



Title	攪拌槽内における液滴の挙動について
Author(s)	遠藤, 一夫; Hirano, Harumochi; 平野, 晴望 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 35, 473-481
Issue Date	1964-06-30
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/40744
Type	departmental bulletin paper
File Information	35_473-482.pdf



攪拌槽内における液滴の挙動について

遠藤 一夫
平野 晴望

On Disintegration of Droplet in Liquid-Liquid Contacting Mixer

Harumochi HIRANO
Kazuo ENDOH

Abstract

Studies were made on the rate of disintegration of droplets fully developed in an agitator. A modification of a photoelectric technique developed by authors was used to measure an interfacial area of droplets. Most of the emulsion studied was made up of tetraline as the dispersed phase with water as the continuous phase.

The interfacial area of droplets increases and drop size decreases with mixing time and then tends to have a certain definite value at sufficient length of mixing time. Experiments showed that for a given dispersed phase concentration in water, light scattering became constant after 5~20 minutes of mixing. From the experiments, it was found that the time constant of disintegration, $1/\alpha$, tends to decrease with the -1.8 power of rotational speed.

In addition, the effect of rotational speed of impeller on the rate of mass-transfer was indicated. The electric conductivity arrangements enabled to measure the rate of mass-transfer. The solute employed was benzoic acid; this was transferred from the tetraline phase to the continuous, aqueous phase. The results indicated that the experimentally determined time constant of mass-transfer, $1/\beta$, tends to decrease as the -1.8 power of rotational speed.

The studies concerned were of correlation of mass-transfer rate for the rate of disintegration of droplets. It has been shown that changes in interfacial area occurring during disintegration process may have a significant effect on the rate of mass-transfer.

まえがき

液・液系の接触による移動速度を増加させるためには、液体を細分化して、その表面積を増加させることが通常の方法であるが、操作が簡単であるために、工業規模では攪拌によることが多い。

攪拌によって液滴を細分化する際に、どの程度まで、液滴が小さくなるかを評価せねばならない。筆者の一人は、さきに、攪拌による流体の乱れの場を、局所的に等方性であるとして

液滴に働く乱流の力と、界面張力による変形に抗する力とのバランスによって、安定に存在しうる液滴の大きさを推定し、著しく稀薄な濃度範囲で、その実験的検討を行なった¹⁾。

同様な解析方法は、のちに Shinner²⁾ らが報告しているが、ともに Kolmogorov の局所等方性乱流理論の成果を適用したものである³⁾。

実操作では、液滴と周囲の流体との移動現象は、液滴が槽内で分裂して細分化され、新たな界面が時間とともに生成して、平衡状態に至る過程で進行するものと想定される。この際に問題となるのは、分裂を始めてから、液滴が平衡状態に至るタイムスケールと、移動現象そのもののタイムスケールとの大小関係であって、後者が前者に比べて著しく大きいときには、平衡状態にあるとして現象を扱えばよいことになる。また、この関係が逆であるときには、過渡状態として問題を扱わねばならない。

筆者の一人は、さきに、攪拌羽根によって気泡化されて、槽内の液と物質移動を起す現象の速度式を検討した⁴⁾。従来考えられていたように、移動現象が槽内ではほぼ一様に起るのではなくて、攪拌羽根によって細分化されて新たな界面が生成する攪拌根の近傍において、移動の殆んどが行なわれるという全く新たな仮定を提出することによって、内外の既往の諸結果及び筆者の一人が行なった実験結果が十分説明されることを示した。森らも最近このような仮定が用いられることを実験によって検証している⁵⁾。

したがって、液・液系の移動現象においても、液・液界面積の時間的变化、即ち、新たな界面の生長速度が、移動速度に関係するであろうことが推定されるのである。液滴とその周囲の液体との物質交換は、液滴がある定常的な大きさをもつものとして解析が試みられてきた。液滴が平衡状態に達するまでに要する時間のオーダーが指摘されていなかったからであろう。

