湿式球形造粒時の攪拌動力

The Power Requirement of an Agitating Impeller
in Spherical Agglomeration in a Tank

高瀬 均*, 左波 一彦*

Hitoshi TAKASE*, Kazuhiko SANAMI*

The power requirement characteristics of an agitating impeller in a spherical agglomeration tank were investigated. Two spherical agglomeration systems were adopted in the experiment: coal-heavy oil-water; and CaCO_3 - CaCl_2 aq. soln.- CCl_4 . The uniform suspension in the tank was maintained through the agglomeration process.

During the progress of spherical agglomeration, the particle size distribution of agglomerates shifted to the large size range, and the compaction of the agglomerates was promoted. The power requirement increased with increasing mean agglomerate size, with the bulk volume of agglomerates in the slurry, and with the density of the agglomerate.

The empirical equation, which shows the relationship between the ratio of the power number in the spherical agglomeration to that in the agitation of the disperse medium without agglomerates and the suspending conditions of the agglomerates, was obtained.

Key Words : Spherical Agglomeration, Agitation, Power Number, Suspension, Particle Size Distribution

1. 緒言

湿式球形造粒法^{1,2)}では、微細粒子を懸濁させた液中に分散媒と非混和性の架橋剤を添加して攪拌し、架橋剤を介して懸濁粒子を凝集、さらにこれらを合一、圧密させて造粒粒子が得られる。この時、分散相である造粒粒子の粒子径分布、造粒粒子密度などが造粒の進行につれて連続的に変化する。このような造粒粒子の特性値の変化は、造粒粒子を含む懸濁液の攪拌動力にも影響を与えると考えられる。

これまで、均一固体粒子懸濁液の攪拌動力特性は、主に懸濁粒子径の大きさにより二つのパターンに分けられてきた。一つは懸濁粒子の平均径が0.42mm以下、液中における粒子体積分率が0.15以下の、微小粒子かつ低粒子濃度の場合である。このとき、攪拌動力は液に対する攪拌動力推算式において、液密度の代わりに懸濁液の平均密度を代入することによりほぼ推算できる^{3,4)}。これに対し、より粒子径の大きな粒子を含む懸

濁液を攪拌する場合、攪拌動力は上記の方法による推算値よりも大きくなる⁵⁾。この原因の一つとしては、粒子径の増大につれて、粒子と攪拌翼面との衝突による抵抗が大きくなることが指摘されている。一方、著者ら⁶⁾は、液と同密度の平均粒子径が0.46~2.19mmの粗粒子を懸濁させたスラリーの攪拌動力特性について検討し、攪拌動力が懸濁粒子の液中におけるかさ体積と平均粒子径により大きく影響されることを示している。

著者らは既報⁷⁾において、均一懸濁状態の攪拌槽造粒器内での湿式球形造粒時の攪拌トルクについて検討し、攪拌トルクが造粒の進行につれて変化することを述べた。そして、攪拌トルクの変化が造粒進行の一つの指標となりうること、また平均造粒粒子径が0.5mmを超えるようになると、造粒粒子径の増大につれての攪拌トルクの増大が顕著となることを示した。しかし、攪拌動力特性とこれに大きく影響すると思われる造粒粒子の種々の特性値との定量的関係については、ほとんど明かにしていない。本論文では、湿式球形造粒においては、造粒粒子が分散媒中の懸濁粒子であるとの観点から、既報⁶⁾の均一固体粒子懸濁液に対する攪拌動力特性の検討結果などをもとに、造粒時

1996年 6月 3日受付

* 富山大学工学部物質工学科

(〒930 富山市五福 3190) TEL. 0764-45-6830

Dept. of Materials Sci. and Eng., Toyama Univ.

