

## Влияние определяющих факторов в процессах гомогенизации эмульсионных сред

КЛИМОВ Р.А.

Днепродзержинский государственный технический университет

В статье описывается влияние различных факторов на процесс дробления крупных капель дисперсной фазы эмульсии. Приводятся регрессионные уравнения для расчета критического расстояния между каплями, при котором динамическое воздействие со стороны мелкой капли может привести к дроблению крупной частицы, а также для расчета времени протекания данного процесса.

В статті описується вплив різних чинників на процес подрібнення крупних крапель дисперсної фази емульсії. Приводяться регресійні рівняння для розрахунку критичної відстані між краплями, при якій динамічна дія з боку дрібної краплі може привести до дроблення крупної частки, а також для розрахунку часу протікання даного процесу.

In the article the influence of different factors on the process of crushing large drops of dispersion phase emulsion is described. Regressive equalizations for the calculation of critical distance between drops, at which dynamic influence from the side of shallow drop can result in crushing of large particle, are brought over, and also for timing flow line of the given process.

**Введение.** Процессы эмульгирования, диспергирования и гомогенизации являются одними из самых энергоемких процессов в промышленности, что связано со значительным перерасходом теплоты и энергии, необходимых для дробления дисперсной фазы. Для создания дисперсных систем наибольшее распространение получил метод механического дробления. Основным направлением снижения затрат энергии является использование принципа дискретно-импульсного ввода энергии [1]. Возможным является использование динамических эффектов при закипании капель малых размеров для дробления более крупных капель. Проведем исследование процессов разрушения границы раздела фаз (масло-пар) и последующего измельчения дисперсной фазы эмульсии при силовом взаимодействии двух закипающих капель, при различных начальных радиусах, расстояниях между поверхностями капель, начальных температурах (соответствующих давлениях) и различных значениях коэффициента межфазного натяжения.

**Постановка задачи.** Изучить влияние различных факторов на процесс дробления дисперсной фазы эмульсии при ее закипании.

**Материалы и результаты исследований.** Проведенные по моделям [2, 3] расчеты для двух капель дисперсной фазы, находящихся на различных расстояниях друг от друга и при различных начальных радиусах большей из капель приведены на рисунках 1, 2.

На данных рисунках представлены зависимости времени до дробления капли от относительного радиуса соседней капли и различных расстояниях между поверхностями данных капель при начальной температуре системы  $t = 130$  °С и соответствующем давлении насыщения, при мгновенном сбросе давления до атмосферного. Из данных рисунков видно, что с ростом начального радиуса большой капли  $R_1$  происходит увеличение расстояния между каплями, при котором еще возможно дробление капель. Также увеличивается относительный радиус малой капли, т.е. с увеличением радиуса большой капли для существования процесса дробления необходимым является наличие закипающей соседней капли по размеру мало отличающейся от большой и, как следует из рисунка 2,  $R_2 \approx 0.92R_1$  для

данной начальной температуры. Время до момента дробления в целом с увеличением радиуса  $R_1$ , также увеличивается, что можно объяснить как более медленным процессом роста паровой фазы в динамическом отношении, так и увеличением возможного расстояния  $h$ .

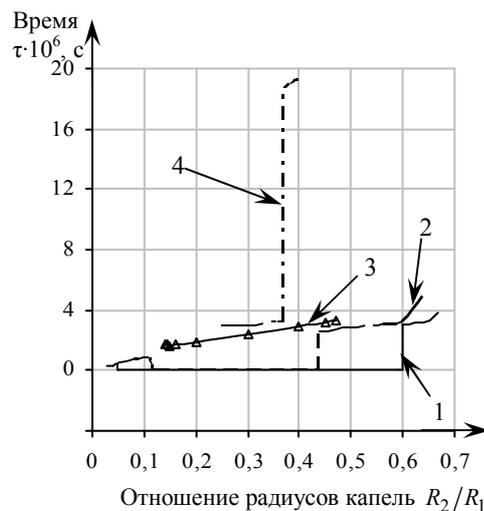


Рис. 1. Зависимость времени до дробления капли от относительного радиуса соседней капли и расстояния между поверхностями данных капель  $h$ : 1 – 15 мкм; 2 – 20 мкм; 3 – 40 мкм; 4 – 50 мкм;  $R_1 = 100$  мкм,  $t = 130$  °С

