三相系における粒子及び気泡濃度分布測定用の超音波 CT 法*

Ultrasonic computed tomography for measuring cross-sectional distributions of solid and gas concentrations in three-phase bubbly flow

ワ ル シ ト** M.B. ウトモ*** 内 田 重 男***
WARSITO Marsudi B. UTOMO Shigeo UCHIDA

Abstract An ultrasonic computed tomography (UCT) developed for measuring time-averaged cross-sectional distributions of gas and solid concentrations in three-phase flow is described. The ultrasonic computed tomography is a coupling of a transmission mode ultrasonic sensor developed in Department of Chemical Engineering, Shizuoka University and a tomographic reconstruction technique based on dynamic neural network optimization algorithm developed in Department of Chemical Engineering, The Ohio State University. The ultrasonic sensor is based on measurements of the energy attenuation and the velocity change of ultrasonic pulse waves transmitted through the three-phase medium, enabling the measurements of the gas and the solid concentrations in the system simultaneously. The tomographic reconstruction technique has been proven to reconstruct simulated tomographic data accurately even with a very small number of projection data as used in the measurement. The application of the technique to a water-air-particles flow system in a bubble column is described. Glass beads with diameters of 100, 260 and 350 micron meters are used as the solid phase. The time-averaged macroscopic flow structure and the behavior of the gas bubbles and solid particles distributions are investigated. The effects of gas velocity, solid loading and particle diameter to the behaviors of bubbles and particles distributions in the three-phase system are also discussed.

Keywords: Ultrasonic Computed Tomography (UCT), Three-Phase Flow, Slurry Bubble Column, Gas Bubble, Solid Particle, Cross-Sectional Concentration Distribution.

1. はじめに

懸濁気泡塔や三相流動層のような三相流動系は化学及び生物化学反応装置として広く用いられ、装置の簡便性ならびに建設費及びランニングコストの低減を達成する点において他の反応器にない特徴を有している。近年、排ガス処理、石炭液化、醗酵プロセス等益々広

範囲に利用されている。装置の開発やスケールアップには包括的な流動特性、すなわち操作領域、流動様式、気泡及び粒子特性、特にガス及び粒子ホールドアップ〔濃度〕に関する知識は重要である。ガスホールドアップは塔内の流動状態、気泡径、気泡上昇速度、気液界面などに関係し、粒子ホールドアップは混相密度に直接

* 2000. 10. 25 受付

** Dept. of Chemical Engineering, The Ohio State University, 140 W 19th Ave., Columbus, OH, USA 43210 TEL. +1(614)292-4935 FAX +1(614)292-3769

*** 静岡大学工学部化学工学科 〒432-8561 浜松市城北3-5-1 TEL. (053)-478-1170

関係し反応を伴う場合物質移動の計算に影響を与え、両者は三相流動、物質移動及び熱移動特性を解析するために重要なパラメータである。更に、従来の取り扱いが定常的かつ粒子に対して均一的な流動や物質移動を仮定しているのに対し、実際の流れは空間的偏りや時間変動を持ち、これらの偏りや変動そのものが物質移動に大きな影響を与えている。局所的及び時間的変動を取り扱う流動特性を調べるにはコンピュータの計算能力の発達に伴い、近年数値流体力学が大きな進歩を示しているが、気泡の合や分裂を伴う多気泡系や粒子が存在する三相系のような複雑な混相流ではまだ実験的手法に多に頼っている。しかし、その他の多くの系に対しても測定技術の無さなどによりその測定はしばしば制限されている。例えば、これまで粒子濃度の測定にサンプリング以外の方法は無い。より包括的かつ詳細な流動、物質移動及び熱移動に関する知識を得るためには非干渉的局所的、更に粒子及び気泡について同時に測定できる新しい実験手法の開発が必要である。また数値計算による結果や新しい理論開発の検証のためにもこのような実験技術が求められている。

