

報告番号 甲 第 7715 号

パルス流動を伴う気固系流動層に関する研究

西村 顕

①

パルス流動を伴う気固系流動層に関する研究

西村 顕

目次

序章

1 本研究の背景	1
1-1 流動層技術開発及び研究の歴史	1
1-2 流動層の特性及びその支配因子	2
1-3 流動層開発の課題	5
1-4 パルス流動層に関する既往研究と課題	7
2 本研究の目的及び概要	9
Literature cited	11

第1章 パルス流動層の流動特性に及ぼすパルスサイクルならびに初期粒子層高の影響

緒言	14
1-1 実験	16
1-2 結果及び考察	19
1-2-1 流動状態の目視観察	19
1-2-2 気泡通過時間と流動特性	21
1-2-3 層圧力損失と流動状態に及ぼす平均空気流速の影響	21
結言	30
Nomenclature	31
Literature cited	32

第2章 パルス流動層の断続的流動下における気泡特性

緒言	33
2-1 実験	34
2-2 結果及び考察	35
2-2-1 静止層形成と最小流動化速度	35
2-2-2 気泡特性に及ぼす平均空気流速ならびに粒子径の影響	39
2-2-3 気泡特性に及ぼす初期粒子層高の影響	49
2-2-4 スラッキング流動層との比較	52

2-2-5 層圧力損失と気泡特性の関係についての考察	53
結言	56
Nomenclature	57
Literature cited	58
第3章 二次元パルス流動層の気泡特性と横方向粒子混合との相関	
緒言	59
3-1 実験	59
3-1-1 実験装置及び方法	59
3-1-2 測定	62
3-2 結果及び考察	62
3-2-1 気泡特性	62
3-2-2 横方向粒子混合	67
結言	73
Nomenclature	74
Literature cited	75
第4章 パルス流動層の伝熱特性と気泡特性との相関	
緒言	76
4-1 実験	78
4-2 結果及び考察	81
4-2-1 最小流動化速度	81
4-2-2 各粒子のパルス流動伝熱特性	83
4-2-2-1 ガラスビーズ (平均粒子径 90 μm)	83
4-2-2-2 ガラスビーズ (平均粒子径 340 μm)	87
4-2-2-3 銅粒子 (平均粒子径 90 μm)	87
4-2-3 最適空気閉止期間の検討	92
4-2-4 既往研究との比較	93
結言	96
Nomenclature	97

Literature cited	98
終章	
1 本研究で得られた成果	99
2 今後の課題	102
論文目録	104
謝辞	106

序章

1. 本研究の背景

1-1 流動層技術開発及び研究の歴史

流動層（本論文では気固系流動層を指す）では、粉体粒子の重力と流体（ガス）を流通させたときに得られる抗力が釣り合い、粉体は流体のように扱われる。近代技術としての流動層の起源は古く、1879年のRobinsonの硫化鉍の流動焙焼炉特許申請までさかのぼる²³⁾。その後、1926年のWinklerガス化炉の工業化を経て、1942年にはStandard Oil社によって石油接触分解反応プロセスへ適用され、2070 m³/dayの処理量の運転が開始された。これを契機に、流動層は、触媒反応のみならず種々の固体反応や熱処理、乾燥、造粒、分級等の物理的単位操作プロセスにも広く応用されるようになった。エネルギー生産プロセスでは、1973年の第一次石油ショック以後エネルギー源多様化のため石炭の経済性が見直された結果、各国で流動層燃焼ボイラや流動層石炭ガス化炉の開発が進められている^{11, 46, 50)}。現在、常圧気泡流動層型燃焼ボイラでは350 MWのプラントが世界最大規模で、1996年より電源開発（株）竹原火力発電所にて商用運転中である。また、流動層石炭ガス化炉については、ドイツにおいてNH₃合成原料のH₂を製造目的として商用運転されており、フィンランド及びアメリカでは実証規模の開発が進められている^{47, 52)}。我が国においても、1974年に通商産業省のサンシャインプロジェクトとして、北海道夕張市において石炭処理量が5 ton/day級の夕張型流動層石炭ガス化炉の開発に始まり、40 ton/day級のパイロットプラント¹³⁾を経て、現在は加圧流動層(PFBC)を進化させたA-PFBC(Advanced PFBC)^{14, 44)}へ発展的応用が図られている。このような広範な分野で流動層が使用されるに至った主な利点としては、粒子を連続的に供給、排出することが簡易であること、また層内の粒子混合が迅速であるので層内温度は均一になり、温度制御が容易であること、さらには大規模な装置にしても運転が簡易であること、等が挙げられる。

一方、上記流動層技術の急速な発展を追いかけるようにして、流動層研究は体系化の努力がなされてきた。特に、流動層内を流れるガスのうち流動化に要する部分が濃厚（エマルジョン）相を、残りの過剰流速部分が気泡相（気泡が占有する領域）

を流れるという二相説⁵¹⁾や Davidson による気泡の流体力学モデル¹²⁾などは、流動層研究のパラダイムとしてその発展に重要な役割を果たした。気泡挙動に関する理解が深まるに従い、粒子の分類や性質¹⁵⁾さらには偏斥^{10, 16, 42, 43, 48, 49)}といった現実の流動層開発に大きく関連した研究が行われた。それ以降最近 20 年間に行われた主な研究の一部を以下に例示する。

(1) ライザーから飛び出した粒子を捕集器(サイクロン等)で捕捉し、再びライザーに供給することでガスならびに粒子の処理能力向上を可能にする循環流動層に関して、その流動、伝熱、燃焼特性等の解明^{3, 23, 30, 35, 54)}。

(2) Fig. 1 に示す Geldart map¹⁵⁾において C グループに分類される難流動性微粒子の流動化機構及び凝集性の解析^{9, 22, 38)}。

(3) 流動層内の伝熱や反応の推算、装置形状の決定等に大きく寄与する流動層内流れ場に関して、その測定法、数値解析手法、スケールアップのための相似則等の提案^{17, 18, 20, 21, 24, 36)}。

(4) 流動層燃焼器の環境特性(脱硫、脱硝、脱塩素等)の向上、廃棄物焼却への適用^{1, 27, 29, 40, 41, 45)}。

流動層技術はその発展の経緯から、基礎研究や理論よりも工業的応用が先行しており、経験的要素が強い技術と考えられてきたが、近年では、流動層の諸現象の理論的解明が進展し、気泡挙動に基づく流動状態の把握及び反応工学手法を駆使しての反応解析等が、工業化のための手段の一部として活用されている。

1-2 流動層の特性及びその支配因子

流動層の装置性能を考えるに際して、流動状態の把握と最適化は特に重要である。というのも、流動状態が気固接触、伝熱、混合などの流動層の特質を総合的に代表するからである。流動状態を決定する因子としては、装置構造、粒子物性、操作条件の三要素が主に考えられている。各要素について、特に流動層の流動状態に重要な役割を果たす気泡挙動への影響を中心に、以下にまとめる。

装置構造では、装置直径、ガス分散器の種類、インターナル(内挿物)が主として挙げられる。装置直径は、初期粒子層高と共に水平方向の気泡分布や気泡成長に影響し、装置の大型化に伴いその寄与度も大きくなる。ガス分散器は流動層の底部に配置され、ガスはガス分散器を介して粒子層内に供給される。従って、層底部に

