

HB翼の試験管からパイロットスケールまでの適用

安井詩織¹・伊奈卓哉¹・服部大輔¹・下河邊一樹¹・原口蘭¹・古川陽輝¹・加藤禎人¹⁺⁺・高承台²

1 名古屋工業大学 工学部 生命・応用化学科, 466-8555 名古屋市昭和区御器所町

2 韓国東洋大学校 生命化学工学科, 750-711 韓国慶北榮州市豊基邑校村洞1

キーワード: 混合, 攪拌, HB翼, マグネチックスターラー, スケールアップ

加藤ら(2015a, 2015b)により, 3S(Simple, Speedy, Stable)性能を備えた新しいホームベース(HB)翼を開発した。本稿では, HB翼を試験管用攪拌子への適用および実機スケールへのスケールアップを試みた。試験管に最適なHB型攪拌子を開発し, 通常の攪拌子よりも混合時間が短いことを見出した。さらに, 著者らは, パイロットスケールから実験室スケールまでのHB翼の混合時間を測定した。この結果から, HB翼は, 翼形状を変更することなく, 実験室規模から工業規模に効率的にスケールアップできることが示された。

緒 言

井上らの開発した可視化法(Inoue *et al.*, 1999, 2009a, 2009b, 2012)を用い, 加藤らによって, 流脈が槽底部から槽壁部を一気に液自由表面まで駆け上がる攪拌翼が開発された(Kato *et al.*, 2015a, 2015b)。現在使用されている大型翼より幾何形状が単純(Simple)で, 迅速(Speedy)な混合性能を持ち, 流脈が安定(Stable)して攪拌槽内に広がる攪拌翼であり, その幾何形状は野球で使用するホームベースの形状に酷似していることから HB 翼と名付けられた。

実験室スケールの有機合成などのあらゆる化学実験において使用される攪拌子は, 棒状やラグビーボール状のものが多く, その形状はほとんど着目されてこなかった。そこで, 形状が単純であることに着目し, スケールダウンを試み, マグネチックスターラーのスターラーチップに HB 翼を応用することで, 製品化にこぎつけた(Suzuki *et al.*, 2018, Kato *et al.*, 2018)。

そして, 底面形状が平らなビーカー用に開発した HB 型攪拌子を 100 個以上試作し, 有機合成や無機化学反応などを研究している大学院生の実験に試用してもらった結果, 「試料の物性値の誤差が 10%程度から 5%程度に減少し, 再現性が上がった」, 「通常のスターラーチップより回転数を落とせるので液の飛び散りを減らせ回収率が上がった」, 「エポキシ樹脂とアセトンの混合時間が 15 秒から 5 秒に減少した」等の成果が得られた。ただし, 実際に使用した結果, 最も多かった要望は, ①多くの反応は槽底形状が平らなビーカーではなく, 曲面形状のナスフラスコが多いため, 丸底対応のスターラーを作成してほしい, ②有機合成では非常に高価な試薬

を使用するのでもっと小さな試験管に対応するスターラーが欲しい, という声であった。そのため, まずは丸底ナスフラスコに対応する HB 型攪拌子が開発され, 従来の棒状攪拌子と比較して大幅な混合時間の短縮(半分以下)を得た。このことから, 収率を上げるためには攪拌子の形状を最適化することが効果的であることが分かった。そこで本研究では, 試験管で使用できる HB 型攪拌子の開発を試み, 混合性能を検討したのでここに報告する。

また, 実機へのスケールアップでは, 小型攪拌翼の条件をそのまま適用する場合はほとんどで, 実際のスケールで使用する場合は条件設定がされていないことが多くある。しかし, そのような状態では実機スケールにおける混合性能に関わる影響因子を掴むことが困難となる。そのため, 予め攪拌翼のスケールアップに関する性能評価を行い, 混合性能に問題が無いかを明らかにしておく必要がある。HB 翼に関しても, スケールアップをして運用する為には小型サイズとの性能差など, スケールアップの影響を明らかにする必要がある。しかし, 汎用翼のパドル翼でさえ大学の研究では数 L まで, 企業の研究および操業実績では数千 L のものが多く, その中間となる数十~数百 L 規模のパイロットスケールのデータはほとんどなく, それらを比較した幅広い Re 数範囲に及ぶ具体的なデータはまだない。

