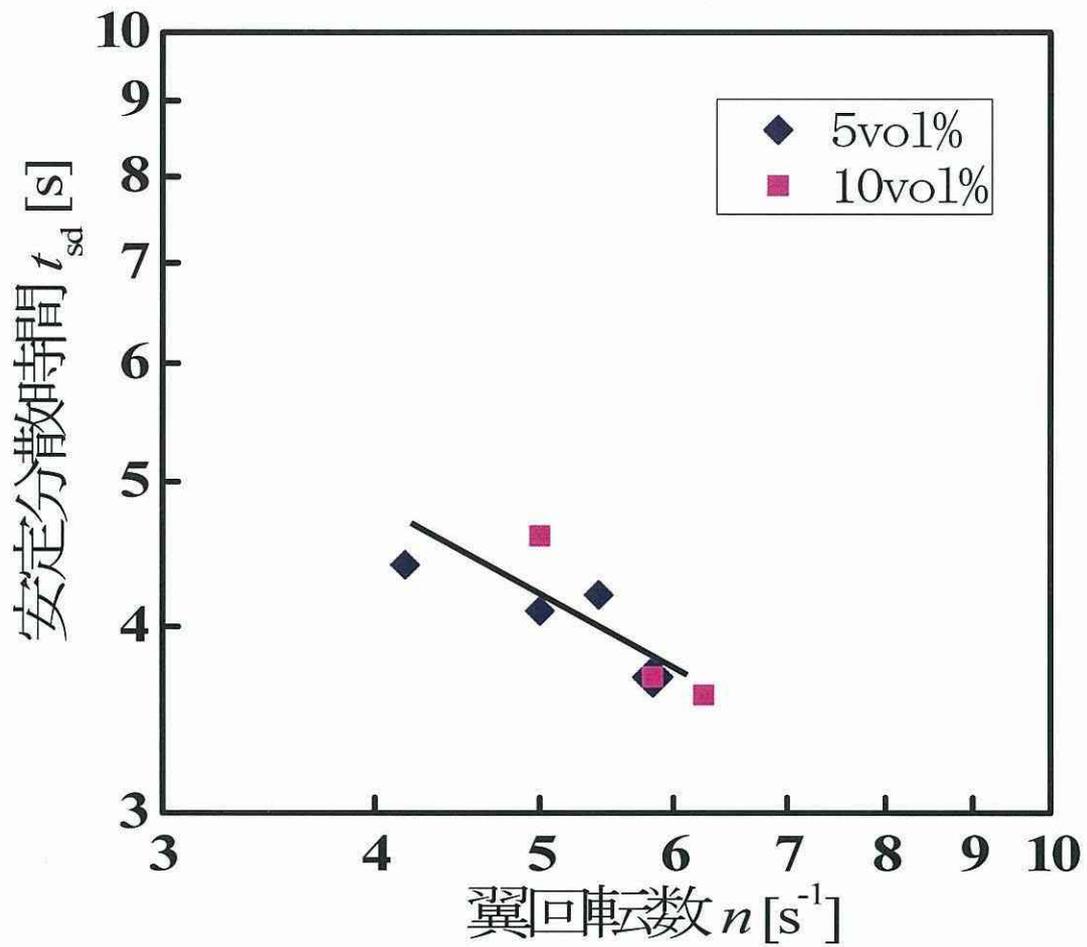


図 1.1.8  $t_{sd}$  と翼回転数の関係

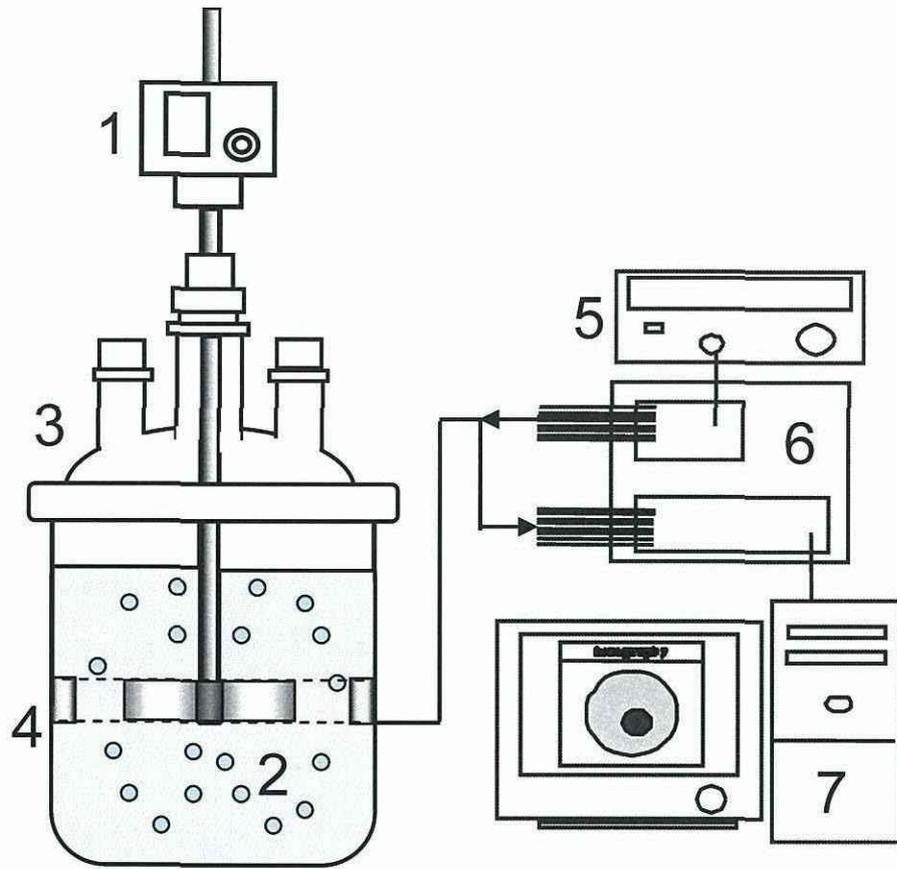


図 1.1.9 実験装置概略

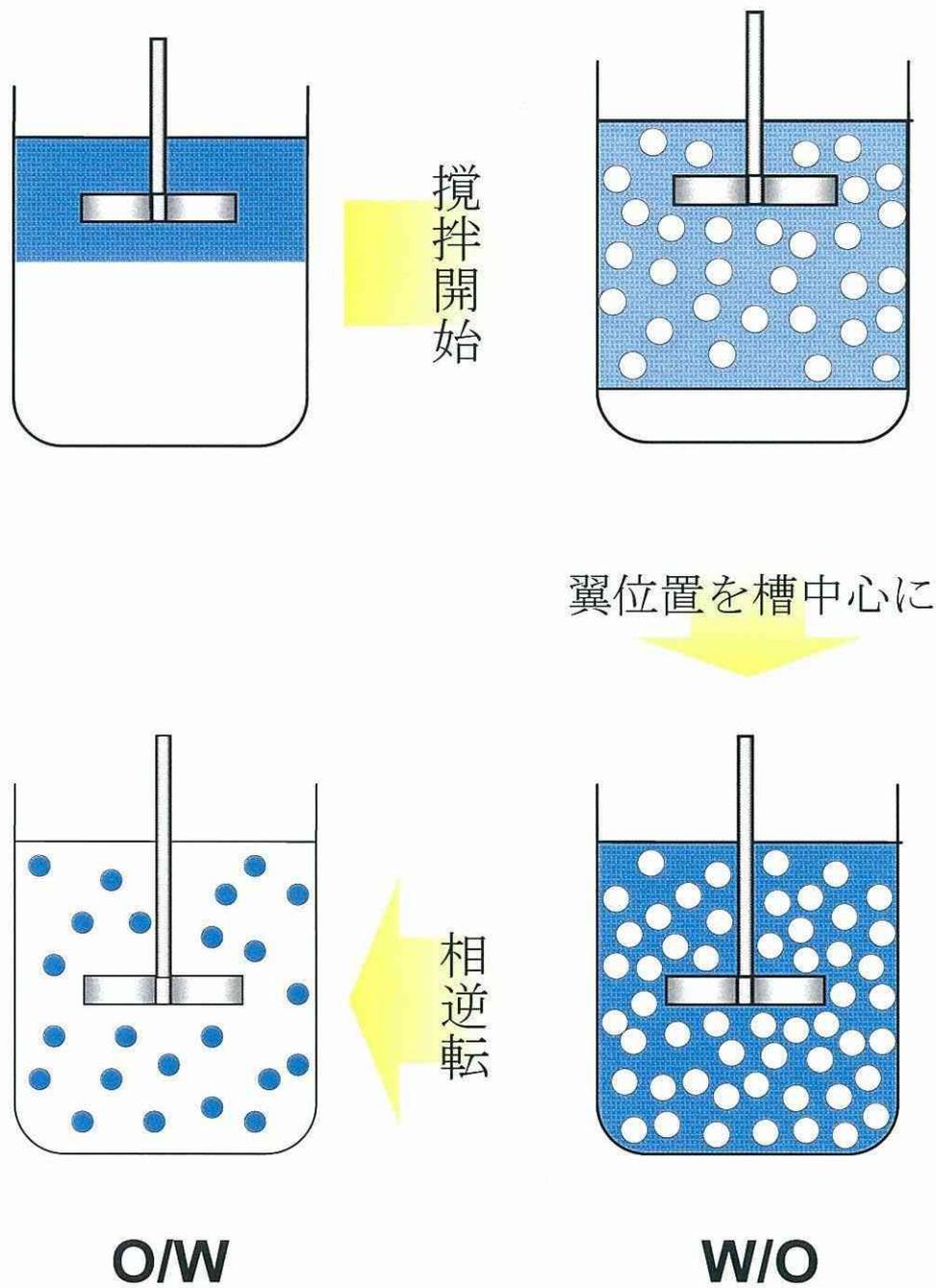


図 1.1.10 相逆転現象概略

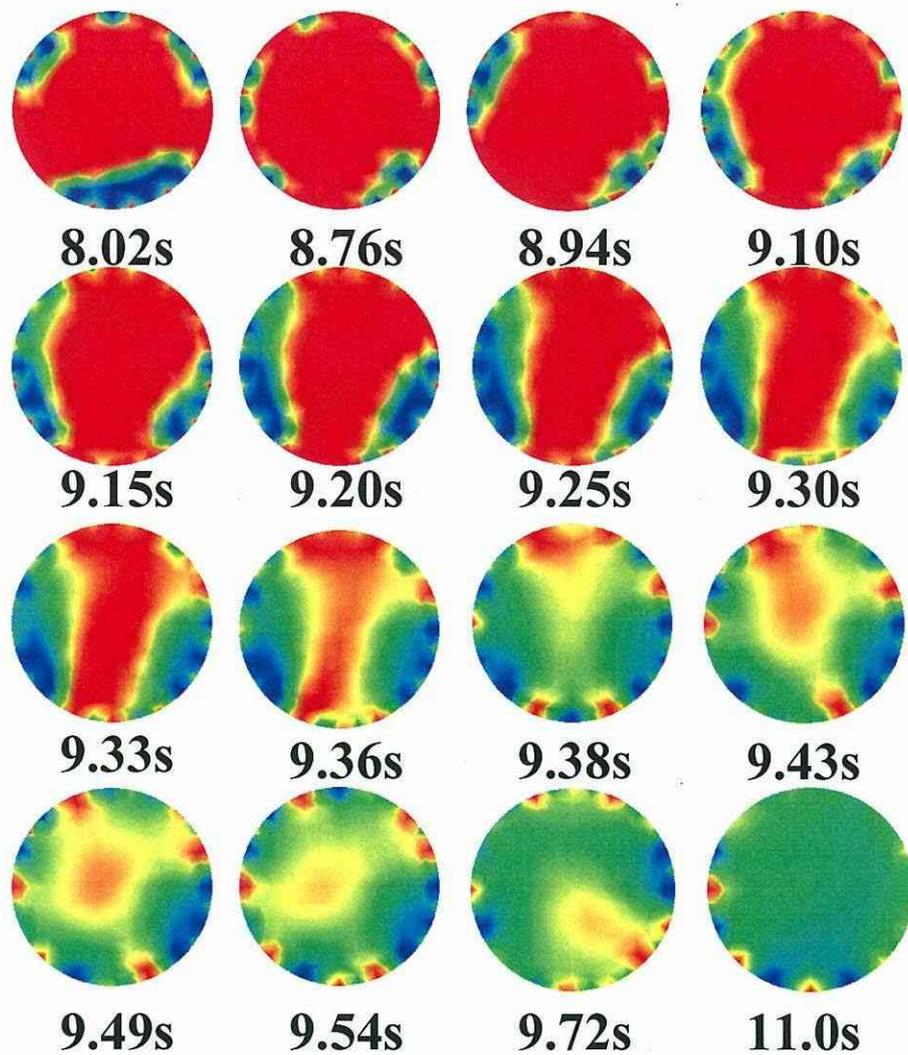


図 1.1.11 相逆転現象の経時変化

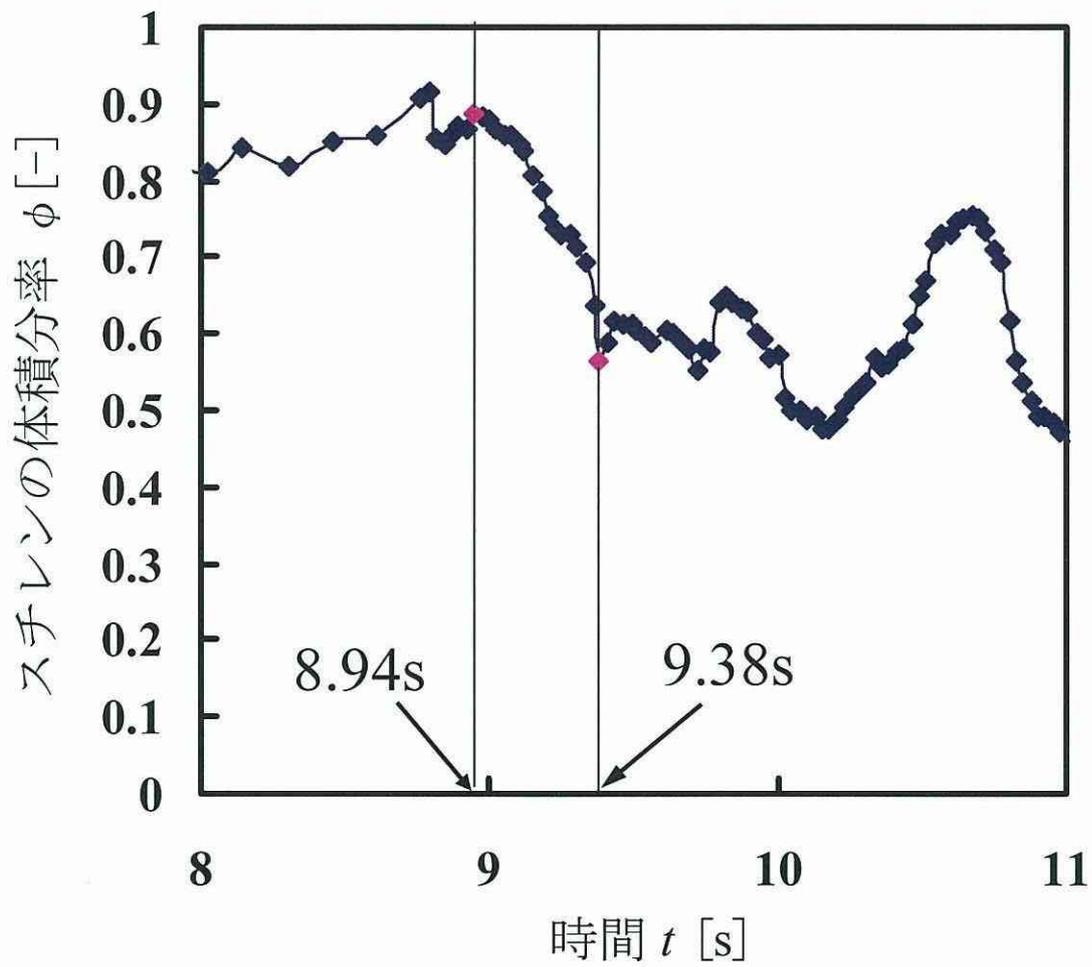


図 1.1.12 スチレン体積分率の経時変化

表 1.1.1 実験条件

連続相	イオン交換水
分散相	スチレン
液量 [ml]	600
導電性 物質	塩化カリウム [g] 0.43
分散相濃度 [vol%]	5, 10
翼回転数 $n$ [s <sup>-1</sup> ]	4.17~6.25

表 1.1.2 実験条件

初期連続相	スチレン [ml]	145
初期分散相	イオン交換水 [ml]	337
導電性 物質	塩化カリウム [g]	0.25
翼回転数 $n$ [s <sup>-1</sup> ]		3.33

## 第 2 章 結言

本研究では電気抵抗トモグラフィ計測手法を用いて液-液系攪拌槽内において液滴の分散状況の経時変化を計測する手法を構築し、分散状態を高速で計測することにより、分散相が 2 層分離している状態から均一に分散するまでの動的な過程および相逆転現象を計測した。同計測結果より以下の知見を得た。

液滴の分散状況を計測することにより、槽上部においてスチレンの層が循環し、槽下部においては小さな液滴が入り込む現象を確認することができた。また翼回転数によって槽内の分散相の分散過程が異なることが判った。

槽内の分散状態が安定に達する安定分散時間  $t_{sd}$  について定義し、 $t_{sd}$  は翼回転数が高くなると短くなることが判った。また分散相濃度を変化させた時の  $t_{sd}$  への影響は小さいことが判った。

W/O→O/W の相逆転現象について計測を行い、現象は水相が槽壁近傍から槽中心に入り込むように進行することが判った。

第2篇 電気抵抗トモグラフィ計測手法を用いた高濃度液液系  
攪拌槽内における相逆転現象を伴う分散挙動の検討

# 第 1 章 液-液系攪拌槽における分散過程

## 1.1 はじめに

液-液操作は相互不溶の 2 液を攪拌し、一方の液を連続相としてもう一方を液滴として分散させる操作である。本操作は懸濁重合や乳化重合に用いられているが、同操作においてどちらが連続相になるかは非常に重要である。しかし、攪拌条件の変化によって、連続相と分散相が入れ替わる相逆転現象を引き起こす事例が知られている。同現象は滴径や分散状態に変化をもたらすが、その発現機構についてはほとんど解明されていない<sup>1,2)</sup>。

本研究では電気抵抗トモグラフィー計測手法を用いて、2 相分離している状態から均一に分散するまでの高濃度液-液系攪拌槽内の分散過程を計測し、槽内の分散挙動を検討するとともに、水相が分散相から連続相に変化する相逆転現象の動的な挙動を検討する。

本研究では、各翼回転数における定常状態での分散過程および、経時的に翼回転数を増加させたときの動的な分散過程を検討した。また、それに先立って連続相を決定するための予備検討を行った。

## 1.2 連続相の決定に関する予備検討

### 1.2.1 予備検討の位置づけ

同体積分率であっても、連続相が水相となる分散(Oil in Water、以下 O/W)と連続相が油相となる分散(Water in Oil、以下 W/O)では、断面電気伝導度が大きく異なることが考えられる。そこで、それぞれの分散状態における断面電気伝導度の範囲を決定するために、O/W と W/O に分散させた槽において断面電気伝導度の計測を行った。

### 1.2.2 実験装置および方法

図 2.1.1 に実験装置概略を示した。攪拌槽には槽径 85 mm の円筒ガラス槽を用いた。この攪拌槽には各計測断面の円周上等間隔に電極を 16 個、高さを変えて 3 段設置した。攪拌翼には翼径 50 mm の 6 枚垂直パドル翼を用いた。表 2.1.1 に実験条件を示した。水相にはイオン交換水を、油相にはスチレンを用いた。また、水相と油相の電気伝導度の差を大きくするため、水相の電気伝導度が 0.142 S/m となるように塩化カリウムを添加した。体積分率は 50 vol%、全液量は 500 ml である。

図 2.1.2 にはトモグラフィ計測に用いた有限要素メッシュを示した。要素数は 344 である。このメッシュは槽壁の境界条件を入れ、導電性の攪拌翼を配置

して計算ができるように作製した。

初期状態で翼が設置されている相が連続相になりやすいことから、翼設置高さを 30 mm にして、O/W に、翼設置高さを 60 mm にして、W/O に分散させた。翼回転数は 200 rpm で一定である。また、中間状態は翼設置高さ 55 mm、翼回転数 190 rpm で検討した。計測は中段でのみ行った。

### 1.2.3 結果および考察

図 2.1.3 には中段における O/W と W/O の断面電気伝導度の変化を示した。O/W の分散では、時間の経過に関係なく約 0.12 S/m で安定している。KCl 水溶液のみの電気伝導度は 0.142 S/m であるので、水相中に油滴が存在していることが電気伝導度の値から判断できる。それに対して、W/O の分散では不定期的に電気伝導度の値が高くなって濃度むらが存在するが、連続相であるスチレンが絶縁体の働きをするため、電気伝導度はほとんど 0 S/m になっている。

また、攪拌翼を槽中心に設置したとき、翼回転数 190 rpm で図 2.1.4 に示したような電気伝導度が計測された。不規則に O/W と W/O の間の値をとっていることから、2 つの分散の中間状態であると考え、電気伝導度と連続相の関係を表 2.1.2 のように定義した。

### 1.3 各翼回転数における定常状態での槽内の状態の検討

#### 1.3.1 実験装置および方法

実験装置ならびに条件は予備検討と同様である。翼設置高さは槽底から 55 mm とした。翼回転数は 0, 50, 70, 90 rpm から 10 rpm ずつ 250 rpm まで、それぞれ計測を行った。各翼回転数について 3 分間放置して定常状態になったところを 10 秒間計測した。また、バッフルを用いて同様の検討を行った。バッフルは 4 枚でテフロンコーティングして絶縁状態としたものを用いた。

#### 1.3.2 結果および考察

##### 1.3.2.1 バッフルを用いない場合の検討

各翼回転数における 10 秒間の電気伝導度の平均値と翼回転数の関係を図 2.1.5 に示した。プロットは各翼回転数における 10 秒間の電気伝導度の平均値を表す。また、図 2.1.6 に各翼回転数におけるトモグラフィ画像を示した。トモグラフィ画像は青色が電解質である水相を、緑、赤になるにつれて油相の割合が多くなり、電気伝導度が下がっていることを示している。攪拌開始前は槽内上部に油相が、下部に水相が 2 相分離した状態で存在していることが目視で観察できたが、図 2.1.5 および図 2.1.6 からその様子が判る。中段では電気伝導度が水相のみの 0.142 S/m より少し低い値をとっているが、これは中段付近には液-

液界面が存在していたため、電解質である水相と絶縁体である油相の両方の影響を受けたからだと考えられる。低翼回転数(50~100 rpm)では、中段が徐々に油相の割合が多くなっていることが図 2.1.5 の電気伝導度の変化から判る。100 rpm 以上では上段および中段付近では白濁した分散が目視で確認できたが、図 2.1.5 および図 2.1.6 から、中段では 180 rpm まで、上段では 200 rpm まで W/O で分散していることが判る。また、中段では 180~210 rpm で、上段では 200~220 rpm で中間状態となり、それ以上では局所的に相逆転して O/W に分散している。下段は 180 rpm までは図 2.1.5 の電気伝導度の値より、ほとんど水相であることが判る。それ以上の翼回転数では図 2.1.6 のトモグラフィー図でも変化が見られるように、O/W に分散していることが判る。

図 2.1.5 および図 2.1.6 の結果から、槽内の分散過程は図 2.1.7 のようになっていると推察される。上段は油相に水滴が入り込んで、まず W/O に分散し、翼回転数が増加するにつれて中間状態を経て O/W に相逆転する。中段は初め W/O に分散し、上段と同様に翼回転数にともなって相逆転が起こり、O/W に分散する。また、下段は低翼回転数では水相がたまっている状態で、翼回転数の増加にともなって油滴が入り込んできて O/W に分散する。

### 1.3.2.2 バッフルを用いた場合の検討

バッフルを用いた場合の各翼回転数における 10 秒間の電気伝導度の平均値と翼回転数の関係を図 2.1.8 に示した。上段は翼回転数の増加にともなって、油相に水滴が入り込み、白濁した分散が目視で確認できたが、同図から翼回転数に関わらず、W/O に分散していることが判る。中段も上段同様、W/O に分散している。下段は翼回転数の増加にともなって、電気伝導度が徐々に下がっていていることから、高翼回転数(180 rpm 以上)では中間状態のように W/O と O/W がゆらいでいる状態になっていることが判る。バッフルを用いることによって、高翼回転数においても W/O に分散することが判った。

## 1.4 相逆転現象の挙動の検討

### 1.4.1 実験方法および装置

実験装置ならびに条件は予備検討と同様である。翼設置高さは槽底より 55 mm とした。翼回転数はファンクションジェネレータを用いて図 2.1.9 のように配置し、線形的な電圧を加えることによって翼回転数が経時的に増加するように制御した。翼回転数の増加速度は 1.0 rpm/s と 0.016 rpm/s として計測を行った。計測は中段でのみ行った。

### 1.4.2 結果および考察

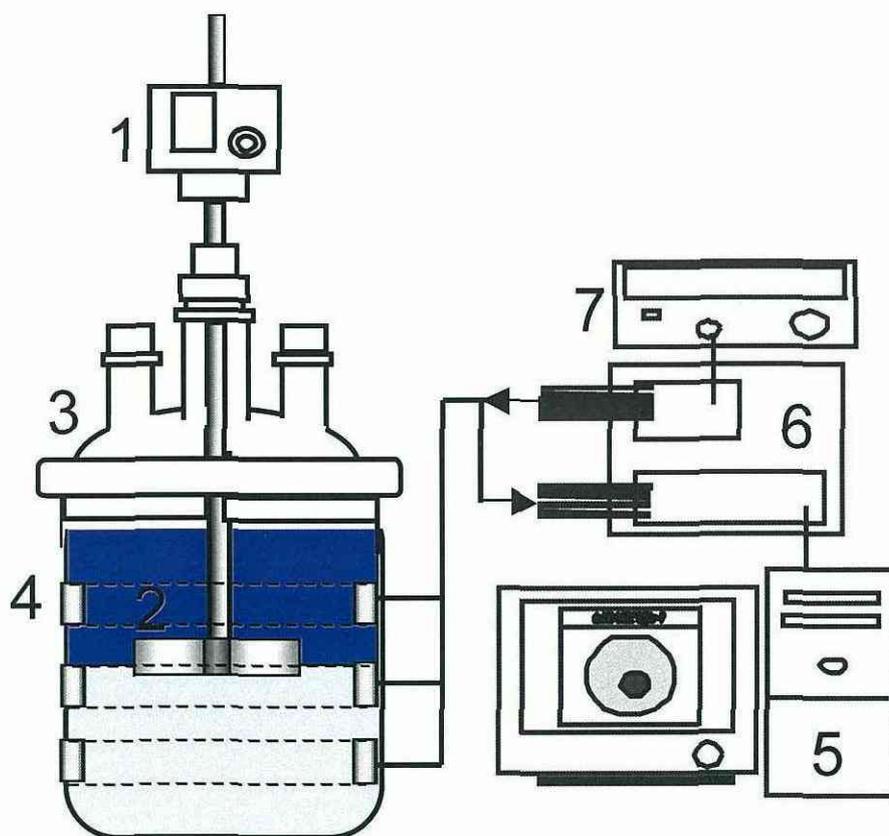
図 2.1.10 に中段における計測の結果を示した。1.0 rpm/s は 1 秒間の平均値をプロットで、0.016 rpm/s は 60 秒間の平均値をプロットで、変動の範囲をエラーバーで示した。同図から、1.0 rpm/s では 240 rpm で、0.016 rpm/s では 215 rpm で O/W に分散したことが確認できる。O/W に達する翼回転数の差は、翼回転数の増加速度の違いによる時間的な遅れの影響と考えられる<sup>3)</sup>。1.0 rpm/s では 195~240 rpm で、0.016 rpm/s では 184~214 rpm で中間状態になっていることが確認できる。このことから、翼回転数の増加速度によらず、中間状態が存在することが判った。また、0.016 rpm/s のエラーバーから、中間状態においても翼回転数が増加するほど、60 秒間の変動範囲が徐々に高い電気伝導度の値をとるこ

とが判った。

中間状態の例として、増加速度  $1.0 \text{ rpm/s}$  のときの  $214 \text{ rpm}$  における 35 秒間の  
トモグラフィー画像を図 2.1.11 に示した。同図からも中間状態では O/W と W/O  
が激しく入れ替わっていることが判る。

<参考文献>

- 1) A.W Pacek, I.P.T.Moore, A.W.Nienow: Video technique for measuring dynamics of liquid-liquid dispersion during phase Inversion, *AIChE Journal*, 40(12), 1940-1949(1994)
- 2) M.Tidhar, J.C.Merchuk, A.N.Sembira, D.Wolf: characteristics of a motionless mixer for dispersion of immiscible fluids-II .phase inversion of liquid-liquid systems, *Chemical Engineering Science*, 41, 457-462(1986)
- 3) A.W.Pacek, A.W.Neinow, and I.P.T.Moore: On the structure of turbulent liquid-liquid dispersed flows in an agitated vessel, *Chemical Engineering Science*, 49(20), 3485-3498 (1994)



