攪拌槽の中の固液の流れ*

(槽底からの固体粒子の浮遊と攪拌羽根への粒子衝突)

Solid-liquid Mixing in a Stirred Vessel

(Particle Suspension from a Vessel Bottom and Particle Collision with Impeller Blades)

三角 隆太**

MISUMI Ryuta

仁志 和彦**

NISHI Kazuhiko

上ノ山 周**

KAMINOYAMA Meguru

Abstract Solid-liquid mixing in a stirred vessel is widely used in chemical industrial processes, such as crystallization, leaching and chemical reaction by using solid catalysis. In these processes, control of sedimentation of particles on bottom is important to maximize efficiency of the chemical reaction and to prevent particle agglomeration. And particle collision with impeller blades often induces attrition and breakage of particles and erosion of the impeller blade. The mechanism of particle suspension from the vessel bottom and particle collision with impeller blade are not sufficiently understood, mainly because of the difficulties in experiments for characterizing detailed particle behavior.

In this study, the relation between particle rising behavior from a vessel bottom and liquid flow around bottom was clarified by using Computational Fluid Dynamics (CFD) coupled with the Lagrangian simulation of each particle motion. The results show that a common relation of four steps exists between particle rising behavior and fluid flow around bottom among different type of stirred vessels. That is (i) formation of stagnant region on bottom, (ii) sweeping of particles until the stagnant region, (iii) inducement of upward flow above the stagnant region, (iv) particles are caught up in the upward flow. And the particle collision behaviors with impeller blades, such as collision velocity and collision point distribution, were quantified. The results show that, on the front (loading) face of impeller blade, particle collision with large collision velocity concentrates along the blade edge. On the back face, particle collisions mainly occur around the center of blade face.

Keywords: Solid-liquid mixing, Stirred vessel, Impeller blade, CFD, Crystallization

1. 緒言

固液攪拌操作は、晶析・沈殿、溶解、固体触媒反応、吸着・イオン交換、スラリーの調製などの化学工業プロセスにおいて頻繁に行われる操作であり、その主な目的は液体中での固体粒子の分散、ならびに固体粒子・液体間の物質移動を促進させることにある。

一般的に、攪拌槽の中で攪拌翼の回転により形成される旋回空間の体積は、槽全体の体積と比べて数分の一から数十分の一と小さく、数十～数百

rpm と比較的ゆっくりとした羽根の回転により槽壁方向へ吐出された流れは規制の少ない空間内で三次元的に複雑な挙動を示す。一方、攪拌装置と同じく液体流を対象とした回転機械であるポンプでは、攪拌翼と比較して羽根枚数が多く、回転数も 10 倍程度大きい(数千 rpm)ことから、比較的二次元性の強いフローパターンであり、攪拌槽とポンプでは異なる取り扱いが必要となる。

汎用される 6 枚ディスクタービン翼を備えた攪拌槽の中では、槽壁に沿って鉛直方向に設置さ

* 2014.11.21 受付

** 横浜国立大学大学院工学研究院 〒240-8501 横浜市保土ヶ谷区常盤台 79-5

TEL: (045)339-3995 FAX: (045)339-3995 E-mail: r-misumi@ynu.ac.jp

れた4枚の邪魔板の効果により、攪拌翼の回転により槽壁方向に吐出された流れは、槽壁に沿って上方または下方への大きな循環流へと分岐され、再び攪拌翼近傍へ流入する輻流型（放射流型）と呼ばれるフローパターンが形成される。

