

# 反応装置の混合特性評価

佐々木 康\*・井口 学\*<sup>2</sup>・横谷 真一郎\*<sup>3</sup>

Evaluation Method of Mixing Characteristics in Chemical Reactors

Yasushi SASAKI, Manabu IGUCHI and Shinichiro YOKOYA

**Synopsis :** The tracer response method was widely used to study the mixing properties of steelmaking reactors. In this study, by applying the indexes of fluid mixing based on information entropy, the local mixing properties in vessels were simulated under two different conditions. Especially the two important roles of mixing, distributor and blender, were discussed based on the simulated results. It was also shown that the results obtained by the tracer response method could be correlated to the index based on information entropy. The indexes of fluid mixing based on information entropy were confirmed to be quite useful to analyze the mixing properties of chemical reactors for the improvement of the mixing efficiency.

**Key words :** fluid mixing; information entropy; degree of mixedness; tracer response curve.

## 1. はじめに

基本的な製鋼プロセスにおける反応はそのほとんどが異相界面反応であり、界面での反応とその界面への物質移動からなる。ほとんどの製鋼プロセスにおいては1400°C以上の高温で反応が進行するため、化学反応速度は充分大きく一般的には物質移動過程が反応の律速過程となっている。そのため反応効率を上げるには、反応器内での鋼浴の混合攪拌を高効率で行い、反応物質を界面へ高速かつ大量に供給し、かつ反応生成物を界面近傍から速やかに除去することが必要となる。

これまで反応装置の混合の評価は主として装置内の流動状態が最も支配的と思われる個所にトレーサーを注入し、装置内の代表的な位置における濃度の変化から求めた均一混合時間にもとづいて検討されてきた。鋼浴に加えた攪拌エネルギーの供給速度密度 $\varepsilon$ を増加させると、溶鋼の流動が強化され一般的に均一混合時間 $\tau$ が短くなる。攪拌法によらず、経験則ではあるが $\varepsilon$ と $\tau$ の間には相関があり、各反応装置について多くの相関式が提案され、例えば中西<sup>1)</sup>は転炉について以下の式を提案している。

$$\tau = 800\varepsilon^{-0.40} \dots\dots\dots (1)$$

他の反応装置においても同じく、 $\varepsilon$ の増加により $\tau$ が減少する相関式が成立している。前述したように見かけの反応速度は攪拌効率に依存するため、見かけの反応速度定数 $k$ と $\varepsilon$ の間には以下の関係が成立する。

$$k \propto \varepsilon^n \quad (n > 0) \dots\dots\dots (2)$$

よって、原理的には、反応効率の向上は、攪拌エネルギーの供給速度密度 $\varepsilon$ を増加させることにより可能となる。しかし、現実的には、例えば吹き抜けによる物理的境界、反応装置形状による制約、投入エネルギーのコストなどにより、 $\varepsilon$ の増大には限界がある。そのためさらなる攪拌効率の向上には別の技術が必要となる。

これまでの鉄鋼プロセスにおける混合効率の研究の多くは基本的に均一混合時間 $\tau$ にもとづいて行われてきた。しかし、 $\tau$ はあくまで反応装置全体の混合特性を表す一つのマクロ的な指標であって、反応装置内の各領域での混合状態のミクロ的な情報についてはいっさい知ることが出来ない。またトレーサーの投入位置により $\tau$ が異なることも知られており、反応装置の混合特性の評価は $\tau$ だけでは不十分である。

Ogawaら<sup>2-4)</sup>は、装置内をいくつかの領域に分割し、それら各領域間の流体の移動確率をもとに情報エントロピーの概念を導入して、装置内の局所のおよび総括的混合特性を示す新たな指標を導入し、これが装置内の混合の評価に非常に有効であることを示した。混合状態の評価には、情報エントロピーだけでなく種々の指標が提案されてきた<sup>5)</sup>。それぞれに特徴があるが、情報エントロピーにもとづく指標は従来測定されてきた $\tau$ との対応が可能でことや各パラメーターの物理的意味が明確である優れた特徴を持つ。本研究はこの観点から、情報エントロピーにもとづく

