

平成 30 年 6 月 13 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26289285

研究課題名(和文) トモグラフィ計測による非沈降性スラリー攪拌槽における固気複合分散相状態の解明

研究課題名(英文) Investigation of the dispersion and mixing states of gas-solid-liquid phases in a stirred vessel with a non-sedimenting slurry using Electrical Resistance Tomography

研究代表者

上ノ山 周 (KAMINOYAMA, Meguru)

横浜国立大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：50233945

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,600,000円

研究成果の概要(和文)：通気攪拌操作による槽内の気泡通過経路と液流動状態から攪拌槽におけるスラリー系塑性流体の混合促進機構について検討した。操作条件とくに翼回転数によって気泡通過経路は大きく3つに分けられることがわかった。トレーサを槽に注入し、これを経時的にサンプリングした実験データを元に混合数値モデルを用いて気泡同伴液流量を算出し、液流動状態を定量的に明らかにした。混合指標を定義し、気泡同伴液流量とカバレッジ体積から混合時間を算出する見通しを得た。また電気抵抗方式トモグラフィを用いて計測・算定した気泡通過経路は、目視観測による結果と良く合致した。

研究成果の概要(英文)：We investigated the mechanism enhancing the dispersion and mixing of a slurry, a plastic fluid, in a stirred vessel by aeration based on the data measured for the passage of the bubbles and the liquid flow state. The passage of the bubbles could be roughly classified into three types, depending on the impeller rotational speed. We clarified quantitatively the liquid flow state by estimating the rate of the liquid flow entraining the bubbles. We estimated the rates based on the experimental data from dynamically sampling the liquid, which included a tracer injected to the vessel, with the aid of a numerical mixing model. We determined the mixing index and were able to estimate the mixing time from the liquid flow entraining the bubbles and the cavern volumes. The experimental data on the bubble passage by visual observation was in a good agreement with the experimental results measured by Electrical Resistance Tomography.

研究分野：化学工学

キーワード：化学工学 プロセス 攪拌・混合 トモグラフィ スラリー流体

1. 研究開始当初の背景

降伏応力を有する非ニュートン流体である塑性流体(図1.)を小型の攪拌翼を用いて攪拌する場合、図2.に示すように攪拌翼周りのみで液のずり流動が起こり、翼から離れた位置では、静止ないしは淀み領域となり、槽全体として混合状態は、不良となる。一方、培養槽などで見られる通気攪拌操作を施すことで液内を気泡が上昇し、混合不良部に流動を発生させることにより混合を促進させることが可能である。これまでの報告者らの研究によって混合促進効果の高い攪拌・通気等の操作条件を明らかにしたが、この混合促進機構については明らかにされていなかった。

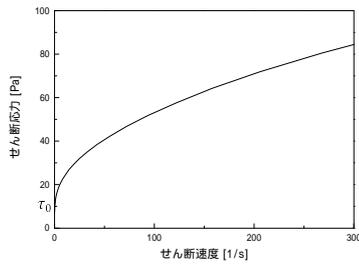


図1. 塑性流体の流動特性

2. 研究の目的

本研究では気泡通過経路を観察ならびにトモグラフィ計測手法を用いて計測するとともに、トレーサを注入した槽内の液をサンプリング法で定量化した混合実験と数理混合モデルを用いて検討した液流動状態の結果から非沈降性スラリー系気液複合状態における混合促進機構について検討することを目的とする。

3. 研究の方法

3.1 サンプリング法

表1に実験条件を、図2.に実験装置を示す。試料溶液には図1.で示した流動特性((株)大塚技研製レオメータ ONRH-1 型にて計測)をもつカルボキシビニルポリマー水溶液を用いた。リングスパージャーを槽底に設置し通気操作を行った。気泡通過経路を観察するとともに、気泡により発生する液流動状態を図3.に示す気泡の通過経路と物質収支を考慮した混合モデルを用いて検討した。槽内に添加した KCl 濃度  $C$  [M] をカバーン内(領域1)とカバーン外の軸付近(領域2)、槽壁付近(領域3)の3ヶ所からサンプル時間ごとに採取し、