この攪拌槽の中で固体粒子を取り扱う場合には、おおきく次の2点が問題となるケースが多い。(1) 固液攪拌操作の場合、固体粒子と溶液の接触面積を最大とし、すべての固体粒子の表面積を化学反応に寄与させるために、槽底で留まる粒子がなくなる最低の攪拌速度である完全浮遊化翼回転数 n_{JS} が、操作条件選定の目安として用いられる[1, 2]。 n_{JS} は粒子の凝集抑制の観点からも重要となる。ここで、 n_{JS} を決定づける槽底からの粒子の浮遊メカニズムについては未解明の点が多く、攪拌翼の種類・フローパターンが異なる場合に共通する流体力学的な因子について、明らかにする必要がある。(2) 一方、粒子の浮遊・分散性を向上させるために攪拌速度を大きくすると、攪拌羽根や邪魔板、槽壁などの固体面への固体粒子の衝突が顕著となり、粒子の摩耗や破損が引き起こされる。これは溶解プロセスでは反応を促進させる効果をもたらすが、固体触媒反応では高価な触媒粒子の寿命を短くし、また晶析プロセスでは結晶成長の阻害要因となり、さらには微小結晶の発生による粒径分布の二峰化[3]につながる。スラリーのように粒子の懸濁密度が大きくなると、攪拌羽根の摩耗を誘起するケース[4, 5]もあり、多くの化学プロセスにおいて粒子衝突は制御すべき現象となる。

攪拌槽の中の3次元的な流動状態を Computational Fluid Dynamics (CFD) により解析する試みは、Hiraoka らの層流攪拌槽を対象とした事例[6]や、上ノ山らの擬塑性流体を対象に回転座標系を用いた試み[7, 8]が始まりだと思われる。当初、攪拌槽の中の混合効果を向上させるうえで不可欠な邪魔板と、回転する攪拌羽根との相対運動を表現することが課題であったが、回転する攪拌羽根を含む inner block と邪魔板と槽壁を含む outer block に分割する dynamic multi-block method [9]や定常流解析に対して回転座標系を改良した multiple reference frames (MRF) モデル[10]、非定常流解析に対応可能な sliding mesh model [11]などによる解析手法が利用されるようになった。

攪拌槽の中の固体粒子の挙動を CFD により再現する試みは、過去10年の間に増えてきており、個々の粒子の運動をラグランジアン的に解析する事例も報告されている[12-14]。

本稿では、懸濁粒子の沈降速度が大きい、いわゆる沈降性懸濁粒子液を対象として、著者らが粒子運動のラグランジアン解析をもとに進めている研究例のうち、とくに(1) 槽底からの粒子浮遊のメカニズム[15]と、(2) 攪拌羽根や邪魔板、槽壁への粒子の衝突現象[16, 17]について、著者らのグループの研究事例を中心に概説する。

2. 数値解析方法および解析条件

Fig. 1 に解析領域概略を示す。対象とする攪拌槽は内径 $T=0.1$ m、液深 $H=0.1$ m の円筒平底槽であり、槽壁には幅 $B=T/10$ の邪魔板が4枚、等間隔に設置されている。翼径が $d=0.05$ m で6枚の平羽根が垂直に取り付けられた6枚垂直パドル翼を液深の1/3の位置に設置した。同翼は固液攪拌操作で汎用される。

攪拌槽内の流動は連続の式、Navier-Stokes 方程式を解き、乱流現象のモデル化には Large Eddy Simulation (LES) を用いた。粒子の運動は、個々の粒子に対して運動方程式を解くラグランジアン的手法により解析した。粒子間および粒子-固体壁面間の相互作用は離散要素法 (Distinct Element Method: DEM)[18, 19]を用い、これらの解析は汎用熱流体解析ソフト RFLOW ((株)アールフロー製)を用いて行った。

Fig. 1 Coordinate system and computational domain for a stirred vessel.

固液攪拌操作で対象となる固体粒子を想定して、粒子径を 100~200 μm 、粒子密度を 1000~5000 kg/m^3 に変化させた。流体が静止し、粒子が槽底に均一に分散している状態を初期条件として非定常解析を行い、流動状態および粒子の分散が定常状態に達した攪拌開始から 8.0~10.0 s の間のデータについて統計的に取り扱った。なお、本稿で対象とする槽底近傍および攪拌翼近傍での粒子の挙動を上述の手法で解析するには、計算格子の設定方法や時間ステップ幅、DEM 変数などの決定が重要となる。攪拌装置の設計時に重要となる攪拌所要動力、槽底での粒子の堆積状況、攪拌羽根後方に形成される後流渦の生成状況などについての実験結果との比較による詳細な検討が必要となるが、紙面の都合上ここでは説明を割愛する。

