

工業晶析装置内の有効核発生モデルの開発を目指した結晶粒子衝突現象の定量化

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

本研究では、複雑な晶析現象の中でもとくに重要と考える母結晶由来の核発生現象(二次核発生現象)に着目し、二次核発生現象の主要因とされる攪拌羽根への結晶粒子の衝突現象の定量化に主眼をおいた。攪拌装置内の流動と装置内を浮遊分散する結晶粒子のラグランジアン運動の練成解析にもとづいて、攪拌羽根への粒子の衝突頻度、衝突速度を定量化し、粒子径、粒子密度の影響について検討した。

2. 解析方法

内径が 100 mm、液深 H が 100 mm の 4 枚邪魔板付きの円筒平底槽を対象として、翼径 50 mm、羽根幅 10 mm の 6 枚羽根垂直パドル翼を槽底から $H/3$ の位置に設置した。流体は水を想定し、攪拌翼回転数 n を 6 s^{-1} とした。対象粒子は球形を仮定して直径 $d_p = 100 \sim 200 \text{ }\mu\text{m}$ 、密度 $\rho_p = 1,000 \sim 5,000 \text{ kg/m}^3$ 、粒子数は 50,000 個とした。攪拌槽内の乱流状態の解析には Large Eddy Simulation を用い、固体粒子の運動をラグランジアン的に解析した。これらの混相流解析は、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。

3. 解析結果および考察

衝突前後の粒子の軌跡と衝突位置に着目すると、羽根前面に衝突する粒子は、羽根の回転方向の前方の少し上方から羽根に向かい、おもに羽根前面の縁の周辺に多く衝突することがわかった。また、攪拌軸近傍や羽根面の中央付近での衝突速度は遅く、羽根面の縁および先端に向かうほど衝突速度が大きくなることがわかった。

羽根面に対して法線方向の衝突速度成分の確率密度分布は、対数正規分布に従うことが確認され、そのモード(最頻値)は羽根先端の回転速度の $1/10$ より小さいことがわかった。羽根前面における粒子の衝突頻度 $F_{\text{coll},f}$ は粒子径が大きくなると徐々に増加するのに対して、粒子密度の増加に対しては $F_{\text{coll},f}$ はほとんど変化しなかった。一方、粒子径や粒子密度が変化する場合、槽内の高さ方向の粒子濃度の分布も変化する。羽根に衝突する可能性が高い羽根設置高さの範囲を浮遊する粒子の個数 N_{imp} を算出し、 $F_{\text{coll},f}$ を N_{imp} で除したものと、粒子の沈降速度 u_t の関係を調べた。その結果、 u_t が大きくなるにつれ、 $F_{\text{coll},f}/N_{\text{imp}}$ は単調に大きくなることがわかった。すなわち、 u_t が大きくなると、羽根近傍を浮遊する粒子の個数 N_{imp} は減少するが、一方で液の流れに対する粒子の追従性は悪くなり、粒子が羽根面に衝突する可能性は高くなる。これらの効果により、 $F_{\text{coll},f}/N_{\text{imp}}$ は u_t に対して単調に大きくなったものと考えられる。

1. 研究目的

晶析操作は、乱流状態にある溶液中での局所的な過飽和度の変化や化学反応に伴い結晶粒子群が生成成長する現象であるが、混相流的な観点にもとづいた流動状態と結晶品質との関連性についての理解は進んでいな

い。とりわけ、高効率で安定した晶析操作を遂行するうえでは、結晶の分散状態とその経時変化を的確に把握したうえで、要求される結晶の生産量(重量)と製品粒径を満足させるべく、晶析槽内に分散する結晶粒子の個数を適切な値に制御することが肝要となる¹⁾。すなわち、結晶粒

子の運動挙動を考慮したうえで、結晶生産量と製品粒径、結晶成長速度、微小結晶発生、結晶凝集などを勘案して結晶重量の収支と結晶個数の収支を、いかに高精度で予測し制御できるかが、晶析操作の高効率化、製品結晶の高品質化に直結する。

晶析操作の進行に伴い結晶の懸濁濃度が大きくなる場合などにおいて、槽底近傍での結晶粒子の凝集を抑制するために攪拌翼回転数を大きくする必要が生じる。攪拌翼回転数が大きくなると、結晶粒子どうしの衝突や結晶粒子と装置内の固体面(攪拌羽根や壁面)との衝突による結晶粒子の摩耗やそれにとまう二次核の発生などに起因して、槽内の結晶粒子個数の制御が難しくなることが知られている。一方、数値流動解析(Computational fluid dynamics(CFD))に、個々の粒子運動のラグランジアン解析を錬成させる手法が、粒子挙動を定量化するうえで、きわめて有効な手法であることが示されてきた^{2,4)}。

