

①

テーパー付き流動層の流動化特性ならびに
二成分混合粒子の分離特性に関する研究

平成三年三月

豊原秀史

目 次

第 1 章 結 論	1
1. 1 緒 言	2
1. 2 本研究の工学的意義と目的	3
1. 3 既往の研究とその概略	6
1.3.1 テーパー付き流動層	6
1.3.2 多成分混合粒子流動層内の偏析	9
1.3.2 流動層による粒子連続分離	11
1. 4 本論文の概略	12
使用記号	16
参考文献	17
第 2 章 テーパー付き流動層の流動化特性	21
2. 1 緒 言	22
2. 2 実験装置および方法	22
2. 3 基礎式	26
2. 4 実験結果および考察	28
2.4.1 流動化状態と圧力損失特性	28
2.4.2 流動化開始速度: u_B	34
2.4.3 部分流動層での圧力損失	35
2. 5 結 言	44
使用記号	45
参考文献	47
第 3 章 テーパー付き流動層周辺部での粒子循環特性	48
3. 1 緒 言	49
3. 2 実験装置および方法	50
3.2.1 実験装置	50
3.2.2 実験方法	53
3. 3 実験結果および考察	53
3.3.1 粒子循環挙動	53
3.3.2 粒子循環速度	56
3.3.3 粒子循環開始流速: u_c	60
3.3.4 粒子循環速度の相関	62
3. 4 結 言	65
使用記号	66
参考文献	68
第 4 章 二成分混合粒子からなる テーパー付き流動層の流動化特性	70
4. 1 緒 言	71
4. 2 実験装置および方法	71
4.2.1 実験装置	71

4.2.2	実験方法	74
4.3	流動化特性	74
4.3.1	流速増加時の粒子流動化状態	77
4.3.2	流速減少時の粒子流動化状態	79
4.4	流動化特性についての考察	80
4.4.1	圧力損失	80
4.4.2	流動化開始速度: u_{br}	83
4.5	柱状偏析	86
4.6	結言	89
	使用記号	90
	参考文献	92
第5章	テーパー付き流動層における二成分混合粒子の柱状偏析	93
5.1	緒言	94
5.2	実験装置および方法	94
5.2.1	実験装置	94
5.2.2	実験方法	97
5.3	実験結果および考察	97
5.3.1	粒子濃度分布の流速による影響	97
5.3.2	柱状偏析発生流速領域	102
5.3.3	偏析度	105
5.4	結言	110
	使用記号	111
	参考文献	112
第6章	テーパー付き流動層による二成分混合粒子の連続分離	113
6.1	緒言	114
6.2	実験装置および方法	114
6.2.1	実験装置	114
6.2.2	実験方法	116
6.3	実験結果および考察	119
6.3.1	流動化状態と分離操作領域	119
6.3.2	分離操作におよぼす粒子排出速度の影響	121
6.3.3	粒子分離特性におよぼす流速の影響	124
6.4	結言	128
	使用記号	130
	参考文献	131
第7章	総括	132
謝辞		136

第 1 章

緒 論

1. 1 緒 言

気-固接触装置としての流動層は粒子混合の良好さに特徴があり、これにより層内温度の均一性とその制御性の良さ、粉体の連続的なハンドリングの容易さ、そしてガスの処理能力の高さなどの長所を有する。そのため FCC (Fluidized-bed Catalytic Cracking) に代表される触媒反応操作を始めとして乾燥操作や燃焼操作、また最近では CVD (Chemical Vapor Deposition) や鉄鉱石の直接還元製鉄などの幅の広い分野に応用されている。しかし流動層内の粒子挙動やガス挙動はきわめて複雑であり、粒子混合が一般には良好であるけれども、ある条件では逆に偏析が起こるなどの問題を生ずる。そのためプラントの設計に際しては現在でも経験と勘に頼っている面が多く、ベンチスケール・パイロットプラント・実プラントというように装置をスケールアップをしながら操作上の多くの問題点を解決しているのが現状である。

本研究ではこの問題点の一つである流動層内での粒子の偏析現象を取り上げた。偏析現象とは粒径や密度の異なる多成分からなる混合粒子が層内での流動化により分離し、良好な粒子の混合状態が維持されなくなる現象で、これにより分散板の閉塞と流動化状態の悪化が生じるため一般的には好ましくない現象である。しかし最近では直接還元製鉄などのように良好な混合状態を維持したまま偏析粒子の選択的な排出を必要とする操作が重要になってきている^{4,13)}。本研究はこの様な多成分混合粒子の流動化と分離操作を効果的に行うためにテーパー付き流動層を用いることを提案し、これによる偏析現象と偏析粒子の分離排出性能を検討したものである。

本章では、本研究の工学的意義と目的とを明らかにし、既往の研究を概観してその位置づけを行う。最後に本論文の構成とその概略を示す。

1. 2 本研究の工学的意義と目的

近年、ボイラーや石炭のガス化装置などに流動層を使用することが着目されている。流動層ボイラーに代表される燃焼装置においては、低質炭を含め広範囲の燃料（生活廃棄物・プラスチック・スラッジなど）の安定的な燃焼が可能で、炉内脱硫ができると同時に従来型の炉より低温で運転することができるため NO_x や SO_x などの環境汚染物の排出量が少ない等の長所を有している。そのため石油の代替燃料としての石炭の効率良い燃焼法として流動層がプロセス蒸気や自家発電の用途に使用されており、現在では事業用の大型ボイラーも計画されている^{29, 45)}。また石炭ガス化においても流動層は比較的低温でしかも均一な温度でガス化することが可能なため、酸化剤の使用量を抑えることができしかも高い発熱量の生成ガスを得られる、熱損失が小さく高い熱効率で運転できる、炉材料の選択と運転制御が容易である等の長所を有しており、現在では 40t/d のパイロットプラントが北海道において稼働中で実証プラントも設計段階に入っている。

上記に代表されるような流動層を用いた工業操作においては特に連続的な粒子のハンドリングの維持が重要な課題となる。これは層中の流動化粒子（触媒や砂）の連続的な循環や供給・排出操作を行うもので、このためには層を常に良好な流動化状態に保つ必要がある。しかしこの様な状態を維持することは比較的難しく、層内粒子

挙動に関するものだけに限定しても、大きな気泡が発生することによる層全体の持ち上がりと圧力損失の大幅な変動が見られるスラッシング現象 (Slugging)、ガスが層の一部を選択的に通過するチャネリング現象 (Channelling)、粒径や密度の異なる粒子が分散板上に堆積する偏析現象 (Segregation) などのような良好な流動化を妨げる諸現象が生じる。しかもこれらの現象は操作条件等の多くの要因が複雑に関与するため、この解決には多大の労力と経験とが必要となっている。

本論文では上述したような粒子挙動のうちの『偏析現象』を取り上げ、その発生要因の一つである多成分混合粒子の流動化と分離とを研究対象とするものである。偏析は粒径や密度がほぼ均質な流動化媒体中に大粒子や高密度粒子いわゆる沈降性粒子 (Jetsam particle) が発生あるいは混入した場合に生じるもので、これらが分離し分散板近傍に停滞するとホットスポットや粒子凝集の原因となる。そのため流動化の阻害になると同時に反応効率や伝熱等の移動特性の著しい低下を引き起こす原因にもなる。実プラントで沈降性粒子が発生する例としては、流動層ボイラーやガス化装置内に発生したホットスポットにより軟化または熔融した灰が互いに付着することによって生じた凝集粒子、スラッジやパルプ残さなどの高含水率廃棄物の焼却や乾燥の際に水分や粘着分によって生じる流動化粒子の凝集、プロピレンの気相反応での粘着成分による触媒粒子の凝集^{2,3)}、ゴミ焼却炉での廃棄物中の金属・ガレキ・ガラス等の不燃物の存在などが知られている。これらが分散板上に堆積するためにプラントの定常操作の大きな障害となっている。しかし偏析の原因となる凝集粒子の発生には灰組成や粘着分組成およびその濃度、水分濃度、

粒子径、層内温度、層みかけ粘度、ガス分散器の構造などが複雑に関わっているため凝集粒子の発生機構は現時点では十分解明されておらず、従ってその発生を予測することも不可能である。そのため凝集性を有する粒子の良好な流動化と偏析防止には、層圧力損失の変動や層内温度の変動データに基づく経験的な運転や凝集物の定期的な排出操作に頼っているのであるが、操作条件の設定には多大な労力が必要とされ、また凝集物の排出操作においては流動化粒子も同時に排出されるうえ層の連続的な運転も中断される欠点がある。

一方、近年直接還元製鉄などに代表されるように酸化鉄を良好な流動化状態に維持したまま還元し、層内に発生した還元鉄を偏析させ、これを選択的に排出させる操作が試みられている¹³⁾。このような操作では粒子の良好な流動化を維持させながら、他方では偏析を促進させるという相反する操作を維持させることが重要となる。

そこで多成分混合粒子の流動化に従来から研究されている流動層内での偏析防止とは逆に層内での偏析を促進させ、これを層から連続的に分離することにより良好な流動化を維持させることに着目した。そのため従来から使用されている断面積一定の矩形もしくは円筒型流動層の代わりにこれらにテーパーを付け、断面積が層高と共に増加する楔型もしくは円錐型流動層を使用することを試みた。これは層本体にテーパーを付けることにより層内高さ方向に流速分布が生じ、層入口部では層出口部より速い流速を維持することが可能となるため、この層内の流速分布が風力分級の様に偏析を促進させ、層下部に沈降性粒子を分離させると考えられる。これを選択的に分離・排出することにより多成分混合粒子の流動化は容易になると予測される。

しかし、テーパー付き流動層の流動化特性と粒子挙動は次節でも述べるように十分に明らかにされているとは言い難い。特に多成分混合粒子を流動化させたときの挙動は未解明のまま、その特性を明らかにすることが必要である。

そこで、本研究では

- 1) テーパー付き流動層の流動化特性を明らかにするため、一成分粒子を流動化させた時の挙動を明らかにする。
- 2) 偏析傾向を有する粒子の代表として二成分混合粒子をテーパー付き流動層で流動化させ、この時の流動化挙動と偏析挙動を明らかにする。
- 3) テーパー付き流動層内での偏析現象を利用して沈降性粒子の選択的分離を行い、その性能評価を行う。

以上の3項目を主な目的として実験を行った。

本論文は、テーパー付き流動層を用いることによって偏析傾向を有する多成分混合粒子の流動化を明らかにするものであり、この種の装置の設計ならびに運転の指針を与えるものである。

1. 3 既往の研究とその概略

ここではテーパー付き流動層、多成分混合粒子流動層内の偏析、流動層による粒子連続分離の三項目に分け、それぞれについて既往の研究の概要を紹介し、本研究において検討すべき問題点を明らかにする。また流動層は液系と気系とではその流動化挙動は大きく異なるため、特に断わりがない限り対象を気系流動層に限定する。

1. 3. 1 テーパー付き流動層

テーパー付き流動層に関する研究は 竹田⁴⁴⁾(1957) によって行わ

れたのが最初で、層圧力損失変動をテーパーを付けることにより抑制できることを指摘し、最良のテーパー角として 47° を提出した。また気泡の細分化やスラッキング傾向の除去など粒子混合性の良さを報告しているが、これらについての具体的な結果は示していない。Levey ら²⁵⁾(1960) は酸化ウランから弗化ウランへの転換反応に使用し層膨張の抑制効果が大きいことを指摘した。Sutherland⁴²⁾(1961) はトレーサー粒子を用いた混合実験を行い、軸方向の粒子混合が抑制されることを報告した。Gorshtein ら¹⁹⁾(1964), Nikolaev ら³²⁾(1964), Mukhlenov ら²⁸⁾(1965), Tsvik ら⁴⁷⁾(1967), Wang ら⁴⁸⁾(1969), Golubkovich¹⁸⁾(1976) などのソビエトの研究者らは噴流層の一形態と考え、層高やテーパー角などの装置形状を無次元化する事により流動化(噴流化)開始速度や層圧力損失などの推算式を提出したが、各研究者ごとの推算値のバラつきは大きく、その妥当性には疑問が多い。また研究対象とした粒子は穀物や飼料などの粒子径が 3mm 以上の Geldart¹⁵⁾ の分類で言う D 粒子であるため、通常流動化に使用される A 粒子や B 粒子群とはその挙動に大きな相違がでると思われる。Ridgway³⁴⁾(1965) はガス上昇速度や流体抗力が一定となるテーパー付き流動層の設計指針を示した。白井ら⁴¹⁾(1966) は鋸屑の炭化に攪拌装置を持つ円錐型の層を使用し、チャネリングや粒子の飛び出しが抑制されることを示した。Koloini ら²⁴⁾(1973) は層断面積一定の場合の固定層の圧力損失の推算式である Ergun の式¹⁴⁾を拡張し、液系のテーパー付き流動層の固定層での圧力損失の推算を行った。また層膨張についても検討を行った。Scott ら³⁹⁾(1976) は同じく液系のバイオリアクターとしての実験を行い、層膨張が少なく安定な操作ができることを指摘し

た。Kastanek ら²⁰⁾(1978) は凝集性を有する粒径 $37\mu\text{m}$ の微粉の流動化を行い、このような粒子の流動化に効果的であることを示した。西³³⁾(1979) も同様に Ergun の式¹⁴⁾を拡張して層圧力損失について考察し、流動化状態での圧力損失との釣合より最小流動化開始速度の推算を行ったが、ここでの速度は粒子重力と流体抗力とが釣り合う条件には達していないので流動化開始速度とは考えにくい。Biswal ら¹⁾(1982) は流動化後の層高変動について検討し無次元化した式で定量化をした。Kmiec²¹⁾(1983) は幅広い装置形状と粒子とで実験を行い、Ergun の式¹⁴⁾を展開することによって求めた最小流動化開始速度と実測値との比較を行い良く一致することを報告している。また Markowski ら²⁶⁾(1983) は入口径 $2\sim 6\text{cm}$ の小型層と入口径 20cm ならびに 30cm の大型層との比較を行い、スケールアップの指針を得ている。安定操作が可能な流速域についても検討した。上述の2つの研究はガス入口部に分散板を持たず、流体はコア部を希薄相で通過するという噴流層に近い挙動を示しているので、流動層との挙動とは若干異なると考えられる。Maruyama ら²⁷⁾(1984) は液系の楔型層(二次元テーパ付き流動層)を用いて流動化実験を行い層膨張ならびに層圧力損失と流動化流速との相関を行った。また二成分混合粒子の流動化も行い、層内空間率分布より軸方向の偏析の存在を報告した。しかし液系流動層では粒子-流体間の密度差が小さいためその偏析挙動は気系流動層とは異なると考えられる。Biswal ら^{2,3)}(1984,1985) は固定層の圧力損失の推算と最小流動化速度の推算を行ったが研究自体は西³³⁾による研究を超えるものではない。Shi ら⁴⁰⁾(1984) も液系の楔型流動層で実験を行い、Ergun の式¹⁴⁾を展開し層重力と粒子-流体間の抗力との釣合より最小流動

化速度と最大圧損の推算を行い、実験結果と良く一致することを報告した。Yang ら⁵⁰⁾(1986)は内径 300cm、入口径 25cm および 41cm の大型の層を用いた場合での気泡挙動や粒子挙動などを検討し、さらに二成分混合粒子の連続分離実験を行った。

テーパー付き流動層はその層形状から噴流層と混同され易い。しかし噴流層においてはガス入口部に分散板はなく流体はコア部を希薄相で通過する。一方、流動層では分散板があるためコア部は気泡流動化状態になる。そのため流動化挙動は大きく異なると考えられるが、粒子挙動までに言及した論文は見あたらない。そこで本研究ではこの点を明らかにすることを主眼に置き、さらに流動化速度や圧力損失についても検討を加えることにする。

1. 3. 2 多成分混合粒子流動層内の偏析

流動層内の偏析現象については多くの論文が発表されており、また総説^{30, 38)}としてもまとめられているので、ここでは本研究を行うのに参考にした層内の粒子分離と流動化開始速度に関連するものを主にして概説する。

1) 層内の粒子分離 Wen ら⁴⁹⁾(1966)は二成分混合粒子では同密度の場合粒径比が $\sqrt{2}$ 以下であれば混合し、 $\sqrt{2}$ 以上であれば偏析を生じることを報告した。Rowe ら^{35, 36)}(1972)は粒径や密度の異なる二成分混合粒子の流動化を行い、偏析に対しては粒径差より密度差の影響が大きい事を指摘し、完全流動化時においても層内で粒子濃度が均一にならず偏析が生ずることを報告した。また混合と偏析の程度を表す指標として混合度 $M (= X_j / \bar{X}_j)$ を定義し定量化を試みた。Gibilaro ら¹⁷⁾(1974)は偏析の機構を検討し理論解析を試みた。Chiba ら^{10, 11)}(1979, 1981)は強偏析から弱偏析までの偏

析傾向の異なる二成分混合粒子に対し流動化開始速度、層膨張、層内圧力損失分布などを検討し、流速増加による偏析挙動の変化を混合度 M により整理した。さらに Nienow ら³¹⁾(1985)はこの混合度の流速による影響を推算することを試みた。

2) 流動化開始速度 Gelperin ら¹⁶⁾(1971)は流動化状態を固定層・部分流動層・完全流動層の三つに分類し、気液相平衡状態図と似た流動化状態図で表すことができる事を報告した。Cheung ら⁹⁾(1974)は二成分混合粒子の最小流動化速度 u_{br} を沈降性粒子の最小流動化速度 $u_{mf,J}$ とその分率 \bar{X}_J および浮上性粒子の最小流動化速度 $u_{mf,F}$ を使用して次式で表し、実測値との良い相関を報告した。

$$u_{br} = u_{mf,F} \left(\frac{u_{mf,J}}{u_{mf,F}} \right) \bar{X}_J^2 \quad (1-1)$$

Rowe ら³⁷⁾(1975)は多成分系粒子の u_{mf} の推算式を提出したが混合系における空間率 ε の推算が困難であるため、小粒子がごくわずかに混入した場合の u_{mf} の変化式を提出した。Chen ら⁶⁾(1975)は粒径や密度の異なる混合粒子を6気圧までの加圧下で流動化し、Gelperin ら¹⁶⁾と同様な流動化状態図を求め、完全流動化速度 u_{of} はある沈降性粒子の分率でピークを持つことを報告している。部分流動化の領域は圧力の増加とともに小さくなりピークも低くなる事を明らかにした。また分離の速度は非常に速く30秒程度で平衡となることを示した。Knowlton²²⁾(1977)は広い粒径分布を有する各種粒子を68気圧までの圧力下で流動化させた時の u_{of} の値は、各粒径の u_{mf} の相加平均で推算出来る事を示した。Chen⁸⁾(1981)は粒径の異なる二成分混合粒子の偏析の理論解析を行い、完全流動化速

度 u_{cr} の推算を行った。Carsky ら⁵⁾(1987) は二成分混合粒子の流速による粒子の分離程度について考察し流動化状態図との対応を調べた。

流動層内の偏析挙動に関する研究は断面積一定の流動層のみで行われ、円錐型や楔型などの特殊な流動層での挙動は明らかにされていない。また流速による高さ方向の粒子の分布への影響も十分明らかにされているとは言い難い。本論文ではこの点を明らかにすることを主眼に置き、従来型流動層との比較検討も同時に行うことにする。

1. 3. 3 流動層による粒子連続分離

流動層は粒子の混合状態が良好な点を特徴としているため、分離操作には適していないものとされてきた。そのため、この方面での研究は従来からあまりなされていなかったのが現状である。

流動層内で生じる偏析現象を利用した分離操作は Thomas ら⁴⁶⁾(1961) によってその可能性が指摘されたのが最初である。Sutherland ら⁴³⁾(1964) は層内に円筒形の金網を充填した流動層を用いることにより粒子の分離(偏析)を強めることができることを示した。引続き Capes と Sutherland⁴⁾(1966) により同様な流動層で粒子の分離操作が行われ、粒子の供給がない回分条件ならびに粒子を連続供給する連続条件下では u_{mf} 付近で分離が良好であることを指摘し、分離性能の操作条件による影響を調べた。Chen ら⁷⁾(1978) は石炭ガス化炉を想定し、流動化開始速度 u_{mf} ならびに終末沈降速度 u_t 近傍で連続排出が可能な流動層を開発し、連続分離操作を行った。二成分混合粒子での実験では、95% 以上の効率で沈降性粒子の分離が可能であった。Chou ら¹²⁾(1985) はガス導入部に Dead

Zone を付けた円錐型流動層を用いて回分操作で分離実験を行いほぼ 100% の分離効率を得た。Yang ら⁵⁰⁾(1986) は内径 300cm、入口径 25cm および 41cm の大型の円錐型流動層に Chou ら¹²⁾と同様な粒子分離装置を付け連続ならびに回分条件で分離実験を行い、約 80% の分離効率であったことを報告している。小屋 ら¹³⁾(1988) は流動層による直接還元製鉄プロセスを想定し、粗大粒子の連続かつ選択的抜き出しの実験を行った。層下部にスクリーンによる引出し装置を有する流動層を開発し、ほぼ 100% の分離効率を得た。また粒径比が 2.5 まで分離が可能であることを示した。

以上の連続分離実験において用いられた混合粒子は粒径比や密度比が大きく分離が比較的容易なものが用いられているため、分離性能が高いと一概に評価することは難しい。また 小屋 ら¹³⁾以外の実験粒子挙動は噴流層に近いいため、反応装置を想定した場合気-固間の接触効率は下がってしまう欠点を持つ。本論文ではテーパー付き流動層内の特徴的な偏析挙動を利用して、通常の流動層では分離が不可能な混合粒子に対しても良好な分離性能を有する装置の開発とその性能評価を目的とする。

1. 4 本論文の概略

本論文は 7 章から構成されている。

第 1 章『緒論』では、本研究の工学的意義と目的について述べ、テーパー付き流動層および多成分混合粒子の流動化に関する既往の研究を概説した。

第 2 章『テーパー付き流動層の流動化特性』では、一成分粒子を用いての流動化を行い、圧力損失特性・粒子挙動などの流動化特性

に対する装置形状や操作条件の影響を調べた。粒子挙動は従来の流動層や噴流層とは異なり、固定層から流動層への移行時に特徴的な部分流動化領域が存在した。またこの状態は流速の上昇時と下降時において異なる挙動をとることを明らかにした。層圧力損失は既存の断面積一定の流動層についての式を拡張することにより推算が可能であることを示した。

第3章『テーパー付き流動層周辺部での粒子循環特性』では、粒子を流動化させた場合の層内コア部と周辺部との間に生じる粒子循環流に着目し、この挙動を明らかにした。トレーサー粒子を用いて粒子挙動を可視化し、粒子循環開始流速 u_c の測定ならびに推算を行った。周辺部を下降するトレーサー粒子の粒子循環速度を測定し、過剰ガス流速 ($u_i - u_c$) との関係を明らかにした。

第4章『二成分混合粒子からなるテーパー付き流動層の流動化特性』では、二成分混合粒子として粒径の異なるガラス球を流動化させ、圧力損失・粒子挙動・偏析挙動などの流動化挙動を調べた。二成分混合粒子を流動化させた場合、流動化開始から完全混合状態までの流速の間において、層挙動はコア部と周辺部に分けることができ、流速に応じて特徴のある挙動を示した。特にコア部においては浮上性粒子と沈降性粒子の分離が生じ、下部に沈降性粒子を主とする層が柱状に偏析することを明らかにした。

第5章『テーパー付き流動層における二成分混合粒子の柱状偏析』では、沈降性粒子が層コア部に柱状に偏析する部分流動化流速域での粒子挙動について検討した。この柱状偏析が発生する流速範囲を明らかにし、次に偏析層内の粒子偏析挙動を調べるため高さ方向の沈降性粒子の濃度分布をとり流速による影響を調べた。その結果テ

ーパー付き流動層内コア部は従来型流動層よりも顕著な粒子の分離を引き起こすことがわかった。この分離の程度を調べるため新たに偏析度 S を定義し、これを用いて評価を行った。

第6章『テーパー付き流動層による二成分混合粒子の連続分離』では、テーパー付き流動層で二成分混合粒子を流動化させた場合に見られる柱状偏析を利用して、混合粒子の連続的な分離操作を行った。混合粒子を層に供給すると同時にコア部の偏析粒子を排出する連続下で実験を行い、層内に偏析柱を維持できるように混合粒子を供給すれば、下部排出口より沈降性粒子のみをまた上部排出口より浮上性粒子のみを選択的かつ連続的に排出することが可能であることを確かめた。

第7章『総括』では、本研究で明らかにされた知見を総括して述べた。

本論文の構成を次頁に示す。

テーバー付き流動層の流動化特性ならびに
二成分混合粒子の分離特性に関する研究
論文構成

第1章

緒 論

- ・本研究の工学的意義と目的
- ・既往の研究とその概略
- ・本論文の概略

第2章 【一成分粒子】

テーバー付き流動層の流動化特性

- ・圧力損失特性
- ・粒子流動化挙動
- ・流動化開始速度(u_{b0})の実測と推算
- ・部分流動層での層内流速分布と圧力損失の推算

第4章 【二成分混合粒子】

二成分混合粒子からなる
テーバー付き流動層の流動化特性

- ・圧力損失特性
- ・粒子流動化挙動
- ・流動化開始速度(u_{br})の実測と推算
- ・層内高さ方向の粒子偏析分布測定
- ・柱状偏析発生領域

第3章 【一成分粒子】

テーバー付き流動層周辺部での粒子循環特性

- ・粒子循環挙動
- ・粒子循環開始流速(u_c)の測定ならびに推算
- ・粒子循環速度の定量化ならびに推算

第5章 【二成分混合粒子】

テーバー付き流動層における
二成分混合粒子の柱状偏析

- ・層高さ方向の粒子濃度分布の流速による影響
- ・完全混合開始速度(u_{br})の実測と推算
- ・偏析度Sによる偏析強度の定量化

第6章 【二成分混合粒子】

テーバー付き流動層による
二成分混合粒子の連続分離

- ・分離操作領域
- ・分離操作におよぼす排出量の影響
- ・分離効率の流速による影響

第7章

総 括

使用記号

M	= mixing index ($=X_J/\bar{X}_J$)	[-]
u_B	= incipient fluidization velocity for tapered bed	[cm/s]
u_{bf}	= incipient partial fluidization velocity	[cm/s]
u_C	= incipient circulation velocity for tapered bed	[cm/s]
u_{cf}	= incipient complete fluidization velocity	[cm/s]
u_i	= fluid velocity at inlet of the bed	[cm/s]
u_{mf}	= minimum fluidization velocity	[cm/s]
u_t	= terminal velocity	[cm/s]
X_J	= weight fraction of jetsam particle	[-]
\bar{X}_J	= weight fraction of jetsam particle at complete mixing	[-]
ϵ	= void fraction	[-]
<subscript>		
F	= flotsam particle	
J	= jetsam particle	

参 考 文 献

- 1) Biswal, K.C., S.Sahu and G.K.Roy: Chem. Eng. J., 23, 97 (1982)
- 2) Biswal, K.C., T.Bhowmik and G.K.Roy: *ibid*, 29, 47 (1984)
- 3) *idem* : *ibid* , 30, 57 (1985)
- 4) Capes, C.E. and J.P.Sutherland: Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., 5, 330 (1966)
- 5) Carsky, M. J.Pata V.Vesely and M.Hartman: Powder Tech., 51, 237 (1987)
- 6) Chen, J.L.P and D.L.Keairns: Can. J. Chem. Eng., 53, 395 (1975)
- 7) *idem* : Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., 17, 135 (1978)
- 8) Chen, J.L.P: Chem. Eng. Commun., 9, 303 (1981)
- 9) Cheung, L., A.W.Nienow and P.N.Rowe: Chem. Eng. Sci., 29, 1301 (1974)
- 10) Chiba, S., T.Chiba, A.W.Nienow and H.Kobayashi: Powder Tech., 22, 255 (1979)
- 11) Chiba, S., T.Chiba, H.Kobayashi: Bulletin of the Faculty of Eng. Hokkaido Univ., No.102, 23 (1981)
- 12) Chou, T.C. and Y.M.Uang: Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., 24, 683 (1985)
- 13) Coya, T., E.Komata and D.Kunii: Kagaku Kogaku Ronbunshu, 14, 203 (1988)
- 14) Ergun, S.: Chem. Eng. Progr., 48, 89 (1952)
- 15) Geldart, D.: Powder Tech., 7, 285 (1973)

- 16) Gelperin, N.I., and V.G. Einstein: "Fluidization" ed. by Davidson and Harrison, p.541, Academic Press (1971)
- 17) Gibilaro, L.G. and P.N. Rowe: Chem. Eng. Sci., 29, 1403 (1975)
- 18) Golubkovich, A.V: Issle. Rez. Font. Koni. Appa., 10, 576 (1976)
- 19) Gorshtein, A.E. and I.P. Mukhlenov: Zh. Prikl. Khim. (leningrad), 38, 1887 (1964)
- 20) Kastanek, F., M. Rehakova and J. Thyn: Collection Czechoslov. Chem. Commu., 43, 387 (1976)
- 21) Kmiec, A.: Can. J. Chem. Eng., 61, 274 (1983)
- 22) Knowlton, T.M.: A.I.Ch.E. Symp. Ser., 73, No.161, 22 (1977)
- 23) Koda, H and T. Kurisaka: "Fluidization '85", ed. by Kwauk and Kunii, p.402, Science Press (1985)
- 24) Koloini, T., and E.J. Farkas: Can. J. Chem. Eng., 51, 499 (1973)
- 25) Levey, R.P., A. Garza, S.C. Jacobs, H.M. Heidt and P.E. Trent: Chem. Eng. Progress, 56, No.3, 43 (1960)
- 26) Markowski, A. and W. Kaminski: Can. J. Chem. Eng., 61, 377 (1983)
- 27) Maruyama, T., H. Maeda and T. Mizushima: J. Chem. Eng. Japan, 17, 132 (1984)
- 28) Mukhlenov, I.P. and A.E. Gorshtein: Khim. Prom. (Moscow), 41, 443 (1965)
- 29) 中井 誠一: "セミナー「流動層の最近の展開と応用」", 化学工学協会関西支部編, p.48, 化学工学協会 (1985)