1. 攪拌モータ 2. 6枚垂直パドル翼  
 3. 攪拌槽 4. タンタル電極 5. PC  
 6. 計測回路 7. ファンクションジェネレータ

図 2.1.1 実験装置概略

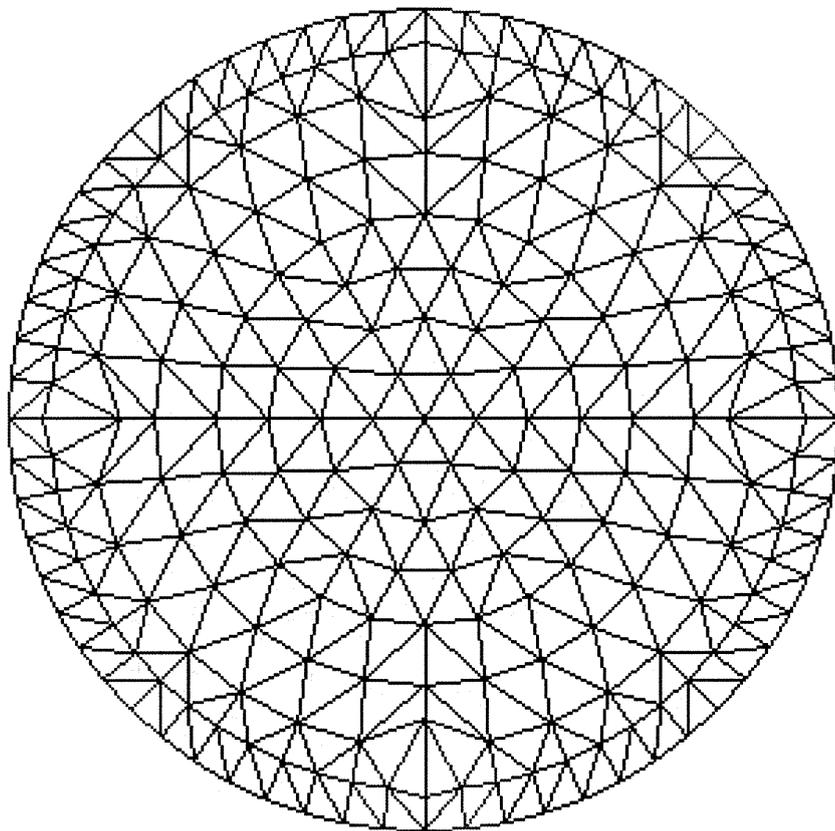


図 2.1.2 有限要素メッシュ

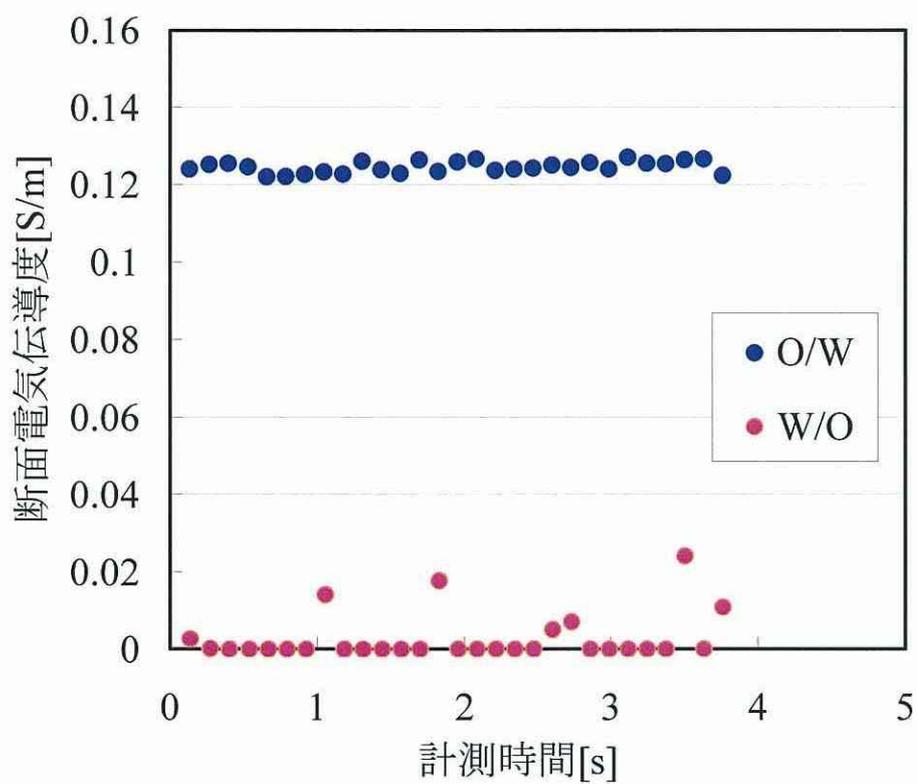


図 2.1.3 予備実験結果①

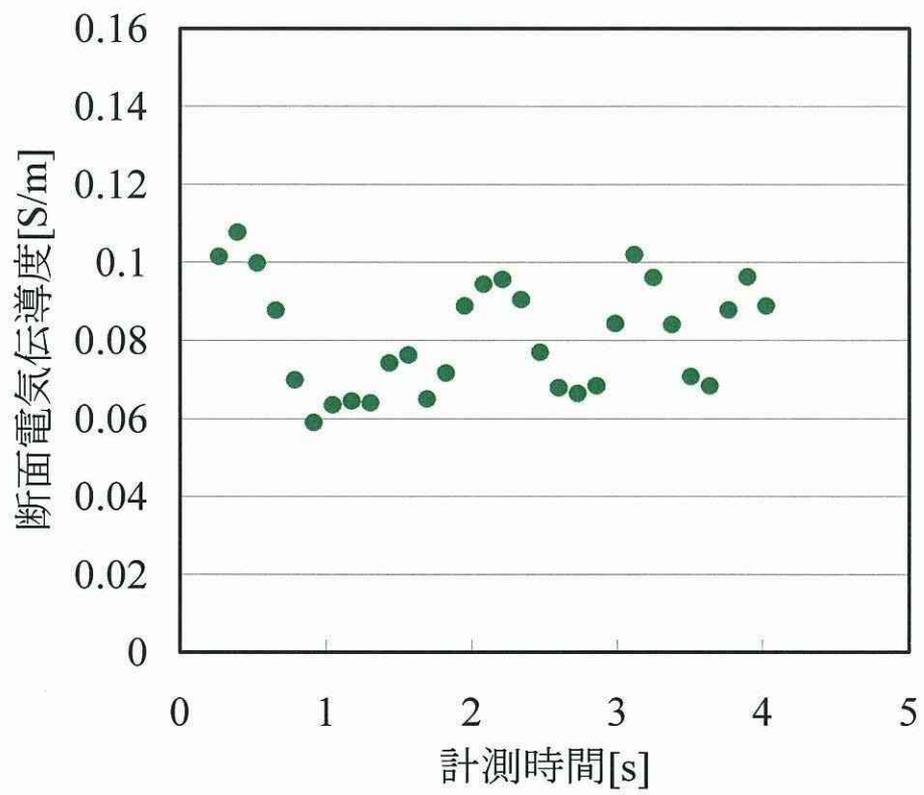


図 2.1.4 予備実験結果②

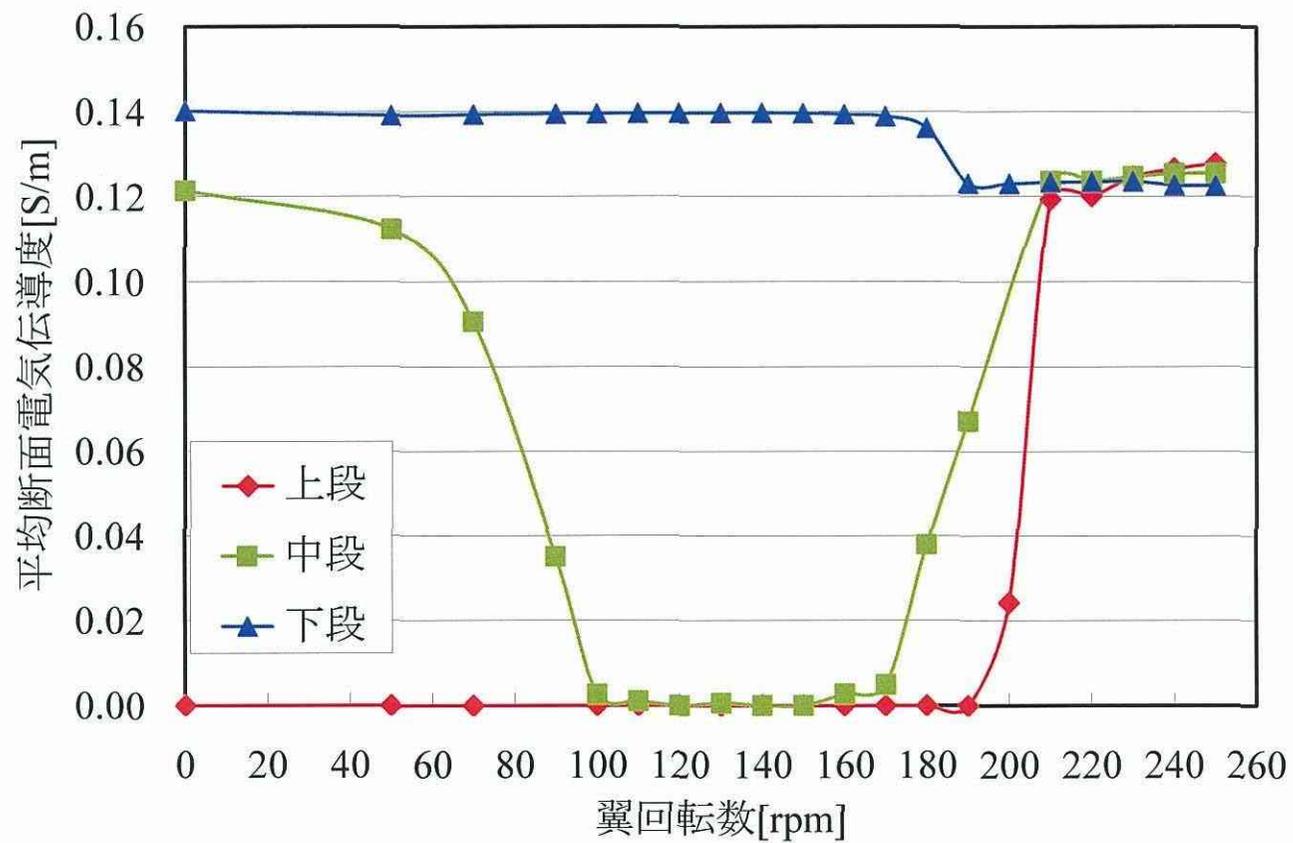


図2.1.5 電気伝導度と翼回転数の関係

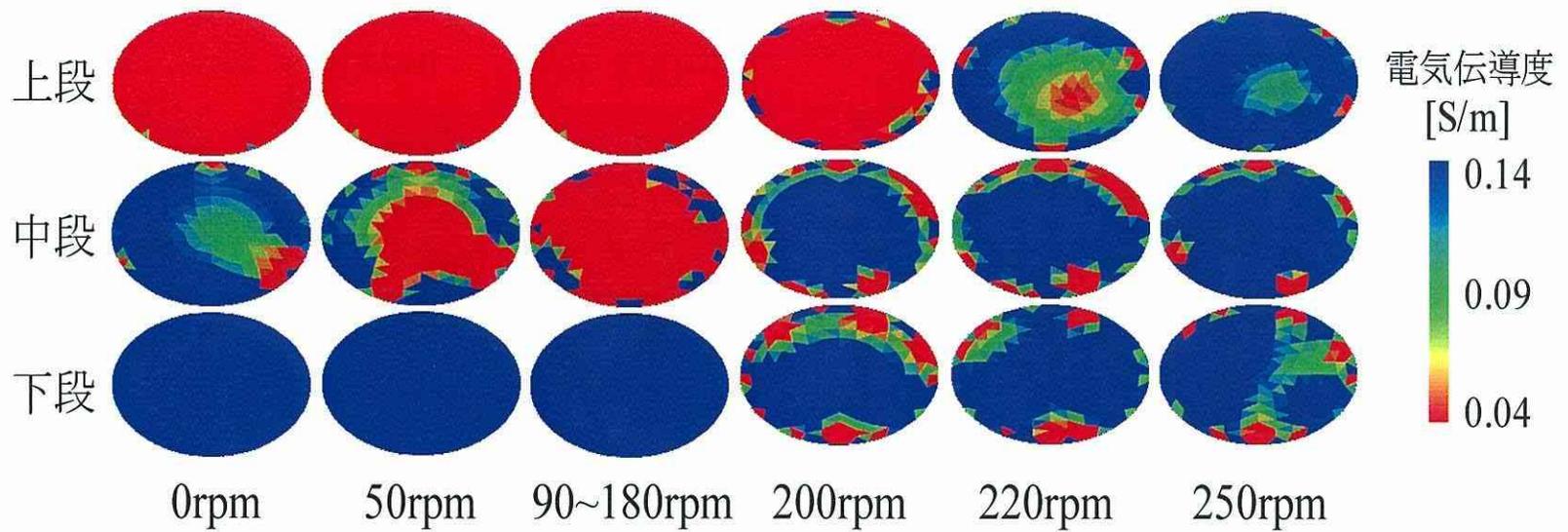


図2.1.6 各翼回転数におけるトモグラフィ画像

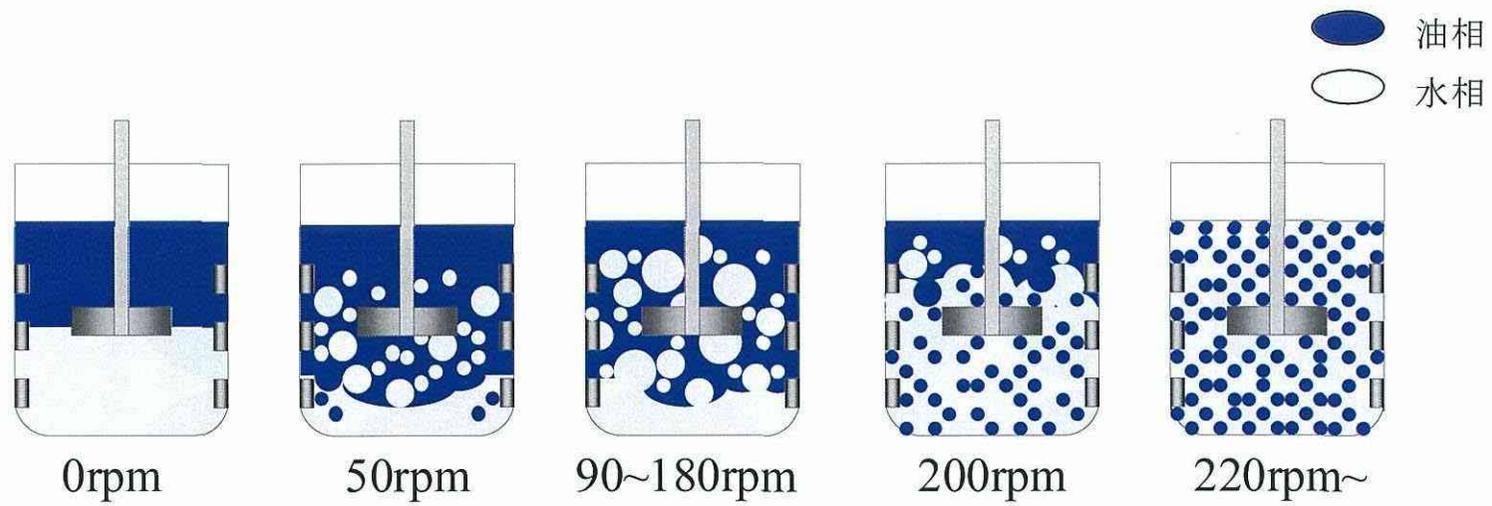


図2.1.7 槽内の分散過程の模式図

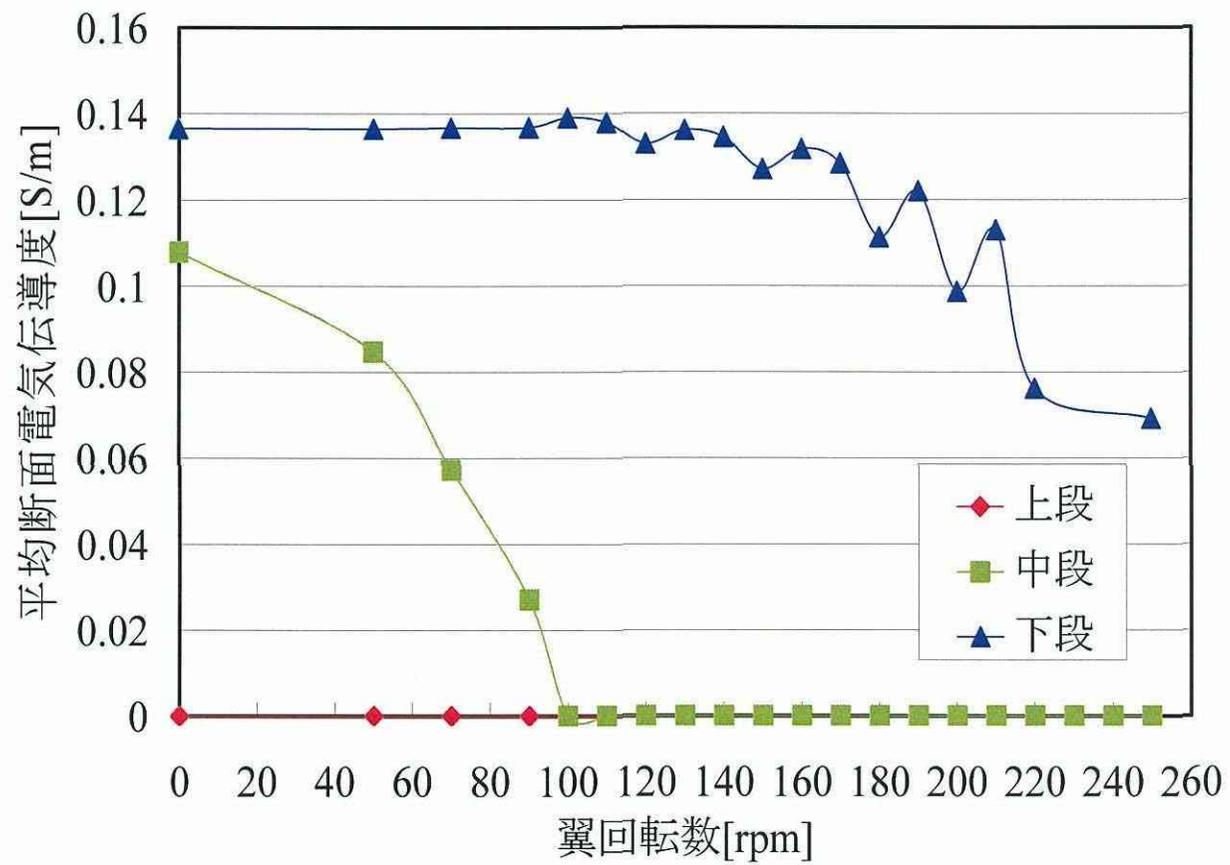
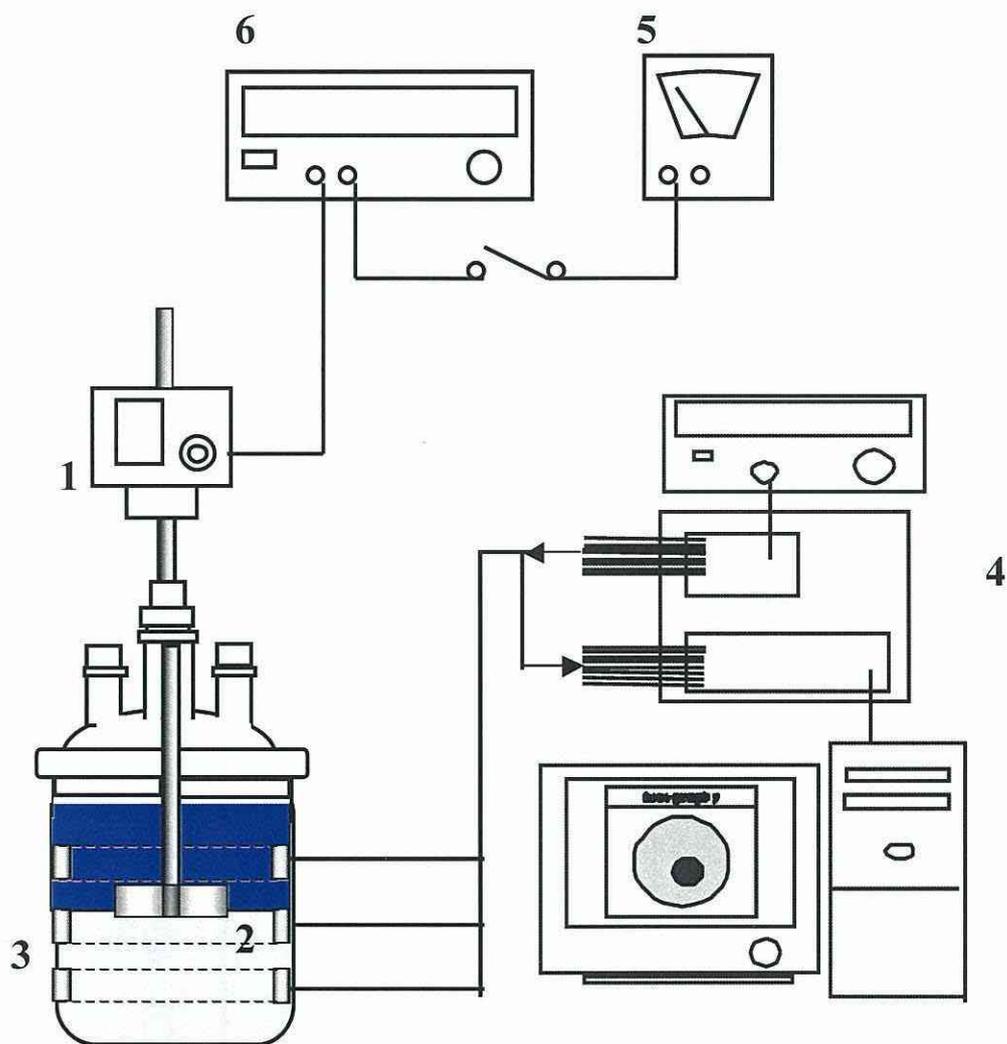


図2.1.8 電気伝導度と翼回転数の関係



1. 攪拌モータ 2. 攪拌翼 3. 電極付き攪拌槽  
 4. トモグラフィ計測装置 5. 電圧計  
 6. ファンクションジェネレータ

図 2.1.9 実験装置概略

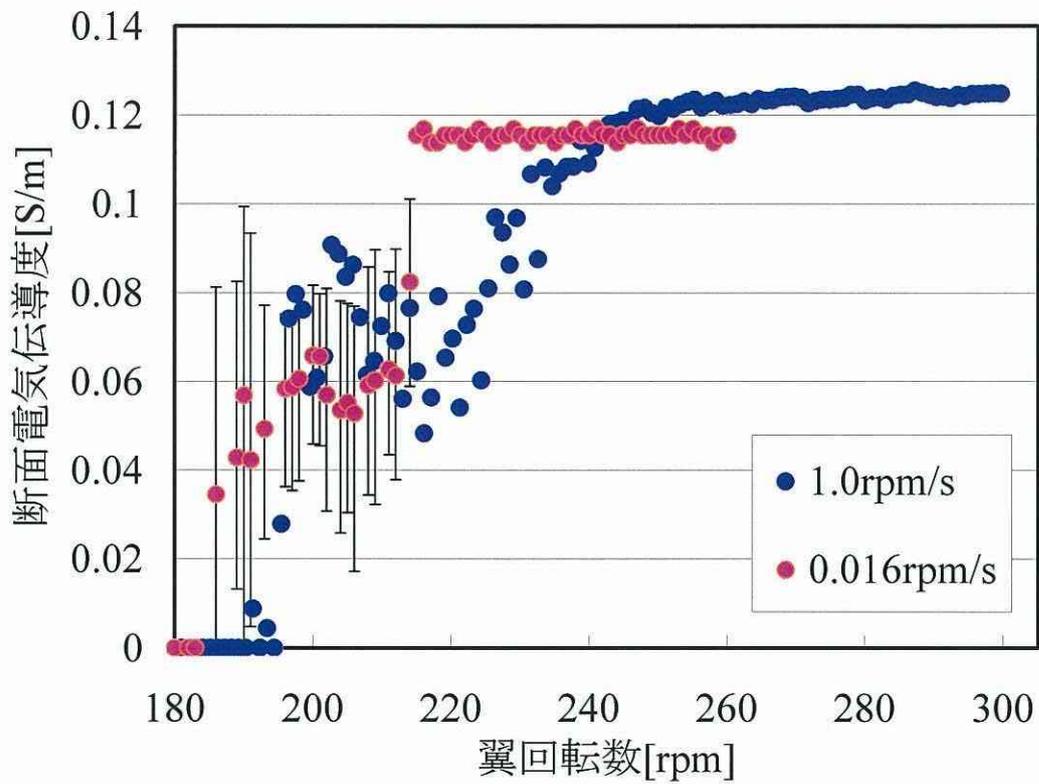


図 2.1.10 翼回転数の増加と電気伝導度の変化

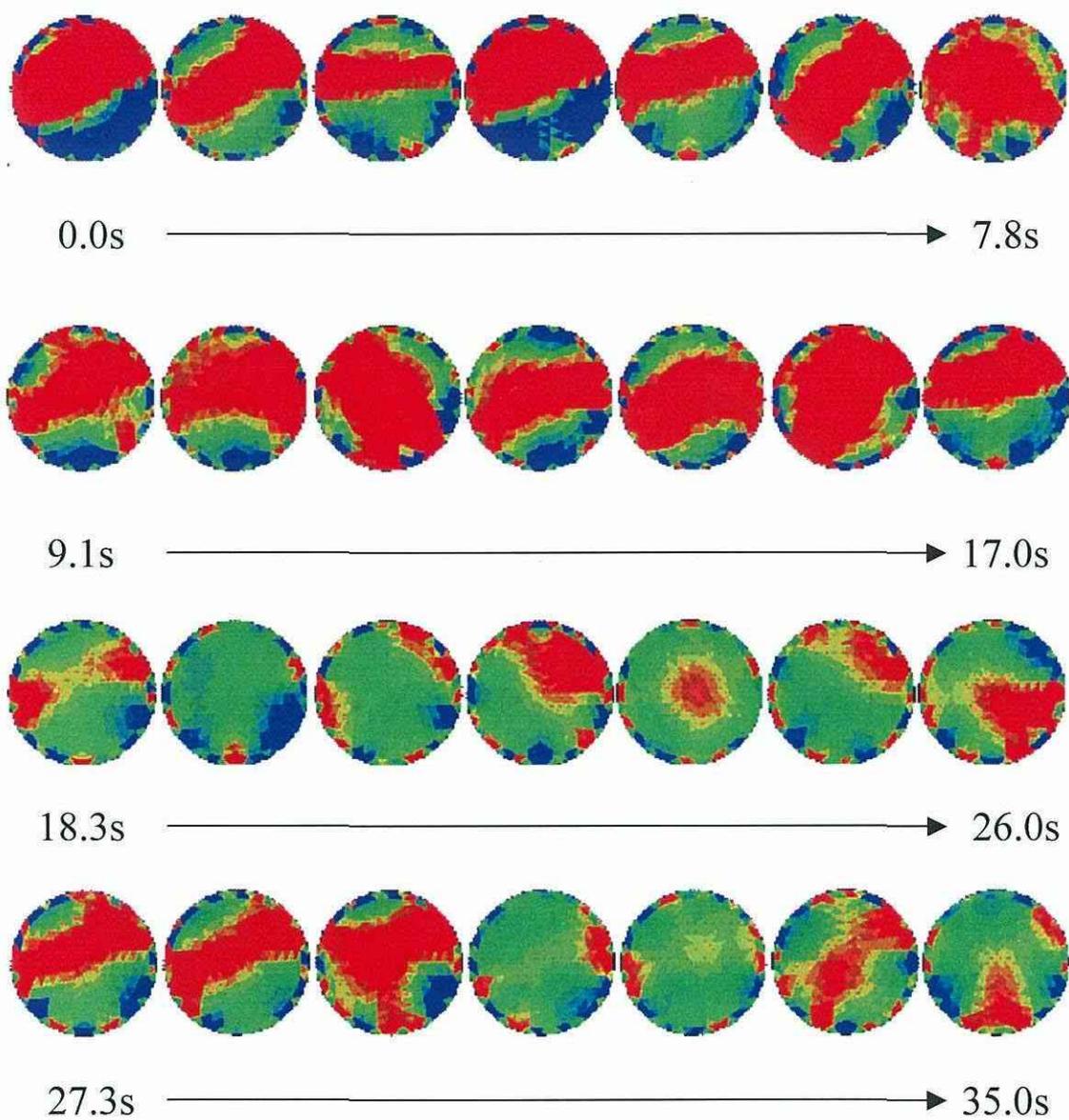


図 2.1.11 相逆転現象(中間状態)におけるトモグラフィ画像

表 2.1.1 実験条件

水相	0.01M KCl水溶液
油相	スチレン
体積分率	50vol%
翼回転数	0~250rpm
供給電流	2.5mA

表 2.1.2 電気伝導度と連続相の定義

電気伝導度[S/m]	分散状態
0.12以上	O/W
0以上0.12以下	中間状態
0.0	W/O

## 第2章 結言

本研究では電気抵抗トモグラフィ計測手法を用いて高濃度液-液系攪拌槽内の分散過程を計測することによって、以下の知見を得た。

各翼回転数における定常状態での分散状況を計測することにより、バップル無し  
の槽内では、上段および中段では W/O から O/W に局所的な相逆転現象をと  
もなう過程を経て、下段では水相に油滴が入り込むことで O/W になる過程を経て、  
槽全体が均一な分散状態になることが判った。また、バップル有りの槽内では  
上段および中段は翼回転数の増加に関わらず W/O に分散し、下段は水相がた  
まっている状態から W/O と O/W がゆらいでいる状態になることが判った。

翼回転数を一定速度で増加させることによって、W/O から O/W への相逆転の  
あいだには、2つの分散状態のあいだでゆらいでいる中間状態が存在することが  
判った。

第3篇 リアルタイム高速画像処理システムを用いた懸濁重合槽に  
おける液液分散挙動に及ぼす各種操作因子の影響の検討

## 第1章 緒言

### 1.1 本研究の背景および目的

今日、ゴムやプラスチック、合成繊維用ペレットなどの高分子材料の大半は重合反応によって製造されている。主な重合法は塊状重合、溶液重合、懸濁重合および乳化重合の4つに大別される。

本研究で対象としている懸濁重合法は、モノマーが不溶な媒体中にモノマーを攪拌分散させ、各分散滴内で重合を進行させて球形ポリマーを作成する工業的手法である。本手法においては、媒体の存在により重合熱の除去および温度制御が容易で安定した操作が可能であり、生成したポリマー粒子の分離も容易である。また、幅広い粒径のポリマー粒子の合成を行なえることから、スチレンを始めとしてMMA、塩化ビニル、酢酸ビニルなどの重合に用いられている。これらのポリマーの品質は、粘性や弾性、強度などの力学的性質、比熱、密度などの熱的性質、電気的性質の他、粒子径および粒子径分布により決定され、製品ごとに多種多様の要求がある。しかし重合反応過程では、反応に伴い液滴物性が経時的に変化することと、操作条件が液滴の動的挙動に複雑な影響を及ぼすため、所望の粒径を持つ製品を得るための操作条件設定を困難にしている。そこで、重合反応によりモノマーからポリマーの状態に変化する過程における液滴の挙動について検討する必要がある。

本研究では、まずモノマーを対象とした分散実験を行い、操作因子がモノマー液滴挙動に及ぼす影響を検討した。次いで懸濁重合実験を行い、重合の進行に伴う液滴径変化を測定した。得られた実験結果と操作因子の関係を検討するとともに、モノマー分散実験結果との比較検討を行い、懸濁重合場における液滴挙動について考察した。

## 第2章 液滴径およびポリマー粒子径測定方法

### 2.1 液滴径測定方法

本節では液滴径測定方法の原理について述べる。本研究では液滴径を効率よく正確に測定するために、高速度CCDカメラMEMRECAM(株式会社ナックイメージテクノロジー製)により液滴を撮影し、画像解析ソフトを用いて撮影した画像より液滴径を測定する方法を用いた。

#### 2.1.1 液滴径測定部

図3.2.1に本測定法の光学系構成を示す。本測定法は光透過法を用いており、ガラス製サンプリング管の測定空間を、光源と高速度CCDカメラで挟むように設置している。測定空間にはハロゲン光を照射し、サンプリング管に吸引した液滴が測定空間を通過する際に高速度CCDカメラにより撮影した。なお、測定空間にはガラス製角槽を設置し、サンプリング管と角槽の間に連続相と同じ液を満たすことで光学的歪みを軽減した。

高速度CCDカメラの撮影システムを図3.2.2に示す。撮影では1回の吸引で80～200枚の画像を撮影した。次いでDRPユニット中に保存された撮影画像を、ビデオカメラに取り込んだ。そして取り込んだ画像を図3.2.3に示した液滴画像のように静止画に変換した。なお、一回の撮影画像より300～1500個の液滴を得られ

た。

### 2.1.2 画像解析法

画像解析法について述べる。撮影した液滴画像より液滴径を計測するのに、画像解析ソフトImageHyper II(株式会社デジモ製)を用いた。図3.2.4に画像解析の流れを示した。まず、原画像をモノクロ画像に変換し、2値化処理を行う。次いで、膨張・縮退を行い液滴の輪郭をとった後、穴埋めを行って等価円直径を算出し、これを液滴径とした。なお、液滴が2つ以上重なった場合は円形分離により液滴を分割する。以上に述べた作業を撮影した液滴全てに行い、液滴径を測定した。このようにして算出した液滴径 $d_{\text{drop}}$ に基づき、液滴径分布および体面積平均径 $d_{32}$ を求めた。

## 2.2 ポリマー粒子径測定方法

懸濁重合により生成したポリマー粒子を、エタノールで洗浄した後、Microscope(株式会社ハイロックス製)で撮影した。撮影画像の一例を図3.2.5に示した。撮影画像より手動で粒子径を測定した。200個以上の粒子を測定することで液滴径分布および体面積平均径 $d_{32}$ を求めた。

[使用記号]

$d_{\text{drop}}$  : 液滴径 [m]

$d_{32}$  : 体面積平均径 [m]

