

混相流シミュレーション技術の開発 —気液、固気二相流を対象として—

住友化学株式会社

生産技術センター

島田 直樹

児林 智成

鈴田 哲也

Development of Simulation Method for Multiphase Flows : Application to Gas-Liquid and Gas-Solid Two Phase Flows

Sumitomo Chemical Co., Ltd.

Process & Production Technology Center

Naoki SHIMADA

Tomonari KOBAYASHI

Tetsuya SUZUTA

We have several processes consisting of mixture of gas, liquid and solid, known as multiphase flow processes, in chemical engineering. In this paper, the simulation method used to deal with such processes in our company has been introduced. Following are examples of some applications, (1) Simulation of liquid mixing in a bubble column, (2) DEM-CFD coupling simulation for fluidized bed with small particles, (3) Simulation of single bubble and droplet by using interface tracking type method.

はじめに

気体、液体、固体が混在して運動するプロセス（混相プロセス）は化学工業において多様な利用がされてきた。古くから知られている代表的な混相流装置に気泡塔と流動層がある。Fig. 1¹⁾にこれらの装置例を示す。

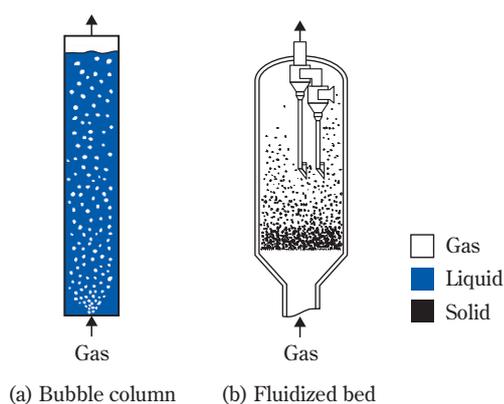


Fig. 1 Multiphase flow reactors¹⁾

混相流は広範囲なスケールにおよぶ様々な現象が内包されており、解決すべき工学的課題はまだ多く残されている。この分野をさらに発展させるため、様々な視点からのアプローチが活発におこなわれている。シミュレーション技術も例外ではない。捉えられたデー

タを良く理解、検証し、上手く活用することで、化学工学にとって強力な設計、合理化支援技術として期待できる。

研究を数値解法に応じて分類したものをFig. 2に示す。Tomiyama²⁾の分類に習い、混相流の数値解法を(1) 界面追跡型モデル、(2) 粒子追跡型モデル、(3) 平

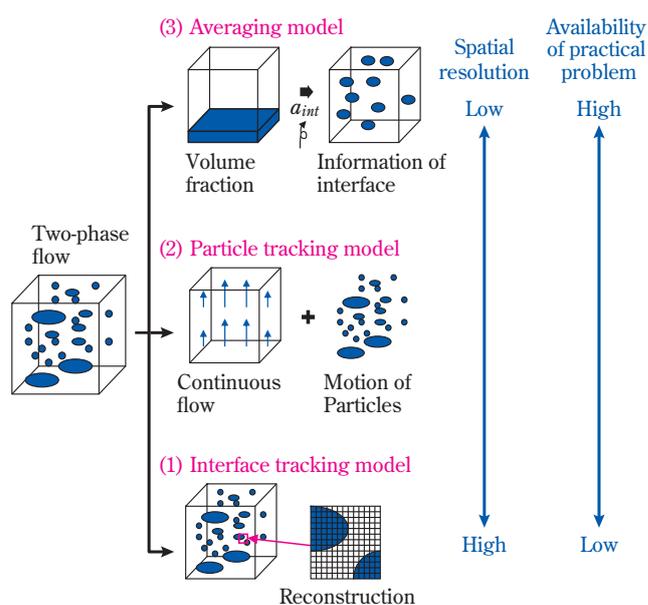


Fig. 2 Classification of computational multiphase fluid dynamics

均型モデルに分けた。(1)は相を分ける界面の形状が捕捉できる方法、(2)は形状一定のまま、分散した気泡、液滴、粒子などを個々に追跡する手法、(3)は相を平均化した値(例えば体積率、数密度)を輸送式から計算する方法である。(1)から(3)へと移るにしたがって流れは粗視化されるが、代わりに実問題への適用性が上がる。その他にも格子ボルツマン法、粒子法、埋め込み境界法など数多くの手法があるが、紙面の都合上、割愛する。