筆者の一人は、この時間のオーダーを与えて、移動現象そのもののタイムスケールよりも液滴が平衡状態に至るタイムスケールの方が十分大きい場合が、実操作ではむしろ多いことを指摘して、その時間を支配する関数関係を示した⁶⁾。

即ち、液・液系の移動速度を検討する指針となりうるものは、むしろ分散液滴の挙動に関する力学的方法であって、スケールアップに際して、両槽について分散液滴の挙動が同等であるならば、物質移動速度もまた同等であるとする考え方が適用できると考えるものである。このときには、物質移動に関する相似条件は、力学的な相似条におき代えられることになる。そして、細分化が乱流場内で起る特定の場合には、これに伴う物質移動の相似則は、乱流場の相似則におきかえられるのである。

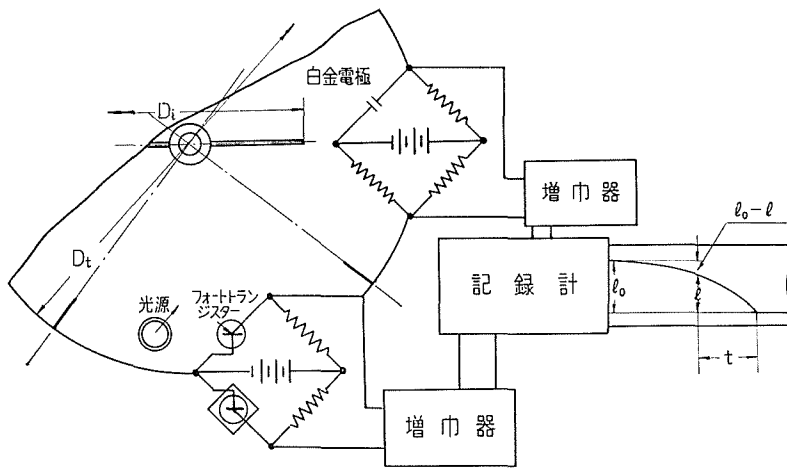
このような目的をもって行なわれた実験の一部をここでは報告する。

I. 実験装置

内径 15, 20, 40 cm の攪拌槽内に純水を内径と等しい高さまで入れて、30°C の恒温に保つ。邪魔板の幅は、槽内径の 1/10, 4 枚を等周に内壁に固定させておく。

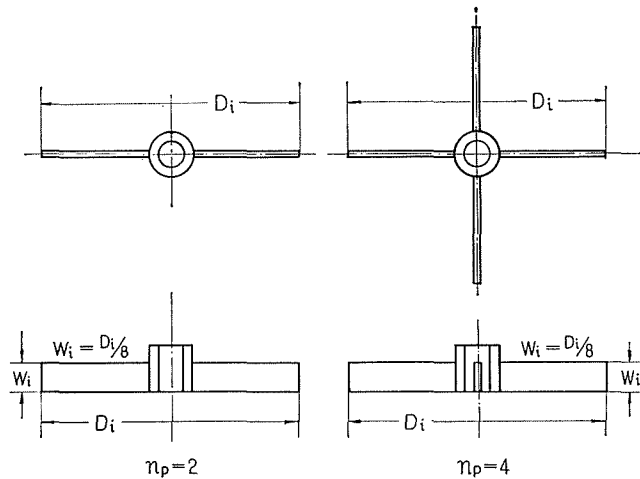
液滴の界面積を測定する電気的方法として、従来小型の光電管を光源ともきに槽内に入れて、透過光を検出している。界面積を連続記録するためには、やはり槽内に検出端をおいた電気的方法によらねばならないが、光電管では流れに影響を与えるので、筆者の一人はフォトトランジスタによって、散乱光を測定する方法を採用した。

本実験で用いているのは、これであって、その実験技術は、別紙⁷⁾に発表したもので、ここでは省略するが、直流ブリッジの4つの抵抗素子のうち、2つをフォトトランジスタに代え、その一方の光路を閉じて暗電流補正用としている。ブリッジの出力を直流増幅して、ペン書きのレコーダーで、散乱光の入射による非平衡から生ずる出力を記録する(第1図)。