平成15年9月25日受付 平成15年12月19日受理 (Received on Sep. 25, 2003; Accepted on Dec. 19, 2003)

\* 北海道大学大学院工学研究科 (現: 東北大学大学院工学研究科) (Graduate School of Engineering, Hokkaido University, now Graduate School of Engineering, Tohoku University)

\* 2 北海道大学大学院工学研究科 (Graduate School of Engineering, Hokkaido University, N-13 W-8 Kita-ku Sapporo 060-8628)

\* 3 日本工業大学機械工学科 (Department of Mechanical Engineering, Nippon Institute of Technology)

反応装置の混合特性評価の有効性、および反応特性を向上させる可能性についての検討を行ったのでその結果について報告する。

情報エントロピーは1948年Shannonにより提案されて以来情報科学の根底を支える概念として広く用いられており、それは「事象の不確かさ」に対応し、ある情報による不確かさの減少分が、その情報の「情報量」であるとして定義されている。情報を受け取る前後の不確かさの相対値を「情報エントロピー」と定義している。今装置内にトレーサー粒子を投入した場合を例として考えてみる。情報エントロピーの立場からは、混合開始後の時刻*t*で投入したトレーサー粒子のどれだけがどの流域に含まれているかという不確かさにもとづいて混合を評価する。装置内をいくつかの領域に区分し、領域*j*中に含まれるトレーサー粒子の占める体積が*V<sub>jT</sub>*であると分かったとき、投入トレーサーの全量*V<sub>T</sub>*に対しての割合(確率)は*V<sub>jT</sub>/V<sub>T</sub>*となる。つまり領域*j*には*V<sub>jT</sub>*量のトレーサー粒子が存在していることを知らせるこの情報を定量的に表したのが情報エントロピーで、この場合は $-\log(V_{jT}/V_T)$ と定義する。

## 2. 情報エントロピーによる混合度の定義

反応装置内の攪拌混合は、装置内の内容物の各領域間での移動により生じるが、装置内の内容物の領域間移動にはそれぞれの領域の distributor としての役割に関わる移動と blender としての役割に関わる移動があり、この2つの移動を明確に区別して評価しなければならない。ここで distributor とはある領域の一部の流体が所定の時間後どの領域に移動したか、blender はある領域に着目したとき所定の時間に、どの領域から流体が流入してきたかという役割を意味している。

情報エントロピーの観点からは、反応装置の任意の領域内において注目した流体粒子が単位時間  $\Delta t$  に「どの領域に流出するか」、「どの領域から流入したか」についての不確かさ、言い換えれば、その移動する確率にもとづいて装置内の混合度を評価する。その混合度の詳細<sup>2-4)</sup>についてはすでに報告されているのでここでは、その定義について簡単に述べる。Fig. 1 に示すように装置内体積 *V<sub>T</sub>* を体積が *V<sub>0</sub>* の *N* 個の領域に分割し、領域 *j* の一部の流体が領域 *i* に移

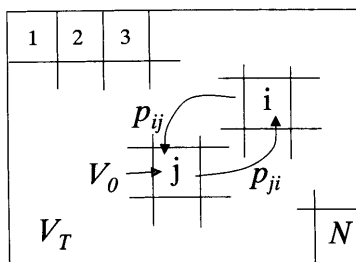


Fig. 1. Batch mixing reactor. (*V<sub>T</sub>*: total volume, *V<sub>0</sub>*: divided region's volume).