本稿では著者らが取り組んでいる混相流シミュレーション技術を紹介する。事例として特に、これまで注力してきた気泡塔内液混合性のシミュレーション、微粒子流動層のDEM-CFDカップリングシミュレーション(粒子追跡型モデルの一つである離散要素法(DEM: Discrete-Element Method)と流体解析法(CFD: Computational Fluid Dynamics)を組み合わせた方法)、界面追跡型モデルを用いたシミュレーションを紹介する。

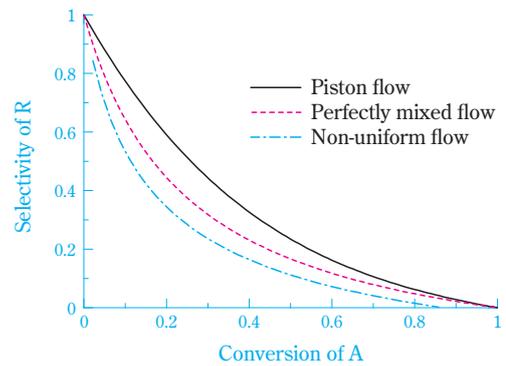
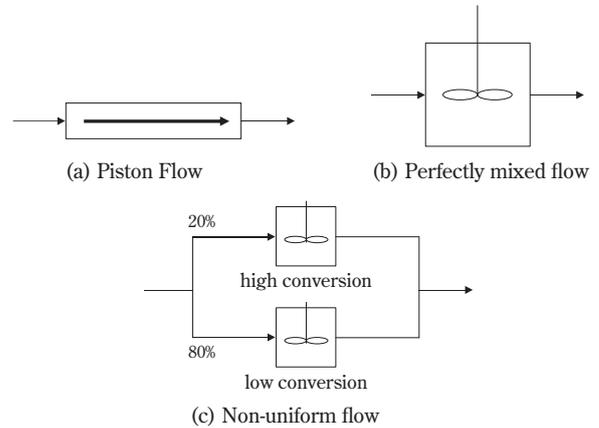
混相流シミュレーション

1. 気泡塔内液混合性のシミュレーション³⁾

大規模な工業問題が取り扱いやすい平均型モデル等は、企業等での需要が依然高い傾向にある。本モデルは、統計、時間、空間のいずれかで平均化した相体積率または数密度を基礎式によって求める。したがって、平均化によって失われた界面情報(気泡にかかる力など)を構成式および相関式の形で補わなければならない。

物質の流れおよび混合性は、反応に影響を及ぼす可能性がある。一例として、三種の物質による逐次反応($A \rightarrow R \rightarrow S$)を考える。Fig. 3に反応計算例を示す。押し出し流れ(図(a)、逆混合が全く無い流れ)、完全混

合流れ(図(b))、非均一流れ(図(c))を考え、それぞれにおいて、物質Aの反応率とRの選択率との関係を図(d)で比較している。本計算において非均一流れは、流れを20%と80%に分け、前者の領域がもう一方よりも多く反応していると想定している。この比較から、同じ反応率でも押し出し流れ、完全混合流れ、非均一流れの順にRの選択率が低下していることが分かる。