Анализируя рисунок 1, можно говорить о том, что при определенных межповерхностных расстояниях для заданного промежутка значений относительного радиуса второй капли, возможно практически мгновенное разрушение большей частицы. С увеличением данного расстояния диапазон значений относительного радиуса капель, при котором возможно мгновенное дробление большой капли, уменьшается, а после определенного значения  $h$  видна практически линейная зависимость между временем до разрушения и относительным ра-

диусом капль при постоянном значении  $h$ . Из рисунка 2 следует, что для данного начального радиуса  $R_1$  при определенном значении параметра  $R_2/R_1$  возможно также и дробление более мелкой капли (кривая  $\tau_2$ ), что указывает на неоднозначность в рассмотрении процессов дробления (может дробиться как большая, так и более мелкая капля). Это объясняется тем, что процессы ускорения-замедления для капль с различными начальными радиусами протекают при разных периодах и амплитудах изменений.

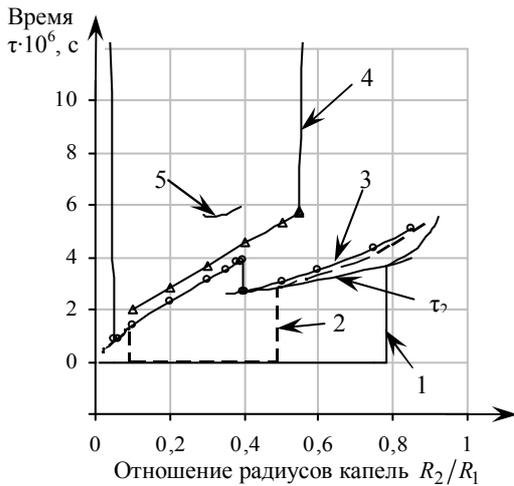


Рис. 2. Зависимость  $\tau = f(R_2/R_1, h)$  при  $h$ : 1-20 мкм; 2 – 40 мкм; 3 – 60 мкм; 4 – 100 мкм; 5 – 150 мкм;  $R_1 = 200$  мкм,  $t = 130$  °С

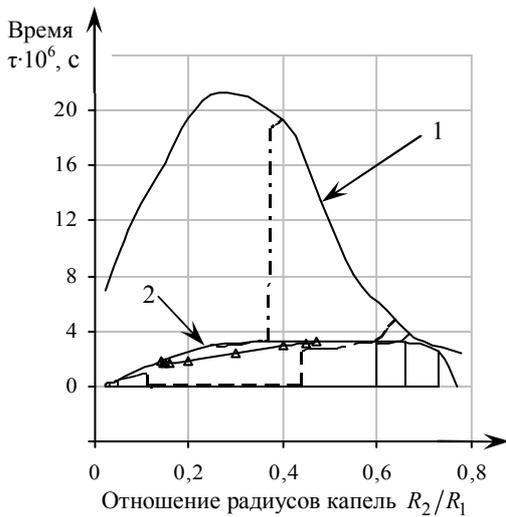


Рис. 3. Зависимость времени до момента встречи поверхностей капль (кривая 1) и выбранного критического времени для расчета (кривая 2) от относительного радиуса соседней капли и расстояния между поверхностями данных капль  $h$ . Исходные значения из рис. 1.

В некоторый момент времени происходит существенный перепад в значениях ускорения либо скорости, действующих на поверхности какой-либо из ка-

пель, и в результате, даже более мелкая капля может быть раздроблена большой каплей.