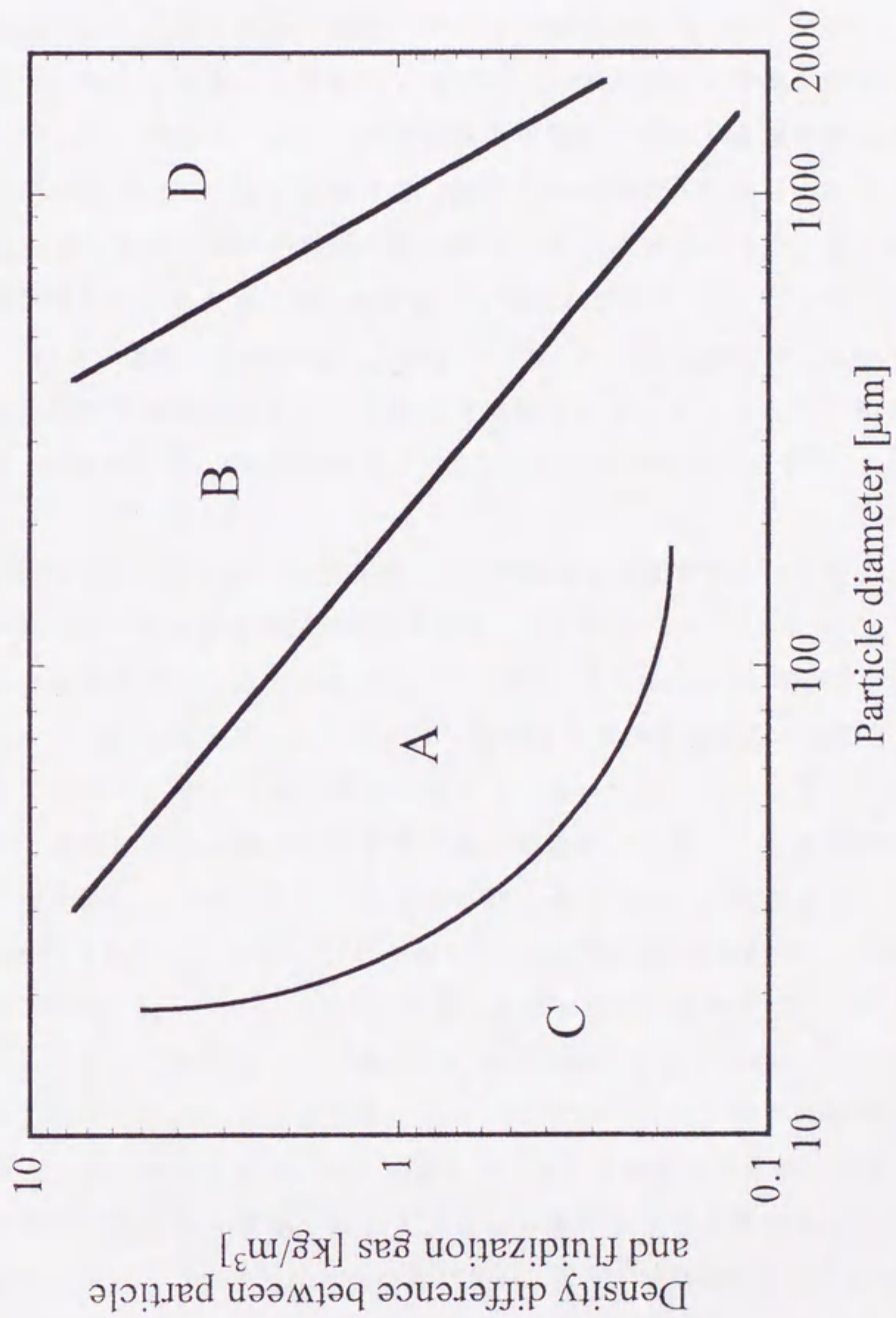


Fig.1 Geldart map for classification of particles

て生成する気泡の直径はガス分散器の形状により決定される。ガス分散器の種類は多く、その形状により、板型、キャップ型、パイプ型、コーン型等に分類される³⁹⁾。インターナルにはラシヒリング、パイプ型等があり、触媒反応では気固接触改善や反応熱除去用に、流動層燃焼ボイラにおいては熱交換を目的に使用される。その形状や挿入の仕方により気泡や流動粒子への干渉具合は異なり、目的に応じて使い分けられている。伝熱管として使用する際には、垂直型と水平型がある。垂直型は、気泡の中心部への集合や会合を制御し流動状態を平滑化する効果が期待できる。また、粒子停滞域や飛散量を減少させ、接触効率を向上させる利点も考えられる。一方、水平型も流動状態の平滑化に効果があるが、インターナル下部に粒子の少ない希薄部が発生し、そこでの副反応が進行する恐れが出てくる⁴⁵⁾。なお、流動層内における層-伝熱管間の伝熱係数は、粒子の流動のない充填層型やピストン流れで充填粒子が流動する移動層型といった他の粉体粒子処理システムと比べ極めて高く、装置構造、粒子物性、ガスの種類等によって異なるが100~1000 W/(m²K)になる^{2), 31), 32), 33), 53), 56)}。

粒子物性では、粒子径と粒子密度が主に流動層の流動状態を決定する。Fig. 1 に示す粒子径と粒子密度を基に流動特性を分類した Geldart map⁴⁵⁾ によると、粒子径が10 μm~2 mm の粒子について、小さい方から順に、C、A、B、D の四つの流動特性の異なるグループが存在する。C グループに分類される粒子は、粒子径が数十μm 以下の微細粒子であり、粒子の比表面積が極めて大きいため、ファンデルワールス力、静電気力、水分による付着力などの粒子間力の影響が大きい。このため、低ガス流速では、層内に流路（チャンネル）が形成されてそこをガスが吹き抜けてしまい、流動層は形成されない。A グループに分類される粒子は、粒子径が40~100μm 程度で粒子密度が2000 kg/m³ より小さく、気泡の分裂と合体の頻度が高い。B グループに分類される粒子は、粒子径が80~数百μm 程度で粒子密度が1500 kg/m³ より大きく、気泡の分裂よりも合体の方が優勢である。D グループに分類される粒子は、粒子径が500 μm 以上の粗粒子であり、流動化のためには高流速が必要である。また、ほとんどの気泡は濃厚層を通過するガス流速より遅い速度で上昇する。さらに、粒子混合は他のグループの粒子と比べ相対的に悪い。以上、流動層が用いられる触媒反応、乾燥、燃焼といった各種プロセスでは、このような4グループの特性を考慮して使用粒子が選定されている。しかしながら、いずれのグループにも、特に流動性の低

い C、D グループにも対応した汎用性の高い流動層装置の開発が望まれている。

最後に、操作条件について、主としてガス流速を考える。Fig. 2 に、ガス流速の増加に対する流動状態の変遷を示す。なお、ここでは最小流動化速度以上のガス流速条件について取り上げる。一般に、一定層高の粒子層の層下部からガスを流し、徐々にガス流速を上昇させると、均一流動化、気泡流動化、スラッキング、乱流流動化、高速流動化、さらに希薄輸送という各流動状態を順に呈する³⁹⁾。均一流動化は、前述の A グループの粒子の場合にのみ起こり、最小流動化速度からある一定のガス流速まで粒子層が均一に膨張する。気泡流動化は、粒子層内に気泡が生成される流動状態で、ガス流速の増加と共に気泡頻度が増加し、粒子の移動が激しくなるが、層膨張はあまり変わらない。気泡は生成した後、上昇しながら合体し、装置直径が小さい場合には装置直径に近い大きさまで成長する。そのような場合をスラッキング状態と呼ぶ。さらにガス流速を増加させると、気泡分率が増大し、明確な気泡が識別しにくくなり、加えて濃厚層も膨張・分散する乱流流動化状態になる。その後、クラスター（粒子群）とストランド（鎖状粒子群）が頻繁に形成・切断される高速流動化を経て、粒子流量が低く、粒子濃度が低い（粒子の体積分率 <0.002 ）希薄輸送の状態になる。なお、高速流動化状態で、塔頂部において粒子を回収、循環させる形式を高速循環流動層（循環流動層）と呼ぶ。触媒反応や燃焼プロセス等では、粒子混合が良好な気泡流動化状態や、ガスならびに粒子の処理能力の大きな高速循環流動層で、運転されている。

以上、流動層の特性を決定する三要素について概説した。それぞれの要素は、各プロセスにおけるプラントの処理能力に大きく寄与する。従って、各要素の選定は、プラント運転に極めて重要であると共に、装置性能の向上や新たな技術開発の際の大きな検討項目になる。

1-3 流動層開発の課題

広範な分野で使用されている流動層であるが、工業的に用いる場合、以下に示すような課題がある⁴⁵⁾。

(1) 層内で気泡が発生し、粒子層をガスがバイパスするので、触媒反応を行うと原料の反応率又は中間生成物の選択率が押し出し流れ反応器のそれに比べて著しく悪くなる場合がある。そのため、気固接触反応に用いる場合には粒子径の選定やラシ

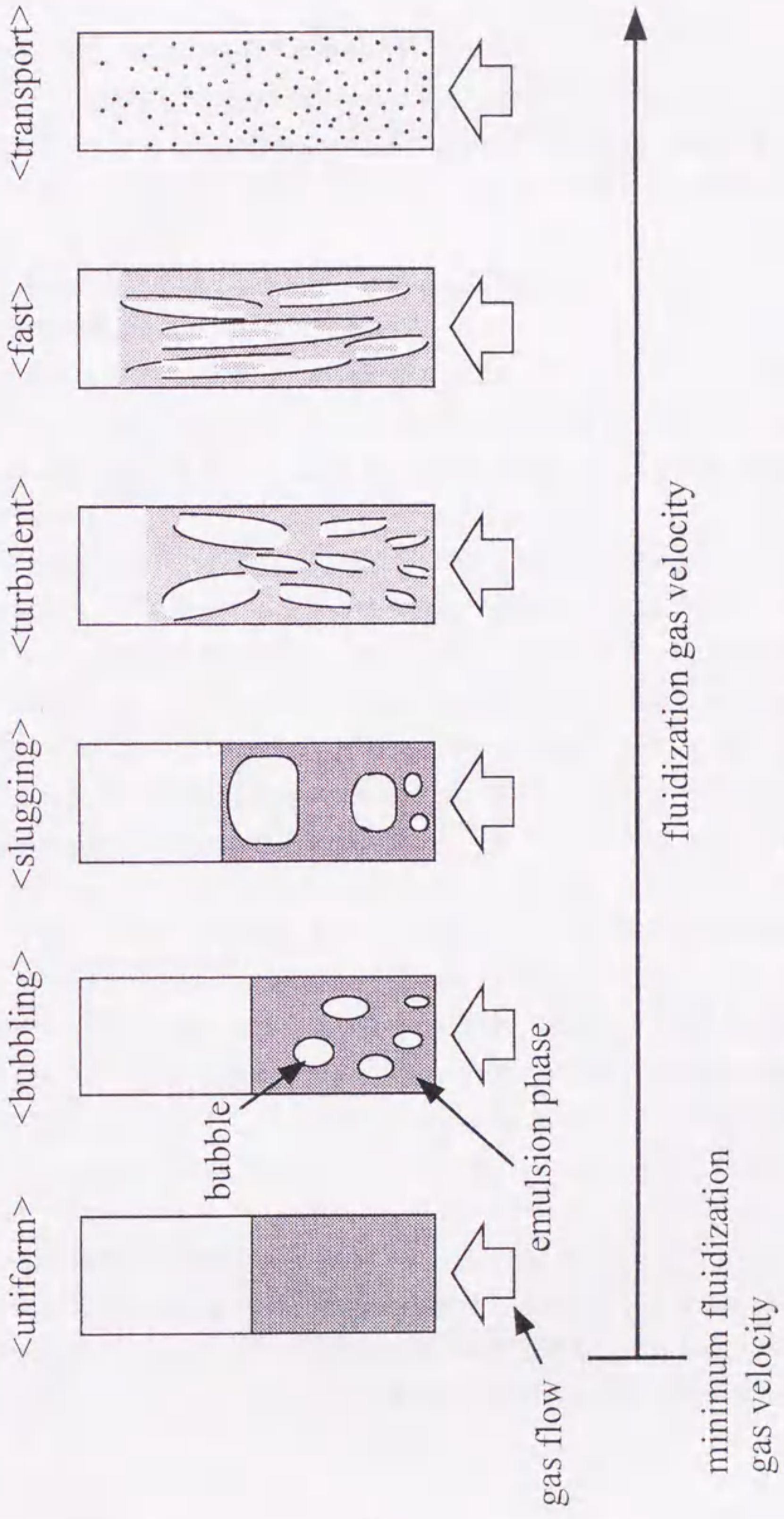


Fig.2 Transition of fluidizing state with increasing fluidization gas velocity

ヒリング等のインターナルの導入が重要となる。

(2) 固体粒子の連続処理に流動層を用いると固体粒子の不均一な製品を生じる。すなわち、燃焼むら、反応むら、乾燥むらを生じやすい。そのため、速度論より求められる所定の操作に必要な滞留時間よりはるかに長い粒子の平均滞留時間が必要である。