(d) Comparison of yield

Fig. 3 Effect of liquid mixing on a reaction³⁾

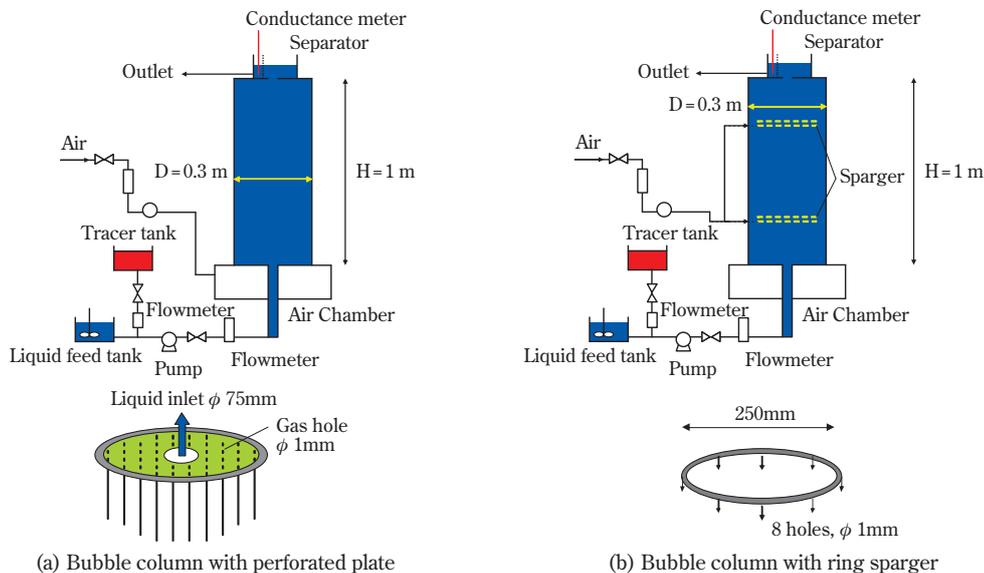


Fig. 4 Schematic of apparatus³⁾

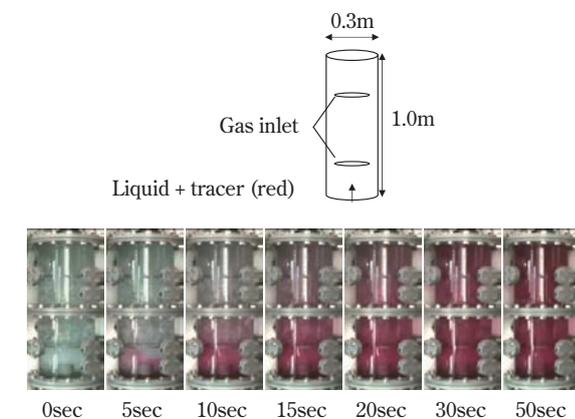
平均型モデルを使えば気泡塔全体で液体がどのように混合しているかを効率的につかむことが可能である。そこで、まずモデルがどの程度まで液体の混合性を予測できているかを検証した。

液体の混合性はFig. 4に示す二種類の装置を用いて検証した。一つは多孔板、もう一つはリングスパージャーを用いて、液体中に気泡を供給している。流体には水道水と空気を使用した。混合性の測定には、トレーサー法を用いた。気液の流れが準定常になったのち、赤い着色剤と食塩を液入口からステップ状に投入し、流出部でその時間変化を調べた。Fig. 5に可視化結果と出口食塩濃度Cの時間変化測定の例を示す。この測定値から、次式を用いて混合係数 E_L を求めた。

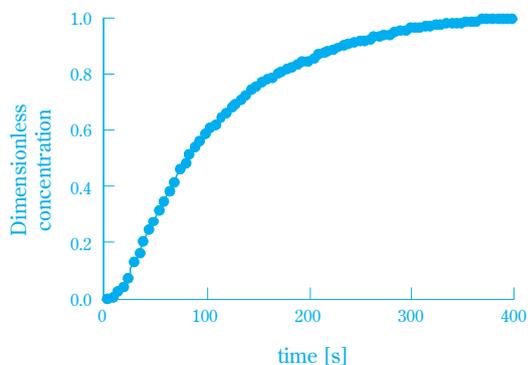
$$\frac{\partial C}{\partial t} + U_L \frac{\partial C}{\partial z} = E_L \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \quad (1)$$