На рисунках 1, 2 видно, что для определенных значений  $h$  и  $R_2/R_1$  происходит резкое увеличение времени до дробления частицы. Данное расчетное значение времени соответствует тому периоду, при котором две капли соприкасаются своими поверхностями друг с другом, что следует из кривой 1 рисунка 2. Для некоторых значений  $h$  и  $R_2/R_1$  разрушение большой капли будет происходить при практически полном соприкосновении капль, а для других значений такого эффекта наблюдаться не будет. Это указывает на то, что с большей вероятностью дробление капль будет происходить не в момент их соприкосновения, а в момент времени, определенный под критической кривой 2 (рисунки 1, 2) или на данной кривой. Эта кривая исключает вероятностные процессы дробления при соприкосновении капль, а оставляет лишь однозначно происходящие дробления какой-либо из двух капль. Из рисунков 1, 2 следует, что для каждого рассматриваемого случая существуют определенные критические значения  $h_{cr}$  и соответствующее ему  $\tau_{cr}$ , которые находятся на кривой  $\tau_{cr} = f(R_2/R_1)$  (кривая 2, рисунок 3) и определяют возможность дробления капль.

Величину  $h_{cr}$  удобно представить в относительном виде  $\vartheta_{cr} = h_{cr}/R_1$ . Для исследования зависимостей  $\vartheta_{cr}$  ( $y_1 = \vartheta_{cr}$ ) и  $\tau_{cr}$  ( $y_2 = \tau_{cr}$ ) при различных значениях начального радиуса большой капли  $R_1$ , относительного радиуса малой капли  $\delta = R_2/R_1$ , начальной температуры системы  $t_0$  и значения коэффициента межфазного натяжения  $\sigma$ , применим ортогональный центральный композиционный план типа  $2^n$  ( $n = 4$ ) [4]. Для этого плана модель имеет вид

$$y(a, x) = a_0 + a_1x_1 + \dots + a_nx_n + a_{n+1}x_1^2 + \dots + a_{2n}x_n^2 + a_{2n+1}x_1x_2 + \dots + a_kx_{n-1}x_n. \quad (1)$$

Уровни варьирования факторов представлены в таблице 1, а матрица планирования в таблице 2.

Таблица 1. Уровни варьирования факторов

Факторы	Код	-1.414	-1	0	+1	+1,414
$R_1$ , мкм	$x_1$	17.2	100	300	500	582.8
$R_2/R_1$	$x_2$	0.076	0.2	0.5	0.8	0.924
$t$ , °С	$x_3$	109.7	120	145	170.0	180.4
$\sigma$ , мН/м	$x_4$	9.65	20	45	70	80.35

Для величины  $\vartheta_{cr}$  получена модель процесса в виде

$$\begin{aligned} \mathcal{G}_{cr}(x) = & 1.973 - 0.047x_1 + 0.563x_2 + 2.156x_3 - \\ & - 0.921x_4 - 0.18x_1^2 + 0.018x_2^2 + 0.884x_3^2 + \\ & + 0.657x_4^2 - 0.147x_1x_2 - 0.677x_1x_3 - 0.261x_1x_4 + \\ & + 0.639x_2x_3 - 0.219x_2x_4 - 0.416x_3x_4 \end{aligned} \quad (2)$$

где  $x_1 = \frac{R_1 - 300}{200}$ ,  $x_2 = \frac{\delta - 0.5}{0.3}$ ,  $x_3 = \frac{t - 145}{25}$ ,  
 $x_4 = \frac{\sigma - 0.045}{0.025}$ .