3. 攪拌槽の槽底からの固体粒子の浮遊挙動

攪拌翼の設置高さが $h = H/3$ の場合において、槽内が定常状態に達した後の槽底近傍の水平方向の時間平均流速 $V_{f,r-\theta}$ のベクトル図を Fig. 2 に、粒子堆積領域を Fig. 3 に示す。Fig. 3 は、槽底近傍に存在する粒子の位置を経時的に重ね合わせたものである。攪拌羽根の回転により羽根から水平方向に吐出された流動は、槽壁近傍で邪魔板の前面に沿った下降流となり槽底中心に強く流れ込む。Fig. 2 より、槽底近傍では邪魔板前面から槽底中心方向へ集束する流れが形成され、4 枚の邪魔板からの水平流はお互いにぶつかり合い、流れのぶつかる位置では湾曲した十字状によどみ領域が生じることがわかる。Figs. 2, 3 より、槽底近傍にある粒子は流れのよどみ領域に寄せ集められ、その位置に堆積することがわかる。このときの槽底近傍での鉛直方向の時間平均流速に着目すると、Fig. 3 に示した水平流動のよどみ領域に対応する位置に強い上昇流が生じることが確認された(図は省略)。その上昇流に巻き込まれて粒子は上方へ浮遊し、攪拌羽根を介して槽全体に分散することがわかった。

Fig. 4 に、攪拌羽根を槽底に近づけた $h = H/10$ の場合における粒子の堆積位置の解析結果を示す。槽底近傍では、槽底中心付近から槽壁方向へ放射状に向かう流れと、槽壁から槽底中心へ向かう弱い流れがぶつかりあい、その位置によどみ領域が生じる(流速図は省略)。Fig. 4 より、粒子は

そのよどみ領域まで押し流されて堆積することがわかる。よどみ領域に対応する位置に上昇流が発生し、粒子はその流れに巻き込まれて浮遊することを確認した。邪魔板なし攪拌槽を用いた場合についても同様に検討した。邪魔板なしの場合、槽底中心付近では旋回流が発生し、軸の真下によどみ領域が生じる。粒子はそのよどみ領域に堆積し、よどみ領域の上方に上向きの上昇流が生じ、その位置から粒子が浮遊することが確認された。

本研究で対象とした 3 つの装置条件においては、槽底近傍でのフローパターンは異なるものの、(i) 槽底近傍に水平方向の流れがよどむ領域が形

Fig. 2 Time averaged horizontal fluid velocity vectors, $V_{f,r-\theta}$ ($h = H/3$).

Fig. 3 Particle sedimentation pattern on the bottom ($h = H/3$).

Fig. 4 Particle sedimentation pattern on the bottom ($h = H/10$).

成される、(ii) 流れのよどみ領域に粒子が寄せ集められる、(iii) 流れのよどみ領域に上昇流が形成される、(iv) 上昇流に巻き込まれて粒子が浮遊する、の共通する4つの段階により粒子の浮遊現象を説明できることがわかった。

4. 攪拌羽根への固体粒子の衝突現象

4.1 攪拌羽根周辺の流動状態

粒子と攪拌羽根との衝突現象を詳細に定量化するためには、攪拌翼近傍の流動状態をできるだけ忠実に再現することが不可欠となる。Fig. 5に、6枚パドル翼近傍の渦度の等値面を示す。攪拌翼近傍の計算格子数を適切に設定した条件では、それぞれの攪拌羽根の回転方向背面から後方に伸びる上下1対の等渦度面が形成される。これはTakashimaら[20]やvan't Rietら[21]が実験的に観察したTrailing vortexと呼ばれるらせん状の流れであり、回転羽根近傍の流れに対する空間的な制約が少ない攪拌装置特有の現象である。障害物の背面に形成されるいわゆるカルマン渦と同質であるが、攪拌軸からの距離に応じて障害物である攪拌羽根と流体の相対速度が変化し、攪拌翼の中心から槽壁方向に大きな移流を伴いながら背面渦は大きく発達する点で、カルマン渦と異なる特徴をもつ。Trailing vortexは、固体粒子と攪拌羽根の衝突現象や、攪拌翼近傍で液滴や気泡が分裂する現象と密接に関連することが指摘されており、異相系の攪拌操作をコンピュータ解析する際には、忠実に再現されることが望まれる。

Fig. 5 Isosurface of vorticity formed behind blades of paddle impeller ($n = 6.0 \text{ s}^{-1}$).