ここで t は時間、 U_L は液体の空塔速度、 z は高さ方向距離である。

測定結果の信頼性を確認するため、 E_L を文献値と比較した。その結果をFig. 6に示す。本実験では、20%程度のばらつき誤差が確認されている。これは他者の文献で提示された差の範囲であることが分かる。



(a) Mixing process of tracers (red-colored)



(b) Transient pattern of salinity at the outlet of the column (Concentration is normalized using steady-state value)

Fig. 5 Example of experiments using tracer method³⁾

この測定結果を、NP2モデル ((N+2)-field Model) で計算した結果と比較した。紙面の都合上、NP2モデルの詳細については、参考文献を参照されたい。結果をFig. 7に示す。図 (a) はガス空塔速度が E_L に及ぼす影響、図 (b) は次式で示すガス供給割合 γ が E_L に及ぼす影響を比較したものである。

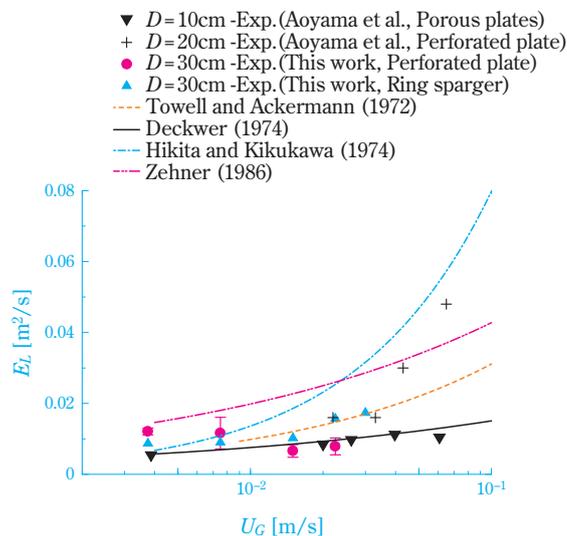
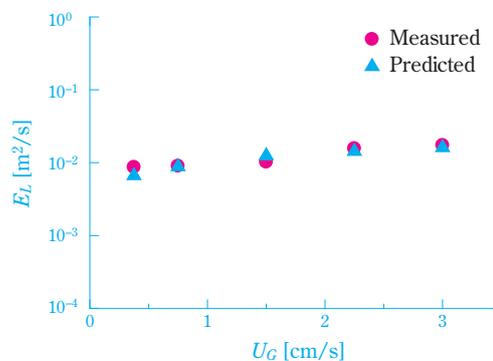
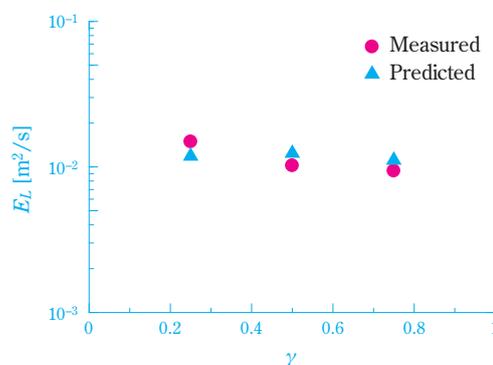


Fig. 6 Comparison of E_L ³⁾



(a) Effect of U_G



(b) Effect of ratio of upper to total gas flow rate γ

Fig. 7 Comparison between simulation and measurement³⁾

$$\gamma = \frac{Q_{\text{upper}}}{Q_{\text{upper}} + Q_{\text{lower}}} \quad (2)$$

ここで Q_{upper} 、 Q_{lower} はそれぞれ上部および下部に設置したスパージャーの流量を意味する。比較結果から分かるように、計算は実験値と良く一致している。