本論文では最近世界的に広く注目を浴びている、最先端技術であるプロセス・トモグラフィーによる測定方法、特に筆者が開発してきた超音波CT法について解説する。本論文で説明するトモグラフィー法は静岡大学で開発した超音波センサーとオハイオ州立大学〔米国〕で開発したトモグラフィー再構成法を併用したものである。本超音波センサーは三相系を伝搬した超音波パルスの減衰と音速変化の測定により粒子及びガス濃度の同時測定が可能である。一方、本研究に使用したトモグラフィー再構成法は動的ニューロネットワークによるものであり、シミュレーションにおいて実験と同数のトモグラフィーデータ〔投影データ〕を元に元画像を正確に再現することを示す。以上の組み合わせによって正確な超音波トモグラフィー法ができ、三相系における塔断面時間平均粒子及び気泡濃度分布の同時測定が正確にできる。本トモグラフィーを更に懸濁気泡塔に適用し、その流動状態及び各相分布特性を考察する。

2. 超音波CT法の原理

トモグラフィー法は基本的に二つの段階に分けられ、すなわち(1)投影値〔積分値〕の測定、(2)画像〔濃度分布〕の再構成である。

2.1 積分値の測定

Fig.1に示すように、濃度分布 $f(x, y)$ を持つ混相系を超音波パルスが伝搬した時、受信器で受けた超音波パルスのエネルギー減衰または音速変化は次式で表すことができる。

$$p(s, \theta) = \int_{L_{s, \theta}} f(x, y) dL \quad (1)$$

気液固三相系では投影値 $p(\xi, \theta)$ は次の関係を持つ[1]。

$$p(\xi, \theta) = \overline{f(x, y)} \cdot L_{\xi, \theta} \quad (2)$$

$$p(\xi, \theta) = \Delta T_{\xi, \theta} / K_S \quad \text{for solid (3a)}$$

$$p(\xi, \theta) = \frac{(1 - W_{\xi, \theta}) L_{\xi, \theta}}{K_S} - \frac{X_S \Delta T_{\xi, \theta}}{X_G} \quad \text{for gas (3b)}$$

ここで、 $L_{\xi, \theta}$ は積分領域で、実際に幅 ΔL (超音波センサーの直径幅)を持つ。 $\Delta T_{\xi, \theta}$ 及び $W_{\xi, \theta}$ はそれぞれ音速変化及び減衰を表す。 X_S 及び X_G はそれぞれ粒子及び気泡による減衰係数で、 K_S は粒子による伝搬係数を表し、これらの係数は実験によって求まる。

Fig.1 General principle of integral measurement in tomography

2.2 トモグラフィー再構成法

トモグラフィー法の次の仕事は求められた積分値を基にトモグラフィー画像〔分布 $f(x, y)$ 〕を計算することである。これはトモグラフィー再構成といい、いくつかの方法がある。医療関係で使われるX線など線形積分に基づいたトモグラフィー法ではフーリエ変換に基づいた、次式で表されるフィルタ付き逆投影法が標準的に使われている。

$$f(x, y) = \int_0^\pi [p(\xi, \theta) * g(\xi)]_{\xi=x \cos \theta + y \sin \theta} d\theta \quad (4)$$

ここで*記号は重畳積分を表し、(4)式は元画像を全ての投影データ $p(\xi, \theta)$ にフィルタ関数 $g(\xi)$ を掛けて、全方向に足し合わせることによって求めることを意味する。

上記の方法によって求めたい元画像〔分布関数〕が解析的に得られるが、この方法の最大の弱点は正確な画像を得るには膨大な積分値データが必要で、実験数が限られる工学分野へ適用する場合は適していない。限られるデータを基に正確な画像を再現するのがプロセストモグラフィーの最大の課題である。そこで本研究で使用する動的ニューロネットワーク最適化に基づいた再構成法を簡単に紹介する。この方法のより詳しい説明は参考文献[2]を参照されたい。

(1) 式を展開して、ベクトル表示すると、次式になる。

$$\mathbf{y} = \mathbf{A} \cdot \mathbf{x} + \mathbf{e} \quad (5)$$

ここで、 $\mathbf{y}$ は積分値の列ベクトルで $M \times 1$ 次元を持つ。 $\mathbf{x}$ は $N \times 1$ 次元の画像ベクトルで、実際に求めたい分布関数 (グレーレベル) に相当する。 $\mathbf{A}$ は $M \times N$ 次元を持ち、投影行列 (projection matrix) と言う。 $\mathbf{e}$ は誤差ベクトルを表す。