混合時間を攪拌槽の幾何形状から推算できる動力数や吐出流量数から見積もる方法は, Kaniwano *et al.* (1967) の式が有名であるが, Re 数に依存しない乱流域でのみしか適用できない。対して, 層流域の混合時間の相関としては, Mizushima *et al.* (1970) の相関が有名であるが, こちらも層流から乱流に至るまでをカバーしているわけではない。

実際に種々の攪拌翼を用いて高粘度流体の混合時間を実測した例 (Johnson *et al.*, 1967, Mizushima *et al.*, 1967) も存在するものの、実験方法や判別方法が一樣ではなく、データを直接比較することができない。そこで本研究では、HB 翼の小スケールから大スケールまで、さらに幅広い Re 数で混合性能を評価するべく、層流-乱流域におけるスケールアップ前後の無次元混合時間を同条件下で測定し、汎用攪拌翼のものと比較した。

1. 実験装置および方法

1.1 試験管用 HB 型攪拌子

1.1.1 実験方法

本実験では、市販の内径 15.5mm の試験管を使用し、液量 $V=25, 4.5, 8\text{mL}$ とした。攪拌液には種々の粘度に調整した水あめ水溶液を用いた。スターラー機種は ASONE, REXIMRS-1DN、攪拌子の回転数はストロボ光の同期で実測した。

混合過程の可視化および混合時間は、ヨウ素でんぷん反応を用いて着色したものをヨウ素-チオ硫酸イオンの酸化還元反応を利用した脱色法で観察、測定した。チオ硫酸ナトリウムの水溶液は液自由表面から投入した。粒子浮遊状態の観察には、固体粒子としてイオン交換樹脂を用いたイオン交換水を入れた試験管にこれを 1wt% 投入し、粒子の浮遊状態を観察した。

1.1.2 検討した試験管用 HB 型攪拌子の形状

実験に用いた 5 種類の幾何形状の HB 型攪拌子と棒状攪拌子を Figure 1 に示す。HB 型攪拌子は、プラスチック板を切り取り、市販の攪拌子(最大直径 4mm, 長さ 10mm)を差し込むことで作成した。また、試験管の槽底形状に合うように曲線部を設けた。翼径 d と試験管内径 D は、過去の知見 (Kato *et al.*, 2015a) よりわかっている黄金比 $d/D=0.618$ に基づき B, D, E を $d=9.6\text{mm}$ ($d/D=0.619$) とし、A を $d=7.8\text{mm}$ ($d/D=0.503$), C を $d=10.9\text{mm}$ ($d/D=0.703$) に設定した。さらに、翼先端が液面に到達する程度が望ましいことから、A, B, C は液量 4mL の時に、D は 5mL の時に、F は 25mL の時に翼先端が液面に到達するようにした。

1.2 パイロットスケールの HB 翼

1.2.1 流脈の可視化実験

流脈の可視化実験では、槽径 $D=0.388\text{m}$ のアクリル樹脂製平底円筒槽 (50L サイズ) を使用し、液高さ H と槽径 D の比 $HD=10$ とした。攪拌翼には翼径 $d=0.239\text{m}$ の HB 翼を使用した。主に流脈が明確に可

視化できる層流-遷移域 ($Re=50\sim 100$) の範囲において、トレーサーとしてヨウ素溶液を利用し三次元的に全体の流脈を可視化した。攪拌液には粘度 $\mu=0.610\text{Pa}\cdot\text{s}$ の水あめ水溶液を使用し、攪拌翼の回転数は、流脈の観察のしやすさを重視し、経験的に 24~47rpm とした。