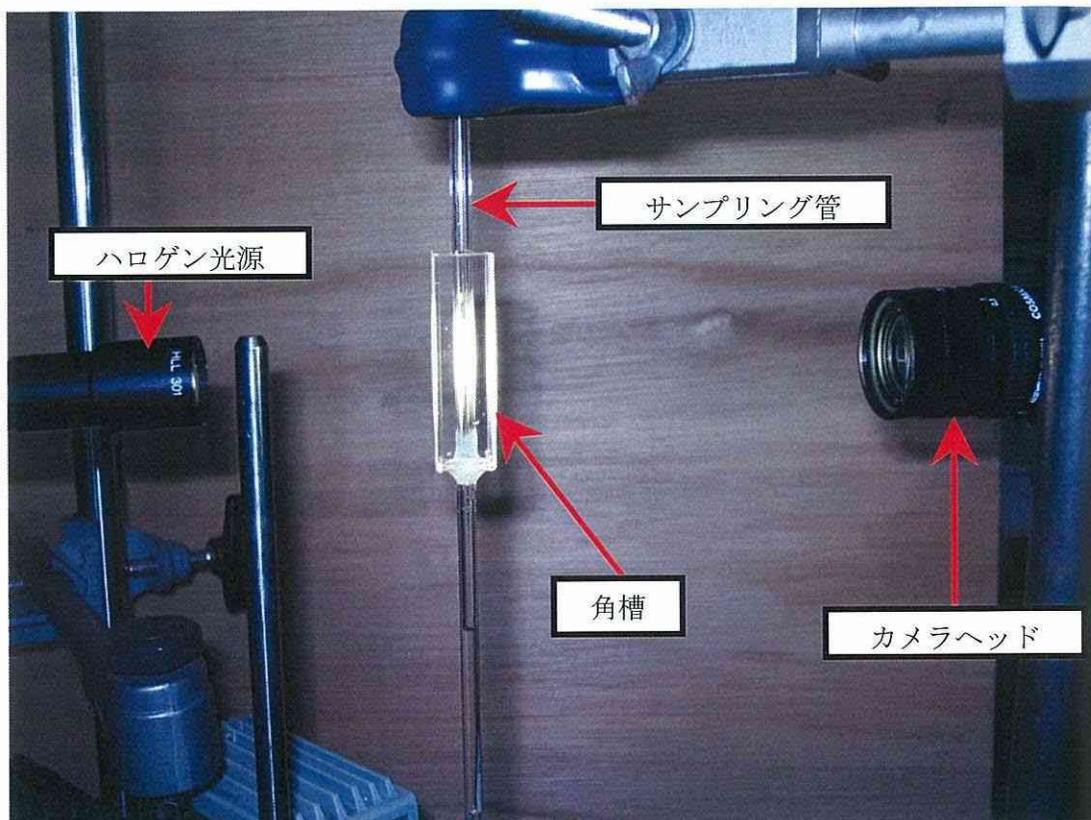


図 3.2.1 本測定法の光学系構成

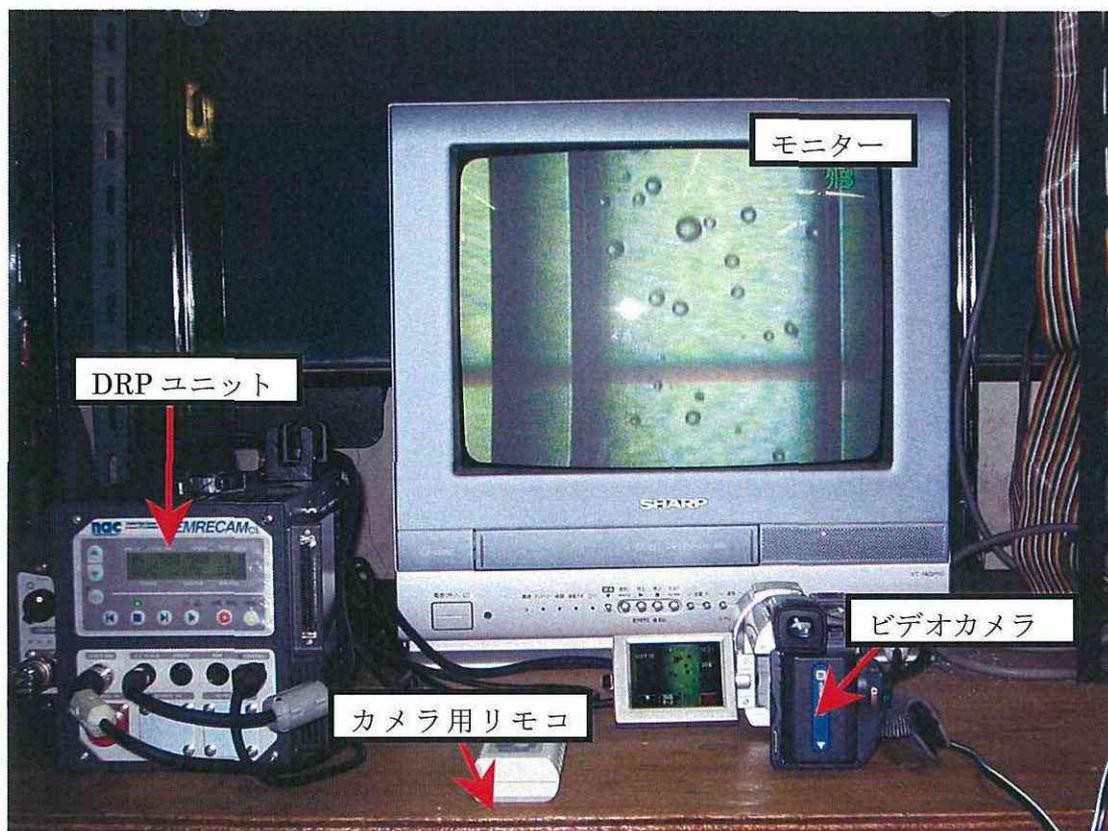


図 3.2.2 高速度 CCD カメラの撮影システムの写真

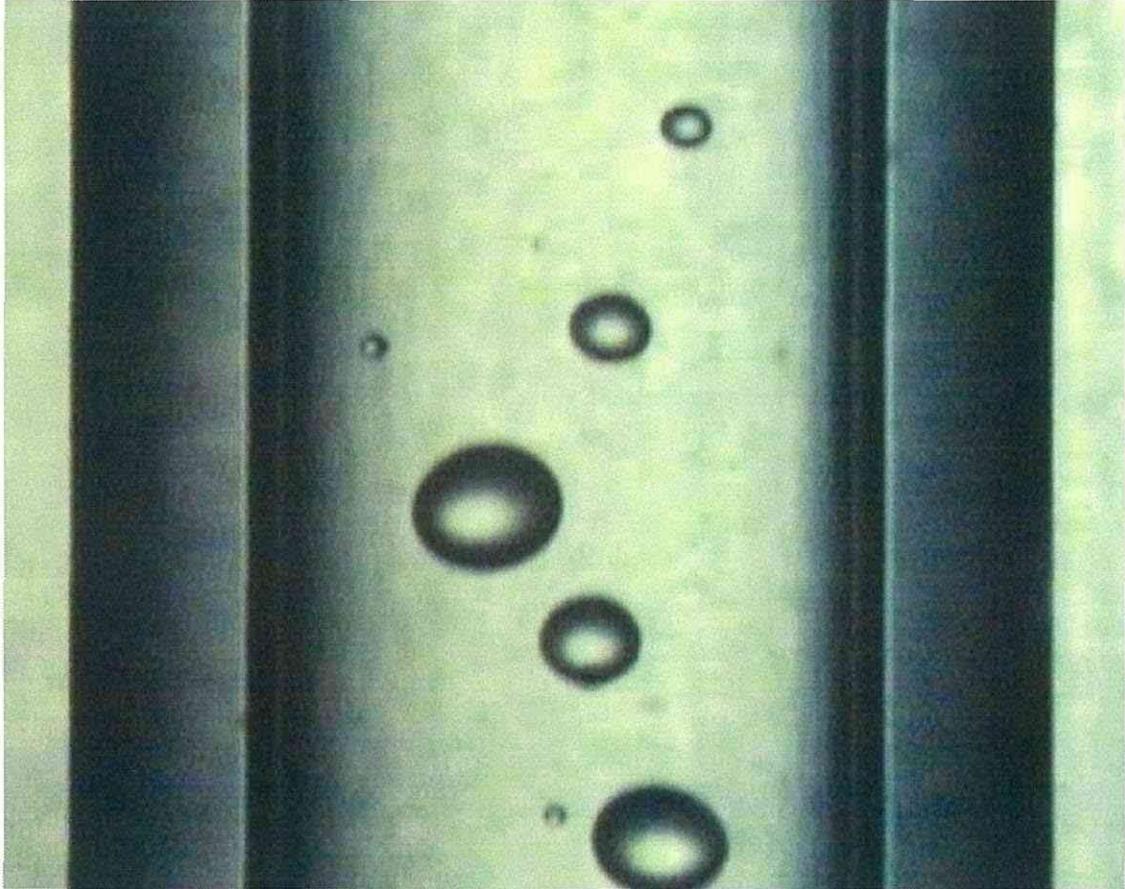


図 3.2.3 撮影した液滴画像の一例

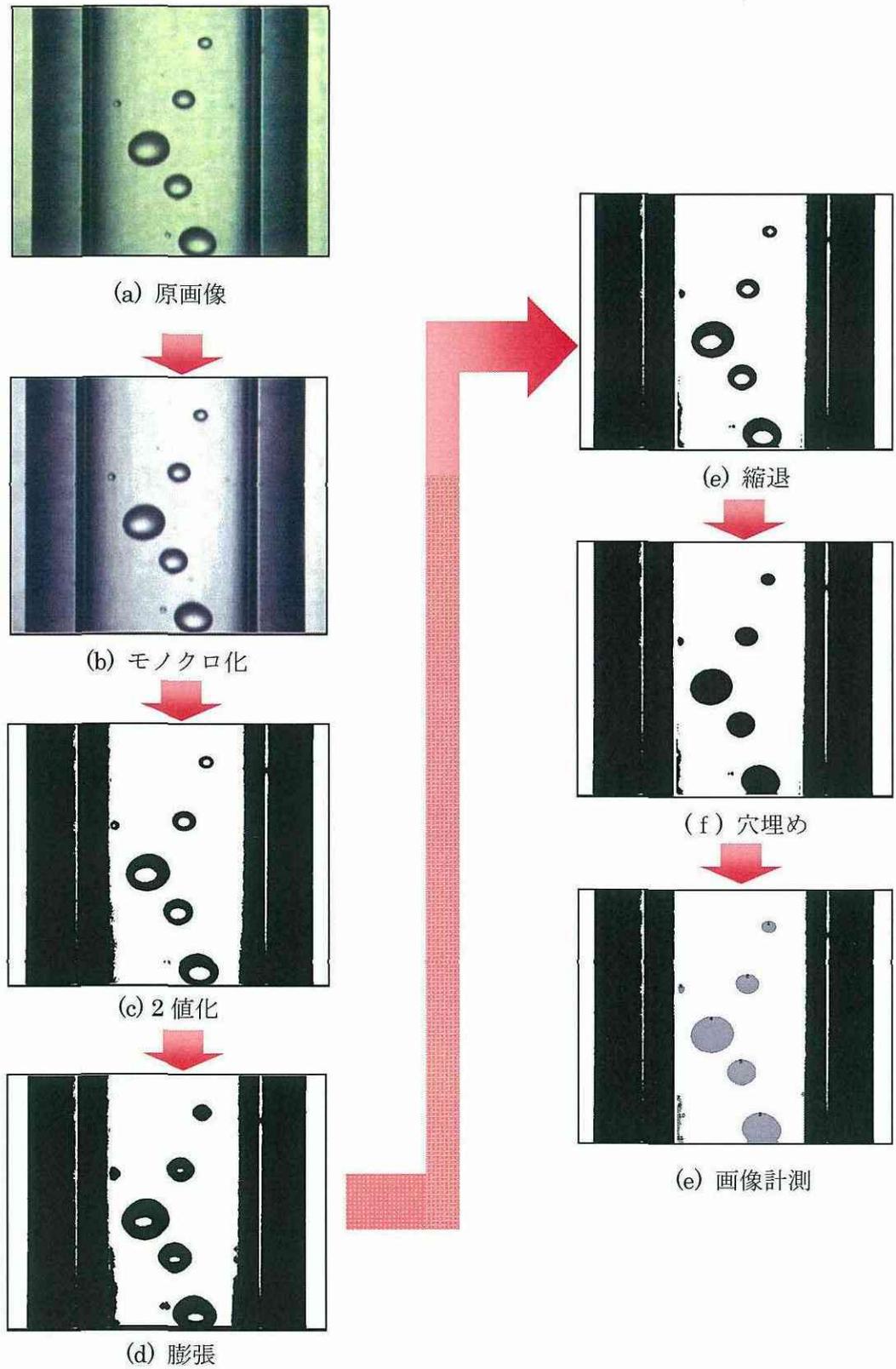


図 3.2.4 画像解析の流れ

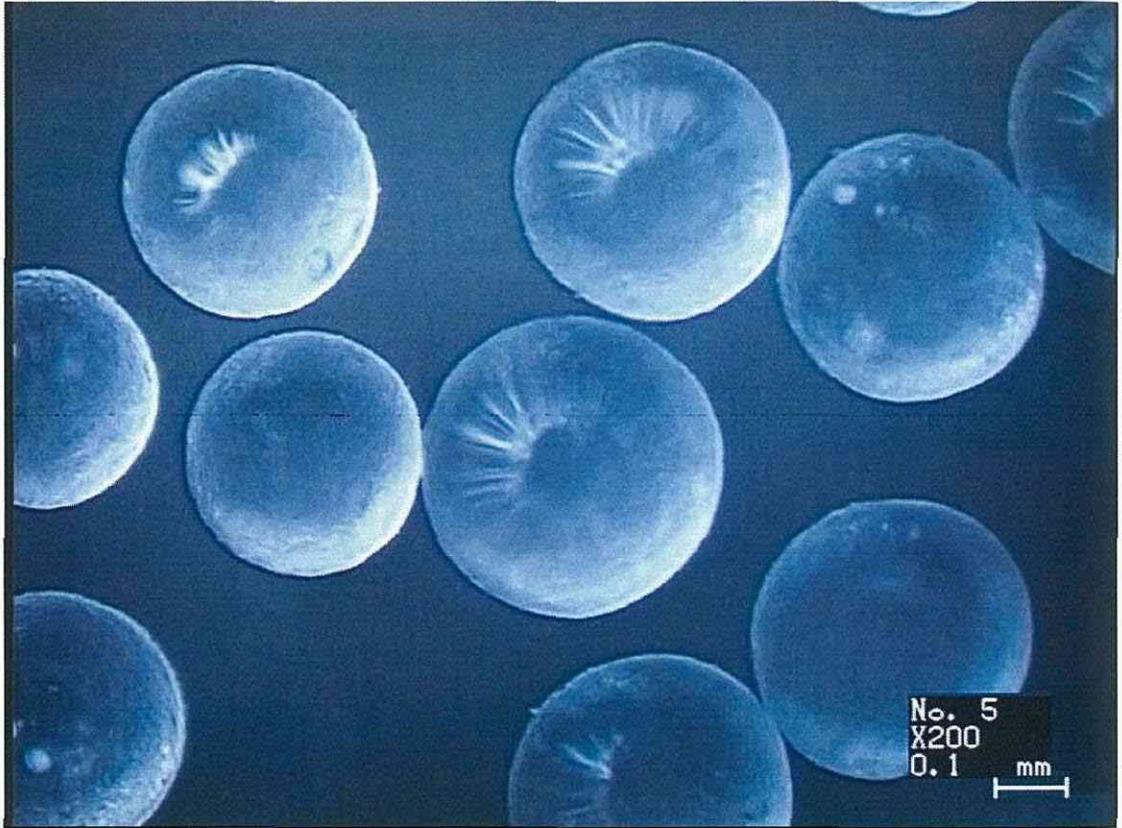


図 3.2.5 ポリマー撮影画像の一例

### 第3章 攪拌槽内における液滴分散挙動の評価方法

#### 3.1 液滴径分布とその代表径

液滴径分布は測定した液滴群の大きさの分布を表し、一般に粒子状ポリマーなどはその分布形状により品質が決定される。液滴径分布は体積頻度や累積体積頻度を用いて示す場合が多い。これらは液滴径が均一であればシャープな形状を示し、不均一であればブロードな形状を示す。

また、測定した液滴群より算出した代表径を用いることも多い。代表径の一つに、体面積平均径(Sauter径) $d_{32}$ が挙げられる。 $d_{32}$ は表面積依存性を表す代表径である。液滴の分裂・合一現象は、分散相滴の粘性や、槽内流動、二相間の界面張力が駆動力になり、液滴の表面に作用することで起きると考えられている。このことより、液滴挙動に基づいた各々の液滴の代表径として、 $d_{32}$ が用いられることが多い。

$$d_{32} = \frac{\sum n_i d_i^3}{\sum n_i d_i^2} \quad (3-1)$$

液液系分散操作においては、分散進行とともに液滴径は定常状態に達することが確認されており、分散定常状態における $d_{32}$ と操作因子の関係は次の無次元相関式の形にまとめられていることが多い<sup>1)</sup>。

$$\frac{d_{32}}{d} = C_1(1 + C_2\phi)We^{-0.6} \quad (3-2)$$

分散相液粘度の影響を考慮した滴径計算<sup>2)</sup>や、分散相体積分率を希薄な濃度とし  
合一を無視できる条件での滴径計算の式<sup>3)</sup>も構築されている。

分散相滴径分布については次の実験相関式が報告されている。

$$F_v(d_i) = 0.5 \left\{ 1 + \operatorname{erf} \left( \frac{d_i / d_{32} - 1.07}{0.24\sqrt{2}} \right) \right\} \quad (3-3)$$

以上に述べたように、 $d_{32}$ より種々の条件での液滴径の評価や液滴径分布を求め  
ることができるので、 $d_{32}$ を用いて液滴挙動を表すことが妥当であるといえる。  
本研究では液滴挙動の評価を $d_{32}$ を用いて、その経時変化を定量的に検討するこ  
ととした。

## 3.2 分散速度式

### 3.2.1 分散速度式による体面積平均径の経時変化の算出法

$d_{32}$ の経時変化の一例として、反応を伴わない場における $d_{32}$ の経時変化を図3.3.1に示した。同図より、 $d_{32}$ は経時的に小さくなっていくことが判り、液滴の分散現象を確認できる。

本研究では、一例に示したような分散現象を定量的に表す手法として、 $d_{32}$ の経時変化に基づき  $dd_{32}/dt$  を分散速度と定義した。また、付図に示した線形グラフより、分散進行とともに $d_{32}$ の変化はほぼ無くなり、定常状態に達すると考えられることから、分散定常状態での $d_{32}$ を $d_{\infty}$ と考えた。 $d_{\infty}$ については次節で述べる。

本研究では、 $d_{32}$ と分散定常状態における液滴径の差が液滴分散の駆動力となるものとし、(3-4)に示した分散速度式を定義した。

$$-\frac{dd_{32}}{dt} = k(d_{32} - d_{\infty})^{\alpha} \quad (3-4)$$

(3-4)式中の定数 $k$ は分散速度定数であり、 $\alpha$ は分散速度のべき数である。

(3-4)式を $t=60 \sim t[s]$ の区間で積分することにより、時刻 $t$ における $d_{32}$ を算出する式形とした。なお、 $\alpha > 1$ であることは実験的に確認した。(3-4)式を用いて体面積平均径 $d_{32}$ の経時変化を算出し、各操作因子の影響を検討することとした。

### 3.2.2 分散定常状態における液滴径 $d_{\infty}$ と槽内流動の最小渦スケール $\eta_k$

分散定常状態における液滴径 $d_{\infty}$ は、攪拌時間が無限大であるときの液滴径であり、実験結果より求めることはできず、 $d_{\infty}$ を任意の値として定める必要がある。そこで、本研究では液滴の分裂現象に着目して $d_{\infty}$ を定義した。

液滴の分裂現象は槽内流動の乱流渦と液滴径の差により生じる剪断力により起きると考えた。なお、等方性乱流場では、最小渦スケール $\eta_k$ よりも大きい場合は流動の影響を受け分裂することが確認されている<sup>4),5)</sup>が、液滴径が $\eta_k$ よりも小さい場合、分裂は粘性剪断により起きると考えられている。 $\eta_k$ は次式より算出できる。

$$\eta_k = \varepsilon^{1/4} \nu_c^{3/4} \quad (3-5)$$

(3-5)式中の $\varepsilon$ は単位体積あたりの攪拌所要動力、 $\nu_c$ は連続相動粘度を表す。

ここで、テイラー数 $Ta < 400$ の場合、液滴の分散挙動には粘性剪断が支配的であるということ<sup>6)</sup>より、本研究での実験条件でのテイラー数および攪拌レイノルズ数を検討した。

本研究での実験は槽径0.14mの4枚邪魔板付平底円筒槽、翼径0.07mの6枚垂直ディスクタービンを用いた。また、翼回転数 $n = 3.0 \sim 5.0 \text{ s}^{-1}$ の条件で行っており槽内流体を純水とみなし攪拌レイノルズ数を算出したところ、いずれの条件においても $Re \gg 1000$ であったことより、槽内流動は乱流であることを確認した。

次に、テイラー数を(3-6)式より算出した。

$$Ta = (nD\pi e / \nu_c) \sqrt{\frac{2e}{D}} \quad (3-6)$$

(3-6)式中の $e$ は翼先端部と邪魔板を除いた槽壁との距離を表す。いずれの条件においても $Ta \gg 400$ であることより、液滴の分裂現象は粘性剪断に依存しないと考えられる。以上のことより、本研究の対象とした場合はKolmogoroffの理論に適応するので、最小渦スケールを算出することとした。

まず、乱流場での動力数 $N_p$ を(3-7)式より求めた。<sup>7)</sup>

$$N_p = \frac{A}{\text{Re}} + B \left( \frac{10^3 + 1.2 \text{Re}^{0.66}}{10^3 + 3.2 \text{Re}^{0.66}} \right)^y \times \left( \frac{D}{H} \right)^{(0.35+b/D)} (\sin \theta)^{1.2} \quad (3-7)$$

(3-7)式中の $A, B, y$ は装置形状、装置寸法より決定する定数であり、論文中の式より求めた。

攪拌所要動力 $P$ 、単位体積あたりの所要動力 $\varepsilon$ は(3-8),(3-9)式より求めた。

$$P = N_p \times \rho_m n^3 d^5 \quad (3-8)$$

$$\varepsilon = \frac{P}{\rho_m V} \quad (3-9)$$

算出した $\eta_k$ を表3.3.1にまとめた。液滴は $\eta_k$ よりも小さい液滴径にならないと考え、(3-4)式の $d_\infty$ の値に $\eta_k$ を導入することで、液滴の分散が液滴径と最小渦スケールの差を駆動力として進行する式形とした。

$$-\frac{dd_{32}}{dt} = k(d_{32} - \eta_k)^\alpha \quad (3-10)$$

### 3.2.3 分散速度のべき数 $\alpha$ と分散速度定数 $k$ の最適化方法

本検討では種々の条件で行った分散実験結果に基づき(3-10)式中の定数 $k, \alpha$ と各操作因子との関係を検討した。(3-10)式を測定時刻である60~ $t$ [s]の区間で積分し、時刻 $t$ における $d_{32}$ を算出する式形とした。

$$d_{32t} = \{k(\alpha - 1)(t - 60) + (d_{32_{60s}} - \eta_k)^{1-\alpha}\}^{1/(1-\alpha)} + \eta_k \quad (3-10')$$

(3-10')式を用いて $d_{32}$ の経時変化を算出し、その計算結果と実験結果の残差2乗和を求めた。

残差2乗和 $Err$ が最小値となるよう、 $k$ と $\alpha$ の最適化を行い、得られた値と実験条件との関係を検討した。

$$Err = \sum_{t=60s}^{t=t} (d_{32_{t_{exp}}} - d_{32_{t_{cul}}})^2 \quad (3-11)$$

[使用記号]

$D$ : 攪拌槽径	[m]
$d$ : 翼径	[m]
$d_{32}$ : 体面積平均径	[m]
$d_{32cal}$ : 分散速度式を用いて算出した体面積平均径	[m]
$d_{32exp}$ : 実験結果より算出した体面積平均径	[m]
$d_{\infty}$ : 分散定常状態における液滴径	[m]
$e$ : 翼先端部と槽壁間の距離	[m]
$Err$ : 残差2乗和	[m <sup>2</sup> ]
$k$ : 分散速度定数	[m <sup>(1-<math>\alpha</math>)</sup> /s]
$n$ : 翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
$N_p$ : 動力数	[-]
$Re$ : 攪拌レイノルズ数	[-]
$P$ : 攪拌所要動力	[W]
$t$ : 攪拌時間	[s]
$Ta$ : テイラー数	[-]
$V$ : 槽体積	[m <sup>3</sup> ]
$W$ : ウェーバー数	[-]



[参考文献]

- 1)化学工学会編：ミキシング-変貌する攪拌・混合技術-, p.56,化学工学社(1992)
- 2)Calabrese,R.V. *et al.* : *AIChE J.*, 32, 677(1986)
- 3)Konno,M. *et al.* : *J. Chem. Eng.Jpn.*, 20, 533(1987)
- 4)Brooks, B.W. : *Macromolecular Symposia* , 35/36, 121–140, (1990)
- 5)Borwankar, R.P.*et al.*, *Journal of Applied Polymer Science* 32, 5749–5762, (1986)
- 6)Jegat, C., Bois, A., Camps, M., *Journal of Polymer Science* 39, 201–210, (2001)
- 7)(社)化学工学会 改訂六版 化学工学便覧 P.431

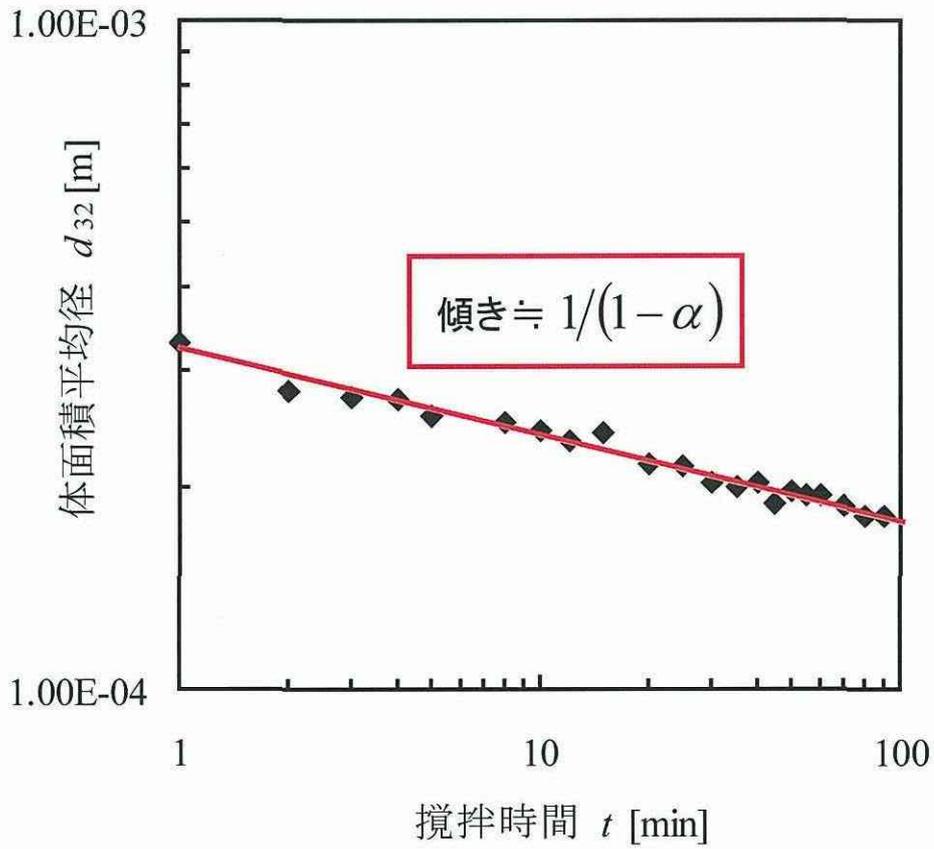
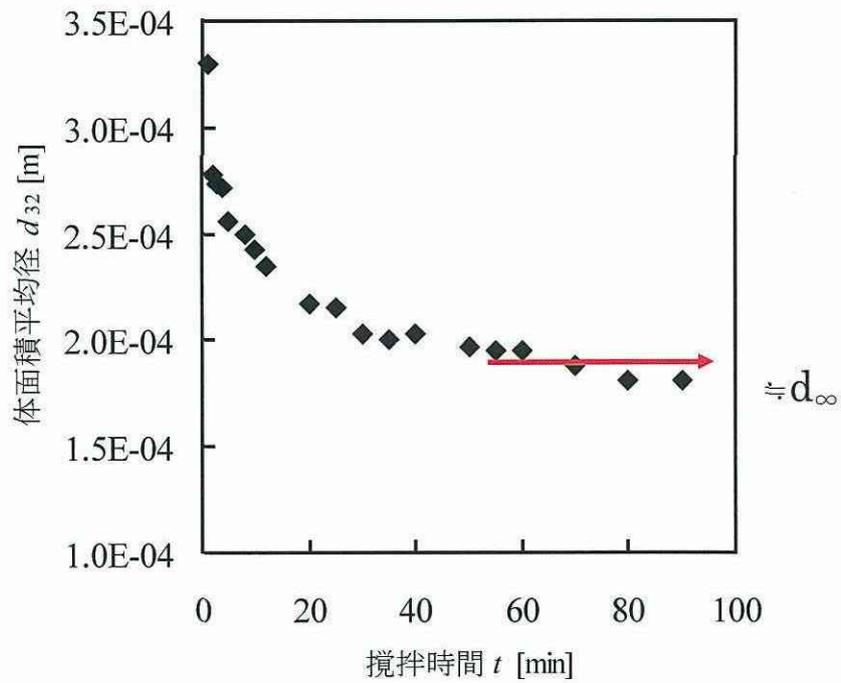


図 3.3.1  $d_{32}$  の経時変化の一例 ( $n=4.0 \text{ s}^{-1}$ ,  $\phi=5.0 \text{ vol}\%$ )



付図 線形グラフ

表 3.3.1 翼回転数と最小渦スケール $\eta_k$ の関係

翼回転数 $n$ [ $s^{-1}$ ]	3.0	3.5	4.0	4.5	5.0
レイノルズ数 $Re$ [-]	1.64E+04	1.91E+04	2.18E+04	2.45E+04	2.73E+04
動力数 $Np$ [-]	5.57E-01	5.37E-01	5.20E-01	5.06E-01	4.94E-01
攪拌所要動力 $P$ [W]	2.52E-02	3.86E-02	5.58E-02	7.74E-02	1.04E-01
単位体積あたりの 所要動力 $\varepsilon$ [ $m^2/s^3$ ]	1.17E-02	1.80E-02	2.60E-02	3.60E-02	4.82E-02
コルモゴロフ スケール $\eta_k$ [m]	8.8E-05	8E-05	7.3E-05	6.69E-05	6.2E-05

## 第4章 実験装置および方法

### 4.1 実験装置

#### 4.1.1 モノマー分散実験装置

実験装置概略を図 3.4.1 に示した。また、実験装置形状および寸法を表 3.4.1 に示した。攪拌槽は内径 0.14m の 4 枚邪魔板付平底円筒槽、攪拌翼は翼径 0.07m の 6 枚垂直ディスクタービン翼を用いた。液深は槽径と同じとし、攪拌翼は液深の半分の位置となるよう設置した。サンプリング管は内径 2.2mm の枝菅付きガラス管を用いた。サンプリング管は槽内流動が安定している邪魔板間の槽壁付近に設置し、サンプリング位置は翼吐出部として液滴吸引を行った。

#### 4.1.2 懸濁重合実験装置

実験装置概略を図 3.4.2 に示した。攪拌槽はシリコンオイルを満たした恒温槽内に浸漬し、槽内温度は 80°C に保った。サンプリング管は内径 3.0mm のガラス管を用いた。実験装置形状、寸法、攪拌翼およびサンプリング管設置位置についてはモノマー分散実験と同様である。温度計は槽内流動に影響を及ぼさないよう槽壁付近に設置した。

## 4.2 実験方法

### 4.2.1 モノマー分散実験

本実験では2章で述べた外部吸引法と画像解析法を組み合わせ液滴を測定した。

実験条件を表3.4.2に示した。純水に分散剤を加えたものを連続相とし、分散相はスチレンモノマーを用いた。分散剤は、界面活性剤であり重合場での液滴同士の付着を抑制させるために汎用されているドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム(DBS)を用いた。翼回転数は $3.0\sim 5.0\text{s}^{-1}$ で実験終了まで一定とした。

実験では、まず攪拌槽に連続相のみを満たし攪拌を開始した。約15min経過後、連続相流動が安定したとして、分散相をガラス製漏斗を用いて槽内に注入した。注入時を $t=0$ として一定時間ごとに槽内液をサンプリング管に吸引し、液滴を撮影した。このとき吸引した液に含まれる液滴数が多いため、画像解析の際に液滴が重なり合ったようになり、画像解析が困難になることがある。これを解消するため、サンプリング管枝管より連続相を注入して吸引した液を希釈した。液滴径の測定は分散相注入後90minまで行うこととした。

### 4.2.2 懸濁重合実験

表3.4.3に実験条件を示した。分散相濃度は5.0vol%とし、翼回転数は $4.0\sim 5.0\text{s}^{-1}$

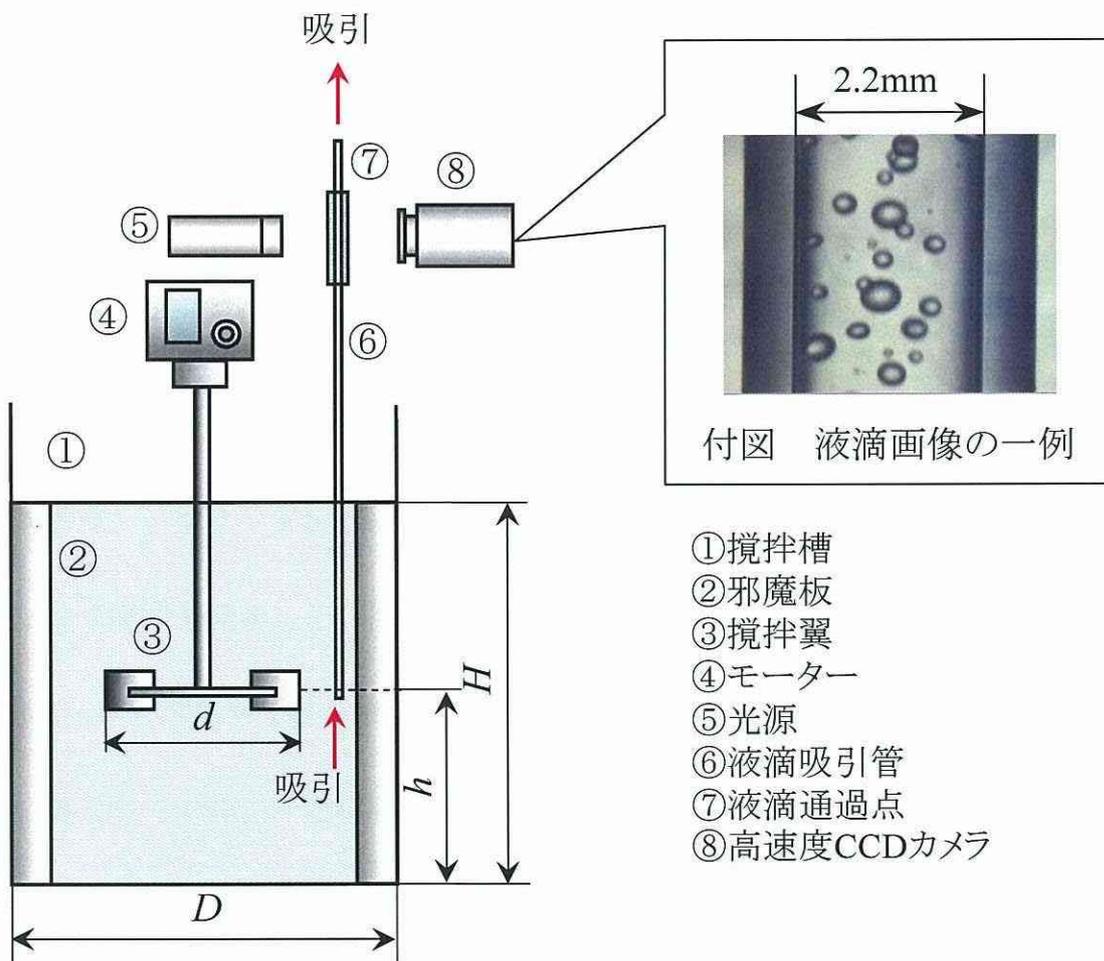
で、モノマー分散実験と同様に実験終了まで一定とした。反応開始剤にはAIBN (アゾビスイソブチロニトリル)を、分散剤はDBSの他に液滴表面を安定させるためにリン酸カルシウムを用いた。

連続相および分散相内に溶存する酸素は重合反応の進行を阻害するので、連続相に用いる純水と分散相各々を窒素ガスを用いてバブリングし脱気した。実験中は窒素ガスを気相に通気させ、気相の脱気を実験終了まで行った。モノマー分散実験と同様に希釈を行い、希釈用の連続相は反応を妨げないよう反応温度と同じ80°Cのものを用いた。

実験は、バブリング終了後の純水に分散剤を添加して連続相とし、所定の翼回転数で攪拌を開始した。攪拌槽内が反応温度に達し、槽内の流動が安定した後、開始剤を溶解させた分散相を注入し反応を開始させた。注入時を $t=0$ として、反応終了までの4h、一定時間ごとに槽内液をサンプリング管に吸引し、液滴を撮影した。

[使用記号]

$C_{CP}$ : リン酸カルシウム濃度	[kg/m <sup>3</sup> ]
$C_{DBS}$ : DBS濃度	[kg/m <sup>3</sup> ]
$D$ : 槽径	[m]
$d$ : 翼径	[m]
$d_{32}$ : 体面積平均径	[m]
$H$ : 液深さ	[m]
$h$ : 翼高さ	[m]
$n$ : 翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
$t$ : 攪拌時間	[s]
$\phi$ : 分散相濃度	[vol%]



- ① 攪拌槽
- ② 邪魔板
- ③ 攪拌翼
- ④ モーター
- ⑤ 光源
- ⑥ 液滴吸引管
- ⑦ 液滴通過点
- ⑧ 高速度CCDカメラ

図3.4.1 モノマー分散実験装置概略

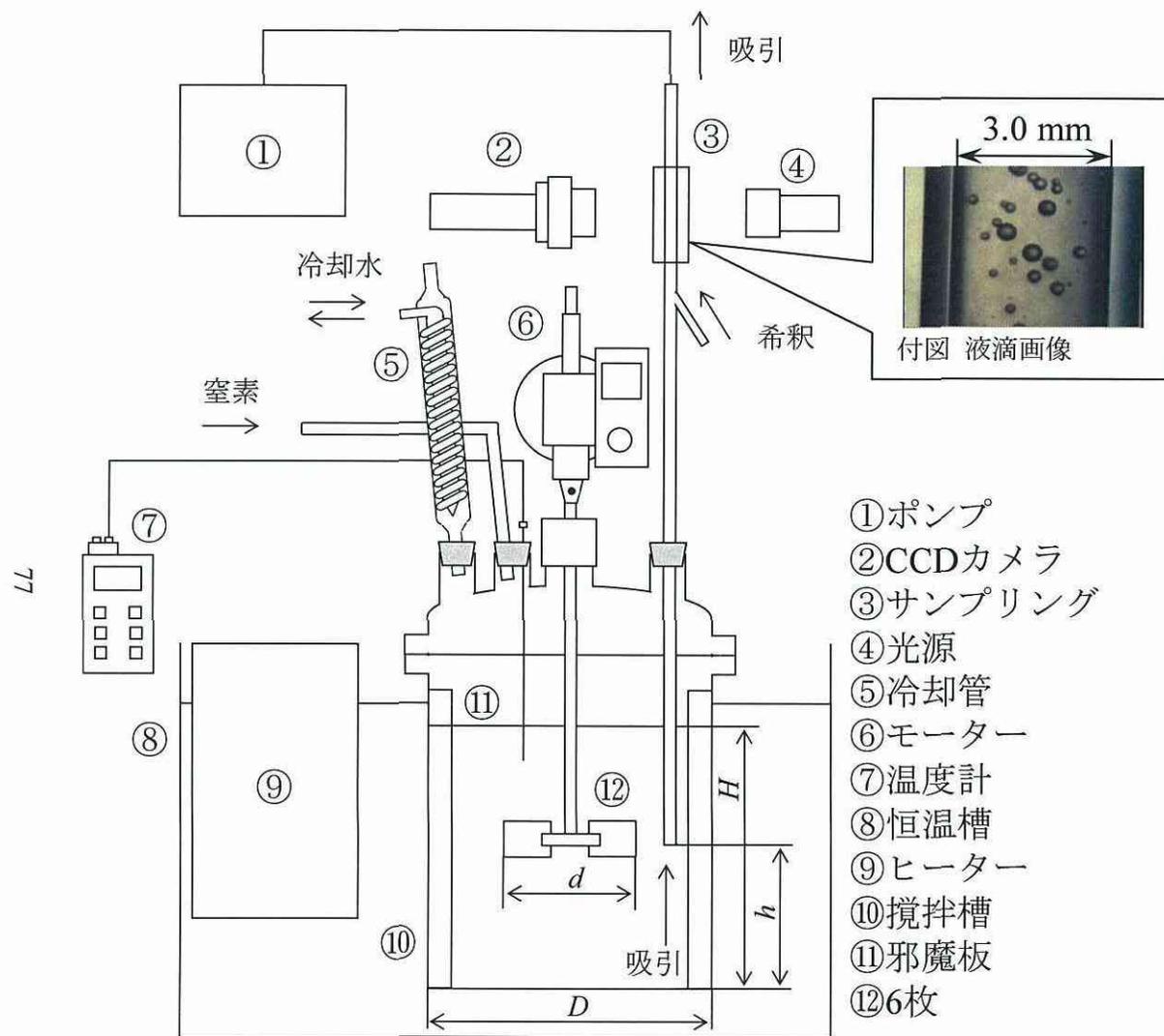


図3.4.2 懸濁重合実験装置概略



付図 懸濁重合装置

表3.4.1 装置形状および寸法

槽径 $D$ [m]	0.14
槽高さ $H$ [m]	0.14
翼径 $d$ [m]	0.07
翼高さ $h$ [m]	0.07
攪拌槽	4枚邪魔板付平底円筒槽
攪拌翼	6枚垂直ディスクタービン