従って、トモグラフィー再構成問題は測定データ $\mathbf{y}$ を基に誤差 $\mathbf{e}$ を最小化する画像ベクトル $\mathbf{x}$ を仮定する問題に変換できる。しかし、実際に誤差 $\mathbf{e}$ ははっきりわからないため、問題はある幾つかの条件を満たす解 (compromise solution) を選ぶ、すなわち

$$\mathbf{X} = \left\{ \mathbf{x} \in R^N \mid \mathbf{A}\mathbf{x} \leq \mathbf{y}, \mathbf{x} \geq 0, \mathbf{y} \in R^M, \mathbf{f}(\mathbf{x}) \rightarrow 0 \right\} \quad (6)$$

ここで、 $\mathbf{f}(\mathbf{x})$ は条件関数を表し、最小にする関数である。トモグラフィー画像再構成問題で 사용되는条件としては一般に [1] 最大のエントロピーを持つこと、[2] 測定した投影値と計算値との重み付き二乗誤差が最小になること、[3] スムーズであること、[4] 元の画像と一致していることなどである。[1] ~ [3] の条件は数学的にはそれぞれ(7)~(9)式で表すことができる。

$$f_1(\mathbf{x}) = -\gamma_1 \sum_{j=1}^N x_j \ln x_j \quad (7)$$

$$f_2(\mathbf{x}) = \gamma_2 (\mathbf{A}\mathbf{x} - \mathbf{y})^T \mathbf{D}^{-1} (\mathbf{A}\mathbf{x} - \mathbf{y}) \quad (8)$$

$$f_3(\mathbf{x}) = \frac{1}{2} \gamma_3 (\mathbf{x}^T \mathbf{S} \mathbf{x} + \mathbf{x}^T \mathbf{x}) \quad (9)$$

ここで、 $\gamma_1 \sim \gamma_3$ は 0 と 1 の間の値を持つ係数で、 $\mathbf{D} = \text{diag}[\sigma^2, \Lambda, \sigma^2]$ 、 σ はガウス分布の標準偏差値である。 $\mathbf{S}$ は $N \times N$ 次元を持つ非一様性行列またはスムーズ行列である。

トモグラフィー再構成問題は多条件関数〔目的

関数〕 $f_j(\mathbf{x}) = (f_1(\mathbf{x}), f_2(\mathbf{x}), f_3(\mathbf{x}))$ を同時に最小化する画像〔グレーレベル〕 $\mathbf{x}$ を選ぶことである。これはスカラー化問題と同様、数学的に書くと、

$$\min_{\mathbf{x} \in \mathbf{X}} \mathbf{f}(\mathbf{x}) = \sum_{i=1}^3 \omega_i f_i(\mathbf{x}) \quad (10)$$

ここで、 $\omega_1 \sim \omega_2$ は 0 と 1 の間の値を持つ係数である。

(10)式の多条件最適化問題を解くには Hopfield 動的ニューロネットワーク[3]を用いる。同様な方法が医療イメージングにおける画像再構成に適用されている[4]。この方法は簡単に説明すると、各画像要素(pixel)をニューロンとして最適化する関数を基に計算エネルギーを定める。この計算エネルギーをニューロンのエネルギーとし、エネルギー収支と運動方程式との関係を用いてピクセルのグレーレベルとなるニューロンの出力を計算する。Hopfield ニューロネットワークの特徴は与えられた初期条件 (初期のグレーレベル) よりニューロンの運動エネルギーの収支が取れた最終グレーレベルまで自動的に収束する。従って、バックプロパゲーションのような、手間がかかるネットワーク学習を必要としない。

この方法と繰返し逆投影法 (Iterative Filtered Back Projection Technique = IFBPT) との再構成結果の比較を Fig. 2 に示す。図に示しているように、実験と同様の同間隔 8 経路 $\times$ 18 方向投影条件で本方法 (Neural Network Multi-criteria Optimization Image Reconstruction Technique = NNMOIRT) が元の画像を正確に再現することがわかる。一方、前回使用した逆投影法[1]は定性的にしか元の画像を再現していないことがわかる。

3. 実験装置及び方法

実験は直径 14cm、塔高さ 140cm のアクリル製パイプで行われる (Fig. 2)。ガス分散器は 6 つの穴を持つ分散板で、コーンの形をしている搭底部に置かれている。詳しい図と説明は[1]を参照されたい。気液二相系では液相に水道水、ガス相に空気を正在している。気液固三相系では粒径 100、260 及び 350 ミクロンのガラスビーズを加える。