(3) 流動化粒子によってはインターナルや容器の摩耗が起りやすくインターナル等の材料の選定に注意を払わなければならない。

(4) 乾燥プロセスに用いる際には、各種粉体材料を処理するプロセスの中で最もエネルギーコストを必要とするものの一つであるため、エネルギーをいかに効率よく材料に伝えるかが大きな課題となる。さらに、必要ガス量の低減が設備コストの節減に不可欠である。

(5) 層内でガスと粒子の接触が著しく悪くなったり、層内で粒子の動かないデッドゾーンが生じたりすると種々のトラブルの原因となるため、層内全体で一様に粒子を流動化することが重要である。特に、層底部において粒子凝集等によってデッドゾーンが生じると、層底部のみならず層全体の接触効率の低下を招き、処理能力が著しく低下する。そのため、層底部の粒子混合を良好な状態に保つことが望まれる。

これらの課題を端的にまとめると、流動層が用いられる各種プロセスにおいて、さらなる粒子混合性能の向上及び必要ガス量、エネルギー量の低減が必要とされていると考えられる。

加えて、流動層は優れた伝熱性能を有することから、触媒反応プロセスでは反応熱の除去や供給、また燃焼プロセスでは熱回収や層温制御を目的として、伝熱管を流動層内に内挿することなどにより熱交換がなされているが、エネルギー有効利用のためにはさらなる伝熱性能向上が求められる。近年、流動層自体を熱交換器として利用することを目指した研究¹⁹⁾が報告されるなど、流動層の特性を活かし、かつ向上させることによる新技術への展開も望まれている。

1-4 パルス流動層に関する既往研究と課題

前述した流動層の課題を鑑み、粒子混合性能向上ならびにそれに伴う伝熱性能向上が期待されるシステムとして、パルス流動層が挙げられる。パルス流動層は、ガスを連続的に粒子層へ供給する通常の流動層と異なり、ガス供給を間欠的に行う流

動層であり、層内に脈動流を生成することで粒子混合促進、伝熱促進を図る。

パルス流動層について、これまでに乾燥装置としての動特性や伝熱面・粒子層間伝熱が主に検討されてきた。パルス流動層を粒状含水物質の乾燥装置に用いた場合、流動層よりも均一な乾燥が確認され⁵⁷⁾、乾燥時間が短縮⁴⁾されたとの報告がある。また、伝熱面-粒子層間伝熱に関して、数~数十 μm の微小粒子について0.1 sec以下の短いパルス周期で運転したところ、パルス操作による伝熱性向上が確認されている^{7, 8, 37)}。特に内挿伝熱管-粒子層間伝熱に関しては、粒子径138~815 μm の粒子について1.0 sec以下の比較的短いパルス周期において検討され、ガスを連続的に流す通常の流動層と比べ、30~40%程度少ない流量で同程度の最大伝熱係数を得られることが確認されている^{5, 6, 26)}。

その他に流動特性に関しても、層圧力損失の経時変化に関する検討^{25, 34, 55)}等、一部報告がなされている。また、パルス流動層の伝熱特性や粒子流動特性に直接影響を及ぼす気泡特性については、僅かに二次元可視化装置で723 μm の砂粒子について報告されている²⁸⁾。これによれば、パルス周期0.1~1.0 sec、ガス流入期間とガス閉止期間の比が1:1の条件において、周期の増加と共に気泡径が増大することが示されている。

このようなパルス流動層に関する既往研究について、ほとんどが1.0 sec以下の短いパルス周期を扱ったものであり、流動化ガスを連続供給する通常の流動層と明確に異なる条件下での粒子挙動ならびに伝熱特性については記述されていない。また、Kobayashiら^{25, 26)}の報告を除くほとんどの研究が、ガス流入期間とガス閉止期間の比を1:1に固定してパルス周期の長さのみを変化させて検討しており、ガス流入期間とガス閉止期間の組み合わせ方による流動特性、伝熱特性の違いについて十分な知見は得られていない。そのため、パルス流動層の十分な性能評価はされておらず、性能向上の可能性が大いに残されていると考えられる。さらには、スケールアップの際の検討項目となる初期粒子層高が流動特性に及ぼす影響や、流動、伝熱、粒子混合といった諸特性に直接寄与する気泡特性に関して、検討はほとんど行われていない。粒子混合特性と気泡特性との相関についても、これまでに報告されていない。これらは、検討、解決されることなく放置されたままであり、上記課題を解決することがパルス流動層装置開発には不可欠である。

パルス流動層は、通常の流動層と比べ時間変動を伴う多くの因子を含むため、実

機への発展利用のみならず、現象把握も容易ではない。そのため、近年あまり活発に研究はされていないが、流動層の性能向上の手法としては非常に効果的と考えられ、さらに将来的には熱交換器、熱輸送器等への発展利用の可能性も期待されることから、パルス流動層研究は大きな意義を有する。

2 本研究の目的と概要

前節で概説した既往研究より、パルス流動層は、流動粒子の混合性が装置性能に大きく影響を及ぼす場合や、単位ガス流入量当たりの評価が対象となるプロセスにおいて優位性が見出されるものと考えられる。それゆえ、パルス流動層は、現在流動層技術に望まれている粒子混合性能の向上、及び必要ガス量、エネルギー量の低減、さらには熱交換率向上に伴うエネルギー高度利用、等を満たす技術として期待される。

しかしながら、パルス流動層を通常の流動層に代わる新システムとして実用化するためには、前節で述べた未解決のまま長年山積状態にある以下の課題の克服が不可欠である。

(1) 広範囲、特にパルス周期を長く設定した場合やガス流入期間とガス閉止期間の組み合わせを大きく変化させた場合の流動、伝熱特性に関する検討。

(2) スケールアップの際の検討項目となる初期粒子層高が流動特性に及ぼす影響。

(3) 流動特性、伝熱特性に寄与する気泡特性に関する知見の充足。

(4) 粒子混合特性と気泡特性との相関に関する検討。

その他に、ガス閉止期間を伴うことによる運転時間の長時間化及び送風動力源への負荷増大を防ぐ新システムの提案が必要である。

そこで本研究では、パルス流動層装置設計の基礎的指針を得るため各種条件下におけるパルス流動層の諸特性を明らかにすることを目的とし、上記課題に取り組んだ。ヒーター内挿型二重管式パルス流動層可視化装置を試作し、パルス周期を大きく変化させ、流動特性、伝熱特性を明らかにした。併せて、奥行きが極めて短い二次元パルス流動層可視化装置を試作し、気泡特性と混合特性との相関を検討した。特に、諸特性に直接寄与する気泡挙動の解明を中心に実験的検討を行った。

本論文は、パルス流動層コールドモデルにおける流動特性及び気泡特性に関する

装置工学的検討（第 1 章、第 2 章）と、二次元パルス流動層における気泡特性と粒子混合特性に関する装置工学的検討（第 3 章）、パルス流動層ホットモデルにおける伝熱特性と気泡特性に関する装置工学的検討（第 4 章）、及び本研究で得られた成果、今後の課題に関する総括（終章）から構成されている。以下に各章の概要を述べる。

第 1 章では、ヒーター内挿型二重管式パルス流動層可視化装置を試作し、常温下において、流動特性に及ぼすパルス周期ならびに初期粒子層高の影響を実験的に検討した。流動特性を表す基礎的指標として、定常操作時の下限条件である最小流動化速度、ならびに送風動力源へ影響を及ぼす層圧力損失について検討した。併せて、同装置を用いて得られた通常の流動層の結果と比較した。

第 2 章では、第 1 章で確認された、通常の流動層では観察されないパルス流動層に特異な、ガスを流入しない期間に層全体で静止層が形成される断続的流動条件下について気泡特性を検討した。ビデオカメラ観察及び流動状態の静止画面画像解析より、気泡特性として気泡径、気泡数を測定し、それらに及ぼすガス流速、初期粒子層高の影響を検討した。併せて、得られた気泡特性と層頂水位及び圧力損失の経時変化について対比した。

第 3 章では、現象解明を簡易的にかつ精度よく行うため、奥行き極めて短い二次元コールドモデル可視化装置を試作し、パルス周期を変化させて気泡特性と粒子混合特性を評価した。ビデオカメラ観察及び流動状態の静止画面画像解析より、気泡特性として気泡サイズと気泡数を、また粒子混合特性として横方向トレーサー粒子濃度変化を測定し、それらの関係について検討した。