1.2.2 脱色実験

実験装置を Figure 2 に示す。攪拌液には種々の粘度に調整した水あめ水溶液を使用した。前述した攪拌槽を使用し、液高さ H と槽径 D の比を $HD=10$ とした。攪拌翼には、翼径 $d=0.239\text{m}$ の大型 HB 翼、翼径 $d=0.225\text{m}$ の大型 4 枚羽根パドル翼、翼径 $d=0.224\text{m}$ の大型 Rushton タービン翼の三種類 (いずれも 50L サイズ) を使用した。また、大型 4 枚羽根パドル翼と大型 Rushton タービン翼の翼取り付け位置 C と液高さ H の比は、 $CH=0.5$ となるよう設置した。前述した脱色法を使用し、 $n^{\circ}\text{m}$ を測定した。

また、比較対象として、槽径 $D=0.200\text{m}$ のアクリル樹脂製平底円筒槽を使用し、翼径 $d=0.118\text{m}$ の HB 翼、翼径 $d=0.120\text{m}$ の 4 枚羽根パドル翼と Rushton タービン翼 (それぞれ 5L サイズ) を用いて、同様に実験した。

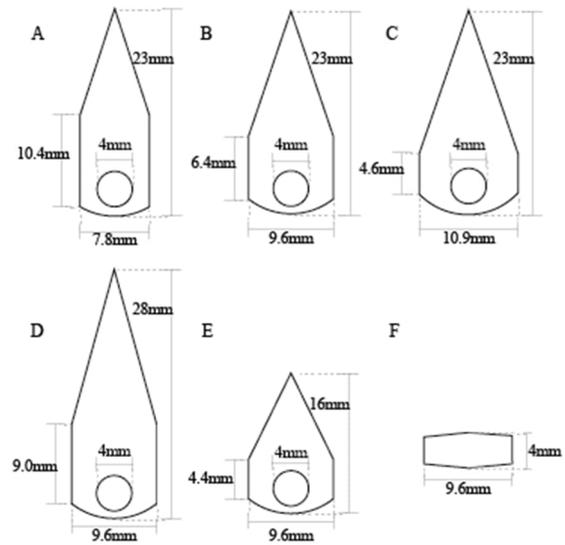