- 30) Nienow, A.W. and T.Chiba: "Fluidization", ed. by Davidson, Clift and Harrison, p.357, Academic Press, London (1985)
- 31) Nienow, A.W., N.S.Naimer and T.Chiba: "World Congress III of Chem. Eng.", Vol.3, 457 (1986)
- 32) Nikolaev, A.M. and L.G.Golubev: Izv. Vyssh. Ucheb. Zaved. Khim. Khim. Tekhnol, 7, 855 (1964)
- 33) Nishi, Y.: Kagaku Kogaku Ronbunshu, 5, 202 (1979)
- 34) Ridgway, K.: Chem. Process Eng., June, 317 (1965)
- 35) Rowe, P.N., A.W.Nienow and A.J.Agbin: Trans. Inst. Chem. Engrs., 50, 310 (1972)
- 36) idem : ibid , 50, 324 (1972)
- 37) Rowe, P.N. and A.W.Nienow: Chem. Eng. Sci., 30, 1365 (1975)
- 38) idem : Powder Tech., 15, 141 (1976)
- 39) Scott, C.D. and C.W.Hancher: Biotech. Bioeng., 18, 1393 (1976)
- 40) Shi, Y.F., Y.S.Yu and L.T.Fan: Ind. Eng. Chem. Fundam., 23, 484 (1984)
- 41) Shirai, T., M.Namikawa and M.Saima, Kagaku Kogaku, 30, 254 (1966)
- 42) Sutherland, K.S.: Trans. Instn. Chem. Engrs., 39, 188 (1961)
- 43) Sutherland, J.P.: Can. J. Chem. Eng., 42, 163 (1964)
- 44) Takeda, K., : Kagaku Kogaku, 21, 124 (1957)
- 45) 館林 恂: "発展する流動層技術-その動向と応用-", 化学工学協会 関西支部編, p.39, 化学工学協会 (1983)
- 46) Thomas, W.J., P.J.Gray and S.B.Watkins: Brit. Chem. Eng., 6, 176 (1961)

- 47) Tsvik, M.Z., M.N.Nabiev, N.V.Rizaev, K.V.Merenkov and V.S. Vyzgo: *Uzv. Khim. Zh.*, 11, No.2, 50 (1967).
- 48) Wang, F., P.G.Romankov and N.B.Rashkovskaya: *Zh. Prikl Khim (Leningrad)*, 42, 609 (1969)
- 49) Wen, C.Y. and Y.H.Yu: *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, 62, No.62, 100 (1966)
- 50) Yang, W.C.; B.Etthadieh, T.C.Anestis, R.E.Gizzie and G.B. Haldipur, "Fluidization V", p.95 (1986)

第 2 章

テーパー付き流動層の流動化特性

2. 1 緒 言

テーパー付き流動層に関するこれまでの研究は、第1章で概説したように最小流動化速度の推算が中心で、噴流層の一形態と考え操作因子を無次元した推算^{4,6,7,8,14,15)}や粒子-流体間の力の釣合に基づく推算^{1,5,9,11)}があるが、各推算値間のばらつきが大きかったり、固-液系を対象¹¹⁾にしたものである。また、粒子挙動については Sutherland ら¹²⁾の粒子混合、Ridgway¹⁰⁾の粒子滞留時間の研究があるが、粒子流動化挙動に関しては竹田¹³⁾の簡単な記述以外はほとんど見受けられない。しかし、テーパー角などの層形状による粒子流動化挙動と圧力損失特性への影響を正確に把握することがこの種の流動層の設計および操作にとって重要な因子の一つであるが、これに関しては十分に解明されているとは言い難い。

そこで、本章ではテーパー付き流動層の流動化特性を明らかにするため、単一径粒子を用い楔型(2次元)・円錐型(3次元)の2種類のテーパー付き流動層を用いて実験を行い、圧力損失特性や粒子流動化状態などについて検討を加えた。

2. 2 実験装置および方法

装置の概略を Fig. 2-1 に示す。流動化流体には空気を使用し、送風機①により送入した。その流量は主流路弁④およびバイパス弁③によって調整された後、オリフィス流量計⑤によって測定した。また層圧力損失は分散板下部に設けられたタップよりマノメーター⑥によって測定した。

流動層本体は Fig. 2-2 に示すような形状を持ち、テーパー角度

- ① roots blower
- ② buffer tank
- ③ bypass valve
- ④ line valve
- ⑤ orifice meter
- ⑥ manometer
- ⑦ fluidized bed

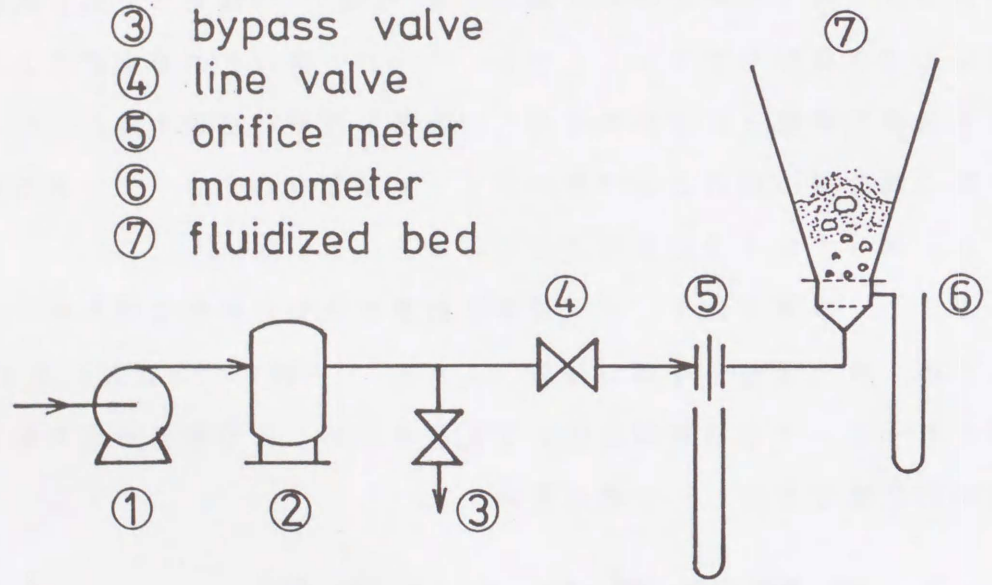


Fig. 2-1 Schematic diagram of the experimental apparatus

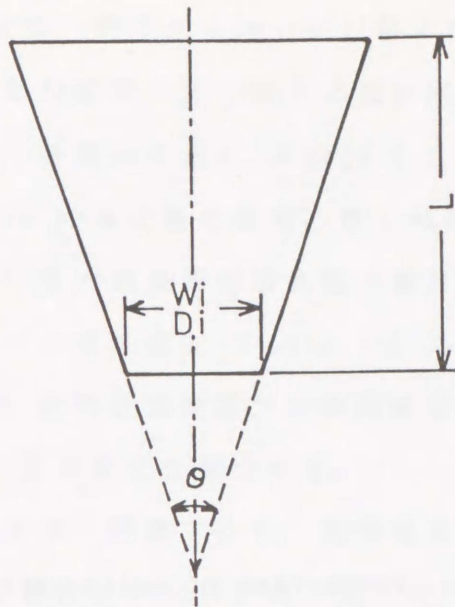


Fig. 2-2 Structure of tapered bed

Table 2-1 Dimensions of tapered bed

Shape	apex angle θ [deg]	inlet W_i or D_i [cm]	overall height L [cm]
wedge type	3.75	4.0	80.0
	7.5		80.0
	15		80.0
	30		80.0
	45		52.0
conical type	15	2.0	30.4
		3.0	26.6
		4.0	22.8
	30	2.0	24.1
		3.0	22.3
		4.0	20.4

Table 2-2 Properties of solid particles

Material	d_p [mm]	ρ_s [g/cm ³]	ϵ_{mf} [-]	ϕ_s [-]	u_{mf} [cm/s]	group
glass	0.274	2.49	0.404	0.995	7.26	B
	0.650	2.50	0.408	1.00	34.4	B
	1.30	2.50	0.406	1.00	76.5	D
plastic	0.650	1.04	0.425	0.909	15.2	B

θ の異なる数種の楔型（奥行き 4 cm 一定）および円錐型のものを使用した。これらは内部が観察できるように透明塩ビ樹脂製または透明アクリル樹脂製で、各部の寸法を Table 2-1 に示す。また分散板として開口比 1.23% の多孔板を使用し層と同程度の圧力損失を得ている。この分散板の圧力損失は空塔状態で事前に測定を行った。

本実験で用いた粒子の物性値を Table 2-2 に示す。ここで u_{mf} と ε_{mf} は内径 10cm 円筒型流動層での実測値であり、Group 名は Geldart³⁾ による粒子の流動化分類である。

実験方法は通常の方法と同様であり、充填層高 4~30cm（楔型）、5~20cm（円錐型）の範囲でテーパ角・入口径・充填粒子・流動化流速等を変化させ層圧力損失の測定および粒子流動化挙動の観察を行った。

2. 3 基礎式

層断面積が層高と共に変化しても流体は層内を均一に流れるものとする従来からの考え方⁹⁾に従って、テーパ付き流動層の流動化状態を理想的に固定層・部分流動層・完全流動層の三つに大別し、各々について圧力損失の式を導き実験結果と比較した。

1) 固定層 ($u_i \leq u_{mf}$) 層入口流速（層内最大流速）が粒子の最小流動化速度 u_{mf} より小さい場合、層は流動化しない。そこで Ergun の式²⁾の微分形を微小層高 dh ごとに適用できるものとする、層入口部（層底）よりの高さ h にある微小層高 dh に対する圧力損失 $d(\Delta P_s)$ は次式で示される。

$$d(\Delta P_s) = (C_1 u_h + C_2 u_h^2) dh \quad (2-1)$$

$$\text{ここで } C_1 = 150 \frac{(1 - \varepsilon_{mf})^2}{\varepsilon_{mf}^3} \frac{\mu}{(\phi_s d_p)^2}$$

$$C_2 = 1.75 \frac{1 - \varepsilon_{mf}}{\varepsilon_{mf}^3} \frac{\rho_f}{\phi_s d_p}$$

また楔型の層高 h における空塔速度 u_h は次式で表わせる。

$$u_h = \frac{u_i W_i}{W_i + 2h \tan(\theta/2)} \quad (2-2)$$

これを Eq. (2-1) に代入し層底部から層頂部 ($h = 0 \sim H$) まで積分することにより全体の圧力損失を層入口流速 u_i を基準として求めることができる。

$$\Delta P_s = C_1 \frac{u_i W_i}{2 \tan(\theta/2)} \ln \frac{W_o}{W_i} + C_2 u_i^2 \frac{W_i}{W_o} H \quad (2-3)$$

ここで添字 i, o はそれぞれ層入口及び出口における値を示す。円錐型ではすでに同様な考え方で次式が示されている⁹⁾。

$$u_h = \frac{u_i D_i^2}{\{D_i + 2h \tan(\theta/2)\}^2} \quad (2-4)$$

$$\Delta P_s = C_1 u_i \frac{D_i}{D_o} H + C_2 \frac{u_i D_i^2}{3 D_o^3} (D_i^2 + D_i D_o + D_o^2) H \quad (2-5)$$

2) 部分流動層 ($u_i \geq u_{mf} > u_o$) テーパー付き流動層では、層断面積が変化するため層内流速は層高と共に減少する。層高 h における流速が粒子の u_{mf} と等しい場合、理想的にはこの面より下部では流動層、上部では固定層となるものと考えることができる。この場合の圧力損失 ΔP_p は前項の固定層および次項の流動層に対する圧力損失を加算することによって求めることができる。

$$\Delta P_p = \int_h^H d(\Delta P_s) + \int_0^h d(\Delta P_f) \quad (2-6)$$

楔型層については Eqs. (2-1)、(2-2) および (2-10) より

$$\begin{aligned} \Delta P_p = C_1 \frac{u_i W_i}{2 \tan(\theta/2)} \ln \frac{W_o}{W_h} + C_2 u_i^2 W_i \frac{H-h}{W_o W_h} \\ + (1 - \varepsilon_{mf})(\rho_s - \rho_f) g h \end{aligned} \quad (2-7)$$

同様に円錐型については Eqs. (2-1)、(2-4) および (2-10) より

$$\begin{aligned} \Delta P_p = C_1 u_i D_i \frac{H-h}{D_o D_h} + C_2 u_i^2 D_i^4 (H-h) \\ \times \frac{(D_o^2 + D_o D_h + D_h^2)}{3 D_o^3 D_h^3} + (1 - \varepsilon_{mf})(\rho_s - \rho_f) g h \end{aligned} \quad (2-8)$$

が得られる。

3) 完全流動層 ($u_o \geq u_{mf}$) 層出口流速 (層内最小流速) が粒子の u_{mf} を越えていれば層全体は流動化する。流動層の圧力損失は微小層高 dh の層重量と粒子-流体間の抗力が釣り合うものとして求められる。位置 h における微小層高 dh についての力の平衡は次式で示される。

$$d(\Delta P_f) = (1 - \varepsilon_{mf})(\rho_s - \rho_f) g dh \quad (2-9)$$

これを層底部から層頂部まで積分することにより、楔型・円錐型にかかわらず層断面積に無関係な次式を得る。

$$\Delta P_f = (1 - \varepsilon_{mf})(\rho_s - \rho_f) g H \quad (2-10)$$

2. 4 実験結果および考察

2. 4. 1 流動化状態と圧力損失特性

代表的な圧力損失特性および粒子流動化状態の模式図をそれぞれ Fig. 2-3 および Fig. 2-4 に示す。Fig. 2-3 中○は流速増加時の、また●は流速減少時の実測値を示す。また、横軸の空塔速度としては下部に入口面基準の値 (u_i) を、上部に出口面基準 (u_o) の値を示す。

Fig. 2-3 に示すように、テーパ付き流動層における圧力損失特性は流速増加時と減少時に同一経過をたどらず、ヒステリシスを持つ経過となる。この傾向はテーパ角や層高が大きい場合に顕著に現れるが、これらの値が小さい場合には当然通常型流動層に近づきヒステリシスは殆ど見られなくなる。

1) 流速増加時

固定層 (O → A) この領域は観察によっても全層固定層 (Fig. 2-4(a)) であり、圧力損失 ΔP に関する実験値は Fig. 2-3 中に破線で示す Eq. (2-5) とほぼ一致する。このことから層高と共に断面積が変化する場合も、本実験で用いた範囲では、固定層については層内一様流れを仮定してよいことが認められる。図中の値 $u_{mf,1}$ は層入口流速が u_{mf} に達する点であり、理想的にはこれ以上の流速では層入口部から部分流動化が始まるはずであるが、この点で流動化はおこらず実際には A 点まで層全体は固定層を維持する。

コア型流動層 (B → C → P → D) 空気流速が Fig. 2-3 の A 点 (流速 u_B) を超えると*、層入口部から部分的な流動化が始まる。これは急速に層上部に及ぶと共に ΔP は急激に B 点まで降下し、以後一定値をとる。この値はほぼ Eq. (2-10) で示されるがコア部*実験的には A 点と B 点とは異なる流速に対応して得られるが、現象的には $u_A \approx u_B$ と考えてよい。

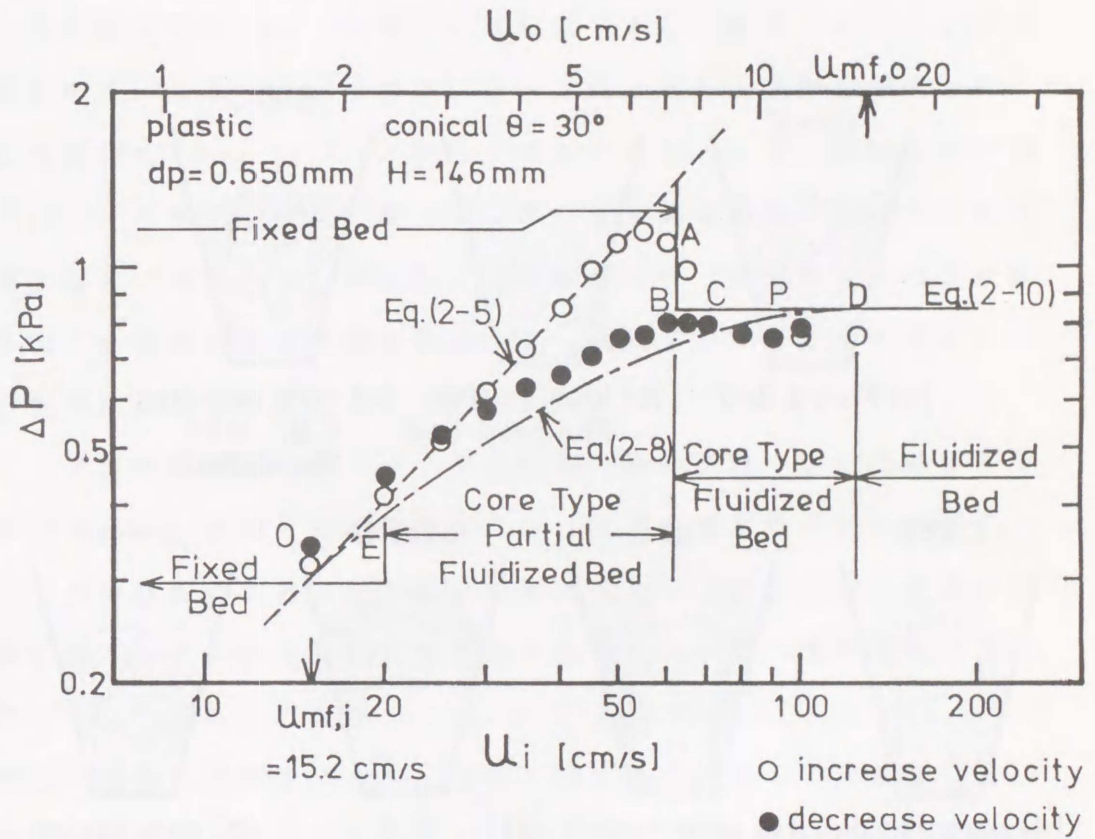


Fig. 2-3 Pressure drop characteristics of tapered bed

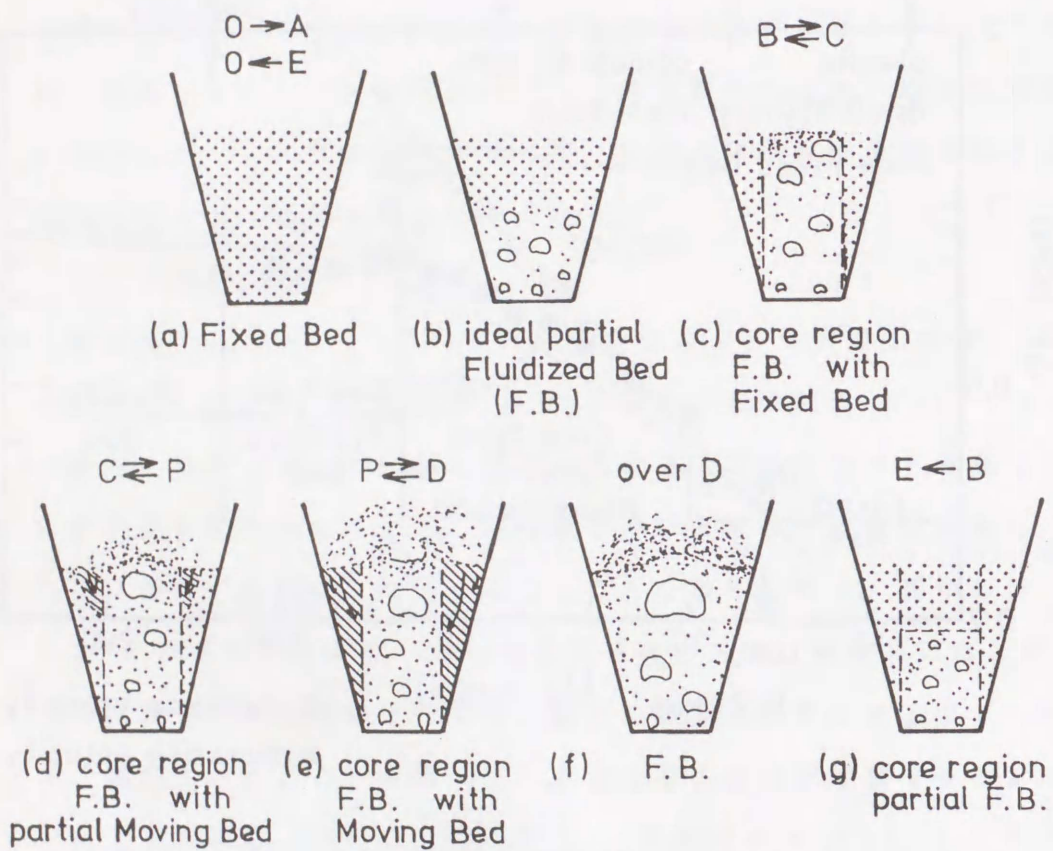


Fig. 2-4 Fluidized characteristics of tapered bed

の気泡流動化による周辺部への粒子の飛散のため空間率 ε が大きくなるので Eq. (2-10) による推算値より約 5% 程度下がる傾向が見られた。Fig. 2-3 から明らかなように、この範囲における空塔速度は層入口面ではすでに u_{mf} を超えており出口面では u_{mf} 以下である。したがって理想的には Fig. 2-4(b) に示すように断面平均空塔速度が u_{mf} と等しい層高以下では流動層、それ以上では固定層という水平方向に層状に分割された部分流動層が形成され、圧力損失も Eq. (2-8) に従うと考えられる。しかし実際には Fig. 2-4(c) に示すように、層入口にほぼ等しい断面積を持つコア部が層上部まで流動化し、周辺部は非流動化状態（固定層）という垂直方向に分割された流動層を形成する。本論文ではこの様な状態をコア型流動層と呼ぶこととする。

コア型流動層域では、コア部は通常層断面積一定の流動層と同様であるが、流動化流体は層高と共に周辺部固定層中に分流する。このため流動化状態も通常型流動層と異なり、高さ方向の変化が観察された。すなわち流動化開始点 B 近傍において、流動層入口部流速は u_{mf} を超えており (Fig. 2-3 の例では $u_i/u_{mf} > 4$) かなり激しい流動化状態を示すが、層高と共にかなり急速に平静化し層出口面では静止に近い状態を示す (B → C)。流速の増加と共に気泡の形成をも含んだ流動化挙動は次第に上方まで活発になり、表面では気泡破裂に伴う粒子飛散も生じる (B → P)。

他方、層周辺部は流速が小さい領域 (B → C) では全体が固定層となっている (Fig. 2-4(c)) が、流速の増加 (C → P) と共に、コア部流動層上面で飛散する粒子が落下し、周辺部上面への粒子の供給が生じる。これに伴ってまずコアに隣接した部分から部分的に

粒子の下方への移動が起こり、部分的に移動層が形成される (Fig. 2-4(d))。この移動層の領域は次第に周辺に及び、P点で周辺部全体が移動層となりコア部と周辺部との間で粒子の循環が観察される (Fig. 2-4(e))。流速がさらに増加するとコア部の流動化がさらに活発になると共に、流動化部分が周辺部に広がり、D点で周辺部移動層はほぼ消滅する (Fig. 2-4(f))。D点以上の流速では層全体が流動化状態であるが、本論文では詳細な観察はD点以下の流速範囲に限ることとする。

点C、P及びDは目視観察によるもので、その区分はさほど明瞭ではない。しかし、流動化流体の流速をP-D間に選ぶと、流動層と移動層の二層が共存し、この両層を通じて全体的な粒子の循環が生じる。このような条件下では、層入口部では活発な気泡流動化状態で粒子は激しく混合しているが、層上方では断面積の増加にともなって流体が層周辺部に分散するため、コア部を通過する流速は急速に弱まり、通常の流動層と同様な穏やかな流動化状態が見られる。

2) 流速減少時

コア型流動層 (D → P → C → B) この範囲では流速増加時と同様コア部は流動層を維持するが、周辺部は流速の減少に対応して移動層 (D → P)、部分的移動層 (P → C)、そして固定層 (C → B) を形成する。

コア型部分流動層 (B → E) B点より流速が減少すると Fig. 2-4(g) に示すようにコア部流動層の上部が静止状態 (固定層) になり、下部のみが流動化するという部分流動化状態が形成される。この流動化域は流速の減少と共に減少し、E点で全層固定層となる。この点は入口面積基準の流速が、粒子の最小流動化流速 u_{mf} とな

る点 ($u_{mr,i}$) とほぼ一致する。この間の ΔP は $Eqs. (2-7)$

(2-8) で示される部分流動層の推算式よりも大きくなるがこれについては後で考察する。

テーパー付き流動層は A (B) 点と E 点との間で、流速増加時と減少時では圧力損失特性図の上で異なった経路をたどる。このヒステリシスもテーパー付き流動層の流動化挙動の特徴の一つであることが見いだされた。

固定層 ($E \rightarrow O$) E 点以下は全層固定層となり ΔP は流速増加時と同様 Eq. (2-5) で表すことができる。しかし、テーパーを有するため層高は初期充填時の平面状にはならず中央部が凹状になる。このため空間率は小さくなり、圧力損失は増加時よりも若干大きくなる傾向がみられた。

2. 4. 2 流動化開始速度: u_B

断面積一定の通常型流動層における最小流動化速度 u_{mf} は、固定層と流動層の圧力損失が等しくなる流体流速で定義され、実験結果とも一致することが知られている。しかし、テーパー付き流動層では固定層から流動層、流動層から固定層への移行が前述のように単純ではない。Shi ら¹¹⁾ は液固系テーパー付き流動層 (楔型) での流動化開始点は、流体が固定層中を通過する際に粒子に及ぼす抗力と層全重力が等しくなった時であるとして、次式を提出した。

$$\begin{aligned} & (C_2 \frac{W_i^2 H}{W_o - W_i} \ln \frac{W_o}{W_i}) u_B^2 + (C_1 W_i H) u_B \\ & = (1 - \epsilon_{mf}) (\rho_s - \rho_f) (W_o + W_i) g H / 2 \end{aligned} \quad (2-11)$$

同様な考えに従えば円錐型については次式を導出することができる。

$$\begin{aligned}
 & \left(3 C_2 \frac{D_o^3 H}{D_i} \right) u_B^2 + (3 C_1 D_o^2 H) u_B \\
 & = (1 - \varepsilon_{mf}) (\rho_s - \rho_f) (D_i^2 + D_i D_o + D_o^2) g H \quad (2-12)
 \end{aligned}$$

Fig. 2-5 は楔・円錐型の気固系テーパー付き流動層について上式より求めた u_B の計算値と実測値とを比較した図である。両者は良い一致を示しており、液系楔型流動層における Shi ら¹¹⁾のこの点に関する知見は、気系を含む楔・円錐型のテーパー付き流動層に対しても一般的に適合することが確かめられた。

凝集的な固定層から離散的な流動層への移行には、固定層粒子全体が流動化流体によって一旦浮上させられる必要がある。一度流動化が生じればその圧力損失は Eq. (2-10) で与えられ、A点とB点との圧力損失の差が流動化のための過剰圧力損失として現れる。この現象は、通常型流動層においても認められているが、その値は比較的小さく多くの場合無視してよい程度である。これに対して、テーパー付き流動層では層上部の粒子重量が相対的に大きいため顕著に現れる。Fig. 2-6 はこの過剰圧力損失を層の幾何形状に対してプロットしたものである。図中実線は Eq. (2-11) で求まる u_B を Eq. (2-3) に代入することによって得られる固定層の圧力損失 ΔP_A と Eq. (2-10) で示される流動層の圧力損失 ΔP_F との比から求められる計算値である。A点の測定の困難さのためデータにはばらつきはあるが両者の傾向は一致することがわかる。

2. 4. 3 部分流動層での圧力損失

層全断面にわたって流体は均一に流れるものとした考え方 (2.3 基礎式、参照) では、層全体が水平に分割された部分流動層が形成されるものと想定できる。ところが流速減少時 $B \rightarrow E$ 間では、前述

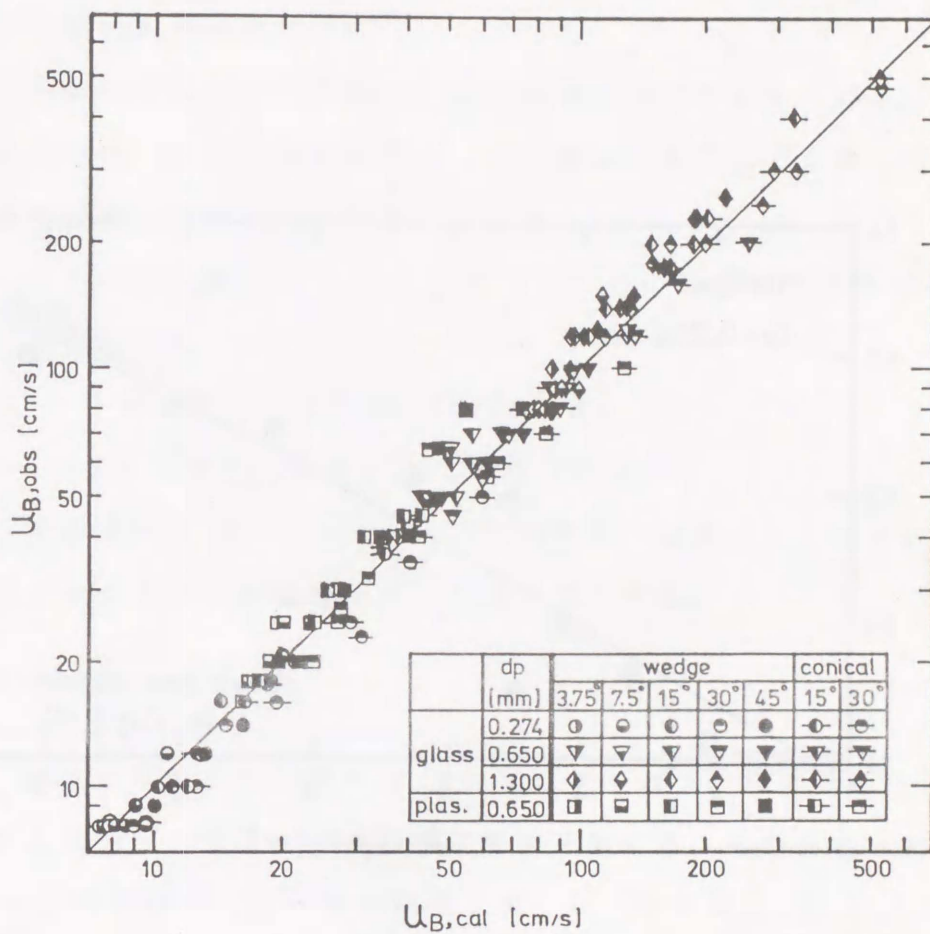


Fig. 2-5 Comparison of experimental incipient fluidizing velocity u_B with those of calculated value