動する確率を  $p_{ij}$ 、逆に領域 *i* の一部の流体が領域 *j* に流入する確率を  $p_{ji}$  とする。このとき単位時間に領域 *j* の注目流体粒子が領域 *i* に流出した情報にもとづく distributor としての領域 *j* での局所的混合指標  $M_d$  は以下で定義され、

$$M_d = \frac{-\sum_i p_{ij} \log p_{ij}}{\log N} \dots\dots\dots (3)$$

逆に領域 *i* の一部の流体が領域 *j* に流入する情報にもとづく blender としての領域 *j* での局所的混合指標  $M_b$  は以下で定義される。

$$M_b = \frac{-\sum_i p_{ji} \log p_{ji}}{\log N} \dots\dots\dots (4)$$

また両者の情報の平均から得られる領域 *j* での局所的混合指標  $M_T$  は以下の式で定義される。

$$M_T = \frac{-\sum_i \frac{1}{2} \{p_{ij} \log p_{ij} + p_{ji} \log p_{ji}\}}{\log N} \dots\dots\dots (5)$$

さらに装置全体としての混合性能を示す総括的混合指標  $M_w$  は以下のように定義する。

$$M_w = \frac{-\sum_j \sum_i \frac{1}{2n} \{p_{ij} \log p_{ij} + p_{ji} \log p_{ji}\}}{\log N} \dots\dots\dots (6)$$

以上のように定義した各指標は混合がまったくなされない場合の0から完全に混合された場合の1までの値をとる。

以上の定義から、 $M_b$  が大きな値を取る領域に含まれる内容物はより早くかつより多くの他領域の内容物と混合することを意味し、また装置内の限定された領域のみへの偏った内容物の移動でなく、より多くの領域へ均等な割合で内容物が移動する方が装置全体での混合に寄与することになる。つまり  $M_d$  が大きな領域はその領域の内容物がより多くの周囲の領域に分散されて運ばれることを示す。逆の場合、つまり  $M_b$  および  $M_d$  が小さな領域は単に流体を送るパイプの役割しか果たしていないことを示す。装置によっては特定の領域において周囲の多くの領域から内容物が流入し良く混合はされるが、ある特定領域にしか内容物が運ばれない領域が存在する場合も考えられる。よって  $M_b$  や  $M_d$  の指標分布を知ることにより、上述したような装置全体の細かな混合作用の状況を把握することが可能となる。 $M_T$  は両者の平均値なので、値が大きい場合は distributor および blender としての混合が高効率なことを、小さい場合はパイプ的であることを示す。個々の反応装置全体の平均的な混合特性はそれぞれに対応する  $M_w$  を比較することにより、定量的に評価できる。

### 3. 情報エントロピーによる混合度による混合評価

前節で述べた所定の反応装置における領域間移動の確率  $p_{ij}$  は、実際にはトレーサーの濃度の反応装置内での空間分布の経時変化から試行錯誤法や、遺伝的アルゴリズムなどを適用して求めることができる。残念ながら、転炉などの製鋼プロセスにおける反応装置の全空間にわたる、トレーサー濃度の経時変化は報告されておらず、実際の反応装置での混合状態を反映した具体的な  $p_{ij}$  を求めることは現時点においてはできなかった。本報告では情報エントロピーに基づく混合指標の有効性を検討することを主な目的としている。そのため本報告では Fig. 2 に示すような軸対象空間を 12 分割した底吹きインジェクション装置をモデルとし、定性的に流れのパターンと一致するように Table 1 と Table 2 に示す領域間移動確率  $p_{ij}$  分布を仮定した。それぞれの場合について、その混合特性について情報エントロピーによる混合度を求めてその比較を行い、その特性について検討した。今後、便宜上、Table 1 と Table 2 に示した混合状態をそれぞれ normal mixing, enhanced mixing と呼ぶことにする。Fig. 2 においては各領域の体積は等しくなるように半径方向に分割しているが、実際には、任意の体積  $V_i$  に分割し、基本体積を  $V_0$  として、 $V_i/V_0$  で補正した領域間移動確率を用いることにより、いかなる分割にも対応できる。

領域間移動確率  $p_{ij}$  の概念はある領域へのトレーサー投入を考えた時、所定の時間後にどこの領域にどれだけのトレーサーが見いだされるかという確率過程に基づいており、経過単位時間を長くすれば隣り合わない領域への移動も当然生じるため、全く離れた領域においてトレーサーが見いだされることもあり得る。またたとえば領域 1 にトレーサーをいれて領域 8 に見いだされたとしても、それが