Fig. 1 Compared and examined stirring bar

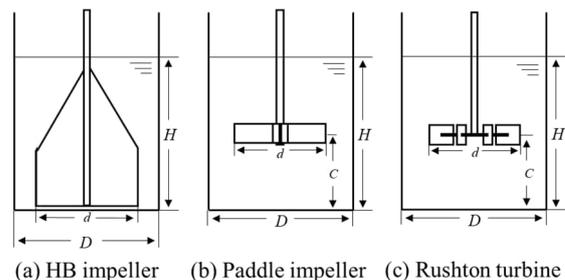


Fig. 2 Schematic diagram of experimental set-up

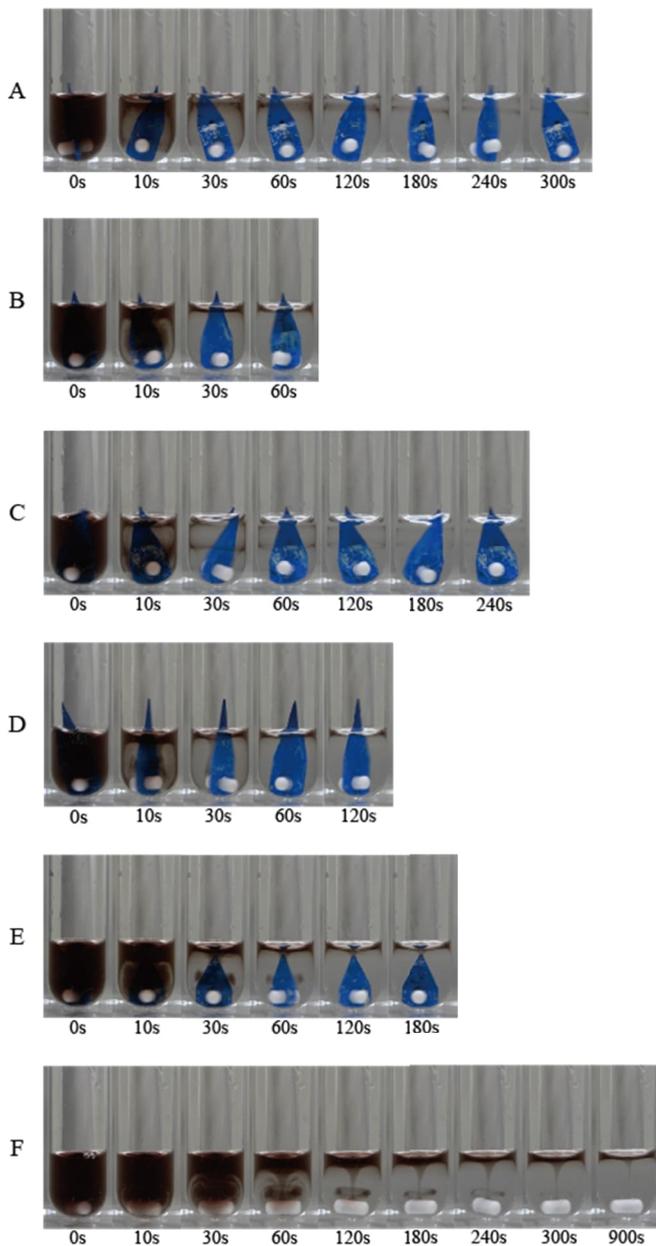


Fig.3 Mixing pattern with HB type stirring bar and normal stirring bar for test tube
 ($\mu=0.093\text{Pa}\cdot\text{s}$, $n=200\text{rpm}$, $V=25\text{mL}$)

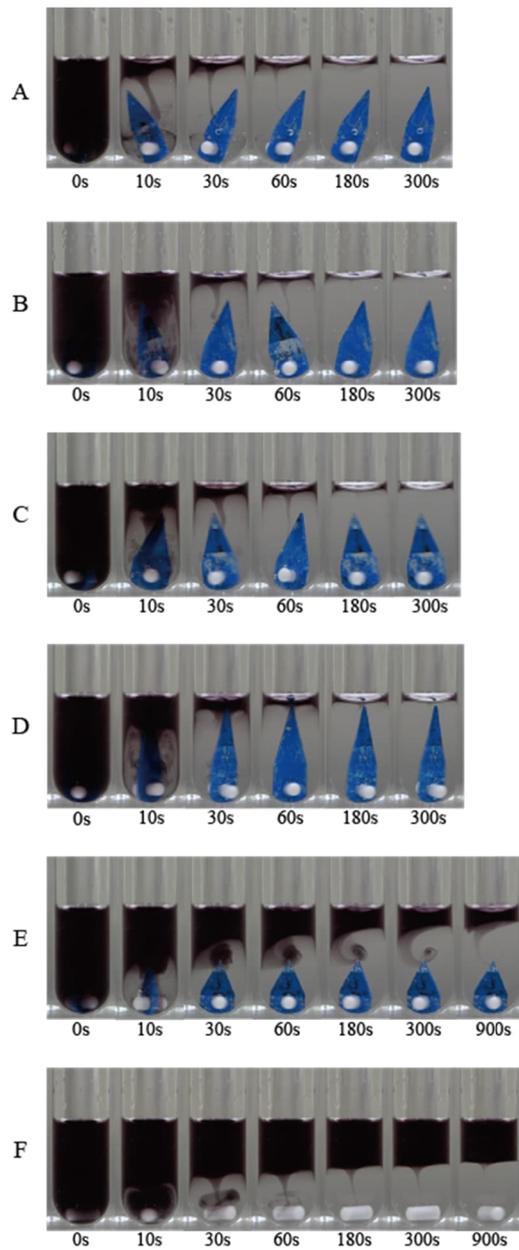


Fig.4 Mixing pattern with HB type stirring bar and normal stirring bar for test tube
 ($\mu=0.033\text{Pa}\cdot\text{s}$, $n=200\text{rpm}$, $V=5\text{mL}$)