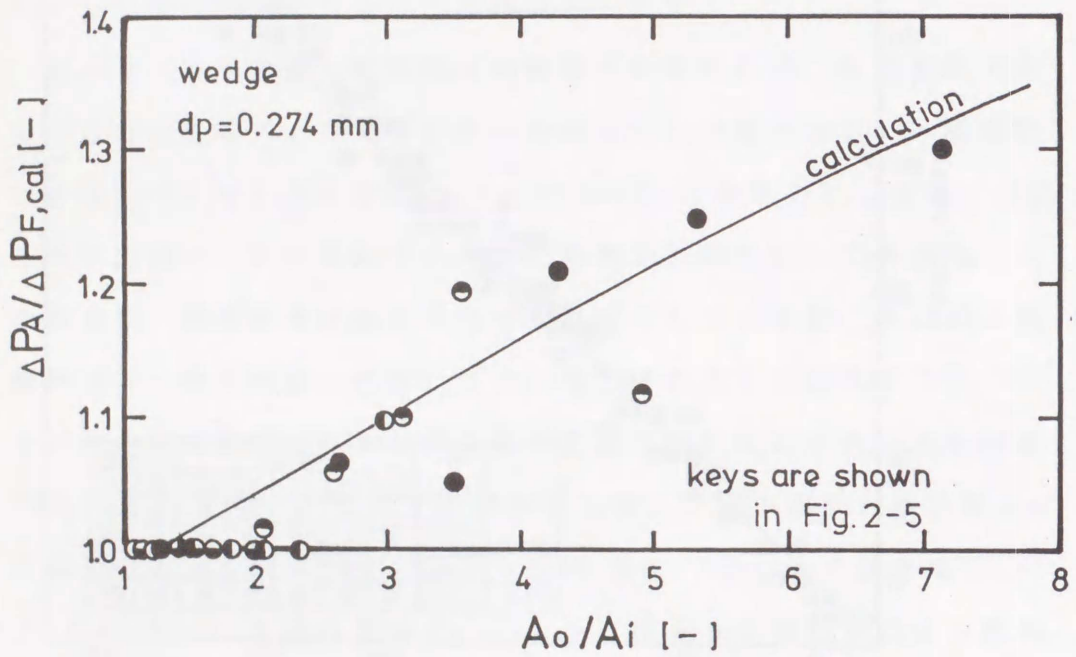


Fig. 2-6 Excess pressure drop at the incipient fluidizing velocity

したようなコア型部分流動層を形成する。このため圧力損失の実測値は Eq. (2-8) で与えられる計算値 (Fig. 2-3 中一点鎖線) とは一致せず、B 点より E 点 ($u_i = u_{mf}$) へ降下する。そこで観察結果を基に Fig. 2-7 に示すような近似モデルを仮定し、この流速域での圧力損失の推算を行った。

a) 現象の領域を入口と等しい断面を持つコア部とそれ以外の周辺部に分ける。流速の減少と共に、コア部はさらに上下二層に別れ、下部は流動層、上部は固定層を形成する。

b) コア部流動層高さを h_F とすると、 h_F は両極限で次の条件に従うものとする。

$$u_i = u_{mf} \text{ (最小流動化速度) の時 } h_F = 0$$

$$u_i = u_B \text{ (流動化開始速度) の時 } h_F = H$$

また、流動層高さ h_F ($= 0 \sim H$) は過剰ガス速度 ($u_i - u_{mf}$) に比例するものとし次式で与えられるものとする。

$$h_F = \frac{u_i - u_{mf}}{u_B - u_{mf}} H \quad (2-13)$$

c) 層底より流入する流体は h_F 面以下ではコア部の流動化に参与すると共に、一部分は周辺部固定層に分流する。そのためコア部流速 u_i は層高と共に一定の割合で減少し、 h_F 面で $u_i = u_{mf}$ となるとする。

$$u_i = u_i - (u_i - u_{mf}) \frac{h}{h_F} \quad (2-14)$$

d) h_F 面以下の周辺部固定層内での流速 u_2 は固定層全断面にわたって一様と仮定する。この時の流速は物質収支より次式で与えられる。

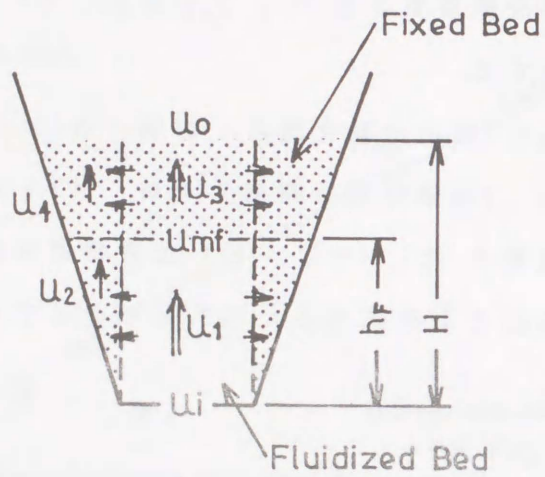


Fig. 2-7 Flow model in tapered bed of partial fluidizing region

$$u_2 = (u_i - u_{m_f}) \frac{A_i}{(A_h - A_i)} \quad (2-15)$$

e) h_F 面以上ではコア部、周辺部とも固定層である。コア部流速 u_3 は h_F 面で u_{m_f} であり、この面以上では層断面積に反比例して減少し、層出口面で流速 $u_o (= u_i A_i / A_o)$ となるものとする。このため次式で示す形となる。

$$u_{3,w} = \frac{q_w}{(h + p_w)} \quad (\text{楔型}) \quad (2-16)$$

$$u_{3,c} = \frac{q_c}{(h + p_c)^2} \quad (\text{円錐型}) \quad (2-17)$$

ここで p, q は定数

f) 周辺部流速 u_4 はコア部からの分流を受け、層出口面で同様に u_o となるものとする。

以上より、楔型の場合各領域での流速は次式で与えられる。

$$u_{1,w} = u_i - (u_i - u_{m_f}) \frac{h}{h_F} \quad (2-14)$$

$$u_{2,w} = \frac{(u_i - u_{m_f}) W_i}{2 h_F \tan(\theta/2)} \quad (2-18)$$

$$u_{3,w} = \frac{q_w}{(h + p_w)} \quad (2-16)$$

$$\text{ここで } p_w = \frac{u_{m_f} W_o h_F - u_i W_i H}{u_i W_i - u_{m_f} W_o} \quad (2-19)$$

$$q_w = \frac{(h_F - H) u_{m_f} u_i W_i}{u_i W_i - u_{m_f} W_o} \quad (2-20)$$

$$u_{4,w} = \frac{W_i H}{W_o - W_i} \frac{u_i h + p_w u_i - q_w}{h^2 + p_w h} \quad (2-21)$$

また円錐型については、

$$u_{1,c} = u_i - (u_i - u_{mf}) \frac{h}{h_F} \quad (2-14)$$

$$u_{2,c} = \frac{(u_B - u_{mf}) D_i^2}{2H \tan(\theta/2) \{D_i + h \tan(\theta/2)\}} \quad (2-22)$$

$$u_{3,c} = \frac{q_c}{(h + p_c)^2} \quad (2-17)$$

ここで

$$p_c = \frac{H \sqrt{u_o} - h_F \sqrt{u_{mf}}}{\sqrt{u_{mf}} - \sqrt{u_o}} \quad (2-23)$$

$$q_c = (H + p_c)^2 u_o \quad (2-24)$$

$$u_{4,c} = \frac{\{u_i (h + p_c)^2 - u_o (H + p_c)^2\} D_i^2}{(h + p_c)^2 4h \tan(\theta/2) \{D_i + h \tan(\theta/2)\}} \quad (2-25)$$

Fig. 2-8(a) に入口流速 20cm/s (Fig. 2-9 中で矢印の示す条件) のときの層内軸方向の流速分布を示す。またコア部流動層高が h_F の時の圧力損失は次式で与えられる。

1) コア部圧力損失 ΔP_o

$$\Delta P_o = (1 - \varepsilon_{mf}) (\rho_s - \rho_f) g h_F + \int_{h_F}^H (C_1 u_3 + C_2 u_3^2) dh \quad (2-26)$$

2) 周辺部圧力損失 ΔP_a

$$\Delta P_a = \int_0^{h_F} (C_1 u_2 + C_2 u_2^2) dh + \int_{h_F}^H (C_1 u_4 + C_2 u_4^2) dh \quad (2-27)$$

各領域の圧力損失の計算結果を Fig. 2-8(b) に示す。上記の仮

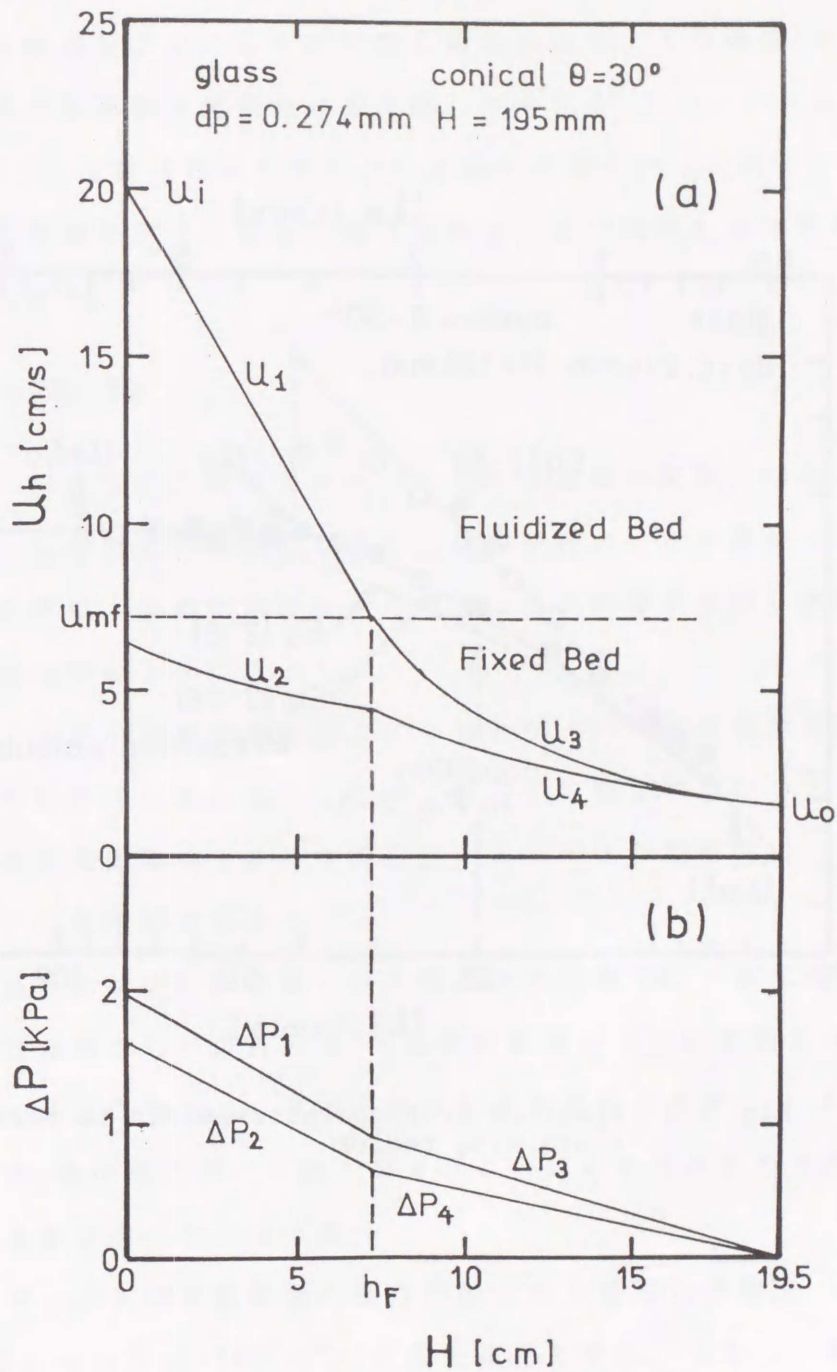


Fig. 2-8 Axial direction profiles for
 (a) velocity
 (b) pressure drop

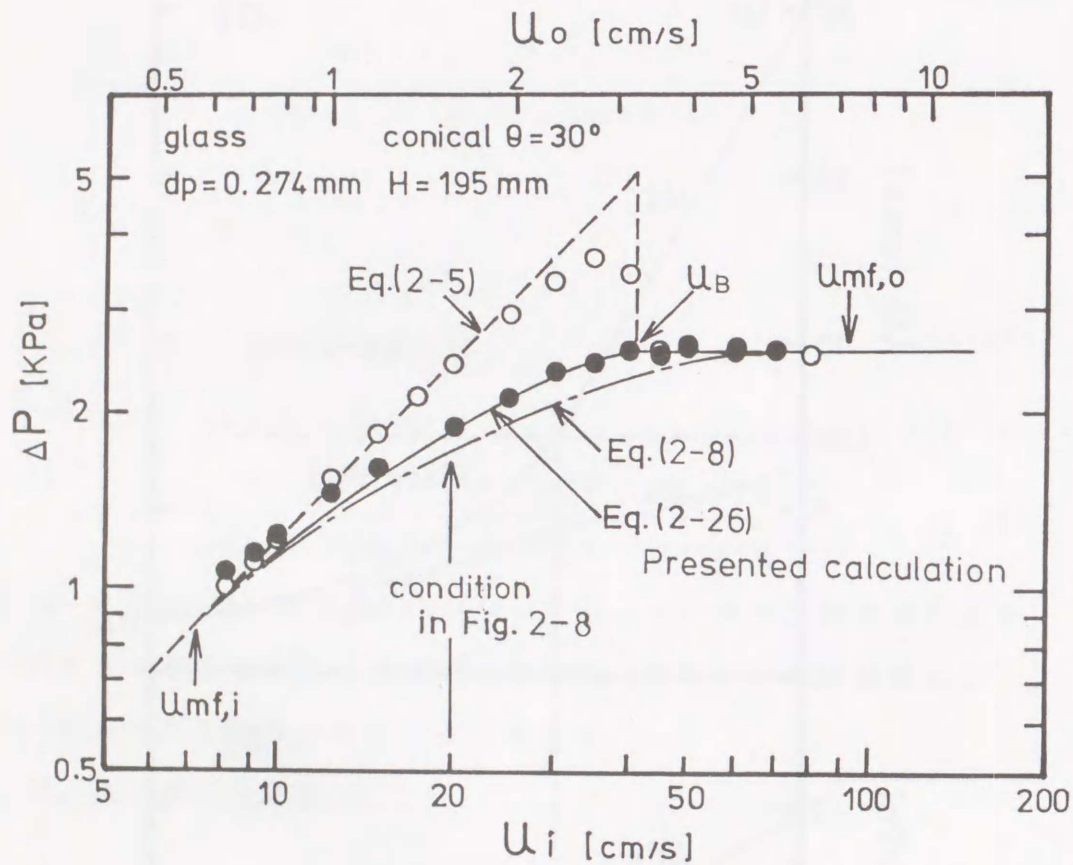


Fig. 2-9 Pressure drop characteristics in partial fluidizing region

定をもとに計算した場合、常に $\Delta P_0 > \Delta P_a$ であり、したがって層の実質的な圧力損失は ΔP_0 で与えられると共に、コア部から周辺部へ分流がおこることも定性的に認められた。入口流速 u_i での圧力損失の推算値と実測値とを比較したものを Fig. 2-9 に示す。Eq. (2-8) で表されるモデルよりも良い一致を示しており、テーパ付き流動層における部分流動化状態での圧力損失もほぼ推算することができた。

2. 5 結 言

楔型・円錐型の2種類のテーパ付き流動層の流動化特性を調べるため、装置形状や層条件を変えて実験を行い、圧力損失・層内粒子流動化挙動・流動化開始流速を中心にその影響を検討した結果、以下のことが明らかになった。

1. 上下面の面積比が2以上になるとテーパ付き流動層独特な流動化挙動を示し始める。この時、粒子の流動化挙動はコア部においては気泡流動層的であるが周辺部においては移動層的で、両者の間で粒子の循環が見られる。

2. 流動化状態は固定層・コア部部分流動層・コア部流動層（周辺部は固定層もしくは移動層）・完全流動層の4つの状態に分けられ、各状態での圧力損失は、高さ方向の断面積変化を考慮した Ergun の式、粒子-流体間の力の平衡、およびこの両者を組み合わせた式で推算できる事が明らかになった。

3. テーパ付き流動層の操作指針となる流動化開始点 u_0 は、液-固系についての Shi ら¹¹⁾の式を適用できた。しかし、層全体が完全に流動化するにはこれ以上の流速が必要である。

使用記号

A	= cross sectional area of tapered bed	[cm ²]
C_1	= constant in Eq. (2-1)	[Pa·s/cm ²]
C_2	= constant in Eq. (2-1)	[g/cm ⁴]
D	= diameter of tapered bed	[cm]
d_p	= particle diameter	[mm]
g	= acceleration of gravity	[cm/s ²]
H	= total bed height	[cm]
h	= distance from bed bottom	[cm]
L	= overall height of tapered bed section	[cm]
ΔP	= pressure drop of tapered bed	[Pa]
p_C	= function defined in Eq. (2-23)	[cm]
p_W	= function defined in Eq. (2-19)	[cm]
q_C	= function defined in Eq. (2-24)	[cm ² /s]
q_W	= function defined in Eq. (2-20)	[cm ³ /s]
u	= fluid velocity	[cm/s]
u_B	= incipient fluidization velocity for tapered bed	[cm/s]
u_{mf}	= minimum fluidization velocity	[cm/s]
u_1	= fluid velocity at core fluidized region	[cm/s]
u_2	= fluid velocity at annulus lower region	[cm/s]
u_3	= fluid velocity at core fixed region	[cm/s]
u_4	= fluid velocity at annulus upper region	[cm/s]
W	= width of tapered bed	[cm]
ϵ_{mf}	= void fraction at u_{mf}	[-]
θ	= taper angle	[deg]
μ	= fluid viscosity	[Pa·s]

ρ_f = fluid density [g/cm³]
 ρ_s = particle density [g/cm³]
 ϕ_s = shape factor [-]
<subscript>
a = annulus region
C = conical shape
c = core region
h = distance from bed bottom
i = inlet of tapered bed
o = outlet of tapered bed
F = fluidized bed
P = partial fluidized bed
S = static bed
W = wedge shape

参 考 文 献

- 1) Biswal, K.C., T. Bhowmik and G.K. Roy: Chem. Eng. J., 30, 57 (1985)
- 2) Ergun, S.: Chem. Eng. Prog., 48, 89 (1952)
- 3) Geldart, D.: Powder Tech., 7, 285 (1973)
- 4) Gorshtein, A.E. and I.P. Mukhlenov: Zh. Prikl. Khim. (Leningrad), 37, 1887 (1964)
- 5) Kmiec, A.: Can. J. Chem. Eng., 61, 274 (1983)
- 6) Markowski, A. and W. Kaminski: ibid., 61, 377 (1983)
- 7) Mukhlenov, I.P. and A.E. Gorshtein: Khim. Prom. (Moscow), 41, 443 (1965)
- 8) Nikolaev, A.M. and L.G. Golubov: Izv. Vyssh. Ucheb. Zaved. Khim. Khim. Technol., 7, 855 (1964)
- 9) Nishi, Y.: Kagaku Kogaku Ronbunshu, 5, 202 (1979)
- 10) Ridgway, K.: Chem. Proc. Eng., June, 317 (1965)
- 11) Shi, Y.F., Y.S. Yu and L.T. Fan: Ind. Eng. Chem. Fundam., 23, 484 (1984)
- 12) Sutherland, K.S.: Trans. Inst. Chem. Eng., 39, 188 (1961)
- 13) Takeda, K.: Kagaku Kogaku, 21, 125 (1957)
- 14) Tsvic, M.Z., M.N. Nabiev, N.V. Rizaev, K.V. Merenkov and V.S. Vyzgo: Uzh. Khim. Zh., 11, No. 2, 50 (1967)
- 15) Wan-Fyong, F., P.G. Romankov and N.B. Rashkovskaya: Zh. Prikl. Khim. (Leningrad), 42, 609 (1969)

第 3 章

テーパー付き流動層周辺部での 粒子循環特性

3. 1 緒 言

2つの流動層の間を粒子を循環させる、2搭式の粒子循環システムは石油の熱分解や接触分解などに広く使用されており⁵⁾、最近では石炭のガス化¹⁶⁾・直接還元製鉄⁹⁾・ボイラー¹⁵⁾などへの応用が注目されている。このようなプラントにおいては連続かつ安定操作を維持するため粒子循環量の制御が重要で、この目的のため多くの制御方式¹³⁾が実用化されているが、その設計手法は複雑である。一方、一搭式の粒子循環システムは製作コストの低減や粒子制御の容易さのため有利であり、層内にドラフトチューブ^{3, 18)}や仕切り板^{1, 6, 7, 8, 1)}などを挿入することにより循環を促進させたもの、層中央部にJet流れを起こし噴流層状の循環を生じさせたもの¹⁹⁾などが研究されており、今後その応用が期待される。

前章においてテーパー付き流動層の流動化特性の解明を行い、分散板直上のコア部と周辺部間に定常的な粒子循環挙動があることを報告した。従来の断面積一定の流動層においても層壁面部に定常的な粒子の下降域が存在することがすでに報告²⁰⁾されているが、明瞭な下降域は壁面近傍に限られる。これに対してテーパー付き流動層では周辺部全体が下降域となるため循環挙動は従来のものとは大きく異なる。しかし粒子混合¹⁴⁾や粒子滞留時間¹⁰⁾についての研究はあるが、粒子循環挙動については循環速度を始めとする諸特性はいまだ十分に研究がなされていない。そのため本章ではトレーサー粒子を用いて粒子循環挙動を可視化し、循環速度の測定と推算とを行った。

3. 2 実験装置および方法

3. 2. 1 実験装置

実験装置は第2章と同様でその概略を Fig. 3-1 に示す。層本体は粒子挙動が観察できるように透明アクリル樹脂製で、奥行き4 cm 一定の楔型のテーパ付き流動層を用いた。層入口幅は4 cm でテーパ角度は頂角 θ が 30° と 45° のものを使用した。また分散板は開口比 1.23% の多孔板である。層上部にはトレーサー粒子供給装置⑧を設置した。この装置はスライド式のシャッターを瞬時に開閉できる構造になっており、層上面全域にトレーサー粒子を均一に投下できるようにしている。なお1回の投下量は約 10g で、これにより流動層全面に側面から見ると幅約 5 mm の標識線を付けることができる。

本実験に用いた流動化粒子は 0.274mm と 0.650mm の球形ガラス粒子で、トレーサー粒子としては着色した 0.460mm の球形ガラス粒子を使用した。これらの粒子の物性を Table 3-1 に示す。Wen ら¹⁷⁾によると、粒径比が $\sqrt{2}$ 以下の同密度粒子であれば偏析は生じないことが報告されている。0.274mm および 0.650mm 径の粒子に対してトレーサー粒子との粒径比はそれぞれ 1.68 および 1.41 であり、前者に付いては粒径比が $\sqrt{2}$ より大きくなる。しかし層全重量に占めるトレーサー粒子の重量は多い場合でも 5% 以下であり、また比較的活発に流動化しているため層内にトレーサー粒子の偏析は観察されず、良好な粒子循環を維持することを確認している。なお粒子充填層高は 10・15・20cm の3通りである。

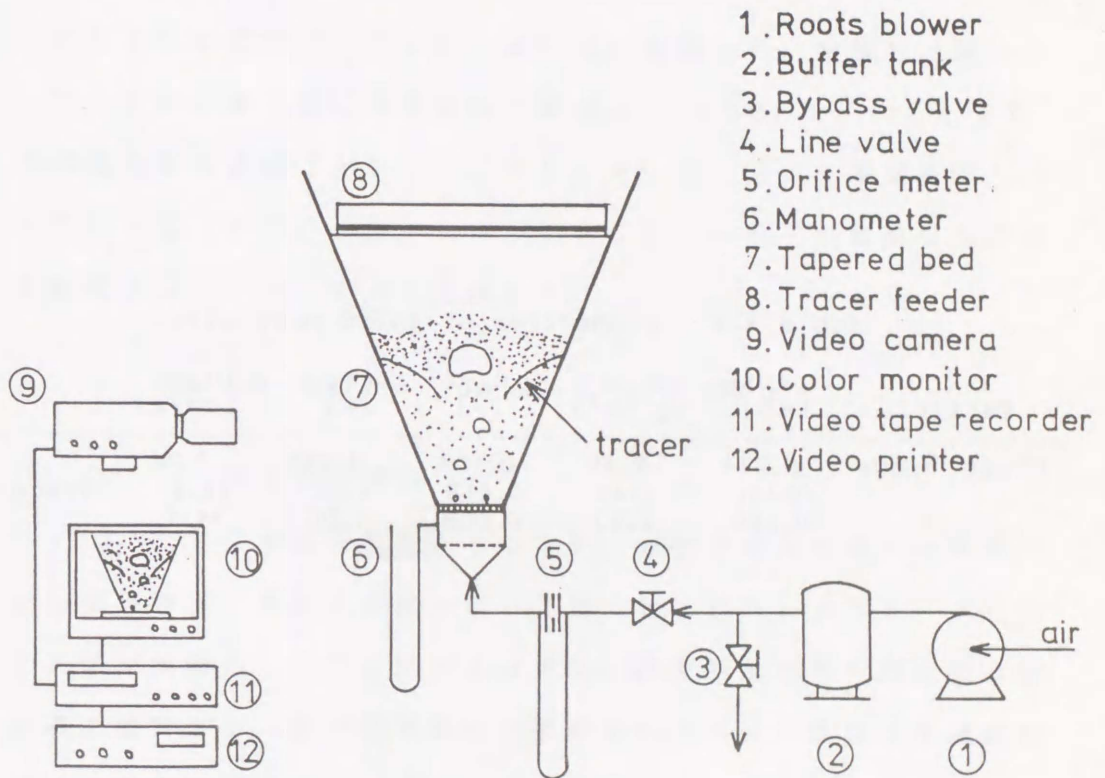


Fig. 3-1 Schematic diagram of the experimental apparatus

Table 3-1 Properties of solid particles

Particle	d_p [mm]	ρ_s [g/cm ³]	ϵ_{mf} [-]	ϕ_s [-]	u_{mf} [cm/s]	
Glass beads	0.274	2.49	0.404	0.995	7.26	
	0.460	2.49	0.418	1.00	19.4	Tracer
	0.650	2.50	0.408	1.00	34.4	

3. 2. 2 実験方法

任意流速で層内に定常的な粒子の循環流が形成されたのを確認した後、トレーサー粒子供給装置より層上面に着色粒子を投下した。層内のトレーサー粒子の動きは層前面より透明な壁面を通してビデオカメラ⑩で撮影し、カメラ内のストップウォッチによる経過時間と合わせてビデオテープレコーダー⑪に記録した。実験終了後トレーサー粒子が層上面に投下された瞬間より 0.5秒 ごとにもしくは 2~3個の気泡通過ごとにビデオプリンター⑫を用いて映像をプリントアウトし、デジタイザーによってトレーサー粒子の軌跡ならびに移動量をコンピューターに記録した。

3. 3 実験結果および考察

3. 3. 1 粒子循環挙動

Fig. 3-2 に単成分粒子からなるテーパー付き流動層の代表的な圧力損失特性と流動化挙動を示す。第2章で述べたように、A点でコア部が流動化し、BC間ではコア部のみ流動化状態で周辺部は固定層を維持する。粒子の循環流が観察されるのはC点以上の流速域で、まずCP間では気泡流動化の活発化と共にコア部の粒子は層表面において周辺部に移動し Fig. 3-2 中に示したように層上部の周辺部とコア部の間で局所的な粒子の循環が始まるが、周辺部壁面近くは静止層を保っている。この層上面での粒子の移動は気泡の破裂に伴う飛散とコア部と周辺部との静圧差の両者が関係すると考えられる。流速の増加と共にコア部から周辺部への粒子の移動量が増加するため、P点以上の流速になると周辺部全域が下降層となり、両層境界面から再びコア部に取り込まれコア部が上昇層となる。その

