

助成番号 0813

連続式食塩晶析装置の高懸濁濃度化・スケールアップに関する基礎的研究

三角 隆太, 上ノ山 周, 仁志 和彦

横浜国立大学大学院工学研究院

概要 1. 研究目的 高懸濁濃度の粒子に対して低所要動力にて分散が達成できるように形状が最適化されたドラフトチューブ付攪拌槽を用いて、塩化ナトリウムの半回分式蒸発晶析実験を行った。結晶成長速度と結晶粒径分布の分散度をあわせて定量的に考慮することができる評価指標を提案し、同指標を用いることで加熱速度ごとの最適種晶添加条件について検討した。また、同装置の連続式装置への改良を実施し、試験実験を行った。

2. 実験方法 槽内の人工かん水をドラフトチューブの外側に巻き付けたシースヒーターを用いて加熱速度 $H = 400 \sim 1,200 \text{ W}$ で加熱し、蒸発量に応じた液量の塩化ナトリウム飽和水溶液を供給する半回分式蒸発晶析実験を行った。平均粒径 $d_s = 70 \sim 300 \mu\text{m}$ 、重量 $M_s = 20 \sim 250 \text{ g}$ の種晶を添加し、 $H = 1,200 \text{ W}$ の場合、槽内の粒子懸濁濃度が 30 vol% 以上となる 3~3.5 時間後まで晶析を行った。結晶の成長にともなう粒径分布の経時変化を、高速度ビデオカメラを用いて測定し、体積基準のふるい下累積体積 90% 粒径 $D_{90,\text{exp}}$ の経時変化を算出した。

3. 実験結果および考察 最適な種晶添加条件を検討するために、評価指標 $I_{\text{op}} (= (dD_{90,\text{exp}}/dt)_0 \times ((dD_{90,\text{exp}}/dt)_s / (dD_{90,\text{cal}}/dt)_s)$ を定義した。ここで $D_{90,\text{cal}}$ は、種晶の粒径分布と重量に応じて種晶の結晶個数 N_s を決定し、それらが核発生や凝集を伴わずに、結晶析出量の増大にあわせて一様に成長するものと仮定して算出したモデル計算値を表す。 I_{op} の第 1 項 $I_{\text{op},1}$ は結晶成長の速さを、第 2 項 $I_{\text{op},2}$ は結晶成長速度の実測値と理想的なモデル計算での成長速度の比をとることで、核発生、凝集の程度を表し、両項を掛け合わせた I_{op} が大きい条件ほど粒径分布が単峰性で大きな結晶を迅速に得るために適切な操作条件となる。

$I_{\text{op},1}$ を算出することにより、加熱速度が大きいほど成長速度が速くなり、また N_s を増加させると成長速度が小さくなることわかった。これは、 N_s を増加させると粒子 1 個あたりの析出量が小さくなるためと考えられる。 $I_{\text{op},2}$ を算出することにより、 N_s を増加させると種晶表面積が増加するため、晶析初期(種晶添加直後)での核発生を抑制することができ、粒径分布は単峰性を維持しやすくなることわかった。 I_{op} は N_s に対して単調に大きくなり、 N_s がある値以上に大きい場合は低下する傾向があることわかった。すなわち、粒径分布がシャープで大きな結晶を迅速に生成するためには、適切な個数の種晶を添加することが重要であることが示唆された。

1. 研究目的

蒸発晶析操作は、製塩・化学・製薬工業等において広く用いられる重要な反応・分離操作である。ここで、蒸発晶析装置の生産効率を向上させるためには、槽内における結晶粒子の懸濁密度の増大、結晶の平均成長速度の向上ならびにシャープな粒径分布を両立させることが要求される。一般に槽内の粒子懸濁密度を大きくした場合、(a) 粒子の浮遊分散状態が著しく不良となり安定分散が困

難となる問題や、(b) 結晶粒子どうしの衝突や結晶粒子と装置壁面との衝突が顕著となり、結晶粒子の摩耗やそれにとともなう二次核の発生により平均成長速度が低下する問題などが引き起こされる。

筆者らはこれまでに、ガラスビーズをモデルケースとした粒子の浮遊分散実験を実施し、ドラフトチューブと下向き吐出の 3 枚プロペラ翼を組み合わせることで、平均粒径 600 μm 、粒子懸濁濃度 30~40 vol%(最大 60 wt%に相当)

の大粒径・高懸濁密度条件においても安定した粒子分散を達成することができることを確認した。さらに結晶摩擦や二次核発生の抑制が期待される低い攪拌所要動力で粒子の均一分散を達成することができる最適なドラフトチューブ径、攪拌翼回転数等について検討してきた^{1,2)}。

平成19年度の研究助成期間においては、この攪拌装置を半回分式食塩蒸発晶析操作に応用した晶析実験を実施した^{3,4)}。その結果、加熱速度1,200 Wの条件では、晶析開始後3時間で結晶懸濁濃度は約35%と非常に大きな値を達成でき、その際の液面近傍、槽底近傍での粒子の分散状態は非常に良好に保持され、ドラフトチューブの有効性が示された。また、種晶添加量を200 gと多くした場合、晶析初期の核発生が抑制され、添加した種晶の単峰性を維持したままほぼ一様に成長させることができることを明らかにした。