2. 実験結果と考察

2.1 試験管用 HB 型攪拌子

2.1.1 混合状態の可視化

Figure 3に、粘度が $0.093\text{Pa}\cdot\text{s}$ 、液量が 25mL の溶液を混合した様子を示す。スターラーの回転数は 200rpm であり、 Re 数は、A が 28, B, D, E が 424, C が 201, F が 546 となる。B の HB 型攪拌子は 52s で、D の HB 型攪拌子は 82s で、C の HB 型攪拌子は 233s で、A の HB 型攪拌子は 290s で混合が完了したのに対して、F の棒状攪拌子は混合完了に 660s かかった。HB 型攪拌子は中心軸が適度にぶれることが観察されたが、この不規則な流動が混合を促進している要因の一つであると考

えられる。 d/D が小さい A と大きい C の HB 型攪拌子と比較して、標準形である B の HB 型攪拌子の混合が最も早かった。

横から見た写真では壁面に着色部に残っているように観察されるが、これは膜状の未脱色部であり、上から見たときにほぼ脱色されていれ、混合完了と判断した。Figure 4に Figure 3と同じ回転数で、粘度が $0.033\text{Pa}\cdot\text{s}$ 、液量を 5mL としたときの混合過程を示す。 Re 数は、A が 783, B, D, E が 119, C が 153, F が 129 となる。B の HB 型攪拌子は 220s で、C の HB 型攪拌子は 240s で、A と D の HB 型攪拌子は 300s で混合が完了した。それに対し、E の HB 型攪拌子と F の棒状攪拌子は 900s 経っても混合が完了しなかった。こちらも標準形の B の HB 型攪拌子がわずかながら早く混合が完了した。液量が増加したことに

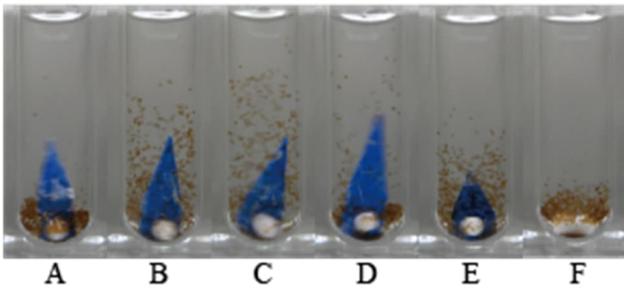


Fig.5 Particle dispersion for examined stirring bar

より、翼高さが低いEのHB型攪拌子の混合時間が長くなっているが、翼高さが高いDのHB型攪拌子はA,B,CのHB型攪拌子とほとんど同等であることから、必要以上に翼高さを高くする必要はないと考えられる。

以上より、試験管に適した形状は、過去の知見に基づいて作成したBのHB型攪拌子のものであることが示された。

2.12 粒子浮遊状態

Figure 5に、8mLのイオン交換水にイオン交換樹脂を投入し、300ppmで回転させたときの結果を示す。A,B,C,D,EのいずれのHB型攪拌子もFの棒状攪拌子よりも粒子浮遊状況が改善されていることがわかる。B,CのHB型攪拌子と翼高さが低いEのHB型攪拌子の性能が良く、完全浮遊状態が達成されている。アクリル槽に反射した、試験管の底面が反射したアクリル角槽の槽底を、注意深く観察することにより、完全浮遊を判断することは容易である。これは中心軸のぶれが小さく、翼下部の吐出流が安定していたからだと考えられる。粒子浮遊では、不規則な流動よりも安定した循環流が重要であることがわかる。

22 パイロットスケールのHB翼

22.1 流脈の可視化実験

回転周期をTとして、流脈の可視化実験により得られた $Re=100$ における一回転毎の50Lサイズの流脈パターンをFigure 6に、同一 Re 数における一回転毎の5Lサイズの流脈パターンをFigure 7に示す。2つの流脈パターンを比較すると、パドル翼のようなドーナツリング状の混合不良部を形成しにくいHB翼の特徴的な流脈が、槽内部へ迅速に広がっていくことがスケールアップの前後のどちらにおいても確認できる。同一 Re 数($=100$)において同様の流脈パターンをとっているため、スケールアップをしても良い混合性能が維持されていることが分かる。