表3.4.2 モノマー分散実験条件

連続相	純水＋分散剤(DBS)
分散相	スチレン
翼回転数 $n$ [ $s^{-1}$ ]	3.0～5.0
DBS濃度 $C_{DBS}$ [ $kg/m^3$ ]	$0 \sim 9.1 \times 10^{-2}$
分散相濃度 $\phi$ [vol%]	5.0

表3.4.3 懸濁重合実験条件

連続相	純水＋分散剤1,2
分散相	スチレン
AIBN(開始剤)	0.04mol/L-スチレン
リン酸カルシウム濃度 $C_{CP}[\text{kg}/\text{m}^3]$ (分散剤1)	0.27, 1.1
DBS濃度 $C_{DBS}[\text{kg}/\text{m}^3]$ (分散剤2)	$4.6 \times 10^{-3}$ , $9.1 \times 10^{-3}$ $3.7 \times 10^{-2}$
翼回転数 $n$ [ $\text{s}^{-1}$ ]	4.0, 4.5, 4.6, 5.0
分散相濃度 $\phi$ [vol%]	5.0
反応温度[ $^{\circ}\text{C}$ ]	80

## 第5章 実験結果および考察

### 5.1 モノマー分散実験

#### 5.1.1 実験結果

図 3.5.1 にモノマー分散実験結果の一例を線形グラフ上に示す。 $d_{32}$  は経時的に小さくなり、分散初期ではその変化は急峻であり、分散進行とともに変化は緩やかとなり  $d_{32}$  の変化はほとんど無くなることが判る。また、図 3.5.2 には液滴径分布の経時変化を示した。同図より、60min 以降ほとんど分布形状の変化がみられないことが判る。以上のことより、液滴分散は定常状態に達し、これを  $d_{32}$  の経時変化に基づき確認できると考えられる。

次に、図 3.5.3 に翼回転数を変化させた場合の実験結果を両対数グラフ上に示した。いずれの条件においても、 $d_{32}$  の経時変化はほぼ同じ形状を示しており、翼回転数の増加に伴い小液滴側に移行していることが判る。このことより、翼回転数増加に伴い槽内流動による液滴に作用する外力が増大し、液滴の分裂現象を促進していると考えられる。

図 3.5.4 に DBS 濃度を変化させた場合の実験結果を示した。同図より、DBS 濃度の増加に伴い  $d_{32}$  は小液滴側に移行していることが判る。DBS は界面活性剤であり、2 相間の界面張力を低下させる効果がある。液滴の分裂現象は液滴表面に流動による外力が加わることにより、液滴表面の膜が破れることで起きると考えられている。これらのことより、DBS により界面張力が低下して表面膜が

脆くなるため、液滴の分裂が促進されたものと推察される。

本検討では水-スチレン系を対象としているが、2相間の密度差が非常に低い  
ため、プレート型、ペンダントドロップ型、スピニングドロップ型等の界面張  
力計で直接界面張力を測定することは困難である。また、各々の表面張力の差  
より算出した界面張力は実際の界面張力との差が生じる。そのため、DBS の影  
響を定量的に検討するのに界面張力を用いることはできないため、DBS 濃度  
 $C_{DBS}$  を用いることとして、DBS 濃度と液滴分散挙動の関係を検討することとし  
た。

### 5.1.2 体面積平均径 $d_{32}$ の経時変化の解析的検討

本節では翼回転数および DBS 濃度が及ぼす影響を考慮した、液滴分散挙動を  
表す手法の検討について述べる。

本検討ではまず、第3章で述べた、 $d_{32}$  の経時変化に基づき定義した分散速度  
 $dd_{32}/dt$  を用いて、各測定時刻における  $d_{32}$  を算出した。そして実験値との残差2  
乗和  $Err$  が最小となる  $\alpha, k$  の値を検討した。

まず、 $\alpha$  の最適化の結果を図3.5.5に示した。同図(a)より、いずれの翼回転数に  
おいても  $\alpha$  は約5から7の間の値を示し、翼回転数変化に伴う傾向はみられないこ  
とが判る。同図(b)より、DBS濃度に依らず  $\alpha$  は約6でほとんど変わらないことが

判る。

以上の検討より、着目した各条件において $a$ はいずれの条件においてもほぼ同じ値を示し、翼回転数やDBS濃度による傾向はみられないことが判る。このことより、本検討では $a$ はいずれの条件においてもほぼ同じ値を示すと考えた。液滴の分裂現象が2相間の界面張力、粘度差によることを考慮すると、本実験ではDBS添加による界面張力の変化は生じたと考えられるが、反応を伴わない場では連続相、分散相の粘度は一定であることより、本実験の対象である水-スチレン間では $a$ に及ぼす影響があまり見られなかったと考えられる。

そこで、 $a$ は一定であるものと考え、各実験結果より得られた $a$ の平均値である5.67を分散速度のべき数として、再度、分散速度定数 $k$ の最適化を行った。

図3.5.6に $a=5.67$ として最適化を行い得られた分散速度定数 $k$ と、各操作因子の関係を示した。同図(a)より、翼回転数の増加に伴い $k$ も増加する傾向がみられる。このことより、翼回転数の増加に伴い分散速度は上昇することが考えられる。同図(b)より、DBS濃度の増加に伴い $k$ も増加する傾向がみられることより、DBS濃度の増加に伴い分散速度は上昇することが考えられる。

以上のことより、最適化により得られた $k$ の値と各操作因子の相関を得る見通しが得られたので、翼回転数、DBS濃度を変数とした $k$ の定式化を試み、次式を得た。

$$k = 3.43 \times 10^9 n^{7.96} \times 10^{11.7C_{DBS}} \quad (5-1)$$

以上の検討に基づき構築した分散速度式を(5-2)式に示す。

$$-\frac{dd_{32}}{dt} = 3.43 \times 10^9 n^{7.96} \times 10^{11.7C_{DBS}} (d_{32} - \eta_k)^{5.67} \quad (5-2)$$

(5-2)式を用いて算出する分散挙動と実験結果の整合性を確認するため、種々の条件で(5-2)式の積分形より $d_{32}$ の経時変化を算出し、実験結果とともに図3.5.7に示した。同図より、いずれの条件においても計算結果は $d_{32}$ の経時変化を良好に表しており、本検討で構築した分散速度式の整合性を確認できた。

## 5.2 懸濁重合実験

### 5.2.1 実験結果

図 3.5.8 に翼回転数を変え懸濁重合を行った場合の  $d_{32}$  の経時変化を示した。図中の付表には重合初期の  $d_{32}$  の傾きを示した。同図より、いずれの翼回転数でも  $d_{32}$  は経時的に小さくなり、その後増大することが判る。また、翼回転数の増加に伴い、 $d_{32}$  は小液滴側に移行しており、 $d_{32}$  の初期における傾きは大きくなる傾向が見られる。各条件についてみると、 $4.0, 4.6 \text{ s}^{-1}$  の条件では 10min 程度より  $d_{32}$  が増大し、ポリマー粒子となることが判る。一方、 $5.0 \text{ s}^{-1}$  の条件では、 $d_{32}$  が増大した後再び  $d_{32}$  が小さくなる領域が現れることが判る。

これらのことより、重合初期においてはモノマー分散実験と同様に、翼回転数増加に伴う液滴に作用する外力の増大が、液滴の分裂現象を促進していると考えられる。一方で重合中期から後期にかけての領域では、 $d_{32}$  の経時変化は複雑な挙動を示している。重合反応の進行に伴い分散相の粘度が上昇すると、液滴の分裂現象と合一現象のバランスが変わると考えられる。 $d_{32}$  が増大している領域では、この分散相粘度の上昇により合一現象の発生頻度が分裂現象の発生頻度を上回っていると考えられる。しかし  $5.0 \text{ s}^{-1}$  の条件で見られるように再び  $d_{32}$  が小さくなるような領域では、合一現象より分裂現象の発生頻度が高くなっているといえ、分散相粘度の変化は  $d_{32}$  の経時変化の挙動に複雑に影響を及ぼす

と考えられる。

図 3.5.9 には DBS 濃度を変化させたときの  $d_{32}$  の経時変化を示した。図中の付表には各実験条件および重合初期の  $d_{32}$  の傾きを示した。同図より、DBS 濃度が  $4.6 \times 10^{-3}$ ,  $9.1 \times 10^{-3} \text{ kg/m}^3$  のときは  $d_{32}$  は経時的に小さくなり、その後増大することが判る。一方、分散剤が最も多い条件ではこの傾向は見られず、 $d_{32}$  は単調に小さくなることが判った。また、懸濁重合場では DBS 濃度が大きいとき、 $d_{32}$  が大液滴側に移行していることが判る。モノマー分散実験では、DBS 濃度の増加に伴い  $d_{32}$  は小液滴側に移行するという結果が得られており、本実験の結果は全く逆の傾向を示すことが判った。このことより、重合反応を伴う場での DBS の効果は、モノマー分散実験の場合と異なると考えられる。

### 5.2.2 モノマー液滴挙動と懸濁重合場における液滴挙動の比較

懸濁重合場における液滴挙動の解析の第一歩として、重合初期の液滴挙動に着目して検討を行った。前節でモノマー分散実験結果に基づき構築した(5-2)式の分散速度式を用いて、 $d_{32}$ を算出し重合実験結果と比較した。図3.5.10に翼回転数の影響について、実験結果と計算結果の比較を示した。同図より計算結果は、翼回転数の増加に伴い $d_{32}$ が小液滴側に移行するという傾向は再現できている。各条件についてみると、 $4.0 \text{ s}^{-1}$ では計算結果は良好に一致しているが、 $4.6, 5.0 \text{ s}^{-1}$

の条件では、実験結果に比べ大きい値を示した。モノマー分散実験では分散剤にDBSのみを用いたのに対し、重合実験ではリン酸カルシウムも用いていることと、重合反応により分散相粘度が上昇したことでこの差異が生じたと考えられる。リン酸カルシウムについては、モノマー分散実験において液滴の分散現象に影響を与えないという知見<sup>1)</sup>が得られている。このことより、分散相粘度の変化がリン酸カルシウムの分散相液滴への付着に影響を及ぼしたと考えられる。

図3.5.11にDBS濃度の影響について、実験結果と計算結果の比較を示した。同図より、DBS濃度が $9.1 \times 10^{-3} \text{ kg/m}^3$ のときは計算結果が分散現象を表現できているが、その他の条件においては計算結果は大きく異なることが判った。特に、分散剤が最も多い条件で差異が大きい。計算結果はモノマー分散実験結果に基づくものなので、前節で述べたように、重合時におけるDBSの効果がモノマー分散実験と逆の傾向を示したために、大きな差異が生じたものと考えられる。今後は、重合場におけるDBSの効果を明らかにするため、DBS濃度を詳細に変化させた重合実験や、分散相粘度の変化が分散挙動に及ぼす影響についての更なる検討を行うことが望まれる。

[使用記号]

$C_{CP}$ : リン酸カルシウム濃度	[kg/m <sup>3</sup> ]
$C_{DBS}$ : DBS濃度	[kg/m <sup>3</sup> ]
$d_{32}$ : 体面積平均径	[m]
$Err$ : 残差2乗和	[m <sup>2</sup> ]
$k$ : 分散速度定数	[m <sup>(1-<math>\alpha</math>)/s</sup> ]
$n$ : 翼回転数	[s <sup>-1</sup> ]
$t$ : 攪拌時間	[s]
$v$ : 液滴体積	[mm <sup>3</sup> ]
$\alpha$ : 分散速度のべき数	[-]
$\phi$ : 分散相濃度	[vol%]
$\eta_k$ : 槽内流動の最小渦スケール	[m]

[参考文献]

- 1) 藤嶋莉恵子:横浜国立大学修士論文(2007)

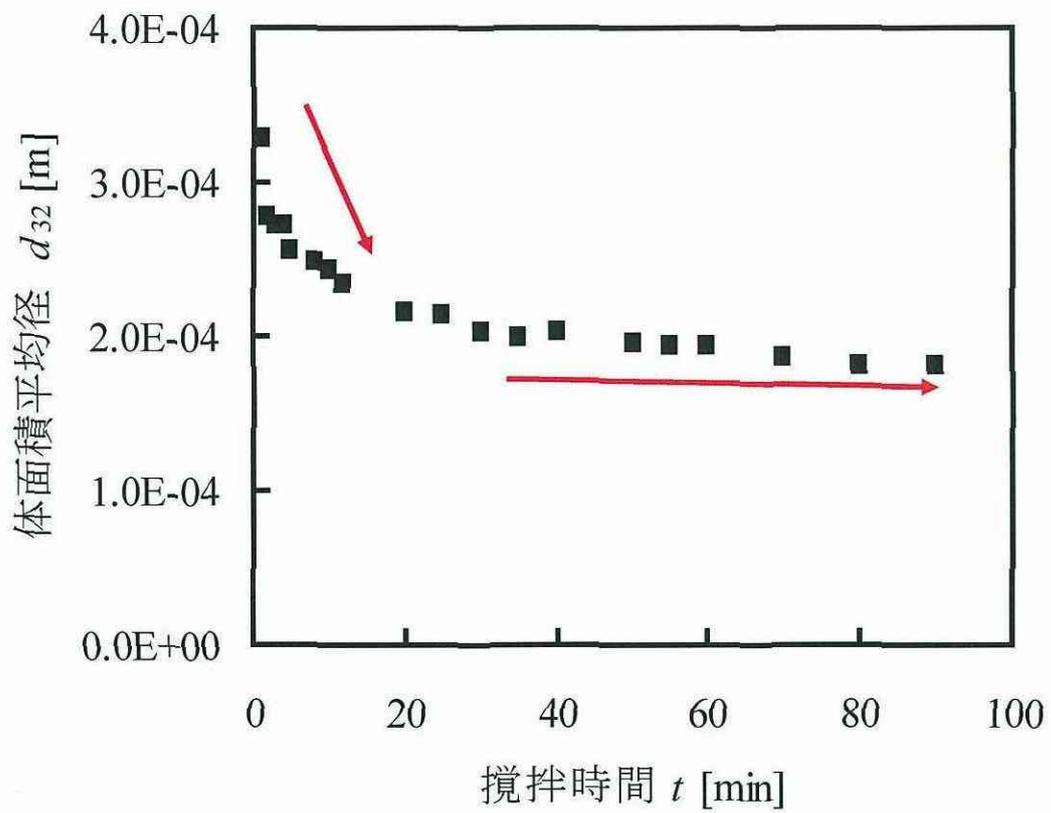


図 3.5.1  $d_{32}$  の経時変化の一例  
 ( $n=4.0\text{s}^{-1}$ ,  $\phi=5.0\text{vol}\%$ )

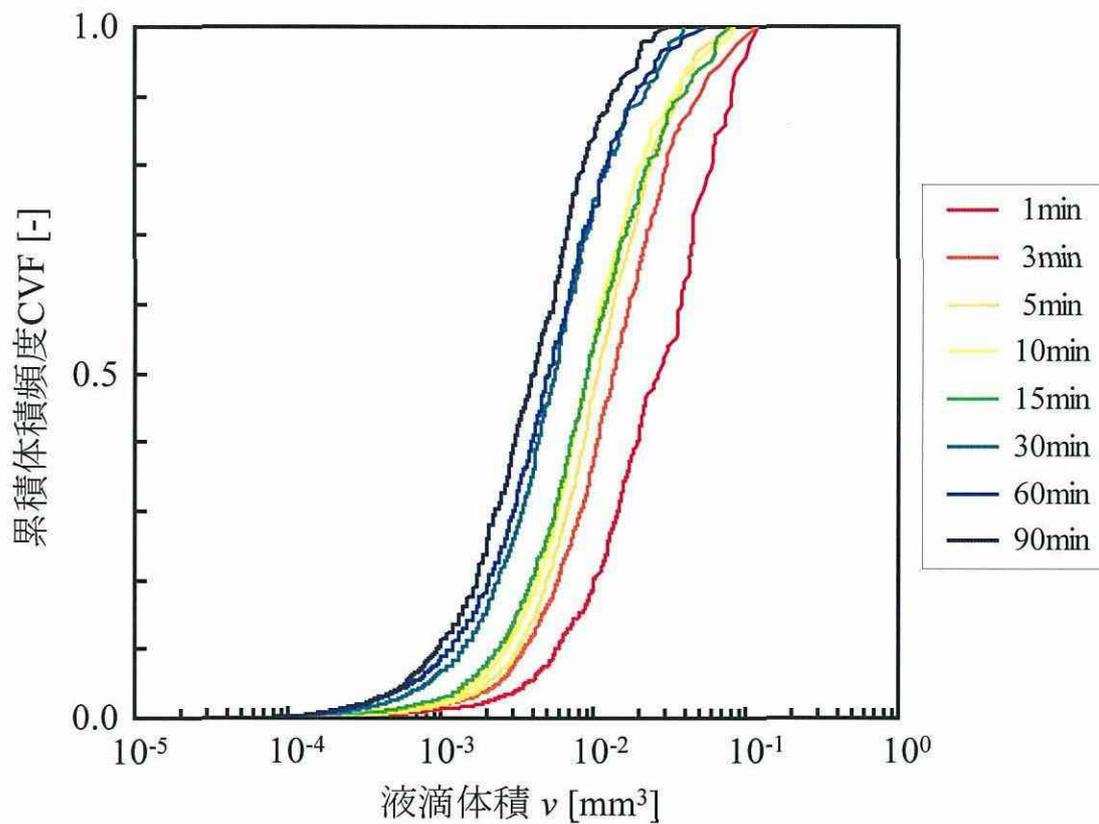


図 3.5.2 液滴径分布の経時変化の一例  
 ( $n=4.0\text{s}^{-1}$ ,  $\phi=5.0\text{vol}\%$ )

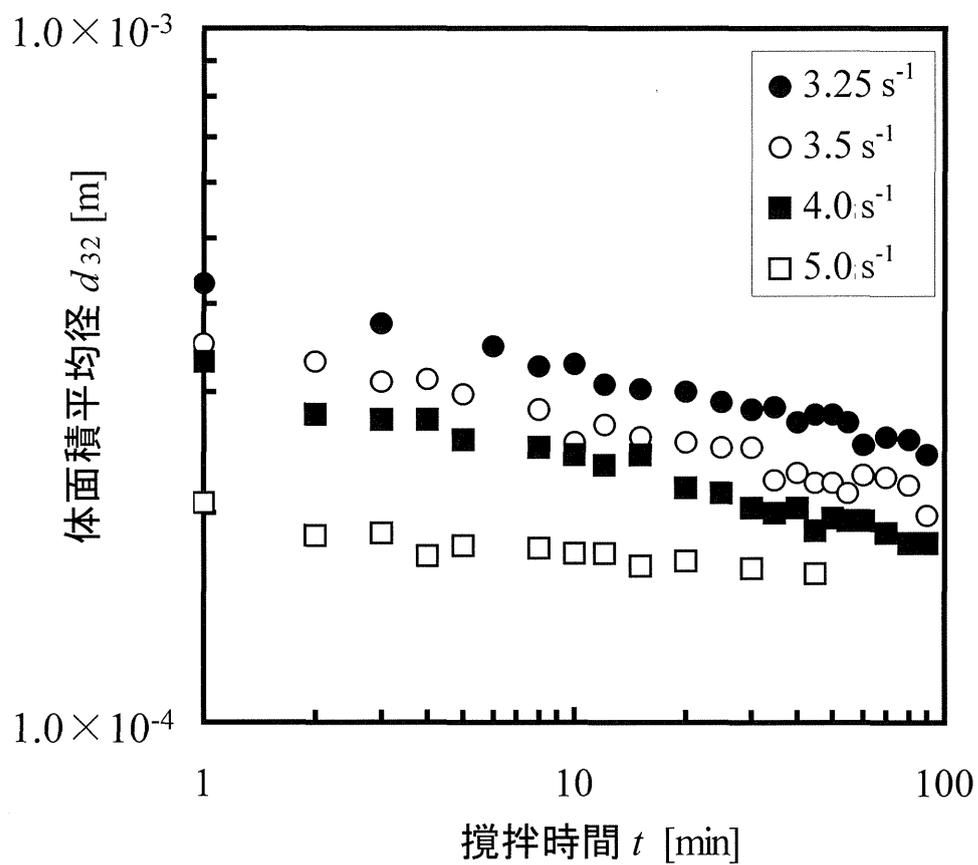


図 3.5.3 翼回転数の影響 (DBS なし)

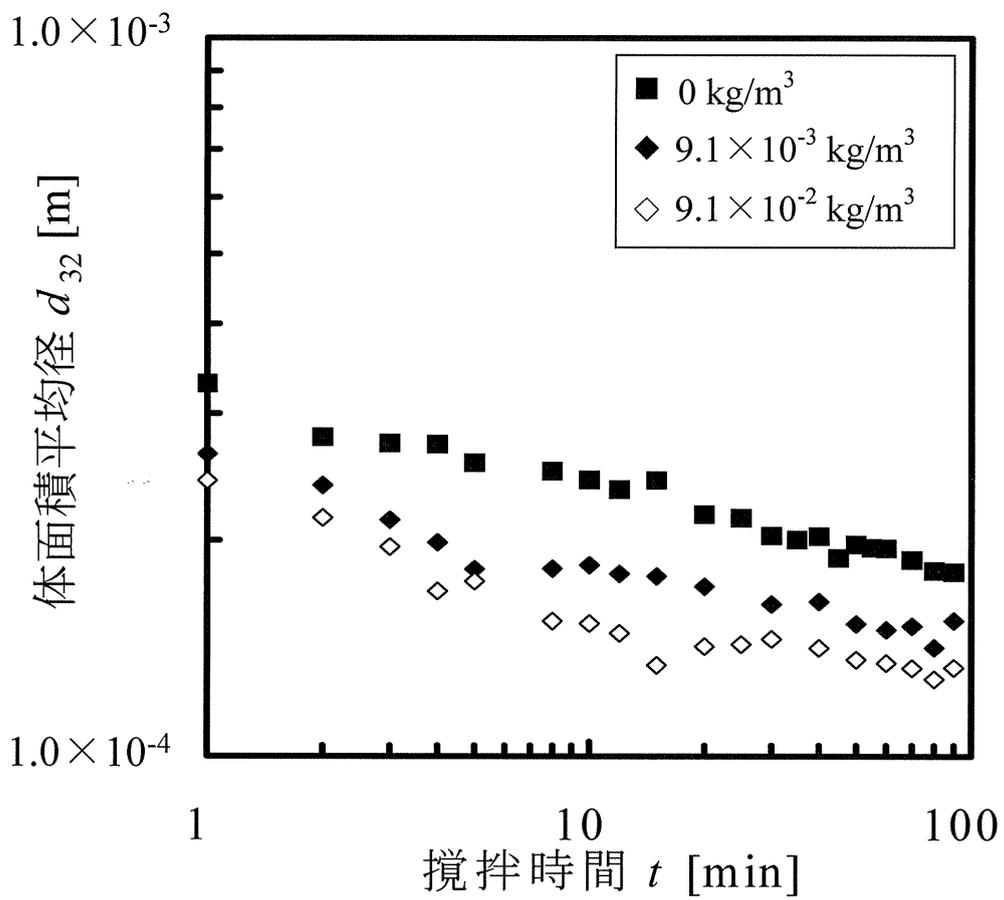
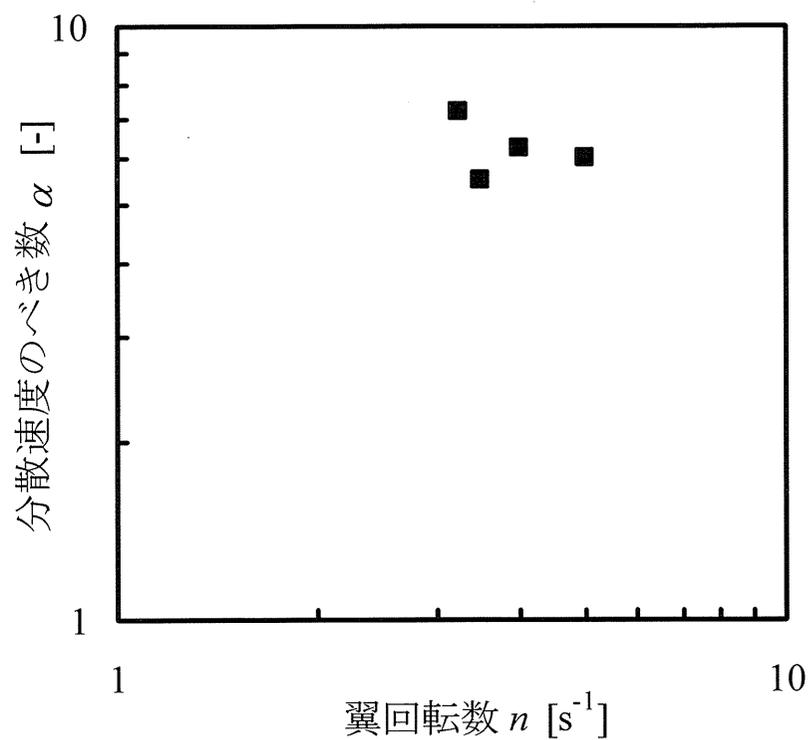
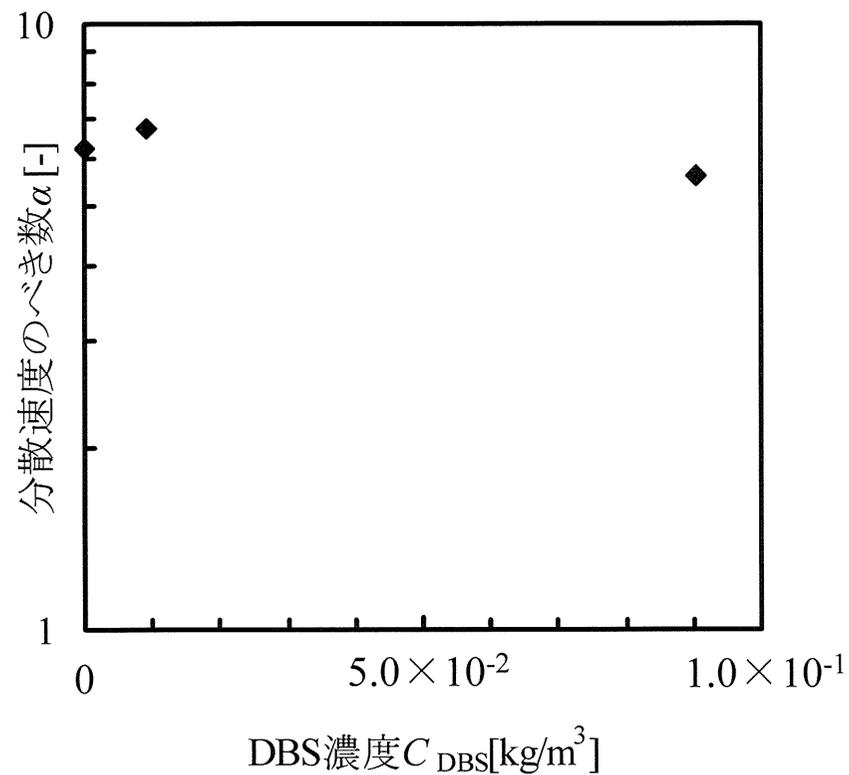
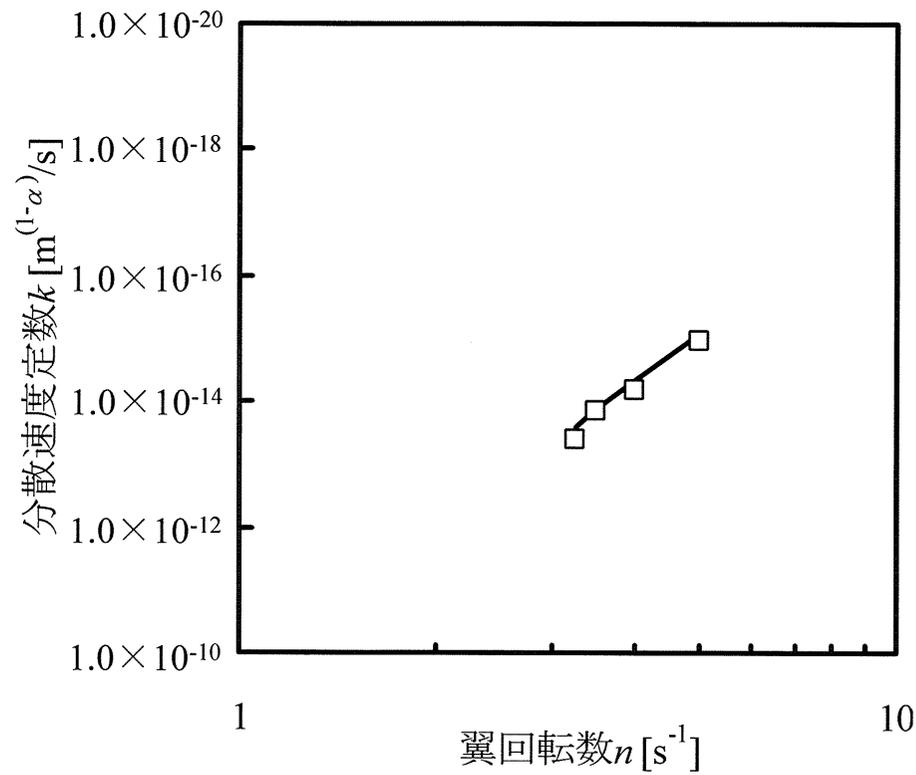
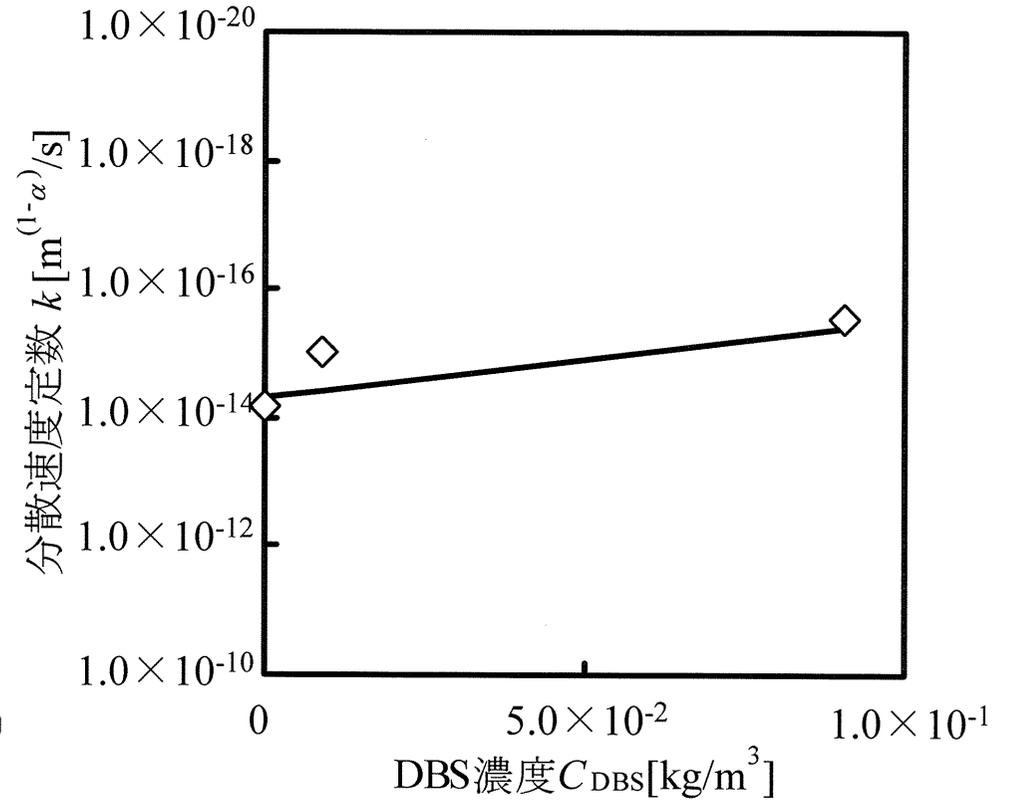


図 3.5.4 DBS 濃度の影響 ( $n=4.0\text{s}^{-1}$ )

(a)  $\alpha$ と(b)  $\alpha$ と DBS 濃度 ( $n=4.0\text{s}^{-1}$ )図3.5.5 分散速度のべき数 $\alpha$ と各操作因子の関係