本研究では、複雑な晶析現象の中でもとくに重要と考える母結晶由来の核発生現象(二次核発生現象)⁵⁾に着目し、平成26年度は、二次核発生現象との関連性が指摘されながらこれまで十分に機構が解明されていない、攪拌羽根への結晶粒子の衝突現象の定量化とそのメカニズムの解明に主眼をおいた。攪拌装置内の流動状態と装置内を浮遊分散する結晶粒子のラグランジアン運動の錬成解析や、羽根周りの粒子運動の詳細な可視化実験にもとづいて攪拌羽根への粒子の衝突頻度、衝突速度を定量化したうえで、汎用的な現象モデルを開発することを目的とした。

晶析操作で対象とする結晶粒子は、例えば、アミノ酸のような軽い結晶粒子から重い金属触媒粒子などのように、直径や比重について大きな違いが存在する。しかしながら、粒子の分散・衝突挙動を実験的に把握することはきわめて困難であり、このような粒子特性の違いが攪拌羽根への粒子衝突現象に与える影響については十分に理解されていない。そこで、粒子の直径や比重などの諸特性が、攪拌羽根への粒子の衝突頻度や衝突速度成分に及ぼす影響について検討した。

2. 数値解析方法と解析条件

Fig. 1 に攪拌槽を対象とした解析領域と座標系の概略を示す。内径 D が 10 cm、液深 H が 10 cm の 4 枚邪魔板

付きの平底円筒槽を対象とした。流体は水を想定した。直径 50 mm の 6 枚羽根垂直パドル翼を槽底から $H/3$ の位置に設置した。攪拌翼回転数 n を 6 s^{-1} とした。液相の質量と運動量の保存則を MAC 系の解法で解析した。液相乱流場の解析には、Smagorinsky モデルにもとづいた Large Eddy Simulation (LES) を用いた。個々の固体粒子のラグランジアン挙動については、LES 解析により取得される局所的な瞬間液流速にもとづき、(1)式を解析した。

$$(1) \quad \left(\rho_p + \frac{\rho_l}{2} \right) \frac{d\mathbf{v}_p}{dt} = (\rho_p - \rho_l) \mathbf{g} + \alpha_l (\mathbf{f}_D + \mathbf{f}_L) + \frac{\mathbf{f}_C}{V_p}$$

同式中の \mathbf{f}_D と \mathbf{f}_L はそれぞれ、流体から粒子に作用する抗力と揚力をあらわし、 \mathbf{f}_C は粒子どうし、または粒子が攪拌槽内の固体面と接触するさいに粒子に作用する接触力をあらわす。流体と粒子の間で作用するこれらの力のうち、浮遊・分散する粒子に関しては抗力が最も重要となる。本研究では、次式であらわされる抗力モデル^{6,7)}を採用した。

$$(2) \quad \mathbf{f}_D = \frac{3C_D \rho_l |\mathbf{v}_R| \mathbf{v}_R}{4d_p}$$

$$(3) \quad C_D = \max \left(\frac{24(1 + 0.15 Re_p^{0.687})}{Re_p}, 0.44 \right) / \alpha_i^{2.7}$$

ここで、 Re_p は粒子レイノルズ数 ($Re_p = \rho_l |\mathbf{v}_R| d_p / \mu$) である。粒子に作用する接触力 \mathbf{f}_C は離散要素法 (Distinct Element Method (DEM)) にもとづいて計算した。なお、本研究で

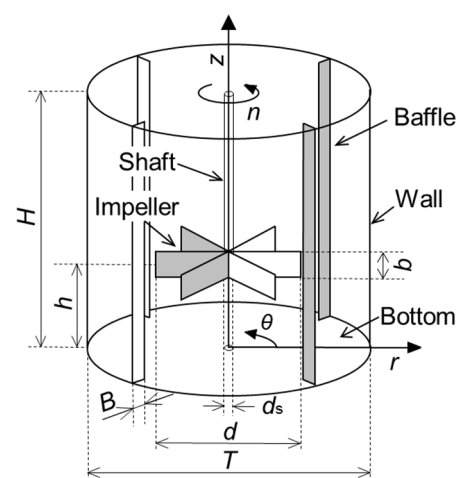


Fig. 1. Coordinate system and computational domain for a stirred vessel

検討した条件範囲においては、粒子個数が少なく、 f_c の影響は限定的であった。粒子径 d_p が 100–200 μm 、粒子密度 ρ_p が 1,000–5,000 kg m^{-3} の範囲で条件を変化させた 7 条件について、50,000 個の粒子を攪拌槽に投入し、粒子の分散状態が定常に達した後、粒子衝突の統計データを算出した。上記の DEM 解析と錬成した LES 解析は、汎用熱流体解析ソフト RFLOW (アールフロー (株) 製) を用いて行った^{6, 8-10)}。