第 4 章では、第 1 章、第 2 章で用いたパルス流動層試験装置にて、内挿ヒーターを通电加熱した状態で、伝熱特性に及ぼすパルス周期ならびに粒子性状の影響を検討した。伝熱特性として内挿ヒーター・粒子層間伝熱係数を測定し、第 2 章と同様にして調べた気泡特性との関係について検討すると共に、同装置を用いて得られた通常の流動層の結果とも比較した。また、先に述べた、パルス連続運転時に問題となる、運転時間の長時間化及び送風動力源への負荷増大を解決する新システムを提案した。

終章では、本研究で得られた結果を総括し第 1 - 4 章を要約すると共に今後の課題について述べた。

Literature cited

- 1) 新井新男、三浦隆利、宮前茂広：燃焼生成物の発生と抑制技術、(株) テクノシステム (1997)
- 2) Baskakov, A. P., B. V. Berg, O. K. Vitt, N. F. Filippovsky, V. A. Kirakosyan, J. M. Goldobin and V. K. Maskaev : *Powder Tech.*, 8, 273 (1973)
- 3) Basu, P. and P. K. Nag : *Chem. Eng. Sci.*, 51, 1 (1996)
- 4) Belik, L. : *Chem. Ing. Tech.*, 32, 253 (1960)
- 5) Bhattacharya, S. C. and D. Harrison : *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, 54, 281 (1976)
- 6) Bokun, I. A. and S. S. Zabrodskii : A. V. Lykov, ed., *Nauka i Tekhnika*, 27 (1966)
- 7) Bretsnajder, S., M. Jazczak and W. Pasiuk : *Ind. Chem. Eng.*, 3, 496 (1963)
- 8) Bukharov, M. V., V. A. Chlenov and N. V. Mikhailov : *Ind. Chem. Eng.*, 9, 119 (1969)
- 9) Chaouki, J., C. Chavarier, D. Klvana and D. Pajonk : *Powder Tech.*, 43, 117 (1985)
- 10) Chiba, S., T. Chiba, A. W. Nienow and H. Kobayashi : *Powder Tech.*, 22, 255 (1979)
- 11) 千葉忠俊、吉田邦夫：流動層概論、朝倉書店 (1996)
- 12) Davidson, J. F : *Trans. Inst. Chem. Engrs.*, 39, 223 (1961)
- 13) Fujioka, Y., S. Shirakawa, S. Hozumi and J. Arai : *Proc. of World Con. 3 Chem. Eng.*, 1, 497 (1986)
- 14) 藤岡祐一、土山佳彦、徳田君代、中島文也、内田聡：化学工学論文集、20、784 (1994)
- 15) Geldart, D. : *Powder Tech.*, 7, 285 (1973)
- 16) Gibilaro, L. G. and P. N. Rowe : *Chem. Eng. Sci.*, 29, 1403 (1974)
- 17) Glicksman, L. R. : *Chem. Eng. Sci.*, 43, 1419 (1984)
- 18) 幡野博之、武内洋：化学工学、60、545 (1996)
- 19) 姫路裕二、熊田雅弥：第34回日本伝熱シンポジウム講演論文集、767 (1997)
- 20) 堀尾正韜、千場まゆみ：ケミカルエンジニアリング、11、61 (1985)
- 21) Horio, M., A. Nonaka, Y. Sawa and I. Muchi : *AIChE J.*, 32, 1466 (1986)
- 22) Iwadate, Y. and M. Horio : *Powder Tech.*, 100, 223 (1998)

- 23) 化学工学会編：流動層、槓書店 (1992)
- 24) 川口寿裕、田中敏嗣、辻裕：日本機械学会論文集(B)、58-551、2119 (1992)
- 25) Kobayashi, M., D. Ramaswami and W. T. Brazelton : *AIChE Symp. Ser.*, 105, 47 (1970a)
- 26) Kobayashi, M., D. Ramaswami and W. T. Brazelton : *AIChE Symp. Ser.*, 105, 58 (1970b)
- 27) Kojima, T. : *Proc. of The 1st SCEJ sym. on Fluidization*, 186 (1995)
- 28) Köksal, M. and H. Vural : *Powder Tech.*, 95, 205 (1998)
- 29) Koyama, K., M. Suyari, F. Suzuki and M. Nakajima : *Proc. of The 1st SCEJ sym. on Fluidization*, 56 (1995)
- 30) Lei, H. and M. Horio : *J. Chem. Eng. Japan.*, 31, 89 (1998)
- 31) Luo, C., H. Hamano, S. Uemiya and T. Kojima : *J. Chem. Eng. Japan*, 31, 95 (1988)
- 32) Martin, H. : *Chem. Eng. Comm.*, 13, 1 (1981)
- 33) Martin, H. : *Int. Chem. Eng.*, 22, 30 (1982)
- 34) Massimilla, I., G. Volpicelli and G. Raso : *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, 62, 63 (1966)
- 35) Masten, J. M. : *Powder Tech.*, 31, 21 (1982)
- 36) Mikami, T., H. Kamiya and M. Horio : *Chem. Eng. Sci.*, 53, 1927 (1998)
- 37) Mitkevich, E. M. : *Zhur. Prikl. Khim.*, 33, 1253 (1971)
- 38) Morooka, S., K. Kusakabe, A. Kobata and Y. Kato : *J. Chem. Eng. Japan*, 21, 41 (1988)
- 39) 鞭巖、森滋勝、堀尾正靱：流動層の反応工学、培風館 (1984)
- 40) Nagata, K : *Proc. of The 1st SCEJ sym. on Fluidization*, 41 (1995)
- 41) Narukawa, K., T. Hirama, H. Hosoda, H. Goto, Y. Chen, R. Yamazaki, Y. Hujima and S. Mori : *Proc. of The 1st SCEJ sym. on Fluidization*, 80 (1995)
- 42) Nienow, A. W., P. N. Rowe and A. J. Agbim : *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 51, 260 (1973)
- 43) Nienow, A. W., P. N. Rowe and T. Chiba : *AIChE Symp. Ser.*, 74, 45 (1978)
- 44) 日本伝熱学会編：環境と省エネルギーのためのエネルギー新技術大系、エヌ・ティー・エス (1996)

- 45) 日本粉体工業技術協会 (APPIE) 編 : 流動層ハンドブック、培風館 (1999)
- 46) Oshita, T. : *Proc. of The 3rd SCEJ sym. on Fluidization*, 1 (1997)
- 47) Rehmat, A. and A. Goyal : *Proc. of Am. Chem. Soc. Fuel Chem.*, 36, 1693 (1991)
- 48) Rowe, P. N., A. W. Nienow and A. J. Agbim : *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 50, 310 (1972)
- 49) Rowe, P. N., A. W. Nienow and A. J. Agbim : *Trans. Inst. Chem. Eng.*, 50, 324 (1972)
- 50) 寺田 齊 : エネルギー・資源、20、37 (1999)
- 51) Toomey, R. D. and H. F. Johnstone : *Chem. Eng. Progr.*, 48, 220 (1952)
- 52) Tsatsaronis, G., T. Tawfik, L. Lin and D. T. Gallaspy : *Trans. ASME J. Eng. Gas Turbines Powder*, 116, 291 (1994)
- 53) Wicke, E. and F. Fetting : *Chem. Ing. Tech.*, 26, 301 (1954)
- 54) Wirth, K. E. : *Chem. Eng. Sci.*, 50, 2137 (1995)
- 55) Wong, H. W. and M. H. Baird : *Chem. Eng. J.*, 2, 104 (1971)
- 56) Wunder, R. and A. Mersmann : *Chem. Ing. Tech.*, 51, 241 (1979)
- 57) Zabrodskii, S. S. and I. A. Bokun : A. V. Lykov, ed., *Nauka i Tekhnika*, 135 (1966)

第1章 パルス流動層の流動特性に及ぼすパルスサイクル ならびに初期粒子層高の影響

緒言

序章で概説したように、流動層は、接触反応、乾燥、造粒、分級装置など化学工業の広い範囲で用いられている重要な単位操作の一つである。通常の流動層では流動化ガスが連続的に一定供給されるため、使用する粒子の性状、装置形状、粒子充填量やガス流速など操作条件によって定常的流動状態が形成される。一方、パルス流動層では周期的に流動化ガスの粒子層への供給、閉止が繰り返され、供給時には流動状態、閉止時には粒子の自由落下から静止層が形成される。

Fig. 1-1 に、パルス流動層のシステム概念図を示す。本システム全体としては流動化ガスが連続的に供給されるが、各層単位ではパルスのようにガスが供給されるため、図中①②③の流動状態が繰り返し形成される。①では流動化ガスの供給により粒子が流動化、②ではガス供給が止められた直後であり流動粒子が沈降、③では粒子が完全に沈降し静止層を形成する。

このように特異な流動状態を呈するパルス流動層について、序章で述べたような伝熱研究が行われてきた^{1, 2, 3, 4, 5, 8, 10, 12)}。流動特性に関しても、層圧力損失の経時変化に関する検討^{7, 9, 11)}等、一部報告がなされているが、上述の伝熱特性に関する研究も含め、これらのほとんどが 1.0 sec 以下の短いパルス周期を扱ったものであり、流動化ガスを連続供給する通常の流動層と明確に異なる条件下での粒子挙動ならびに伝熱特性については記述されていない。また、スケールアップの際の検討項目となる初期粒子層高の影響についても報告されていない。

本研究では、パルス流動層特有の流動状態の解明を目的とし、試験装置を試作した。常温下において、パルス周期及びガス流速を大きく変化させて流動特性を検討した。また、初期粒子層高の影響についても併せて検討した。さらには、同一装置を用いて連続的に流動化ガスを供給する通常の流動層の粒子流動特性も調べ、パルス流動層との比較対象とした。本章では、基礎的流動特性の把握のため、主に、定常操作時の下限条件である最小流動化速度と、送風動力源への負荷及び粒子層挙動を示す指標である層圧力損失について取り上げる。