(a)  $k$  と(b)  $k$  と DBS 濃度 ( $n=4.0s^{-1}$ )図3.5.6 分散速度定数 $k$ と各操作因子の関係

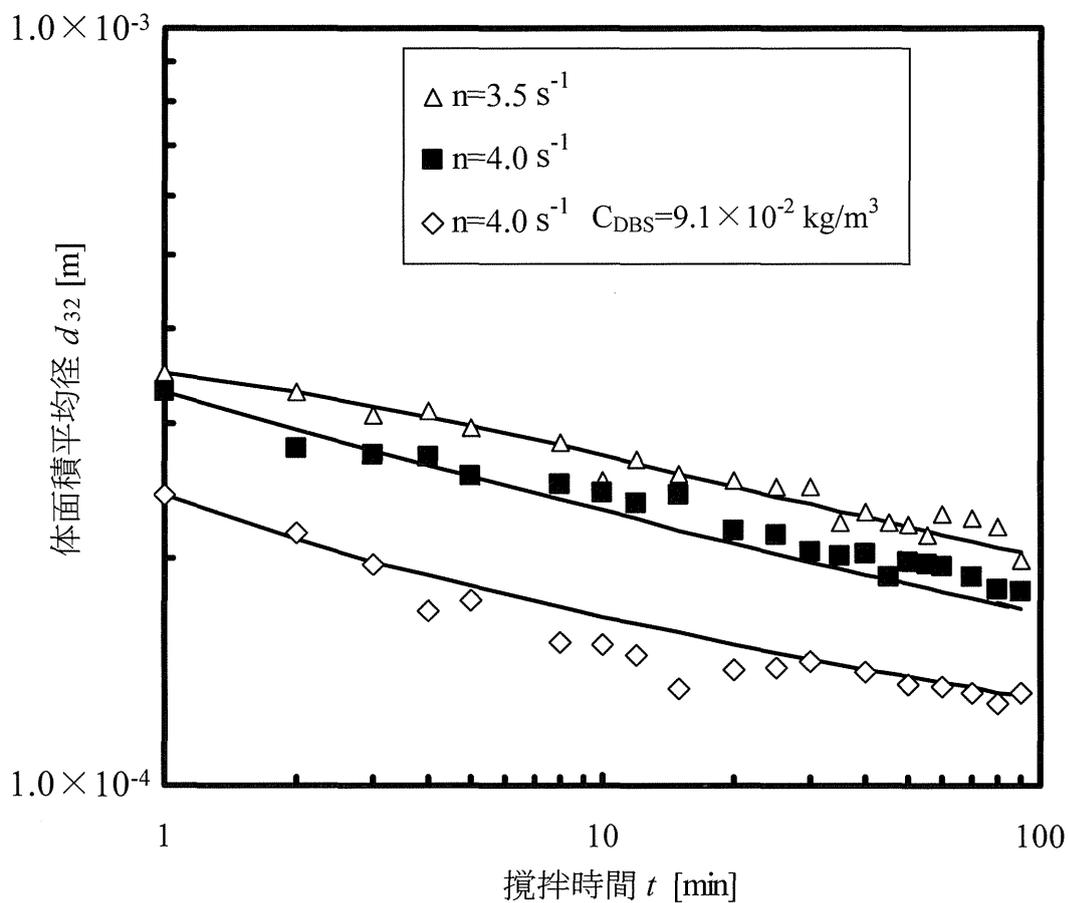
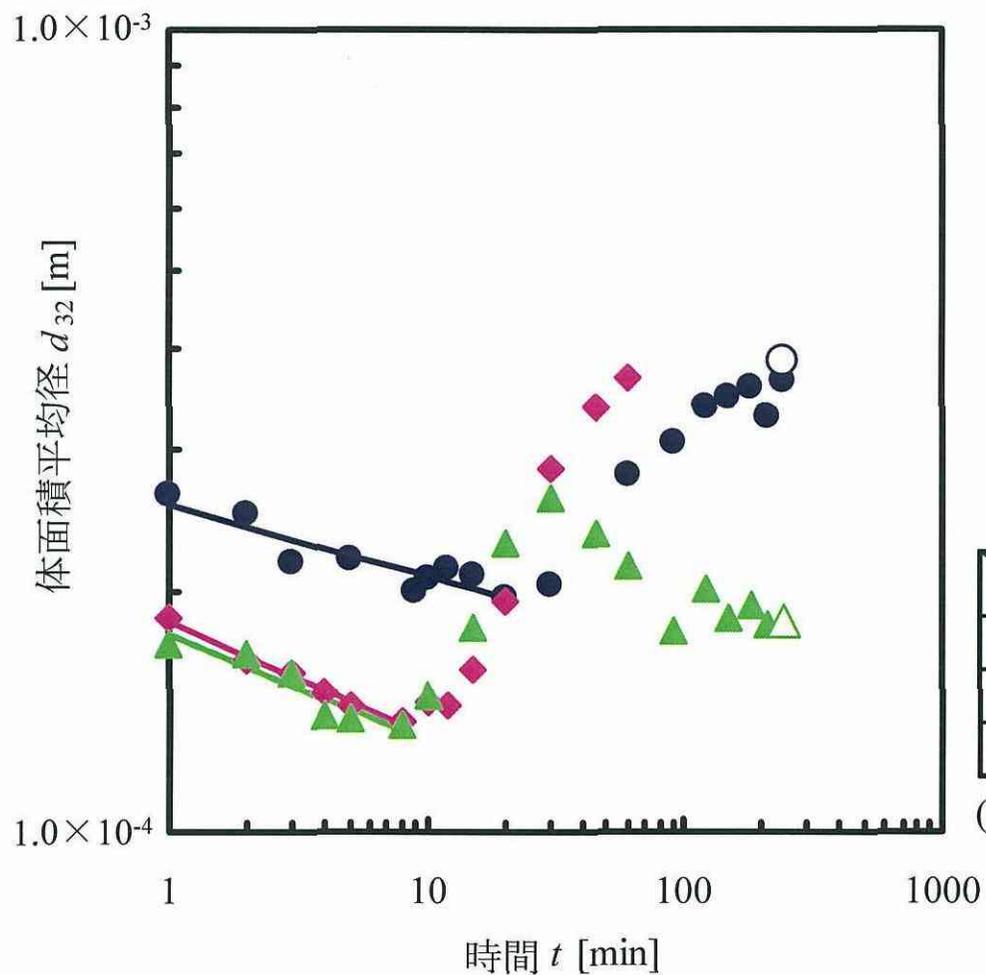


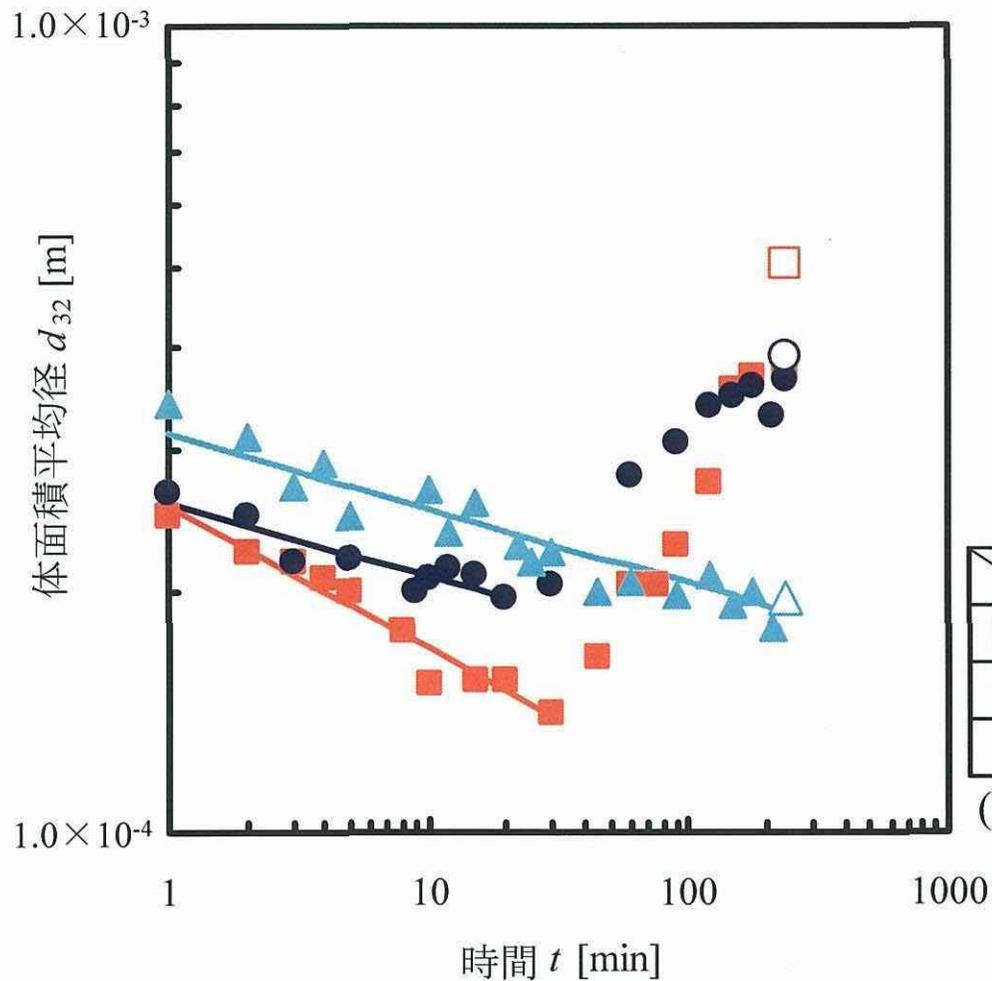
図 3.5.7 分散速度式を用いた  $d_{32}$  の経時変化の一例

付表 各実験条件および $d_{32}$ の傾き

	$n$ [s <sup>-1</sup> ]	$C_{DS}$ [kgm <sup>3</sup> ]	$C_{CP}$ [kgm <sup>3</sup> ]	傾き
●	40	$9.1 \times 10^3$	0.27	-0.090
◆	46			-0.147
▲	50			-0.133

(○ △は生成ポリマーの $d_{32}$ )

図3.5.8 翼回転数の影響

付表 各実験条件および $d_{32}$ の傾き

	$n [s^{-1}]$	$C_{DBS} [kgm^{-3}]$	$C_{CP} [kgm^{-3}]$	傾 $\xi$
■	4.0	$4.6 \times 10^3$	0.27	-0.176
●	4.0	$9.1 \times 10^3$	0.27	-0.090
▲	4.5	$3.7 \times 10^2$	1.1	-0.093

(□ ○ △ は生成ポリマーの $d_{32}$ )

図3.5.9 DBS濃度の影響

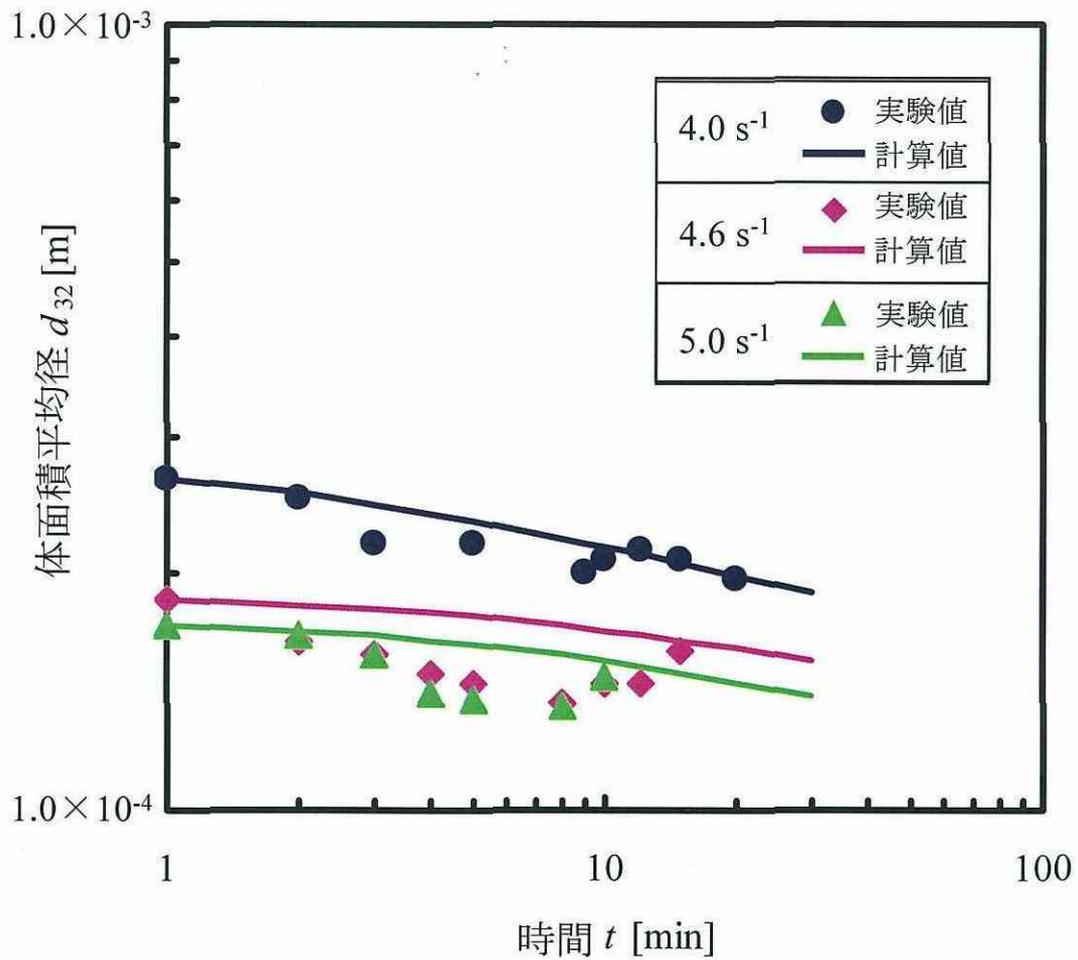


図 3.5.10 翼回転数の影響

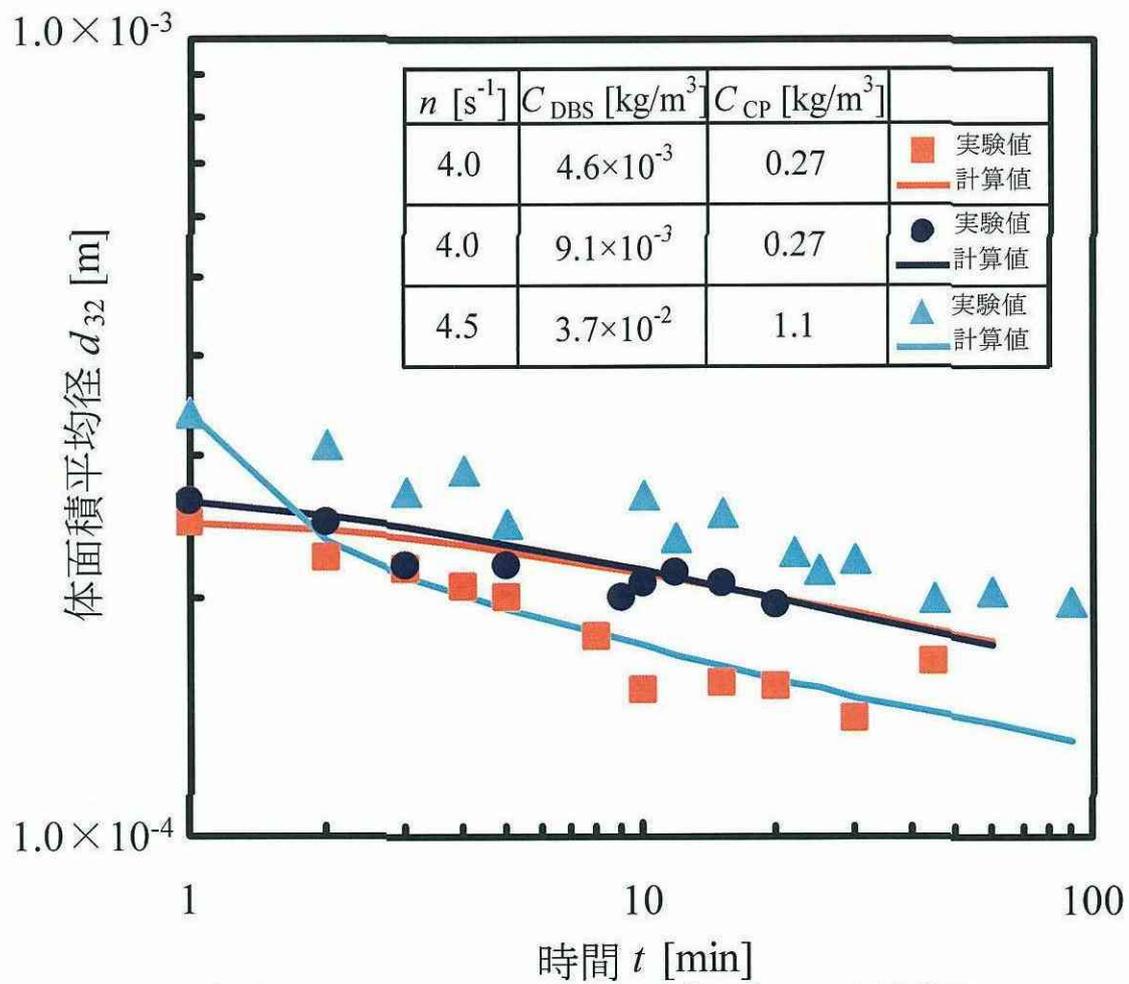


図 3.5.11 DBS 濃度の影響

## 第 6 章 結言

本研究では、反応を伴わない場での液液分散操作における液滴挙動に基づいて、操作因子が懸濁重合場における液滴挙動に及ぼす影響について検討した。

懸濁重合場における検討の前段階として、反応を伴わない場におけるモノマー分散実験を行い液滴径を連続的に測定し、翼回転数および DBS 濃度が液滴動的挙動に及ぼす影響を検討した。測定した液滴径の代表径として体面積平均径  $d_{32}$  を算出し、その経時変化に基づき分散速度を定義した。実験結果に基づき各操作因子が及ぼす影響を検討した結果、式中の分散速度定数定数  $k$  との相関を得て、分散速度式を構築した。

次いで、翼回転数および DBS 濃度を変化させた懸濁重合実験を行い、モノマー分散実験と同様の手法で重合反応に伴う液滴径変化を測定した。得られた実験結果より、各操作因子が懸濁重合場における液滴挙動に及ぼす影響を検討した。また、モノマー分散実験に基づき構築した分散速度式を用いて  $d_{32}$  を算出し、重合場における液滴挙動とモノマー液滴挙動の違いを考察した。

# 電気抵抗方式トモグラフィー法を用いた異相系攪拌槽における分散状態の可視化

上ノ山 周<sup>\*1</sup>, 仁志和彦<sup>\*</sup>, 三角隆太<sup>\*</sup>

(2006年4月24日受付)

## Visualization of Dispersion States in Multiphase Systems in a Stirred Vessel Using an Electrical Resistance Tomography Method

Meguru KAMINOYAMA<sup>\*1</sup>, Kazuhiko NISHI<sup>\*</sup> and Ryuta MISUMI<sup>\*</sup>

(Received April 24, 2006)

### 1. はじめに

対象物の内部の状況を非破壊でかつ断面的に可視化するトモグラフィーの手法は、X線やNMR、超音波法等、主に医療分野で華々しい進展を遂げてきた。近年、この考え方やアルゴリズムを化学プロセス内の各種装置に適用し、同装置内の状態を非接触かつ断面的に画像として捉える、いわゆるプロセストモグラフィー<sup>1)</sup>が精力的に試みられるようになってきた。

プロセストモグラフィーには、大きく分けて測定物の物理変数を静電容量とするものと電気抵抗とするものがあり、前者は、流動層のように気相を連続相とした固体粉末の分散・流動状態を可視化するのに利用されている。

一方、電気抵抗方式トモグラフィーは、連続相と分散相の電気抵抗が大きく異なる異相系の分散状態を計測するのに適しており、連続相を液相とする場合が通常である。本稿では電気抵抗方式トモグラフィーの計測原理を概説するとともに、混相流のうち固-液系ないしは液-液系攪拌槽内における流れの可視化適用事例として1)沈降性固体粒子の浮遊・分散状態、2)非沈降性スラリーの懸濁・流動状態、3)懸濁重合反応槽における分散・反応状態の監視ならびに4)懸濁重合反応槽における製品品質の制御に向けての検討につき、最新の研究成果も交えて以下に紹介する。

### 2. 本トモグラフィー・システムの計測原理ならびに計測手法

上述のように、電気抵抗方式トモグラフィーは槽内における電気抵抗値の分布を求めることで、分散相の状態を定量的に可視化する手法である。

図1には、攪拌槽における計測水平断面の概略を示す。槽内の流れを乱さないように、槽壁円周方向に16個の電極を配置している。まず1対の隣接した電極間に一定の交流電流を流し、それ以外の隣接した電極間の電圧を計測する。これを全ての電極の組み合わせについて走査的に繰り返す。次に、計測した電極間電圧データを基にして画像の再構成を行う。これを行うにはいくつかのアルゴリズムが開発されているが、本検討ではBack-Projection法<sup>2-5)</sup>を採用した。本法は、槽内の電気抵抗値の分布を初期の同分布からの変化量をもとに、画像を数値解析法を用いて再構成する方法である。

図2には画像再構成のフローチャートを示す。付図には画像再構成のときに用いた有限要素メッシュを示す。解析は計測断面を344個の三角要素に分割して行っている。

画像を再構成するには、まず要素数など各種の初期条件を設定し、境界条件の設定を行う。次いで同図中の式(1)を基に有限要素法により電極間電圧の解析を行い、得られた境界電圧の値を基に、式(2)に示す感度行列 $S(e,n)$ を求める。解析した同行列を用い、今度は初期状態において計測した電極間電圧から、槽内の初期抵抗値分布 $P(e)_{tr}$ が算出される。任意の時刻における槽内の抵抗値分布 $P(e)$ は、同時刻における電極間電圧 $V(n)_{meas}$ を計測し、これを式(3)に代入することにより求められる。この際、初期の抵抗値分布が差し引かれていくことから、槽内の設置物である例えば、攪拌翼や邪魔板等の影響を排除することができる。

図3には電気抵抗トモグラフィー・システムの概略を示す。同図中10には本システムで用いた計測回路の概略を示す。フ

キーワード: 電気抵抗方式トモグラフィー, 異相系, 分散状態, 攪拌槽

\* 横浜国立大学大学院工学研究院機能の創生部門 (240-8501 横浜市保土ヶ谷区常盤台 79-5)

Department of Chemical System Engineering, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240-8501, Japan

<sup>1</sup> kaminoyama@chemeng.bsk.ynu.ac.jp

アークシージェネレータにて発生した正弦波は、電圧制御電流源にて一定電流に変換された後、電極を介して攪拌槽内に供給される。本システムの供給電流値は10mAである。電極を介して得られる電極間電圧データは、ボルテージバッファを通り、可変増幅器にて適度に増幅された後、ADコンバータを介してパソコンに取り込まれる。なお、電流の供給ないしは電圧を計測する電極の切り替えは、マルチプレクサを用いて行う。

3. 可視化事例

3.1 沈降性固体粒子の懸濁状態

図4には、沈降性固体粒子としてポリスチレンを対象とし、攪拌槽内における同粒子群の分散懸濁状態をトモグラフィー計測するための装置概略を示す。ポリスチレンは直径0.8mmの粒子を用いた。槽径は0.1mであり、攪拌翼には6枚垂直

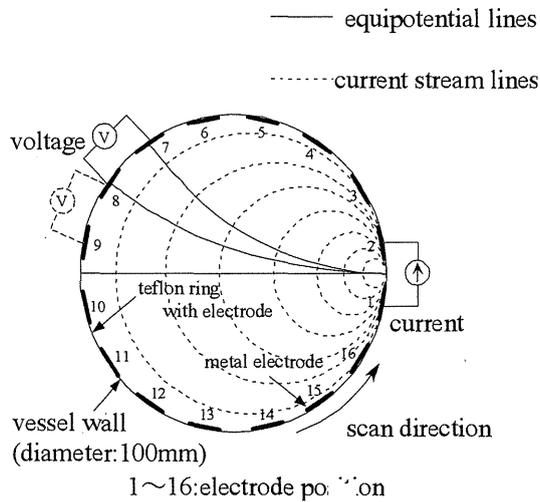


図1 計測断面概略

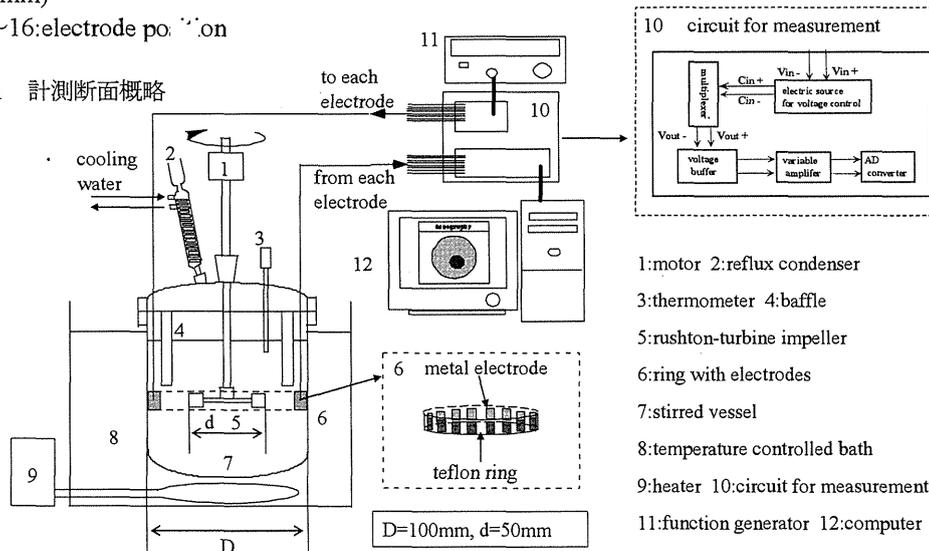


図3 電気抵抗方式トモグラフィー・システム概略

パドルを用い、槽底から2分の1の液深高さにこれを設置している。また軸廻りにおける液自由表面の陥没を防ぐために槽壁に沿って4枚の邪魔板を設置している。槽内には、槽径と同じ高さにまで蒸留水をはり、固体粒子との導電性の差違をより際立たせるために濃度が0.01mol/lとなるよう、KClを添加している。計測用電極は、槽内に上中下の3段とし各段で10mm四方のステンレス製電極を等間隔に16個設置している。

図5には、ポリスチレン濃度を10vol%とし、翼回転数を変化させて攪拌した際の各段におけるトモグラフィー計測画像の結果を示す。同図の縦軸は画像の色濃度の平均値、 $A_{ave}$

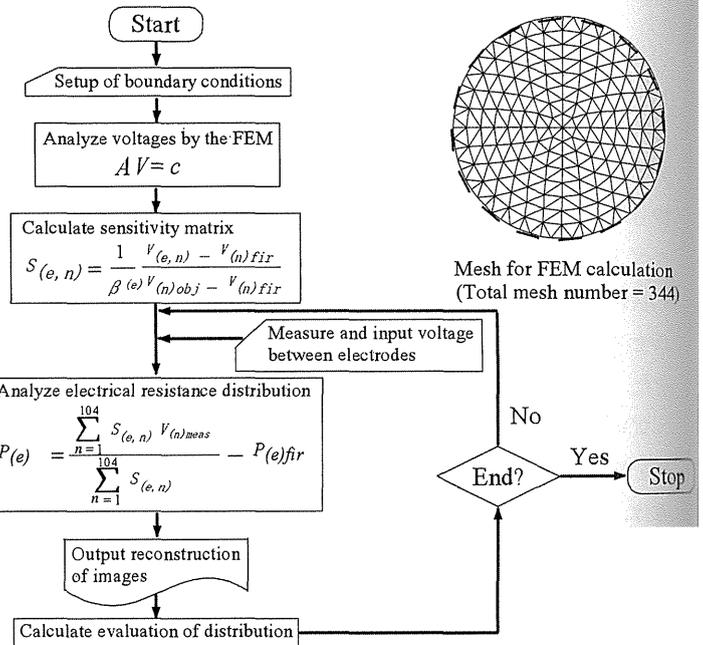


図2 画像再構成のフローチャート

であり、Zは式(4)で定義される色濃度の分散指標の値を示す。

$$Z = (1/n_T) \sum (A_i/A_{ave} - 1.0)^2 \quad (4)$$

同図から各段とも、高回転数になると一定の状態に落ち着くが、攪拌開始時にポリスチレン粒子にすでに覆われていた下段とそのような状況にはなかった中・上段とでは、低回転数領域での挙動が異なっている様子が判る。なお、これら3段での  $A_{ave}$  の値から槽内全体での、分散指標  $A_{ave}^*$  を定義し、槽内が均分散状態となる翼回転数を求め、これとポリスチレン濃度との関係についても検討している。さらには、粒子を沈降性のガラスビーズや浮揚性の合成吸着剤粒子に変えた場合についても同様の計測を行い、ポリスチレン粒子との相違について検討を行っている<sup>6,7)</sup>。また予め校正曲線を求めることにより、図6に示すように、色濃度ではなく、実際の固体粒子の体積濃度として表示することにも成功している。

3.2 非沈降性固体粒子の流動・静止領域の判定

微小固体粒子が高濃度に懸濁した非沈降性スラリーは、ビ

ンガム流体と呼ばれる特異なレオロジー特性を示す。槽内に同スラリーを入れ攪拌する際、攪拌翼の近傍のみでずり流動が生じ、その外側は静止領域となる。流動域の形状が洞穴状になることに因んで同域はカバーンと呼ばれる。槽内を均一に流動・混合させる観点からはこのカバーンの存在は極めて厄介なものとなる。またスラリーが一般に光不透過性であることから、カバーンの形成状態を計測することは重要であるにも拘わらず、非常に困難である。しかしながらカバーンの内外で電気伝導度の値に著しく差が出るように少し工夫を施すことによりこのカバーンの形状・大きさを電気抵抗方式トモグラフィーにより計測することが可能となる。カバーンの内部には流動があり、高電導性の物質を少量添加すれば、カバーン域全体に速やかに行き渡り、カバーン外への染み出しは、拡散のみによるため極めて緩慢であり無視して差し支えないことを利用する。

スラリー系のカバーン計測を行う前段階として、0.4wt%カ

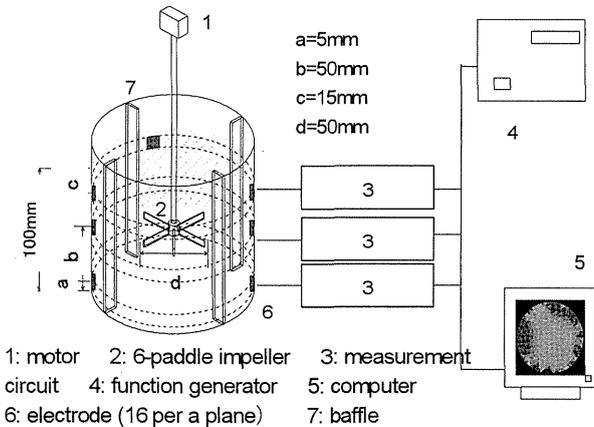


図4 沈降性固体粒子・分散状態の計測装置概略

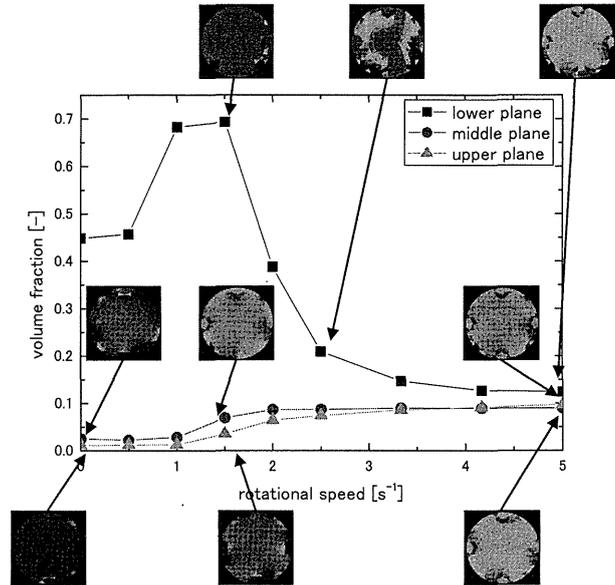


図6 各段におけるトモグラフィー計測画像の体積濃度表示 (10 vol% ポリスチレン粒子)

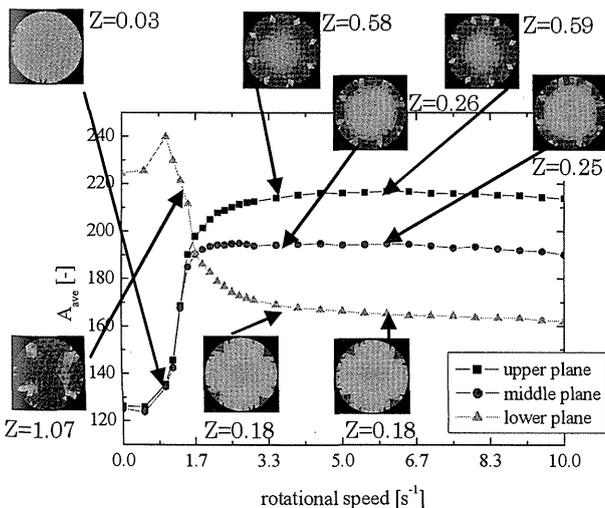


図5 各段におけるトモグラフィー計測画像の色濃度表示 (10 vol% ポリスチレン粒子)

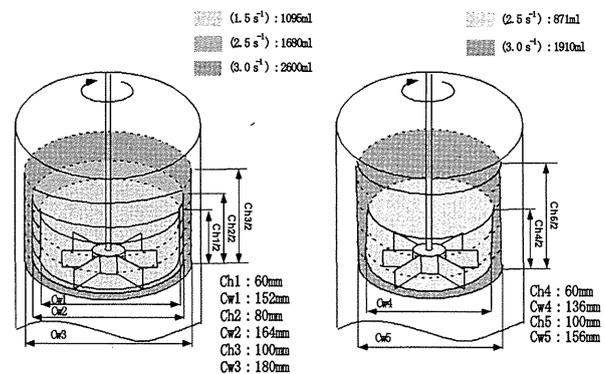


図7 炭酸カルシウム懸濁水における3次元カバーン領域

ルポキシビニルポリマー水溶液を対象とした予備実験を行っている (詳細省略)。同水溶液は、ビンガム的な特性を有し、かつ光透過である稀有な流体である。トモグラフィーの計測結果とこの可視化実験の結果とを対照してカバーンの境界となる色濃度階調を規定した。

図7には、2種の濃度の光不透過性炭酸カルシウム懸濁水を対象として、槽高さ方向に10mm刻みに計測したトモグラフィー画像から予備実験で規定した境界値を基に算出したカバーン領域を3次的に構成した結果を示す。回転数が増大するとともに同領域が拡大すること、高濃度の方がその拡大は緩慢となる様子が判る。これらの結果は、レオロジー特性を Casson モデルで表現した特性値を用いての無次元相関式に纏めており、他の計測手法<sup>9)</sup>での相関式と比較して良好な精度であることを確認している。

以上に述べた結果は、6枚垂直パドル翼を使用しており、カバーンの形状は上下左右に対称であることを前提としていた。傾斜パドル翼を用いた場合には左右は対象であるものの、上下が非対称となる。翼からの噴き出し方向とは逆の上下方

向にカバーンの発達している様子を同計測から確認している。このことは直感には合致しない結果であるが、同翼を用いたカルポキシビニルポリマー水溶液の可視化実験からも裏付けられている。