今年度は、昨年に引き続き半回分式操作を対象に、溶液の加熱速度、種晶の添加条件(粒径や添加重量)を操作条件とした場合の、粒子懸濁密度、結晶粒径分布の経時変化について調べた。さらに、種晶の理想的な結晶成長を仮定したモデル計算を基準として実測値と比較することで、結晶成長速度の大きさと粒径分布の分散度をあわせて定量的に考慮することができる評価指標を提案し、同指標を用いることで加熱速度ごとの最適種晶添加条件について検討した。

また、半回分式実験にて得られた知見をもとに、同装置

の連続式装置への改良を実施した。連続式装置の試運転を行い、連続的なスラリー抜き出し方法について検討した。あわせて、連続式操作を対象とした、結晶懸濁密度、結晶粒径分布の経時変化のモデル計算を実施した。

2. 実験装置および方法

Fig. 1 に蒸発晶析装置の概略を示す。晶析槽は内径130 mmの透明ガラス製で、底形状は皿型とした。中心位置での液深を140 mm、液容量を1,730 mlとした。内径77 mm、外径85 mm、長さ94 mmのステンレス製ドラフトチューブを上端が液面から18 mmの位置となるように設置した。この場合、ドラフトチューブの内側の水平断面積は、外側の環状部の水平断面積の0.6倍に相当する。ドラフトチューブの内側上部に幅8 mm、長さ74 mmの邪魔板を対角位置に2枚取り付け、軸方向流れの整流効果を持たせた。攪拌翼は回転直径が70 mmのステンレス製3枚プロペラ翼(東京理化学器械(株)製)を用い、攪拌翼回転数は 9.17 s^{-1} と設定した。これらのドラフトチューブ寸法、攪拌翼形状、回転数等の条件は、ガラス粒子を用いたモデル実験に基づいて、高懸濁密度条件に対して低動力での分散が達成できる適切な値を決定した^{1,2)}。

ドラフトチューブの外側にコイル状に巻いたSUS316製の2本のシース型フレキヒーター(坂口電熱(株)製、1M-1-1000型、および1M-1-600型)を用いて槽内の溶液を加熱した。シースヒーターは並列に接続し、その時の電気抵

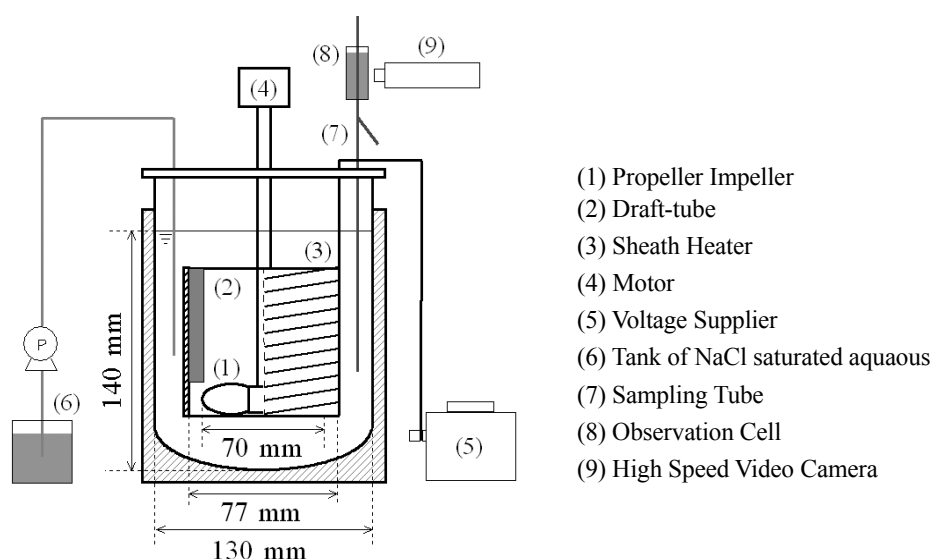


Fig. 1. Experimental apparatus (Semi-batch type)

抗は 6.45Ω であり、負荷する電圧を 53 V、75 V、92 V と設定することで、加熱速度 H をそれぞれ 400 W、800 W、1,200 W と変化させた。槽内溶液加熱時の熱損失は、1,200 W の条件の場合、溶液の沸騰開始前は約 6 %、沸騰開始後は 35～45% であった⁴⁾。槽内溶液が常温から沸騰を始めるまでに要する時間は 1,200 W の場合で約 9 分 30 秒であり、その 4 分後にスラリー状の種晶を添加し晶析を開始した。沸騰開始から種晶添加までの溶液蒸発量をそろえるために、その時間を 400 W、800 W、1,200 W の加熱速度条件に対してそれぞれ 12 分、6 分、4 分と設定し、種晶添加時刻を晶析開始時刻と定義した。この操作により種晶添加時(晶析開始時刻)までの溶液への投入電力量を加熱条件にかかわらず統一することができ、種晶添加時における溶液の過飽和度もおおよそ同程度とすることができる。なお、種晶を添加しない条件においても、沸騰開始から上述の所定時間が経過した時刻をもって晶析開始時刻と定義した。

晶析槽には、あらかじめ人工かん水⁵⁾ 1,730 ml を仕込み、溶液の蒸発により低下する液面高さを一定に保持するため、23.5°C 飽和濃度に調整した塩化ナトリウム(NaCl)水溶液を定量ポンプにより毎分 10～30 ml の流量で供給する半回分式とした。槽内への供給液量は後述する結晶サンプリング時の希釈液と合計して、1,200 W の加熱条件で毎時 1,300 ml 程度となる。粒径 250～355 μm ($d_s = 300 \mu\text{m}$ に対応)、150～250 μm ($d_s = 200 \mu\text{m}$)、75～106 μm ($d_s = 90 \mu\text{m}$)、38～106 μm ($d_s = 70 \mu\text{m}$) の範囲でふるい分けした塩化ナトリウム結晶 20～250 g を 23.5°C 飽和濃度に調整した塩化ナトリウム水溶液 200 ml に分散させ一晩静置し、雑晶を溶解させたものを種晶スラリーとして用いた。