第1図 実験装置

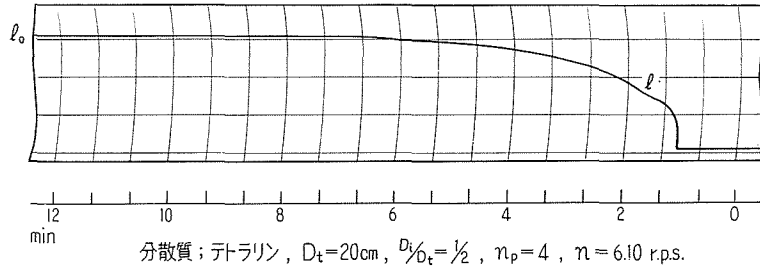
第2図は、実験に用いた攪拌羽根であって、槽中心軸に沿い、槽底から、液深の1/3の位置においた。



第2図 攪拌羽根(櫂型)

II. 液滴の分散過程

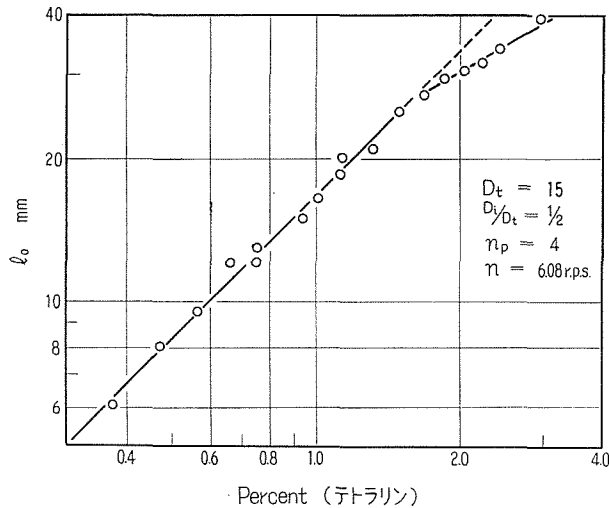
ペン書きレコーダーに記録したデータの一例を第3図に示す。分散質を槽上部から投入すると、最初のうちは界面積の変化は著しいが、時間とともに減少して、一定の界面積を示すようになる。



第3図 界面積の時間的变化

分散質の濃度が小さな場合に、微粒化粒子相互の凝集による粒径の変化が無視できるならば、攪拌羽根の回転数を一定とした場合に、平衡状態における全界面積は投入分散質量に比例する。そして、ペン書きレコーダーに記録された平衡状態におけるガルバーの変位が、投入分散量に比例するならば、実験に用いた光学、電気回路は、分散質の界面積に対して比例した出力を与えると仮定できるであろう。

第4図は分散質の投入量をかえて、ペン書きレコーダーの最大変位、即ち平衡状態における変位をプロットしたものであり、分散質濃度が1.5%以下では、比例関係があらわれている。図上では直線的な傾向からはずれる範囲では、凝集の効果があらわれるのか、或いは、微粒化



第4図 分散質の投入濃度と最大変位との関係

粒子群が、光源とフォトランジスタ間で、互いに影をつくり、重なり合つて乱反射光を弱める作用 (mutual shading) が顕著となるかを判定することはできない。

微粒化粒子径が時間的に変化する範囲では、その界面積は、平衡時における界面積よりも小さい。したがって、平衡状態において上述の比例関係が成立する濃度範囲に実験を限定するならば、非定常時の界面積は、各時間におけるガルバーの変位に比例すると仮定することができよう。本実験では、このような濃度範囲について実験を行なっている。