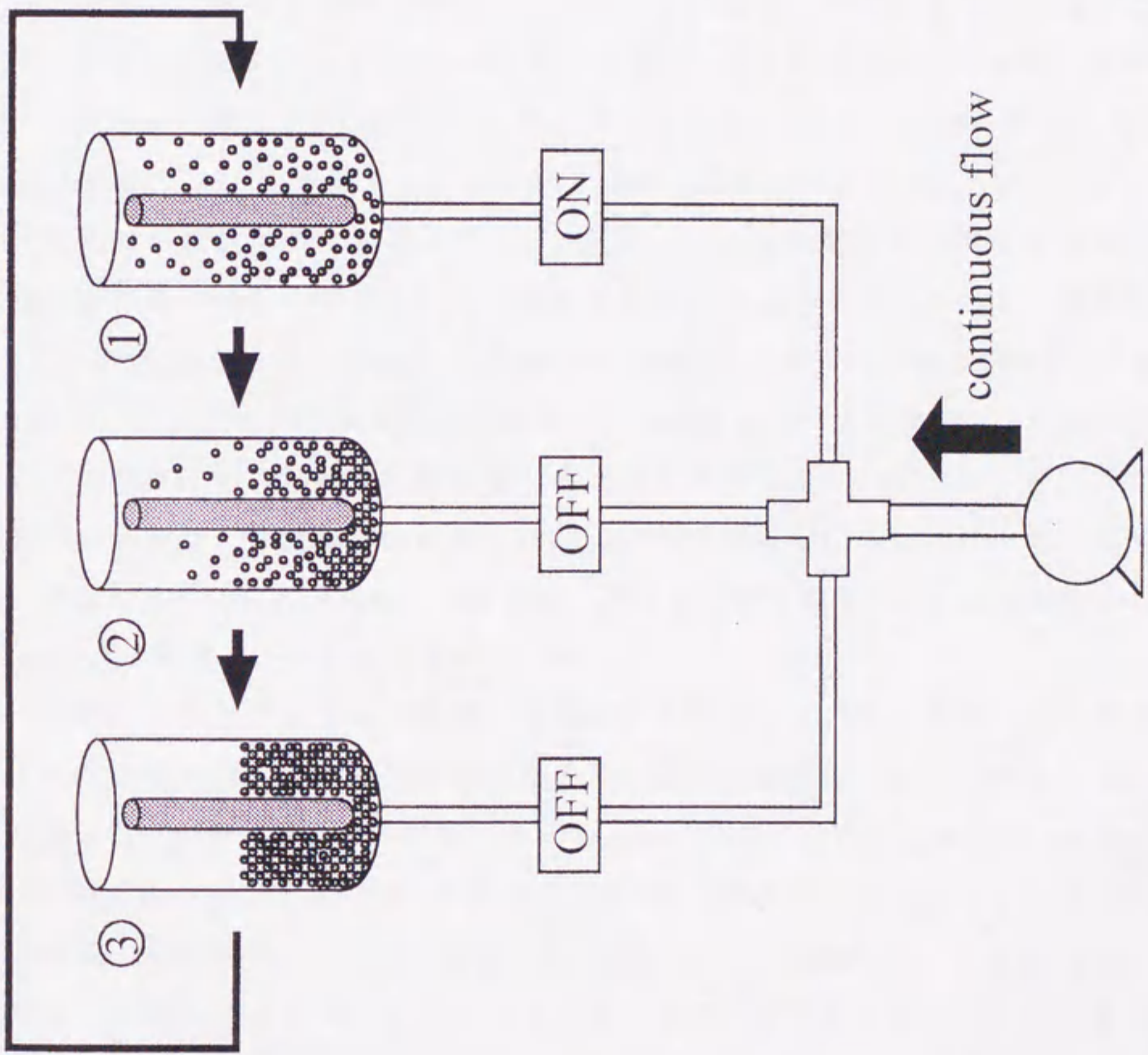


Fig.1-1 Conceptual drawing of pulsated fluidized bed system

1-1 実験

実験装置の概略を Fig. 1-2 に、使用粒子性状、パルス周期など実験条件範囲を Table1-1 に示す。ライザーは内径 95 mm、高さ 1000 mm のパイレックスガラス製円筒である。その中心には、本システムの熱交換器への適応を想定し熱供給媒体流路を模擬した外径 43 mm、高さ 960 mm のステンレス製ヒーターを挿入した。また、本システムにおいて内挿物を熱源とする伝熱実験への展開を考慮し、分散板の保護のためにステンレス管下部にはステンレス管と同一外径、高さ 40 mm の円筒耐熱れんがが設置してある。なお本章では、ステンレス製ヒーターを通電加熱せずにコールドモデルで実験を行ったため、ステンレス製ヒーターの詳細は第 4 章にて説明する。ガスだめ（内容積 $6.4 \times 10^{-3} \text{ m}^3$ ）とライザーには圧力センサーが取り付けられており、その情報は AD 変換後コンピュータで演算、保存される。ガスだめの入口と出口には電磁弁が設置されており、ガスだめ圧力とパルス周期は電磁弁の開閉周期により制御される。流動化ガスとしては空気を用い、そのライザーへの流入速度をガスだめ圧力変化から求めるために、空気流入時にはガスだめ入口の電磁弁を閉止した。Fig. 1-3 に、ガスだめ内空気圧力の経時変化の一例を示す。本実験条件下において、ガスだめ内空気圧力の経時変化は設定したパルス周期と良く一致した。なお、空気流入速度の調節は、分散板手前に設けたバルブの開度を変化させて行った。流動粒子には表記した性状のガラスビーズを用い、使用した粒子のサイズから分散板として 300 mesh/inch のステンレス金網を使用した。

実験は、ライザー内へ所定量の流動粒子を充填し、パルス周期、流入速度の制御された空気を流入させる。実験開始より一定時間経過後、層圧力損失の経時変化を測定した。併せてデジタルビデオカメラ（Handycam、SONY 社製、30 frames/sec）、DV 静止画キャプチャーボードキット（SONY 社製）によりパソコンに取り込んだ流動状態の画像から、気泡数を測定した。撮影は、実験装置から 2 m 離れた位置に固定した一台のデジタルビデオカメラによりライザー側面より行い、その際の撮影範囲は、ライザー高さ方向に 1000 mm、周方向に外周の $17/36$ の大きさで、ライザー全外表面のほぼ半分である。

なお、本研究では空気流入速度として、ガスだめの圧力変化から求めた空気流入期間（on-period, t_{on} ）における空気流入量を、ライザー内面積から内挿物断面積を引いた層断面積（ A ）と t_{on} で除したものを平均空気流速（ u_{on} ）と定義し、以下に用い