結晶粒径・形状の計測には高速吸引サンプリング法を用いた^{4, 6, 7)}。晶析槽内に設置されたドラフトチューブの外側環状部の、チューブ下端を基準としてチューブ長さの 1/4 の高さの位置に内径 2 mm の透明ガラス製の結晶吸引管の先端を設置した。吸引管は耐熱シリコンチューブを介して真空ポンプと接続され、所定時刻に槽内の結晶を含んだ溶液(結晶スラリー)を晶析槽の上方外部に吸引した。結晶スラリーは、吸引管の途中に設置したガラス製可視化セルを通過し、通過する際の結晶を高速度ビデオカメラ((株)ナックイメージテクノロジー製、Memrecam Ci-Expo 型)で撮影した。高速度ビデオカメラの撮像素子

サイズの対角長は 1/3 インチ(水平 4.8 mm × 垂直 3.6 mm)、画素数は水平 510 個 × 垂直 484 個、光学拡大倍率は 1.8 倍であり、この時の水平分解能は約 5.2 μm 、垂直分解能は約 4.1 μm であった。撮影速度毎秒 500 コマの条件で、1 回の吸引あたり 1.02 秒間の撮影を行い、511 枚の画像が得られた。この操作を 3～4 回繰り返すことで 1,500～2,000 枚の画像を撮影し、画像処理ソフトウェア((株)デジモ製、Image Hyper II 型)を用いて粒子径(面積等価円直径)を解析した。以上の操作により測定時刻毎に 5,000～30,000 個の粒子径データを得た。

本研究の目的である高懸濁濃度条件(15 vol% 以上)の場合、吸引管内で結晶の重なりが発生し個々の粒子を識別した画像解析が困難となる。そこで、可視化セルの下部に分岐管を設置し、そこから 90°C の NaCl 飽和水溶液を 1 回の吸引あたりおおよそ 15 ml 注入し、スラリーを希釈することで結晶の重なりを防止した。なお、スラリーが希釈液注入部から可視化セルを通過するまでに所要する時間は約 0.05 s と極めて短時間であり、希釈操作が粒径分布に及ぼす影響は無視できるものと考えられる。

3. 実験結果および考察

3.1 モデル計算にもとづいた最適操作条件の評価指標 l_{op} の検討

本研究では半回分式の種晶添加晶析を対象とすることから、種晶の粒径分布と重量に応じて結晶個数 N_s を見積もり、それらが核発生や凝集を伴わずに、結晶析出量の増大にあわせて一様に成長するものと仮定したモデル計算を実施した。実験データと比較することで実測される結晶成長の良否を定量的に判定する手法について検討した。**Fig. 2** に種晶平均径 $d_s = 300 \mu\text{m}$ の場合のモデル計算結果の一例を示す。同図(a)は粒径分布の経時変化を示しており、モデル計算では平均粒径 300 μm の種晶が粒径分布の相似形を保持したまま成長することがわかる。同図(b)は、モデル計算によるふるい下累積体積 90% 粒径 $D_{90,cal}$ の経時変化を示しており、結晶成長速度は種晶添加重量 M_s が小さいほど大きくなり、時間経過とともに小さくなることわかる。この結果は、(a) M_s が小さい場合、結晶個数が少なくなり結晶 1 個あたりの析出量が多くなり成長速度が大きくなるためと、(b) 時間経過とともに槽内結晶の総表面積が大きくなり、線成長速度が小さくなるため

と説明できる。

最適な種晶添加条件を検討するために、次式の評価指標 I_{op} を定義した (Fig. 3 を参照)。

$$I_{op} = (dD_{90,exp}/dt)_0 \times \frac{(dD_{90,exp}/dt)_S}{(dD_{90,cal}/dt)_S} \quad [\mu\text{m}/\text{h}] \quad (1)$$

ここで $D_{90,exp}$ はふるい下累積体積90% 粒径の実験値を表す。 I_{op} の第1項 $I_{op,1}$ ($= (dD_{90,exp}/dt)_0$ [$\mu\text{m}/\text{h}$])。添え字0は、原点を通過する近似直線であることを示す。)は結晶成長の速さをあらわし、第2項 $I_{op,2}$ ($= (dD_{90,exp}/dt)_S / (dD_{90,cal}/dt)_S$ [-])。添え字Sは、種晶の D_{90} を切片とする近似直線であることを示す。)は結晶成長速度の実測値と理想的なモデル計算での成長速度の比をとることで、核発生、凝集の程度をあらわす。核が発生する場合、結晶成長速度の実測値はモデル計算値と比較して小さくなり $I_{op,2}$ は1より小さくなる。結晶凝集が多く発生する場合結晶成長速度の実測値

は大きくなり、 $I_{op,2}$ は1より大きくなる。 $I_{op,1}$ と $I_{op,2}$ を掛け合わせた I_{op} [$\mu\text{m}/\text{h}$] が大きい条件ほど、粒径分布が単峰性で大きな結晶を迅速に得るために適切な操作条件となる。