3. 結果および考察

3.1 攪拌羽根への固体粒子の衝突速度の定義

攪拌羽根への固体粒子の衝突現象は、以下の手順で定量化した^{11, 12)}。まず、粒子の位置座標の軌跡にもとづいて粒子速度の経時変化を算出する。羽根に接触した粒子の羽根面に対して法線方向の速度の符号が反転する時刻を「粒子の衝突時刻」と定義し、さらに、衝突時刻の粒子の座標を「粒子の衝突位置」と定義した。粒子の衝突

時刻において、法線方向の粒子の速度は、通常ゼロとなるため、任意の時刻 (Δt_{coll}) さかのぼって衝突速度を定義する必要が生じる。そこで本研究では、粒子の衝突時刻の 1 / 400 s 前の粒子速度を、「粒子の衝突速度 ($v_{\text{coll},n}$ [m s^{-1}])」と定義した。ここで、1/400 s は、回転羽根近傍での粒子の運動を直接動画計測するために当研究室で開発した回転同期高速動画撮影システム¹¹⁾の撮影速度に相当する。本数値解析により算出される衝突速度 $v_{\text{coll},\text{CFD}}$ の確からしさを、同撮影システムによる衝突速度の実測値 $v_{\text{coll},\text{EXP}}$ と比較して検証するために、 $\Delta t_{\text{coll}} = 1/400$ s と設定した。言い換えると、粒子の衝突速度はその定義時刻 (Δt_{coll}) に依存して変化することとなり、衝突速度の定義の違いの影響について常に注意を払う必要がある。

3.2 羽根前面における粒子の衝突位置と衝突速度

Fig. 2 に羽根前面に衝突する粒子の衝突前後の軌跡を、Fig. 3 に羽根前面に対する粒子の衝突位置と衝突速度の分布を、(a) 羽根面に対して法線方向、(b) 羽根面

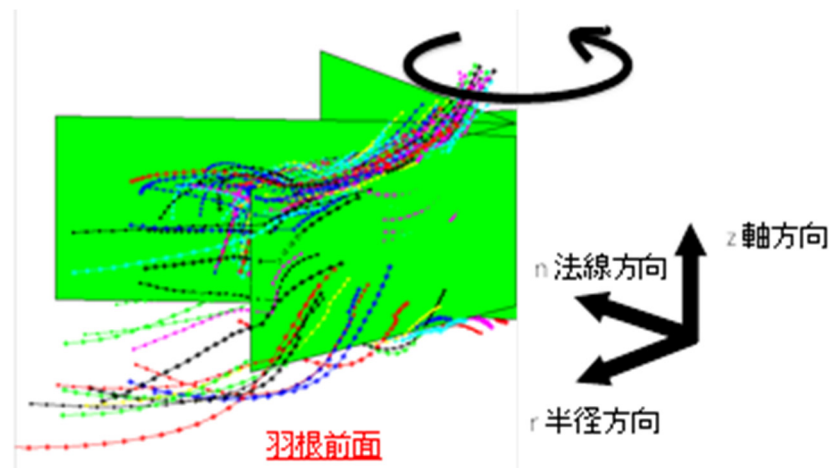


Fig. 2. Trajectories of particles colliding with front face of impeller blade

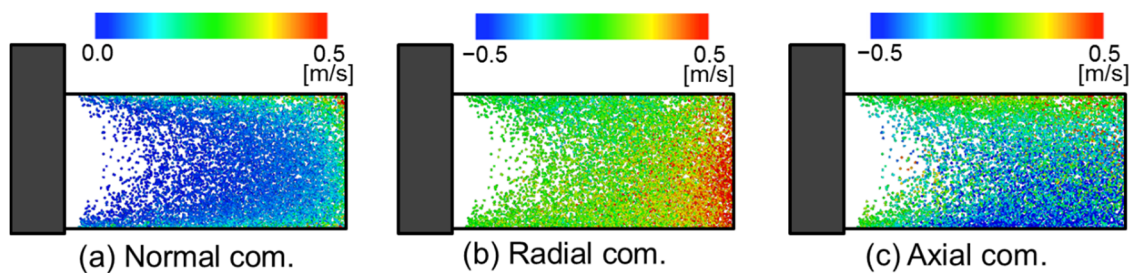


Fig. 3. Distributions of particle collision points and velocity components of particle collision over the front face ($n = 6 \text{ s}^{-1}$, $\rho_p = 2,500 \text{ kg m}^{-3}$)

に沿って攪拌軸から槽壁に向かう方向(半径方向)、(c) 羽根面に沿った鉛直方向(軸方向)の3成分に分けて、それぞれ示す。Fig. 3のポイントの色は、カラーバーに例示する粒子の衝突速度の大きさをあらわしている。まず、衝突前後の粒子の軌跡と衝突位置に着目すると、攪拌羽根前面に衝突する粒子は、羽根の回転方向の前方の少し上方から羽根に向かい、おもに羽根前面の縁の周辺に衝突することがわかる。また、攪拌軸近傍や羽根面の中央付近での衝突は少なく、羽根面の縁に向かうほど衝突が多くなることわかる。