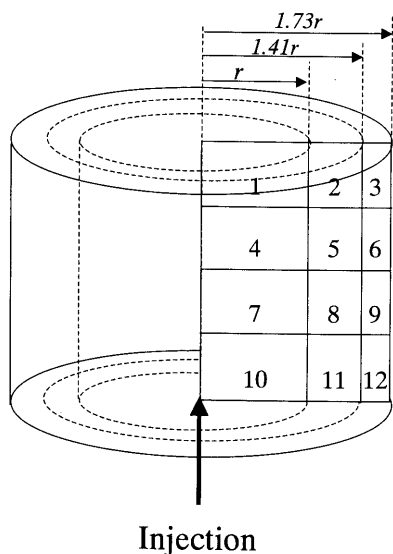


Fig. 2. Divided 12 regions in the cylindrical vessel.

どのような経路をたどって流れたかなどの物理的挙動との直接的な関係なく、領域 8 で見いだされる確率だけが意味を持つ。この過程においても当然物質収支が満たしていないといけないが、それはある領域  $j$  に他の領域から流れ込む各領域間移動確率  $p_{ij}$  および他の領域へ流れ出す各領域間移動確率  $p_{ij}$  それぞれの合計を 1 となるように設定することで保証されている。

Normal mixing においては前述したように領域 1 から 2→3→6→9→12→11→10→7→4 と流れ、また 1 に戻る循環流を想定した領域間移動確率とし、enhanced mixing においては、normal mixing で想定した循環流だけでなく、領域 5 において blender と distributor の役割が共に大きい、つまり領域 5 での混合効率を上げた状態となる領域間移動確率を設定した。つまり、Table 1 と Table 2 において、両者の 5 行目および 5 列目を比較すると enhanced mixing においては normal mixing には見られない、領域 5 から領域 2, 6 および 8 への流出、逆に領域 2, 6, 8 から領域 5 への流入がある。その結果領域 5 に留まる流体は 0.7 から 0.4 に減少している。この変化に伴い、領域 5 だけでなく他の領域の  $p_{ij}$  も物質保存の条件を満たすため若干変化させている。

Normal mixing と enhanced mixing における反応装置の各

Table 1. Transition probability between 12 regions in the vessel for normal mixing.

i \ j	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
1	0.3	0.4	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
2	0.1	0.5	0.3	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
3	0.0	0.0	0.6	0.0	0.0	0.4	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
4	0.5	0.0	0.0	0.4	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
5	0.1	0.1	0.0	0.1	0.7	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
6	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	0.2	0.3	0.0	0.0	0.0
7	0.0	0.0	0.0	0.4	0.1	0.0	0.4	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0
8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.7	0.0	0.1	0.1	0.0
9	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.7	0.0	0.0	0.3
10	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	0.0	0.5	0.0	0.0
11	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.4	0.6	0.0
12	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.3	0.7

Table 2. Transition probability between 12 regions in the vessel for enhanced mixing.

i \ j	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
1	0.3	0.4	0.1	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
2	0.1	0.4	0.3	0.0	0.1	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
3	0.0	0.0	0.6	0.0	0.0	0.4	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
4	0.5	0.0	0.0	0.4	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
5	0.1	0.2	0.0	0.1	0.4	0.1	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0
6	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.4	0.0	0.2	0.3	0.0	0.0	0.0
7	0.0	0.0	0.0	0.4	0.1	0.0	0.4	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0
8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.1	0.6	0.0	0.1	0.1	0.0
9	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.7	0.0	0.0	0.3
10	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	0.0	0.5	0.0	0.0
11	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.4	0.6	0.0
12	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.3	0.7