3.2 $I_{op,1}$ と加熱速度、種晶個数の関係

Fig. 4 に、加熱速度 H および種晶添加条件(平均粒径 d_s と添加重量 M_s) を変化させた場合の $I_{op,1}$ の変化を示す。ここで、種晶添加条件は付図に示すとおりであり、 d_s と M_s の両者を考慮して種晶結晶個数 N_s を算出し、グラフの横軸に示す。同図より、結晶成長の速さを表す指標である $I_{op,1}$ は、加熱速度 H が大きいほど大きな値を示すことがわかる。これは H が大きいほど単位時間あたりの結晶析出量が多くなり、さらに H の増大に伴う過剰な核発生は起きていないためと説明できる。

一方、種晶の平均粒径 d_s や種晶の添加重量 M_s にかかわらず、種晶結晶個数 N_s が大きくなるに伴い、 $I_{op,1}$ は

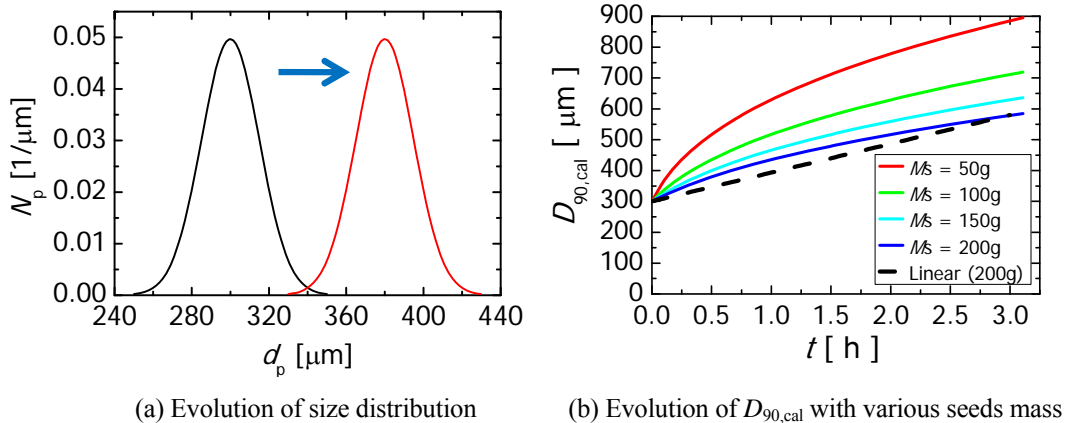


Fig. 2. Example of model calculation ($M_s = 300 \mu\text{m}$)