Fig. 3(a)は、羽根の回転速度と羽根に向かう粒子の速度の相対速度の分布に相当し、羽根面に向かう法線方向の速い衝突は羽根の縁に沿って多く分布し、羽根先端の上下の角周辺において最大値を示すことがわかる。同図(b)、(c)より、衝突速度の半径方向成分は羽根先端に向かうほど大きくなり、軸方向の衝突速度は羽根の上側では上向き、羽根の下側では下向きの速度を持つものが多いことがわかる。

そこで、粒子の衝突速度の分布と羽根周りの流動パターンとの関連性について調べた。Fig. 4に、羽根前面近傍の時間平均流速の分布を、(a) 羽根面に対して法線方

向(羽根の回転と流体の相対速度に相当)、(b) 半径方向(羽根面に沿って攪拌軸から槽壁に向かう方向)、(c) 軸方向(羽根面に沿った鉛直方向)の3成分に分けて、それぞれ示す。Fig. 3と4を比較すると、羽根前面における粒子の衝突速度の方向成分の分布は、羽根近傍での流速成分の分布と良好に一致し、とくに Fig. 3(a)と Fig. 4(a)の比較より、羽根の回転速度と液流速の相対速度が大きいところで、法線方向に速い粒子衝突が多く発生することが確認できる。

羽根前面での粒子の衝突速度の分布と羽根近傍の時間平均の流速分布が類似性を示すことから、粒子は液流によって羽根の縁に移動し、羽根の縁を回り込む流れから粒子が持つ慣性力のために粒子の軌道が少し外れる際に羽根に衝突するものと推察される。

3.3 粒子の衝突位置に対する粒子径の影響

Fig. 5に、羽根前面における粒子の衝突位置と衝突速度の法線方向成分に対する粒子径の影響を示す。ポイントの色は、カラーバーで例示するとおり、粒子の衝突速度の大きさを示している。同図より、羽根前面における衝突は羽根の縁に沿って多く発生し、粒子径が大きくなるにしたがい、速い衝突の分布が羽根面中央付近へ少し広がる

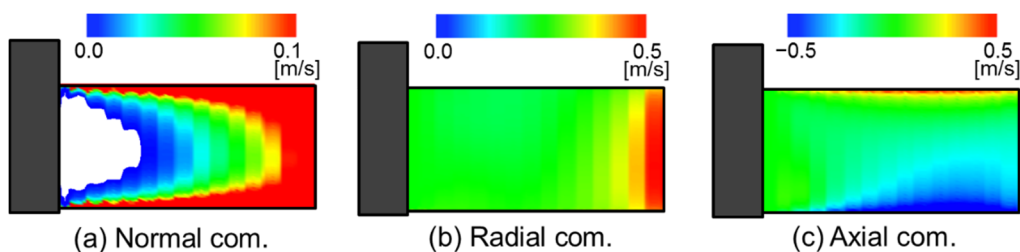


Fig. 4. Distributions of three components of time-averaged fluid velocity near the front face ($n = 6 \text{ s}^{-1}$)

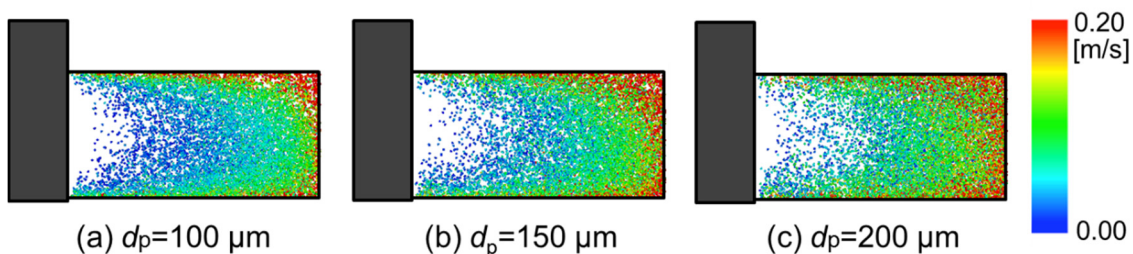


Fig. 5. Particle diameter effects on the particle collision point and a normal component of collision velocity with the front face of the blade ($n = 6 \text{ s}^{-1}$, $\rho_p = 2,500 \text{ kg m}^{-3}$)

ことがわかる。

高橋ら¹³⁾は、羽根の先端方向の下部の角付近において、固体粒子の衝突痕がもっとも多く検出されることを報告した。本研究の解析結果と高橋らの実験結果の相違は、粒子の分散状態の違いに起因すると考えられる。すなわち、本研究では比較的容易に浮遊する直径 100 μm 程度のガラス粒子を用いており、槽全体にわたって均一に近い分散状態を達成している。一方、高橋らが用いた直径 1 mm 以上のガラス粒子は浮遊分散させることが比較的難しいことが知られており、槽下部での粒子濃度が高なったために羽根の下部に衝突が集中したものと推察される。