2. 微粒子流動層のDEM-CFDカップリングシミュレーション⁴⁾

次に、流動層に対し、DEM-CFDカップリングシミュレーションの適用に取り組んだ例を紹介する。DEM-CFDカップリングシミュレーションとは、離散要素法 (DEM) と流体解析法 (CFD) を連成させた計算手法である。DEMとは、一個一個の粒子の運動を追跡する手法である。運動はニュートンの運動方程式 ($\mathbf{F} = m\mathbf{a}$ 、 \mathbf{F} は力ベクトル、 m は質量、 \mathbf{a} は加速度ベクトル) に従うものとする。このとき、正確な粒子群挙動が得られるように、各粒子に作用する力を計算しなくてはならない。著者らが使用しているDEMでは、 i 番目の粒子にかかる力 \mathbf{F}_i を次式で計算している。

$$\mathbf{F}_i = \mathbf{F}_G + \mathbf{F}_C + \mathbf{F}_D + \mathbf{F}_{AD} \quad (3)$$

ここで \mathbf{F}_G は重力、 \mathbf{F}_C は粒子間の接触力、 \mathbf{F}_D は流体から受ける力、 \mathbf{F}_{AD} は付着力である。 \mathbf{F}_C は一般的にバネダッシュポットで構成したVoigtモデルが良く使用される。多くの場合、接触距離の計算が単純になるように、粒子は球形で変形しないと仮定する。バネの強さを示す定数 k は計算に重要なパラメータである。線形バネモデルを採用した場合、 \mathbf{F}_C は次式で与えられる。

$$\mathbf{F}_c = -kx - \eta\dot{x} \quad (4)$$

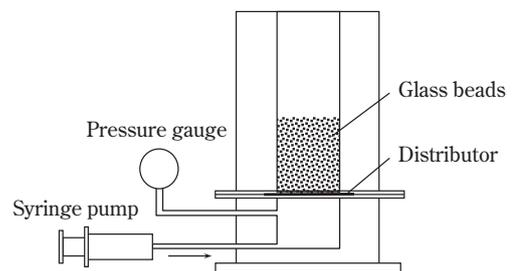
ここで x は粒子接触距離、 η は摩擦係数である。 \mathbf{F}_D は流体の速度を用いて計算される。この速度はCFDから求める。 \mathbf{F}_{AD} は粒子が接触状態から引き離す時に作用する様々な力が考えられる。ここでは、van der Waals力を想定している。

流動層のように、底部から吹き上がるガスによって粒子が舞い上がる計算を実施するためには、式 (3) を介した粒子の接触状態の評価が極めて重要である。すなわち、粒子同士が接触を保てずにガスが粒子間を流れ粒子を複雑に移動させるか、それとも粒子が接触状態を保ったままではあるかは、粒子間の力のバランスの考察が大きく影響する。例えば、上記パラメータのうち、反発を表す k とこれを阻害しようとする \mathbf{F}_{AD} が重要となる。

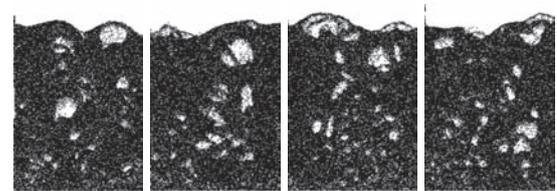
これに対して、これまでの多くの研究⁴⁾では、 k が特段に重要とはみなされてこなかった。これは \mathbf{F}_{AD} がほと

んど効かない粒子 (例えば直径が1mm以上の大きな粒子) の場合、 k の値が粒子の流動性にほとんど影響しないと認識されていたためである。Fig. 8 (a) に対象とした装置の概略図を、Fig. 8 (b) に $\mathbf{F}_{AD} = 0$ とした場合の計算結果の一例を示す。黒い点群は粒子を、白い部分はガス相をあらわしている。Fig. 8 (b) から、 k を1000倍に変更しても、粒子の挙動はほとんど影響を受けていないことが分かる。 k が大きくなると、反発力が増加するため、1回に生じる衝突の時間が短くなる。そのため計算では、 k が大きくなるほど計算の時間ステップを短くし、より長い計算をしなくてはならない。この事情から、ほとんどの計算で k を可能な限り小さくして計算しているようである。