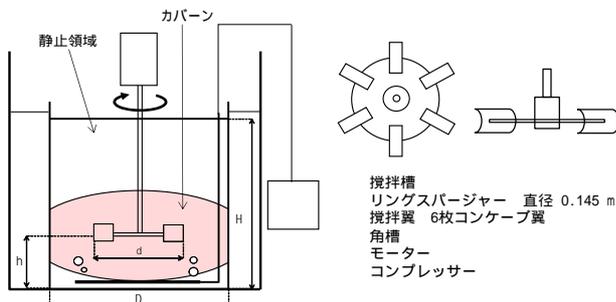


図2. 実験装置概略

表1 実験条件

| 攪拌槽                  | 平底円筒槽                            |
|----------------------|----------------------------------|
| 槽径 $D$ [m]           | 0.2                              |
| 試料高さ $H$ [m]         | 0.2                              |
| 翼径 $d$ [m]           | 0.1                              |
| 翼設置高さ $h$ [m]        | $H/3 (= 0.066)$                  |
| 試料溶液                 | カルボキシビニルポリマー水溶液 (ハイビスワコー105®水溶液) |
| 試料溶液濃度 $C_C$ [wt%]   | 0.20                             |
| pH [-]               | 5.55                             |
| 通気量 $Q$ [L/min]      | 15                               |
| 回転数 $n$ [ $s^{-1}$ ] | 3.0 ~ 7.0                        |
| 添加したKClのモル数 [mol]    | 0.01                             |
| サンプル時間 [s]           | 0, 10, 20, 30, 60, 90, 120, 240  |
| サンプル量 [ml]           | 10                               |

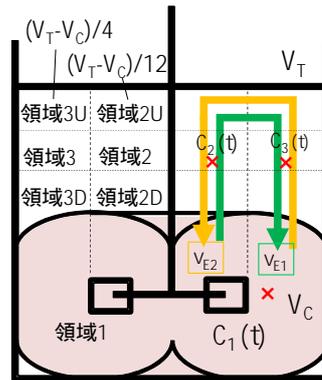


図3. 混合数理モデル

電気伝導度計と検量線を用いて  $C$  を測定した。同図に示す物質収支に基づくモデル式を解き、計算値  $C_1, C_2, C_3$  について実験値との差異の二乗和が最小となる気泡同伴液流量  $v_{E1}$  [L/s] (内側から外側への流れ),  $v_{E2}$  [L/s] (外側から内側への流れ) を算出し、液流動状態を検討した。

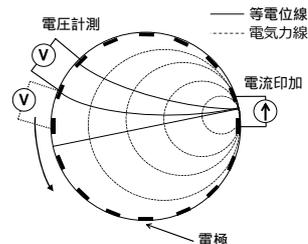


図4. 計測断面概略

3.2 電気抵抗トモグラフィ

トモグラフィ計測器には P2000S (ITS 社製) を用いた。図4.には、攪拌槽における計測断面概略を示す。槽内の流れを阻害しないよう、槽壁に同心円状等間隔に電極を設置している。電気抵抗トモグラフィは1対の隣接した電極間に電流を印加し、それ以外の隣接した電極間の電圧を計測する。これをすべての電極の組み合わせについて走査的に繰り返すことで得られた電極間電圧値を back-projection 法に基づき画像再構成を行う。画像は計測断面における導電率分布を表しており、(1)式を用いることで任意の要素  $e$

において導電率  $\sigma_{meas}^{(e)}$  は体積分率  $\phi^{(e)}$  に換算される。なお  $\sigma_1$  は液相の溶液導電率である。  

$$\phi^{(e)} = (2\sigma_1 - 2\sigma_{meas}^{(e)}) / (\sigma_{meas}^{(e)} + 2\sigma_1) \quad (1)$$