3. 4 粒子の衝突速度の確率密度分布

Fig. 6 に、羽根前面に対する粒子の衝突速度成分の確率密度分布を、(a) 羽根面に対して法線方向成分、(b) 半径方向成分、(c) 軸(鉛直)方向成分に分けて示す。攪拌翼回転数 n は 6 s^{-1} 、攪拌翼先端の回転速度 v_{tip} は 0.94 m s^{-1} である。同図 (a)より、衝突速度の法線方向成分 $v_{\text{coll},n}$ の確率密度分布は、対数正規分布に従うことが確認され、そのモード(最頻)値は、 v_{tip} の $1/10$ より小さいことがわかる。また、粒子径や粒子密度の増大とともに、モード値は少し大きくなる傾向を示し、あわせてピーク高さは低くなるのがわかる。同図 (b)より、半径方向成分 $v_{\text{coll},r}$ はおよそ $-0.3 \sim 0.7 \text{ m s}^{-1}$ の範囲に分布し、モード値はおよそ 0.1 m s^{-1} となるのがわかる。すなわち、衝突する粒子の多くは、羽根先端方向へ向かいながら羽根面に衝突していることとなる。同図 (c)より、軸方向成分 $v_{\text{coll},z}$ は、平均値が負となるガウス分布(正規分布)で近似されることがわ

かる。すなわち、多くは重力の影響で鉛直下向きに移流しながら羽根に衝突していることがわかる。しかしながら、粒子径、粒子密度の影響は明確には確認されない。

3. 5 回転同期高速動画撮影法による CFD 解析結果の検証

攪拌羽根近傍での固体粒子の衝突挙動の詳細を実験的に把握し、上述の粒子衝突の解析結果の信頼性を検証するために、攪拌羽根の回転にあわせて高速度ビデオカメラを同期回転させることができる特殊な攪拌装置¹⁴⁾を作製し、画像解析による粒子の衝突速度の実測を行った。

同装置はカメラの回転装置と攪拌槽を固定している架台から構成される。回転装置のアーム上に設置した 2 台のカメラにより、羽根の前面側での粒子の挙動を下方向と横方向の 2 方向から同時に撮影し、表面近傍での粒子の運動を 3 次的に定量化した。またカメラの回転と攪拌翼の回転を同期させることによって任意の羽根面を対象に粒子を撮影した。攪拌槽は槽径 0.1 m、翼径 0.05 m、翼設置高さ $1/3$ で回転数を 2、3、4 s^{-1} と変化させて撮影した。また、粒子には粒径 680 μm 、密度 $1,011 \text{ kg/m}^3$ のポリスチレン粒子を使用した。

羽根前面における粒子の衝突速度の確率密度分布を比較した結果、法線方向成分、半径方向成分、鉛直方向成分のいずれに関しても適合率 90% 以上となり、また粒子の衝突一致の分布も類似性を示したことから、CFD の結果は十分に信頼度が高いことを確認した。

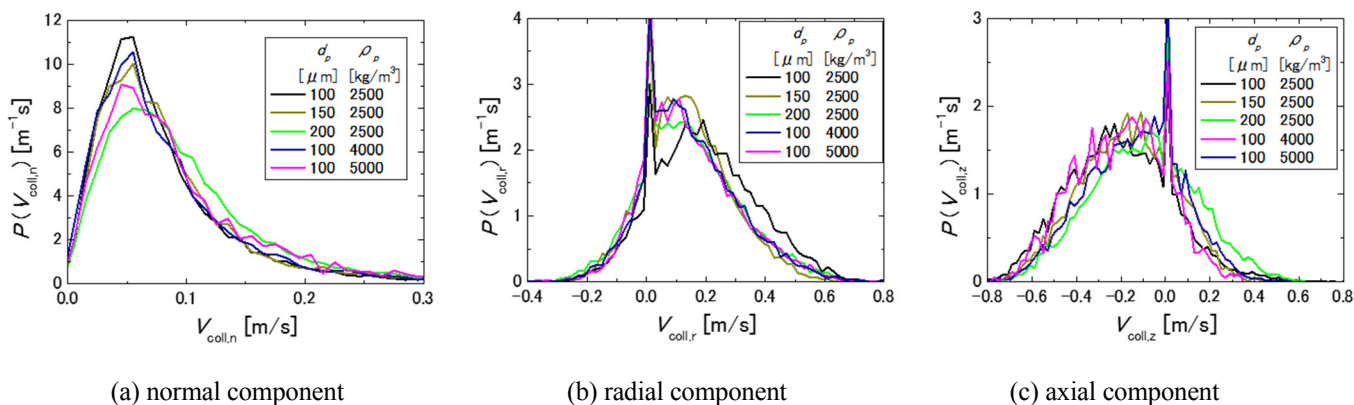


Fig. 6. Probability density distribution of velocity components of particle collision with the blade front face ($n = 6 \text{ s}^{-1}$).