凝集の作用が無視できる、比較的低濃度の場合には、分散液滴の平均径は回転数の1.2乗に逆比例する¹⁾。この既往の実験結果を、レコーダーの変位の検討に用いるならば、分散質量を一定としたとき、平衡状態におけるレコーダーの変位は、回転数の1.2乗に比例することになる。第5図は、これが十分満足されることを示している。

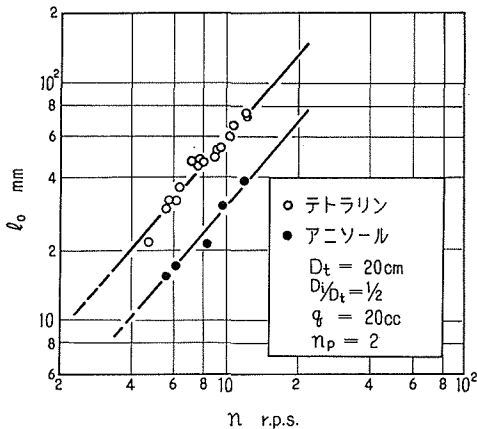
非定常時におけるガルバーの変位は第3図より、ほぼ指数的に変化している。本実験の目的は、時間の初期状態における分散化の挙動を求めることにあつて、図上より、分散質を投入した時間初期における変位の勾配を求めればよい。しかし、初期状態では、分散質が槽内に分布するために要する時定数をスケールとした変動が重なっているために、良好な近似で接線を引くことはできない。

このために筆者らは、ペンの動きがほぼ次式で示されることを見出して

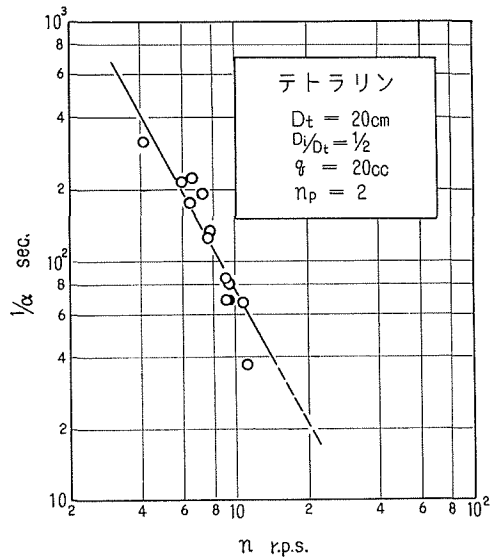
$$l = l_0(1 - e^{-\alpha t}) \tag{1}$$

指数関係と仮定した式中の α を算定することによって、初期状態における分散化の速度を推定した。 l_0 は平衡状態における変位量、 l は任意の時間における変位量である。

(1) 式が、成立するとするならば、 l_0 は平衡状態における界面積に、したがって、分散液滴



第5図 最大変位 l_0 と n との関係



第6図 時定数 $1/\alpha$ と n との関係

径に対応する量であるために、液滴の各分裂過程が、平衡状態における液滴の挙動を規定する量と何らかの関係をもつことになるが、この点に関してのデータは未だ不足であるので、(1)式は実験結果を示す近似式として扱うことに止める。

第6図は、分散化のタイムコンスタント $1/\alpha$ と、回転数との関係を示す代表例である。前に行なった実験⁶⁾と同様に

$$1/\alpha \propto n^{-1.8} \quad (2)$$

なる関係が認められる。

ここで、 α を無次元化して

$$\alpha t = knt \quad (3)$$

とおけば、無次元項として、考えられる操作量は

$$k = f(\sigma, \rho, n, D_i) \quad (4)$$

σ は界面張力、 n 、 D_i は攪拌羽根の回転数および直径である。

k が液滴が変形して、その形状が不安定になるまでの時間、即ち分裂のための待ち時間に関係するとすれば、分散質の粘度の項などを加えねばならない。しかし、ここでは、分散化の時間の初期のみを扱っているために、分散化は、殆んど攪拌羽根によるはげしい剪断作用によって起るものとして、この項を無視している。