#### 4. 研究成果

##### 4.1 サンプリグ法

###### 4.1.1 槽内の液流動状態の検討

通気攪拌槽内を観察した結果、翼回転数  $n[s^{-1}]$  によって気泡通過経路が図 5. のように 3 つに分けられることがわかった。 $n$  が低い範囲では気泡は翼に吸い込まれず上昇するため、気泡は槽壁付近を上昇する(A)。翼回転数の増大にともなって気泡は翼に吸い込まれ合し、軸付近を大気泡が上昇する(B)。さらに、 $n$  が上がると気泡は翼に吸い込まれた後に吐出によって分裂し、小気泡が水平方向に広がり上昇するとともに間欠的に大気泡が上昇する(C)。また気泡通過経路から液流動状態を検討するために実験し、図 6. にサンプリングした  $C_1, C_2, C_3$  の経時変化を示す。

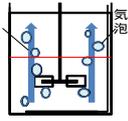
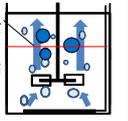
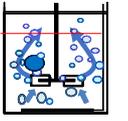
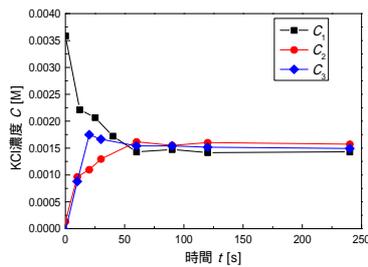
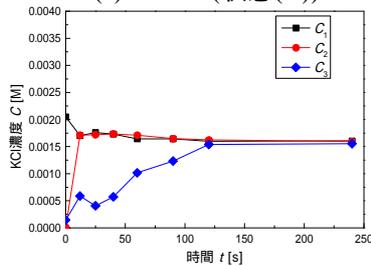
| 状態                | A  | B  | C  |
|-------------------|--|--|--|
| 気泡通過経路の概略         |  |  |  |
| 翼回転数 $n [s^{-1}]$ | 3.0  | 4.0, 5.0, 6.0  | 7.0  |

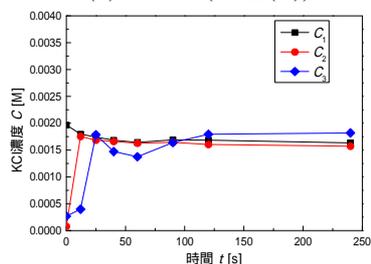
図 5. 気泡通過経路



(a)  $3.0 s^{-1}$  (状態(A))



(b)  $5.0 s^{-1}$  (状態(B))



(c)  $7.0 s^{-1}$  (状態(C))

図 6. C の経時変化

通気開始後カバー内の濃度は減少し、状態(A)では槽壁付近が上昇しその後軸付近が上昇、状態(B)と状態(C)ではまず軸付近が上昇しその後槽壁付近が上昇し一定濃度に収束することがわかった。

###### 4.1.2 混合モデルを用いた気泡同伴液流量の検討

混合モデルとサンプリングした  $C_1, C_2, C_3$  を用いて算出した  $V_{E1}, V_{E2}$  を表 2 に示す。算出した気泡同伴液流量は状態(A)では  $V_{E2}$  が大きく、状態(B)と状態(C)では  $V_{E1}$  が大きくなった。混合モデルを解き気泡同伴液流量を算出することで、液流動状態を定量的に確認することができた。図 7. に気泡同伴液流量の総和  $V_{E, total} (= V_{E1} + V_{E2}) [L/s]$  と  $n$  の関係を示す。状態(B)では  $n$  によらず  $V_{E, total}$  は一定の値となり、状態が変化すると気泡同伴液流量も変化した。気泡同伴液流量は気泡径分布や単一気泡の同伴液流量、気泡の隣接間距離の影響[ ]が複雑に絡み合っているものと考えられる。

表 2 気泡同伴液流量

| $n [s^{-1}]$            | 3.0   | 4.0   | 5.0   | 5.5   | 6.0   | 7.0   |
|-------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| $V_{E1} [L/s]$          | 0.082 | 0.039 | 0.033 | 0.036 | 0.033 | 0.079 |
| $V_{E2} [L/s]$          | 0.140 | 0.001 | 0.012 | 0.010 | 0.008 | 0.000 |
| $V_{E1} + V_{E2} [L/s]$ | 0.223 | 0.041 | 0.045 | 0.046 | 0.041 | 0.079 |