4.2 攪拌羽根への固体粒子の衝突速度の分布

攪拌羽根への固体粒子の衝突現象は、晶析操作における二次核発生現象と関連して、古くから実験的な検討が試みられてきた[22-26]。これらの研究の多くは、衝突頻度の測定、もしくは間接的な

手法による衝突エネルギーの推算にとどまっており、固体粒子の衝突現象を整理するうえで重要な衝突速度の定量化は不十分だといえる。

Fig. 6に羽根前面での粒子衝突位置を示す。同図より翼の種類や、羽根幅によらず、羽根の縁に沿って速い衝突が起こることがわかる。Fig. 7に $n = 6 \text{ s}^{-1}$ のときの各翼での羽根前面への法線方向の衝突速度 $v_{\text{coll},f,n}$ の確率密度 $P(v_{\text{coll},f,n})$ を示す。同図より、翼回転数が同じ場合、速い衝突速度の確率密度はディスクタービン翼 $b = 1 \text{ cm}$ 、パドル翼 $b = 1 \text{ cm}$ 、 2 cm 、 3 cm の順に小さくなることがわかる。Fig. 6に示したように、羽根の縁に沿って速い衝突が多く起こるため、羽根の面積に対する縁の長さの割合が大きい翼ほど、速い衝突速度の確率密度が大きくなったと考えられる。さらに、

Fig. 6 Distribution of particle collision points on the front face of impeller blade ($n = 6 \text{ s}^{-1}$).

Fig. 7 Probability density of particle collision velocity with the front face ($n = 6 \text{ s}^{-1}$).

Fig. 6(d)より、ディスクタービン翼では軸から離れた位置に羽根があるため、パドル翼で見られた軸近くでの遅い衝突が起こらないことが、速い衝突速度の確率密度を大きくする原因になったと考えられる。

Fig. 8 に、攪拌羽根前面、および背面における固体粒子の衝突位置、衝突速度の分布を示す。同図より、羽根前面においては、羽根の縁に沿って粒子の衝突は多く発生し、羽根の先端に向かうほど、衝突速度が大きくなることがわかる。一方、羽根背面においては、粒子の衝突は羽根縁から離れた羽根面の中心付近に集中し、前面とは異なる分布を示す。

Fig. 9 に攪拌羽根近傍での粒子の軌跡の一例を示す。攪拌翼の回転により羽根の前面へ向かう粒子は、羽根の表面近傍で羽根の先端、もしくは羽根の上下の縁の方向へ向きを変え、羽根後方へと通過する。羽根の縁から背面側へまわり込むさいに、一部の粒子は羽根の縁に衝突する。羽根の背面へまわりこんだ粒子は、Trailing vortex に巻き込まれ、羽根背面の中央付近に集中して衝突することがわかる。

本稿では紹介できなかったが、著者らのグループでは、粒子衝突に対する粒子の特性(粒子径や比重)の影響、羽根の設置高さの影響などについても現象の整理を進めており、また粒子衝突速度を実験的に直接測定する計測システムも構築しており、同現象のモデル化を進めていきたい。

5. むすびに

固液攪拌操作は、人類が火を使い煮炊きを始めた頃から行われる最古の単位操作の一つといえるが、その混相流的な観点からの理解は意外と進んでいない。混ぜる操作は身近なものであるため、ある程度の混合は比較的容易に達成することができる。一方で、伝統的な酒造りにおいては、「櫛でつぶすな、麴で溶かせ」と言われている。まさに攪拌羽根への衝突を抑制したうえで、固体粒子からの物質移動速度を最大化させる操作が重要視されており、工業プロセスの最適化には攪拌技術の理解が欠かせない。

本稿では、固液攪拌操作を中心に紹介したが、化学プロセスにおける攪拌操作は、必ず混合や化学反応の対象が存在し、単相系として取り扱うことは少ない。液液系、気液系、固気液系に加えて、

Fig. 8 Comparison of particle collision points between the front and back face of impeller blade ($n = 6 \text{ s}^{-1}$).

Fig. 9 Particle trajectories around impeller blade ($n = 6 \text{ s}^{-1}$).