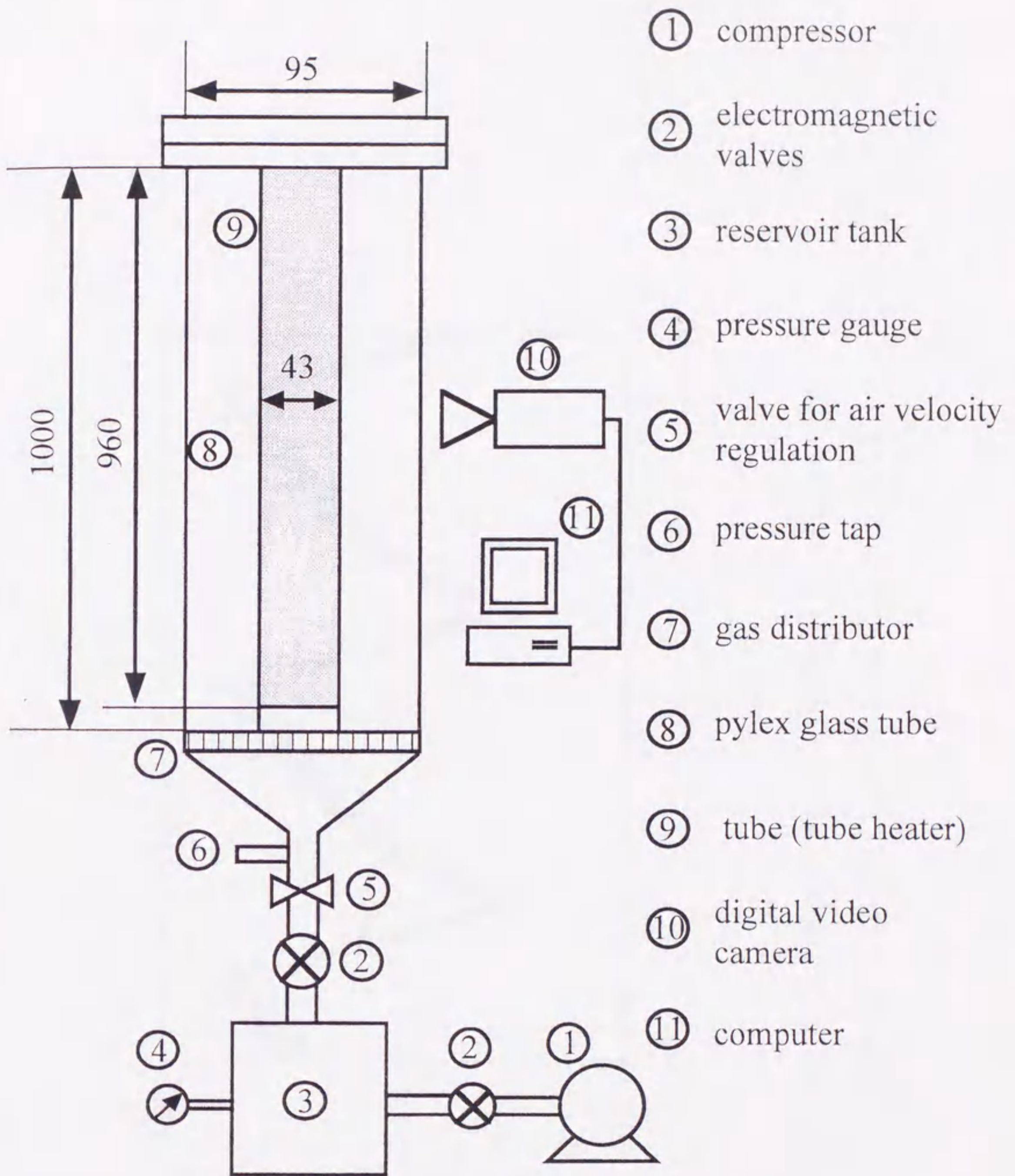


Fig.1-2 Schematic drawing of experimental apparatus

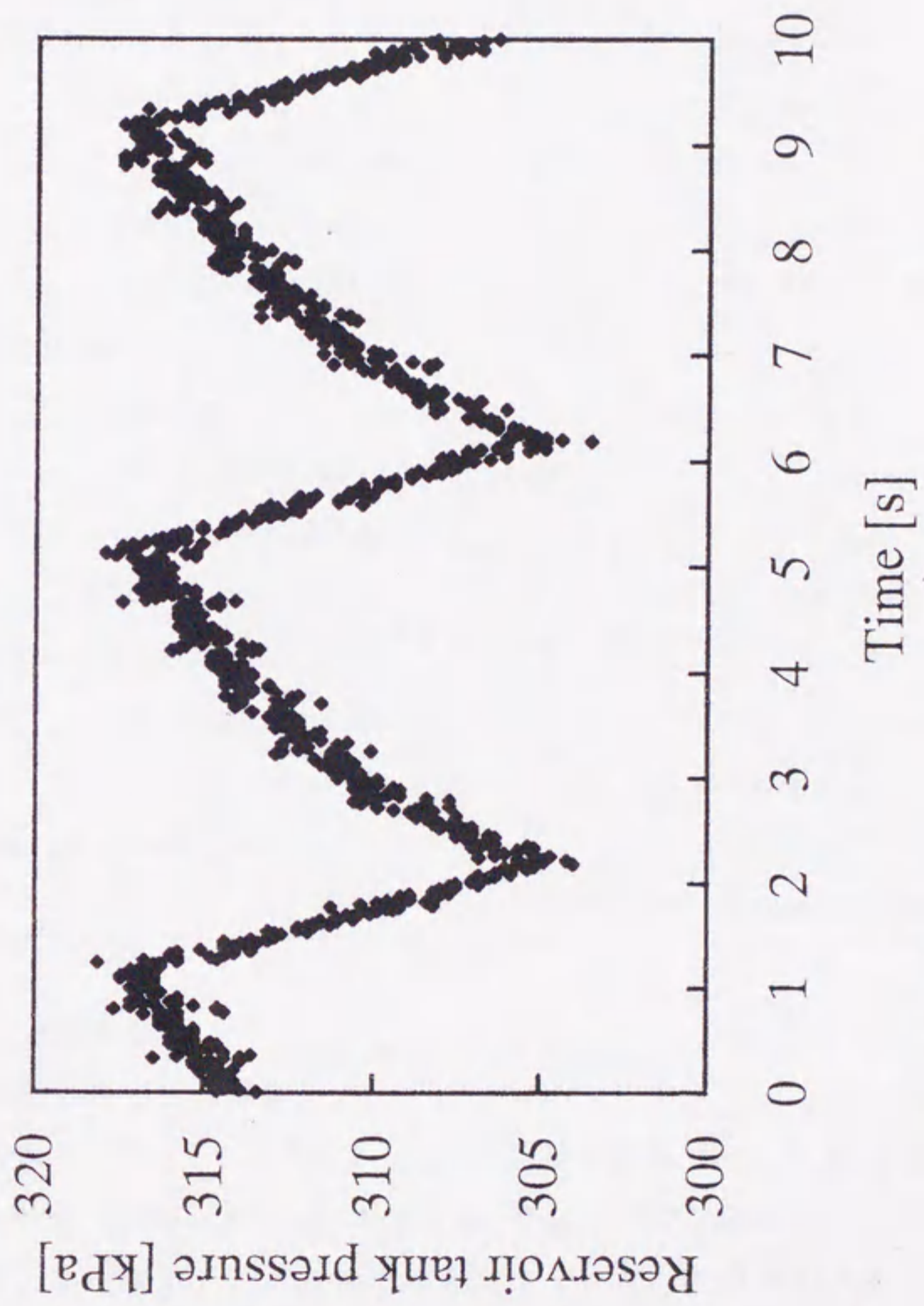


Fig.1-3 Example of change in reservoir tank pressure ($t_{on} = 1.0$ s, $t_{off} = 3.0$ s)

る。また、パルス流動層の圧力損失は、空気流入期間において 0.05 sec 毎に計測した層圧力損失について総和をとり、その算術平均値 (ΔP) とした。

Table 1-1 Experimental conditions

Bed material:	glass beads
Density:	2500 kg/m ³
50% cumulative mean size:	90 μ m
Particle size range:	70~120 μ m
Initial bed height (H_i):	300, 500 or 700 mm
Fluidization gas:	air
Density:	1.2 kg/m ³
Superficial mean velocity based on on-period duration (u_{on}):	0~0.20 m/sec
Initial temperature:	room temperature
Pulsating operation:	
On-period duration (t_{on}):	0.5, 1.0 or 2.0 sec
Off-period duration (t_{off}):	0.1~4.0 sec
Reservoir tank pressure:	(1.0~6.0) $\times 10^2$ kPa (absolute pressure)

1-2 結果及び考察

1-2-1 流動状態の目視観察

流動状態の一例として、Fig. 1-4 に、初期粒子層高 (H_i) が 300 mm、 $t_{on} = 1.0$ sec、空気閉止期間 (off-period, t_{off}) が 3.0 sec で $u_{on} = 0.20$ m/sec における空気流入時の写真を示す。本写真から、流路幅と同程度まで発達した縦長の大気泡が確認できる。本実験系では、今後の伝熱実験への展開を考慮し、気泡流動による物質、熱移動を促進するため、Keairns の判定式⁶⁾に基づき H_i に対する装置直径の比を小さくしており、そのため発達した気泡が形成されたと考える。



Fig.1-4 Example of bubble flowing in a pulsated fluidized bed ($H_i = 300$ mm, $t_{on} = 1.0$ s, $t_{off} = 3.0$ s, $u_{on} = 20 \times 10^{-2}$ m/s)

1-2-2 気泡通過時間と流動特性

Fig. 1-5 に、 $t_{on} = 1.0 \text{ sec}$ 、 $t_{off} = 3.0 \text{ sec}$ で $u_{on} = 0.14 \text{ m/sec}$ における 1 パルス周期あたりの観察面基準の総気泡数 (N_{total}) 経時変化を、 $H_i = 300 \text{ mm}$ と $H_i = 700 \text{ mm}$ について示す。本図より、 $H_i = 300 \text{ mm}$ の時には空気流入が停止して 1.0 sec 後に、また $H_i = 700 \text{ mm}$ ではほぼ 2.0 sec 後に全ての気泡が層を通過し終えることが確認できる。この値は、本実験条件下において、 t_{on} 、 t_{off} ならびに u_{on} によらず、それぞれの H_i についてほぼ一定であることを、ビデオ観察により確認した。この空気流入が停止してから全ての気泡が層を通過し終える時間を気泡の層通過時間 (t_s) とすると、 t_{off} を t_s より大きく設定することで層全体に静止層が形成されることになる。本研究では、層中を上昇する最終気泡の最下点から分散板までの距離を静止部分層高さとして定義し、 $N_{total} = 0$ の状態を層全体での静止層形成とする。なお、層全体での静止層形成時の粒子層高は、 H_i と同一であった。

Fig. 1-6 に、各 t_{on} における、 t_{off} とパルス流動層の t_{on} 基準の最小流動化速度 ($u_{mf,on}$) との関係を示す。本研究では、 $u_{mf,on}$ を、従来の流動層で用いられる空気流速と圧力損失の関係を利用した測定方法にて求め、 ΔP と u_{on} の関係から、 ΔP が一定値を示す最小の u_{on} を $u_{mf,on}$ とした。本図より、 t_{off} が t_s 近傍までは、 t_{off} の増加に伴い $u_{mf,on}$ が増加する傾向にある。これは、 t_{off} の増加に伴い、空気流入開始時に形成されている静止部分層高さが増加した事による。一方、 t_{off} が t_s を越えると層全体に静止層が形成されるため、 $u_{mf,on}$ はほぼ一定の値を示したと考えられる。また本図から、 t_{on} の増加に伴い $u_{mf,on}$ が減少することが分かる。 t_{on} の増加により層内粒子は十分に流動・分散されるため、 t_{off} 経過後の流動に要する空気量が減少し、 $u_{mf,on}$ の減少が得られたと推察される。

1-2-3 層圧力損失と流動状態に及ぼす平均空気流速の影響

Fig. 1-7 に、 $H_i = 700 \text{ mm}$ で、 $t_{on} = 1.0 \text{ sec}$ 一定、 $t_{off} = 0.5 \sim 4.0 \text{ sec}$ で変化させた場合の u_{on} に対する ΔP の変化を、空気を連続供給する通常の流動層 ($t_{off} = 0 \text{ sec}$) での結果と共に示す。本図からも、Fig. 1-6 で示したように、 $u_{mf,on}$ は t_{off} の増加と共に増加し、 t_{off} が、 t_s である 2.0 sec 以上ではほぼ一定になることが分かる。また、 u_{on} の増加に伴い ΔP は増加し、連続的に空気を供給する通常の流動層での結果よりも大きくなった。