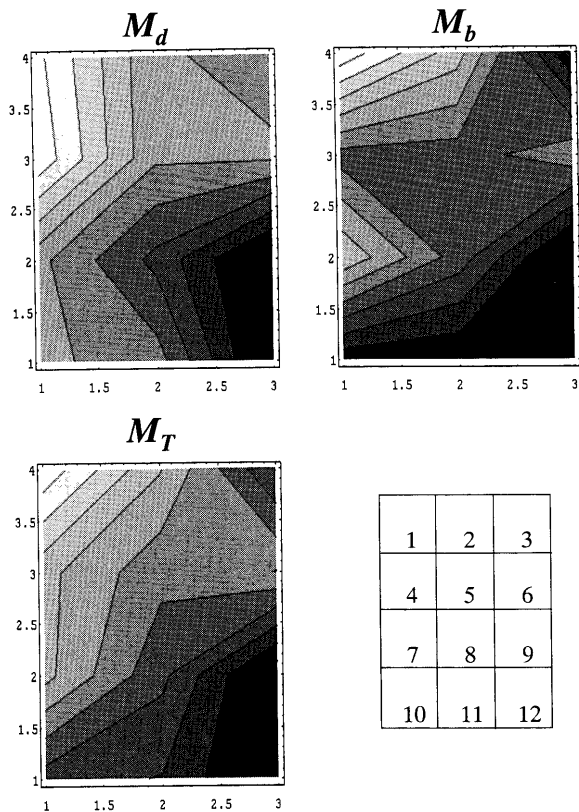


Fig. 3. Local mixing index distribution of  $M_d$ ,  $M_b$  and  $M_T$  for normal mixing.

局所的混合特性指標  $M_d$ ,  $M_b$ ,  $M_T$  の空間分布を式 (3), (4), (5) を用いて求め、それぞれの分布をグレー階調 (より白に近い方が高い混合指標を持つ) で Fig. 3 と Fig. 4 に示した。ただし、これらの結果は等高線を描く program の都合上、中心部ほど圧縮された形で表現されている。得られた局所的混合指数  $M_d$ ,  $M_b$ ,  $M_T$  の分布を比較検討することにより、均一混合時間の比較などからは困難な反応装置の各場所における混合特性を定量的に明確に把握することが可能となる。つまりどの領域が blender として良く働いているか、あるいはどの領域の distributor としての働きが弱いかなどの情報をこれらの分布から直ちに得ることができる。また式 (6) から求めた normal mixing と enhanced mixing の  $M_w$  はそれぞれ 0.394 と 0.447 となり、enhanced mixing の混合特性が高くなっている。

前述したように、従来、反応装置の混合状態の検討は主にトレーサー注入による過渡応答法を用いて行ってきた。式 (3) に示した局所混合指標において、領域  $j$  を固定すると、これは各領域において領域  $j$  からの流出のみに注目した場合の混合指標となり、トレーサー注入による過渡応答法での混合度の評価に適用できる。つまり領域  $j$  から所定の濃度  $C_j$  のトレーサーを注入し、所定の  $n\Delta t$  時間後の各領域  $i$  における濃度を  $C_i$  とすると各領域に存在しているトレーサーを見いだす確率は  $C_i/C_j (=p_{i,n})$  となる。このとき装置全体における混合指標  $M(n)$  を以下の式で定義する。

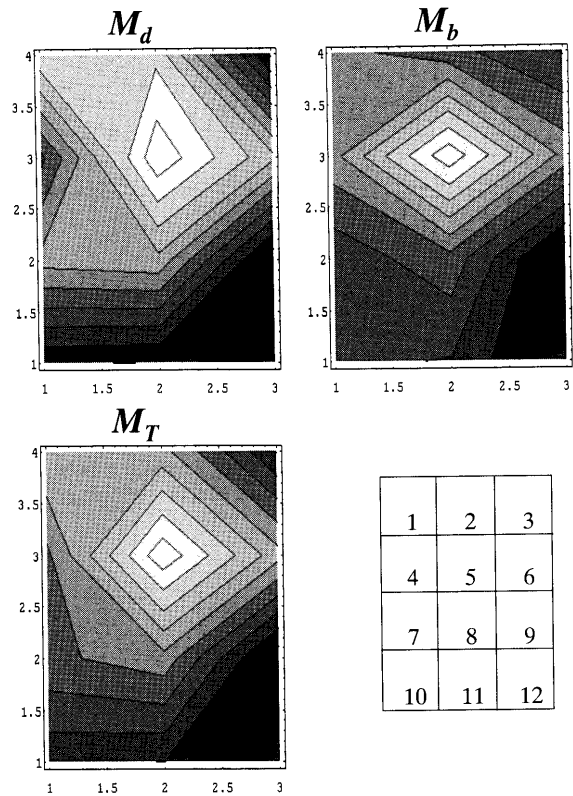


Fig. 4. Local mixing index distribution of  $M_d$ ,  $M_b$  and  $M_T$  for enhanced mixing.