Таблица 2. Матрица планирования и результаты расчетов в кодированных величинах

N	Матрица плана				y <sub>1</sub>	y <sub>2</sub> , мкс
	x <sub>1</sub>	x <sub>2</sub>	x <sub>3</sub>	x <sub>4</sub>		
1	-1	-1	-1	-1	0.878	2.012
2	+1	-1	-1	-1	2.378	10.15
3	-1	+1	-1	-1	0.823	3.131
4	+1	+1	-1	-1	2.522	50.65
5	-1	-1	+1	-1	5.61	352.0
6	+1	-1	+1	-1	4.928	60.8
7	-1	+1	+1	-1	9.24	651.0
8	+1	+1	+1	-1	7.566	394.6
9	-1	-1	-1	+1	0.576	44.96
10	+1	-1	-1	+1	1.208	17.56
11	-1	+1	-1	+1	0.42	12.15
12	+1	+1	-1	+1	0.766	10.59
13	-1	-1	+1	+1	4.16	338.0
14	+1	-1	+1	+1	2.644	40.5
15	-1	+1	+1	+1	6.52	640.1
16	+1	+1	+1	+1	3.732	314.1
17	-1.414	0	0	0	0.985	32.86
18	+1.414	0	0	0	2.079	7.91
19	0	-1.414	0	0	1.203	6.41
20	0	+1.414	0	0	2.653	654.0
21	0	0	-1.414	0	0.73	8.31
22	0	0	+1.414	0	6.59	726.0
23	0	0	0	-1.414	4.80	4.44
24	0	0	0	+1.414	1.613	31.02
25	0	0	0	0	2.293	63.2

Оценка дисперсии ошибок расчета вычисляется с помощью остаточной суммы квадратов

$$S_R = \sum_{j=1}^N (\hat{y}_j - y_j)^2, \quad (3)$$

с числом степеней свободы

$$\varphi_1 = N - k - 1, \quad (4)$$

по формуле

$$s_R^2 = \frac{S_R}{\varphi_1}, \quad (5)$$

где  $\hat{y}_j$  - результаты, полученные по уравнению (2) для  $N = 1, 2, \dots, 25$ ;  $y_j$  - результаты по таблице 2;  $k = 14$ .

Остаточная сумма квадратов для величины  $\mathcal{G}_{cr}$  по полученной модели составляет  $S_R = 1.985$  при числе степеней свободы  $\varphi_1 = 10$ . Проверка значимости коэффициентов производилась по «порогам» значимости для различных эффектов факторов  $h_m s$ , где  $h_m = t_{cr} \sqrt{c_m}$

( $m = 1, 2, 3$ ) [4],  $t_{cr}$  - критическое значение распределения Стьюдента при заданном уровне значимости и числе степеней свободы.

При этом коэффициент  $a_i$  в модели считается значимым, если выполняется условие

$$|a_i| > h_m \cdot s. \quad (6)$$

Для проверки значимости коэффициентов используем в качестве оценки  $s^2$  дисперсии ошибок остаточную дисперсию  $s^2 = s_R^2 = 0.1985$ . При  $n = 4$ ,  $v = 1$  и уровне значимости  $1 - P = \alpha = 0.05$  из [4] имеем:  $h_1 = 0.498$ ,  $h_2 = 0.788$ ,  $h_3 = 0.557$ . Сравнение произведения  $sh_1$  с абсолютными значениями оценок коэффициентов при линейных членах,  $sh_2$  - с оценками коэффициентов при квадратах факторов и  $sh_3$  - с оценками при парных взаимодействиях, показывает, что условие (6) не выполняется для коэффициентов при следующих функциях:  $x_1, x_1^2, x_2^2, x_1x_2, x_2x_4$ . Исключая эти функции из уравнения (2), получим

$$\begin{aligned} \mathcal{G}_{cr}(x) = & 1.844 + 0.563x_2 + 2.156x_3 - 0.921x_4 + \\ & + 0.884x_3^2 + 0.657x_4^2 - 0.677x_1x_3 - 0.261x_1x_4 + \\ & + 0.639x_2x_3 - 0.416x_3x_4. \end{aligned} \quad (7)$$

В данном уравнении все оставшиеся коэффициенты (кроме  $a_0$ ) совпадают с их значениями в уравнении (2). Этот факт - результат ортогональности плана. Оценка  $a_0$  связана с оценками коэффициентов при квадратах переменных.