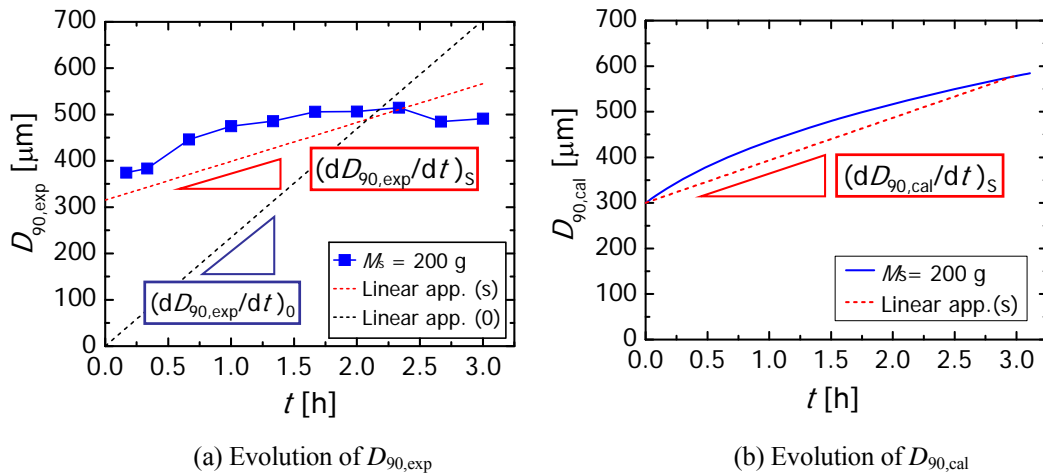


Fig. 3. Optimal operation index, I_{op}

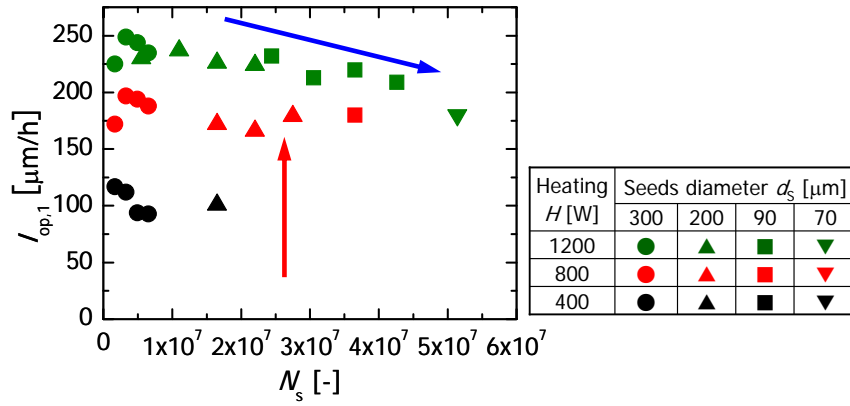


Fig. 4. Relation of $I_{op,1}$ to heating H and seeds number N_s

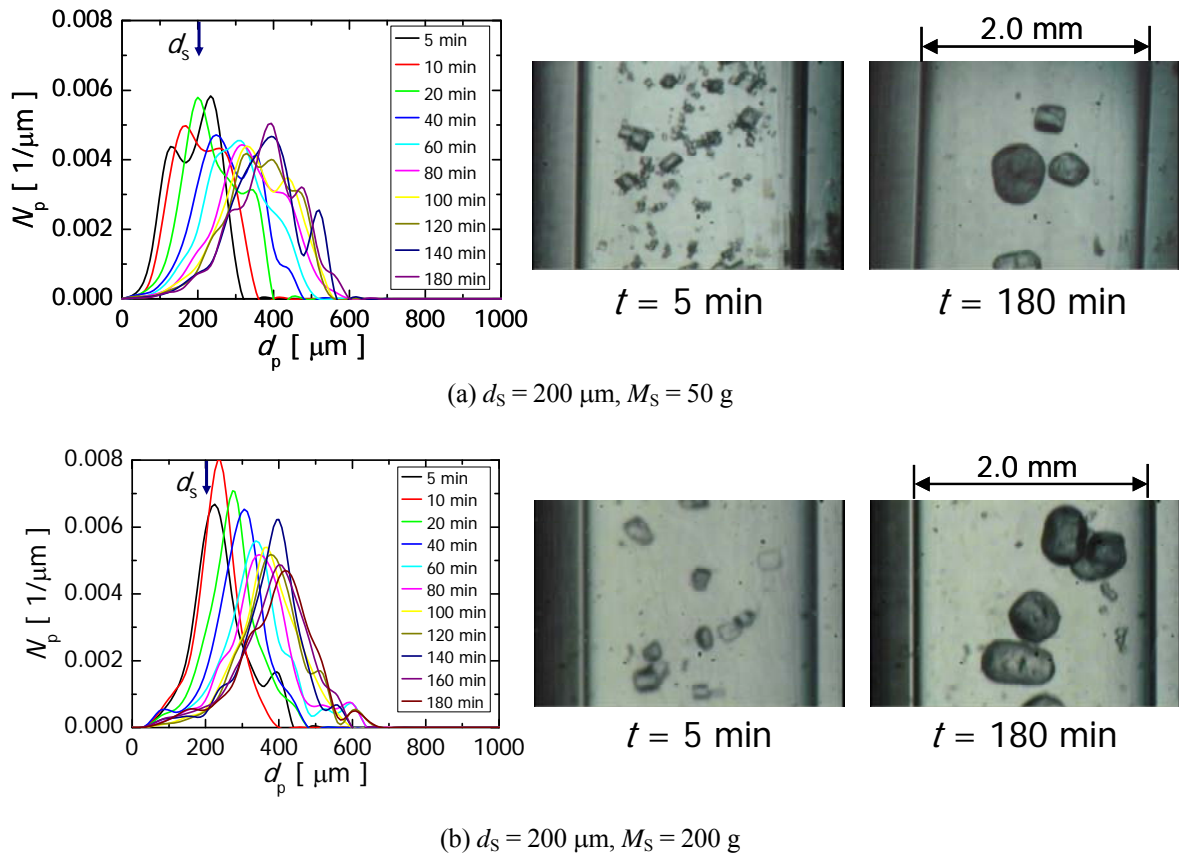


Fig. 5. Time evolution of particle size distribution and photos of crystals

徐々に小さくなるのがわかる。これは、同じ加熱条件においては N_s が多くなるほど結晶1個あたりの析出量が小さくなるためと説明できる。

3.3 結晶粒径分布の経時変化と $I_{op,2}$ の関係

Fig. 5 に、結晶粒径分布の経時変化と結晶写真を示す。Fig. 5(a) が $d_s = 200 \mu\text{m}$, $M_s = 50 \text{ g}$, Fig. 5(b) が $d_s = 200$

μm , $M_s = 200 \text{ g}$ の条件となる。Fig. 5(a) より、種晶添加量 M_s が少ない場合、 $t = 5 \text{ min}$ の時点で種晶平均径 d_s に対応するピークに加えて d_s より小さい粒径 ($120 \mu\text{m}$ 程度) においても分布のピークが形成されていることがわかる。 $t = 5 \text{ min}$ の結晶写真において、比較的明瞭な結晶面を形成している種晶と、種晶より小さく結晶面が不規則な雑晶

が混在していることが確認でき、種晶添加直後に多量の微結晶が発生していることがわかる。一方 Fig. 5(b) より、 M_S が多い場合、 $t = 5 \text{ min}$ での粒径分布は d_S に対応するピークを形成する単峰性の粒径分布を示しており、微結晶はほとんど発生していないことがわかる。 $t = 5 \text{ min}$ での結晶写真においても雑晶はほとんど観察されない。種晶は時間経過とともに単峰性を保持したまま成長し、 $t = 180 \text{ min}$ まで単峰性を維持することがわかる。

Fig. 6(a)-(f) に、種晶添加条件を変更した場合の結晶粒径分布の経時変化を、 $I_{op,2}$ が小さい条件から順に示す。加熱速度 H はすべて $H = 1,200 \text{ W}$ である。Fig. 6(a)-(c) の条件においては、下向き矢印で示す種晶平均径 d_S より小さい結晶径のピークが確認でき、晶析の早い時間帯において大量の微結晶が発生していることがわかる。Fig. 6(d)-(f) の条件においては、 d_S に相当する粒径のピークを起点として、時間経過とともに大粒径側に分布が移行していることから、微結晶の発生は少ないものと考えられる。また、 $I_{op,2}$ との関連に着目すると、 $I_{op,2}$ が大きいほど粒径分布