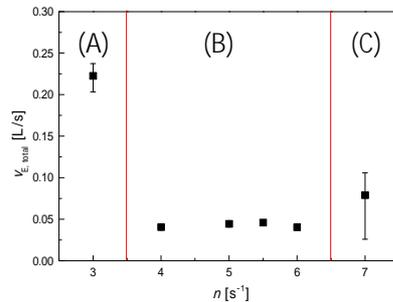


図 7.  $V_{E, total}$  と  $n$  との関係

###### 4.1.3 混合指標

気泡同伴液流量  $V_{E, total}$  とカバー外の体積  $V_T - V_C [L]$  を用いてカバー外循環時間  $t_{cir} (= (V_T - V_C) / V_{E, total}) [s]$  を定義した。 $t_{cir}$  は気泡同伴液流量によってカバー外の液が置換されるまでに要する時間を表す。実験より混合時間  $t_M [s]$  を求めた。 $t_M$  はすべての実験値が  $C \pm 10\%$  となった時刻とした。図 8. にカバー外体積  $V_C [L]$  と  $n$  との関係を示し、図 9 には  $t_M$  と  $t_{cir}$  との関係を示す。図 9. より  $t_M$  は  $t_{cir}$  と相関があり、2.8 回カバー外を循環した時刻となることがわかった。これより、混合達成には  $t_{cir}$  すなわち  $V_{E, total}$  が重要であることがわかった。図 7.-9. より  $t_M$  を(2)式を用いて算出することが可能となった。

$$t_M = 2.8 \times (V_T - V_C) / V_{E, total} \quad (2)$$

ここで  $V_C = 2.1 n^{0.49}$

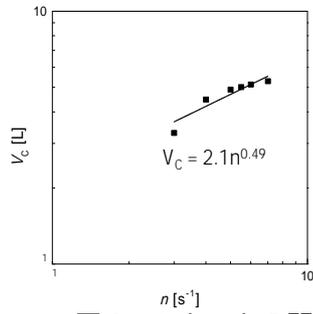


図 8.  $V_c$  と  $n$  との関係

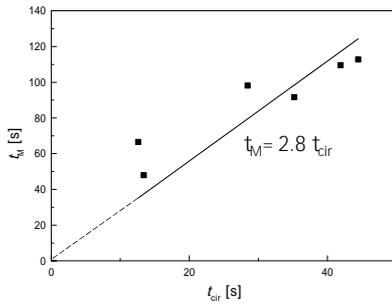


図 9.  $t_M$  と  $t_{cir}$  との関係

#### 4.2 電気抵抗トモグラフィ

##### 4.2.1 断面気相体積分率分布と観察結果との比較

試料濃度 0.20 wt%、通気量 15 L/min、翼回転数 3, 5, 7  $s^{-1}$  における観察結果と体積分率分布を図 10. に示す。3  $s^{-1}$  において気泡が攪拌翼に巻き込まれずに槽壁付近を突き抜ける挙動、5  $s^{-1}$  において槽底で攪拌翼に巻き込まれて合一する挙動、7  $s^{-1}$  において槽底付近では中心付近で、攪拌翼より上部では槽壁付近で体積分率が高くなる挙動、3 つすべての分散状態について、上述のサンプリング法における観測結果と一致する分散挙動をトモグラフィにより計測することができた。

##### 4.2.2 槽内高さ方向気相体積分率分布

計測断面毎に平均値を算出し、断面平均気相体積分率とした。縦軸に計測断面高さを液深で規格化した無次元高さを、横軸に断面平均気相体積分率をとり、図 11. に示す。同図より溶液濃度が高いほど高回転数において断面平均気相体積分率が高くなる傾向のあることが分かる。またすべての条件において通気量が大きいほど気相体積分率が高くなった。翼回転数の増加に伴い、3 断面のうち攪拌翼近傍の断面で顕著に気相体積分率が增加することが分かった。

#### まとめ

通気攪拌操作による槽内の気泡通過経路と液流動状態から攪拌槽における非沈降性スラリー系塑性流体の混合促進機構について検討した。操作条件、とくに翼回転数によって気泡通過経路は大きく 3 つに分けられることがわかった。トレーサを槽に注入し、これを経時的にサンプリングした実験データを元