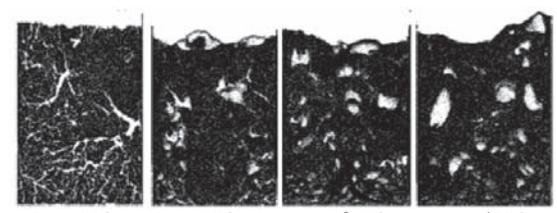
ところが、 \mathbf{F}_{AD} が作用する粒子 (例えば工業触媒のようにGeldartがグループAに分類している粒子) に適用した場合、状況が変わる。Fig. 8 (c) に \mathbf{F}_{AD} に値を入れた場合の計算例を示す。 k が小さくなるほど \mathbf{F}_{AD} の影響が増し、粒子の流動性が低下していることが分かる。Fig. 9に直径60 μm のガラスビーズ粒子に対し付着力を測定した結果を示す。この直径付近の粒子は、触媒や製品として最も多く見られる工業的に重要なものである。



(a) Schematic of apparatus



(b) without adhesion force



(c) with adhesion force

Fig. 8 Effect of k on fluidized behavior⁴⁾

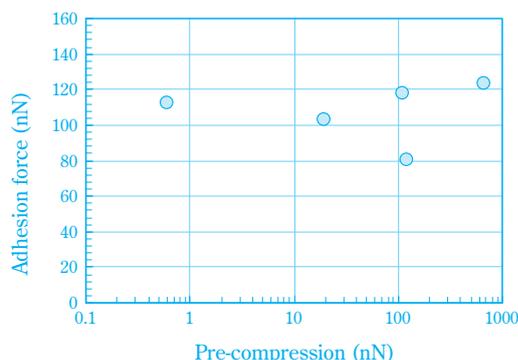


Fig. 9 Measurement of adhesion force⁴⁾

F_{AD} は約100nNであり、これは自重の約40倍に相当する大きな値であり、0にはできない。これらの結果から、(1)式(3)においては F_{AD} を無視できないこと、(2) F_{AD} とのバランスを考慮した k を与えなければ粒子の流動化挙動が予測できないことが分かる。

そこで、著者らは、粒子が壁や他の粒子と接触する間の動的な解析をおこなって k と F_{AD} との関係性を見出し、これをDEM-CFDカップリングシミュレーションに組み込むことを提案している⁴⁾。具体的にはFig. 10および11に示すように、粒子が接触時に反発して離脱するか(Rebound状態)、 F_{AD} によって接触を維持するか(Sticking状態)の境目から k と F_{AD} との関係性を調