### 3.3 懸濁重合槽における安定操作領域の推定

汎用的なポリマー製造法である懸濁重合において、反応を良好に進行させ、粒子状のポリマーを得るためには、モノマーおよびポリマー油滴を連続相である水に均一に分散させることが重要である。しかしながら、これまで槽内の流動・分散状態を外部から可視化することが困難であったために、懸濁重合は不安定な操業を余儀なくされることが少なくなかった。著者らはモノマーないしはポリマー液滴の分散相と連続相としての水とが、電気伝導度に大きな差違があることに着目し、同分散状態をトモグラフィー計測する<sup>9)</sup>ことを試みている。

装置は図3に示したものと同一であり、槽径とはほぼ等しい径を持つテフロンリングに10mm四方のステンレス電極を等間隔に16個設置している。モノマーにはスチレンを用

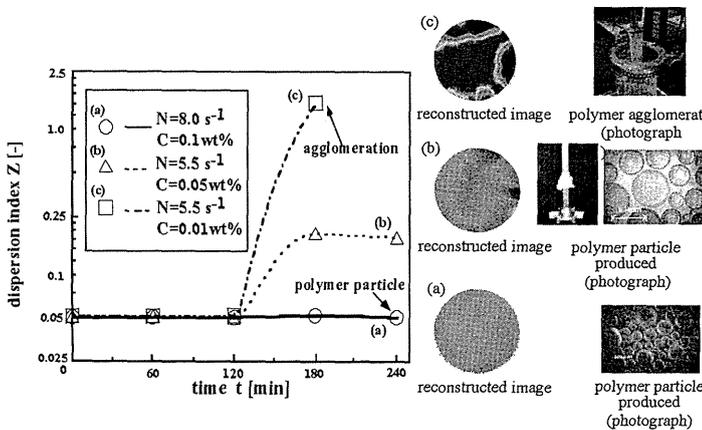


図8 懸濁重合反応における分散指標の経時変化とトモグラフィー画像

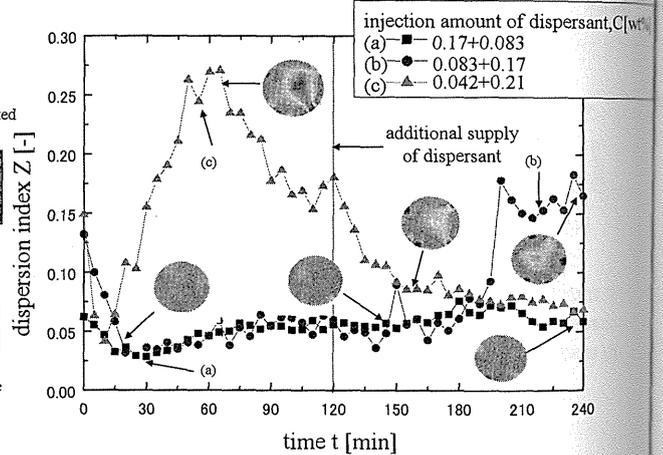


図10 分散剤投入量を変化させた場合の分散指標の経時変化

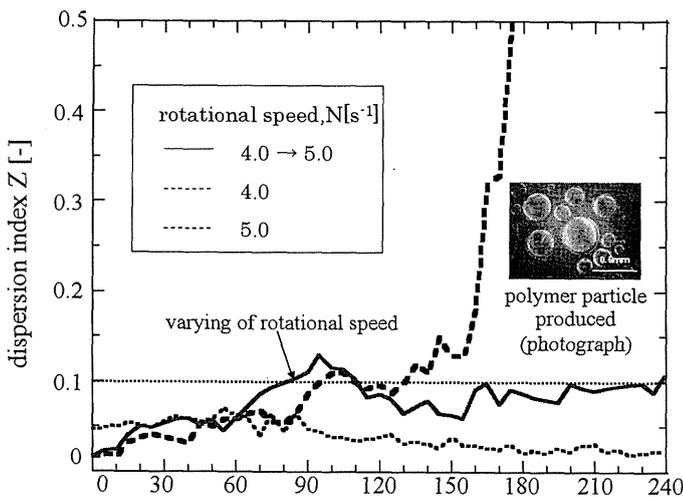


図9 翼回転数を変化させた場合の分散指標の経時変化

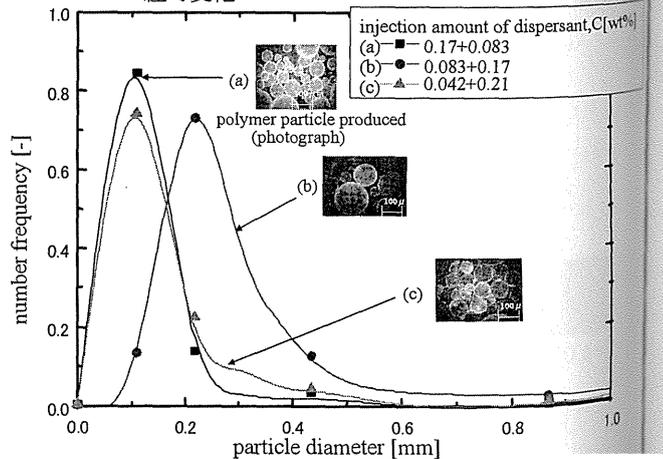


図11 生成ポリマー粒子の粒度分布 (a,b,c は図10のケースに対応)

いた。手始めとしてスチレンを投入した時点である反応開始直後の槽内の状況を、槽高さ方向3点でトモグラフィ計測し、翼回転数との対応を検討した。回転数が低い場合には、槽上部にモノマーが集中しており、槽下部には、モノマーが存在しない状況であり、翼回転数が増大するに連れてこの状況は改善された。回転数が $4.5\text{s}^{-1}$ となって初めてモノマーが槽内全域にほぼ均一に分散するようになることをトモグラフィ画像からも確認した。実際に反応を遂行したところ、これ以上の回転でなければ粒子状のポリマーを得ることはできなかった。

以上の結果は、反応の開始時点におけるトモグラフィ計測の結果を基にしたものであった。

図8には、種々の操作条件での、反応過程における1時間ごとのトモグラフィ計測の結果を分散指標 $Z$ の値とトモグラフィ画像にて示す。同図から、翼回転数 $N$ および分散剤濃度 $C$ とも充分である場合には、反応の初期から終盤に至るまで、分散状態は均一であり、得られたポリマーの性状も良好であることが判る。翼回転数および分散剤濃度ともに低下させると、反応の中盤以降で槽内のモノマー濃度は低下している様子が判る。これは翼近傍に凝集塊が生成したためであり、得られたポリマーも先のもとと比較して粒径が不揃いであることが判る。さらに両操作条件を劣悪なものにすると反応の後期でバツフルに凝集塊が発生し、それ以降のトモグラフィ計測は不能となるとともに、粒子状のポリマーを得ることはできなかった。以上のことから、凝集塊が発生してからでは反応を安定な状態に戻すことは困難であるが、その予兆を捉えて操作条件を変更することにより、これが可能となることが示唆されている。

#### 3.4 懸濁重合槽における操作条件と製品品質

前節に述べたように、操作条件である翼回転数 $N$ と分散剤濃度 $C$ を反応の途中で変化させることにより反応を良好に遂行し、さらには良質な製品を得ることが可能となる見通しを得た。このためにはこれまでに述べた間歇的な計測ではなく、反応を連続的にトモグラフィ計測し、槽内の状況を常時モニタリングする<sup>10,11)</sup>ことが不可欠となる。一番の障害であったのは、反応中に金属電極が油膜に覆われてしまい、計測を続行することができなくなることであった。ステンレス電極からタンタル電極に変える<sup>12)</sup>ことでこの困難を克服している。

図9には、翼回転数による反応状態の制御の1例を示す。回転数が $4.0\text{s}^{-1}$ であるために、槽内の分散状態が不良となり、反応の中盤で凝集塊が発生する様子を示している。また、同回転数で反応を開始するが、連続計測により槽内の状況を把握し、分散状態が不良となる状況を、色濃度の分散値として指標化した $Z$ の値から検知し、これがある値を超え

た時点で、回転数を $5.0\text{s}^{-1}$ に増大させることにより、最終的に粒状のポリマーを得た反応例を示している。

もう1つの操作条件として、分散剤を途中添加することにより、反応を安定に進行させるとともに、同条件が製品ポリマーの粒径分布に及ぼす影響について検討した。

図10には、種々の追加添加条件における色濃度の分散値の経時変下を示す。分散剤を途中添加することにより、不安定化した懸濁重合が、再び安定化している様子が判る。また図11には、各条件に対応した、得られたポリマー粒子の粒径分布を示す。図10, 11から反応の後期における指標値が低いことと、製品ポリマー粒径のばらつきが小さいことに相関のあることが窺える。現在、両操作条件をよりきめ細かく変化させることで、分散剤量をなるべく少なくし、粒径分布の揃った製品を得るための検討を重ねている<sup>13)</sup>。

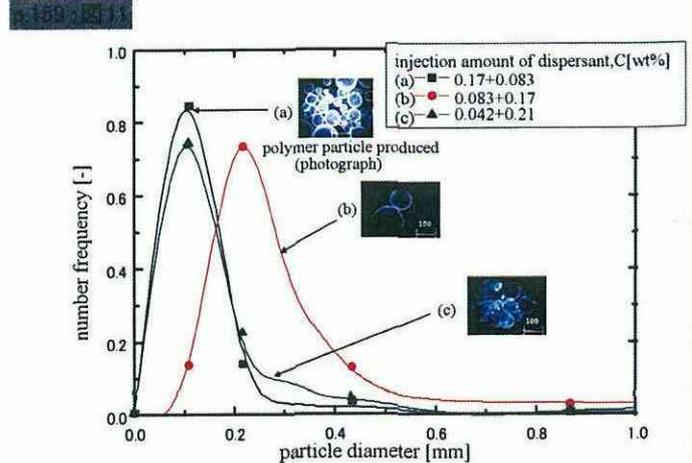
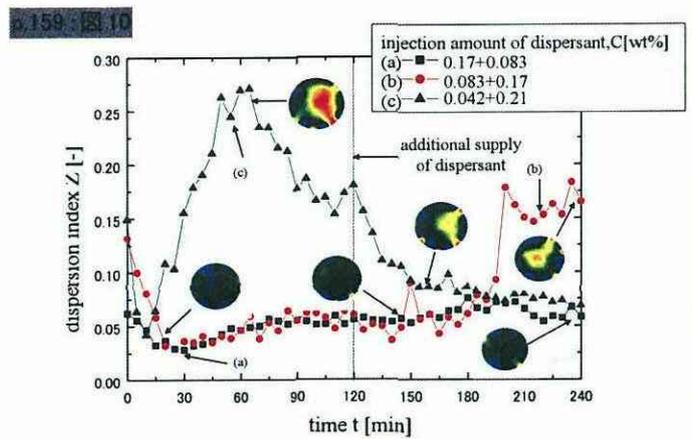
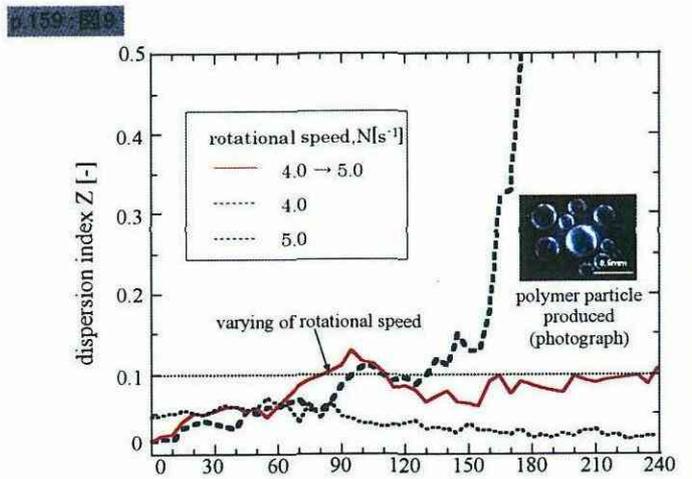
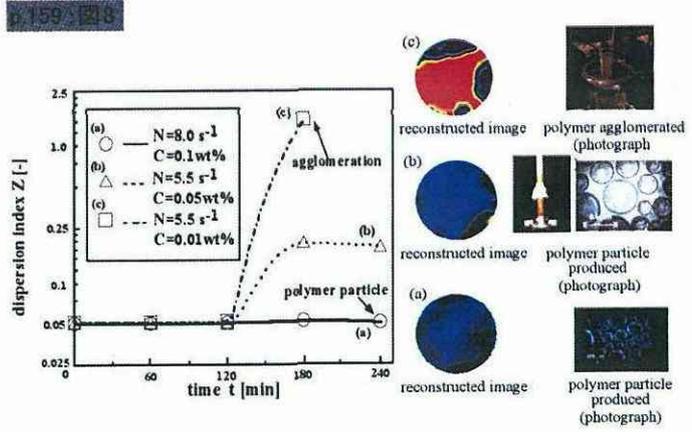
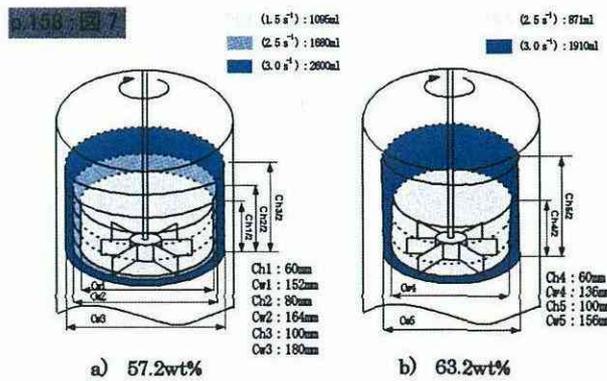
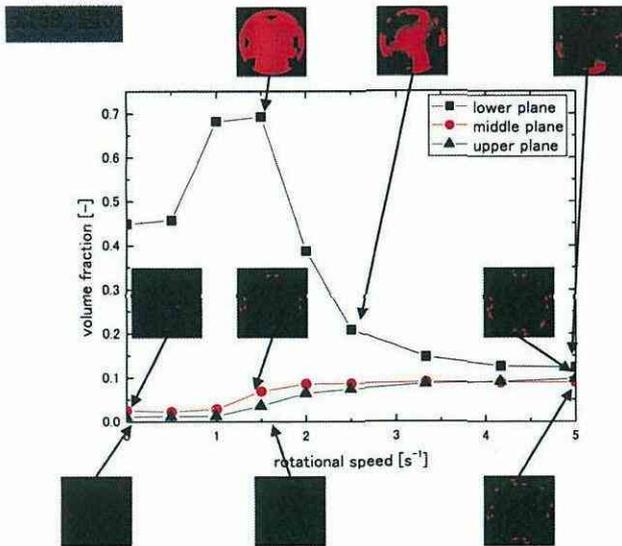
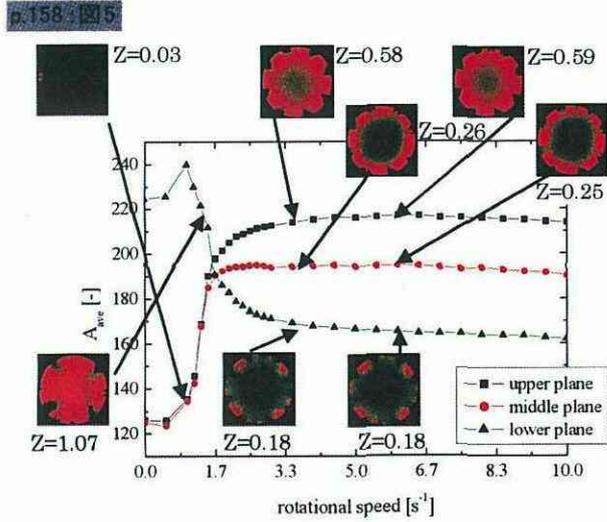
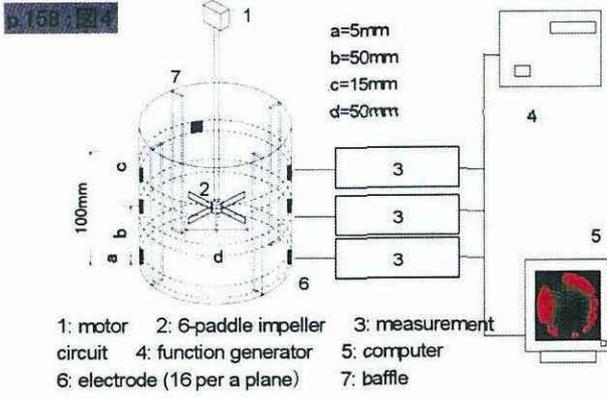
#### 4. 結言

電気抵抗トモグラフィ計測を攪拌槽における2, 3の固液系ないしは液液系に適用し、槽内の分散状態を把握し、懸濁重合の反応状況の制御にも繋げる手法とその結果の事例を紹介した。同計測手法が、化学装置内の流動・分散・反応状態を可視化し、その現象を解明するとともに、同現象に起因する諸問題を改善する身近なツールとして定着されていくことを期待したい。

#### 参考文献

- 1) R. S. Williams, M. S. Beck: *Process Tomography - Principles, Techniques and Applications*-, Butterworth-Heinemann Ltd, Oxford (1995)
- 2) F. J. Dickin, R. A. Williams, M.S. Beck: *Chemical Engineering Science* **48** (1993) 1883
- 3) C. J. Kotre: *Phys. Meas.* **A15** (1994) 125
- 4) F. Dickin, M. Wang: *Meas. Sci. Technol.* **7** (1996) 247
- 5) Y. Ma, H. Wang, L.A. Xu, C. Jiang: *Chemical Engineering Science* **52** (1997) 2197
- 6) M. Kaminoyama, K. Nishi, R. Misumi, S. Taguchi: *Procs. 4<sup>th</sup> of World Congress on Industrial Process Tomography, Aizu (Japan)* (2005) 922
- 7) M. Kaminoyama, K. Nishi, R. Misumi, A. Tagawa, *First Sino-Japanese Conference on Polymerization Reaction Engineering and Mixing Technology (SJCPM), Shanghai (China)* (2005) 158
- 8) 上野満雄、上ノ山周、仁志和彦、水島彩子: *化学工学論文集* **26** (2000) 669
- 9) M. Kaminoyama, K. Nishi, M. Kamiwano: *Procs. of Nihon Konsouryugakkai Nennkai-Kouenkai. International Session on Tomography, OS-1, B19* (2001)
- 10) M. Kaminoyama, S. Taguchi, R. Misumi, K. Nishi: *Procs. of 5th International Symposium on Mixing in Industrial Processes, Sevilla (Spain)* (2004)
- 11) M. Kaminoyama, S. Taguchi, R. Misumi and K. Nishi, *Chemical Engineering Science*, **60** (2005) 5513
- 12) 上ノ山周、仁志和彦、三角隆太、大森輝繁: 特願 2004-145890
- 13) M. Kaminoyama, K. Nishi, R. Misumi, S. Taguchi: *Procs. of 4<sup>th</sup> World Congress on Industrial Process Tomography Aizu (Japan)* (2005) 800

特集：トモグラフィー カラー口絵



# 液液系攪拌槽における液滴分散挙動に及ぼす分散相濃度の影響

(横国大院工)○(学)藤嶋莉恵子・(正)三角隆太・(正)仁志和彦・(正)上ノ山周\*

はじめに 懸濁重合操作において、分散剤濃度や分散相濃度は分散相滴径に大きな影響を及ぼすものとされている<sup>1)</sup>。当研究室では懸濁重合場合を想定し、水-スチレン系を対象として分散剤濃度が液滴分散挙動に及ぼす影響を考慮した分散速度式を構築している<sup>2)</sup>。本研究では水-スチレン系を対象とし、種々の翼回転数および分散相濃度での分散実験を行った。同実験結果に基づき、分散相濃度が液滴の分散挙動に及ぼす影響を検討した。

**1.実験装置および方法** 図1に実験装置概略を示す。また、装置寸法および実験条件を表1に示す。翼回転数は $3.0 \sim 4.0 \text{ s}^{-1}$ とし、分散相濃度は槽体積の $0.5 \sim 5 \text{ vol}\%$ とした。分散開始後一定時間毎に翼吐出部より液滴を吸引し、高速度CCDカメラ(株ナック)により撮影した。分散相濃度が高い場合は、吸引時に液滴吸引管の枝管に連続相を注入し混合液を希釈することにより、画像上の液滴の重なりを解消した。撮影画像(図1中付図参照)を解析<sup>2)</sup>することで液滴径を測定し、体面積平均径 $d_{32}$ を算出した。

**2.実験結果および考察** 図2に $d_{32}$ の経時変化の一例を示す。同図に示されるように、 $d_{32}$ の経時変化は分散初期(1~20min)において急峻であり、分散進行に伴い緩やかになるが、安定した $d_{32}$ は分散相濃度の増加に伴い大液滴側に移行していることが判る。

図3,4に $d_{32}$ の変化が急峻である分散初期における $d_{32}$ の経時変化を、種々の分散条件について両対数グラフ上に示す。いずれの条件においても、 $d_{32}$ は直線的に変化することが判る。

図3は $n=4.0 \text{ s}^{-1}$ において分散相濃度を変化させた結果である。同図より、分散相濃度の増加に伴い各測定時刻の $d_{32}$ は大液滴側に移行し、その経時変化はほぼ同じ傾きを示すことが判った。

図4は $\phi=0.5 \text{ vol}\%$ において翼回転数を変化させた結果である。同図には比較のために分散剤としてトデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム(DBS)添加時の結果<sup>2)</sup>を併せて示す。同図より、DBSを添加しない場合は翼回転数の増加に伴い $d_{32}$ は小液滴側に移行し、その経時変化の傾きは翼回転数によらずほぼ等しいことが判った。また、同じ翼回転数ではDBS添加により $d_{32}$ は小液滴側に移行し、その経時変化の傾きは大きくなる<sup>2)</sup>ことが判った。本実験結果に基づき(1)式に示す分散速度式<sup>2)</sup>中の定数 $\alpha, k$ を算出した。

$$\frac{dd_{32}}{dt} = -kd_{32}^{\alpha} \quad (1)$$

$\alpha$ は $d_{32}$ の経時変化の傾きより求め、 $k$ は切片より求められる。DBSを添加しないいずれの条件においても傾きは等しいとし、得られた $\alpha$ の値は8.26であった。なお、DBS添加時の $\alpha$ の値は6.56である<sup>2)</sup>。算出した $k$ の値より求めた $k$ と翼回転数および分散相濃度の関係を(2)式に示す。

$$k = 1.03 \times 10^{14} n^{12} \phi^{-1.1} \quad (2)$$

今後は高分散相濃度条件下において翼回転数および分散剤濃度を変えた分散実験を行うことで、分散相濃度の影響を考慮した分散速度式を構築する予定である。

**むすびに** 懸濁重合場合を想定し、翼回転数および分散相濃度を変化させ液滴分散挙動の検討を行った。分散実験結果より $d_{32}$ の経時変化は両対数グラフ上で直線的に整理できることが判った。直線の傾きがほぼ等しいことより分散速度式中の定数 $\alpha$ は一定であるとして、種々の条件における $k$ を算出した。得られた $k$ について翼回転数および分散相濃度により相関できる見通しを得た。

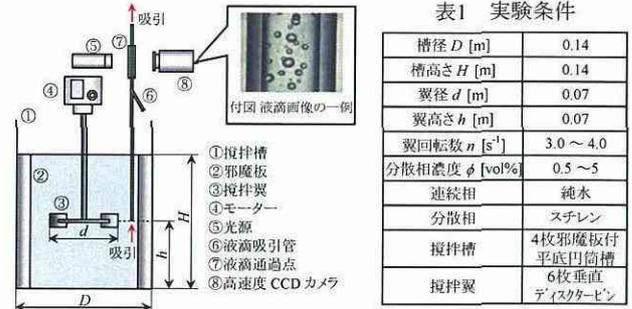


表1 実験条件

槽径 $D$ [m]	0.14
槽高さ $H$ [m]	0.14
翼径 $d$ [m]	0.07
翼高さ $h$ [m]	0.07
翼回転数 $n$ [ $\text{s}^{-1}$ ]	$3.0 \sim 4.0$
分散相濃度 $\phi$ [vol%]	$0.5 \sim 5$
連続相	純水
分散相	スチレン
攪拌槽	4枚羽板付 平底円筒槽
攪拌翼	6枚垂直 ディスクタービン

図1 実験装置概略

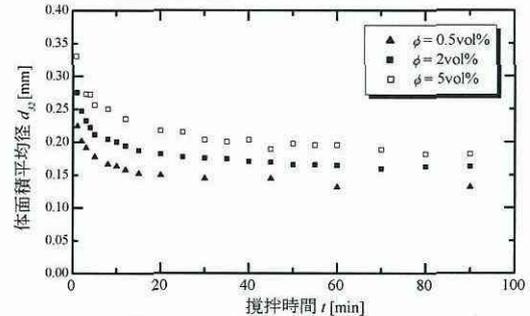


図2  $d_{32}$ の経時変化の一例( $n = 4.0 \text{ s}^{-1}$ )

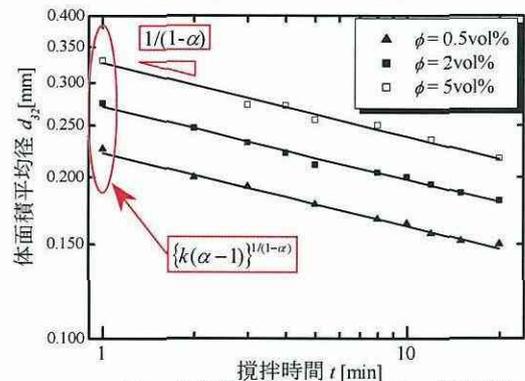


図3 各分散相濃度における $d_{32}$ の経時変化

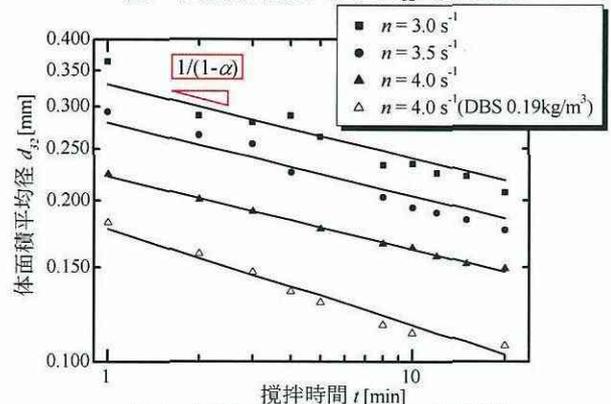


図4 各翼回転数における $d_{32}$ の経時変化

謝辞 本研究の一部は文部科学省科研費(No.18560731)の援助を受けて行われた。記して謝意を表す。

**【使用記号】**

$D$ : 槽径[m],  $d$ : 翼径[m],  $d_{32}$ : 体面積平均径[mm],  $H$ : 槽高さ[m],  $h$ : 翼高さ[m],  $k$ : 分散速度定数[ $\text{m}^{(1-\alpha)} \cdot \text{s}^{-1}$ ],  $n$ : 翼回転数[ $\text{s}^{-1}$ ],  $t$ : 攪拌時間[min],  $\alpha$ : 分散速度のべき数[-],  $\phi$ : 分散相濃度[vol%]

**【参考文献】**

1) 上ノ山, 仁志, 三角, 金谷, 大手: 化学工学会神奈川大会要旨集A119(2001)  
2) 藤嶋, 三角, 仁志, 上ノ山: 化学工学会第71年会要旨集J207(2006)

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

# 電気抵抗トモグラフィー手法を用いた気-液系攪拌槽における分散状態の計測

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

はじめに 気-液系攪拌槽内の分散状態を計測することは通気時の攪拌所要動力さらには気-液間物質移動容量係数の推算において重要である。

本研究では異相系攪拌槽内の分散状態を断面計測することが可能である電気抵抗トモグラフィー<sup>1,2)</sup>を用いて、気-液系攪拌槽内における気泡の分散状態を計測した。同計測結果から槽内のボイド率の分布と通気、無通気時の動力比との相関について検討を行い、以下の知見を得たので報告する。

**1. 実験装置および方法** 図1に実験装置概略図を示し、表1には実験条件を示した。攪拌槽には5断面の槽壁にそれぞれ16個の電極を設置したアクリル製円筒平底槽を用い、攪拌翼には6枚垂直タービン翼を用いた。実験は操作条件として翼回転数、ガス通気量を変化させ、各断面におけるボイド率を測定した。

**2. 実験結果および考察** 図2にガス通気量が  $1.17 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$  (空塔速度  $3.7 \times 10^{-3} \text{ m/s}$ ) 時の翼回転数による各測定断面のボイド率の変化およびトモグラフィー画像の一例を示した。同図より、翼回転数が増加するにつれ各測定断面のボイド率が増加し、槽内全域の分散状況が良好になることが判る。同図トモグラフィー画像より、高回転数域において翼周辺のボイド率が高くなること判る。

図3には翼回転数による槽全体のボイド率の変化、図4には翼回転数による翼周辺のボイド率 ( $\phi_{\text{imp}}$ ) の変化を示した。図3、図4より、槽全体のボイド率の変化は通気支配場であるフラッディング状態、攪拌支配場であるローディング状態にかかわらず単調に増加しているが、翼周辺のボイド率はフラッディング状態とローディング状態で変化が異なることが判る。

図5には翼回転数による動力比の変化を示した。同図より、翼回転数による動力比の変化はフラッディング状態とローディング状態とで異なる。この傾向は図4で考察した翼周辺のボイド率と関連があるものと考えられる。

そこで、図6に翼周辺のボイド率と動力比の関係を示した。同図より、翼周辺のボイド率による動力比の変化は、ガス流量、フラッディング状態、ローディング状態にかかわらず一本に纏まることが判る。以上の結果より、動力比について (1) 式に示す相関式を得た。

$$P_G/P_0 = 0.17\phi_{\text{imp}}^{-0.44} \quad (1)$$

今後は  $\phi_{\text{imp}}$  の相関式について検討を行う予定である。

**むすびに** 電気抵抗トモグラフィーを用いて気-液系攪拌槽内における気泡の分散状態を計測した。同計測結果に基づき翼周辺のボイド率と動力比の相関式を構築した。

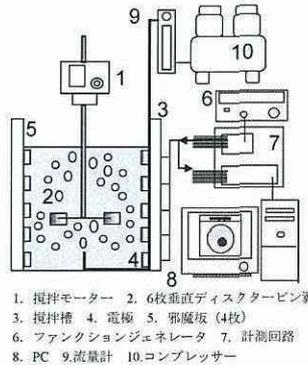


図1 実験装置概略図

表1 実験条件

攪拌液	イオン交換水	6.2
導電性物質	塩化カリウム [mol/l]	$1.0 \times 10^{-2}$
液粘度 [Pa·s]		$9.8 \times 10^{-4}$
ガス通気量 [m <sup>3</sup> /s]		$8.3 \times 10^{-5}$ $\sim 1.8 \times 10^{-4}$
翼回転数 [s <sup>-1</sup> ]		0.0~7.5

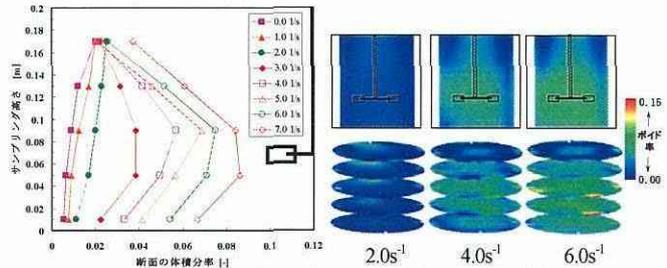


図2 ボイド率の変化およびトモグラフィー画像の一例

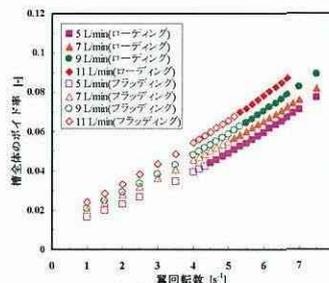


図3 翼回転数による槽全体ボイド率の変化

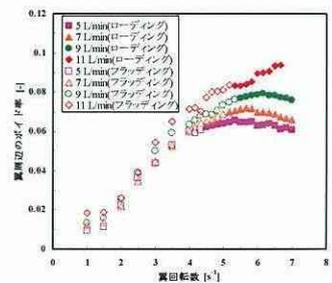


図4 翼回転数による翼周辺ボイド率の変化

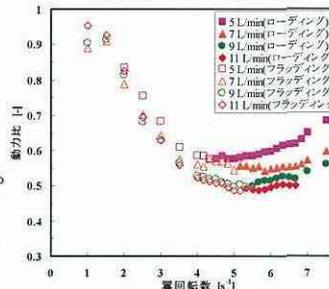


図5 翼回転数による動力比の変化

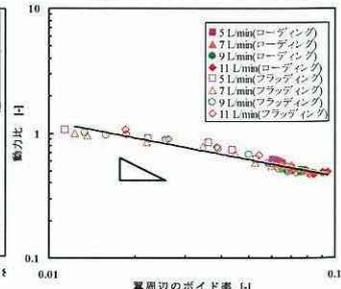


図6 翼周辺ボイド率と動力比の関係

【謝辞】 本研究の一部は文部科学省科研費(No. 18560731)の援助を受けて行われた。記して謝意を表す。

【使用記号】  $P_G$ : 通気時の動力[W]  $P_0$ : 無通気時の動力[W]  $\phi_{\text{imp}}$ : 翼周辺のボイド率[-]

【参考文献】 1) M.Wang, A.Dorward, D.Vlaev, R.Mann; Measurements of gas-liquid mixing in a stirred vessel using electrical resistance tomography, Chem. Eng. Journal, 77, 93-98(2000)  
2) M.Kaminoyama, S.Taguchi, R.Misumi, K.Nishi; Monitoring stability of reaction and dispersion states in a suspension polymerization reactor using electrical resistance tomography measurements, Chem. Eng. Sci., 60, 5513-5518(2005)

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

# トモグラフィー計測による翼周辺ボイド率を用いた 高粘度通気攪拌槽内の動力相関の検討

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

**はじめに** 培養プロセスや排水処理プロセスにおいて高粘度液中の気-液間物質移動容量係数 $k_{La}$ の推算が求められている。この $k_{La}$ の推算においては通気時の攪拌所要動力が重要となる。

本研究では気-液系攪拌槽内のボイド率を断面計測することが可能な電気抵抗トモグラフィ<sup>1,2)</sup>を用いて高粘度通気攪拌槽内における気泡の分散状態を計測した。通気攪拌所要動力に強く影響を及ぼす翼周辺ボイド率<sup>3)</sup>を同計測結果から算出し、通気、無通気時の動力比との相関について検討を行い、以下の知見を得たので報告する。

**1. 実験装置および方法** 図1に実験装置概略を示し、表1には実験条件を示した。攪拌槽には5断面の槽壁にそれぞれ16個の電極を設置したアクリル製円筒平底槽を用い、攪拌翼には6枚垂直タービン翼を用いた。空気は高粘度場において気泡の分散を良好にするためにリングスパージャを介して槽内に供給した。実験は操作条件として翼回転数、ガス通気量を変化させ、各断面におけるボイド率を測定した。