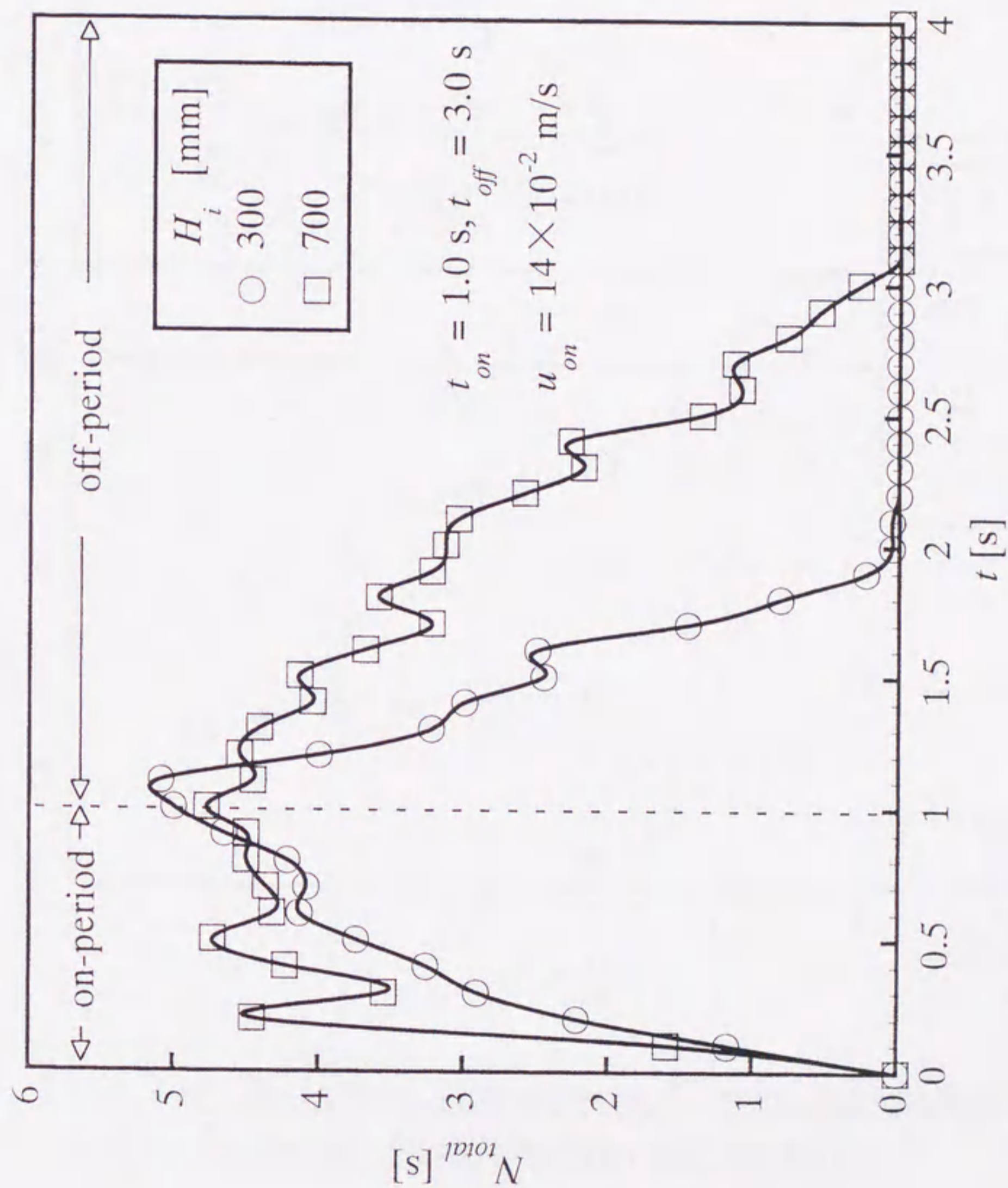


Fig.1-5 Comparison of bubble transit time between 300 and 700 mm of initial bed height

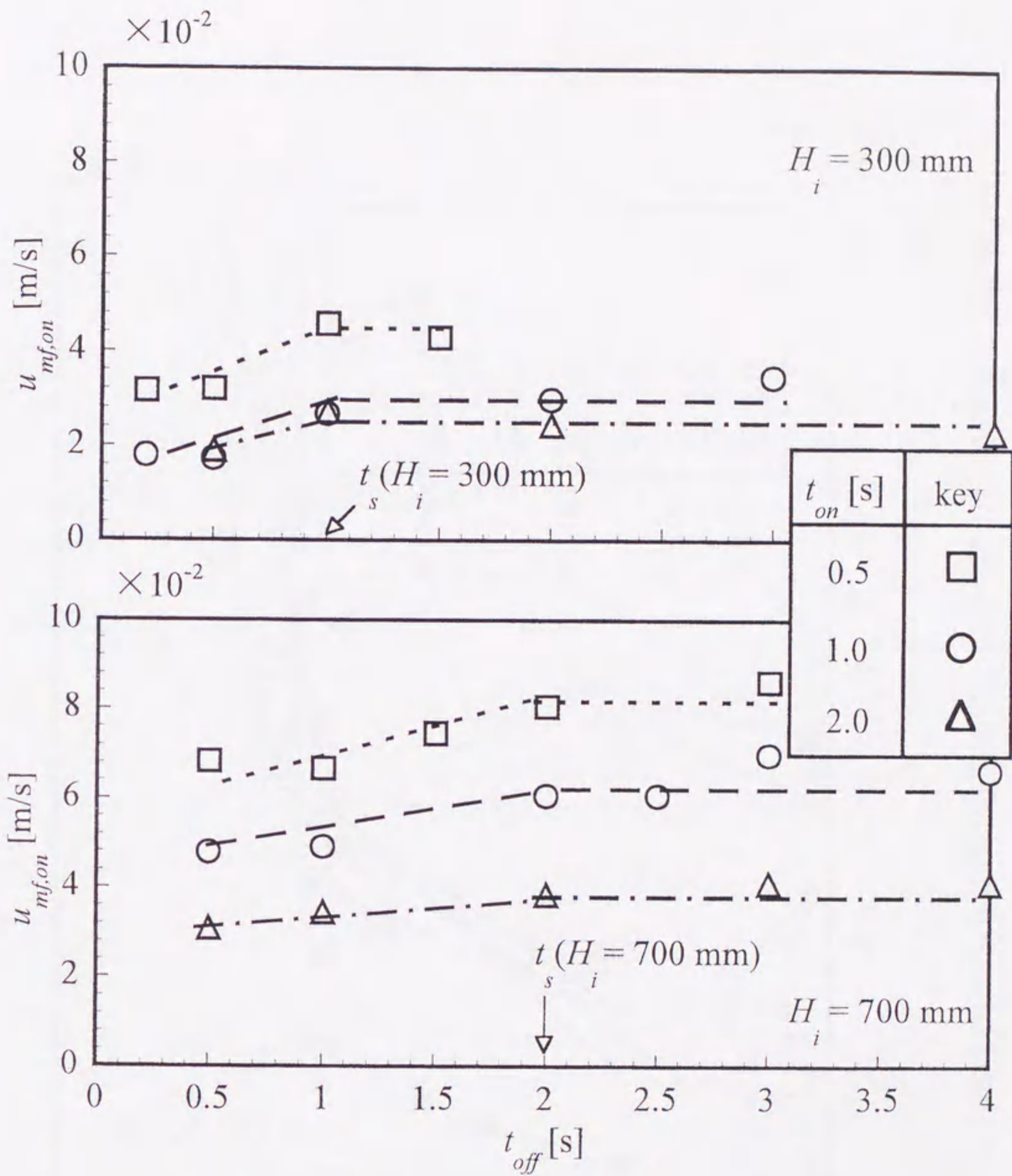


Fig.1-6 Relation between off-period duration and minimum fluidization air velocity