(3190 Gofuku, Toyama-shi, 930)

の搅拌動力変化と造粒粒子の粒子径分布、液中における体積分率、密度などとの関係について検討を行った。

2. 実験装置および実験方法

湿式球形造粒を、Fig. 1に示す円筒型搅拌槽造粒器内で行った。造粒器は内径10cmで、器壁には幅1.4cmの邪魔板が4枚設けられている。搅拌翼は、羽根径6cm、羽根幅1cmの櫂型4枚羽根で、その中心を器底から5cmの位置に置いた。Tables 1, 2に、本論文で検討した2つの湿式球形造粒系の実験条件、および用いた試料の物性を示す。このうち、炭酸カルシウム-20wt%-塩化カルシウム水溶液-四塩化炭素系(以後、炭酸カルシウム造粒系と呼ぶ)の造粒については、既報⁷⁾で報告した実験結果をもとに造粒粒子に関する特性値、動力数などの値を算出し、その結果より造粒時の搅拌動力特性について検討を行った。このため、炭酸カルシウム造粒系のみに適用される実験方法についての説明は、ここでは省略することにする。

試料粒子を懸濁させた液中に、架橋剤を10秒間で添加して湿式球形造粒を開始した。架橋剤添加開始時を、造粒時間 $t_a=0\text{min}$ とした。造粒時の搅拌動力 P および造粒粒子に関する特性値の測定を、 $t_a\geq 1.5\text{min}$ の範囲で行った。 $t_a\geq 1.5\text{min}$ において、造粒器中の懸濁

液を固・液分離し、分離液中に含まれる架橋剤量の測定を次のように行った。水中の重油量をJIS K 0102「工場排水試験方法」のn-ヘキサン法により測定し、四塩化炭素中の塩化カルシウム水溶液量を分離液の密度測定の結果から求めた。その結果、 $t_a\geq 1.5\text{min}$ においては、添加架橋剤のほぼすべてが造粒粒子中に含まれていることを確認した。造粒粒子採取点より造粒粒子を採取し、これを乾燥後、篩分け法により粒子径分布を測定した。

石炭粒子-重油-水系(以後、石炭造粒系と呼ぶ)において、造粒粒子中の水分量の測定を以下の方法で行った。所定時間の搅拌後、造粒器内の懸濁液を底部に100メッシュの金網を設けた内径65mmの円筒器内に流し込み、3minにわたって脱水液量の増加がゼロになるまで通気脱水を行った。その後、器内の造粒粒子層中の全水分重量 w_t を、JIS K 2275「原油及び石油製品水分試験方法」の蒸留法により測定し、造粒粒子径の大きさとの関係から造粒粒子外部の水分重量 w_o を算出して⁸⁾、Eq.(1)により正味の造粒粒子中の水分重量 w_i を求めた。この w_i の値は、造粒粒子密度 ρ_a の算出の際に、造粒粒子中の分散媒重量として用いられた。

$$w_i=w_t-w_o \tag{1}$$

造粒器内の均一懸濁状態の確認を、既報⁷⁾と同様の方法により行った。すなわち、造粒を行った場合と同器

Fig. 1 Experimental apparatus(Unit cm)

Table 1 Experimental conditions

Powder	Disperse medium	Bridging liquid	c (vol%)	r (-)	T (°C)	n (s ⁻¹)	t_{al} (min)
Coal	Water	Heavy oil	8	0.45	30	25	20
				0.50			
			12	0.55			
CaCO ₃	CCl ₄	20wt%-CaCl ₂ aq. soln.	12	0.30	40	25	10
				0.35			
				0.40			

Table 2 Properties of materials

	$\rho_p(\text{kg/m}^3)$	$d_{50}(\text{m})$		
Coal powder	1.53×10^3	2.18×10^{-5}		
CaCO ₃ powder	2.72×10^3	8.79×10^{-6}		
	$\rho(\text{kg/m}^3)$	$\eta(\text{mPa} \cdot \text{s})$	$T(^{\circ}\text{C})$	
Water	1.00×10^3	0.80	30	
Heavy oil	8.69×10^2	14.8		
CCl ₄	1.56×10^3	0.74	40	
20-wt%-CaCl ₂ aq. soln.	1.16×10^3	1.25