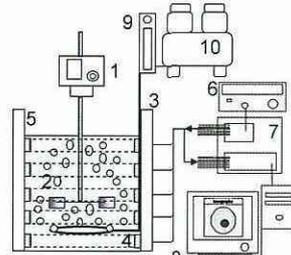
**2. 実験結果および考察** 図2には液粘度が気泡の分散状態に与える影響をトモグラフィー画像で示した。また同図にはトモグラフィー計測より算出した槽全体のボイド率、 $\phi_{tot}$ [-]を同時に示した。同図より液粘度が増加すると槽内のボイド率は上部と下部が低くなり、槽全体のボイド率も低くなるのが判る。また槽内のボイド率分布は粘度によらず翼回転数が増加するにつれ各計測断面のボイド率が高くなり、高回転数域では特に翼周辺のボイド率が高くなるのが判る。

図3には液粘度が翼周辺のボイド率、 $\phi_{imp}$ [-]に与える影響を、図4には液粘度が動力比に与える影響を示した。両図より液粘度が高くなると翼周辺のボイド率は高くなり、動力比は低くなるのが判る。この翼周辺のボイド率の傾向は前述の槽全体のボイド率の傾向と異なる。また液粘度が変化しても翼周辺のボイド率と動力比は通気支配場であるフラッディング状態(F)と攪拌支配場であるローディング状態(L)とで変化が異なる。さらに翼周辺のボイド率と動力比には負の相関がみられる。

図5に翼周辺のボイド率と動力比の関係を示した。また同図には当研究室で行ってきた単孔ノズルを用いた結果<sup>3)</sup>を同時に示した。同図より高粘度通気攪拌槽において翼周辺のボイド率と動力比の関係は液粘度、ガス流量、フラッディング状態、ローディング状態、通気方法にかかわらず一本に纏まることが判る。以上の結果より、動力比について(1)式に示す相関式を得た。

$$P_G/P_0 = 0.21\phi_{imp}^{-0.34} \quad (0.01 \leq \phi_{imp} \leq 0.1) \quad (1)$$

今後は $k_{La}$ の推算およびスケールアップの検討を行う。  
**むすびに** トモグラフィー計測法を用いて高粘度通気攪拌槽内における気泡の分散状態を計測した。同計測結果に基づき翼周辺のボイド率と動力比の相関式を構築した。



1. 攪拌モータ 2. 6枚垂直ディスクタービン翼  
3. 攪拌槽 4. 電極 5. 邪魔板 (4枚)  
6. ファンクションジェネレータ 7. 計測回路  
8. PC 9.流量計 10.コンプレッサ

表1 実験条件

攪拌液	水
40wt%グリセリン水溶液	60wt%グリセリン水溶液
導電性塩化カリウム物質 [g]	4.6~28.3
液粘度 [Pa·s] (20°C)	$1.0 \times 10^{-3} \sim 1.1 \times 10^{-2}$
ガス通気量 [m <sup>3</sup> /s]	$8.3 \times 10^{-5} \sim 1.8 \times 10^{-4}$
空塔速度 [m/s]	$2.6 \times 10^{-2} \sim 5.7 \times 10^{-2}$
翼回転数 [s <sup>-1</sup> ]	0.0~7.5

図1 実験装置概略

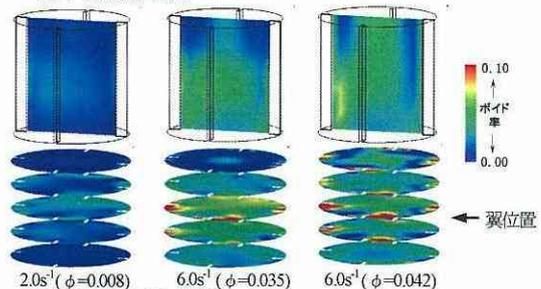


図2 液粘度が気泡の分散状態に与える影響

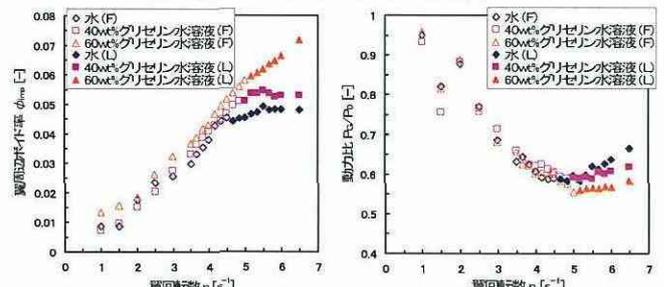


図3 液粘度が翼周辺ボイド率に与える影響 図4 液粘度が動力比に与える影響

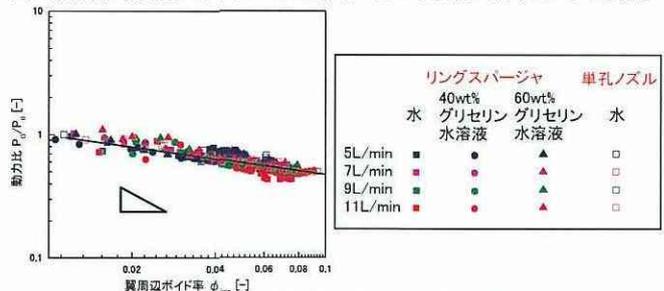


図5 翼周辺ボイド率と動力比の関係

【謝辞】本研究の一部は文部科学省科研費(No. 18560731)の援助を受けて行われた。記して謝意を表す。

【使用記号】  $P_G$ : 通気時の動力[W]  $P_0$ : 無通気時の動力[W]  $\phi_{imp}$ : 翼周辺のボイド率[-]

$\phi_{tot}$ : 槽全体のボイド率[-]

【参考文献】 1) M. Wang, A. Dorward, D. Vlaev, R. Mann; Chem. Eng. Journal, 77, 93-98(2000)

2) M. Kaminoyama, S. Taguchi, R. Misumi, K. Nishi; Chem. Eng. Sci., 60, 5513-5518(2005)

3) 田河, 三角, 仁志, 上ノ山; 化学工学会第38 回秋季大会, E206(2006)

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

## Measurement of Liquid-Liquid Dispersion Phenomena in a Stirred Vessel using Electrical Resistance Tomography

M. Kaminoyama<sup>1,\*</sup>, K. Nishi<sup>1</sup>, R. Misumi<sup>1</sup>, A. Tagawa<sup>2</sup>

<sup>1</sup>. Department of Materials Sciences and Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai Hodogaya-ku Yokohama-shi 240-8501 JAPAN

<sup>2</sup>. Department of Materials Sciences and Chemical Engineering, Graduate School of Engineering, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai Hodogaya-ku Yokohama-shi 240-8501 JAPAN

\*. Tel and Fax: 81-45-339-3999, \*E-mail: [kamin@ynu.ac](mailto:kamin@ynu.ac)

### ABSTRACT

*The liquid-liquid dispersion phenomena, including phase separation and phase inversion, in a stirred vessel are very complicated and crucial to suspension polymerization, as well as to emulsion polymerization. Many studies of these phenomena have been reported, but the visualization methods usually used, such as sampling or single point measurements, are unsatisfactory, and the understanding of these phenomena has been inadequate. On the other hand, the electrical resistance tomography technique makes it possible to obtain abundant information on multiphase phenomena in a stirred vessel in a non-intrusive and cross-sectional way. The electrical resistance tomography technique was, therefore, applied to a stirred vessel to observe the dispersion of a liquid into another immiscible liquid system. Firstly, the relation between the oil droplet dispersion process and the operating conditions of the mixing in a styrene-water system in a stirred vessel was investigated to obtain the equation regarding the stable dispersion time. Subsequently, a phase inversion phenomenon was observed in the styrene-water system in a stirred vessel using electrical resistance tomography. It was found that the phase inversion phenomenon occurred over a very short time and that the phenomenon proceeded in such a way that the volumetric fraction of the water phase became larger in the vicinity of the vessel wall, and then, the water phase entered into the center of the vessel.*

**Keywords** Dispersion State, Phase Inversion, Liquid-Liquid Systems, Stirred Vessel, Electric Resistance Tomography

### 1 INTRODUCTION

The liquid-liquid dispersion phenomena, including phase separation and phase inversion, in a stirred vessel are very complicated and are very crucial to suspension polymerization, as well as to emulsion polymerization. Many studies of these phenomena have been reported (Tidhar et al., 1986; Pacek et al., 1994; Liu et al., 2005; Hu et al., 2005) but the visualization methods usually used, such as sampling or single point measurements, were unsatisfactory, and the understanding of these phenomena has been inadequate. On the other hand, the electrical resistance tomography technique makes it possible to obtain abundant information on multiphase phenomena in a stirred vessel in a non-intrusive and cross-sectional way (Mann and Wang, 1997; Holden et al., 1998; Kaminoyama et al., 2005). Electrical resistance tomography was, therefore, applied to a stirred vessel to observe the dispersion of a liquid into another immiscible liquid system. Firstly, the relation between the oil droplet dispersion process and the operating conditions of the mixing in a styrene-water system in a stirred vessel was investigated. Subsequently, a phase inversion phenomenon was observed in the styrene-water system in a stirred vessel using electrical resistance tomography.

### 2 MEASUREMENT PRINCIPLE

Figure 1 shows the schematic diagram of the cross section for the measurements in a stirred vessel. Sixteen electrodes were set at equal intervals along the inner vessel wall. Firstly, the voltage was measured between the electrodes in the horizontal cross section. The adjacent method was adopted, i.e., sending a constant electrical current through a pair of adjacent electrodes, for the voltage measurement. The measurement number repeated was, therefore, 104, from the equation,  $n_e(n_e - 3)/2$ , where  $n_e$  is the number of electrodes, i.e., 16 in this study. The backprojection method, which uses a sensitivity matrix,  $S(e, n)$  (Kaminoyama et al., 2005), was adopted. The percentage change in resistivity distribution in the section,  $P(e)$ , corresponding to the dispersion state of the oil phase was

graphically reconstructed, with  $S(e, n)$  mentioned above and the boundary conditions based on the voltages measured,  $V(n)_{meas}$ . After that, the resistivity at each element in the horizontal cross section was calculated based on the result of  $P(e)$ . The obtained resistivities were converted into the fractions of the dispersed oil phase based on the calibration curve prepared beforehand.

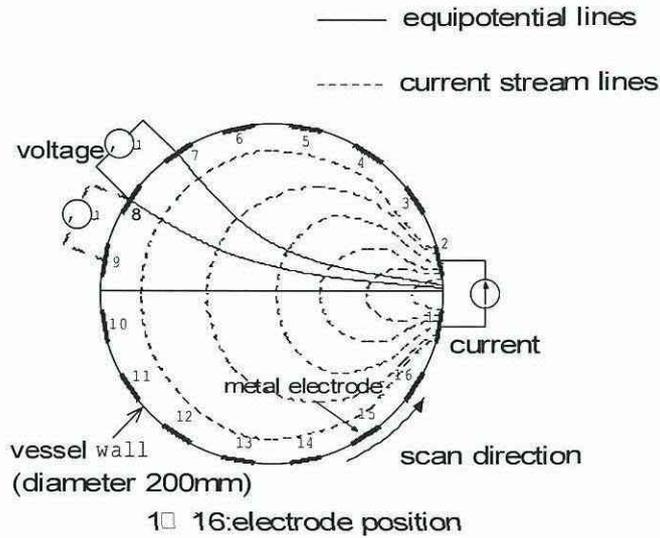


Figure 1: Schematic diagram of cross section for measurement

### 3 OIL DROPLET DISPERSION PROCESS

#### 3.1 Experimental Apparatus and Operating Conditions

Figure 2 shows a schematic diagram of experimental apparatus. A glass vessel with a flat bottom, with a diameter of 85 mm and a total volume of 600 ml, was used. It was fitted with a stainless steel, 6-blade, paddle impeller, 50 mm in diameter, installed in the center of the liquid height; 4 baffle plates; and 3 stages of stainless steel electrodes, from the vessel bottom to the liquid surface. Each stage comprised 16 electrodes at equal intervals along the inner vessel wall in order to obtain a horizontal tomography image. Table 1 shows the experimental conditions in this study. The liquids used were deionized water, as the continuous phase, and styrene, as the dispersed oil phase. Potassium chloride, KCl, was injected in order to magnify the difference in electrical conductivity between the stirred liquids. The measurements were made at about 5.0 sec after the start of the stirring. The operating conditions, i.e., the rotational speed of the impeller,  $n$ , and total fraction of dispersion oil,  $\varphi_T$ , were varied.

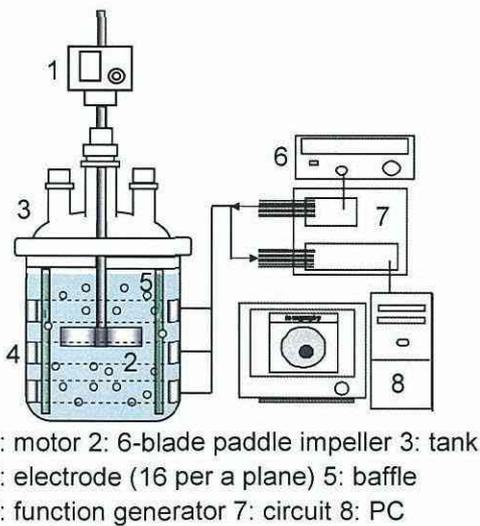


Fig. 2 Schematic diagram of experimental apparatus

Continuous Phase	Deionized water
Dispersed Phase	Styrene
Total Volume [ml]	600
Conductive Agent	KCl [g]
	0.43
Total Fraction of Dispersion oil $\varphi_T$ [vol%]	5, 10
Rotational Speed of impeller $n$ [s <sup>-1</sup> ]	4.17 □ 6.25

Table 1: Experimental conditions for dispersion process

### 3.2 Results and Discussion

Figure 3 shows the dynamic changes in the volumetric fraction of the dispersed oil phase,  $\varphi$ , and the tomography images (tomograms) at each measuring cross section, upper; centre; and lower stage, at  $n = 5.83\text{s}^{-1}$  and  $\varphi_T=5\text{vol}\%$ . The blue color in the tomograms indicates pure water, and the change from green color to red corresponds to an increase in the fraction of styrene. It was found that the volumetric oil phase fractions of each stage converged to a certain constant value, nearly equal to the total fraction of dispersion oil,  $\varphi_T$ . There were some peaks in the dynamic changes at the upper and the centre stage, corresponding to the vertical circulation of the styrene phase. It was ascertained, using tracer particles, that the time intervals between the adjacent peaks were nearly equal to the experimental values of the circulation time. On the other hand, the dynamic change of  $\varphi$  at the lower stage was rather small. This is attributable to the observation that the small oil droplets entered the stage gradually. The tomograms in the figure demonstrate two other observations, that the styrene entered from the upper to the center stage at 1.0 sec after the start of stirring and that the styrene dispersed throughout the vessel. Figure 4 shows the dynamic changes of the volumetric fraction of the dispersed oil phase,  $\varphi$ , at each stage at  $n = 4.17\text{s}^{-1}$ , slower than that in Figure 3. The value of  $\varphi$  at the upper stage was higher than the values of  $\varphi$  at the other two stages, and the values of  $\varphi$  at the three stages did not converge to a certain constant value at the impeller rotational speed.

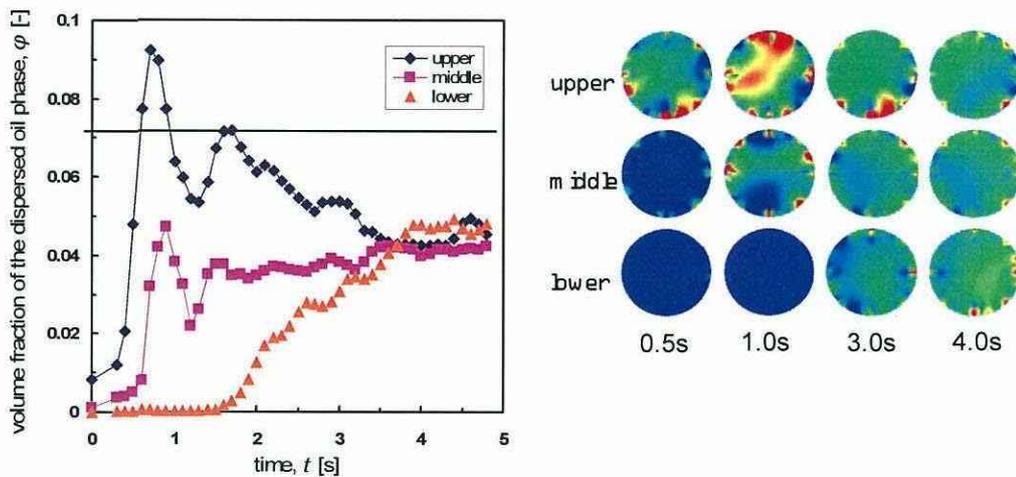


Figure 3: Dynamic changes of volumetric fraction of the dispersed oil phase,  $\varphi$ , and the tomography images ( $n = 5.83\text{s}^{-1}$ ,  $\varphi_T=5\text{vol}\%$ )

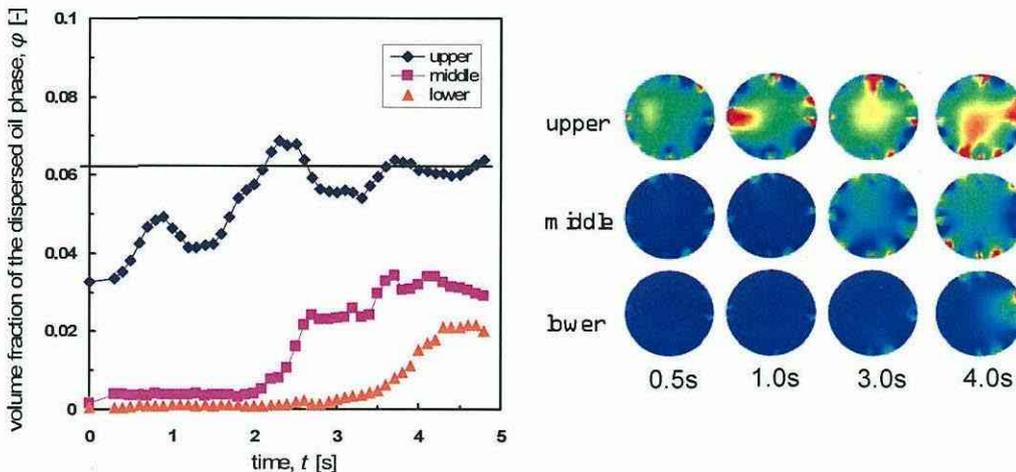


Figure 4: Dynamic changes of volumetric fraction of the dispersed oil phase,  $\varphi$ , and the tomography images ( $n = 4.17\text{s}^{-1}$ ,  $\varphi_T=5\text{vol}\%$ )

The following total dispersion index,  $\varphi^*$ , to evaluate the dispersion state throughout the vessel was, therefore defined:

$$\varphi^* = \frac{1}{3} \sum_{j,k} |\varphi_j - \varphi_k| \quad (1)$$

The points,  $j$  and  $k$ , indicate any two of the upper, centre and lower stages, and summations were made for all combinations. The smaller the value of  $\varphi^*$ , the better the dispersion state throughout the vessel. Figure 5 shows the dynamic change of  $\varphi^*$  at each impeller rotational speed,  $n$ , at the total fraction of styrene,  $\varphi_T = 5.0$  vol%. The dispersion state throughout the vessel improved as the value of  $n$  increased. The three  $\varphi^*$ 's each converged to certain, respective constant values as the stirring time elapsed. The stable dispersion time,  $t_{sd}$ , was defined as the time when  $\varphi^*$  reached the minimum value, because the dispersion state of the oil droplets remained stable after that time. Figure 6 shows the relation between  $t_{sd}$  and  $n$ . The higher  $n$  was, the smaller  $t_{sd}$  was. This relationship can be expressed by a single line regardless of the total dispersion fraction,  $\varphi_T$ , as follows:

$$t_{sd} = 10.6n^{-0.58} \quad (2)$$

This relationship could be useful for unsteady operation while controlling a polymerization reaction.

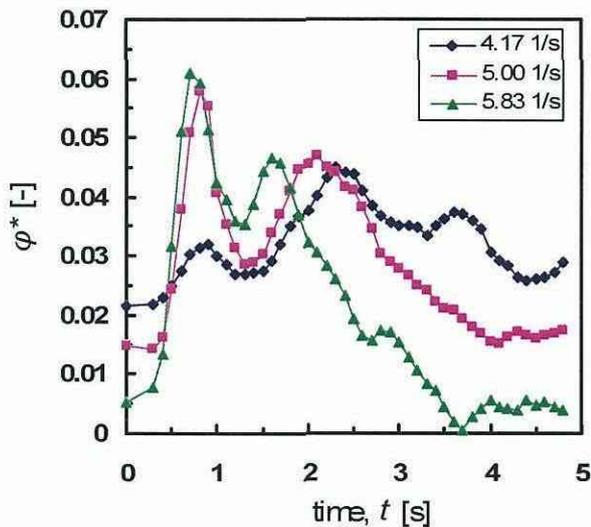


Figure 5: Dynamic change of total dispersion index,  $\varphi^*$  ( $\varphi_T = 5.0$  vol%)

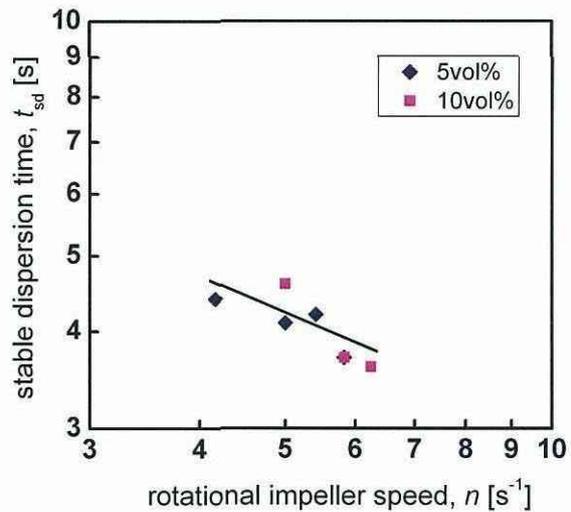


Figure 6: Relation between the stable dispersion time,  $t_{sd}$ , and rotational impeller speed,  $n$

## 4 PHASE INVERSION PHENOMENON

### 4.1 Experimental Apparatus and Operating Conditions

Table 2 shows the experimental conditions. A glass vessel with a flat bottom, with a diameter of 85 mm and a total volume of 600 ml, was used. It was fitted with a stainless steel, 6-blade, paddle impeller, 50 mm in diameter; no baffle plates; and 1 stage of stainless steel electrodes at the center of the vessel. The rotational impeller speed,  $n$ , was set at  $3.33\text{s}^{-1}$ . Generally speaking, a liquid layer with a small volumetric ratio to the total is apt to be in a dispersed phase, while a liquid layer in which the stirring impeller is installed at the start of the stirring is apt to be in a continuous phase. In this study, firstly, the initial state, Water (dispersion phase)/Oil (continuous phase) system, was set up by starting the stirring with the impeller installed in the styrene layer at the upper part of the vessel. After that, a phase inversion, (Water/Oil) to (Oil/Water), was generated by moving the impeller to the center of the vessel, and the phase inversion phenomenon was measured using the electrical resistance tomography method.

Initial Dispersed Phase	Styrene [ml]	145
Initial Continuous Phase	Deionized water [ml]	337
Conductive Agent	KCl [g]	0.25
Rotational Speed of impeller $n$ [s <sup>-1</sup> ]		3.33

Table 2 Experimental conditions for phase inversion phenomenon

## 4.2 Results and Discussion

Figure 7 shows the tomograms that demonstrate the phase inversion phenomenon. When the continuous phase is styrene, the tomograms are displayed in red color, because the electrical conductivity of the styrene is extremely low, while when the continuous phase changes to water, the color of the tomograms turns to green, because the electrical conductivity becomes higher. Figure 8 shows the dynamic change of the volumetric fraction of the styrene 8.0 to 11.0 sec after the start of the stirring. It was found from Figures 7 and 8 that the phase inversion phenomenon occurred over a very short time, 0.44 sec (from 8.94 to 9.38 sec) and that the phenomenon proceeded in such a way that the volumetric fraction of the water phase became larger in the vicinity of the vessel wall, and then, the water phase entered into the center of the vessel.

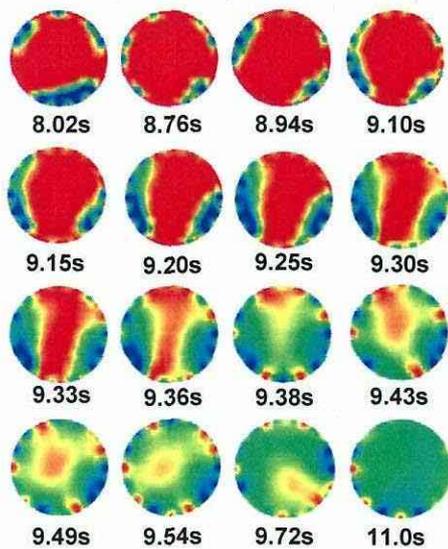


Figure 7: Tomography images in phase inversion phenomenon

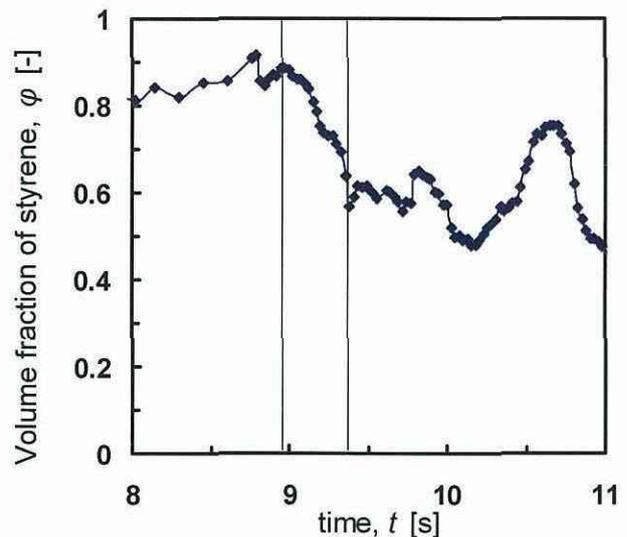


Figure 8: Dynamic change of the volumetric fraction of the styrene (8.0 to 11.0 sec after the start of stirring)

## 5 CONCLUSION

The electrical tomography technique was applied to a stirred vessel to observe the dispersion of a liquid into another immiscible liquid system.

Firstly, the relation between the liquid dispersion process and the operating conditions of the mixing in a styrene-water system in a stirred vessel was investigated to obtain the equation regarding the stable dispersion time as follows:

$$t_{sd} = 10.6n^{-0.58} \quad (2)$$

Subsequently, a phase inversion phenomenon was observed in the styrene-water system in a stirred vessel using electrical resistance tomography. It was found that the phase inversion phenomenon occurred over a very short time and that the phenomenon proceeded in such a way that the volumetric

fraction of the water phase became larger in the vicinity of the vessel wall, and then, the water phase entered into the center of the vessel.

## 6 ACKNOWLEDGEMENTS

This study was supported by the Ministry of Education, Science, Sports and Centre, Grand-in-Aid for Scientific Research (C), 18560731, 2006.

## 7 REFERENCES

HOLDEN P. J., WANG M., MANN R., DICKIN F. J., and EDWARDS R. B., (1998), Imaging Stirred-Vessel Macromixing using Electrical Resistance Tomography, *AIChE Journal*, 44, 780-790

HU B., ANGELI P, MATER O. K., and HEWITT G. F., (2005) , Prediction of Phase Inversion in a Agitated Vessels using a Two-region Model, *Chem. Eng. Sci.*, 60, 3487-3495

KAMINOYAMA M., TAGUCHI S., MISUMI R., and NISHI K, (2005), Monitoring Stability of Reaction and Dispersion States in a Suspension Polymerization Reactor using Electrical Resistance Tomography Measurements, *Chem. Eng. Sci.*, 60, 20, 5513-5518

LIU L., MATAR O.K., ORTIZ E. S. P. O., and HEWITT G. F., (2005), Experimental Investigation of Phase Inversion in a Stirred Vessel using LIF, *Chem. Eng. Sci.*, 60, 85-94

MANN R., and WANG, M., (1997), Electrical Process Tomography: Simple and Inexpensive Techniques for Process Imaging, *Measurement + Control*, 30, 206-211

PACEK A. W., MOORE I. P. T., and NIENOW A. W., (1994) Video Technique for Measuring Dynamics of Liquid-liquid Dispersion during Phase Inversion, *AIChE Journal*, 40, 12, 1940-1949.

TIDHAR M., MERCHUK J.C., SEMBIRA A. N. and WOLF. D., (1986), Characteristics of a Motionless Mixer for Dispersion of Immiscible Fluids-Phase Inversion of Liquid –Liquid Systems, *Chem. Eng. Sci.*, 41, 3, 457-462

# Power Consumption Correlation in an Aerated Stirred Vessel with a Void Fraction around the Stirring Impeller Using Electrical Resistance Tomography Measurements

M. Kaminoyama<sup>1</sup>, K. Nishi<sup>1</sup>, R. Misumi<sup>1</sup> and A. Tagawa<sup>2</sup>

<sup>1</sup>. Department of Materials Sciences and Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai Hodogaya-ku Yokohama-shi 240-8501 JAPAN

<sup>2</sup>. Department of Materials Sciences and Chemical Engineering, Graduate School of Engineering, Yokohama National University, 79-5 Tokiwadai Hodogaya-ku Yokohama-shi 240-8501 JAPAN  
Tel and Fax: 81-45-339-3999, E-mail: [kamin@ynu.ac.jp](mailto:kamin@ynu.ac.jp)

## ABSTRACT

*The power consumption is important in evaluating mass transfer coefficients,  $k_L a$ , in an aerated stirred vessel, and many correlation equations of the ratio of power with aeration to that without aeration,  $P_g/P_0$ , have been proposed. However, they cannot cover a wide range, from a loading to a flooding state, because they are based on macroscopic physical variables throughout the vessel, and because  $P_g/P_0$  doesn't decrease monotonically with an increase in the rotational speed of the stirring impeller,  $n$ . This last issue may be attributable to the gas hold-up behind the impellers. On the other hand, the electrical resistance tomography technique makes it possible to grasp localized information in a stirred vessel. The tomography technique was, therefore, applied to an aerated stirred vessel, having a diameter of 0.2m and fitted with a Rushton turbine impeller. The distributions of gas hold-up were obtained for 5 horizontal planes in the vessel under various conditions of rotational speed of the stirring impeller,  $n$ , and gas flow rate,  $Q_g$ . It was found that the gas hold-ups around the impeller were much larger than those out of the region, even in a loading state.*

*In observing the void fractions around the impeller in the region swept by the impeller,  $\varphi_{imp}$ , based on the tomography measurements, it was found that the total void fractions in the stirred vessel increased monotonically with an increase in  $n$ , regardless of being in a flooding or a loading state, while  $\varphi_{imp}$  varied complicatedly, in particular, in the loading state. Based on observations using pure water and aqueous solutions of 40, 60 and 80 wt.% of glycerin, the following correlation equation was proposed for  $P_g/P_0$  from a flooding to a loading state, using  $\varphi_{imp}$  and including viscosity variation:  $P_g/P_0 = 0.21\varphi_{imp}^{-0.34}$ . Further, equations were obtained with which it was possible to estimate  $k_L a$  accurately under various conditions, based on the tomography measurements of  $\varphi_{imp}$ .*

**Keywords** Aerated Stirred Vessel, Power Consumption Correlation, Void Fraction, Electrical Resistance Tomography

## 1 INTRODUCTION

Stirring with aeration is often used in aerobic cultivation processes and wastewater treatment processes. The improvement and control of a mass transfer in the gas-liquid system are required in these processes. Power consumption is important in evaluating mass transfer coefficients,  $k_L a$ , in an aerated stirred vessel, and many correlation equations of the ratio of power with aeration to that without aeration,  $P_g/P_0$ , have been proposed (Nienow et al., 1985; Warmoeskerken and Smith, 1985; Tatterson et al., 1987; Tatterson, 1991; Paglianti, 2001). However, they cannot cover a wide range, from a loading to a flooding state, because they are based on macroscopic physical variables throughout the vessel and because  $P_g/P_0$  doesn't decrease monotonically with an increase in the rotational speed of the stirring impeller,  $n$ . This last issue may be attributable to the gas hold-up behind the impellers. On the other hand, the electrical resistance tomography technique makes it possible to grasp localized information in a stirred vessel (Man and Wang, 1997; Holden et al., 1998; Kaminoyama et al., 2005). The tomography technique was, therefore, applied to an aerated stirred vessel, having a diameter of 0.2m and fitted with a Rushton turbine impeller, and the distributions of gas hold-up were obtained for 5 horizontal planes in the vessel under various conditions of rotational speed of the stirring impeller,  $n$ , and gas flow rate,  $Q_g$ . Based on observations using pure water and aqueous solutions of 40, 60 and 80 wt.% of glycerin, a correlation equation was established for  $P_g/P_0$ , from a flooding to a loading state, using the void fractions around the impeller,  $\varphi_{imp}$  and including

viscosity variation. Further, equations were obtained with which it was possible to estimate  $k_{L,a}$  accurately under various conditions, based on the tomography measurements of  $\varphi_{imp}$ .

## 2 PRINCIPLE AND METHOD OF MEASUREMENT

### 2.1 Measurement Principle of Electrical Resistance Tomography

Figure 1 shows the schematic diagram of a cross section for the measurements in a stirred vessel. Sixteen electrodes were set at equal intervals along the inner vessel wall. Firstly, the voltage was measured between the electrodes in the horizontal cross section. The adjacent method was adopted, i.e., sending a constant electrical current through a pair of adjacent electrodes, for the voltage measurement. The measurement number repeated was, therefore, 104, from the equation,  $n_e (n_e - 3)/2$ , where  $n_e$  is the number of electrodes, i.e., 16 in this study. The backprojection method, which uses a sensitivity matrix,  $S(e, n)$  (Kaminoyama et al., 2005), was adopted. The percentage change in resistivity distribution in the section,  $P(e)$ , corresponding to the dispersion state of the gas bubbles, was graphically reconstructed, with  $S(e, n)$  mentioned above and the boundary conditions based on the voltages measured,  $V(n)_{meas}$ . After that, the resistivity at each element in the horizontal cross section was calculated based on the result of  $P(e)$ . The obtained resistivities were converted into the void fractions based on the calibration curve prepared beforehand.