22.2 脱色実験

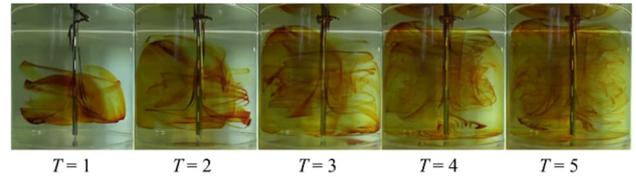


Fig.6 Streak line of HB impeller ($Re=100, 50L$)

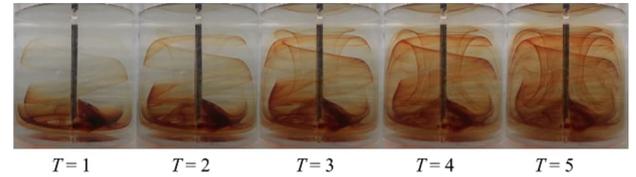


Fig.7 Streak line of HB impeller ($Re=100, 5L$)

層流域から乱流域までの幅広い Re 数の条件で得られた無次元混合時間 $n \cdot t_m$ と Re 数の関係をFigure 8に示す。Figure 8中の黒色実線および赤色実線は、次式に示す平岡らが提案した混合時間と吐出流量の相関式(Hiraoka et al., 2001)と、動力数と翼寸法、吐出流量数の相関式(Hiraoka et al., 2003)の乱流域で適用可能な2つの相関式から導かれる曲線である。式中の記号に関してはそれぞれの引用文献を参照されたい。

$$n \cdot t_m = 6.7(D/d)^{\gamma}(N_p \cdot N_{q1})^{0.25}(HD)^{0.5} \quad (1)$$

$$N_{q1} = 0.14(D/d)^{0.5}\beta(D^2H/d^3)N_p^{0.5}(3.3\gamma_p^{0.7}\sin^{1.6}\theta H)^{0.4}$$

ここで式中のパラメータ β, γ はそれぞれ次式で定義される。

$$\beta = 2\ln(D/d)(D/d)^{\gamma} \quad (2)$$

$$\gamma = \{ \eta \ln(D/d)(\beta D/d)^{1.5} \quad (3)$$

今回の実験結果とこの曲線を比較したところ、よく一致することが確認された。5Lサイズと50LサイズのHB翼の $n \cdot t_m$ は測定した各 Re 数においてほぼ同様の値を示したため、そのままの条件でスケールアップ可能であることが明らかになった。

また、 $Re < 100$ において、4枚羽根パドル翼、Rushtonタービン翼は未混合領域が生じ混合が完了しなかったが、HB翼では混合が進んでいることが確認された。さらに、スケールアップの前後のどちらにおいても、HB翼はより小さな $n \cdot t_m$ を示しており、高い混合性能を持つことがわかる。

23 小スケールと大スケールの混合時間の比較

22.2で示した2種類のHB翼(5Lサイズ, 50Lサイズ)の $n \cdot t_m$ と Re 数の関係に、試験管用HB型攪拌子のデータを重ねたものをFigure 9に示す。ここでは、測定した5つのHB型攪拌子のうち、2.1.1で最も混合性能が良いと確認されたBのHB型攪拌子の結果を使用した。また、 $HD=1.0$ となる条件で測定した5Lサイズと50LサイズのHB翼に合わせ、試験管用HB型攪拌子も $V=4mL(HD=1.0)$ の結果を使用し