Fig. 2 Examination of homogeneous suspension of agglomerates in agitated tank

内に液と同密度のモデル粒子を懸濁させて均一懸濁状態とした場合について、器底よりの高さ $h=2.5, 7.5, 12.0\text{cm}^{*1)}$ の位置の器壁に設けた、内径6mmの採取口よりそれぞれ懸濁液を採取し、そこに含まれる固体粒子濃度を相互に比較することにより、造粒粒子の懸濁状態の確認を行った。Fig. 2に、懸濁液採取実験の結果を示す^{*2)}。採取懸濁液中の固体粒子濃度 c' と造粒器内の平均固体粒子濃度 c の比 c'/c の値は、(懸濁粒子径)/(採取口径)の比に影響されて、懸濁粒子の体積平均径 d_v が大きくなるにつれて減少するが、固・液が同密度で均一懸濁状態となっている球形モデル粒子(スチロポール粒子、 $\rho=1.03\times 10^3\text{kg/m}^3$)–4.5wt%-NaCl水溶液(30℃、 $\rho_d=1.03\times 10^3\text{kg/m}^3$ 、 $\eta_d=0.86\text{mPa}\cdot\text{s}$)系に対する c'/c と各造粒系に対する c'/c は、ほぼ同じ値を示している。また、懸濁粒子径が同じ場合、各採取口高さに対する c'/c もほぼ同じ値となっている。これより、湿式球形造粒時においても、造粒器内では造粒粒子の均一懸濁状態が保たれているものと考えられる。

3. 実験結果および考察

3.1 湿式球形造粒の進行と搅拌動力の変化

Fig. 3に、造粒の進行に伴う造粒粒子の粒子径分布の変化を示す。粒子径分布は、造粒時間の経過につれて大粒子径側に移行するが、造粒初期において炭酸カルシウム造粒系の方が石炭造粒系に比較して分布幅が広がる傾向が見られる。また、造粒時間 $t_a\geq 1.5\text{min}$ においては、いずれの造粒条件においても平均造粒粒子径 $d_v\geq 2.7\times 10^{-4}\text{m}$ となった。このような粒子径範

*1) $h=12.0\text{cm}$ の採取口は、造粒器上部の内径5cmの円筒部器壁に設けられた。

*2) 炭酸カルシウム造粒系に対しては、 $h=2.5, 7.5\text{cm}$ の採取口を使って行われた既報⁷⁾の結果を示した。

Fig. 3 Particle size distribution of agglomerates

囲では、懸濁造粒粒子間に働く凝集力は他の外力に比較して相対的に小さくなり、造粒は主に液の乱れや剪断流れなどによる造粒粒子同士の衝突により進行するものと考えられる。そして、個々の造粒粒子はニュートン流体である分散媒中でよく分散した状態で懸濁していると考えられる。

Fig. 4に、搅拌動力 P の測定結果を示す。図中に矢印で示した P_{water} 、 P_{CCl_4} は、各造粒系での分散媒である水、および四塩化炭素のみを造粒器内に入れて搅拌した際の搅拌動力である。造粒時の搅拌動力は、分散媒のみを搅拌する場合より大きく、またFig. 3との比較より、造粒の進行につれて増大することがわかる。

Fig. 5に、Eqs(2), (3)で定義される分散媒のみを搅拌した場合の動力数 N_{p0} と造粒時の動力数 N_p との比 N_p/N_{p0} の経時変化を示す。

Fig. 4 Change in power requirement of impeller with the progress of spherical agglomeration

Fig. 5 Relationship between N_p/N_{p0} and t_a

$$N_{p0} = \frac{P}{\rho_d n^3 d_i^5} \quad (2)$$

$$N_p = \frac{P}{\rho_s n^3 d_i^5} \quad (3)$$

ここで、 ρ_s は造粒粒子を含む懸濁液の平均密度で、造粒粒子密度 ρ_a および造粒粒子の懸濁液中での体積分率 $\Phi^{*3)}$ より、Eq. (4)で求められる。

$$\rho_s = \rho_d(1 - \Phi) + \rho_a \Phi \quad (4)$$

ρ_a , Φ は、それぞれ次式で求められた。

$$\rho_a = \frac{M_p + M_b + M_d}{V_p + V_b + V_d} \quad (5)$$

$$\Phi = \frac{V_p + V_b + V_d}{V_t} \quad (6)$$

ここで、 M_p , V_p , M_b , V_b , M_d , V_d は、それぞれ造粒粒子中に含まれる固体粒子、架橋剤、分散媒の重量および体積であり、 V_t は造粒器内の全懸濁液体積である。