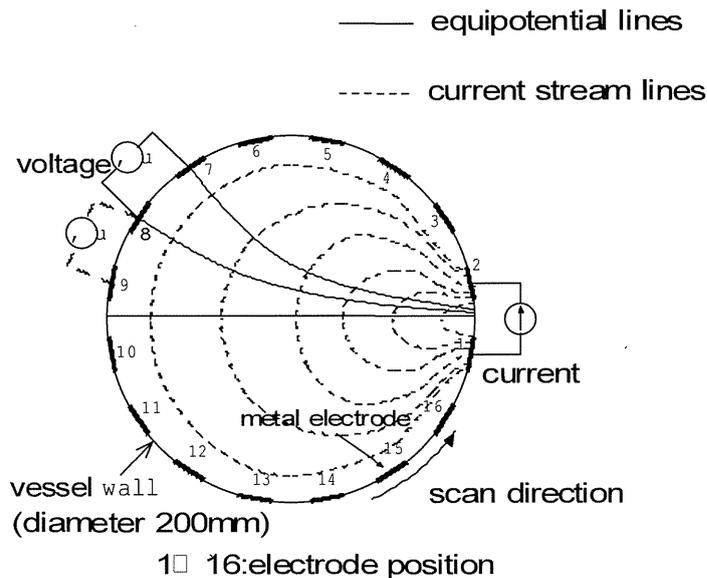
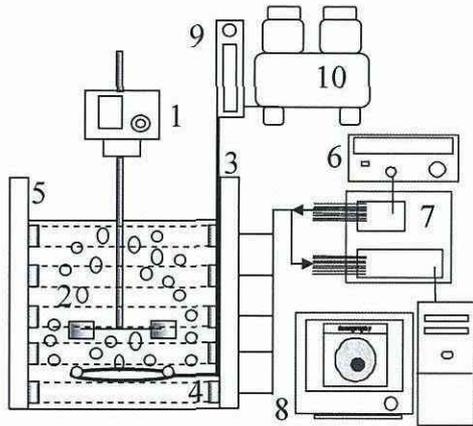


Figure 1: Schematic diagram of cross section for measurement

### 2.2 Measurement Method and Experimental Apparatus

Figure 2 shows a schematic diagram of the experimental apparatus. An acrylic resin vessel with a flat bottom, with a diameter of 200 mm and a total volume of 6200 ml, was used. It was fitted with a stainless steel, 6-blade, Rushton-turbine impeller, 100 mm in diameter; 4 baffle plates; and 5 stages of stainless steel electrodes, from the vessel bottom to the liquid surface. Each stage comprised 16 electrodes at equal intervals along the inner vessel wall in order to obtain a horizontal tomography image. The images in a vertical cross section were obtained from the three-dimensional images constructed using the 5 horizontal tomography images. Air was supplied, by a compressor, through a flow meter, from a nozzle with a single hole, for the study of the low viscosity liquid, and from a ring sparger with multiple holes, for the study of the high viscosity liquids. Table 1 shows the experimental conditions in this study. The liquids used were deionized water and aqueous solutions of 40, 60 and 80 wt% of glycerin in order to investigate the effects of liquid viscosity on the dispersion states of gas bubbles in a vessel. Potassium chloride, KCl, was injected in order to magnify the difference in electrical conductivity between the stirred liquids and gas bubbles. The amounts of KCl injected were such that the initial electrical conductivity was the same for each liquid study. The operating conditions, i.e., the rotational speed of an impeller,  $n$ , and injection gas flow rate,  $Q_g$ , were varied.



1: motor 2: 6-flat disk turbine 3: tank  
 4: electrode(16 per a plane) 5: baffle  
 6: function generator 7: circuit 8: PC  
 9: flow meter 10: compressor

Table 1: Experimental conditions

Liquids	Water	
	Aqueous Solution of 40wt% of Glycerin Aqueous Solution of 60wt% of Glycerin Aqueous Solution of 80wt% of Glycerin	
Conductive Agent	KCl [g]	4.6□47.2
Viscosity $\mu$ [Pa·s] (293K)		$1.0 \times 10^{-3}$ □ $6.2 \times 10^{-2}$
Gas Flow Rate $Q_g$ [m <sup>3</sup> /s]		$8.3 \times 10^{-5}$ □ $1.8 \times 10^{-4}$
Superficial Gas Velocity $u_g$ [m/s]		$2.6 \times 10^{-3}$ □ $5.7 \times 10^{-3}$
Rotational Speed of Impeller $n$ [s <sup>-1</sup> ]		0.0 □ 7.5

Figure 2: Schematic diagram of experimental apparatus

### 3 RESULTS AND DISCUSSION

#### 3.1 Study of a Low Viscosity Liquid with a Nozzle Having a Single Hole

##### 3.1.1 Distribution of Void Fraction

Figure 3 shows the distributions of void fraction and tomography images (tomograms) on both the horizontal and vertical planes for the water at each impeller rotational speed,  $n$ . The injection flow rate of gas,  $Q_g$ , was  $1.17 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ . The blue color in the tomograms indicates the low void fraction, and the change from green color to red corresponds to an increase in the void fraction. The void fractions at each measuring section increased with an increase in  $n$ . The values around the impeller were higher than those at either, the upper or lower part of the vessel. The horizontal tomograms show that the average void fractions in the vicinity of the impeller and the lower part of the vessel increased with an increase in  $n$  and that the void fraction was localized in the center of the vessel. The vertical tomograms show that the void fractions were particularly higher around the impeller.

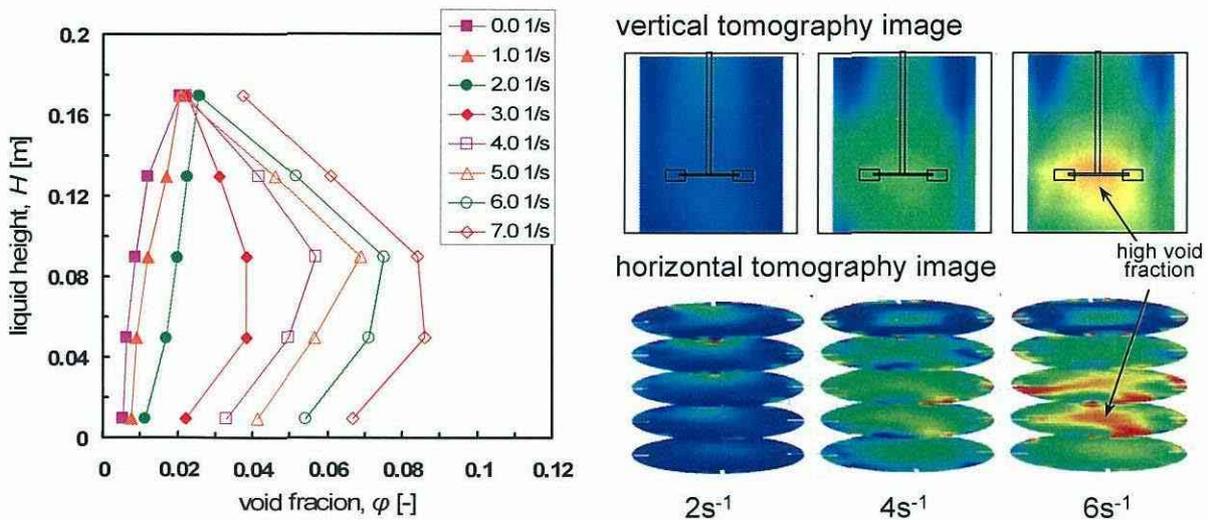


Figure 3: Distributions of void fraction and tomograms for water

### 3.1.2 Power Consumption Ratio

Figures 4 and 5 show the change in the total void fraction of the whole vessel and the void fraction around the impeller with varying rotational impeller speed at each injection gas flow rate,  $Q_g$ , respectively. The void fraction around the impeller,  $\varphi_{imp}$ , was defined as the average of the values of the elements within the region swept by the impeller. The figures show that both, the total void fraction of the whole vessel,  $\varphi_T$ , and the void fraction around the impeller,  $\varphi_{imp}$ , increased with an increase in  $Q_g$ . While the total void fractions of the whole vessel,  $\varphi_T$ , increased monotonically with an increase in the impeller rotational speed, regardless of being in a flooding state, aeration dominant field, or in a loading state, agitation dominant field, the void fractions around the impeller,  $\varphi_{imp}$ , increased complicatedly, depending on being in a flooding or a loading state, in particular, in the loading state.

Figure 6 shows the change in the power consumption ratio,  $P_g/P_0$ , with varying  $n$ .  $P_g/P_0$  decreases with an increase in  $Q_g$  and changes differently in the flooding and loading states. This tendency had a negative correlation with the void fraction around the impeller shown in Figure 6. Figure 7 shows the relation between the power consumption ratio,  $P_g/P_0$ , and the void fraction around the impeller,  $\varphi_{imp}$ . This relation can be represented by a single straight line, regardless of the conditions of the gas flow rates and the dispersion states.

### 3.2 Study of a High Viscosity Liquids with a Ring Sparger having Multiple Holes

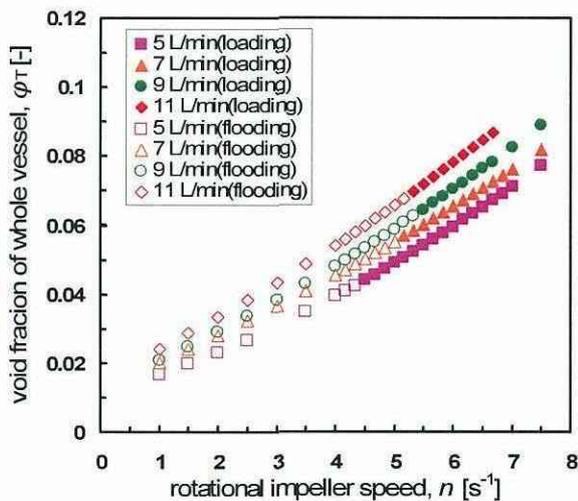


Figure 4: Change of total void fraction of whole vessel with varying rotational impeller speed

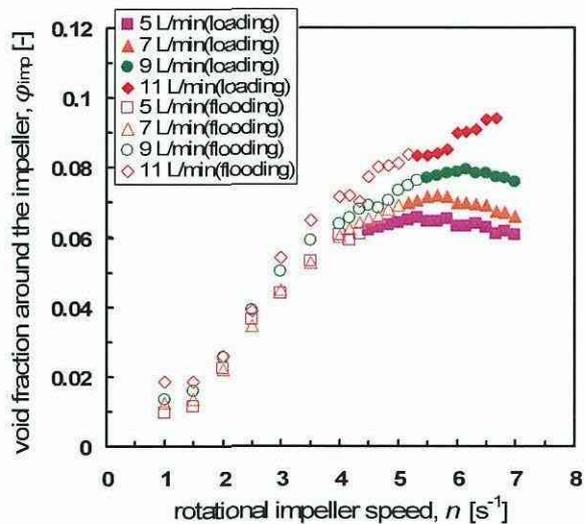


Figure 5: Change of total void fraction around the impeller with varying rotational impeller speed

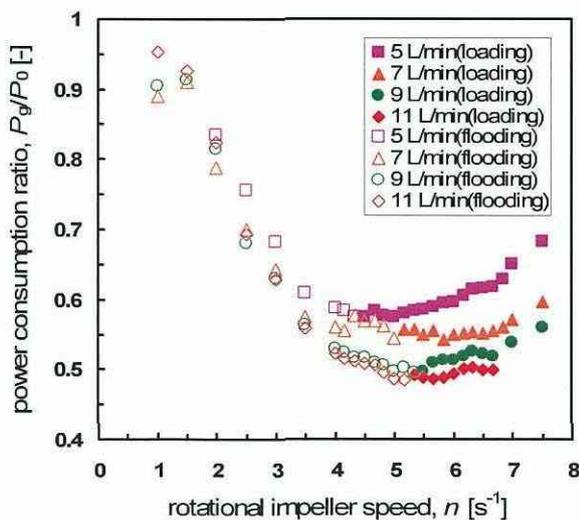


Figure 6: Change of power consumption ratio with varying rotational impeller speed

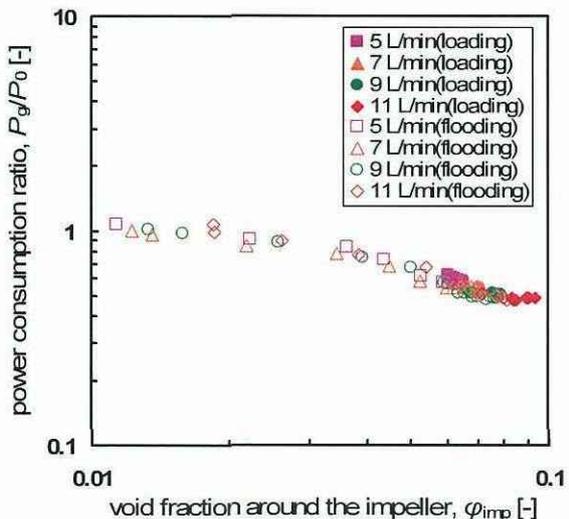


Figure 7: Relation between the power consumption ratio and void fraction around the impeller

### 3.2.1 Distribution of Void Fraction

Figure 8 shows tomograms on both the horizontal and vertical planes, indicating the effects of liquid viscosity on the dispersion states of gas distribution. The injection flow rate of gas was  $1.17 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ . The void fractions at both, the upper and lower parts of the vessel, decreased with an increase in the liquid viscosity. The values of the void fraction distributions were high around the impeller, regardless of the viscosity, and were localized in the center at the upper part of the vessel. The void fractions at each measuring section increased with an increase in  $n$  and were particularly higher around the impeller at a high rotational impeller speed. Figure 9 shows the relation between the void fraction around the impeller,  $\varphi_{\text{imp}}$ , and the rotational impeller speed,  $n$ , at various viscosities. The injection flow rate of gas,  $Q_g$ , was  $1.17 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ . The fraction around the impeller increased with an increase in the liquid viscosity. The total void fractions increased monotonically with an increase in the impeller rotational speed, while the void fractions around the impeller increased differently at the flooding dispersion state, aeration dominant field, and at the loading state, agitation dominant field.

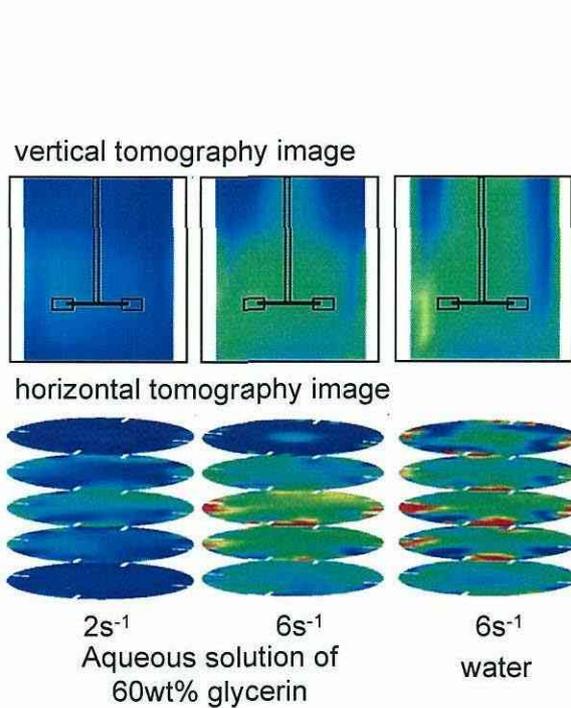


Figure 8: Effects of liquid viscosity on the dispersion states of gas distribution

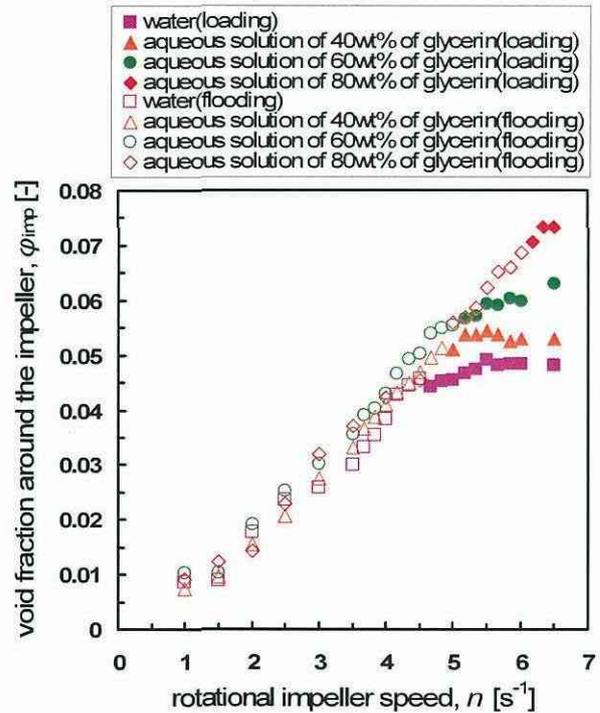


Figure 9: Relation between void fraction around the impeller and rotational impeller speed at various viscosities

### 3.2.2 Power Consumption Correlation

Figure 10 shows the effects of viscosity on the power consumption ratio,  $P_g/P_0$ .  $P_g/P_0$  decreased with an increase in liquid viscosity and decreased differently at the flooding or loading state. This tendency had a negative correlation with the void fraction around the impeller shown in Figure 9. Figure 11 shows the relation between the void fraction around the impeller,  $\varphi_{\text{imp}}$ , and power consumption ratio,  $P_g/P_0$ . This relation can be represented by a single straight line regardless of the conditions of the liquid viscosity, the injection gas flow rate, the dispersion state and the aeration device. The following correlation equation regarding power consumption ratio was obtained:

$$P_g/P_0 = 0.21 \varphi_{\text{imp}}^{-0.34} \quad (0.01 < \varphi_{\text{imp}} < 0.1) \quad (1)$$

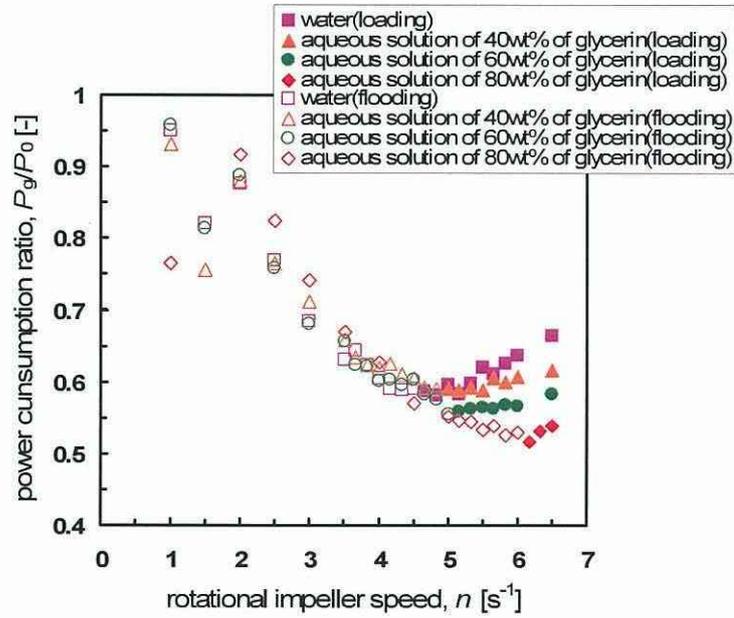


Figure 10: Effects of liquid viscosity on power consumption ratio

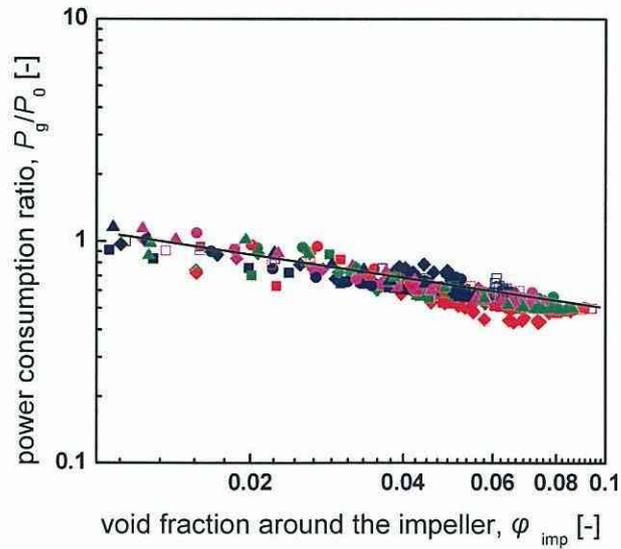
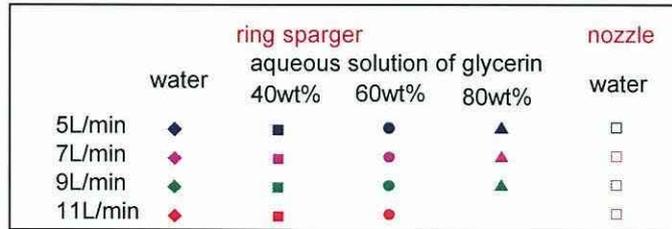


Figure 11: Relation between void fraction around the impeller and power consumption ratio

### 3.2.3 Measurement and Estimate Calculation of Mass Transfer Coefficients, $k_L a$

The mass transfer coefficients,  $k_L a$ , were calculated using equation (1), obtained above, and the conventional estimating equations for  $k_L a$  (Sato et al., 1991) shown in equations (2) and (3).

$$k_L a = \gamma \{ P_{av} (\xi P_{av} + P_{gv}) \}^{-0.5} \quad (2)$$

$$P_{av} = \rho g u_g \quad (3)$$

Here,  $\xi$  is 1/3 and the value of  $\gamma$  was determined by fitting parameters for each liquid, and the power consumption of impeller per unit liquid volume,  $P_{gv} (= P_g/V)$ , was calculated using equation (1).  $P_{av}$  was the power consumption of aeration per unit liquid volume.  $\rho$ ,  $g$  and  $u_g$  were the density of liquid, the gravity and the superficial velocity of gas, respectively. Figure 12 shows the relation between the power consumption and the  $k_L a$ . The real lines in the figure show the calculated results, which indicate a very good agreement with the experimental results. The relation equation between  $\gamma$  and liquid viscosity,  $\mu$ , was obtained as follows:

$$\gamma = 3.0 \times 10^{-6} \mu^{-0.61} \quad (4)$$

It was possible to estimate  $k_L a$  accurately under various conditions using equations 1-4, based on the tomography measurements of  $\varphi_{imp}$ .

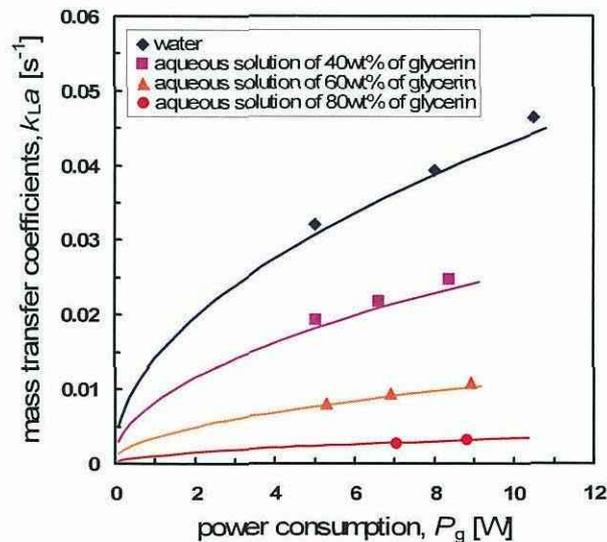


Figure 12: Relation between power consumption and mass transfer coefficients

## 4 CONCLUSION

The tomography technique was applied to an aerated stirred vessel, having a diameter of 0.2 m and fitted with a Rushton turbine impeller, and the distributions of gas hold-up were obtained for 5 horizontal planes in the vessel under various conditions of rotational speed of the stirring impeller,  $n$ , and gas flow rate,  $Q_g$ . It was found that the gas hold-ups around the impeller were much larger than those outside of that region, even in a loading state.

In observing the void fractions around the impeller in the region swept by the impeller,  $\varphi_{imp}$ , based on the tomography measurements, it was found that the total void fractions in the stirred vessel increased monotonically with an increase in  $n$ , regardless of being in a flooding or a loading state, while  $\varphi_{imp}$  varied complicatedly, in particular, in the loading state. Based on observations using pure water and aqueous solutions of 40, 60 and 80 wt.% of glycerin, the following correlation equation was proposed for  $P_g/P_0$ , from a flooding to a loading state, using  $\varphi_{imp}$  and including viscosity variation:

$$P_g/P_0 = 0.21\varphi_{imp}^{-0.34}. \quad (5)$$

Further, equations were obtained with which it was possible to estimate  $k_L a$  accurately under various conditions, based on the tomography measurements of  $\varphi_{imp}$ .

## 5 ACKNOWLEDGEMENTS

This study was partially supported by the Ministry of Education, (Japan), Science, Sports and Culture, Grand-in-Aid for Scientific Research (C), 18560731, 2006.

## 6 REFERENCES

HOLDEN P.J., WANG M., MANN R., DICKIN F.J., and EDWARDS R.B., (1998), Imaging Stirred-Vessel Macromixing using Electrical Resistance Tomography, *AIChE Journal*, 44, 780-790.

KAMINOYAMA M., TAGUCHI S., MISUMI R., and NISHI K, (2005), Monitoring Stability of Reaction and Dispersion States in a Suspension Polymerization Reactor using Electrical Resistance Tomography Measurements, *Chem. Eng. Sci.*, 60, 20, 5513-5518

MANN R., and WANG M., (1997), Electrical Process Tomography: Simple and Inexpensive Techniques for Process Imaging, *Measurement and Control*, 30, 206-211

NIENOW A.W., WARMOESKERKEN M.M.C.G., SMITH J.M., and KONNNO M., (1985), On the Flooding/Loading Transition and the Complete Dispersal Condition in Aerated Vessels Agitated by a Rushton-Turbine", *Procs. of the 5<sup>th</sup> European Conf. on Mixing, BHRA Cranfield, Wurzburg, Germany*, 143-154,

PAGLIANTI A., TAKENAKA K., and BUJALSKI W., (2001), Simple Model for Power Consumption in Aerated Vessels Stirred by Rushton Disc Turbines, *AIChE Journal*, 47, 12, 2673-2683

SATOH K., SHIMADA H., and ZENYA Y, (1991), Power Requirements of Gas-Liquid Contactors with Mechanical Agitation, *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 15, 733-742

TATTERSON G.B., and MORRISON G.L., (1987), Effect of Tank to Impeller Diameter Ratio on Flooding Transition for Disc Turbines, *AIChE Journal*, 33, 10, 1751-1753

TATTERSON G. B., (1991), *Fluid Mixing and Gas Dispersion in Agitated Tanks*, McGraw-Hill

WARMOESKERKEN M.M.C.G., and SMITH, J.M., (1985), Flooding of Disc Turbine in Gas Liquid Dispersions: A New Description of the Phenomenon, *Chem. Eng. Sci.*, 40, 2063-2071

# 電気抵抗トモグラフィー手法を用いた気-液系攪拌槽における分散状態の計測

(横国大院工)○田河敦・三角隆太・仁志和彦・上ノ山周



## はじめに

水質改善のための曝気槽や汚泥処理のための通気攪拌槽等、種々の環境プロセスにおいて気-液系攪拌装置・操作が多用されている。

### 気-液系攪拌

気-液系攪拌槽内における気泡の分散状態の計測は攪拌所要動力、気-液間物質移動容量係数の推算において重要である。

### 電気抵抗トモグラフィー<sup>1)</sup>

電気伝導度の差異を基に気-液攪拌槽内の抵抗分布、さらにはボイド率分布を画像表示できる。

本研究では電気抵抗トモグラフィーを用いて気泡の分散状態を計測し、槽内のボイド率分布、翼周辺のボイド率と気-液間物質移動に大きな影響を及ぼす動力比の関係について検討<sup>2)</sup>を行う。また高粘度の攪拌液についても検討<sup>2)</sup>を行う。

## 1. 計測原理

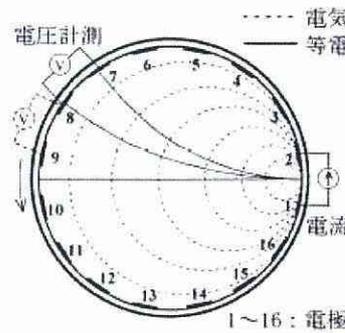


図1 計測断面概略<sup>3)</sup>

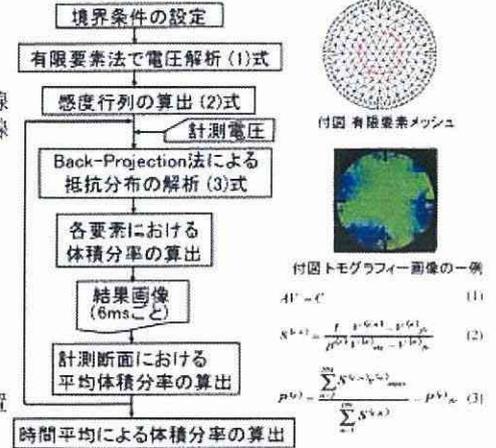
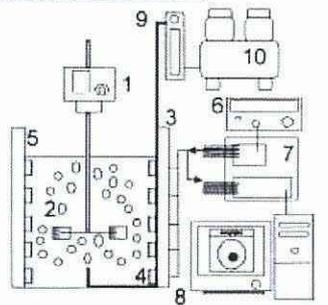


図2 画像再構成フローチャート

## 2. 実験装置および条件



1. 攪拌モーター
2. 6枚車直径ディスクタービン翼
3. 攪拌槽
4. 電極
5. 電源装置(4枚)
6. ファンクションジェネレーター
7. 計測回路
8. PC
9. 流量計
10. ガス流量計

図3 実験装置概略

表1 実験条件

攪拌液	水	20wt%グリセリン水溶液	40wt%グリセリン水溶液
導電性塩化カルウム物質	4.6	0.1	15.0
液粘度 [Pa·s]	$8.6 \times 10^{-4}$	$1.3 \times 10^{-2}$	$3.0 \times 10^{-2}$
ガス通気量 [ $m^3/s$ ]	$8.3 \times 10^{-5} \sim 1.8 \times 10^{-4}$		
空塔速度 [ $m/s$ ]	$2.6 \times 10^{-2} \sim 5.7 \times 10^{-2}$		
翼回転数 [ $s^{-1}$ ]	0.0 ~ 7.5		

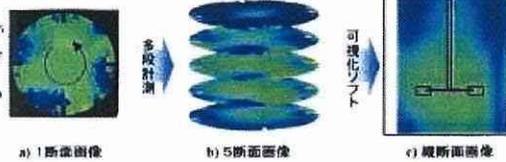


図4 攪拌槽内のボイド率計測方法

## 3. 結果および考察

### 3.1 水を用いたボイド率分布の検討

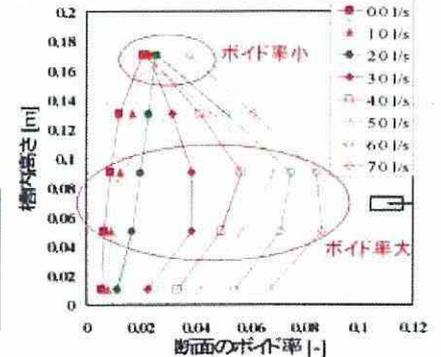


図5 翼回転数による槽内のボイド率 (ガス通気量  $1.17 \times 10^{-4} m^3/s$ )

### 3.2 翼周辺局所ボイド率( $\phi_{imp}$ )を用いた動力推算式の構築

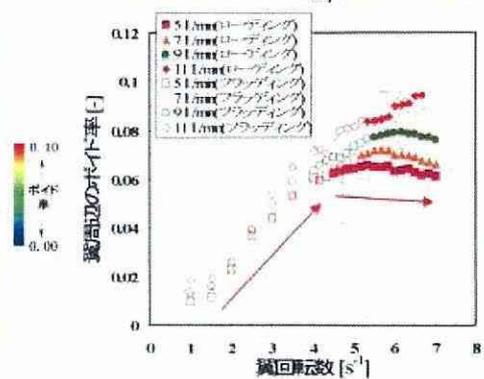


図7 翼回転数による翼周辺のボイド率の変化

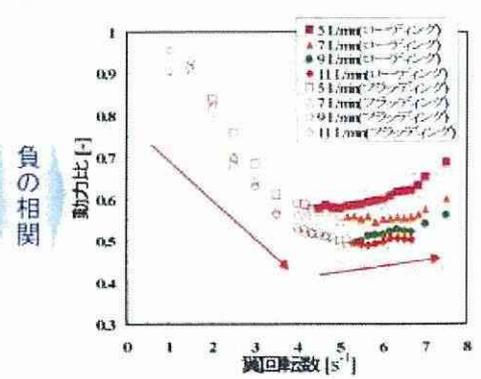
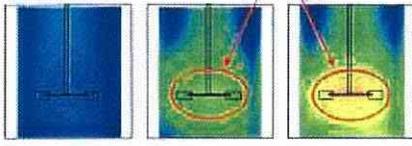


図8 翼回転数による動力比の変化

### 縦断面画像



### 横断面画像



図6 各翼回転数におけるトモグラフィー画像 (ガス通気量  $1.17 \times 10^{-4} m^3/s$ )

### 3.3 グリセリン水溶液を用いた検討

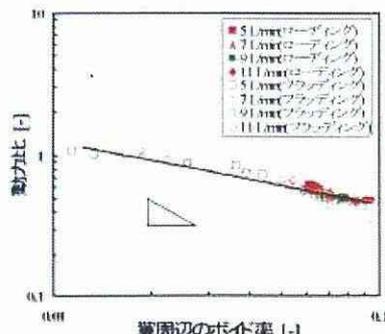


図9 翼周辺ボイド率と動力比の関係

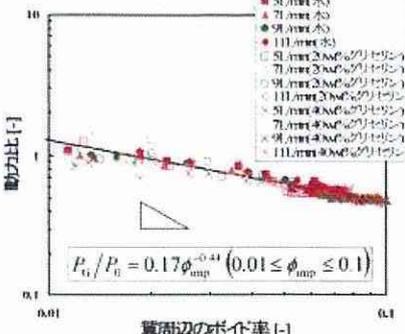


図10 翼周辺ボイド率と動力比の関係 (水、20wt%、40wt%グリセリン水溶液)

## むすびに

電気抵抗トモグラフィー手法を用いて気-液系攪拌槽における分散状態を計測し、以下の知見が得られた。

- ・攪拌槽内のボイド率は翼周辺が一番高く、槽上部では低いことが判った。
- ・トモグラフィー計測により算出した翼周辺の局所ボイド率と動力比には相関があることが判った。
- ・本研究の装置において動力比はガス流量、フラッシング状態、ローディング状態、液粘度にかかわらず翼周辺のボイド率のみを用いて整理できることが判った。動力比について相関式で纏めることができた。

【謝辞】本研究の一部は文部科学省科研費(No. 18560731)の援助を受けて行われた。記して謝意を表す。  
 【参考文献】1) M. Kamino, S. Taguchi, R. Misumi, K. Nishi, Chem. Eng. Sci., 60, 5513-5518(2005); 2) 田河, 三角, 仁志, 上ノ山, 化学工学会第38回秋季大会要旨集, E206(2005); 3) F. Dickinson et al. Meas. Sci. Technol., 7, 247-260(1996)