超音波パルスはパルス発信器から発信され、送信器を通して塔内に伝搬される。塔内を伝搬した超音波パルスを受信器に受け、増幅器によって増幅した後、オシロスコープ画面上でその波形を解析し、振幅と位相差を測定する。これらの詳しい説明は参考文献[5]に述べられている。

トモグラフィーデータを取るために、周方向に 6 組の超音波送受波器を等間隔で平行に設置し、外挿補間によって一方向計 8 つの測定ができる。

これに相当する空間解除度は約 3%である。センサー部分は自由に回転できるように設計してあ

り、各方向からの測定が出来る。測定は 18 方向から等角度の間隔で行われる。これ以上角度

Fig. 2 Comparisons of reconstruction results between Iterative Filtered Back Projection Technique (IFBPT) and Neural-Network Multi-criteria Optimization Image Reconstruction Technique [NNMOIRT]

Fig. 3 Ultrasonic tomography system

の間隔を減らしても、再構成結果の精度は上がらないことがわかった。計 8 経路×18 方向からの投影データを 2 節で説明した動的ニューロネットワーク画像再構成法を用いて気液系または気液固系における粒子及びガス濃度〔ホールドアップ〕の塔断面時間平均分布を求める。

4. 結果及び考察

4.1 粒子及び気泡濃度分布とマクロ流動様式

Fig. 4 に超音波 CT 法によって得られた粒子及び気泡濃度〔ホールドアップ〕塔断面時間平均分布を示す。気液二相系では気泡の分布は軸対称の中心分布に近い。気液固三相系（体積基準粒子充填量 1%）では、塔低部では気泡の分布が塔中央部が凹んだドーナツ型分布となっていることがわかる。塔上部では気泡の分布は気液二相系と同様な中心型分布となっている。粒子充填量 2% ではドーナツ型分布が塔高さ 50cm のところまで見られるが、塔上部では気液二相系と同様な中心型分布となる。一方、粒子の分布は粒子充填量 1% において気泡の分布がドーナツ型となった塔低

部では中心部に粒子が残ったドーナツ型分布となり、気泡の分布が中心型分布となった塔上部では粒子の分布がドーナツ型分布となっている。粒子充填量 2% において気泡の分布がドーナツ型となった塔低部では中心部のピークが著しく大きくなり、気泡が中心型分布となった塔上部ではドーナツ型分布となっていることがわかる。これらの粒子及び気泡の分布の傾向は繰り返し逆投影法〔IFBPT〕トモグラフィー再構成法を用いた場合[1]と同様である。

Warsito ら[1]は上記の粒子及び気泡の分布メカニズムを説明するために Fig.5 に示した懸濁気泡塔におけるマクロ流れ構造を提案した。Fig.5 に示した結果より動的ニューロネットワーク最適化法〔NNMOIRT〕によって再構成した結果にも同様な説明が適用できると考えられる。Fig.5 に示しているように、塔低部では旋廻しながら上昇している気泡群が塔壁近傍に沿って周方向運動をし、気泡群の他方の部分に旋廻渦流動領域ができる。この周方向運動は分散板上におけるガスの不均一な圧力分布によるものである[1]。

Fig. 4 Cross-sectional time averaged gas and solid concentration distributions in gas-liquid and gas-liquid-solid systems

Fig.5 Model of flow scheme in slurry bubble column

Fig.5 に示した流れ構造によって、気泡は高速上昇気泡流動領域に集中し、一方粒子は塔壁付近または旋廻液相渦流動領域と高速上昇気泡流動領域との間に集中する。その結果、時間平均では Fig.5 に示しているように気泡は塔底部ではドーナツ型、塔上部では中心ピーク分布を作る。一方、粒子の分布は塔底部では塔壁付近がピークとなったドーナツ型分布と中心ピーク分布との組み合わせ、塔上部ではドーナツ型分布となる。粒子及び気泡の密度が共に低い部分〔高さ 30 及び 35 cm、粒子充填量 1%〕は液相渦流動領域に相当すると思われる。中心部における粒子濃度分布のピークは粒子が旋廻渦流動領域における液相渦または高速上昇気泡流動領域における気泡との相互作用力を受けるためだと考えられる。粒子充填量が多くなると塔中心部における粒子の濃度が高くなる要因として、塔底部では粒子が多くなると気泡の合いが激しくなり、液の循環を促進し、渦と粒子または気泡と粒子間の相互作用を強め、故に塔中心部における大きな粒子濃度勾配を引き起こすと考えられる。