Fig. 5において、 N_p/N_{p0} は1より大きく、時間の経過とともにその値が増大している。二つの分散媒に対する動力数 N_{p0} は、いずれも2.26と同じ値となった。これは、水、四塩化炭素がともにニュートン流体であり、これらの液を $n=25s^{-1}$ で搅拌すると、搅拌レイノルズ数 N_{Re} がそれぞれ 1.13×10^5 , 1.90×10^5 となり、造粒器内がともに乱流搅拌状態となるためと考えられる。

*3) 本論文では、内部に試料固体粒子、架橋剤、分散媒を含む造粒粒子の懸濁液中での体積分割合を、体積分率(—)で示した。

すなわち、 N_p/N_{p0} の変化は N_p の変化に対応しており、 N_p/N_{p0} の値の1からのずれは、造粒粒子が液分子と異なる大きさ、密度を持つため、両者の運動状態が異なり、これが結果的に搅拌抵抗の増大につながって、 N_p を増大させるためと考えられる。また、 N_p の値は炭酸カルシウム造粒系の方が石炭造粒系の場合に比較して大きな値となっている。Eq. (3)の定義より、 N_p には懸濁液の平均密度の影響が含まれている。これより、両造粒系における N_p の違いには、それぞれの造粒粒子密度と分散媒密度との大きさの違いによる影響が大きいと考えられる。固体粒子濃度 c を8 vol%, 12 vol%と変えて行った石炭造粒系において、架橋剤添加率 r が同じ条件では、 N_p は $c=12\text{vol}\%$ の場合の方が大きな値となった。

3. 2 懸濁造粒粒子の種々の特性値

湿式球形造粒時においては、Fig. 3に示するような造粒粒子の粒子径分布の変化が起きると同時に、造粒粒子に関する他の特性値も変化する。

Fig. 6に、造粒時における造粒粒子の懸濁液中における体積分率 Φ 、粒子充填率 ϕ_p および密度 ρ_a の経時変化を示す。造粒粒子をランダム充填した際の充填率に相当する粒子充填率 ϕ_p を、造粒粒子を球形と仮定して、粒子径分布の測定結果よりLee⁹⁾の方法により求めた。Fig. 6において、 Φ は時間 t_a の経過とともに減少し、これに伴い ρ_a は増大している。これは、造粒の進行につれて造粒粒子の圧密が進んでいることを示しており、炭酸カルシウム造粒系において、 Φ , ρ_a の変化がより大きくなっている。粒子充填率 ϕ_p は、造

Fig. 6 Change in Φ , ϕ_p and ρ_a with t_a

粒初期において炭酸カルシウム造粒系の方が大きな値となっている。これは、Fig. 3に示すように、造粒初期において炭酸カルシウム造粒系の造粒粒子径分布の幅が広がることが原因である。造粒操作終了時($t_a = t_{al}$)において、両造粒系ともに ϕ_p は約0.65となった。

3.3 動力数と懸濁造粒粒子の特性値との関係

Fig. 5に見られる造粒時と分散媒搅拌時との動力数の違いは、分散媒中での懸濁造粒粒子の有無から生じたものであり、また動力数の経時変化は造粒粒子の種々の特性値の変化に伴って起こっているものと考えられる。しかし、造粒時に同時かつ連続的に変化する造粒粒子の各特性値の搅拌動力に対する影響を、それぞれ個別に検討することはかなり困難である。そこで、搅拌動力への造粒粒子の液中における体積分率 ϕ 、粒子充填率 ϕ_p 、および平均造粒粒子径の影響については、モデル粒子を用いて検討した均一固体粒子懸濁液に対して得られた搅拌動力と粒子懸濁条件との関係が、そのまま造粒時の搅拌にも適用できると考えて、造粒時の搅拌動力特性について検討を行った。