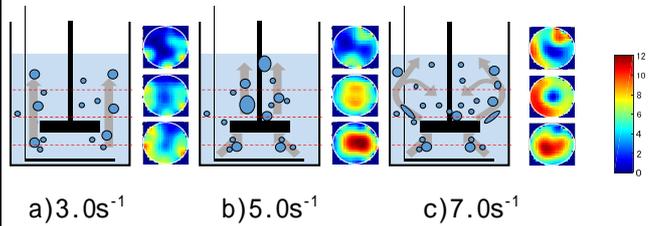


図 10. 断面気相体積分率分布と観察結果との比較

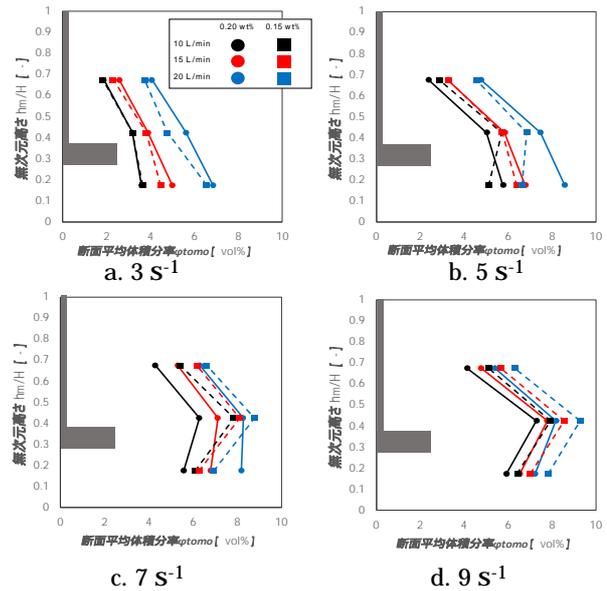


図 11. 槽内高さ方向気相体積分率分布

に混合数値モデルを用いて気泡同伴液流量を算出し、液流動状態を定量的に明らかにした。混合達成には槽内を循環する気泡同伴液流量が重要であることがわかった。混合指標を定義し、気泡同伴液流量とカーブン体積から混合時間を算出する見通しを得た。また電気抵抗方式トモグラフィを用いて気泡通過経路と槽内縦方向の気泡径分布を算定した。気泡通過経路は、目視観測による結果と良く合致するものであった。

今後はさらに沈降性固体粒子が介在する三相系混合・分散状態についても検討を加えていきたい。

#### <引用文献>

Wenyuan FAN, Youguang MA, Xiaolei LI, Huaizhi LI, *Chin. J. Chem. Eng.*, **17**, 904-913 (2009)

#### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 件)

上ノ山周, 仁志和彦, 三角隆太: 「(特集) 攪拌槽における異相系流体の流動挙動・混合過程・分散現象の可視化(数値流動解析手法と電気抵抗方式トモグラフィ計測法を用いて)」, 混相流(特集 混相流と分離・混合技術(2)), 査読なし, 29 巻(4), 317-325 (2015 年 12 月)

上ノ山周, 一条 憲明, 仁志和彦, 三角隆

太：「(特集)電気抵抗方式トモグラフィ法を用いた化学装置における混相流の可視化計測」, 化学工学((特集)高度化する混相流計測技術), 査読有り, 80 巻 (8), 460-463 (2016 年 8 月)

[学会発表](計 11 件)

Kaminoyama, M., S. Ikeda, H. Nakahara, R. Misumi, K. Nishi, "Mechanism of Mixing Enhancement of a Yield Stress Fluid in a Stirred Vessel with Aeration",

Indo-Japanese Symposium "Separation Technology for Green Environment", in 67th Annual Session of the Indian Institute of Chemical Engineers (CHEMCON 2014), p.61 (27th-30th Dec., 2014), Chandigarh (India)