上式の変数から導かれる無次元項は、ウェーバ数 $(\rho n^2 D_i^3 / \sigma)$ のみであって、 k は回転数 n の0.8乗に比例せねばならない。したがって、実験結果を説明するペンの変位は

$$l = l^0 [1 - \exp\{-k' (\rho n^2 D_i^3 / \sigma)^{0.8} nt\}] \quad (5)$$

となる。

l を界面積 A に代え

$$A_0 \propto (n^3 D_i^3)^{2/5} \quad (6)$$

なる関係を代入するならば

$$A = a (n^3 D_i^3)^{2/5} [1 - \exp\{-b (n^3 D_i^3)^{0.8} t\}] \quad (7)$$

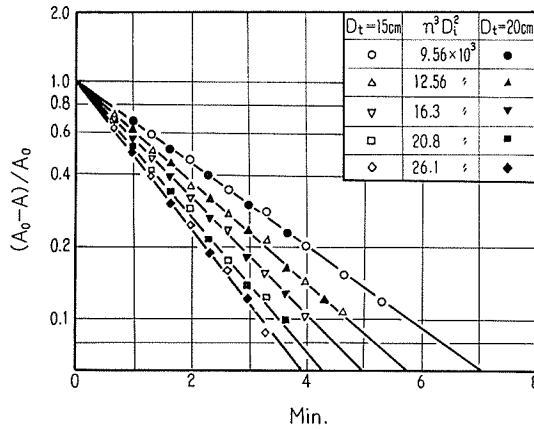
或いは

$$A_0 - A/A_0 = \exp[-b (n^3 D_i^3)^{0.8} t] \quad (8)$$

となる。

第7図は、テトラリンを分散質として、直径15, 20 cmの相似攪拌槽について、上式を検討したものであって、 $(n^3 D_i^3)$ が同一であって、両相について分散系が同一である場合には分散化の挙動が共に同一となることが示されている。

本実験において、ほぼ10分を過ぎれば、分散粒子径が平衡に近づくことが明らかになったが、連続攪拌槽において、平均滞在時間が上式の指数関数の第一近似を許す程度のオーダーで

第7図 $(n^3 D_t^2)$ をパラメーターとする界面積の変化

ある場合には、滞在時間を τ として

$$A_\tau \approx ab (n^3 D_t^2) \cdot \tau \quad (9)$$

一方、乱流域における攪拌動力 P は

$$P \propto \rho n^3 D_t^5 \quad (10)$$

であり、本実験は上式が成立する範囲内で行なわれているために

$$A_\tau \approx P_v \cdot \tau \quad (11)$$

が成立する。

即ち、連続攪拌槽を出る分散質は、その入口より出口に至る間に、攪拌液の単位容積当りに消費される動力 P_v と、滞在時間 τ との積に比例して界面積が増加することが予測されるのである。

III. 分散過程と物質移動

Flynn 及び Treyball⁹⁾ は、直径 6" 及び 12" の互いに相似の邪魔板付密閉槽を用いて、6 枚羽根のタービンによって液-液抽出の実験を行なっている。トルエン-水、クロシン-水の系を用いた安息香酸の連続抽出の効率は、各槽について、攪拌液の単位容積当りに消費される動力と、槽内平均滞在時間との積を因子としてあらわされている。(11) 式と同様なタイプである。この場合には、連続抽出効率が攪拌槽内で増加する分散質の界面積と関係をもつと考えてよいであろう。大、小相似の攪拌槽につき分散相の単位容量について、攪拌槽内を通過する際に増加する界面積が等しいならば、両者の抽出効率は等しくなると仮定するのである。