は単峰性であることがわかる。

Fig. 7 に、 $I_{op,2}$ と種晶個数 N_S の関係を示す。同図より、 $I_{op,2}$ は N_S の増加にともない単調に増大することがわかる。また、 $I_{op,2}$ が 1 より大きくなる場合があることがわかる。 $I_{op,2}$ は、種晶が結晶個数の増減を伴わずに単調に成長することを仮定したモデル計算と実測値との比率を示すものであり、 $I_{op,2}$ が 1 より大きくなることは結晶が成長とともに凝集を起こしていることを示すものである。一方本実験での攪拌翼回転数は、ガラス粒子によるモデル実験にもとづき槽底付近のすべての粒子が浮遊状態を保持する完全浮遊翼回転数に設定されており、さらに蒸発晶析実験においても槽底での結晶粒子の挙動を観察し粒子の浮遊を確認している^{2,4)}。これらのことから、結晶凝集の多くは粒子が浮遊して攪拌槽内を循環している間に引き起こされ、しかも比較的均一な凝集を起こしているものと推定される。その結果、結晶凝集が起きているにもかかわらず粒径分布は単峰性を維持していると考えられる。

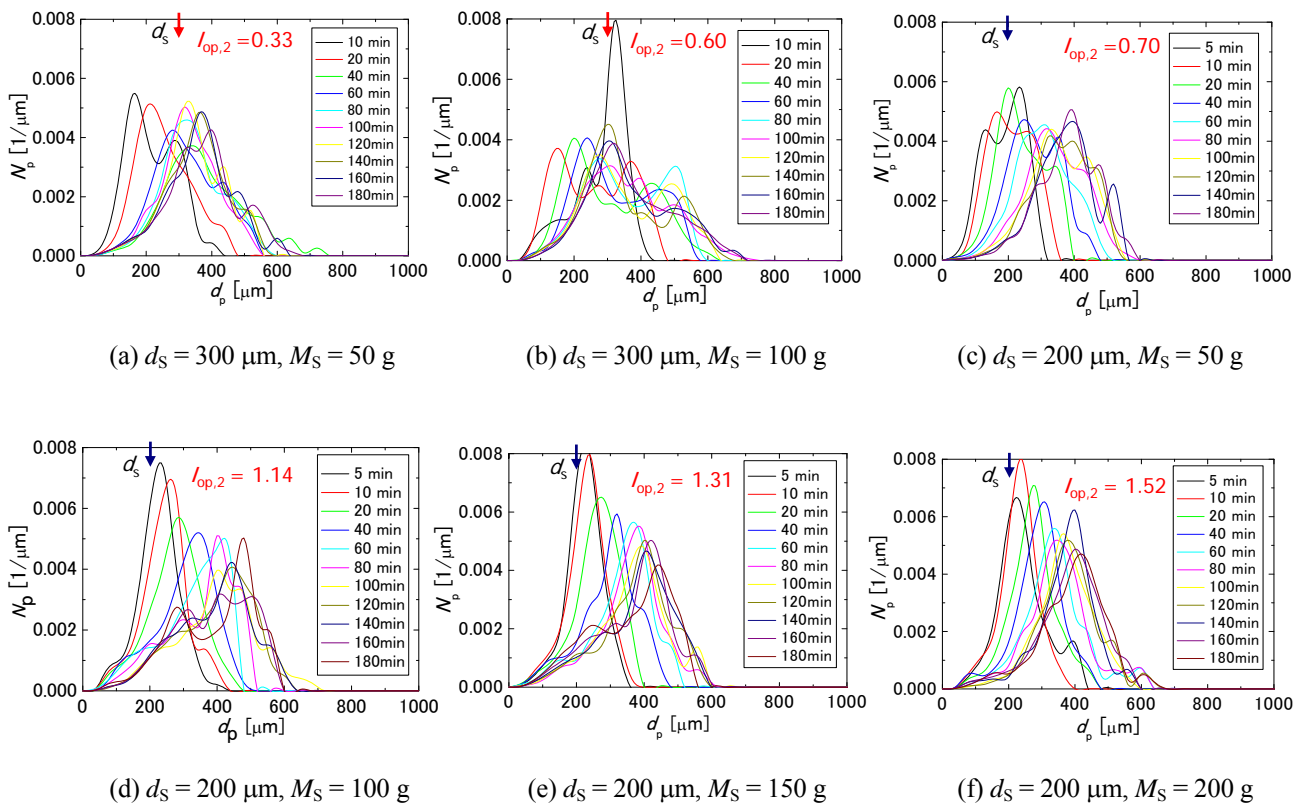


Fig. 6. Relation of $I_{op,2}$ to particle size distribution ($H = 1,200 \text{ W}$)