3.6 粒子の衝突頻度に対する粒子特性の影響

Fig. 7に、羽根前面に対する固体粒子の衝突頻度 $F_{\text{coll},f}$ [s^{-1}]と粒子径 d_p の関係、Fig. 8に $F_{\text{coll},f}$ と粒子の密度 ρ_p の関係をそれぞれ示す。あわせて、羽根設置高さに相当する $z = 0.28 \sim 0.38$ m の範囲の空間を浮遊し、羽根へ衝突する可能性が高い粒子の個数を N_{imp} [-]と定義し、 N_{imp} と d_p および ρ_p との関係もあわせて図示する。同図より、 d_p が大きくなるのに伴い $F_{\text{coll},f}$ は単調に増加するが、 ρ_p の増大に対してはほとんど変化しないことがわかる。一方、粒子径や粒子密度が異なる場合、槽内の高さ方向の粒子濃度の分布も変化することから、羽根に衝突する可能性の高い羽根設置高さの範囲を浮遊する粒子の個数 N_{imp} を算出した。 d_p または ρ_p の増大に伴い、いずれに対しても N_{imp} は単調に減少し、攪拌羽根に衝突する可能性の高い粒子の数は少なくなることがわかった。つまり、 d_p または ρ_p

の差異に伴う $F_{\text{coll},f}$ の変化は、攪拌羽根近傍での粒子個数 N_{imp} の変化だけでは十分に説明できないといえる。

3.1項で検討したように、粒子を巻き込んだ液流が羽根の縁をまわりこむ際に、粒子が持つ慣性の影響により粒子が流れに追従できない場合に、羽根に衝突することが推察された。 d_p または ρ_p が異なる場合に、粒子の流体への追従性を示す指標として、静止流体中を沈降する粒子の終末速度 $u_t (= \Delta\rho g d_p^2 / 18\mu)$ を算出した。 d_p や ρ_p などの粒子特性の違いにともなう攪拌槽内での鉛直方向の粒子濃度分布の違いを考慮するために、羽根近傍を浮遊する粒子1個あたりの衝突頻度に相当する $F_{\text{coll},f} / N_{\text{imp}}$ を算出し、 u_t との関係を整理したものを Fig. 9 に示す。あわせて、 N_{imp} と u_t の関係を Fig. 10 に示す。なお、粒子レイノルズ数 $Re_p (= \Delta\rho u_t d_p / \mu)$ は、0.7~4.7の範囲であり、ストークス則が適用できるものとした。

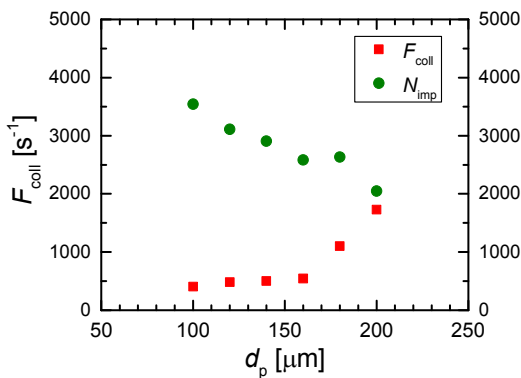


Fig. 7. Effects of d_p on $F_{\text{coll},f}$ and N_{imp} ($n = 6 \text{ s}^{-1}$)

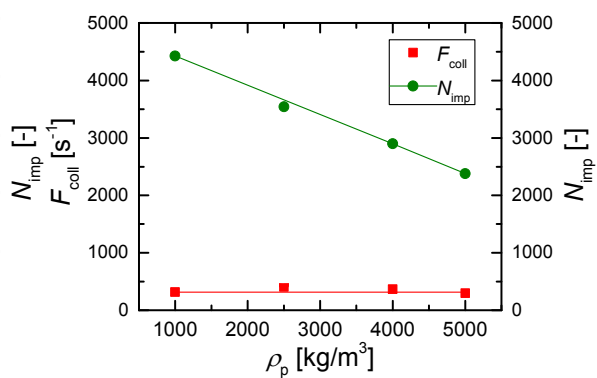


Fig. 8. Effects of ρ_p on $F_{\text{coll},f}$ and N_{imp} ($n = 6 \text{ s}^{-1}$)

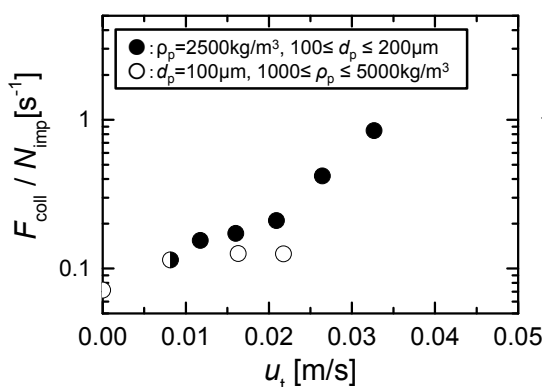


Fig. 9. Relation between $F_{\text{coll},f} / N_{\text{imp}}$ and u_t . ($n = 6 \text{ s}^{-1}$)