層流から乱流までを対象としており混相流現象の宝庫といえる。CFD 技術の発達により、攪拌槽内の単相系の流動状態はある程度の確かさで解析できるようになってきたが、プロセスの目的に応じた輸送現象的・反応工学的な情報(物質移動係数や連続相と分散相の界面積、反応速度など)を抽出するための現象モデルの開発や、液相現象における大きなシュミット数への対応、解析結果の検証に不可欠な実験データの取得は不十分である。近年では、動物細胞培養やタンパク質結晶の生産、連続相と分散相の片方、または両方が高粘度液となる混相流など従来の攪拌技術だけでは十分に対応できない事例も増えてきている。本稿を読まれた方に、攪拌技術研究について興味を持っていただければ幸いである。

謝 辞

本稿で紹介した研究は、横浜国立大学の(元)学生 中村直貴君、佐藤祐自君、中西良輔君、柿井康広君、佐々木拓二君、加藤勇人君、飯島広成君、戸村俊君の協力のもとに行われた。また、ソルト・サイエンス研究財団の研究助成(Nos. 0617 and 1419)、ならびに文部科学省科学研究費補助金(Nos. 19760112, 23760147 and 25420108)の援助

を受けて行われたものである。記して、謝意を表す。

Nomenclature

b	: width of impeller blade	[m]
B	: width of baffle plate	[m]
d	: impeller diameter	[m]
h	: impeller equipped height	[m]
H	: liquid level	[m]
n	: impeller rotational speed	[1/s]
n_{JS}	: minimum rotational speed of impeller at which particles just become completely suspended	[1/s]
P	: probability density of collision velocity	[s/m]
T	: vessel diameter	[m]
$V_{coll,fn}$	: particle collision velocity normal to front face of blade	[m/s]
$V_{f,r-\theta}$	: fluid velocity in $r-\theta$ plane	[m/s]

Subscripts

f	: fluid phase
n	: normal component to blade face
r, θ, z	: axes in cylindrical coordinates system