著者らは既報⁶⁾において、4.5wt%-NaCl水溶液中に同密度の球形モデル粒子(スチロポール粒子、 $d_p = 0.46 \times 10^{-3} \sim 2.19 \times 10^{-3} \text{m}$)を含む均一懸濁液の搅拌動力について検討し、液基準の搅拌レイノルズ数 N_{Re} が $6.43 \times 10^4 \leq N_{Re} \leq 1.07 \times 10^5$ の範囲内において、動力数比 N_p/N_{p0} と粒子懸濁条件との間にEqs. (7), (8)の相関式を得た。そして、実測値から計算される N_p/N_{p0} の値は、ほぼEq. (7)の右辺から求められる N_p/N_{p0} の計算値 $\times (1 \pm 0.1)$ の範囲内となることを確かめている。

$$N_p/N_{p0} = (1 - \phi/\phi_p)^A \quad (7)$$

$$A = -12.3d_v^{0.49} \quad (8)$$

Eqs. (7), (8)は、懸濁液単位体積当たりの懸濁粒子のかさ体積 ϕ/ϕ_p の増大、または懸濁粒子の可動領域に相当する値 $(1 - \phi/\phi_p)$ の減少につれて、また平均粒子径が大きくなるにつれて、動力数比 N_p/N_{p0} が大きくなることを示している。

Fig. 7は、 N_p/N_{p0} と造粒粒子の ϕ 、 ϕ_p 、 d_v との関係がEqs. (7), (8)で表されるとして、 $(N_p/N_{p0})/(1 - \phi/\phi_p)^A$ と t_a との関係を示したものである。図中において、 $(N_p/N_{p0})/(1 - \phi/\phi_p)^A$ の値は、その大半が1より大きくなり、一部において造粒初期に減少傾向が見られるものの、全体としては造粒時間の経過とともに増大する傾向が見られる。 $(N_p/N_{p0})/(1 - \phi/\phi_p)^A$ の値には、動力数に対する懸濁造粒粒子の ϕ 、 ϕ_p 、

Fig. 7 Relationship between $(N_p/N_{p0})/(1 - \phi/\phi_p)^A$ and t_a

d_v の影響が考慮されていることから、このような造粒の進行に伴う $(N_p/N_{p0})/(1 - \phi/\phi_p)^A$ の値の増大は、もう一つの造粒粒子に関する特性値である造粒粒子密度の増大による影響が大きいものと考えられる。

Fig. 8に、 $(N_p/N_{p0})/(1 - \phi/\phi_p)^A$ と造粒粒子と分散媒との密度の比 ρ_a/ρ_d との関係を示す。 $(N_p/N_{p0})/(1 - \phi/\phi_p)^A$ は、 ρ_a/ρ_d の値が大きくなるにつれて増大している。本研究で造粒器として用いたような邪魔板付き搅拌槽内では、懸濁液の流れ方向が急角度で頻繁に変わる。特に、搅拌動力に大きく影響する翼回転域付近においても流れ方向は急激に変化する。造粒粒子と液の密度差の増大は、流れ方向の急変箇所などにおいて、慣性の影響などにより造粒粒子と液との運動方向の違いを大きくする。このような造粒粒子と液の運動方向の違いは、造粒粒子の回転翼への衝突、懸濁液の造粒器内での流動性などに影響し、結果