M. Kaminoyama, H. Nakahara, S. Ikeda, R. Misumi and K. Nishi, "Effects of Agitation and Fluid Concentration on the Mixing Enhancement of a Yield Stress Fluid in a Stirred Vessel with Aeration",

International Symposium on Mixing in Industrial Processes VIII (ISMIP8), p.49 (15th-17th Sep., 2014), Melbourne (Australia)

中原ひかり, 三角隆太, 仁志和彦, 上ノ山周, 塑性流体攪拌槽の通気による混合促進機構の気泡通過経路と液流動状態に基づく検討, 化学工学会群馬大会 2015(関東支部大会) (群馬), 2015 年 11 月 27 日(金)-28 日(土) 於: 桐生市市民文化会館

M. Kaminoyama, H. Nakahara, R. Misumi, K. Nishi, "Study on the Mechanism of Mixing Enhancement in a Plastic Fluid by Aeration in a Stirred Vessel Equipped with a Concave Impeller", International Workshop on Process Intensification 2016 (IWPI 2016), (29th-30th Sep., 2016), Manchester (U.K.)

杉山 幸司, 上ノ山周, 仁志和彦, 三角隆太, 2 電極法を用いた小型翼付き攪拌槽における塑性流体の混合領域体積と混合過程の定量化, 混相流シンポジウム 2016 (京都) 2016 年 8 月 8 日(月)-10 日(水) 於: 同志社大学 今出川キャンパス

Sugiyama, K., R. Misumi and M. Kaminoyama, "Quantification of Dispersion Phase Concentration Distribution in High Concentration Liquid-Liquid Stirred Tank Using Image Analysis", The 11th International Conference on Separation Science and Technology (ICSST17), FP-11 (9th-11th Nov. 2017),

Busan (Korea)

杉山 幸司, 三角隆太, 上ノ山周, 高分散相濃度の液液攪拌槽における分散相濃度分布の画像解析による定量化, 化学工学会第 49 回秋季大会 (名古屋), 2017 年 9 月 20 日(水)-22 日(金) 於: 名古屋大学 東山キャンパス

新井 一輝, 三角隆太, 上ノ山周, PIV 計測の回転座標変換によるラシュトンタービン周りの流速分布の定量化, 化学工学会第 49 回秋季大会 (名古屋), 2017 年 9 月 20 日(水)-22 日(金) 於: 名古屋大学 東山キャンパス

Arai, K., H. Tanabe, R. Misumi, M. Kaminoyama, "PIV measurements of discharge flow velocity distributions ahead of and behind rotating blades in stirred tanks",

10th World Congress of Chemical Engineering (WCCE10), 83367 (1st-5th Oct., 2017), Barcelona (Spain)

袴田 時生, 三角隆太, 上ノ山周, 層流域から乱流域における攪拌羽根まわりの流動状態の PIV 計測による定量化, 第 20 回化学工学会学生発表会(東京大会) (東京都葛飾区), 2018 年 3 月 3 日(土) 於: 東京理科大学葛飾キャンパス

上ノ山周, 三角隆太, [依頼講演] 拌型化学装置における流動・分散状態の可視化・定量化手法とその適用事例, 化学工学会第 83 年会 (大阪), 2018 年 3 月 13 日(火)-15 日(木) 於: 関西大学 千里山キャンパス

[その他]

ホームページ等

<http://www.kaminoyamalab.ynu.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

上ノ山 周 (KAMINOYAMA, Meguru)  
横浜国立大学大学院工学研究院・教授  
研究者番号: 5 0 2 3 3 9 4 5

(2) 連携研究者

仁志 和彦 (NISHI, Kazuhiko)  
千葉工業大学工学部・教授  
研究者番号: 2 0 2 6 2 4 1 2

三角 隆太 (MISUMI Ryuta)  
横浜国立大学大学院工学研究院・特別研究  
教員  
研究者番号: 4 0 3 3 4 6 3 5

(3) 研究協力者

中原 ひかり (NAKAHARA Hikari)  
山本 大生 (YAMAMOTO Taisei)  
新井 一輝 (ARAI Kazuki)  
杉山 幸司 (SUGIYAMA Koji)  
袴田 時生 (HAKAMADA Tokio)