$$M(n) = \frac{-\sum_i^n p_{i,n} \log p_{i,n}}{\log N} \dots\dots\dots (7)$$

今、領域間移動確率分布  $p_{ij}$  の行列を  $m[p_{ij}]$  とする。トレーサーを注入して  $n\Delta t$  時間後にトレーサーが領域  $i$  に含まれている確率を  $p_{i,n}$  とし、そのベクトルを  $P(p_{i,n})$  とすると、 $(n+1)\Delta t$  時間後のベクトル  $P(p_{i,n+1})$  は定常マルコフ過程を仮定して以下の式で示される。

$$P(p_{i,n+1}) = P(p_{i,n}) m[p_{ij}] \dots\dots\dots (8)$$

つまり、任意の領域に注入したトレーサーが  $n\Delta t$  時間後にどの領域にどの程度存在しているかは式 (8) から推算できる。また得られた  $p_{i,n}$  を (7) 式に代入して、 $n\Delta t$  時間後の装置全体の混合度を求めることが出来る。Normal mixing と enhanced mixing において領域 3 にトレーサーを注入した場合における混合度の時間変化を Fig. 5 に示した。同じく Fig. 6 には領域 5 にトレーサーを注入した場合の混合度の時間変化を示した。いずれの場合も enhanced mixing のほうが normal mixing より早く混合していく結果になっている。また領域 5 にトレーサーを注入した場合、領域 3 に注入した場合に比べて両者における混合度の時間変化の差が大きくなっている。このことは、過渡応答法による混合度の評価において、反応装置の混合状態を良く反映する場所にトレーサーを注入することが重要であることを示している。

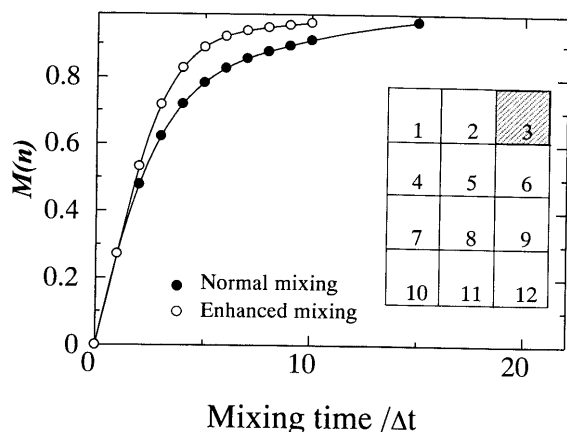


Fig. 5. Comparison of mixing rate for normal mixing and enhanced mixing when the tracer is injected into the region 3.

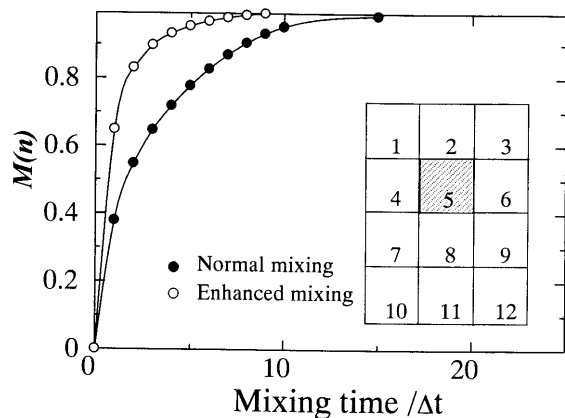


Fig. 6. Comparison of mixing rate for normal mixing and enhanced mixing when the tracer is injected into the region 5.