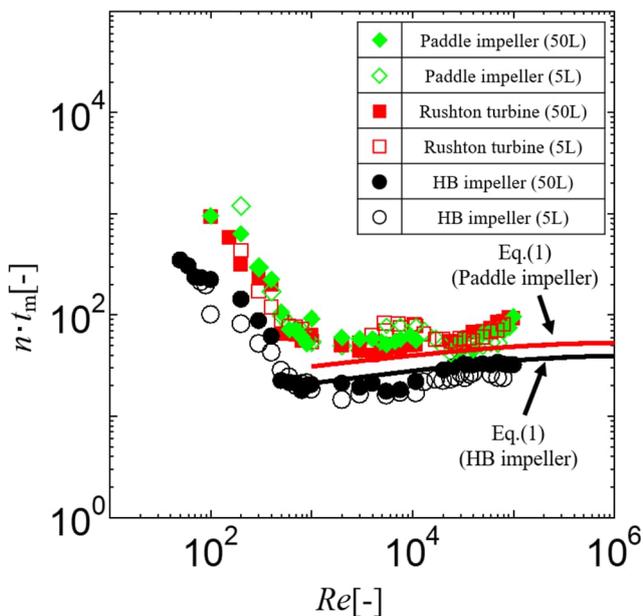


Fig. 8 Correlation of dimensionless mixing time for examined impeller

た。

実験室スケール,パイロットスケール,実機スケールで使用される各種 HB 翼の結果を重ねたところ,そのサイズによらず似たような傾向を示すことが確認された。これより,HB 翼は幾何学的相似を保った状態でのスケールアップが可能であると考えられる。

結 論

ビーカー用に開発された HB 型攪拌子を応用し,試験管で利用できる HB 型攪拌子を開発した。この試験管用 HB 型攪拌子は従来の棒状攪拌子と比較して,大幅な混合時間の短縮が確認され,非常に有効であることが示された。これにより,実験室スケールの攪拌混合操作における収率アップに貢献することができると考えられる。また,HB 翼は今回取得したデータより,スケールアップしてもその良好な混合性能が維持されていることが示された。以上のことから,HB 翼は実験室スケールから実機スケールまで幾何学的相似を保つことができ,効率よくスケールアップすることが可能な混合装置であるといえる。

Nomenclature

b	=impeller height	[m]
C	=clearance between impeller and vessel bottom	[m]
D	=vessel diameter	[m]
d	=impeller diameter	[m]
H	=liquid depth	[m]

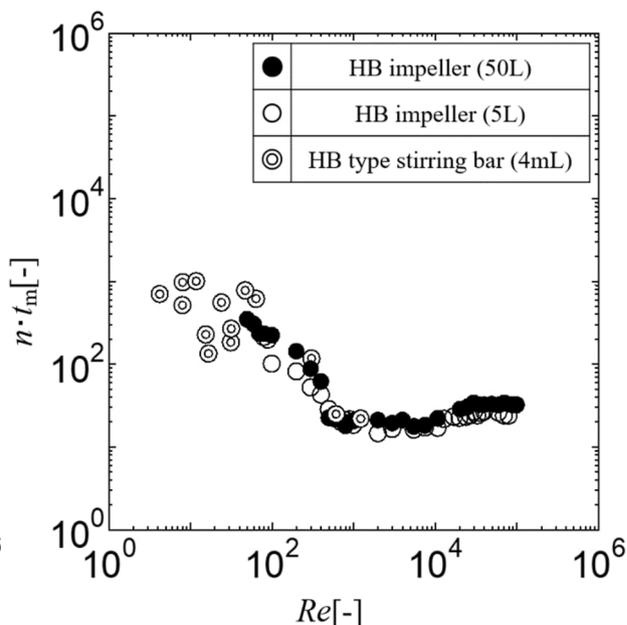


Fig. 9 Correlation of dimensionless mixing time for HB impellers (5L, 50L) and HB type stirring bar (type B, $V=4\text{mL}$)

n	=impeller rotational speed	$[\text{s}^{-1}]$
Np	=power number ($=P/(\rho n^3 d^5)$)	[-]
Nq	=discharge flow number ($=Q/(nd^3)$)	[-]
Re	=impeller Reynolds number ($=nd^2\rho\mu$)	[-]
T	=impeller period	[-]
t_m	=mixing time	[s]
V	=liquid volume	[mL]
β	=correction coefficient defined in Eq(2)	[-]
γ	=parameter defined in Eq(3)	[-]
μ	=liquid viscosity	$[\text{Pa}\cdot\text{s}]$
ρ	=liquid density	$[\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}]$