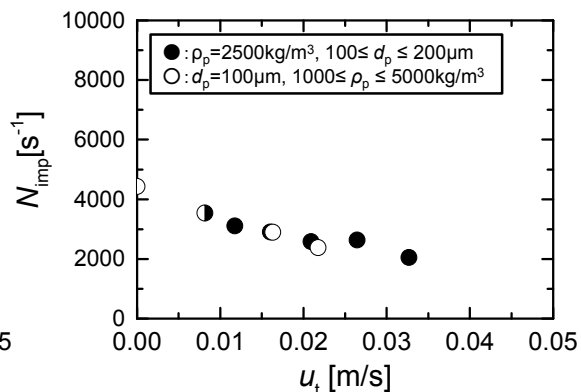


Fig. 10. Relation between N_{imp} and u_t ($n = 6 \text{ s}^{-1}$)

Fig. 9 および Fig. 10 より、 d_p 、 ρ_p にかかわらず u_t が大きくなるにつれ、 N_{imp} は単調に減少するが、 $F_{\text{coll},f} / N_{\text{imp}}$ は単調に増加することがわかる。すなわち、 u_t が大きくなると、羽根近傍を浮遊する粒子の個数 N_{imp} は減少するが、一方で個々の粒子に着目すると、羽根の縁から背面側へまわりこむ流体の流れに対する粒子の追随性が悪くなり、粒子が羽根前面へ衝突する可能性は高くなることわかる。

なお、粒子運動の流れに対する追随性については、一般にストークス数 $St (= \rho_p d_p^2 v_{\text{tip}} / 18 \mu b)$ が用いられる。本稿では $n = 6 \text{ s}^{-1}$ の条件だけを対象として、流動状態が同一で粒子条件の影響のみを議論したため、 $St (\propto \rho_p d_p^2)$ にかえて、 $u_t (\propto \rho_p d_p^2)$ を採用した。攪拌翼回転数が変化する場合には、今後 u_t に代えて羽根幅 b を代表長さとしたストークス数などを用いた相関について検討を進める。

4. 結 言

本研究では、攪拌槽内における攪拌羽根に対する結晶粒子の衝突位置、衝突頻度、ならびに衝突時の速度成分を、数値流動解析 (CFD) に錬成した固体粒子のラグランジアン解析により算出し、粒子径や粒子密度などの粒子特性の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) 攪拌羽根前面においては、粒子の衝突は羽根の縁に沿って多く発生し、羽根縁に近づくほど衝突速度が大きくなることわかった。
- (b) 粒子の衝突速度の確率密度は、羽根先端速度の 1/10 程度に最頻値がある。
- (c) 従来は、羽根前面全域において均等に衝突が起きるとして、羽根の回転速度を粒子衝突速度とする単純モデルが用いられてきたが、実際の衝突位置は羽根の縁に集中する傾向があり、衝突速度も羽根の回転速度より小さいことがわかった。
- (d) 粒子の衝突頻度は、羽根設置高さ近傍を浮遊する粒子の個数と粒子の比重や直径などの特性に影響される。
- (e) 攪拌羽根の形状と攪拌翼回転数が同じ場合、粒子の直径や密度の変化が粒子の衝突頻度に及ぼす影響は、流れに対する粒子の追随性の指標のひとつである終末沈降速度で整理でき、攪拌羽根の設置高さ近傍

を浮遊する粒子1個あたりの衝突頻度は、粒子の終末沈降速度で整理できることがわかった。

使用記号

B : 邪魔板幅 [m], b : 羽根幅 [m], D : 翼径 [m], d_p : 粒子径 [m], F_{coll} : 粒子の衝突頻度 [s^{-1}], H : 液深 [m], h : 翼設置高さ[m], N_{imp} : 翼設置高さを浮遊する粒子の個数 [-], N_p : 粒子数 [m^{-3}], n : 攪拌翼回転数 [s^{-1}], $P(v_{\text{coll}})$: 衝突速度の確率密度 [$\text{m}^{-1} \text{s}$], T : 槽径 [m], u_t : 粒子の終末沈降速度 [m s^{-1}], v_{coll} : 粒子の衝突速度 [m s^{-1}], ρ_p : 粒子の密度 [kg m^{-3}], 添え字 n : 羽根面に対して法線方向, r : 半径方向, z : 鉛直(軸)方向