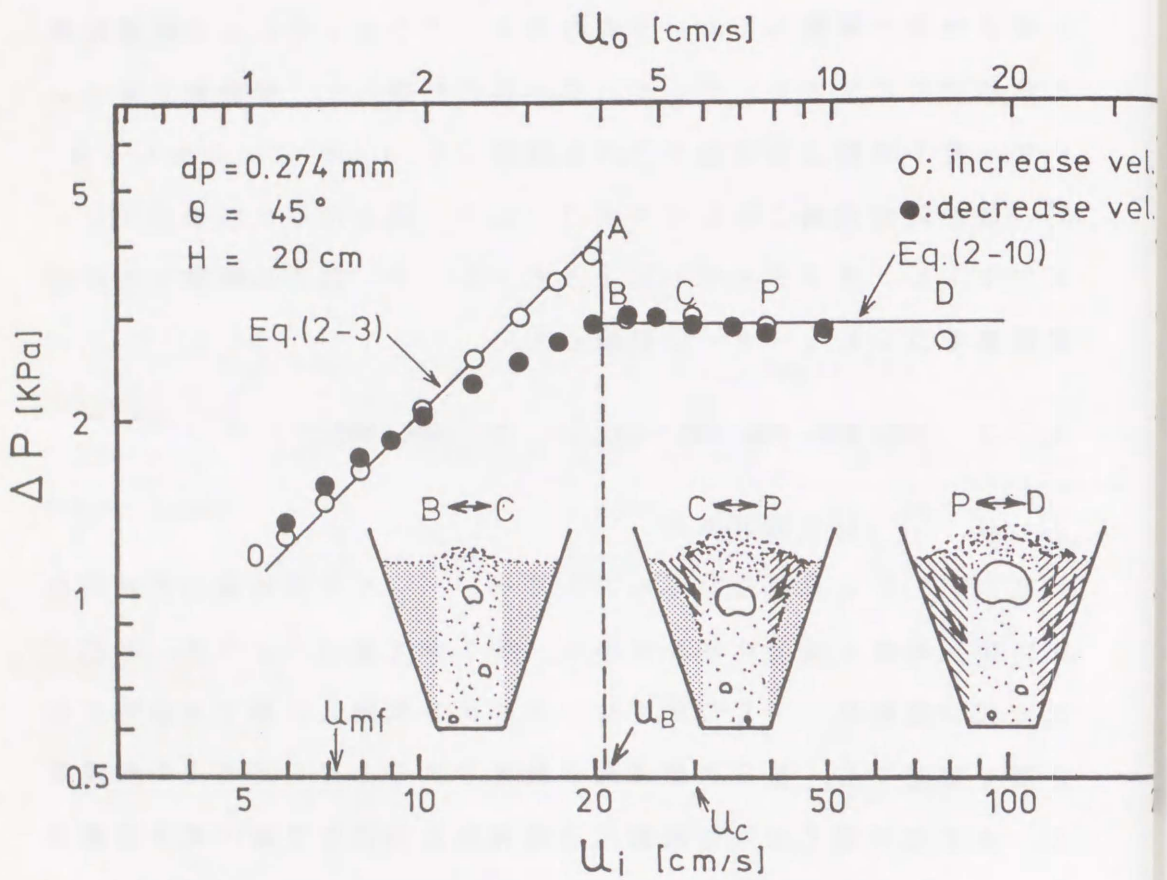


Fig. 3-2 Pressure drop characteristics and particle fluidizing behavior in tapered bed

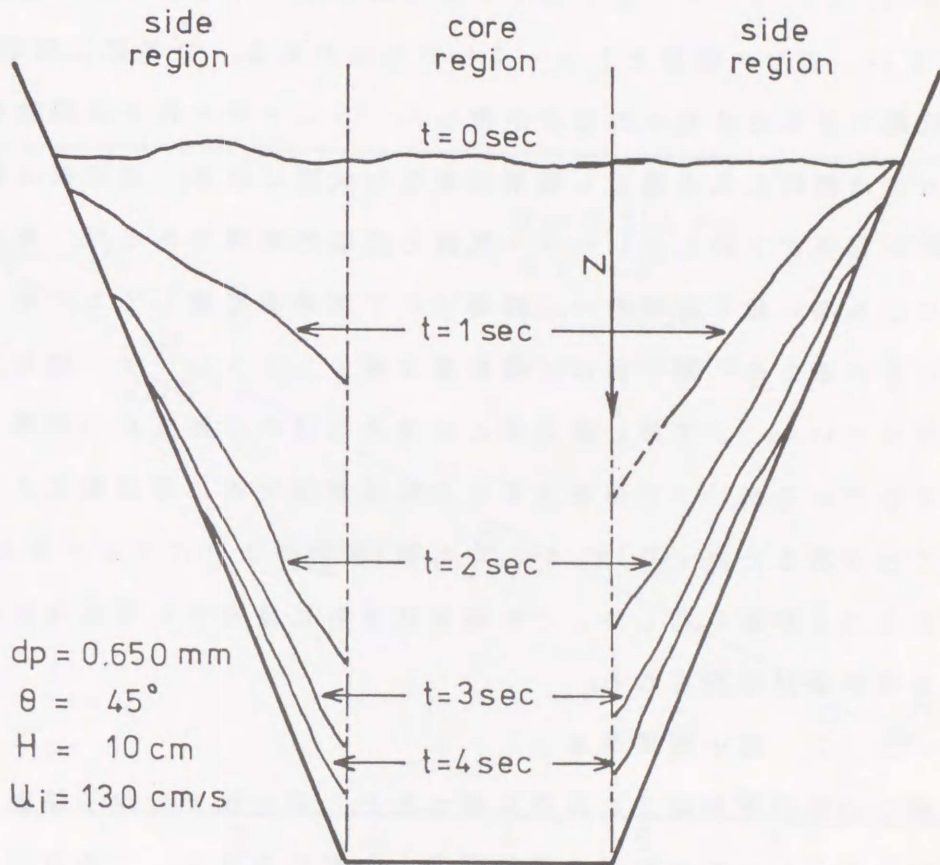


Fig. 3-3 Tracer particles movement in tapered bed

結果層内に定常的な粒子の循環が観察される。しかしD点以上の流速では通常型流動層と同様な層全体が完全混合状態となり、上昇層と下降層との明確な区別は出来なくなる。そのため定常的な粒子循環が観察されるCD間で実験を行った。

Fig. 3-3 はトレーサー粒子を層上面に投下してからの各経過時間 t [s] ごとの軌跡をトレースしたものである。コア部は気泡流動化状態であるため粒子の混合が激しく、トレーサー粒子は流動化粒子とほぼ瞬時に完全混合し識別出来ない状態になる。周辺部は移動層的に粒子が下降しトレーサー軌跡も比較的明瞭であるが、層の下降にともない粒子は図中一点鎖線で示す境界面を通してコア部に取り込まれるため、層下部ほど移動量は減少してトレーサー間隔が狭くなっていく。コア部と周辺部との境界は操作中鉛直かつ明瞭に維持されているが、コア部を上昇する気泡が間欠的に周辺部に入り込むことがあるため、Fig. 3-3 中右側1秒目のようにトレースが中断されることがある。しかしこの境界は直ちに復元され垂直な流動層間の境界面が形成される。

3. 3. 2 粒子循環速度

層内の粒子挙動は2次元性を保つため、周辺部での粒子移動量 V [cm^3] はトレーサー粒子の移動面積より求められる。この値と経過時間より粒子循環速度 v [cm^3/s] を求めトレーサー粒子の下降距離 z [cm] に対してプロットした結果を Fig. 3-4 に示す。ここで z はトレーサー粒子の軌跡が周辺部とコア部の境界 (Fig. 3-3 中の一点鎖線) を横切る位置で示した。粒子循環速度 v は z に対し直線的に減少して行くことがわかる。これは循環粒子が境界面を通して周辺下降層からコア部上昇層に層高に関わらず一定割合で移動し

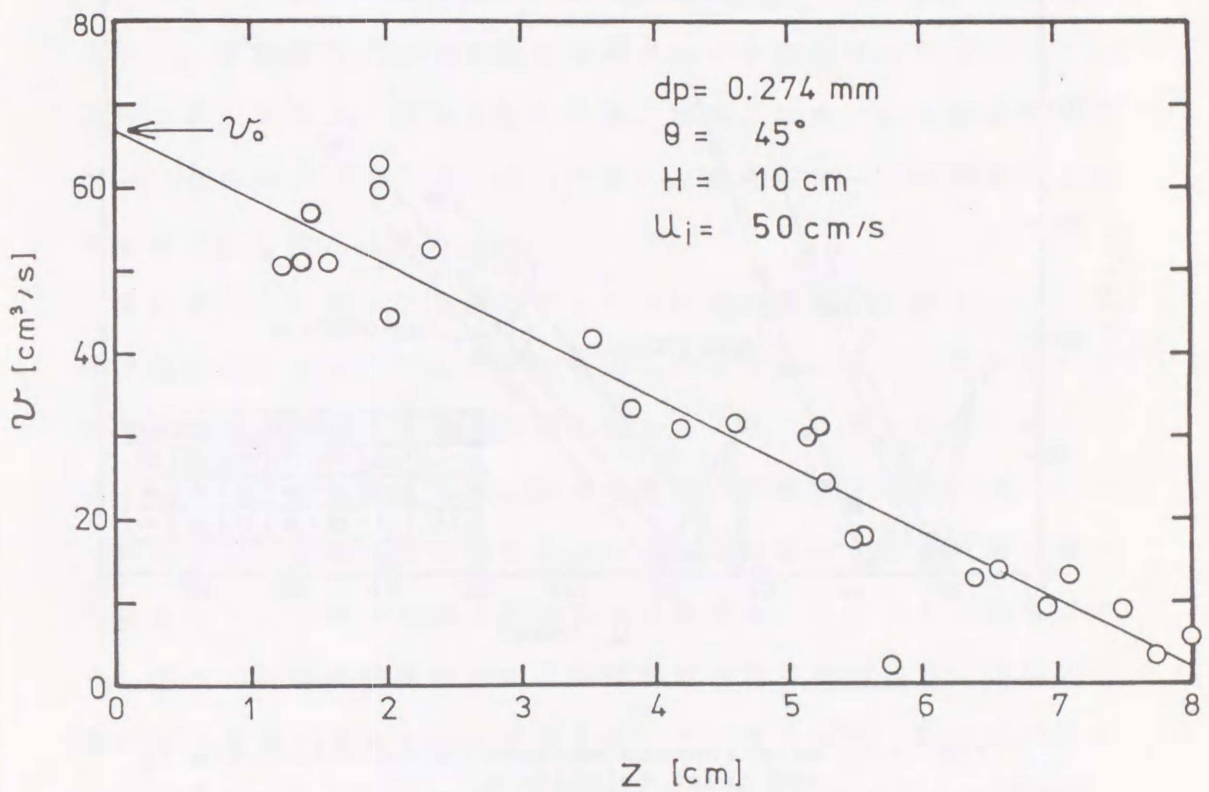


Fig. 3-4 Dependence of downward volume rate v on descendent length z

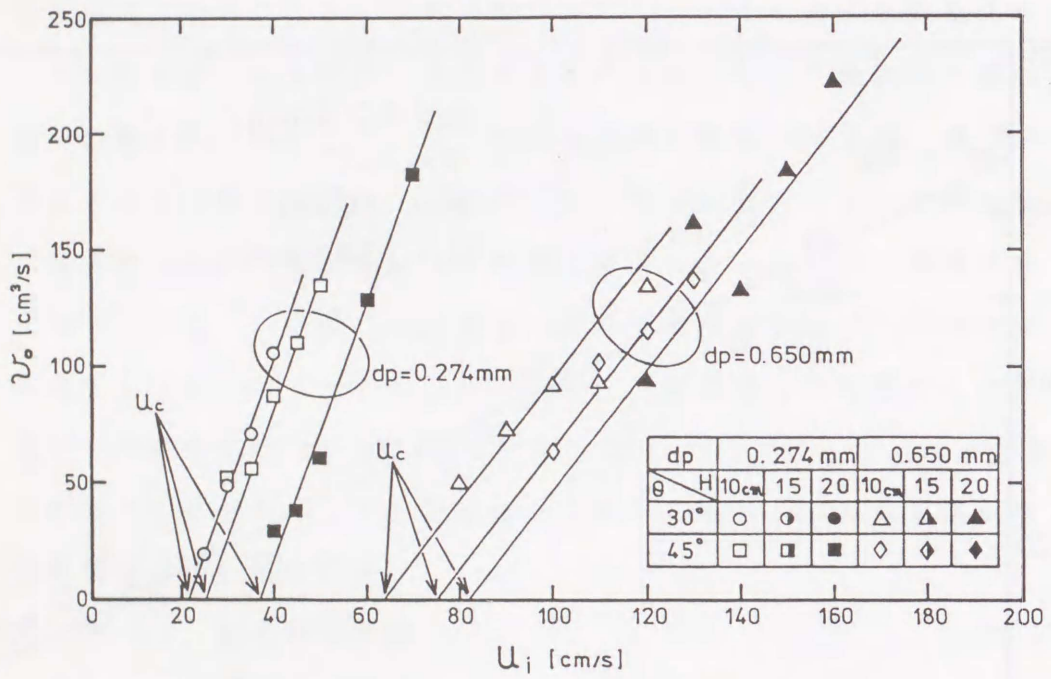


Fig. 3-5 Relationship between circulation rate v_0 and inlet velocity u_i

ていることを示している。ここで Fig. 3-4 の v の値を $z = 0$ cm に外挿することにより下降層表面における循環速度 v_0 を得ることが出来る。周辺部下端においては本測定法による移動量の詳細な測定は困難であったが、目視観察によれば停滞域の存在が認められた。この停滞域の上限は Fig. 3-4 において図中の直線が $v = 0$ と交わる高さとは正確には一致しない。

Fig. 3-5 に粒子循環速度 v_0 と流体流速 u_i [cm/s] との関係を示す。流動層内の気泡挙動の複雑さから測定精度が劣りデータにばらつきがあるが、循環速度は流速の増加とともにほぼ直線的に増加し、その傾きは粒子径が同じであれば層高やテーパ角度による相違はないと考えられる。

流動層中での粒子の上昇は主として気泡の通過によるドリフトと気泡底部のウェークに起因するものとされており、この両要因は共に操作流速に関係することが知られている²⁾。本章で着目しているテーパ付き流動層周辺部における循環（移動層下降流）は、この上昇粒子がコア部流動層上面における気泡破裂および層表面位置の差によってコア部から周辺部上面へ移動することによると観察される。従って周辺部循環速度は上記流動層内粒子循環速度、ひいては操作ガス流速の増大と共に増加することが考えられ、結果的には本実験範囲内では $(u_i - u_c)$ に比例するという関係が見いだされた。

対象とする粒子が2種類のみで不十分であるが、Fig. 3-5 における結果は粒子径の影響を受け、それぞれの操作流速に対する勾配はテーパ角、初期充填層高等の操作条件には関係しないものと認められる。またウェークの粒子同伴量は粒子径に関係することが知られており^{2, 11)}、一般的に流動層内粒子の上昇量に及ぼす粒子径の

影響が大きいことを示しているものと考えられる。

3. 3. 3 粒子循環開始流速: u_c

断面積一定の流動層においては最小流動化流速 u_{mf} 以上の流速が過剰ガス流速として取り扱われ、これが循環に寄与する⁴⁾と考えられている。テーパ付き流動層で粒子の循環が観察されるのは前述したようにC点以降であるが、この循環開始流速 u_c は目視観察では明確に定めることが困難であった。そこで Fig. 3-5 に示す粒子循環速度と流速との関係を $v_0 = 0$ となる点まで補外し、この点を粒子循環開始流速 u_c と定義した。

粒子固有の最小流動化流速 u_{mf} とテーパの付加によって流動化開始流速が u_{mf} から u_B へ増加することを考慮して、 u_c について次式で示す実験式を提出した。

$$u_c = u_{mf} + 7.0(u_B - u_{mf})^{0.53} \quad (3-1)$$

u_B は第2章で述べたテーパ付き流動層における最小流動化流速で、Eq. (3-2) の通り粒子性状と層形状によって定まる。テーパ角 θ を小さくしていくことにより u_B は u_{mf} に収束¹²⁾するが、この場合 Eq. (3-1) は通常型流動層における $u_c = u_{mf}$ を満足している。

$$\begin{aligned} & \left(C_2 \frac{W_i^2 H}{W_o - W_i} \ln \frac{W_o}{W_i} \right) u_B^2 + (C_1 W_i H) u_B \\ & = (1 - \varepsilon_{mf}) (\rho_s - \rho_f) (W_o + W_i) g H / 2 \end{aligned} \quad (3-2)$$

ここで

$$C_1 = 150 \frac{(1 - \varepsilon_{mf})^2}{\varepsilon_{mf}^3} \frac{\mu}{(\phi_s d_p)^2}$$

$$C_2 = 1.75 \frac{1 - \varepsilon_{mf}}{\varepsilon_{mf}^3} \frac{\rho_f}{\phi_s d_p}$$

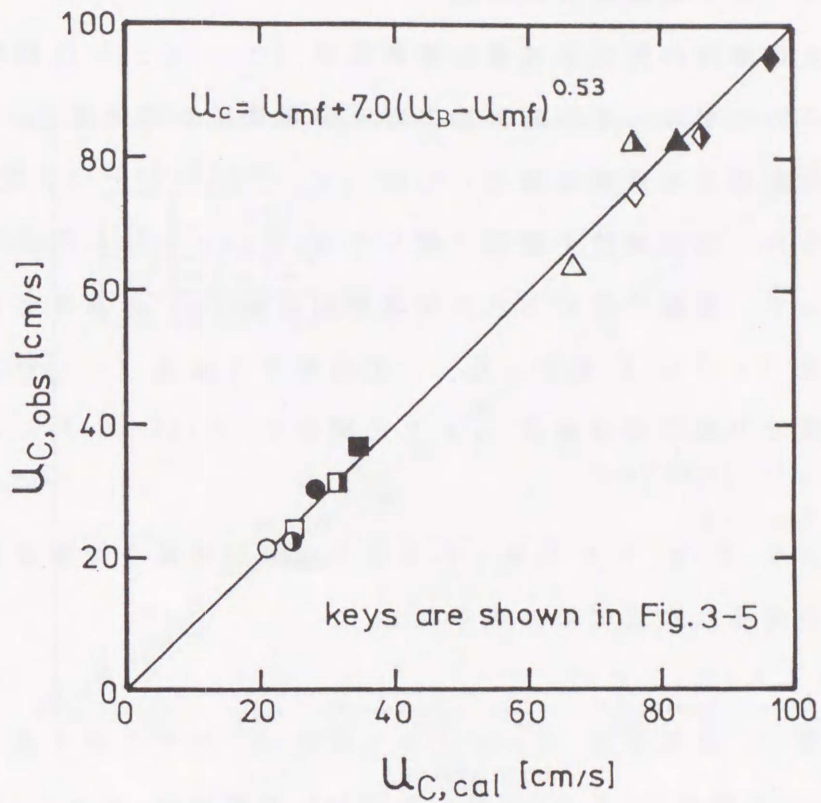


Fig. 3-6 Comparison of experimental incipient circulation velocities u_C with those of calculated values

Fig. 3-6 に Eq. (3-1) による計算値と実測値との比較を示す。粒径 0.274mm と 0.650mm の両粒子とも計算値は実測値とよく一致し、テーバー付き流動層での粒子循環開始流速 u_c は流動化粒子の物性と層形状が与えられれば求められる。

3. 3. 4 粒子循環速度の相関

通常型流動層内の気泡形成量は過剰流速 ($u_i - u_{mf}$) に関係することが知られており、その結果層内粒子循環量にも関係する。テーバー付き流動層でも過剰流速としては ($u_i - u_b$) が一つの定義と考えられるが、周辺部粒子循環に関しては Fig. 3-5 に示す実験結果を考慮して、前節で定められた循環開始流速 u_c を基準とする過剰ガス流速 ($u_i - u_c$) をとった。この過剰ガス流速 ($u_i - u_c$) と周辺部上面での粒子循環速度 v_0 との関係を示す Figs. 3-7, 3-8 に示す。

これらより Fig. 3-5 に見られるような周辺部粒子循環速度と操作流速との関係は次式でまとめられる。

$$v_0 = K A (u_i - u_c) \quad (3-3)$$

ここで定数 K は粒子径 d_p によって変化し、図中に示す通り d_p が 0.274mm の場合は $K = 0.360$ 、0.650mm の場合は $K = 0.181$ となった。本実験で用いた2種類の粒子に対しては、粒径の増大と共に K は減少する結果を示している。

流動層内粒子上昇に関与するウェークについては、粒子径が増大するほどウェーク分率は小さくなり 1.52mm 以上の粒子では存在しないことが言われている²⁾。他方ドリフトの効果についてはドリフト比と粒子径との関係は十分明らかにされていない。本報でも粒子径に対する実験が十分でないためこれ以上の言及はできない段階で

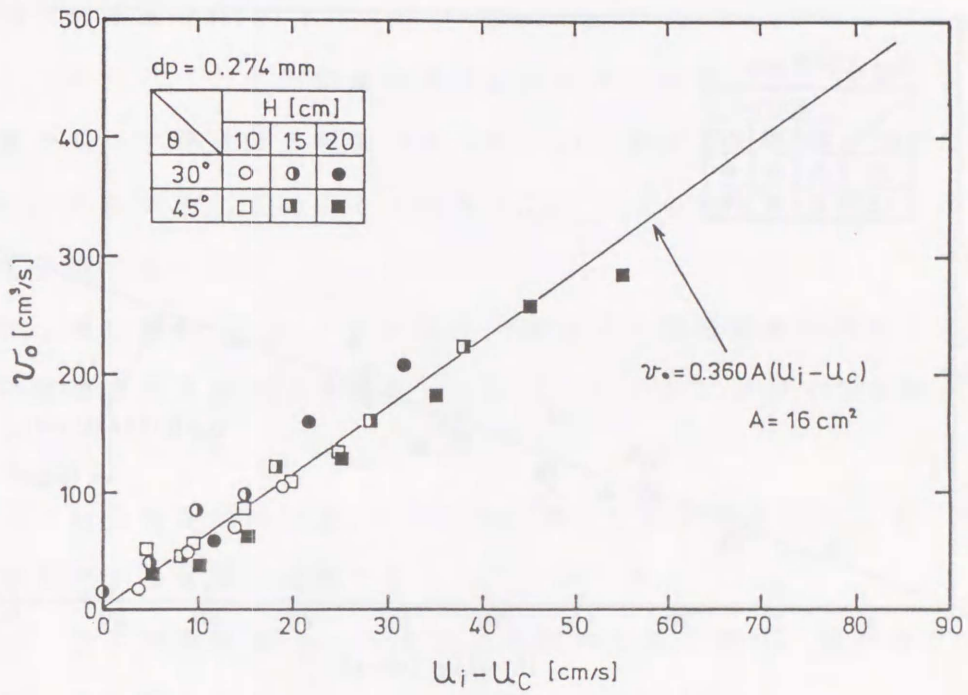


Fig. 3-7 Relationship between circulation rate v_0 and excess gas velocity $(u_i - u_c)$ for $d_p = 0.274$ mm

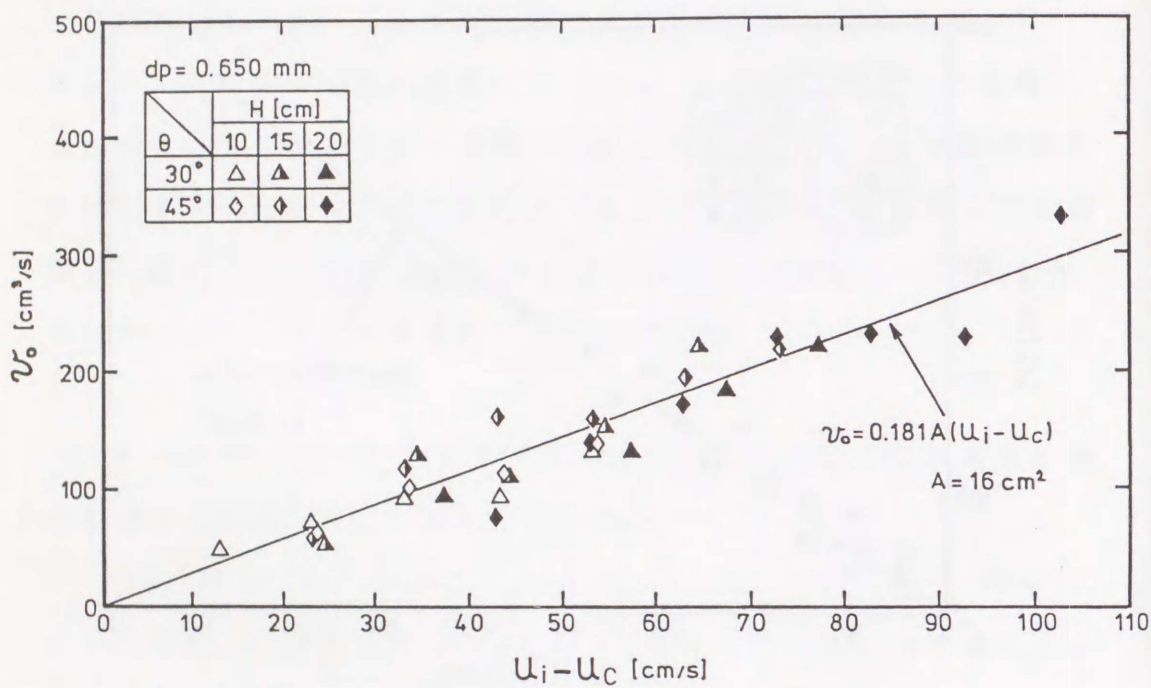


Fig. 3-8 Relationship between circulation rate v_0 and excess gas velocity $(u_i - u_c)$ for $d_p = 0.650 \text{ mm}$

ある。

3. 4 結 言

2次元のテーパー付き流動層で粒子を流動化する時に見られるコア部と周辺部との粒子循環挙動に着目し、トレーサー粒子を用いて粒子挙動の可視化を行った。粒子循環速度の測定ならびに推算を行い以下の結論を得た。

1. テーパー付き流動層は通常型流動層とは異なり、流速によって層中央コア部は気泡頻度が高く粒子が上昇する上昇層、周辺部は粒子が移動層的に下降する下降層という2つの部分に分かれて循環流を形成する。

2. 周辺部でのトレーサー粒子下降量から循環速度を決定した。粒子循環速度は過剰ガス流速 ($u_i - u_c$) と共に増加する傾向があることがわかった。

3. 粒子循環開始流速 u_c の測定ならびに推算を行い、粒子物性と層形状から推算が可能であることを示した。

4. 粒子循環速度 v_0 を推算する簡単な式を求め、実験値との良好な一致を確かめた。

使用記号

A	= cross-sectional area of core region	[cm ²]
C ₁	= constant in Eq. (3-2)	[Pa·s/cm ²]
C ₂	= constant in Eq. (3-2)	[g/cm ⁴]
d _p	= particle diameter	[mm]
g	= acceleration of gravity	[cm/s ²]
H	= bed height	[cm]
K	= constant in Eq. (3-3)	[-]
ΔP	= pressure drop of tapered bed	[Pa]
t	= time	[sec]
u _B	= incipient fluidization velocity for tapered bed	[cm/s]
u _C	= incipient circulation velocity for tapered bed	[cm/s]
u _i	= fluid velocity at bed inlet	[cm/s]
u _{mf}	= minimum fluidization velocity	[cm/s]
u _O	= fluid velocity at bed outlet	[cm/s]
V	= moved bed volume in side region	[cm ³]
v	= volumetric flow rate of particle bed in side region	[cm ³ /s]
v ₀	= volumetric circulation rate of particle bed	[cm ³ /s]
W _i	= inlet width of tapered bed	[cm]
W _O	= outlet width of tapered bed	[cm]
z	= descendent length of tracer particle at core wall	[cm]
ε _{mf}	= void fraction at u _{mf}	[-]
θ	= apex angle of tapered bed	[deg]
μ	= fluid viscosity	[Pa·s]
ρ _f	= fluid density	[g/cm ³]

ρ_s = particle density [g/cm³]

ϕ_s = shape factor of particle [-]

参 考 文 献

- 1) Bolton,L.W. and J.F.Davidson: Chem. Eng. Comm.,62,31 (1987)
- 2) Cranfield,R.R.: A.I.Ch.E. Symp. Ser.,74,No.176,54 (1978)
- 3) Ishida,M. and T.Shirai: J. Chem. Eng. Japan,8,477 (1975)
- 4) Kunii,D. and O.Levenspiel: Ind. Eng. Chem. Fundam.,7,446 (1968)
- 5) Kunii,D. and O.Levenspiel: "Fluidization Engineering", p16,Krieger,New York (1977)
- 6) Kuramoto,M. T.Furusawa and D.Kunii: Powder Tech.,44,77 (1985)
- 7) Kuramoto,M. D.Kunii and T.Furusawa: ibid,47,141 (1986)
- 8) Lanauze,R.D.: Powder Tech.,15,117 (1976)
- 9) Mori,K., K.Shinohara, Y.Takenaka and T.Kamijyo: Kagaku Souchi,28,No.6,99 (1986)
- 10) Ridgway,K.: Chem. Proc. Eng.,June,317 (1965)
- 11) Rowe,P.N. and B.A.Partridge:Trans. Inst. Chem. Eng.,43,157 (1965)
- 12) Shi,Y.F., Y.S.Yu and L.T. Fan: Ind. Eng. Chem. Fundam., 23,484 (1984)
- 13) Shimizu,T.: Chem. Eng. (in Japanese),33,No.10,23 (1988)
- 14) Sutherland,K.S.: Trans. Inst. Chem. Eng.,39,188 (1961)
- 15) Takebayashi,T. and T.Oshida: Kagaku Souchi,28,No.6,109 (1986)
- 16) Waters,P.L. and K.McG.Bowling: "Fluidization",p202, Cambridge Univ. Press,U.K. (1978)

- 17) Wen, C.Y. and Y.H. Yu: Chem. Eng. Prog. Symp. Ser., 62,
No. 62, 100 (1966)
- 18) Yang, W.C. and D.L. Keairns: Can. J. Chem. Eng., 61, 349
(1983)
- 19) Yang, W.C. B. Ettehadieh and G.B. Haldipul: A.I.Ch.E.
Journal, 32, 1994 (1986)
- 20) Yoshioka, S. T. Miyamoto J. Tomuro M. Hirato N. Kiuchi and
Y. Ishibashi: Kagaku Kogaku Ronbunshu, 10, 545 (1984)

第 4 章

二成分混合粒子からなる
テーパー付き流動層の流動化特性

4. 1 緒言

断面積が層高と共に増加するテーパ付き流動層では高さ方向に流速が変化するため、層入口部では出口部より速い流速を維持することが可能となる。このため多成分混合粒子または粒度分布の広い粒子の流動化に際しては、この流速分布により粒子の分級効果が促進され偏析を引き起こすと考えられる。