Для проверки адекватности модели используем критерий Фишера

$$F = \frac{S_R / \varphi_1}{S_e / \varphi_2} < F_{cr}. \quad (8)$$

При этом оценка дисперсии ошибок наблюдений вычисляется с помощью суммы квадратов ошибок

$$S_e = \sum_{i=1}^v (y_{i0} - \hat{y})^2, \quad (9)$$

с числом степеней свободы

$$\varphi_2 = N(v - 1). \quad (10)$$

Для оценки дисперсии ошибок опытов, вызванных погрешностями в определении размеров частиц и коэффициента межфазного натяжения, были проведены четыре повторных опыта в центральной точке данного плана. После вычислений получено  $S_e = 0.179$  для числа степеней свободы  $\varphi_2 = 3$ . Тогда по уравнению (8) критерий Фишера равен  $F = 3.326$ . Критическое значение критерия Фишера для  $\alpha = 0.05, \varphi_1 = 10, \varphi_2 = 3$ , имеет значение  $F_{cr} = 8.79$  [4]. Так как  $F < F_{cr}$ , то по критерию Фишера модель адекватна истинной зависимости.

Для величины  $\tau_{cr}$  получена модель процесса в виде  $\tau_{cr}(x) = (14.05 - 5.9x_1 + 10.63x_2 + 18.27x_3 - 0.34x_4 - 6.97x_1^2 + 8.52x_2^2 + 10.37x_3^2 - 7.1x_4^2 + 0.45x_1x_2 - 7.49x_1x_3 - 1.003x_1x_4 + 7.54x_2x_3 - 0.87x_2x_4 - 0.91x_3x_4) \cdot 10^{-5}$ , (11)

Остаточная сумма квадратов для величины  $\tau_{cr}$  по полученной модели составляет  $S_R = 1.24 \cdot 10^{-7}$  при

числе степеней свободы  $\varphi_1 = 10$ . Дисперсия ошибок расчета равна  $s^2 = 1.24 \cdot 10^{-8}$ . После проверки коэффициентов на значимость и исключения незначимых факторов или их эффектов получена следующая модель зависимости

$$\begin{aligned} \tau_{cr}(x) = & (8.477 - 5.9x_1 + 10.63x_2 + \\ & + 18.27x_3 + 8.52x_2^2 + 10.37x_3^2 - 7.1x_4^2 - \\ & - 7.49x_1x_3 + 7.54x_2x_3) \cdot 10^{-5} \end{aligned} \quad (12)$$

После проведения четырех повторных опытов в центральной точке данного плана и вычислений получено  $S_e = 7.6 \cdot 10^{-9}$  для числа степеней свободы  $\varphi_2 = 3$ . Тогда по уравнению (8) критерий Фишера равен  $F = 4.89$ . Критическое значение критерия Фишера для  $\alpha = 0.05, \varphi_1 = 10, \varphi_2 = 3$ , имеет значение  $F_{cr} = 8.79$  [4]. Так как  $F < F_{cr}$ , то по критерию Фишера модель адекватна истинной зависимости.

Анализируя полученные уравнения (7) и (12) видно, что наибольшее влияние на  $\mathcal{G}_{cr}(x)$  и  $\tau_{cr}(x)$  оказывает фактор  $x_3$  (наибольшие значения коэффициентов при данном факторе). При этом данный фактор носит более сложный характер, чем параболический, т.к. сильно взаимодействует с  $x_1, x_2, x_4$  для зависимости  $\mathcal{G}_{cr} = f(x)$  и с  $x_1, x_2$  для  $\tau_{cr} = f(x)$ . С увеличением температуры  $t$  системы возможное расстояние между каплями, при котором еще возможно дробление, возрастает, что объясняется наличием больших динамических сил, возникающих при резком сбросе давления до атмосферного, в системе двух закипающих капель, вследствие чего увеличивается и расстояние действия данных сил. С увеличением температуры также увеличивается и  $\tau_{cr}$ , что является следствием соответствующего увеличения межпузырькового расстояния.