引用文献

- 1) Misumi, R., S. Kato, S. Ibe, K. Nishi and M. Kaminoyama, "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.*, 44(4), 240-246 (2011)
- 2) Derksen, J.J., "Numerical simulation of solids suspension in a stirred tank", *AIChE J.*, 49(11), 2700-2714 (2003)
- 3) Rielly, C.D. and A.J. Marquis, "A particle's eye view of crystallizer fluid mechanics", *Chem. Eng. Sci.*, 56(7), 2475-2493 (2001)
- 4) Misumi, R., N. Nakamura, K. Nishi and M. Kaminoyama, "Effects of Instantaneous Slip Velocity and Solute Distribution on the Dissolution Process of Crystal Particles in a Stirred Vessel", *J. Chem. Eng. Jpn.*, 37(12), 1452-1460 (2004)
- 5) 三角 隆太, "攪拌型晶析槽内における攪拌羽根への結晶粒子の衝突現象と微粒子発生", 晶析工学は、どこまで進歩したか (最近の化学工学 64), 第7章, 72-85, 三恵社 (2015)
- 6) Takeda, H., N. Esaki, K. Doi, H. Murakami, K. Yamasaki and Y. Kawase, "Flow simulation in bubble columns in regard to bubble coalescence and break-up utilizing LES and DEM", *J. Chem. Eng. Jpn.*, 37(8), 976-989 (2004)

- 7) Schiller, V.L. and A.Z. Naumann, "Über die grundlegenden berechnungen bei der schwerkraftauf-bereitung", *Journal of Verein Deutscher Ingenieure*, 77, 318-320 (1933)
- 8) Misumi, R., R. Nakanishi, Y. Masui, K. Nishi and M. Kaminoyama, Lagrangian Numerical Simulation of Crystal Particle Impact in a Stirred Vessel, *Proc. of 2nd Asian Conference on Mixing*, P1-9, 269-275 (2008)
- 9) Misumi, R., T. Sasaki, H. Kato, K. Nishi and M. Kaminoyama, 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)
- 10) Misumi, R., H. Kato, H. Iijima, K. Nishi and M. Kaminoyama, Quantification of Particle Collision on Impeller Blades in a Stirred Vessel, *Proc. of Fourth Asian Conference on Mixing*, 201-204 (2013)
- 11) Tomura, S., R. Misumi, K. Nishi and M. Kaminoyama, Direct Measurement of Particle Collisions with Impeller Blades Using High-Speed Video Camera System Synchronized with Impeller Rotation, *Proc. of 15th European Conference on Mixing*, (2015)
- 12) Misumi, R., H. Iijima, S. Tomura, K. Nishi and M. Kaminoyama, Effects of Particle Properties on the Particle Collision with Impeller Blade, *Proc. of 15th European Conference on Mixing*, (2015)
- 13) Takahashi, K., Y. Gidoh, T. Yokota and T. Nomura, "Particle-Impeller Impact in an Agitated Vessel Equipped with a Rushton Turbine", *J. Chem. Eng. Jpn.*, 25(1), 73-77 (1992)

Quantification of Crystal Particle Collision Aiming to Develop Model of Secondary Nucleation

Ryuta MISUMI, Meguru KAMINOYAMA, Kazuhiko NISHI

National University Corporation Yokohama National University

Summary

Particle collision with impeller blades in industrial processes often causes attrition and breakage of the particles. In these industrial processes, solid particles exhibit wide variation in diameter and specific gravity. This study clarified the effects of particle properties on particle collision with impeller blades using Euler–Lagrangian simulations of particles suspended in a stirred vessel.

A flat-bottomed cylindrical stirred vessel with four baffle plates was used. The vessel had inner diameter of 100 mm and a liquid level of 100 mm (H). The fluid was presumed to be water. A 50-mm-diameter, six-blade, paddle-type impeller was submersed at a height of $H / 3$. The impeller rotational speed, n , was 6 s^{-1} . Large Eddy Simulation (LES) was used for turbulence simulation. The Lagrangian particle motion equations for each particle were calculated based on the instantaneous local fluid velocity obtained using the LES simulation. For the LES coupled with the DEM, we used commercial CFD software (R-flow; R-flow Co. Ltd.).

Results are summarized as follows. Particles caught up in fluid flow come from little above the front of blade. Some of the particles veered from the fluid flow, and then collide with blade face. On the front face of impeller blade, many of particle collisions occur along the blade edge. Collision velocity in normal to blade face increases toward the blade edge or tip. The probability density of the normal component of collision velocity shows the log–normal distribution. The mode value is less than one-tenth of the blade tip speed.

Collision frequency with the front face $F_{\text{coll},f}$ increases with particle diameter and slightly decreases with particle density. Particle distribution in a vessel changes with particle diameter and density. So, the collision frequency is also affected by the number of particles suspended around the impeller, N_{imp} . Relation between the collision frequency of a particle suspended around the impeller $F_{\text{coll},f}/N_{\text{imp}}$ and settling velocity of a particle u_t with variation of particle size and density are investigated. Results show that $F_{\text{coll},f}/N_{\text{imp}}$ is increased, as the settling velocity u_t increases regardless of particle size and density.