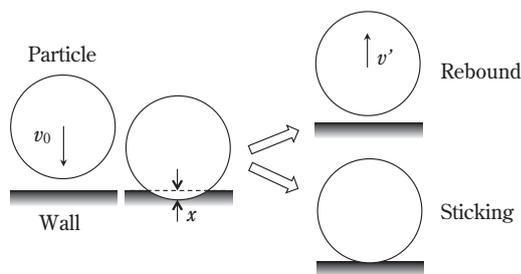


Fig. 10 Stick/rebound behavior after particle-wall collision⁴⁾

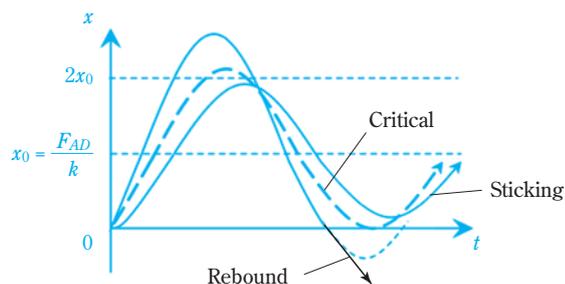


Fig. 11 Particle-wall overlaps in the duration of collision⁴⁾

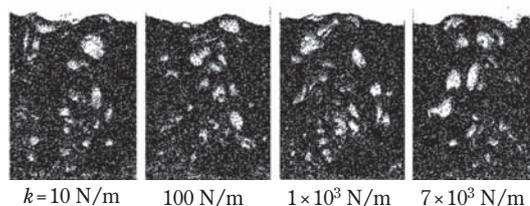


Fig. 12 Simulation with dynamic adhesion force⁴⁾

べる。これを動的付着力モデルと呼んでいる。詳細なモデルの式は拙著⁴⁾を参照されたい。Fig. 12に本モデルを適用した場合の計算結果を示す。本図から、付着力を考慮しなくてはならない小さな粒子(触媒、粉)においても、 k に依存しないで気泡流動化が計算できていることが分かる。なお、 $k = 10$ N/mを使用した計算結果は、 $k = 7000$ N/mの場合よりも時間ステップを大きく取れるため、約7倍の計算速度向上を確認している。

3. 界面追跡型モデルを用いたシミュレーション⁵⁾

最後に界面追跡型モデルの事例を紹介する。これまで本法は計算負荷や計算時間の制約が課題となっていたが、近年の計算機能力の飛躍的發展を受け、現象が詳細に把握できる利点を発揮させつつある。界面追跡型モデルには、Front Tracking法、Level Set法、Boundary Fitting Coordinate法など様々な手法⁶⁾が提案されているが、著者らは以下の体積追跡型の方法の適用を試みている。

二相とも非圧縮性流体であり、かつ相間に物質移動はないと仮定した場合、相の指標 α (例えば、空間平均体積率、 $0 \leq \alpha \leq 1$)は次式で輸送される。

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} + \mathbf{V} \cdot \nabla \alpha = 0 \quad (5)$$

ここで t は時間、 \mathbf{V} は流体速度である。この式の左辺第二項は \mathbf{V} による α の対流項を表しているが、以下の条件を満足する必要がある。

- (1) 数値的な拡散がないこと。 α の空間微分 $\nabla \alpha$ は相界面を意味する。多くの場合、界面はほとんど厚さが無いため、 α が時間と共に拡散してはならない。
- (2) 数値的に α の分布がオーバーシュート、アンダーシュートを起こさないこと。すなわち、体積率の意味を持つ α は範囲 $0 \leq \alpha \leq 1$ を外れてはならない。
- (3) 体積保存を満足すること。すなわち、空間 θ において α の出入りが無い場合、 $\int_{\theta} \alpha d\theta$ は一定とならなければならない。
- (4) 多次元においても、形状を正確に輸送すること。

これらを満足する式(5)の方法として、Xiaoら⁷⁾によるTHINC (tangent of hyperbola for interface capturing) 法に着目した。本手法は上記(1)~(3)をほぼ満

たすことが確認できた。ただし、上記(4)を満たさない問題があった。そこで、界面の向きに応じてTHINCのパラメータを最適化する機能を加えた、新たな方法を開発した⁵⁾。本手法をTHAINC (tangent of hyperbola for adaptive interface capturing) 法と呼んでいる。

Fig. 13にTHAINC法を用いた計算の一例を示す。単一気泡が上昇する過程で、気泡から物質Oが液体へと溶解している。さらに、溶解したOが液体中の物質Aと反応し生成物Rを、また生成物RがOと反応し副生物Sを生成している。図中の色は各物質の濃度をあらわしている。気泡が上昇することで液体の上昇流を作るため、各濃度に空間分布が生じている様子が分かる。