参考文献

- [1] Zwietering, T.N., Suspending of solid particles in liquid by agitators, Chem. Eng. Sci., Vol.8(3-4), 244-253 (1958).
- [2] Nagata, S., Yokoyama, T. and Naka, H., Studies on the Solid-Liquid agitation - (III) Empirical Formula to Estimate the Critical Agitator Speed -, Chemical engineering, Vol.17(4), 144-151 (1953).
- [3] Misumi, R., Kato, S., Ibe, S., Nishi, K. and Kaminoyama, M., Highly Efficient Evaporative Crystallization of a High Suspension Density Sodium Chloride Slurry in a Draft-Tube Stirred Vessel in Continuous Operation, J. Chem. Eng. Jpn., Vol.44(4), 240-246 (2011).
- [4] Wu, J., Ngyuen, B., Graham, L., Zhu, Y., Kilpatrick, T. and Davis, J., Minimizing impeller slurry wear through multilayer paint modelling, Can. J. Chem. Eng., Vol.83(5), 835-842 (2005).
- [5] Misumi, R., Kato, H., Iijima, H., Nishi, K. and Kaminoyama, M., Relation between Particle Collisions and Paint Erosion on Impeller Blades, Proc. of International Symposium on Mixing in Industrial Processes 8 (ISMIP8), 62-63 (2014).
- [6] Hiraoka, S., Yamada, I., Aragaki, T., Nishiki, H., Sato, A. and Takagi, T., Numerical Analysis of Three Dimensional Velocity Profile of Highly Viscous Newtonian Fluid in an Agitated Vessel with Paddle Impeller, J. Chem. Eng. Jpn., Vol.21(1), 79-86 (1988).
- [7] Kaminoyama, M., Saito, F. and Kamiwano, M., Numerical Analysis of Three Dimensional Flow Behaviour of Pseudoplastic Liquid in a Stirred Vessel with Turbine Impellers, KAGAKU KOGAKU RONBUNSHU, Vol.14(6), 786-793 (1988).
- [8] Kaminoyama, M., Saito, F. and Kamiwano, M., Flow Analogy of Pseudoplastic Liquid in Geometrically Similar Stirred Vessels Based on Numerical Analysis, J. Chem. Eng. Jpn., Vol.23(2), 214-221 (1990).
- [9] Takeda, H., Narasaki, K., Kitajima, H., Sudoh, S., Onofusa, M. and Iguchi, S., Numerical simulation of mixing flows in agitated vessels with impellers and baffles, Computers & Fluids, Vol.22(2-3), 223-228 (1993).
- [10] Marshall, E.M. and Bakker, A., Handbook of Industrial Mixing - Science and Practice -, 257-343, John Wiley & Sons, Inc., New Jersey (2004).
- [11] Bakker, A., Laroche, R.D., Wang, M.H. and Calabrese, R.V., Sliding Mesh Simulation of Laminar Flow in Stirred Reactors, Chem. Eng. Res. Des., Vol.75(1), 42-44 (1997).
- [12] Derksen, J.J., Numerical simulation of solids suspension in a stirred tank, AIChE J., Vol.49(11), 2700-2714 (2003).
- [13] Rielly, C.D. and Marquis, A.J., A particle's eye view of crystallizer fluid mechanics, Chem. Eng. Sci., Vol.56(7), 2475-2493 (2001).
- [14] Misumi, R., Nakamura, N., Nishi, K. and Kaminoyama, M., Effects of Instantaneous Slip Velocity and Solute Distribution on the Dissolution Process of Crystal Particles in a Stirred Vessel, J. Chem. Eng. Jpn., Vol.37(12), 1452-1460 (2004).
- [15] Misumi, R., Sasaki, T., Kato, H., Nishi, K. and Kaminoyama, M., Relation between particle rising behavior and liquid flow around the bottom of a stirred vessel, Proc. of 14th European Conference on Mixing, 299-304 (2012).
- [16] Misumi, R., Nakanishi, R., Masui, Y., Nishi, K. and Kaminoyama, M., Lagrangian Numerical Simulation of Crystal Particle Impact in a Stirred Vessel, Proc. of 2nd Asian Conference on Mixing 2008, 269-275 (2008).
- [17] Misumi, R., Kato, H., Iijima, H., Nishi, K. and Kaminoyama, M., Quantification of Particle Collision on Impeller Blades in a Stirred Vessel, Proc. of 4th Asian Conference on Mixing, 201-204 (2013).
- [18] Cundall, P.A. and Strack, O.D.L., Discrete Numerical-Model for Granular Assemblies, Geotechnique, Vol.29(1), 47-65 (1979).
- [19] Tsuji, Y., Kawaguchi, T. and Tanaka, T., Discrete particle simulation of two-dimensional fluidized bed, Powder Technol., Vol.77(1), 79-87 (1993).

- [20] Takashima, I. and Mochizuki, M., Tomographic Observations of the Flow around Agitator Impeller, *J. Chem. Eng. Jpn.*, Vol.4(1), 66-72 (1971).
- [21] van't Riet, K. and Smith, J.M., The behaviour of gas-liquid mixtures near Rushton turbine blades, *Chem. Eng. Sci.*, Vol.28(4), 1031-1037 (1973).
- [22] Nienow, A.W., The Effect of Agitation and Scale-up on Crystal Growth and on Secondary Nucleation, *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, Vol.54, 205-207 (1976).
- [23] Takahashi, K., Gidoh, Y., Yokota, T. and Nomura, T., Particle-Impeller Impact in an Agitated Vessel Equipped with a Rushton Turbine, *J. Chem. Eng. Jpn.*, Vol.25(1), 73-77 (1992).
- [24] Kee, K.C. and Rielly, C.D., Measurement of particle impact frequencies and velocities on impeller blades in a mixing tank, *Chemical Engineering Research & Design*, Vol.82(A9), 1237-1249 (2004).
- [25] Isaji, M., Ookawara, S. and Ogawa, K., Correlation Equation of Particle Collision Frequency with Impeller in a Stirred Tank, *KAGAKU KOGAKU RONBUNSHU*, Vol.32(4), 315-326 (2006).
- [26] Misumi, R., Crystal particle collision with impeller blade and particle attrition in a stirred type crystallizer, *Recent Advances in Chemical Engineering* 64, Sankeisha (2015) (in press).
-