一成分粒子からなるテーパ付き流動層については第2章と第3章で述べた。しかし多成分混合粒子の流動化に関しては、液-固系についての Maruyama ら⁴⁾の研究、また気-固系についてはガス入口部に分散板を有しない噴流層に近い形状の層を用いた Yang ら⁷⁾の研究があるだけで流動化特性を始めとする諸特性は十分明らかにされているとはいえない。

そこで、本章では多成分混合粒子として同密度で粒径のみ異なる二成分混合粒子を取り上げ、テーパ付き流動層で流動化させたときの、圧力損失・粒子挙動および偏析挙動などの流動化特性について検討を加えた。

4. 2 実験装置および方法

4. 2. 1 実験装置

実験装置は第2章と同様でその概略を Fig. 4-1 に示す。層本体は奥行き 4 cm 一定の楔型のテーパ付き流動層で、粒子挙動を観察できるように透明アクリル樹脂製である。テーパ角度は頂角 θ が $15^\circ \cdot 30^\circ \cdot 45^\circ$ で、層入口部は $4 \text{ cm} \times 4 \text{ cm}$ 、開口比 1.23% の多孔を分散板に使用した。各部の寸法を Table 4-1 に示す。また内

1. roots blower
2. buffer tank
3. bypass valve
4. line valve
5. orifice meter
6. manometer
7. tapered bed

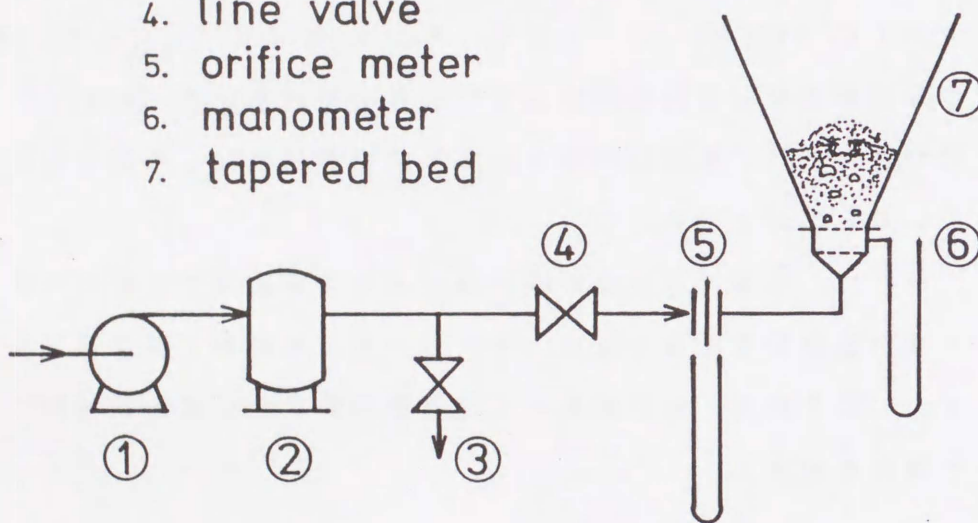


Fig. 4-1 Schematic diagram of the experimental apparatus

Table 4-1 Dimensions of tapered bed

Shape	apex angle θ [deg]	inlet W X D [cm]	overall height L [cm]
Wedge	15	4.0X4.0	80.0
	30		80.0
	45		52.0

Table 4-2 Properties of solid particles

Particle	d_p [mm]	ρ_s [g/cm ³]	ϵ_{mf} [-]	ϕ_s [-]	u_{mf} [cm/s]	group ³⁾
Glass beads	0.274	2.49	0.404	0.995	7.26	B
	0.385	2.49	0.416	1.00	14.5	B
	0.460	2.49	0.418	1.00	19.4	B
	0.545	2.49	0.414	1.00	26.0	B
	0.650	2.50	0.408	1.00	34.4	B
	0.775	2.49	0.429	1.00	41.7	B
	0.920	2.49	0.413	1.00	56.5	D
	1.095	2.49	0.398	1.00	63.4	D
	1.300	2.50	0.406	1.00	76.5	D
	1.545	2.49	0.412	1.00	85.1	D
	1.840	2.49	0.397	1.00	97.2	D
	2.190	2.49	0.413	1.00	111	D
	2.605	2.49	0.408	1.00	135	D

径 10cm の円筒型流動層を従来型流動層として用いた。

本実験で用いた粒子の物性を Table 4-2 に示す。粒径の異なる 13 種類のガラスビーズを用いており、この中から 2 つの粒子を組合せて二成分混合試料を調製した。

4. 2. 2 実験方法

2 種類の粒子を沈降性粒子（大粒子）基準で 20・40・60・80wt% の決められた重量分率で十分混合した後、層高が 10 または 20cm になるように層内に充填した。流動化は通常の方法と同様で、流動化流体を段階的に増加させ、各流速での層圧力損失と粒子挙動を測定ならびに観察した。完全混合状態になった後、流速を減少させ同様な測定を行った。

沈降性粒子の層高さ方向の濃度分布の測定は 15 分間所定流速で流動化させ定常状態になったのを確認後、流体の送入を急激に止め、層上面より粒子を 1 cm 毎に真空吸引によりサンプリングした。各サンプルごとにふるい分けによって沈降性粒子の重量分率 X_j を求めた。

4. 3 流動化特性

代表的な圧力損失特性および粒子流動化状態の模式図をそれぞれ Fig. 4-2 および Fig. 4-3 に示す。Fig. 4-2 中○は流速増加時の、また●は流速減少時の圧力損失の実測値を示す。また空塔速度として横軸下側に層入口面基準 (u_i)、上側に層出口面基準 (u_o) の値を示す。

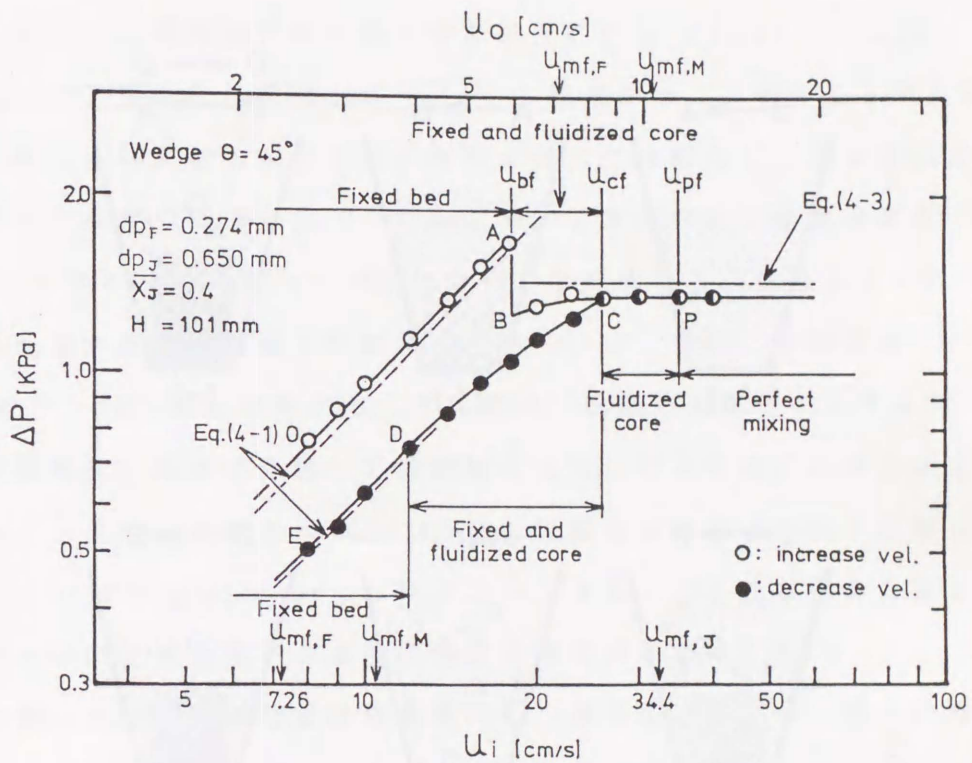


Fig. 4-2 Pressure drop characteristics for tapered bed of binary particle mixture

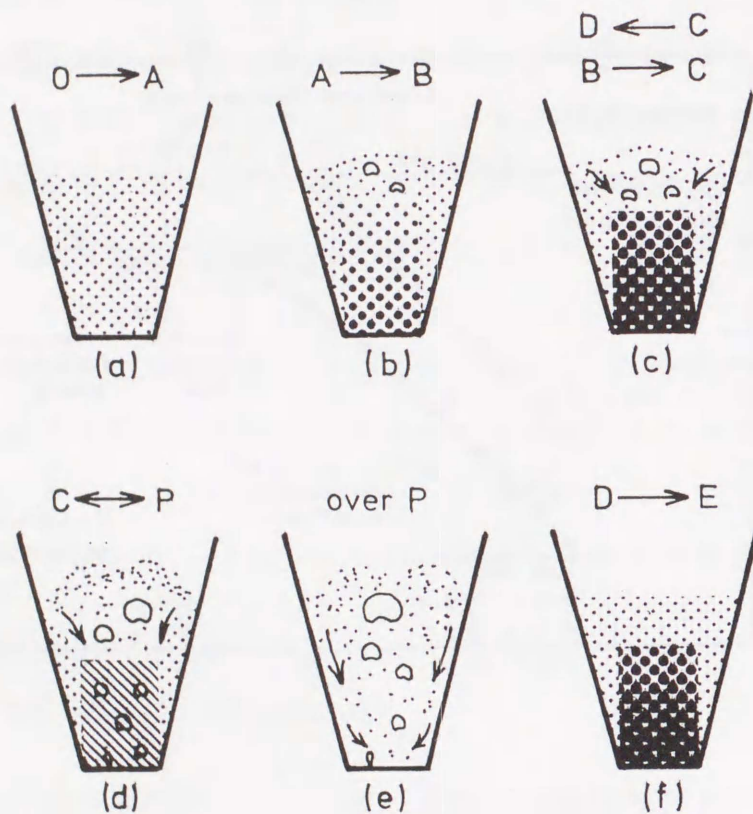


Fig. 4-3 Fluidizing characteristics for tapered bed of binary particle mixture

- (a) Fixed bed
- (b) Incipient of fluidization
- (c) Partial fluidized bed with fixed and fluidized core
- (d) Partial fluidized bed with fluidized core
- (e) Perfect mixing
- (f) Fixed bed

4. 3. 1 流速増加時の粒子流動化状態

1) 固定層 (O → A) テーパー付き流動層では層入口部における流速が最大であるため、ここでの流速が混合粒子の最小流動化速度 $u_{mf,n}$ に達すれば層入口から流動化が始まると考えられる。しかし、一成分の時と同様ここでは流動化はおこらず、この速度以上のA点まで初期充填状態の固定層が維持される (Fig. 4-3(a))。

2) コア部流動化開始 (A → B) 流速がA点を超えると層入口部と等しい断面積を有するコア部が上面まで流動化し、圧力損失は直下のB点まで降下する。この点における流速を流動化開始速度 u_{bf} とする。この時、コア部においては流体や生成気泡による粒子の再配置が起こり、浮上性粒子 (小粒子) は上部に、沈降性粒子 (大粒子) は下部に移動する。その結果、沈降性粒子を主とする層がコア部底部に柱状に分離して固定層となり、浮上性粒子は層上部に集中して流動化状態を保つ。この様な状態を本論文では柱状偏析 (core-type segregation) と呼ぶこととする。この柱状偏析の高さとその中の沈降性粒子の濃度は初期充填組成に依存する。

他方、周辺部は初期固定層を維持し、層全体としては一成分の場合と同様な垂直方向に分割された部分流動層を形成する (Fig. 4-3(b))。

3) コア部部分流動化領域* (B → C) BC間の流速範囲では、コア部に柱状に偏析した粒子層は流速の増加と共に局所的かつ間欠的な流動化をおこし、この中にある浮上性粒子の分離を促進させる。

*条件によってはこの領域は存在せず流動化後ただちに後述するコア部流動化領域になる。この時、周辺部は完全流動化に至るまで固定層を維持し移動層的な下降域の存在は顕著ではない。

これによりコア部底部での沈降性粒子の偏析は顕著になり、上部での浮上性粒子の流動化はしだいに激しくなる。

これにともないコア部上面から周辺部へ粒子が定常的に飛散するため、偏析柱より上部の周辺部は移動層的な粒子の下降域を生じ、その範囲は流速の増加と共にコア部近傍より層壁面に広がっていく。しかし、偏析柱より下部の周辺部は依然として固定層を維持している (Fig. 4-3(c))。

この間の圧力損失は流速と共に漸増し、次節で述べる流動化圧損に達する。

4) コア部流動化領域 (C → P) 流速がC点に達すると圧力損失は以後一定となる。C点近傍では偏析層は殆ど静止状態に見受けられるが、圧力損失の挙動からこの層は流動化状態を維持していると見なすことができる。このC点をコア部流動化開始速度 u_{0f} とする。また、コア部上部は浮上性粒子が主であるため、底部に較べて激しい流動化状態を示している。

一方、周辺部はほぼ全域にわたって流動化状態で、コア部から周辺部に飛散する粒子が増えるため粒子の下降速度は速くなるが、偏析柱周囲の粒子は停滞している (Fig. 4-3(d))。

5) 完全混合領域 (P →) 流速をさらに増加させるとコア部に見られた偏析柱は消滅し、層全体が均一混合状態となる (Fig. 4-3(e))。この領域の開始点Pを完全混合開始速度 u_{0f} とする。この点は圧力損失や観察によっては定めにくく、層内の粒子濃度分布の測定が必要である。この領域でも層周辺部は穏やかな流動化状態を保つため、層全体の粒子挙動は第3章の単成分粒子の時と同様にコア部での上昇、周辺部での下降という粒子の循環が見られ、テーパ

一付き流動層の特徴の一つとなっている。

4. 3. 2 流速減少時の粒子流動化状態

1) 完全混合領域 ($\rightarrow P$) 流速減少時においてもP点までは層全体が均一混合状態であり、層内に粒子の分離を生じない (Fig. 4-3(e))。

2) コア部流動化領域 ($P \rightarrow C$) P点以下になるとコア部底部に沈降性粒子が再び分離し流動化状態の偏析柱が発生する。この偏析柱の周辺部で一部粒子は混合状態で静止し始めるが、これより上部では粒子はコア部と周辺部間で循環をしながら流動化状態を維持する (Fig. 4-3(d))。

また、C点までは圧力損失は一定を保つ。

3) コア部部分流動化領域 ($C \rightarrow D$) C点以下になるとコア部底部に見られる沈降性粒子の偏析柱は流動化を停止するが、コア部上部の浮上性粒子は依然として流動化状態である。一方、周辺部の粒子は混合状態のまま上面の一部を除いて静止する (Fig. 4-3(c))。

このため圧力損失は流速と共にC点より減少するが、層内に依然流動化領域が存在するためその傾きは固定層のものよりも小さくなっている。

4) 固定層 ($D \rightarrow E$) D点以下の流速ですべての粒子は静止し層内に偏析が残ったまま固定層になる (Fig. 4-3(f))。

圧力損失は流速増加時の均一混合状態の固定層と同様な傾きで減少するが、層内に沈降性粒子を主とする偏析層が存在するためその値は増加時と一致せず、これよりも小さくなる。

4. 4 流動化特性についての考察

4. 4. 1 圧力損失

1) 固定層 二成分混合粒子の場合も固定層においては流体は層内を一様に流れると仮定すると、混合粒子層を代表する空間率や粒径が得られれば、圧力損失は第2章と同様以下の式で推算が可能となる。

$$\Delta P = C_1 \frac{u_i W_i}{2 \tan(\theta/2)} \ln \frac{W_0}{W_i} + C_2 u_i^2 \frac{W_i}{W_0} H \quad (4-1)$$

ここで

$$C_1 = 150 \frac{(1 - \varepsilon_{mf,M})^2}{\varepsilon_{mf,M}^3} \frac{\mu}{(\phi_s d_{p,M})^2}$$

$$C_2 = 1.75 \frac{1 - \varepsilon_{mf,M}}{\varepsilon_{mf,M}^3} \frac{\rho_f}{\phi_s d_{p,M}}$$

また添字 $i, 0$ はそれぞれ層入口面及び出口面における値を、また添字 M は混合粒子の値を示す。

混合粒子においては、代表粒径 $d_{p,M}$ と空間率 $\varepsilon_{mf,M}$ の値が特に重要となるが、本論文では $d_{p,M}$ については調和平均径を代表径として用い、また $\varepsilon_{mf,M}$ については各成分粒子の空間率 ε_{mf} より多成分の値を推算する鈴木ら⁶⁾の式を用いた。これは各粒子に着目した際の空間率 $\varepsilon_j [-]$ にその粒子の体積基準の混合分率 $*S v_j$ を掛けたものの総和により層全体の空間率 ε を求めるもので次式で表される。

*本実験では同密度粒子を使用しているため体積基準の混合分率

$S v_j$ は重量基準の混合分率 \bar{X}_j と一致する。

$$\varepsilon_{mf,m} = \sum_{j=1}^2 S_{Vj} \cdot \varepsilon_j \quad (4-2)$$

Fig. 4-4 に鈴木らによる推算値とわれわれの行ったテーパー付きおよび円筒容器での実測値との比較を示す。単成分での空間率 ε_{mf} の実測値が円筒とテーパー付きとで一致しないこと及びテーパー付きでは均一混合状態を作成・維持することが困難なため、ある程度のデータのばらつきは認められるが、全体的によく一致し実用的に十分であると認められる。

流速増加時 (O → A) では、層内は充填時の混合状態を維持しているため、均一混合層の値を用い、Eq. (4-1) によって圧力損失 ΔP を求めた。他方、流速降下時 (D → E) には柱状偏析状態を維持しているため、次節の Fig. 4-6 中に一点鎖線で示すようにコア部を上下2層に分け各層の平均粒子濃度の値を用いて、同様に ΔP を求めた。各々の場合の推算値を Fig. 4-2 中に破線で示す。

偏析により混合粒子が分離して生じた2つの層はそれぞれほぼ浮上性粒子、沈降性粒子から構成されるので、その空間率は完全混合時の粒子の空間率より大きくなる。そのため固定層の圧力損失は初期充填時より偏析後の方が小さい値を示す。混合粒子が充填された時の物性推算の精度を考慮すれば、流速増加時・下降時とも計算値と実測値とはよく一致していると認められ、テーパー付き層内の固定層での圧力損失は Eq. (4-1) で算出できることが確かめられた。

2) 流動層 コア部での流動化が達成されれば、周辺部の状態に無関係に圧力損失は以下の式で与えられる。

$$\Delta P = (1 - \varepsilon_{mf,m})(\rho_s - \rho_f)gH \quad (4-3)$$

Eq. (4-3) による計算値を Fig. 4-2 中に一点鎖線で示す。実

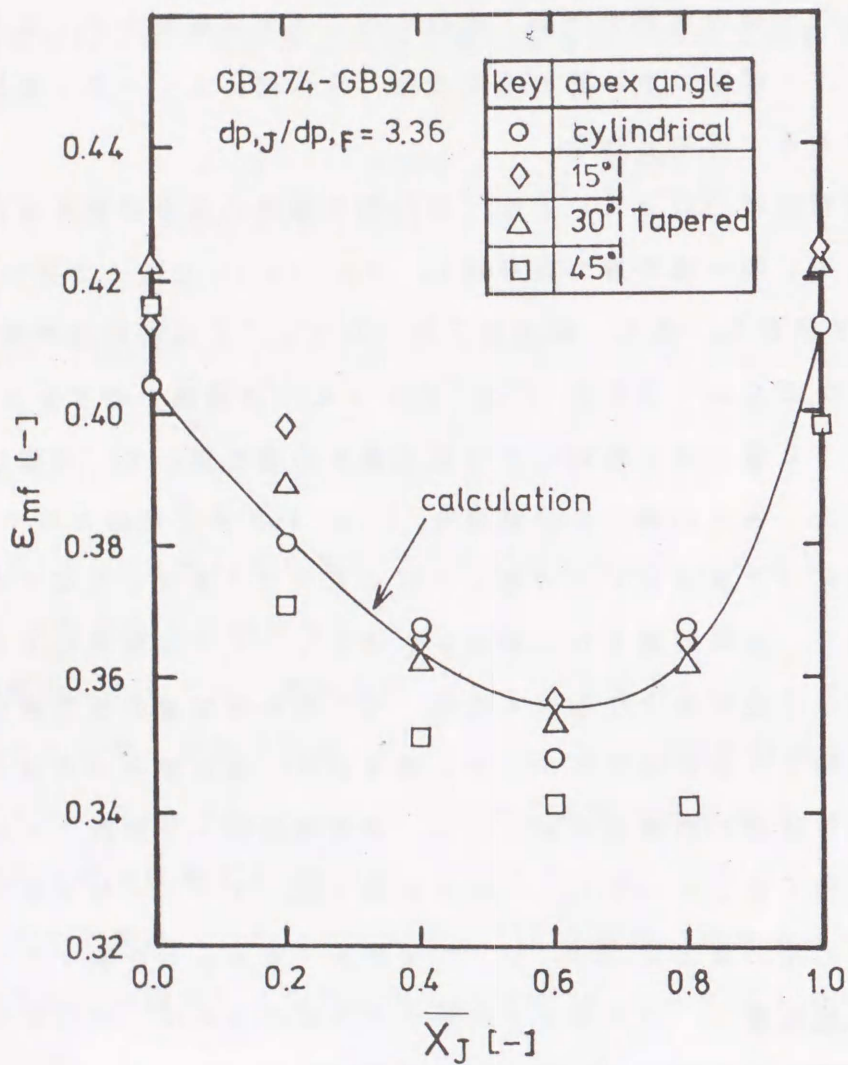


Fig. 4-4 Comparison of calculated void fraction with experimental value in tapered bed

測値と比較すると、実測値は計算値より若干下がる傾向が見られた。これは層膨張とコア部の粒子が周辺部に飛散するため、コア部の実質的な粒子充填率 $(1 - \varepsilon_{mf,m})$ が小さくなるためであると考えられる。

4. 4. 2 流動化開始速度: u_{bf}

断面積が一定の従来型流動層について Cheung ら²⁾ は二成分混合粒子に対する流動化開始速度の推算式 Eq. (4-3) を提出しており、実験値ともよく一致をすることが知られている¹⁾。

$$u_{bf} = u_{mf,F} \left(\frac{u_{mf,J}}{u_{mf,F}} \right) \overline{X}_J^2 \quad (4-4)$$

この式には浮上性・沈降性両粒子の最小流動化速度のみが関与し層形状には無関係であるので、テーパ付き流動層にも拡張することができると考えられる。Fig. 4-5(a) に本式による推算値とテーパ付き流動層における実測値との比較を示す。テーパ角には無関係に粒径比が4以下の場合についてはほぼよい一致を示すが、それ以上(図中◇印)になると実測値と推算値はかなり大きくはずれることがわかる。

他方、テーパ付き流動層(楔型)での流動化開始点の推算として、Shi ら⁵⁾ は液-固系について次式を提出している。

$$\begin{aligned} & \left(C_2 \frac{W_i^2 H}{W_o - W_i} \ln \frac{W_o}{W_i} \right) u_{bf}^2 + (C_1 W_i H) u_{bf} \\ & = (1 - \varepsilon_{mf,m}) (\rho_s - \rho_f) (W_o + W_i) g H / 2 \end{aligned} \quad (4-5)$$

また第2章でこの式は気-固系にも適用できることが確かめられた。二成分混合粒子における $\varepsilon_{mf,m}$ と $d_{p,m}$ を前述した手法により計算し Eq. (4-5) に代入することにより混合粒子からなるテーパ-

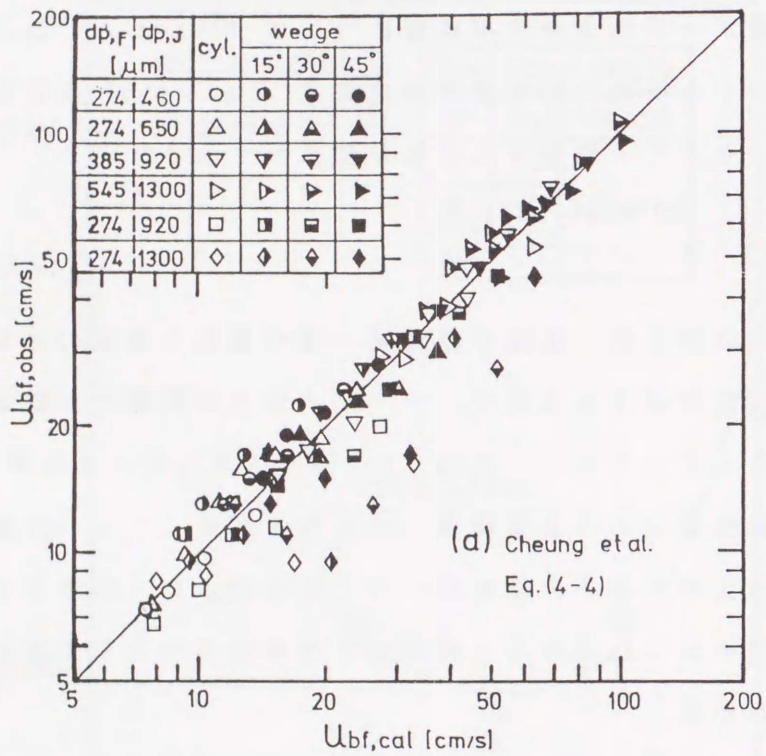


Fig. 4-5(a) Comparison of experimental incipient fluidizing velocity u_{bf} with those of calculated value from Cheung et al. in Eq. (4-4)

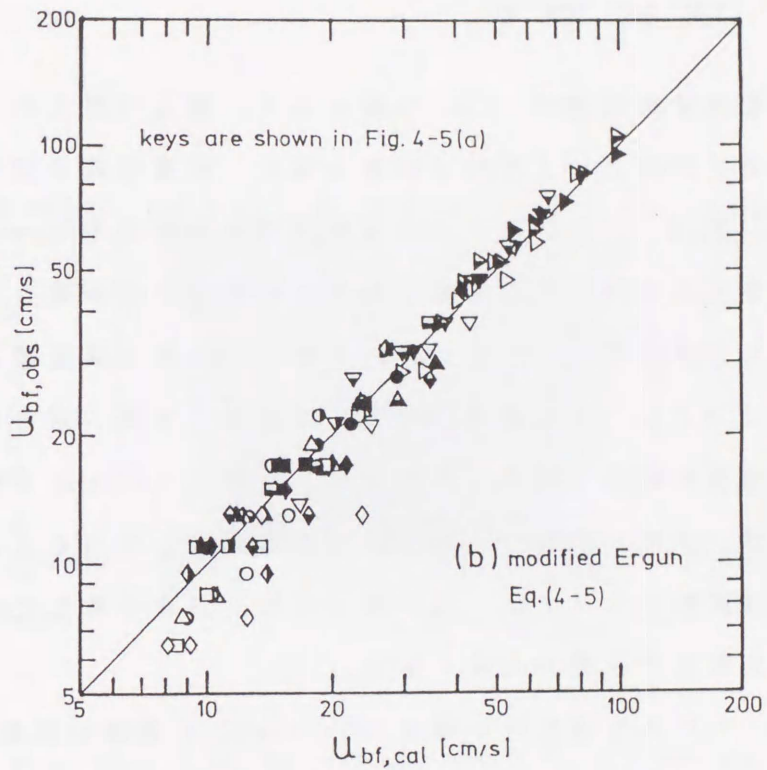


Fig. 4-5(b) Comparison of experimental incipient fluidizing velocity u_{bf} with those of calculated value from modified Ergun in Eq. (4-5)

付き流動層の流動化開始速度を求めることができる。Fig. 4-5(b) は Eq.(4-5) による計算値と実測値とを比較したものである。Cheung ら²⁾の推算よりもばらつきは少なく、粒径比が大きい場合についても両者は比較的よい一致を示している。

4. 5 柱状偏析

流動化流体の流速が u_{br} を超えると、層入口直上のコア部が流動化すると同時に浮上性粒子は層上部に、沈降性粒子は層下部へと分離し、Fig. 4-6 に示すような柱状偏析を形成する。ここで層コア部に黒く示されるのが着色された沈降性粒子が分離したことによって生じた柱状偏析である。このときのコア部と周辺部とを別々にサンプリングし、その濃度分布を求めたものを同じ図中に示す。破線は完全混合組成を示す。これよりコア部については下部には沈降性粒子が、上部には浮上性粒子が明確に分離していることがわかる。一方、周辺部については上面に浮上性粒子が若干増えているが、ほとんど完全混合状態のままである。

Fig. 4-7 に沈降性粒子濃度 20~80wt% の範囲の流動化開始流速直後での柱状偏析の発生領域を示す。図中の破線で区分された領域は Geldart³⁾による粒子分類に従った、[沈降性粒子の属性+浮上性粒子の属性]の組合せを示す。○印は柱状偏析が生じなかった組合せで、□印は偏析が生じた場合である。両粒子ともD粒子に属する場合にはその濃度分率に関わらず、粒径比 $d_{p,J}/d_{p,F}$ が 1.5 以上で柱状分離が観察された。この値は断面積一定の流動層に対して従来から⁸⁾言われている、粒径のみが異なる二成分粒子の偏析発生限界である粒径比が $\sqrt{2}$ 以上にほぼ一致している。しかし浮上性粒子