Вторым по влиянию на  $\mathcal{G}_{cr}(x)$  является фактор  $x_4$ , который также носит сложный характер влияния из-за своего взаимодействия с другими факторами. Для  $\tau_{cr}(x)$  этот фактор носит параболический характер. С увеличением коэффициента межфазного натяжения  $\sigma$  величина критического расстояния  $\mathcal{G}_{cr}(x)$  снижается, что вызвано фактом увеличения необходимой силы, приводящей к дроблению капли, т.е. увеличивается энергетический порог, при преодолении которого возможно дробление. Понятно, что данный порог будет с наибольшей вероятностью преодолен при меньших расстояниях между закипающими каплями. С увеличением  $\sigma$  критическое время  $\tau_{cr}(x)$  уменьшается, что вызвано соответствующим уменьшением  $\mathcal{G}_{cr}(x)$ .

Фактор  $x_1$  (радиус  $R_1$ ) наиболее значим лишь для критического времени, а для критического межпузырькового расстояния он проявляется только при взаимодействии с температурой и коэффициентом межфазного натяжения. С увеличением начального радиуса большой капли величина  $\mathcal{G}_{cr}(x)$  также увеличивается.

Это вызвано тем, что более крупная капля может быть разрушена при действии меньшего динамического эффекта в соответствии с критериями Бонда и Вебера [1], как следствие источник данного динамического воздействия может быть расположен на большем расстоянии от дробимой капли. Критическое время для наибольшего промежутка исследуемых температур с увеличением  $R_1$  уменьшается по линейному закону, что объяснимо относительной «легкостью» в разрушении больших капель, даже если источник динамического воздействия расположен на относительно большом расстоянии.

Соотношение радиусов капель (фактор  $x_2$ ) наибольшее влияние имеет на  $\tau_{cr}(x)$ , и для обеих функций изменения ( $\tau_{cr}(x), \mathcal{G}_{cr}(x)$ ) проявляет сильное взаимодействие с температурой. В целом же при увеличении  $\delta$  для большинства значений исследуемых температур величина критического расстояния увеличивается, что объяснимо большей окрестностью действия сил от капель большого размера (для радиуса  $R_2$ ), чем от малых капель, а, значит, более крупные капли (имеющие радиус меньший, чем  $R_1$ ) могут располагаться на большем расстоянии от капли с радиусом  $R_1$ .

## Выводы

Таким образом, основным фактором, определяющим дробление дисперсных капель эмульсии, является температура, которая в наибольшей степени определяет затраты энергии на процессы дробления. Вторым фактором является коэффициент межфазного натяжения, значение которого можно варьировать, добавляя соответствующие ПАВ. Размеры частиц дисперсной фазы после производственной зоны имеют определенное значение, поэтому основными параметрами регулирования процесса дробления частиц являются начальная температура системы и соответствующее ей давление насыщения легкокипящей фазы до момента сброса давления до атмосферного, а также коэффициент межфазного натяжения. Определение оптимальных значений  $t$  и  $\sigma$ , позволит рационально использовать энергию в процессах диспергирования и гомогенизации эмульсий.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Долинский А.А., Басок Б.И. Дискретно – импульсная трансформация энергии в адиабатно вскипающем потоке. // Пром. теплотехника. – 2001. – Т. 23. – №4-5. – С. 5 – 20.
2. Павленко А.М., Климов Р.А., Басок Б.И. Кинетика испарения в процессах гомогенизации // Пром. теплотехника. – 2006. – Т. 28. – №6. – С. 14 – 20.
3. Долинский А.А., Павленко А.М., Басок Б.И. Теплофизические процессы в эмульсиях. - Киев, Наукова думка, 2005. – 265 с.
4. К. Хартман, Э. Лецкий Планирование эксперимента в исследовании технологических процессов. – М.: Мир, 1977. – 552 с.