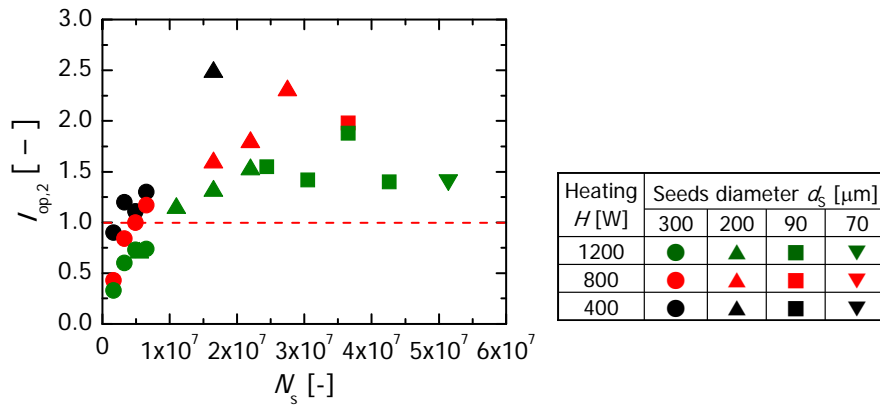


Fig. 7. Relation of $I_{op,2}$ to seeds number N_s

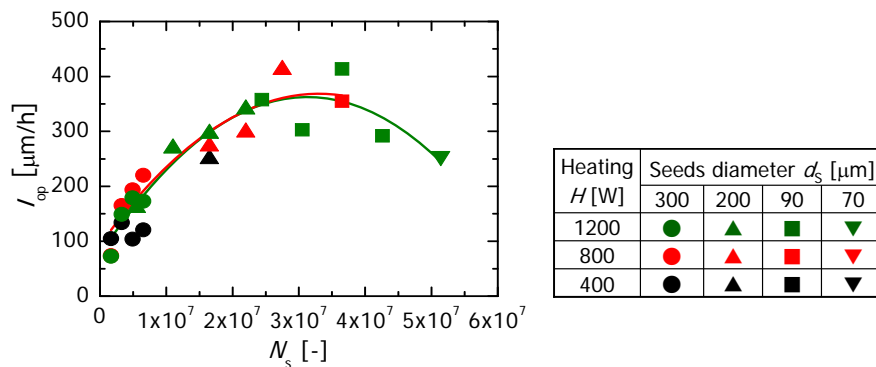


Fig. 8. Relation of I_{op} to seeds number N_s

3. 4 I_{op} と N_s の関係

Fig. 8 に、 $I_{op,1}$ と $I_{op,2}$ の積である I_{op} を、種晶個数 N_s に対してプロットしたものを示す。同図より、 $H=1,200$ W の場合、 I_{op} は種晶個数 N_s の増加に伴い単調に増大し、 $N_s=3 \times 10^7$ をピークとして低下に転じることがわかる。 $H=800$ W、 400 W の場合は、実験値が少ないため明瞭な極大値は計測されていないが、 N_s が少ない場合は増加する傾向を示しており、さらに N_s が増加した場合結晶一個あたりの析出量が減少することは明白であるため、ある値で極大値を示すものと予想される。すなわち、加熱速度にかかわらず、粒径分布がシャープで大きな結晶を迅速に成長させるためには、適切な個数の種晶を添加することが重要であることが示唆された。また、 I_{op} は半回分式蒸発晶析において最適操作条件の評価指標として有効であることがわかった。

4. 連続式操作の検討

前節で検討した半回分式蒸発晶析装置に対して、槽内

の結晶スラリーの連続抜き出し機構を取付け、連続式装置として改良する検討を行った。Fig. 9 に、加熱速度 $H=1,200$ W、種晶平均径 $d_s=90$ μm 、種晶添加重量 $M_s=20$ g、種晶個数 $N_s=3.0 \times 10^7$ の条件における槽内結晶重量 M_p のモデル計算結果と、試験実験の結果をあわせて示す。この種晶添加条件は、Fig. 8 からわかるように、最適操作条件の評価指標 I_{op} が $H=1,200$ W において最大となる条件に対応する。種晶添加後半回分式の操作を行い、結晶懸濁密度が 25 vol% に到達する晶析時間 $t=120$ min から槽内の結晶スラリーの抜き出しを開始した。槽内のスラリー体積が擬定常状態を維持できるように結晶スラリーの抜き出し体積を 150 ml、抜き出し間隔を 15 min と設定して、連続式操作を行った。

同図より、種晶添加後 120 分間の半回分式操作では槽内結晶重量 M_p は単調に増加し、その後 M_p の変動は大きくなるものの約 120 分間の連続操作が行えたことがわかる。スラリーの抜き出し量を安定させるために抜き出し方法に

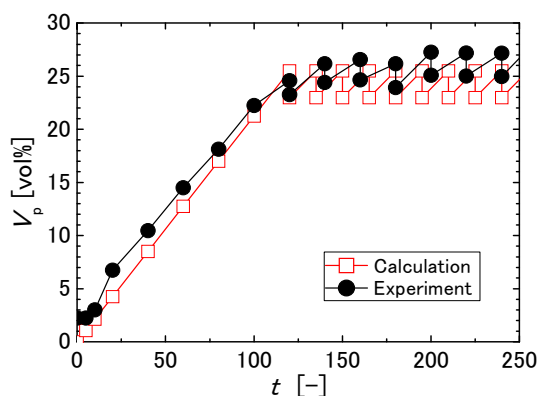


Fig. 9. Time variation of M_p in the continuous operation ($H = 1,200$ W)