Fig.6 に粒子及びガス濃度〔ホールドアップ〕分布に及ぼすガス空塔速度の影響を示す。ガス空

塔速度の増大に伴いガス濃度分布はドーナツ型分布から中心ピーク分布へ変っていくことがわかる。一方、粒子の分布はガス空塔速度の増大に伴いドーナツ型分布と中心ピーク分布の組み合わせからドーナツ型分布へ変っていく。これらの分布の構造変化は Fig.4 で示した塔高さによるものと同様である。従って、上記説明した粒子及び気泡の分布メカニズムはこの場合にも適用できると考えられる。

Fig.7 に粒子及び気泡の分布に及ぼす粒子径の影響を示す。気泡の分布は三種類の粒子径に対して塔底部では分布の構造にいくつかの相違が見られるが、塔上部では全ての粒径に対して気泡の分布は同様な中心ピーク分布となる。100 μm のガラスビーズ〔GB100〕では、気液二相系における分布とあまり差がないことがわかる。350 μm のガラスビーズ〔GB350〕では気泡の分布は非対称であり、塔の片側に集まる傾向にあり、ドーナツ型分布は見られない。これは重くて大きい粒子は気泡群の周方向運動を妨げると考えられる。

Fig.8 には Fig.7 における気泡の分布に相当する

Fig.6 Effect of gas velocity on the cross-sectional distributions of gas and solid concentrations

Fig.7 Effect of particle diameter on cross-sectional distribution of gas concentration.

Fig.8 Effect of particle diameter on the cross-sectional distribution of solid concentration

粒子の分布を示している。100 μm では粒子の分布はより均一で、260 μm ではドーナツ型分布と中心ピーク分布との組み合わせ、350 μm ではシャープなドーナツ型分布となる。これらの相違は旋廻渦流動領域における粒子と気泡間または粒子と液相渦間の相互作用の相違によるものである。粒径が小さい場合、両方の相互作用が弱いいため、粒子はより均一に分散される。粒径が大きい場合、気泡—粒子間の相互作用が大きく、液相渦—粒子間の相互作用が弱いいため、粒子は壁側へ押しやられ、シャープなドーナツ型粒子分布ができると考えられる。また、中心部の粒子濃度のピークはGB260の場合しか見られないため、この粒子が旋廻渦流動領域における液相渦によって一番影響を受けられると思われる[1]。

5. おわりに

トモグラフィー法ではセンサー技術のみでなくトモグラフィー再構成アルゴリズムも重要な役割を果たすことがわかった。再構成アルゴリズムは再構成画像（分布）の画質及び精度を決めることを示した。本論文で説明した動的ニューロネットワークによるアルゴリズムは工学応用のト

モグラフィー法の特徴となる少数のトモグラフィーデータより精度よく再構成できることを示した。また超音波トモグラフィーに適用した結果の一例として粒子及び気泡濃度〔ホールドアップ〕塔断面時間平均分布の同時測定について解説した。瞬時データの測定にはセンサー技術の開発が必要である。例えば、平行な送受波器配列の代わりに周方向の送受波器配列と電子制御を用いることによってデータの読み取り時間は瞬時にでき、リアルタイム測定は可能になる。

参考文献

- [1] Warsito, Ohkawa, M., Kawata, N. and Uchida, S., Chem. Eng. Sci., Vol. 54, 4711-4728(1999).
- [2] Warsito, Internal Report of Dept. of Chem. Eng., The Ohio State University (2000).
- [3] Hopfield, J.J., Proc. Natl. Acad. Sci., USA, 81,3084-3092 (1984).
- [4] Wang, Y., Int. J. Imaging Syst. Technol., Vol.9, 381-387 (1998).
- [5] Warsito, Maezawa, A., Uchida, S. and Okamura, S., Can. J. Chem.Eng., Vol. 73, 734-743 (1995).