Fig. 8 Relationship between $(N_p/N_{p0})/(1 - \phi/\phi_p)^A$ and ρ_a/ρ_d

的に搅拌動力の増大につながっているものと考えられる。Fig. 8の結果より、湿式球形造粒時の搅拌動力変化と造粒粒子の懸濁条件との関係は、Eqs.(9), (8)で表される。

$$N_p / N_{p0} = (1 - \Phi / \Phi_p)^A (\rho_a / \rho_d)^{0.34} \quad (9)$$

$$A = -12.3 d_v^{0.49} \quad (8)$$

4. 結 言

湿式球形造粒時の搅拌動力特性と造粒粒子の懸濁条

件との関係について、二つの造粒系による実験結果をもとに検討した。

均一懸濁状態の下で行われた湿式球形造粒時の動力数は、分散媒のみを搅拌した場合の動力数よりも大きく、平均造粒粒子径、懸濁液中における造粒粒子のかさ体積、造粒粒子密度が大きくなるにつれて増大した。

造粒時の動力数変化と造粒粒子の分散媒中における懸濁条件との関係を表す実験式を得た。

Nomenclature

A : variable	(-)	t_a : agglomeration time	(min)
c : volume concentration of powder in suspension		t_{al} : longest agglomeration time	(min)
	(vol%)	V : volume in agglomerates	(m ³)
c' : volume concentration of powder in sampled suspension	(vol%)	V_t : volume of suspension in tank	(m ³)
d_a : agglomerate diameter	(m)	w_i : water weight in coal agglomerates	(kg)
d_i : impeller diameter	(m)	w_0 : water weight in the outside of coal agglomerates	(kg)
d_p : particle diameter	(m)	w_t : total water weight in the packed bed of coal agglomerates after air blow drainage	(kg)
d_v : volume mean diameter of agglomerate	(m)	η : viscosity	(mPa · s)
d_{50} : 50% diameter of powder	(m)	ρ : density	(kg · m ⁻³)
h : height of sampling tap of suspension from tank bottom	(cm)	Φ : volume fraction of agglomerates in suspension	(-)
M : weight in agglomerates	(kg)	Φ_p : packing fraction of agglomerates	(-)
N_p : power number(= $P / (\rho_s n^3 d_i^5)$)	(-)		
N_{p0} : power number(= $P / (\rho_d n^3 d_i^5)$)	(-)		
N_{Re} : Reynolds number(= $\rho_d n d_i^2 / \eta_d$)	(-)		
n : impeller speed	(s ⁻¹)	<Subscripts>	
P : power requirement of impeller	(W)	a : agglomerate	
R : weight-basis cumulative oversize percent	(%)	b : bridging liquid	
r : volume ratio of added bridging liquid to powder	(-)	d : disperse medium	
T : temperature	(°C)	p : powder	
		s : suspension	

References

- 1) Sirianni, A. F., C. E. Capes and I. E. Puddington : "Recent Experience with the Spherical Agglomeration Process", *Can. J. Chem. Eng.*, **47**, 166(1969)
- 2) Kawashima, Y and C. E. Capes : "An Experimental Study of the Kinetics of Spherical Agglomeration in a Stirred Vessel", *Powder Technology*, **10**, 85(1974)
- 3) Endo, K. : "Eki · Eki, Ko · Ekikei Kakuhanseyohidouryoku No Suitei", *Kagaku Kogaku*, **20**, 632(1956)
- 4) Nagata, S. : "Mixing", p.64, Kodansha(1975)
- 5) Kagaku Kogaku Kyokai(ed.) : "Kagaku Kogaku Benran, 5th ed.", p.908, Maruzen(1988)
- 6) Takase, H and K. Sanami : "Power Consumption of Agitating Impeller in Uniform Coarse Suspension with No Difference in Density between Particles and Liquid", *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **22**, 945(1996)
- 7) Takase, H., K. Sanami and M. Sugimoto : "Change in the Impeller Torque with the Progress of Spherical Agglomeration in an Agitated Vessel", *J. Soc. Powder Technol., Japan*, **29**, 269 (1992)
- 8) Takase, H. and M. Sugimoto : "Influence of Agglomerate Size on Drainage of Packed Bed of Coal Agglomerates" *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **15**, 238 (1989)
- 9) Lee, D. I. : "Packing of Spheres and Its Effect on the Viscosity of Suspension", *J. Paint Technol.*, **42**, 579(1970)