また(7)式における  $n\Delta t$  時間後の確率  $p_{i,n}$  にトレーサー濃度を掛ければ、 $n\Delta t$  時間後の各領域における濃度を推算することが出来る。Normal mixingにおいて領域3にトレーサー（正規化した濃度1.0）を注入した時の領域1, 3, 7, 9および12における濃度の時間変化をFig. 7に示した。完全混合したときの濃度は0.0833である。Fig. 7から各領域において完全混合に対応する濃度0.0833に濃度が漸近して様子が表現されている。詳しい説明は行わなかったが、実際に領域間移動確率を求めるのは、Fig. 7に見られるような実験で得られた任意の領域におけるトレーサー濃度の時間変化を再現出来るように  $p_{ij}$  を決定する事から得られる。

これまで示した結果から分かるように、従来測定されて来た種々のマクロ的混合特性は領域間移動確率から、簡単に求めることができる。

#### 4. 混合特性の効率化

混合特性を改善するには混合が遅い領域の混合速度を大

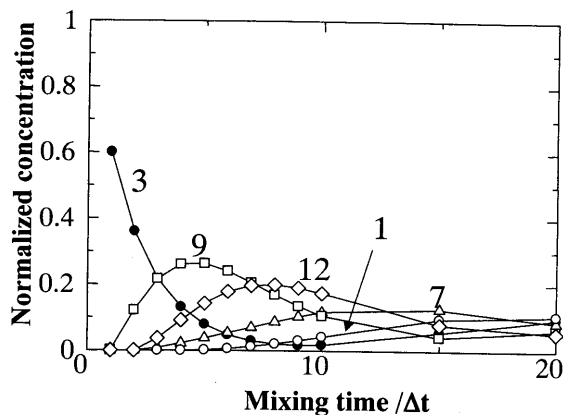


Fig. 7. Tracer response curves in the region 1, 3, 7, 9 and 12.

きくすることが重要となるが、均一混合時間などのマクロ的混合指標からは反応装置の局所的な混合特性は評価できないため、混合特性を向上させるための明確な対応が困難である。しかし領域間移動確率が分かれば、実際にどこを改善すればよいのか明確にでき、また改善効果などの評価も定量的に行うことが可能となる。

前述したように、反応効率の向上のため、攪拌エネルギーの供給速度密度  $\epsilon$  を増加させていくには限界がある。これまで攪拌エネルギーの投入は反応装置全体を対象としてきたが、混合の持つ blender と distributor の役割を考えた場合、必ずしも反応装置全域にわたり大きな攪拌エネルギーを投入する必要はない。Fig. 5とFig. 6に示したように、normal mixingの領域5における局所混合度の上昇により全体の混合効率が上昇したことから分かるように、局所的に混合度を上げるにより、反応装置の総括混合度を上げることが可能となる

つまり distributor の役割の大きい領域近傍にたとえば超音波<sup>6)</sup>やPlunging jet<sup>7)</sup>など利用して局所的に大きな攪拌エネルギーを投入してblenderの役割を高めた領域を作り出すことにより、全体として混合特性を大きく向上させることが可能になると思われる。そのためには反応装置の各領域でのそれぞれの混合特性を把握する必要があり、情報エントロピーにもとづく反応装置の局所的混合特性評価が非常に有力な手段となる。

#### 文 献

- 1) K.Nakanishi, T.Fuji and J.Szekely: *Iron Steelmaker*, (1975) No.3, 193.
- 2) K.Ogawa and S.Itoh: *J. Chem. Eng. Jpn.*, **8** (1975), 148.
- 3) K.Ogawa, S.Ito and Y.Matsumura: *J. Chem. Eng. Jpn.*, **13** (1980), 324.
- 4) K.Ogawa: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **7** (1981), 207.
- 5) Y.Inoue and H.Hirata: *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **29** (2003), 313.
- 6) M.Kuwabara: *CAMP-ISIJ*, **16** (2003), 961.
- 7) A.Hirayama and M.Iguchi: *Tetsu-to-Hagané*, **89** (2003), 407.