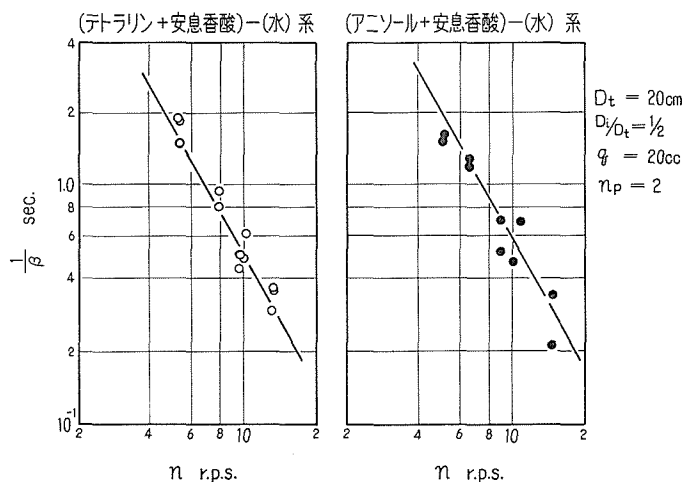
抽出の物質移動速度は、上述と異なり、個々の時間の変化が関与している。そのメカニズムはまだ明らかではないが、新しい界面の生成速度に移動速度が比例するとすれば、前章の結果は意味をもちうるであろう。Ryon ら⁹⁾ は、直径 6", 12", 20" の邪魔板付攪拌槽を用いて、

TBP によるウラン抽出の基礎実験を行なっているが、3槽についての物質移動係数は、攪拌液の単位容積当りに消費される動力 P_v によって一致した相関関係が得られているのである。

このようなことから想定されるのは、分散過程における液-液間の物質移動を支配する量は、むしろ液滴界面の更新速度であって、分散過程においては、更新速度とは、分裂による新しい界面の生成速度によって代表されるということである。

筆者らは、このような仮定を検討するために、テトラリン及び、アニソール中に安息香酸を溶解させたものを分散質とし、それが分散する過程における安息香酸の溶解速度を測定した¹⁰⁾。

分散媒(純水)中の溶解安息香酸の濃度を白金電極によって検出して、レコーダーに記録すれば第6図と同様な形状をたどり、そのタイムコンスタント $1/\beta$ は第8図で示される。



第8図 時定数と n との関係

この場合においても

$$\frac{1}{\beta} \propto n^{-1.8} \quad (12)$$

なる関係が成立している。即ち、分散化の挙動と、物質移動の挙動とは同型となることが想定されるのである。

IV. 今後の問題

本実験は、ようやく端緒に至った所であって、残された問題は少くない。本実験の目的とするスケールアップの指針をうるためには、液滴の分裂過程について、単に時間初期のみを問題とはせず、平衡状態より偏った状態から、どのような速度でこれに復帰するかを実験的に検討することも必要であろう。また、分散質の濃度を大きくとって、分散化とともに凝集の起る場合について、上記の如き実験データが蓄積されねばならない。これらの点にふれて、他日

報告の機会をもつものと考えている。

あ と が き

本実験が北海道大学において、再び始められるに至ったのは、旭硝子工業技術奨励会による研究補助によることが大きく、原竜三郎先生、岡本剛教授に厚くお礼を申し上げます。

引 用 文 献

- 1) K. Endoh and Y. Ōyama: J. Sci. Res. Inst. **52**, No. 1486 (1958).
- 2) R. Shinner: J. Fluid Mech., **10**, 259 (1961).
- 3) 遠藤一夫・西村 肇: 化学工学, **22**, 533 (1958).
- 4) K. Endoh: Sci. Pap. I. P. C. R., **53**, No. 1518 (1959).
- 5) 森 俊郎・永田進治ら: 化学工学協会研究発表講演要旨 (1963, 4月).
- 6) 大山義年・遠藤一夫: 化学工学協会研究発表講演会 (1960, 7月).
- 7) 遠藤一夫: 化学工学, **27**, 353 (1963).
- 8) A. W. Flynn et al.: A. I. Ch. E. Journal, **1**, 324 (1955).
- 9) A. D. Ryon et al.: Chem. Eng. Progress, **55**, 70 (1959).
- 10) 平野晴望・遠藤一夫: 化学工学協会反応工学シンポジウム (1963, 9月).