改善の余地はあるものの、高懸濁密度のスラリーを定期的に抜き出す操作を行うことができた。今後は、(a)連続操作実験による結晶粒径分布の経時変化の詳細な測定と、(b)結晶粒子個数の個数収支と、NaCl成分の物質収支に基づいたモデル計算を実施する予定である。実験結果とモデル計算を比較することで、25 vol%程度で安定した結晶懸濁密度と、 $D_{90} = 500$ μm 程度で安定した平均結晶粒径を両立させるためのスラリー抜き出し量と抜き出し間隔、さらには二次核発生量を制御するための攪拌翼回転数について検討する予定である。

5. 結言

ドラフトチューブ付攪拌型蒸発晶析装置を用いて、高懸濁密度条件の半回分式食塩蒸発晶析実験を行い、加熱速度、種晶平均粒径、種晶重量が結晶成長過程に及ぼす影響について検討した。得られた知見は以下の通りである。

(a)適切な量の種晶を添加することで、晶析初期での微結晶の発生を抑制することができ、粒径分布の単峰性を維持しやすくなる。

(b)ドラフトチューブ径を最適化した本装置においては、結晶懸濁密度35%と非常に高い場合であっても、低い攪拌動力で液面近傍や槽底付近での粒子の分散を良好に保つことができ、また結晶摩耗による二次核の過剰発生を抑制することができる。

(c)高懸濁密度となる場合には結晶粒子が浮遊しながら均一な凝集・成長を起こしている可能性が示唆された。

(d)半回分式操作を対象に結晶成長速度と結晶粒径分

布の分散度をあわせて定量的に考慮することができる評価指標 I_{op} を提案した。同指標は種晶個数に対して極大値をとることから、適切な個数の種晶を添加することで高い結晶成長速度と粒径分布の単峰性を両立させることができることを明らかにした。

引用文献

- 1) 上ノ山周, 仁志和彦, 三角隆太, “ドラフトチューブを用いた結晶の浮遊分散の最適操作条件に関する検討,” (財)ソルト・サイエンス研究財団 理工学プロジェクト研究報告書 (2003-2005) 4.4 節, pp.75-80 (2007)
- 2) R. Misumi, M. Tsukada, K. Nishi and M. Kaminoyama, “Suspension Property of a High Concentration of Settling Solid Particles in a Draft-Tube Stirred Vessel”, *J. Chem. Eng., Japan*, 41(10), pp.939-946 (2008)
- 3) R. Misumi, T. Toyoda, K. Nishi and M. Kaminoyama, “Optimal Seeding Condition of a High Suspension Concentration of NaCl Evaporative Crystallization in a Draft-Tube Stirred Vessel,” *Proc. 17th International Symposium on Industrial Crystallization*, pp.667-673 (2008)
- 4) 三角隆太, 上ノ山周, 仁志和彦, “食塩晶析装置の高懸濁濃度化に関する基礎的研究,” (財)ソルト・サイエンス研究財団平成19年度助成研究報告書, pp.147-155 (2009)
- 5) K. Masaoka, T. Karube, A. Nakamura and T. Shinohara; “Report of Research Institute of Salt and Sea Water Science”, *The Salt Industry Center of Japan*, 6, pp.37-44 (2004)
- 6) K. Nishi, M. Kaminoyama, R. Misumi and M. Kamiwano, “On-line Measuring Method to Determine Crystal Size Distribution in Stirred-Type Crystallizers Using a Real-Time, High-Speed Image Processing System”, *Bull. Soc. Sea Water Sci., Jpn.*, 60, pp.365-378 (2006)
- 7) 上ノ山周, 仁志和彦, 三角隆太, “半回分式ドラフトチューブ付攪拌型蒸発晶析槽における食塩結晶の成長速度に及ぼす操作条件の影響”, 日本海水学会誌, 61(1), pp.9-16 (2007)

No. 0813

Improvement of Suspension Density and Scale-Up of a Continuous Sodium Chloride Crystallizer

Ryuta Misumi, Meguru Kaminoyama, Kazuhiko Nishi

National University Corporation Yokohama National University

Summary

In evaporative crystallization, ideally a high crystal growth rate, a high suspension concentration and a sharp crystal-size distribution are all required. In the present study, the influence of the seeding conditions (average diameter and mass) and heating rate on both the crystal growth rate of sodium chloride (NaCl) and the crystal-size distribution was investigated in the optimal designed draft-tube stirred vessel containing a high concentration of sodium chloride slurry up to 35 vol%.

In the case of semi-batch type operation, the crystal growth rates increase with heating rate, and decrease with seeds crystal number. On the other hand, the shape of crystal size distribution is sharper with a 200 g seeds mass than with lower seeds mass conditions. The cause of these phenomena is conjectured to be that the initial nucleation is inhibited with 200 g seeds. To determine the optimal seeding condition, we defined the optimal operation index, I_{op} , as $I_{op} = (dD_{90,exp}/dt)_0 \times \{(dD_{90,exp}/dt)_S / (dD_{90,cal}/dt)_S\}$. Here, $D_{90,exp}$ is the diameter of 90 % cumulative volume, and $D_{90,cal}$ is model simulation results which are calculated with an ideal assumption that the initial seeding particles will grow along the precipitation volume without any abrasions, agglomerations and nucleation. The results show that I_{op} are correlated with seed particle number, and have a maximum value. With the I_{op} correlation, the appropriate seeding conditions are determined, such as 90 g of seeds mass, 70 μm of diameter in the case of heating rate of 1,200 W.

The optimal designed draft-tube crystallizer was improved for the continuous operation, and some trial operations were performed. Furthermore, we try to operate the continuous draft-tube crystallizer stably with fine adjustments of slurry displacement on the basis of population and mass balance calculations.