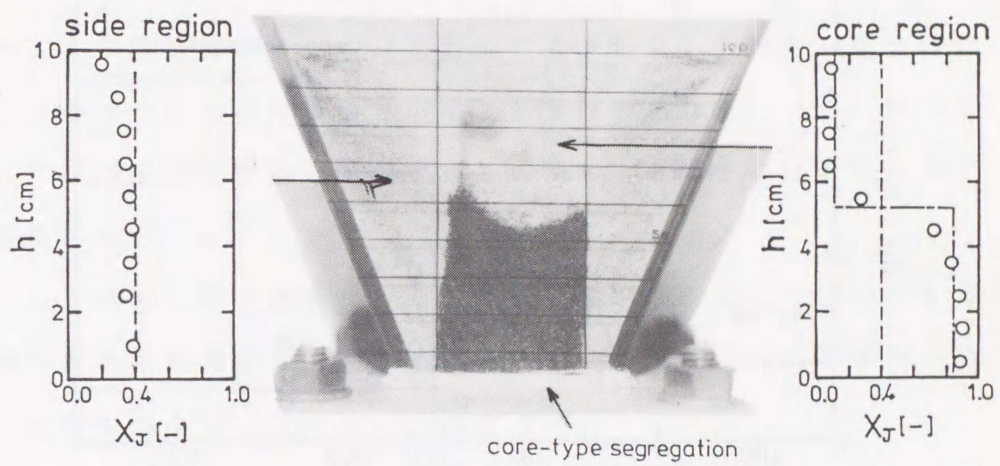


Fig. 4-6 Segregation behavior in tapered bed
 $d_{D,F}=0.274\text{mm}$ $d_{D,J}=0.650\text{mm}$ $X_J=0.4$
 $H=10\text{cm}$ $u_i=25\text{cm/s}$

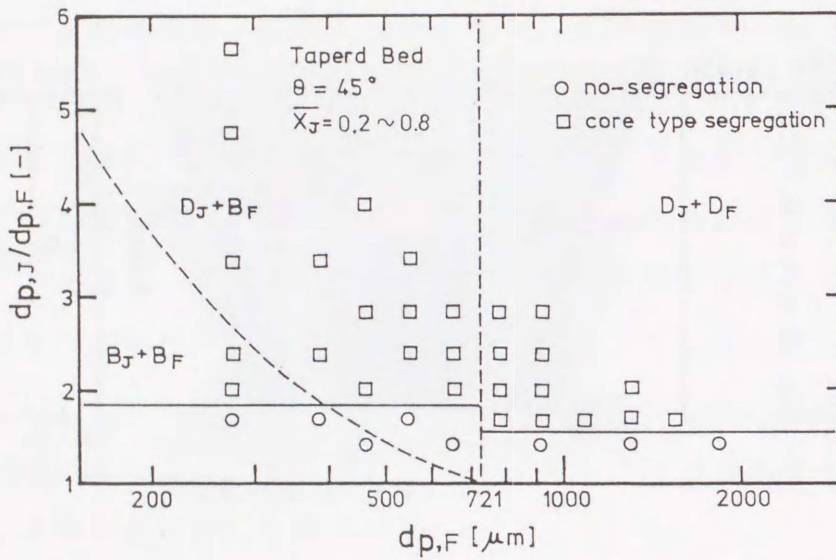


Fig. 4-7 Segregation map for tapered bed
 at gas velocity $u_i = u_{pf}$
 B and D : referred to Geldart group
 for fluidization³⁾

がB粒子の場合沈降性粒子の属性に関わらず粒径比が1.8以上の領域で偏析を生じ、粒子の分離が少しばかり起こりにくくなることを示している。

4. 6 結 言

同密度で粒径のみが異なる二成分混合粒子を2次元のテーパー付き流動層で流動化させ、その粒子挙動や偏析現象などの流動化挙動を中心に検討し以下のことを明らかにした。

1. コア部は流速により固定層・部分流動層・流動層・完全混合層という四つの流動化挙動を示すことが観察された。一方、周辺部はコア部が流動化するまで固定層を維持し、その後移動層的な粒子下降挙動を示した。

2. コア部が部分流動化ならびに流動化領域ではテーパー付き流動層特有の柱状偏析が発生することを見だし、この柱状偏析の発生領域を明らかにした。

3. 完全混合状態においてはコア部と周辺部との間に粒子の循環を生じ、このため粒子混合が促進され良好な混合状態が得られることが明らかになった。

4. 流動化開始速度 u_{bf} の推算を行い、広い粒径比に対しても良好な一致をみた。

使用記号

C_1	= constant in Eq. (4-1)	[Pa·s/cm ²]
C_2	= constant in Eq. (4-1)	[g/cm ⁴]
D	= column depth	[cm]
d_p	= particle diameter	[mm]
g	= acceleration of gravity	[cm/s ²]
H	= total bed height	[cm]
h	= height from bed bottom	[cm]
L	= overall height of tapered bed column	[cm]
ΔP	= pressure drop	[Pa]
Sv_J	= fractional volume of particle J in mixture	[-]
u	= fluid velocity	[cm/s]
u_{bf}	= incipient partial fluidization velocity for tapered bed of binary particle mixture	[cm/s]
u_{cf}	= incipient complete fluidization velocity for tapered bed of binary particle mixture	[cm/s]
u_{mf}	= minimum fluidization velocity	[cm/s]
u_{pf}	= incipient perfect mixing velocity	[cm/s]
W	= column width	[cm]
\bar{X}_J	= weight fraction of jetsam particle	[-]
ϵ_{mf}	= void fraction at minimum fluidizing velocity	[-]
ϵ_J	= partial void fraction around particle j	[-]
θ	= apex angle	[deg]
μ	= fluid viscosity	[Pa·s]
ρ_f	= fluid density	[g/cm ³]
ρ_s	= particle density	[g/cm ³]

ϕ_s = shape factor of particle

[-]

<Subscripts>

F = flotsam particle

J = jetsam particle

M = mixed particle

i = inlet of the bed

o = outlet of the bed

参 考 文 献

- 1) Chiba,S., T.Chiba, A.W.Nienow and H.Kobayashi: Powder Technol.,22,255 (1979)
- 2) Cheung,L., A.W.Nienow and P.N.Rowe: Chem. Eng. Sci.,29, 1301 (1974)
- 3) Geldart,D.: Powder Tech.,7,285 (1973)
- 4) Maruyama,T., H.Maeda and T.Mizushina: J. Chem. Eng. Japan,17,132 (1984)
- 5) Shi,Y., Y.S.Yu and L.T.Fan: Ind. Eng. Chem. Fundam.,23, 484 (1984)
- 6) Suzuki,M., A.Yagi, T.Watanabe and T.Oshima: Kagaku Kogaku Ronbunshu,10,721 (1984)
- 7) Yang,W.C.,B.Ettehadieh,T.C.Anestis,R.E.Gizzie and G.B.Haldipur "Fluidization V",95 (1986)
- 8) Wen,C.Y. and Y.H.Yu: Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.,62, No.62,100 (1966)

第 5 章

テーパー付き流動層における 二成分混合粒子の柱状偏析

5. 1 緒 言

第4章では粒径の異なる二成分混合粒子をテーパ付き流動層で流動化させたときの特性を粒子流動化挙動を中心に明らかにした。テーパ付き流動層においても通常型流動層と同様沈降性粒子が分離・偏析し、浮上性粒子が流動化する部分流動化領域が存在するが、偏析の発生状態は通常型とは大きく異なり、流動化開始速度 u_{of} から完全混合流速 u_{of} までの部分流動化域で層入口直上のコア部が主として流動化し、Fig.4-7 に示すような独特な柱状偏析 (core-type segregation) を形成することを発見した。

本章では二成分混合粒子をテーパ付き流動層で流動化させたときに見られるこの柱状偏析に着目し、その発生領域や高さ方向の濃度分布などを調べ、偏析による混合粒子の分離特性について検討を加えた。

5. 2 実験装置および方法

5. 2. 1 実験装置

実験装置は前章と同様で、その概略を Fig. 5-1 に示す。層本体は粒子挙動を観察できるように透明アクリル樹脂製で、奥行き 4cm 一定の楔型のテーパ付き流動層である。層入口幅は 4cm でテーパ一角 θ は頂角が $15^\circ \cdot 30^\circ \cdot 45^\circ$ のものを使用した。分散板には開口比 1.23% の多孔板を使用し、上面には 200mesh の金網を張っている。比較としての通常型流動層には内径 10cm の円筒型流動層を用いた。

流動化粒子にはふるい分けされた同密度で粒径の異なる 12 種類

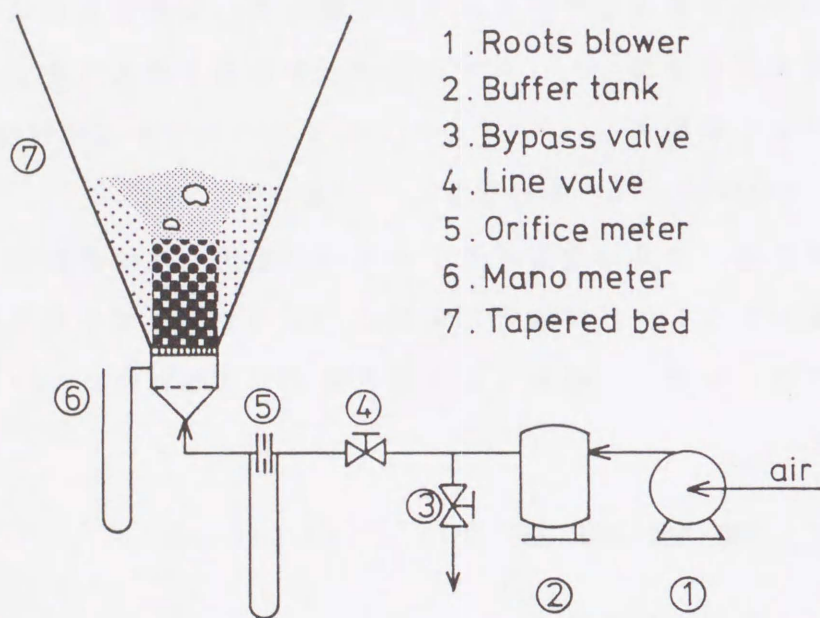


Fig. 5-1 Schematic diagram of the experimental tapered fluidized bed apparatus

Table 5-1 Properties of solid particle

Particle	d_p [mm]	ρ_s [g/cm ³]	ϵ_{mf} [-]	ϕ_s [-]	u_{mf} [cm/s]	group ³⁾
Glass beads	0.274	2.49	0.404	0.995	7.26	B
	0.385	2.49	0.416	1.00	14.5	B
	0.460	2.49	0.418	1.00	19.4	B
	0.545	2.49	0.414	1.00	26.0	B
	0.650	2.50	0.408	1.00	34.4	B
	0.775	2.49	0.429	1.00	41.7	D
	0.920	2.49	0.413	1.00	56.5	D
	1.095	2.49	0.398	1.00	63.4	D
	1.300	2.50	0.406	1.00	76.5	D
	1.545	2.49	0.412	1.00	85.1	D
	1.840	2.49	0.397	1.00	97.2	D
	2.190	2.49	0.413	1.00	111	D

Table 5-2 Binary particle mixtures

Flotsam [mm]	Jetsam [mm]	$d_{p,J}/d_{p,F}$ [-]	group _J /group _F
0.274	0.460	1.68	B/B
0.775	1.300	1.68	D/D
1.095	1.840	1.68	D/D
0.650	1.300	2.00	D/B
0.775	1.545	2.00	D/D
0.920	1.840	2.00	D/D
0.274	0.650	2.38	B/B
0.385	0.920	2.39	D/B
0.545	1.300	2.39	D/B
0.775	1.840	2.37	D/D
0.650	1.840	2.83	D/B
0.775	2.190	2.83	D/D
0.274	0.920	3.36	D/B
0.545	1.840	3.38	D/B
0.460	1.840	4.00	D/B
0.274	1.300	4.76	D/B

の球形ガラスビーズを用いており、その物性を Table 5-1 に示す。また Table 5-2 にはこれらの粒子を組合せて流動化させた二成分混合試料を示す。

5. 2. 2 実験方法

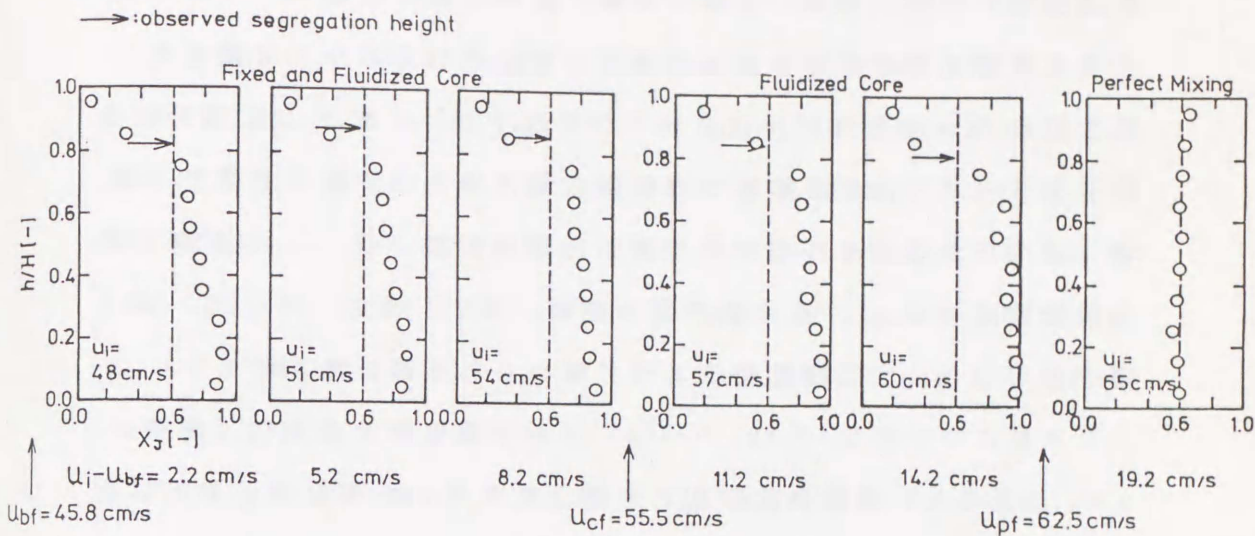
2種類の粒子を沈降性粒子（大粒子: Jetsam）基準の重量分率で 20・40・60・80wt% に調製し十分混合した後、層高が 10cm もしくは 20cm になるように層内に充填した。流動化には流速を 0 から所定流速にすみやかに設定する流速上昇法と、完全混合状態の高流速から所定流速に設定する流速下降法の2通りで行った。

所定流速で 15分間以上流動化させ層内粒子挙動が定常状態になったのを確認後、層圧力損失・偏析高さならびに粒子挙動などを測定ならびに観察した。その後流体の送人を急激に止め、層の状態を固定した。沈降性粒子の層高さ方向の濃度分布の測定は、入口幅と等しい仕切り板を層上面から挿入してコア部と周辺部の粒子を分け、コア部と周辺部それぞれに対し層上面より減圧吸引により粒子を 1 cm 毎にサンプリングすることにより行った。各サンプルはふるい分けし沈降性粒子の重量分率 X_j を求めた。

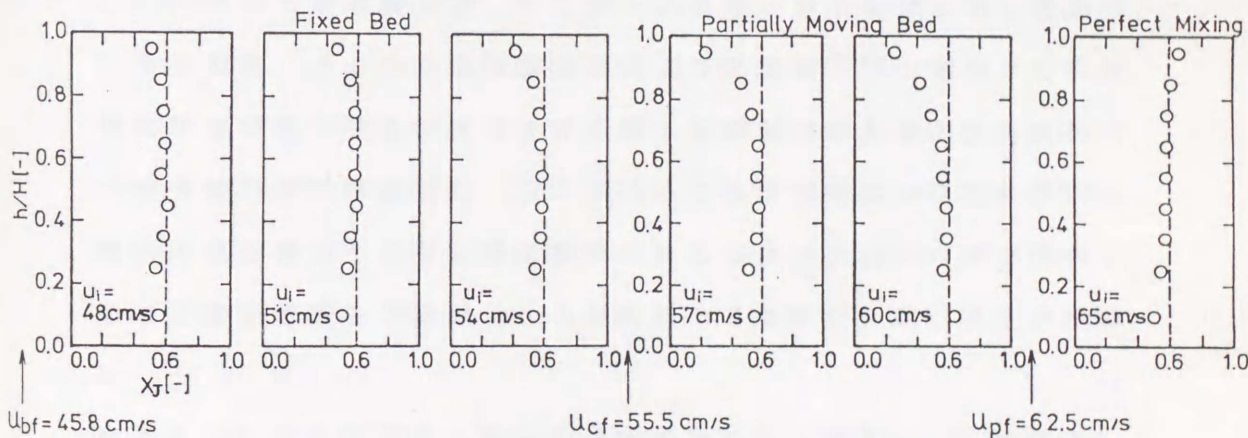
5. 3 実験結果および考察

5. 3. 1 粒子濃度分布の流速による影響

Fig. 5-2 に流速下降法*での高さ方向の粒子濃度分布の流速による
*流速上昇法・流速下降法いずれの方法でも流速が同じであれば、ほぼ同様な柱状偏析が形成されるが、流速下降法の場合は流動化状態から固定層へ移行するため粒子の移動が容易でありコア部での偏析もわずかに強い傾向が得られた。



(a) core region



(b) side region

Fig. 5-2 Segregation patterns dependence on fluid velocity in tapered bed
 $d_{p,F} = 0.385 \text{ mm}$ $d_{p,J} = 0.920 \text{ mm}$ $\bar{X}_J = 0.6$ $\theta = 45^\circ$ $H = 10 \text{ cm}$
 $u_{bf} = 45.8 \text{ cm/s}$ $u_{cf} = 55.5 \text{ cm/s}$ $u_{pf} = 62.5 \text{ cm/s}$
 (a) Core region
 (b) Side region

る変化の一例を示す。Fig. 5-2(a) はコア部を、Fig. 5-2(b) は周辺部での挙動である。本図は左端の流動化開始流速から右端の完全混合流速までの結果を流速の増加の順に示しており、破線は完全混合組成 \bar{X}_j を示している。ここで u_{bf} , u_{of} , u_{pf} は二成分混合粒子をテーパ付き流動層で流動化させた場合の流動化速度で、前章で述べたようにそれぞれ部分流動化開始速度 (u_{bf})、コア部流動化開始速度 (u_{of})、完全混合開始速度 (u_{pf}) を示している。また図中矢印 (\rightarrow) は目視観察によって認められた偏析高さである。

コア部については Fig. 5-2(a) から明らかなように、流速が u_{bf} に至ると一旦流動化が起こり浮上性粒子の一部は層上部へ移動し、その結果層下部の沈降性粒子分率 X_j は増大し偏析層を形成し静止する。図中の○印で示す実測値は層高 1cm 毎の平均値であるため濃度分布は緩和されて示されているが、柱状偏析層上面(図中 \rightarrow)でかなり明瞭に粒子濃度の不連続的变化が認められる。流速が u_{of} に至るまでの間は柱状偏析層は固定層を維持するため偏析層内の浮上性粒子は自由に移動することが難しい。流速の増加時に偏析層の一時的な弱い流動化が生じるため一部の浮上性粒子の層上部への移動が見られるが、全体として偏析層中の沈降性粒子分率は変化しない。

流速が u_{of} を超えると沈降性粒子の最小流動化流速 u_{mf} をほぼ満足するため偏析層も緩やかな流動化を開始する。偏析層の流動化により層中の浮上性粒子の排除が容易になるため、この流速領域ではさらに X_j の増大が進み、層底部においてほぼ 100% の沈降性粒子が得られる。

u_{pf} 以上の流速で柱状偏析は消滅し完全混合状態になる。この時、

粒子は混合状態のままコア部と周辺部との間を循環する。そのため高さ方向の濃度分布は消滅し、初期充填時の濃度に再び一致する。

一方周辺部は Fig. 5-2(b) に示すように初期充填状態のまま固定層を維持しており、粒子濃度分布は初期充填状態から変化しない。流速が増大してゆくとコア部上部における浮上性粒子を主体とした層の流動化が活発になり層表面で飛散した粒子が周辺部上面へ移動してくるため、図からも明らかなように層上部では流速の増大と共に X_j の減少を示す。 u_{of} 以上では前述したように完全混合状態になるため濃度分布は消滅する。

Fig. 5-3 に比較のため同じ層高での通常型流動層 (10cm I.D.) の結果を示す。通常型流動層においても流速の増加と共に層上部での浮上性粒子の流動化と層下部での沈降性粒子の偏析が観察されるが、流動層の一部に柱状の偏析層が形成されることはなく、その偏析程度もテーパ付きの場合に比較して弱いことがわかる。これは通常型の場合、断面積が一定であるため軸方向の流速分布は存在せず粒子の分級効果が小さいことが原因と考えられる。また偏析層が流動化する u_{of} と完全混合状態となる u_{of} との差はテーパ付きほど顕著ではなくほぼ u_{of} で層内は完全混合組成と再び一致する。

上述したようにテーパ付き流動層で二成分混合粒子を流動化させた場合、部分流動化域においてコア部に通常型流動層よりも顕著な偏析が観察される。この現象はテーパ付き流動層としての挙動が顕著となるテーパ角 15° 以上もしくは上下面の面積比が2以上であればテーパ角度による影響は特に見られなかった。そこで粒子のサンプリングが容易で部分流動化域の広いテーパ角 45° で主

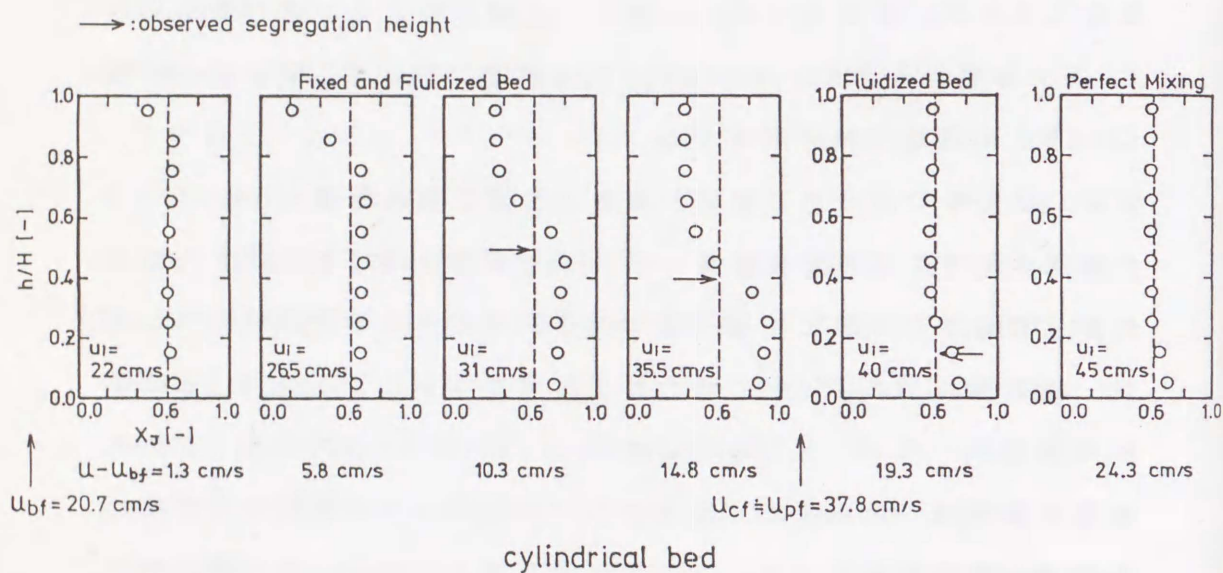


Fig. 5-3 Segregation patterns dependence on fluid velocity in 10cm I.D. cylindrical bed
 $d_{p,F} = 0.385 \text{ mm}$ $d_{p,J} = 0.920 \text{ mm}$ $\bar{X}_J = 0.6$ $H = 10 \text{ cm}$
 $u_{bf} = 20.7 \text{ cm/s}$ $u_{cf} = u_{pf} = 37.8 \text{ cm/s}$

に実験を行った。また充填層高については無次元高さ (h/H) で評価すれば偏析分布はほぼ一致することが確かめられた。

5. 3. 2 柱状偏析発生流速領域

柱状偏析が発生するのは u_{br} から u_{pr} までの流速範囲であり、流動化開始流速 u_{br} についてはすでに第4章で述べた。しかし二成分混合粒子の流動化や粒子の分離にテーパー付き流動層を利用するためには完全混合流速 u_{pr} の定量化が重要になってくる。このため各条件ごとに流速による高さ方向の濃度分布変化を測定し、これより偏析が消滅する流速を求め u_{pr} とした。Fig. 5-4 に沈降性粒子の分率 \bar{X}_J に対して u_{pr} をプロットした流動化状態図¹⁾を示す。 u_{pr} は \bar{X}_J の増加に伴って大きくなるが、 u_{br} の場合に見られる様な \bar{X}_J が 0.6 以上での急激な上昇はなく、比較的なだらかに上昇することがわかる。前述したように u_{pr} 以上の領域では層内コア部は良好な混合状態にある流動層であり、周辺部との間に比較のおだやかな粒子の循環が存在するため、層全体が一様な濃度分布を示している。したがって Fig. 5-4 中の両端では▲で示す一成分系粒子に対する粒子循環開始流速 u_c に一致すると考えられる。テーパー付き流動層における u_c は第3章で述べたように次式で与えられる。

$$u_c = u_{mf} + 7.0(u_B - u_{mf})^{0.53} \quad (5-1)$$

ここで u_B と u_{mf} とはそれぞれテーパー付き、通常型流動層での最小流動化速度であり、操作条件が与えられれば定まる値である。二成分混合粒子系の完全混合流速 u_{pr} は単成分系の u_c を用いて

$$u_{pr} = u_{c,F} \left(\frac{u_{c,J}}{u_{c,F}} \right)^{\bar{X}_J} \quad (5-2)$$

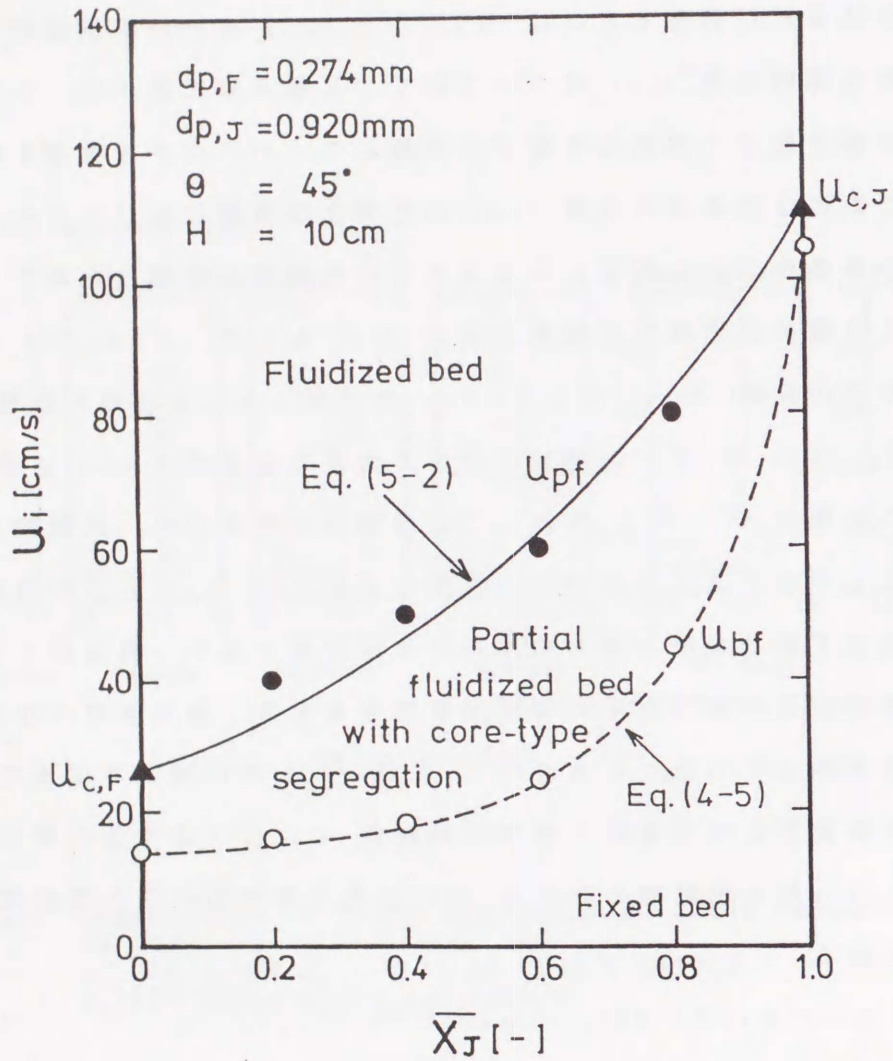


Fig. 5-4 Fluidization diagram for tapered bed

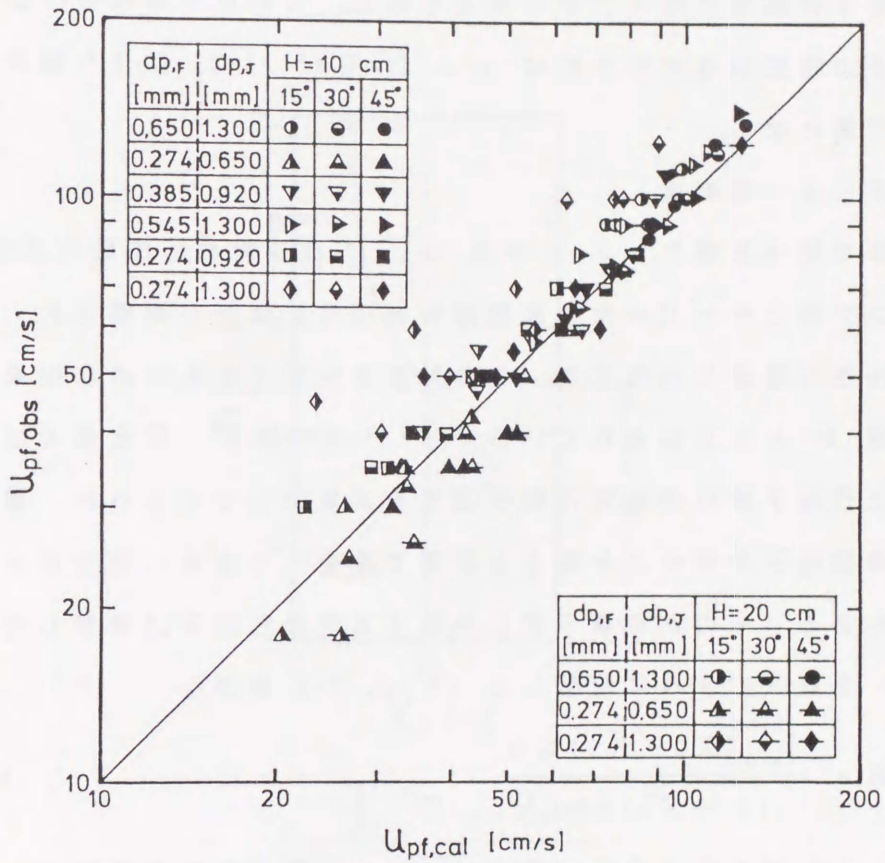


Fig. 5-5 Comparison of experimental perfect mixing velocity u_{pf} with those of calculated value