Literature Cited

- Hiraoka, S., T. Yutaka, Y. Kato, A. Matsuura, T. Yamaguchi and Y. S. Lee; "Model Analysis of Mixing Time Correlation in an Agitated Vessel with Paddle Impeller," *J. Chem. Eng. Japan*, **34**, 1499-1505 (2001)
- Hiraoka, S., T. Yutaka, Y. Kato, Y. Murakami, Y. Sato, A. Matsuura and T. Yamaguchi; "Correlation of Discharge Flow Rate in a Vessel with Pitched Blade Paddle Impeller," *J. Chem. Eng. Japan*, **36**, 187-197 (2003)
- Inoue, Y. and Y. Hirata; "Numerical Analysis of Chaotic Mixing in Plane Cellular Flow I - Formation Mechanism of Initial Mixing Pattern and Fine Mixing Pattern," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **25**, 294-302 (1999)
- Inoue, Y., B. Okada and S. Hashimoto; "Simplified Model of 3D Velocity Field in a Stirred Tank," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **35**, 201-210 (2009a)
- Inoue, Y., D. Takaoka, B. Okada, K. Natami, S. Hashimoto and Y. Hirata; "Analysis of Fluid Mixing in an Agitated Vessel Based on a Streakline," *Kagaku Kogaku*

- Ronbunshu*,” **35**, 265-273 (2009b)
- Inoue, Y, Y. Kato, R. Osaka, K. Natami, O. L. Onyanfo, M. Kawamata and S. Hashimoto; “Enhancement of Fluid Mixing by Deformations of Streak Surface,” *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **38**, 191-202 (2012)
- Johnson, R. T.; “Batch Mixing of Viscous Liquids,” *Ind. Eng. Chem, Process Design and Develop*, **6**, 340-345 (1967)
- Kamiwano, M, K. Yamamoto and S. Nagata; “Mixing performance of Various Agitators,” *Kagaku Kogaku*, **31**, 362-372 (1967)
- Kato, Y, M. Hiramatsu, S. Ohtani, M. Yoshida and K. Shiobara; “Development of New Large Paddle (HB Type) Impeller Based on Streak Line Observation,” *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **41**, 16-20 (2015a)
- Kato, Y, S. Ohtani and H. Furukawa; “Characteristics of Power Consumption and Mixing Time of New Large Paddle (HB type) Impeller,” *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **41**, 276-280 (2015b)
- Mizushima, A, R. Ito, S. Hiraoka, Y. Ikuta, Y. Koraka and J. Watanabe; “Transport Phenomena of Agitation Vessel Wall” *Kagaku Kogaku*, **31**, 1208-1212 (1967)
- Mizushima, T, R. Ito, S. Hiraoka, and J. Watanabe; “Uniformization of Temperature Field in Agitated Reactors” *Kagaku Kogaku*, **34**, 1205-1212 (1970)
- Suzuki, K, Y. Ikeda, H. Furukawa and Y. Kato; “Application of New Large Paddle (HB Type) Impeller to Magnetic Stirring,” *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **44**, 91-93 (2018)

Application of HB Impeller from Test Tube to Pilot Scale Mixing Vessel

Shiori YASUI¹, Takuya INA¹, Daisuke HATTORI¹, Kazuki SHIMOKOBE, Ran HARAGUCHI, Haruki FURUKAWA¹, Yoshihito KATO¹⁺⁺ and Seung-Tae KOH²

¹ Department of Life and Materials Engineering, Nagoya Institute of Technology, Gokiso-cho, Showa-ku, Nagoya-shi, Aichi 466-8555, Japan

² Department of Bio-Chemical Engineering, Dongyang University, 1 Kyochon, Punggi, Yeongju, Kyungbuk 750-711, Korea

E-mail address of corresponding author: kato.yoshihito@nitech.ac.jp

Keyword: Mixing, Agitation, HB Impeller, Magnetic Stirring Bar, Scale-Up

A new Home-Base (HB) impeller with 3S performance (simple, speedy and stable) was developed by Kato *et al.* (2015a, 2015b). In this paper, authors attempted to apply HB impeller to a stirring bar for experimental test tube and to scale up to industrial scale as practical application of HB impeller; authors developed an optimal HB type stirring bar for test tube and found that it had shorter mixing time than the normal stirring bar. In addition, authors measured the mixing time of HB type impeller from pilot scale to experimental scale. From the results, it was shown that HB impeller can be efficiently scaled up from experimental scale to industrial scale without changing the impeller geometry.