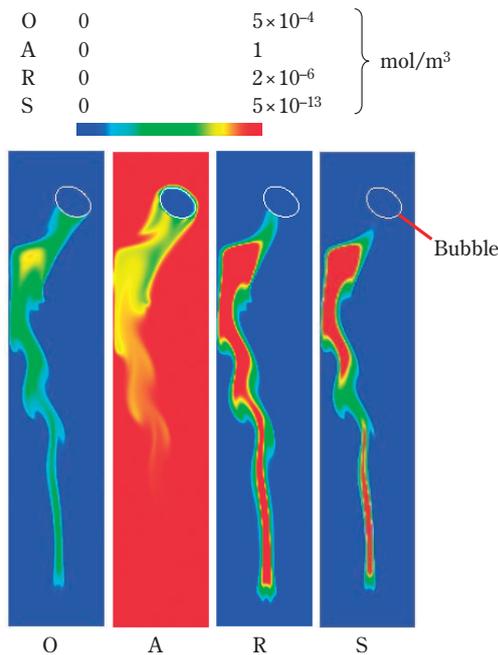


Fig. 13 Simulation of dissolution and reaction process with a single bubble⁵⁾

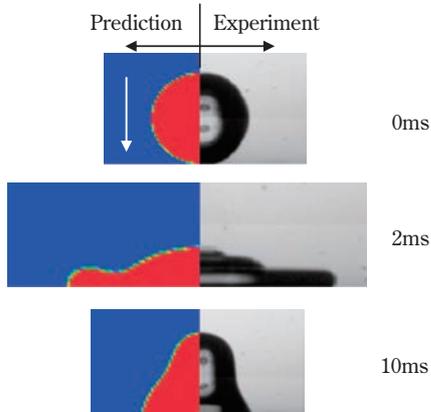


Fig. 14 Simulation of droplet deposition (Experiment by literature 8)⁵⁾

本手法は、液滴など他の系にも展開できる。Fig. 14は液滴の計算例である。比較のため、実験⁸⁾もあわせて示している。自由落下した液滴が板に衝突し、一旦扁平になるが、表面張力の影響により再度高くなっている様子が計算できていることが分かる。

おわりに

本稿では化学工学で最も良く取り上げられている二つの反応装置として気泡塔、流動層を対象としたシミュレーションの例を紹介した。今後も社内における化学プロセスに対し設計、合理化の有効なツールとして開発、適用を図りたい。さらに、混相流は情報電子、新素材、ライフサイエンス分野のプロセスでも必ず見られる現象である。新たな潮流としてこれらの装置設計に対しシミュレーションの適用展開を図りたい。

引用文献

- 1) “化学工学便覧”, 改訂六版, 化学工学会編, 丸善(株) (1999).
- 2) A. Tomiyama, *Proceedings of 3rd International Conference on Multiphase Flow* (CD-ROM) (1998).
- 3) N. Shimada, R. Saiki, A. Dhar, K. Mizuta and A. Tomiyama, *Proceedings of 1st International Symposium on Multiscale Multiphase Process Engineering (MMPE)* (USB), L-1 (2011).
- 4) T. Kobayashi, N. Shimada and T. Tanaka, *Proceedings of ASME-JSME-KSME Joint Fluids Engineering Conference 2011*, AJK2011-12011 (2011).
- 5) A. Dhar and N. Shimada, 化学工学会第77年会予稿集 (CD-ROM), N106 (2012).
- 6) “数値流体力学ハンドブック”, 小林 敏雄編, 丸善(株) (2003).
- 7) F. Xiao, Y. Honma and T. Kono., *Int. J. Numer. Meth. Fluids*, **48**, 1025 (2005).
- 8) K. Yokoi, D. Vadillo, J. Hinch and I. Hutchings, *Physics of Fluids*, **21**, 072102 (2009).



島田 直樹
Naoki SHIMADA

住友化学株式会社
生産技術センター
主任研究員
博士（工学）



鈴木 哲也
Tetsuya SUZUTA

住友化学株式会社
生産技術センター
主席研究員



児林 智成
Tomonari KOBAYASHI

住友化学株式会社
生産技術センター
主任研究員