のように与えられる。Fig. 5-4 中に Eq. (5-2) による計算結果を示す。上式による推算値は実験値ともほぼ一致することがわかる。また Fig. 5-5 に各種実験条件での比較を示す。◇で示す粒径比が 4 以上の場合を除いて、実験値は推算値の $\pm 20\%$ 以内にほぼ収まるため十分実用に耐えうると考えられる。これより単成分での流動化粒子の物性が与えられれば u_{br} は Eq. (5-2) により簡単に推算が可能となる。

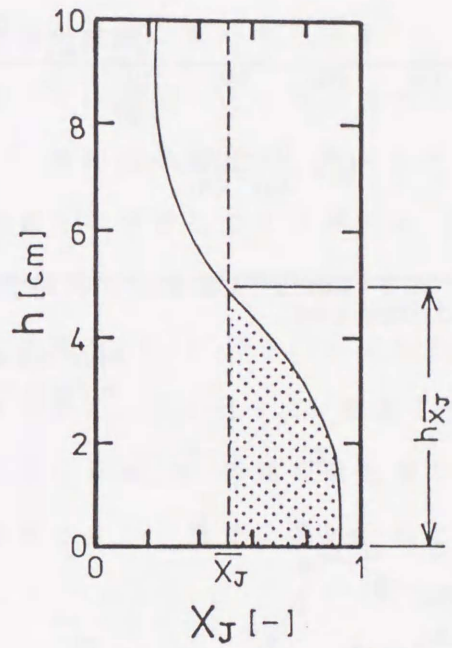
5. 3. 3 偏析度

前節で述べた様に、 u_{br} から u_{br} の流速範囲で流動化させた場合、コア部にテーパ付き流動層特有の柱状偏析が観察され、この偏析特性は流速に依存する。この特性を定量化するために従来から混合度 M として知られている手法^{2,4)}があるが、混合度では上部の浮上性粒子層中の沈降性粒子濃度を対象にしているため、層下部に沈降性粒子が完全に分離した状態で存在しても高い混合度を示すことがある。そのため層下部に分離する沈降性粒子に着目して偏析度 S を以下のように定義した (Fig. 5-6 参照)。

$$S = \frac{\int_{h=0}^{h=h_{\bar{X}_j}} (X_j - \bar{X}_j) dh}{(1 - \bar{X}_j) h_{\bar{X}_j}} \quad (5-3)$$

Fig. 5-6 に示すように $(X_j - \bar{X}_j)$ は分散板からの高さ h における沈降性粒子の完全混合組成 \bar{X}_j からの分離程度を示しており、 $h_{\bar{X}_j}$ はその偏析高さを示す。これは沈降性粒子の完全混合状態からの分離量を完全分離した場合の量で除したもので、一種の分離効率と考えてよい。したがって完全混合の時は $S = 0$ となり、完全分離の時は $S = 1$ となる。

テーパ付き流動層における柱状偏析層の形成によるコア部偏析



$$S = \frac{\int_{h=0}^{h=h_{\bar{X}_J}} (X_J - \bar{X}_J) dh}{(1 - \bar{X}_J) h_{\bar{X}_J}}$$

Fig. 5-6 Definition of segregation index S

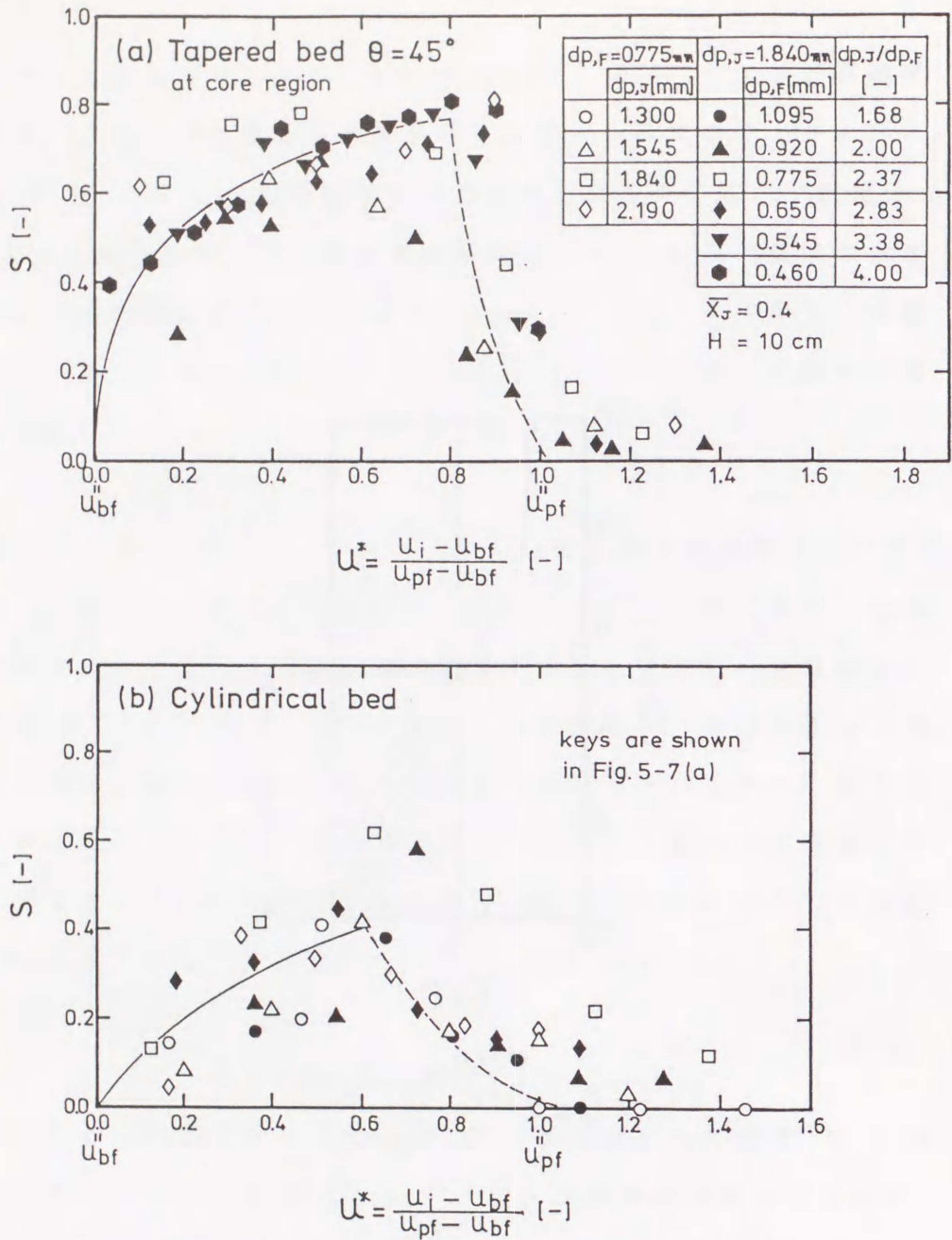


Fig. 5-7 Relationship between segregation index S and dimensionless velocity u^* at $\bar{X}_J = 0.4$
(a) tapered bed
(b) cylindrical bed

特性について、この偏析度 S を用いて整理した結果を Fig. 5-7 (a) に示す。横軸には u_{bf} からの過剰ガス流速 ($u_i - u_{bf}$) を部分流動化領域 ($u_{pf} - u_{bf}$) で規格化した無次元化流速 $u^* = (u_i - u_{bf}) / (u_{pf} - u_{bf})$ を取っている。偏析度 S は過剰ガス流速の増加と共に大きくなり、流速上昇法・流速下降法には関係せず $u^* = 0.8 \sim 0.9$ 付近で最大値 $S = 0.75 \pm 0.1$ 程度となる。 u^* がこれを超えると完全流動化域に移行するため S は急激に減少し 0 となる。本実験範囲内では粒径比の小さい混合しやすい系では柱状偏析の形成による S は相対的に低く $u^* \doteq 0.7$ から下降する。これに対して粒径比の大きい分離しやすい系では S は相対的に大きく、 $u^* \doteq 0.9$ から完全流動化への移行が認められた。比較のための通常型流動層における結果を Fig. 5-7(b) に示す。通常型では $u^* \doteq 0.6$ 付近で最大値を示し、 0.40 ± 0.15 程度とテーパー付きに比較して低い値を示す。それぞれ S の最大値を与える臨界流速以上では粒子混合効果が顕著となり、流速の増加と共に S は急速に低下し、 $u^* = 1$ (すなわち $u_i = u_{pf}$) で $S = 0$ (完全混合状態) になることを示している。

テーパー付き流動層で同密度の二成分混合粒子を流動化させた場合、通常型流動層では比較的偏析(沈降性粒子の分離)しにくい同密度の混合粒子に対しても部分流動化域で流動化させれば良好な分離が得られることは、テーパー付き流動層の分離効率の良さを示している。

また Fig. 5-8 に完全混合時の組成 \overline{X}_j と粒径の違いによる偏析度 S への影響を示す。 S は \overline{X}_j ならびに粒径の増加により大きくなる傾向を示している。しかし S が最大値をとる時の u^* の

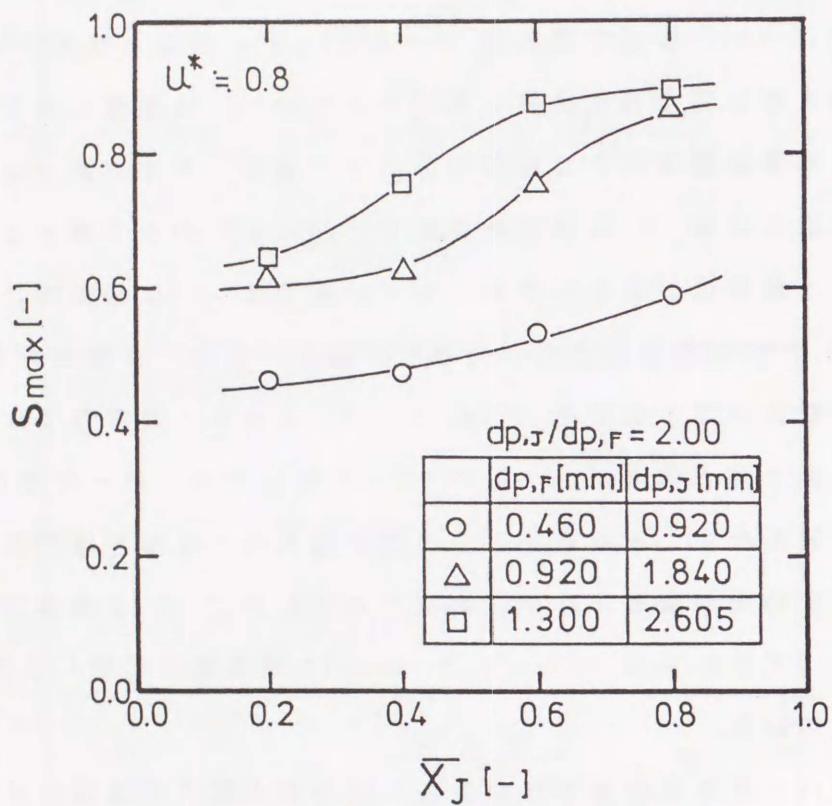


Fig. 5-8 Dependence of segregation index S on \bar{X}_J and d_p

値はほぼ同じであることが確かめられた。

5. 4 結 言

同密度で粒径のみ異なる二成分混合粒子をテーパー付き流動層で流動化させた場合に見られる特徴的な偏析現象に着目し、その挙動を明らかにすることを目的として実験を行い以下の結論を得た。

1. 層内高さ方向の沈降性粒子の濃度分布をその流動化開始から完全混合に至る流速域まで測定し、特にコア部に見られる柱状偏析中の濃度分布の流速による変化を明らかにした。その結果通常型流動層に比較して偏析の度合いが強いことが明らかになった。

2. 柱状偏析が発生する流速領域を明らかにするため、完全混合開始流速 u_{of} を測定しその実験式を提示した。 u_{of} は単成分における粒子循環開始流速 u_c より推算が可能であることを示した。

3. 流動層内に発生する偏析の度合いを定量化するため、偏析度 S を Eq. (5-3) のように定義し、これを用いてテーパー付き・通常型流動層の偏析特性を偏析度 S と無次元化流速 u^* とを用いて評価した。同密度で粒径比の小さい通常型流動層では比較的分離しにくい混合粒子に対してもテーパー付き流動層では分離効果が強いことを示した。

使用記号

d_p	= particle diameter	[mm]
H	= bed height	[cm]
h	= distance from bed bottom	[cm]
$h_{\overline{X_J}}$	= segregation height	[cm]
u_B	= incipient fluidization velocity for tapered bed	[cm/s]
u_C	= incipient circulation velocity	[cm/s]
u_{bf}	= incipient partial fluidization velocity for tapered bed of binary particle mixture	[cm/s]
u_{cf}	= incipient complete fluidization velocity for tapered bed of binary particle mixture	[cm/s]
u_i	= fluid velocity at inlet	[cm/s]
u_{mf}	= minimum fluidization velocity	[cm/s]
u_{pf}	= incipient perfect mixing velocity	[cm/s]
u^*	= dimensionless velocity $(u_i - u_{bf}) / (u_{pf} - u_{bf})$	[-]
X_J	= weight fraction of jetsam particles	[-]
$\overline{X_J}$	= weight fraction of jetsam particles at complete mixing	[-]
ϵ_{mf}	= void fraction at u_{mf}	[-]
θ	= apex angle of tapered bed	[deg]
ρ_s	= particle density	[g/cm ³]
ϕ_s	= shape factor of particle	[-]

<Subscripts>

F = flotsam particle

J = jetsam particle

参 考 文 献

- 1) Chen, J.L.P., and D.L.Keairns: Can. J. Chem. Eng., 53, 395 (1975)
- 2) Chiba, S., T.Chiba and H.Kobayashi: Bulletin of the Faculty of Engineering Hokkaido Univ., No.102, 24 (1981)
- 3) Geldart, D.: Powder Tech., 7, 285 (1973)
- 4) Rowe, P.N. and A.W.Nienow: Powder Tech., 15, 141 (1976)

第 6 章

テーパー付き流動層による
二成分混合粒子の連続分離

6. 1 緒言

流動化による良好な混合状態を維持したまま偏析粒子の選択的かつ連続的な排出を行う操作はボイラーや石炭ガス化^{2,3,4,8)}また最近では鉄鉱石の直接還元製鉄^{1,5)}などの工業操作において今後ますます重要になってくると考えられる。流動層内で偏析を促進させる方法として、完全流動化開始流速 u_{0f} 以下で操作したり、層内に混合を抑制するための充填物⁷⁾や水平バツフル板⁶⁾を挿入する方法などが知られている。一方、層入口面より出口面が広いテーパ付き流動層で二成分混合粒子を部分流動化状態に維持させた場合、従来の断面積一定の流動層よりも顕著な偏析現象がコア部内で生じ沈降性粒子が柱状に偏析し(第4章)、この偏析層がほぼ沈降性粒子のみで構成されることが明らかにされた(第5章)。

本章では、この特性に着目して混合粒子の供給と偏析粒子の排出を同時に行う連続条件下で流動化実験を行い、その分離性能を調べた。

6. 2 実験装置および方法

6. 2. 1 実験装置

実験装置はこれまでと同様でその概略を Fig. 6-1 に示す。ここでは混合粒子の連続分離のため層上部にホッパーならびにスクリーフィーダーからなる混合粒子供給装置⑨を、層下部にはスクリー式粒子排出装置⑧ならびに分離した粒子の補集用容器⑩を新たに設置した。また層上面には粒子排出用の開口部⑪があり同様に粒子補集用容器が設置されている。

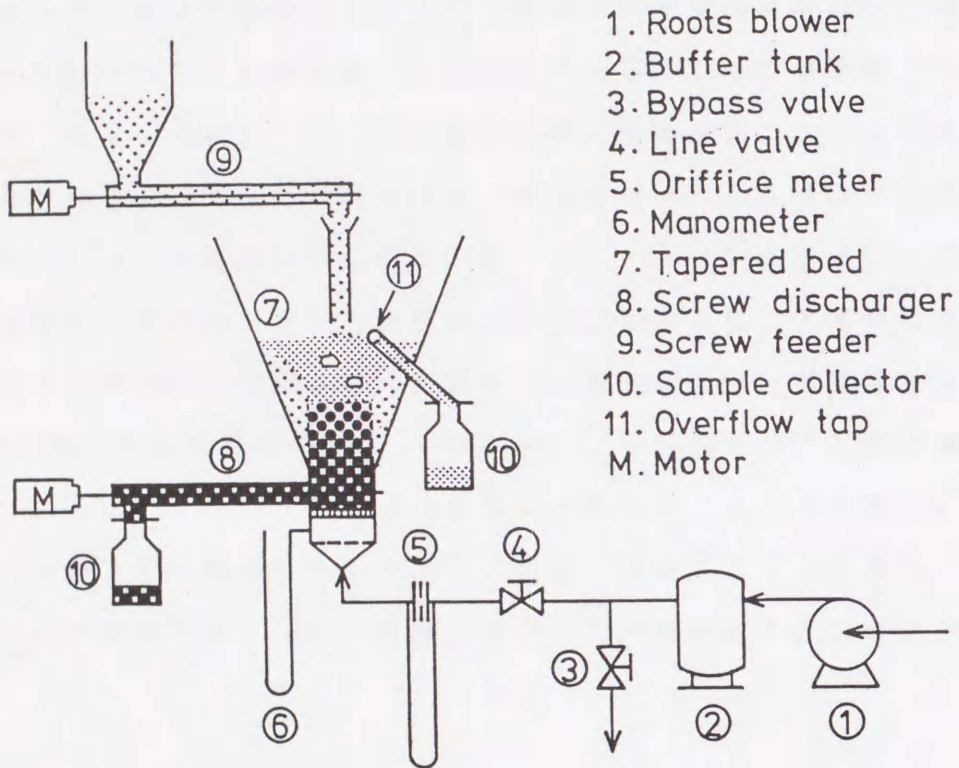


Fig. 6-1 Schematic diagram of the experimental apparatus

粒子排出装置を付けた層本体の詳細を Fig. 6-2 に示す。層本体は透明アクリル樹脂製で奥行き 4cm 一定の楔型のテーパ付き流動層である。前章で述べたように柱状偏析が顕著に発生し分離操作が可能となる適切なテーパ角 θ は 15° から 45° までで層出口と入口の面積比が 2 以上の場合であるが、ここでは 45° のものを使用した。また層入口幅は 4cm である。比較対象用の従来型流動層として同一入口断面 (4cm \times 4cm) を持つ矩形流動層を用いた。両層とも空気入口部より高さ 15.5cm の位置に溢流による粒子排出口を設けて操作中の層高を一定に保たせている。分散板は開口比 4.5% の多孔板で粒子を確実に排出するためスクリュウの形状に合わせて曲面状にしてある。スクリュウは粒子供給用・排出用共に外径 24mm、内径 10mm、ピッチ 12mm である。その駆動には交流モーターを使用し回転数を制御できるようにしてある。

流動化粒子はふるい分けされた球形ガラスビーズで、浮上性粒子には粒径 0.650mm のものを用い沈降性粒子には同密度で粒径の異なるものを使用し、沈降性粒子の重量基準で 40wt% ならびに 30wt% に調整した。本操作によって分離が可能な混合粒子の範囲については第 3 章で示しているが、本章ではその範囲内で代表的な 3 種類の混合物を試料として用いた。各粒子の物性と実験に用いた二成分混合粒子の組合せを Tables 6-1, 6-2 に示す。

6. 2. 2 実験方法

粒径の異なるガラスビーズを十分混合した後、粒子排出口まで層内に充填した。流速を十分に上げ層を完全混合状態にした後、偏析が生じる所定流速まで流速を下げた。この時遷移的に粒子層の組み替えが生じ、柱状偏析層がコア部下部から形成され比較的速やかに

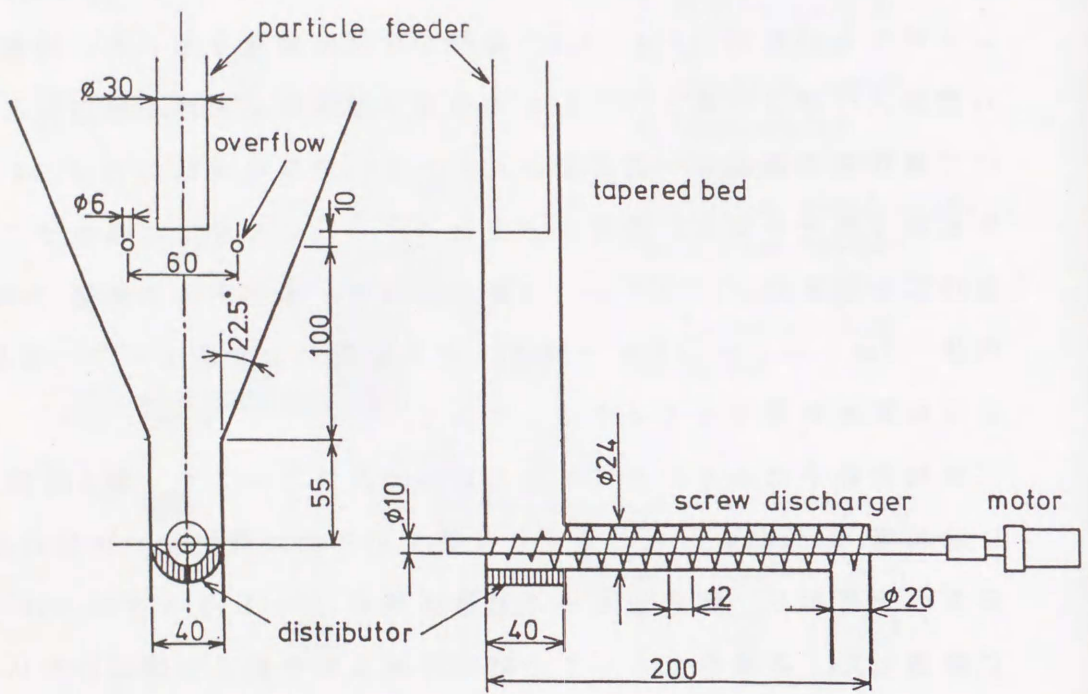


Fig. 6-2 Detail of the jetsam particle discharger attached under tapered bed

Table 6-1 Properties of solid particles

Particle	d_p [mm]	ρ_s [g/cm ³]	ϵ_{mf} [-]	ϕ_s [-]	u_{mf} [cm/s]	
Glass beads	0.650	2.50	0.408	1.00	34.4	Flotsam
	1.300	2.50	0.406	1.00	76.5	Jetsam
	1.545	2.49	0.412	1.00	85.1	Jetsam
	1.840	2.49	0.397	1.00	97.2	Jetsam

Table 6-2 Binary particles mixture

Flotsam [mm]	Jetsam [mm]	$d_{p,J}/d_{p,F}$ [-]	$\rho_{s,J}/\rho_{s,F}$ [-]	$u_{mf,J}/u_{mf,F}$ [-]
0.650	1.300	2.00	1.00	2.22
0.650	1.545	2.38	1.00	2.47
0.650	1.840	2.83	1.00	2.83

偏析柱の成長が終了する。偏析柱の成長の終了と同時に周辺部も静止し、コア部上部は穏やかな流動化状態を維持したまま層全体は定常状態に達する。この状態は目視によって明確に認められるので、この状態を確認後、層上部への混合粒子の定量的な連続供給を開始すると同時に層上部および層下部からの粒子の連続排出を行った。なお供給粒子の組成は初期充填組成と同じである。排出された粒子は容器に補集し定期的に系外に取り出してその重量と沈降性粒子の重量分率 $X_j[-]$ を測定した。また層上部からの排出粒子も補集し同様な測定を行った。

二成分混合粒子の連続分離を目的とした本章では操作流速 u_i を部分流動化開始速度 u_{br} から完全流動化速度 u_{pr} までのコア部部分流動化領域間で変化させた。この流速範囲では第4章、第5章で述べた沈降性粒子の顕著な偏析と浮上性粒子の流動化が生じる。また粒子供給速度 $R_c[g/s]$ 、粒子排出速度 $R_D[g/s]$ などの条件も変えて実験を行った。

6. 3 実験結果および考察

6. 3. 1 流動化状態と分離操作領域

本装置に混合粒子を充填後、流体流速 u_i (入口面基準) を増加・減少させた際の圧力損失特性を Fig. 6-3 に示す。図中の○は流速増加時、●は流速減少時の圧力損失の実測値で $u_{mf,F}$ および $u_{mf,J}$ は、それぞれ浮上性・沈降性粒子の最小流動化速度を示す。また図中の各記号に対応する領域での層内の粒子流動化挙動の模式図を Fig. 6-4 に示す。

流速増加時において流動化開始点 u_{br} までは固定層で層全体が

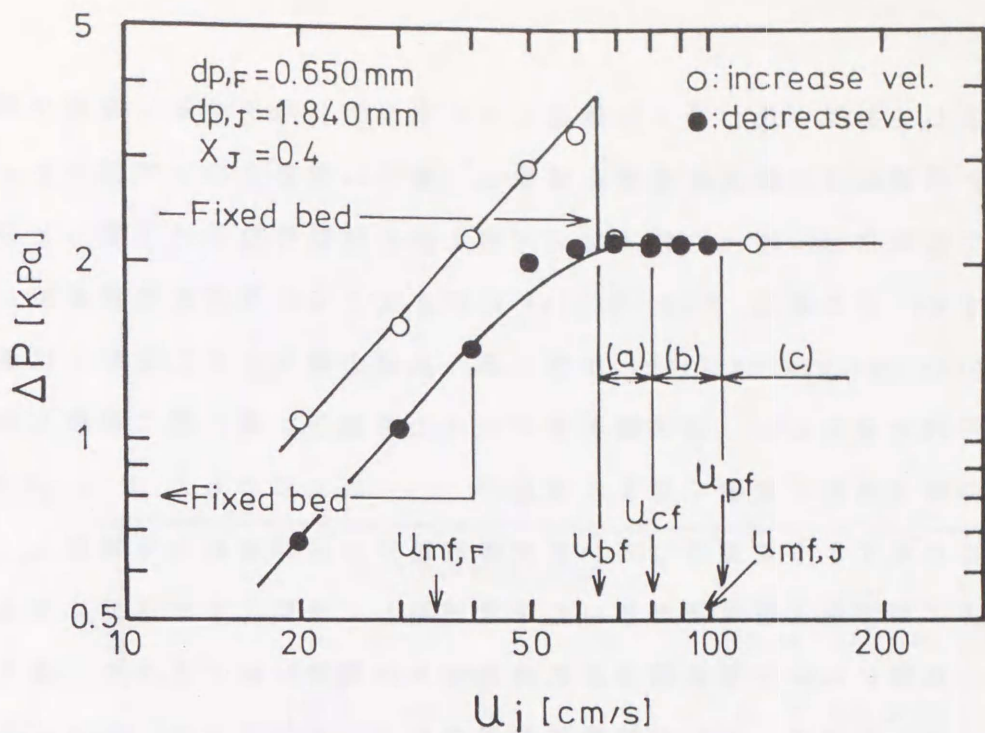


Fig. 6-3 Pressure drop characteristics of tapered bed with particle discharger for binary particle mixture

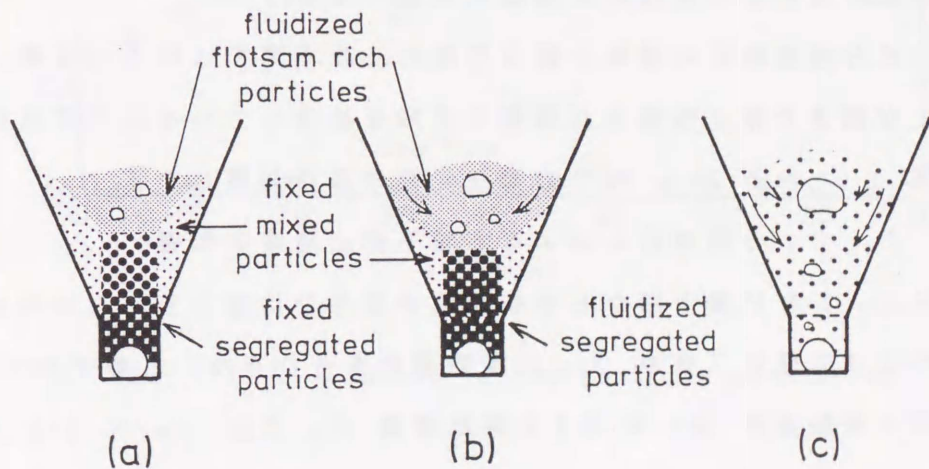


Fig. 6-4 Fluidizing characteristics of tapered bed with particle discharger for binary particle mixture
 (a) partial fluidized core with fixed segregating jetsam
 (b) partial fluidized core with weakly fluidized jetsam
 (c) perfect mixing

静止しており、圧力損失は流速と共に直線的に増加する。流動化開始と同時に圧力損失は急激に減少し、層入口部直上のコア部が主として流動化し、浮上性粒子はコア部上部に沈降性粒子は下部へと分離する。その結果 Fig. 6-4(a) に示すような特徴的な柱状偏析 (core-type segregation) が生じる。流速の増加と共に流動化状態は活発になるため、柱状偏析層中の浮上性粒子は層上部に移動し偏析の程度が徐々に強くなる。流速が u_{0f} 以上になると Fig. 6-4(b) に示すように偏析している沈降性粒子自体が流動化を開始し、その上部で浮上性粒子の多い粒子層が激しく流動化する状態になる。この状態において層底部での沈降性粒子の濃度は最大となり、条件によってはほぼ 100% の沈降性粒子を得ることができる。さらに流速が上がり u_{0f} 以上になると Fig. 6-4(c) に示すように偏析層は消滅し粒子は完全混合の流動化状態になる。

二成分混合粒子の連続分離を目的とした本章では粒子の分離 (偏析) が顕著で浮上性粒子が流動化状態を維持しているコア部流動化領域 u_{0f} から u_{0f} までの流速範囲が操作領域となる。

6. 3. 2 分離操作におよぼす粒子排出速度の影響

Fig. 6-5 に層下部からの排出粒子ならびに層上部からの排出粒子中の沈降性粒子分率 X_j の時間変化をそれぞれ○と●で示す。また粒子供給速度 R_c に対する排出速度 R_D の比 $R_D/R_c[-]$ を◇で示す。

粒子定常供給下で偏析柱の高さが一定になるように層下部排出速度を調整して実験を行った場合、手動で調整しているため多少の変動は免れなかったが層下部排出粒子および層上部排出粒子の組成は実験継続中一定の値を示し、連続操作が可能であることを示している。

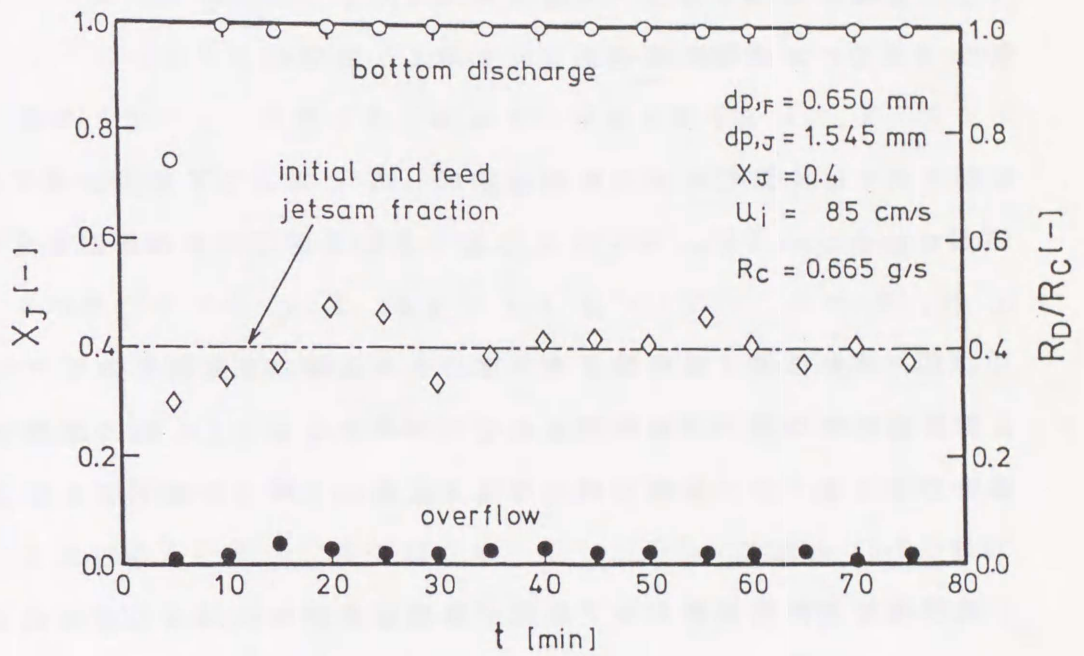


Fig. 6-5 Continuous jetsam particle separation

柱状偏析層内では高さ方向に濃度分布を有するが（第5章）、層内では下部ほど流動化流速が速いというテーパ付き流動層内の流速分布があることと粒子の排出による偏析層の移動に伴って偏析層内の粒子の再配置が容易になるということから、偏析層内でも浮上性粒子の分離が促進される。このため層最下部では沈降性粒子分率 $X_{J,D} \doteq 1.0$ を維持することが容易となるものと考えられる。

この連続的な粒子分離が可能な操作条件は、成分粒子についての収支（ここでは沈降性粒子について）より定まる。

$$R_c \cdot X_{J,c} = R_D \cdot X_{J,D} \quad (6-1)$$

本操作例では沈降性粒子の供給濃度が40%に対して下部排出濃度は100%であるため、Eq. (6-1)より粒子供給速度に対する排出速度の比 $R_D/R_c = X_{J,c}/X_{J,D}$ は0.4となる。Fig. 6-5中◇で示す R_D/R_c の実測値は偏析高さを一定にするための手動調整のため特に実験開始時に若干の変動はあるものの、全体として上記の条件を満足している。また当然上部排出粒子組成は、浮上性粒子が主体 ($X_J \doteq 0.0$) となる。

沈降性粒子供給速度より下部粒子排出速度が多い $R_c \cdot X_{J,c} < R_D \cdot X_{J,D}$ の条件下で操作した場合、上記の平衡操作時と同様偏析層下部からはほぼ沈降性粒子のみの排出がなされるため、偏析柱の高さは次第に低くなり最終的に消滅する。その後層内には偏析柱形成の傾向は残るが偏析柱の形成は認められず、下部排出組成は完全混合組成に近い値となる。また上部排出粒子組成も同様に完全混合組成に近いものとなる。このことはこの操作条件では定常的な連続分離操作が不可能であることを意味する。

逆に沈降性粒子供給速度より粒子排出速度が小さい $R_c \cdot X_{J,c} >$

R_D・X_{J,D} で操作した場合、偏析柱は初期状態よりさらに成長し層上面に達する。そのため偏析柱上部に存在した流動層は消滅し、本章の対象とする操作は不可能となる。

6. 3. 3 粒子分離特性におよぼす流速の影響

Fig. 6-6 に定常的な粒子連続分離が可能な平衡操作条件下での層下部からの排出と層上部からの排出により取り出される粒子中の沈降性粒子濃度の流速による影響を示す。図中○●で示される記号はテーパー付き流動層を、□■は矩形流動層の結果で、白抜きは層下部からの排出、黒塗は層上部からの排出を示す。また Fig. 6-6 (a)は粒径比 $d_{p,J}/d_{p,F} = 2.38$ の結果、Fig. 6-6(b)は $d_{p,J}/d_{p,F} = 2.00$ の結果、Fig. 6-6(c)は供給粒子組成を変えた場合の結果である。

テーパー付き流動層においては実線で示すようにコア部が流動化を開始する u_{br} 以上の流速になると同時に柱状偏析が生じ、層下部からは沈降性粒子のみを、また層上部排出口からは浮上性粒子のみをほぼ完全分離の状態に取り出すことが可能となる。この分離状態は流動化流速には殆ど影響を受けず、柱状偏析が消滅し層が完全混合に至る u_{of} 近傍まで維持することができる。

一方、破線で示す矩形流動層においても流動化の開始により層下部に沈降性粒子の偏析が観察される。しかし、 u_{br} 近傍では分離程度は弱く流動化流速の上昇と共に次第に強くなる傾向を有する。

Fig. 6-6(a) で示す粒径比が 2.38 の場合、流速 75cm/s で混合粒子のほぼ完全な分離が可能となるが、この完全分離を維持できる流速範囲はテーパー付き流動層に比較して狭い。

この分離操作が可能な u_{br} から u_{of} までの流速領域は、矩形

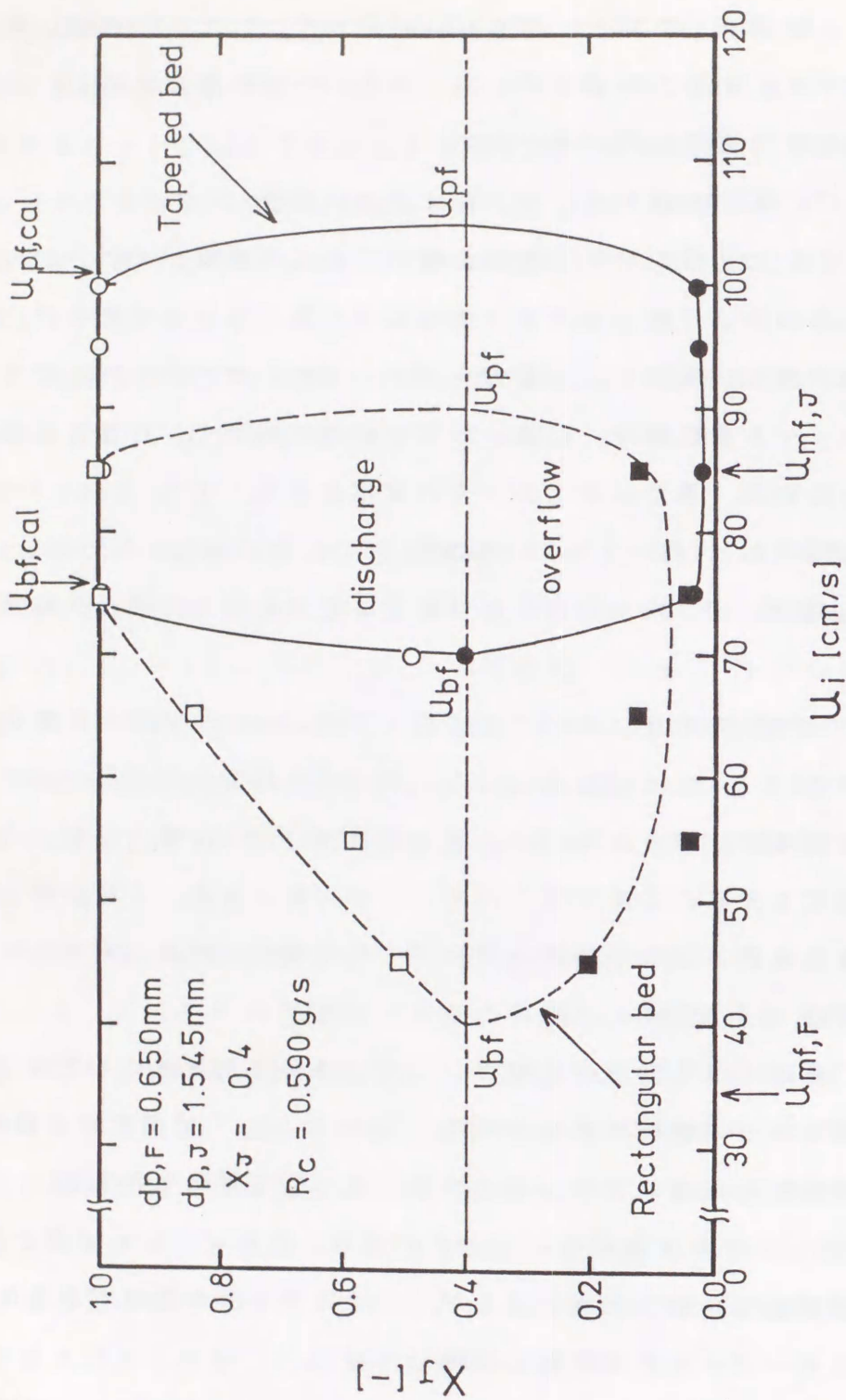


Fig. 6-6(a) Dependence of discharged jetsam particle fraction on fluid velocity $d_{p,F}=0.650\text{mm}$, $d_{p,J}=1.545\text{mm}$, $X_J=0.4$

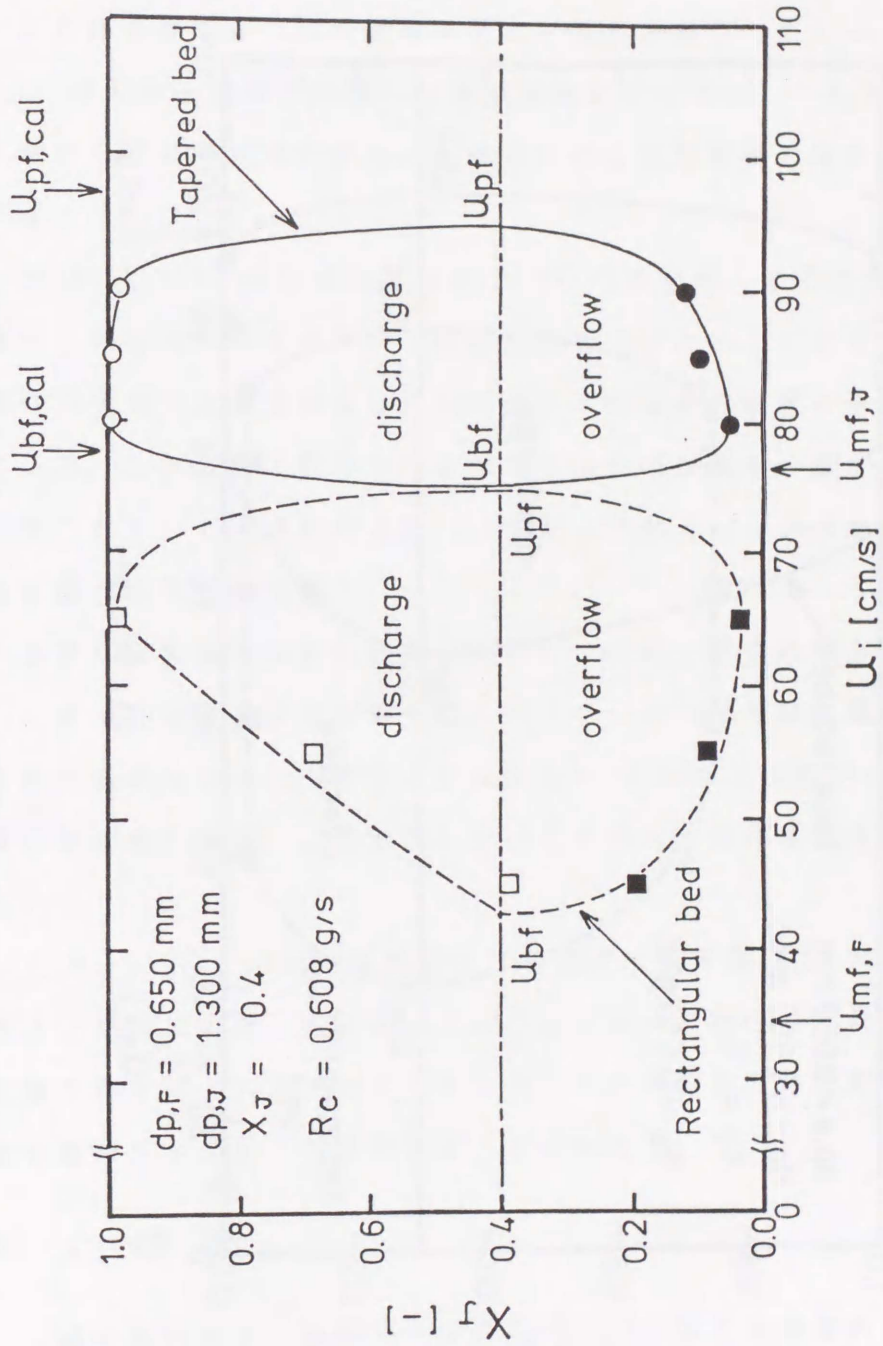


Fig. 6-6(b) Dependence of discharged jetsam particle fraction on fluid velocity
 $d_{p,F}=0.650\text{mm}$, $d_{p,J}=1.300\text{mm}$, $X_J=0.4$

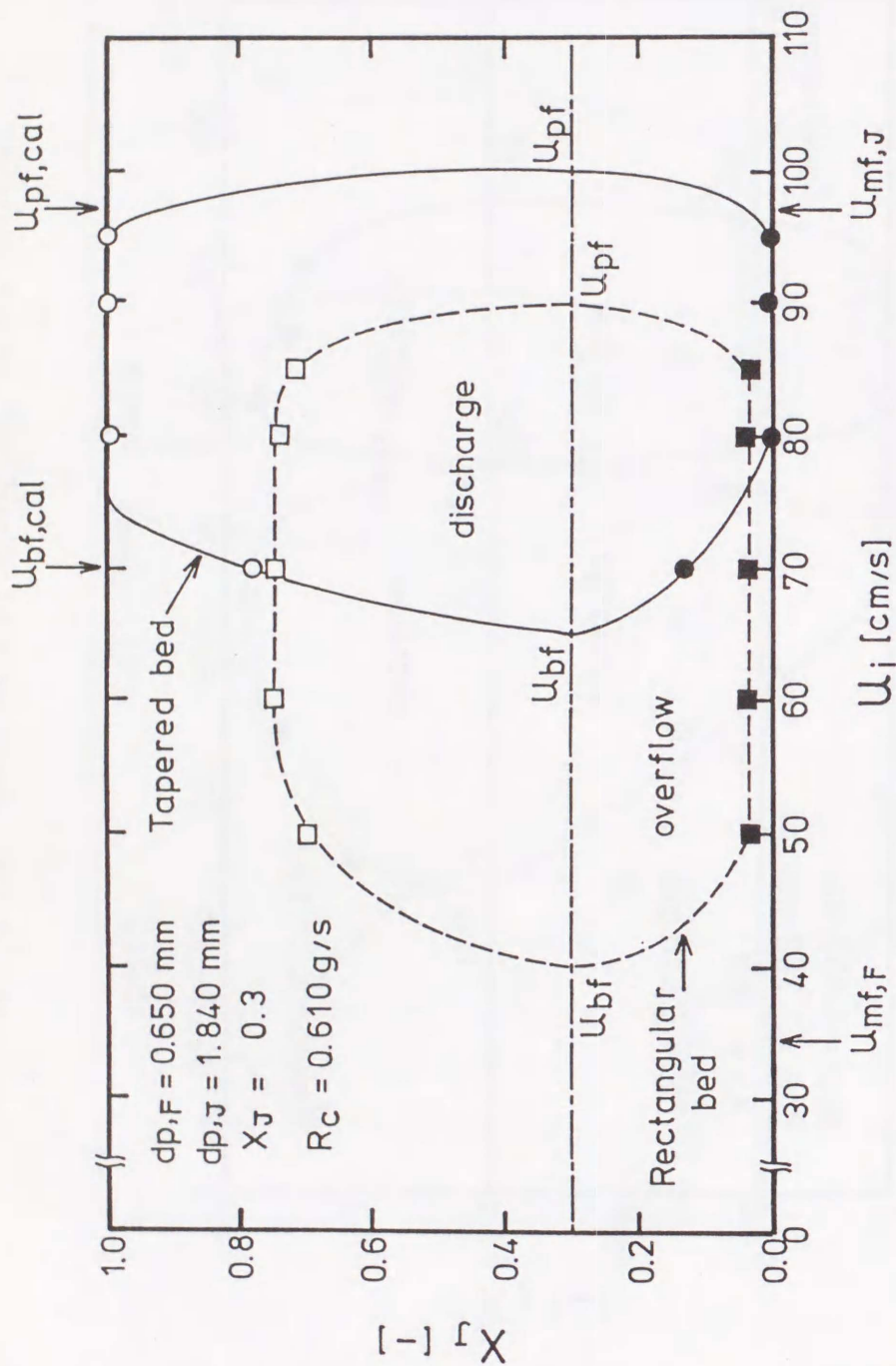


Fig. 6-6(c) Dependence of discharged jetsam particle fraction on fluid velocity $d_{p,F}=0.650\text{mm}$, $d_{p,J}=1.840\text{mm}$, $X_J=0.3$

流動層においては浮上性粒子と沈降性粒子の最小流動化速度 $u_{mf,F}$ と $u_{mf,J}$ とにそれぞれほぼ一致することがわかる。しかしテーパー付き流動層においては層高さ方向に流速が減少するため、 u_{br} と u_{or} は矩形流動層に比較して高流速側にずれるが、これらの値は第4章ならびに第5章で提出した推算式による計算値とほぼ一致している。

Fig. 6-6(b) で示す粒径比が 2.00 の場合も、粒径比が 2.38 の場合と同様な結果を示すが、流動化流速の差が小さくなるため分離操作が可能な流速領域はテーパー付き・矩形両流動層とも狭くなっている。しかし層上部ならびに層下部よりほぼ完全分離された粒子が取り出される流速領域はテーパー付き流動層の方が依然広く、安定な操作が可能である。

通常形流動層を用いた従来の研究⁵⁾では同一密度の場合粒径比 2.5 までの分離が報告されているが、テーパー付き流動層内に生じる柱状偏析を利用した本方法では粒径比 2.0 までの粒子の連続分離操作が可能であり、工業操作において十分有用な方法であると考えられる。

Fig. 6-6(c) で示す供給粒子中の沈降性粒子組成を 30% にした場合、矩形流動層では混合粒子の完全分離は困難になり粒子は混合状態を取り出される。一方、テーパー付き流動層では良好な分離状態を維持することが可能であることがわかる。

6. 4 結 言

二成分混合粒子の連続的な分離にテーパー付き流動層内に発生する柱状偏析を利用することに着目した。柱状偏析した粒子を連続的

かつ選択的に排出することが可能な装置を取り付け、テーパーによる分離性能への影響を矩形流動層との比較により検討し以下の知見を得た。

1. 分離操作が可能な流速範囲は偏析柱が観察される流動化開始流速 u_{bf} から完全流動化開始流速 u_{pf} までのコア部部分流動化領域で、この領域で操作すれば層上部排出口からは浮上性粒子のみが、層下部排出口からは沈降性粒子のみがほぼ完全な分離状態で得られた。

2. 連続分離が可能な操作条件は層上部より供給される混合粒子中の沈降性粒子量に相当する量だけ層下部から沈降性粒子を排出すればよいことがわかった。

3. 上記の分離操作が可能な流速領域は従来 of 断面積一定の矩形流動層に比較して狭い傾向にあるが、完全分離できる領域はテーパー付き流動層の方が広く、従来 of 流動層では完全な分離が困難であった同密度で粒径比が小さい二成分混合粒子でも、テーパー付き流動層を用いることによりほぼ完全に分離することが可能であることがわかった。

使用記号

d_p	= particle diameter	[mm]
ΔP	= pressure drop	[Pa]
R_C	= feed rate of mixed particle	[g/s]
R_D	= discharge rate from bed bottom	[g/s]
u_{bf}	= incipient partial fluidization velocity for tapered bed of binary particle mixture	[cm/s]
u_{cf}	= incipient complete fluidization velocity for tapered bed of binary particle mixture	[cm/s]
u_i	= fluid velocity at inlet	[cm/s]
u_{mf}	= minimum fluidization velocity	[cm/s]
u_{pf}	= incipient perfect mixing velocity	[cm/s]
X_J	= weight fraction of jetsam particle	[-]
$X_{J,C}$	= weight fraction of jetsam in feed particle	[-]
$X_{J,D}$	= weight fraction of jetsam in discharge particle	[-]
ϵ_{mf}	= void fraction at u_{mf}	[-]
θ	= apex angle of tapered bed	[deg]
ρ_s	= particle density	[g/cm ³]
ϕ_s	= shape factor of particle	[-]

<Subscripts>

F	= flotsam particle
J	= jetsam particle

参 考 文 献

- 1) Capes, C.E. and J.P. Sutherland: Ind. Eng. Chem. Des. Dev., 5, 330 (1966)
- 2) Chen, J.L.P. and D.L. Keairns: Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., 17, 135 (1978)
- 3) Chou, T.C., and Y.M. Uang: *ibid*, 24, 683 (1985)
- 4) Cooke, M.J., E.A. Rogers, R.L. Dando and D.W. Gauld: Proc. 3rd Int. Fluidized Combustion Confce., P.DISK/27/232, Inst. Energy (1984)
- 5) Koya, T., E. Komata and D. Kunii: Kagaku Kogaku Ronbunshu, 14, 203 (1988)
- 6) Muchi, I., S. Mori and M. Horio: "Ryuudousou no Hannoukougaku", p125, Baifuukan (1984)
- 7) Sutherland, J.P. and K.Y. Wong: Can. J. Chem. Eng., 42, 163 (1964)
- 8) Yang, W.C., B. Ettehadieh, T.C. Anestis, R.E. Gizzie and G.B. Haldipur "Fluidization V" , p95 (1986)

第 7 章

総 括

本論文は偏析傾向を有する多成分混合粒子の流動化にテーパー付き流動層を使用することに着目し、テーパーによる流動化への影響を従来の断面積一定の流動層との比較によって検討した。この目的のためまず一成分による研究を行い、次に多成分の代表として二成分混合粒子を用いて研究を行い、工業操作における設計ならびに運転指針を明らかにした。本章では各章で得た結論を総括して述べる。

第1章では、緒論としてテーパー付き流動層および多成分混合粒子の流動化に関する既往の研究を概説し、本研究の工学的意義について述べた。そして本研究の目的を明らかにし、本論文の構成を示した。

第2章では、楔型（2次元）・円錐型（3次元）のテーパー付き流動層で一成分粒子を流動化させたときの特性を調べるため、装置形状や層条件を変えて実験を行い、圧力損失・層内粒子流動化挙動・流動化開始流速を中心にその影響を検討した。

入口と出口面の面積比が2以上になるとテーパー付き流動層独特な流動化挙動を示し始め、流動化状態は固定層・コア部部分流動層・コア部流動層（周辺部は固定層もしくは移動層）・完全流動層の4つの状態に分けられることを明らかにした。また各状態での圧力損失は、高さ方向の断面積変化を考慮した Ergun の式、粒子-流体間の力の平衡、およびこの両者を組み合わせた式で推算することができた。テーパー付き流動層の操作指針となる流動化開始速度 u_B は、液-固系についての Shi らの式が適用できることを示した。

第3章では、テーパ付き流動層で粒子を流動化させた時に見られる層内コア部と周辺部との間の粒子循環挙動を明らかにするため、トレーサー粒子を用いて粒子挙動を可視化し、周辺部上面での粒子循環量の測定と推算とを一成分粒子を用いて行った。

周辺部でのトレーサー粒子下降量から周辺部上面での粒子循環速度 v_0 を決定した。粒子循環速度は粒子循環開始流速 u_c 以上の過剰ガス流速 ($u_i - u_c$) に比例することを明らかにし、 u_c の測定ならびに推算を行った。次に粒子循環速度 v_0 を推算する簡単な式を求め、粒径による影響を調べた。

第4章では、同密度で粒径のみが異なる二成分混合粒子を楔型のテーパ付き流動層で流動化させた時の、圧力損失・粒子流動化挙動・粒子偏析現象などを中心に流動化特性を明らかにした。

コア部の流動化挙動は流速により固定層・部分流動層・流動層・完全混合層という4つに分けられ、部分流動層の流速領域ではコア部内の沈降性粒子が偏析し柱状の偏析層が発生することを見いだした。この柱状偏析層内の沈降性粒子の濃度分布を調べると共にその発生領域を示した。また部分流動化の開始速度 u_{br} の推算を行い、広い粒径比に対しても実験値との良好な一致を得た。

第5章では、前章で明らかにされたテーパ付き流動層特有の柱状偏析に着目し、柱状偏析内の混合粒子の分離特性について検討を加えた。

コア部に見られる柱状偏析層について沈降性粒子の高さ方向の濃度分布をその流動化開始から完全混合に至る流速域まで測定し、流

速による影響を明らかにした。この柱状偏析が発生する流速領域を明らかにするため、完全混合開始流速 u_{br} を測定しその実験式を提示した。流動層内に発生する偏析の度合を定量化するため新しく偏析度 S を定義し、テーパ付きならびに通常型流動層内の沈降性粒子の分離特性を偏析度 S と無次元化流速 $u^* = (u_i - u_{br}) / (u_{br} - u_{br})$ とを用いて評価した。これを用いることによりテーパ付き流動層コア部では通常型流動層に比較して粒子の分離傾向が強いことがわかった。

第6章では、二成分混合粒子の連続的な分離にテーパ付き流動層内に発生する柱状偏析を利用することに着目した。コア部偏析粒子を連続的に排出することが可能な装置を取り付け、分離性能の評価を従来型流動層との比較により行った。

分離操作が可能な流速範囲は偏析柱が観察される流動化開始流速 u_{br} から完全流動化開始流速 u_{br} までのコア部部分流動化領域で、この領域で操作すれば層上部排出口からは浮上性粒子のみが、層下部排出口からは沈降性粒子のみがほぼ完全な分離状態で得られた。このような完全分離操作が可能な流速領域はテーパ付き流動層の方が矩形流動層に比較して広く、また従来の断面積一定の流動層では完全な分離が困難であった同密度で粒径比が小さい二成分混合粒子に対しても、テーパ付き流動層を用いることにより連続的な分離操作が可能となることがわかった。

謝 辞

本研究は昭和57年4月から平成2年3月までの8年間にわたり、広島大学大学院 工学研究科 移動現象工学専攻 熱移動操作研究室にて行われたものであります。

研究を進めるにあたり、終始懇切な御指導と御教示を賜りました広島大学工学部 第3類 化学工学講座 河村祐治 名誉教授、さらに、有益な御助言を頂きました、長瀬洋一 教授、松村昌信 教授、舛岡弘勝 教授ならびに第1類 原動機工学講座 須藤浩三 教授に心から感謝の意を表します。また諸実験を行うにあたりご協力をいただいた当時の河村研究室の 馬渡日出男 (品川白煉瓦)、樽本敦 (綜研化学)、重野昭彦 (広島県庁)、松本泰正 (花王)、立園信一 (日立粉末冶金)、玉森宏 (広島ガス)、多田一郎 (四国放送)、渡部一良 (日揮) ならびに実験装置の作成にご援助をいただきました 大佐古正明 先生、小林康男 先生の諸氏に厚く御礼を申し上げます。さらに未熟な私を終始はげましてくれた 品川秀夫 先生、西村龍夫 先生 (山口大学助教授) にも厚く御礼申し上げます。

1991年 3月25日

豊 原 秀 史