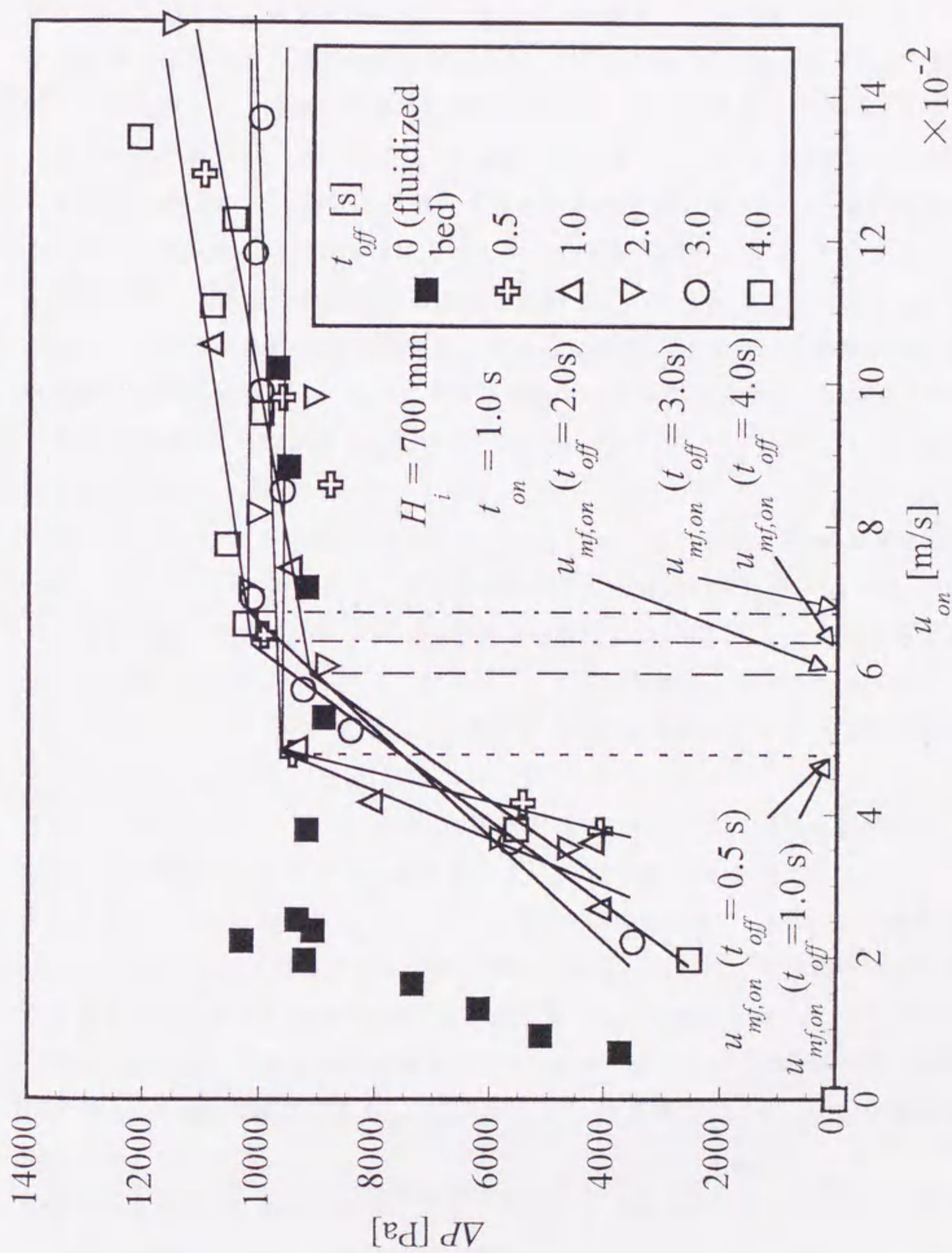


Fig.1-7 Mean pressure drops with varied off-period duration

ここで、Fig. 1-8 に圧力損失の経時変化の一例として、 $H_i = 700 \text{ mm}$ で、 $t_{on} = 1.0 \text{ sec}$ 、 $t_{off} = 3.0 \text{ sec}$ の場合について示す。圧力損失の経時変化については、ここに示した実験条件以外でもほぼ同様な形状を示していた。本図より、圧力損失は t_{on} と t_{off} に対応して周期的に変化し、空気流入開始してから約 0.3 sec 後に極大値 (P_{max}) を示した後、徐々に減少し、通常の流動層の定常運転時における理論圧力損失 Wg/A より小さくなる分布を呈することが分かる。 P_{max} は Wg/A を大きく越えているが、これも前述の静止層の抗力が、流動状態の層から得られる抗力よりも大きいことが原因と考える。また、空気流入期間後半に圧力損失が Wg/A を下回ったのは、Fig. 1-4 に示したような発達した気泡の最頂部が層最上面に到達し、粒子に抗力を与えることなく一気にフリーボード部へ空気が流れ込んだことが原因と考える。この現象は、従来の流動層では気泡径が小さいために非常に微細な圧力損失の変動として確認されるが、本系では発達した気泡が得られているため、本図のように大きく Wg/A を下回る圧力損失が得られたと思われる。

Fig. 1-9 に、 H_i を 300 mm と低くし、 $t_{on} = 1.0 \text{ sec}$ 、 $t_{off} = 0.2 \sim 3.0 \text{ sec}$ で変化させた場合の u_{on} に対する ΔP の変化を、空気を連続供給する通常の流動層 ($t_{off} = 0 \text{ sec}$) の場合の結果と共に示す。 H_i が 700 mm と大きい場合には、 u_{on} が $u_{mf,on}$ を越える領域で ΔP は連続供給した場合よりも大きくなった。しかし本図より、 $H_i = 300 \text{ mm}$ では、 t_{off} が 1.0 sec より大きく、かつ u_{on} が $u_{mf,on}$ をわずかに越える場合のみ ΔP は連続供給した場合よりも大きくなっていることが分かる。

Fig. 1-10 に $P_{max} / (Wg/A)$ と u_{on} の関係を示す。本図より、既往の実験結果¹⁾と同様に、本実験においてもパルス流動層の $P_{max} / (Wg/A)$ は実験条件によらず 1 を越えた。また、 H_i が 300 mm から 700 mm へと増加することにより、各 t_{off} について、 $P_{max} / (Wg/A)$ はより大きな値を取ることが確認できる。これは、空気閉止期間に形成される静止層部分層高さが $H_i = 700 \text{ mm}$ の方が高いことが原因と考えられる。また、 $P_{max} / (Wg/A)$ は u_{on} の増加と共に増加する傾向にある。特に $H_i = 700 \text{ mm}$ ではその傾向が顕著であり、Fig. 1-6 に示した u_{on} の増加に伴う ΔP の増加は、この P_{max} の増加によるものと考えられる。

既往の研究では、実験系は異なるものの、 $H_i = 300 \text{ mm}$ において空気を連続供給する通常の流動層よりもパルス流動層の方が ΔP が大きくなるとする報告⁹⁾、逆に小さくなる¹⁰⁾とするものがあり、見解の一致は得られていない。上記検討により、圧力

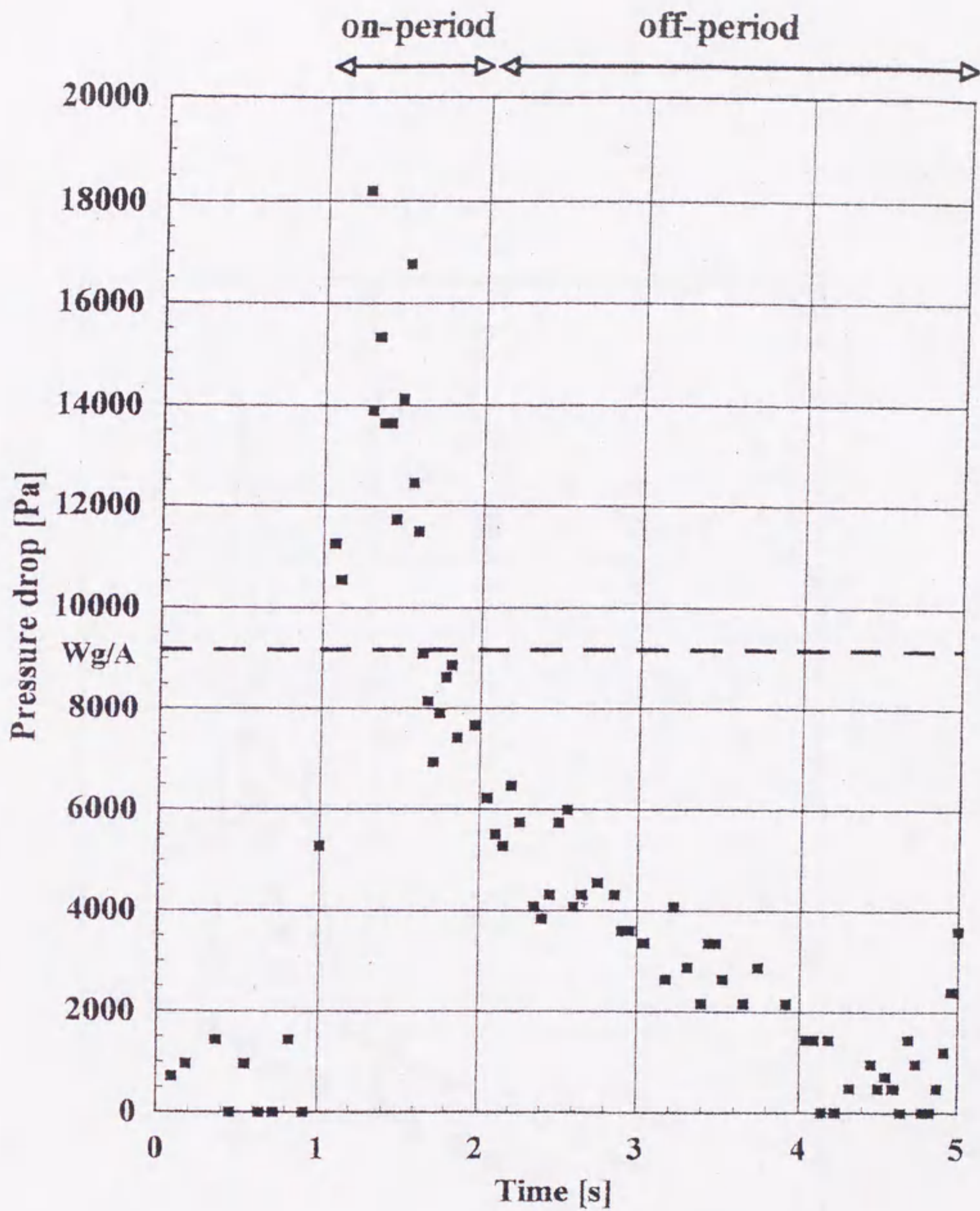


Fig.1-8 Peak of pressure drop with time
 ($H_i = 700$ mm, $t_{on} = 1.0$ s, $t_{off} = 3.0$ s, $u_{on} = 9.5 \times 10^{-2}$ m/s)

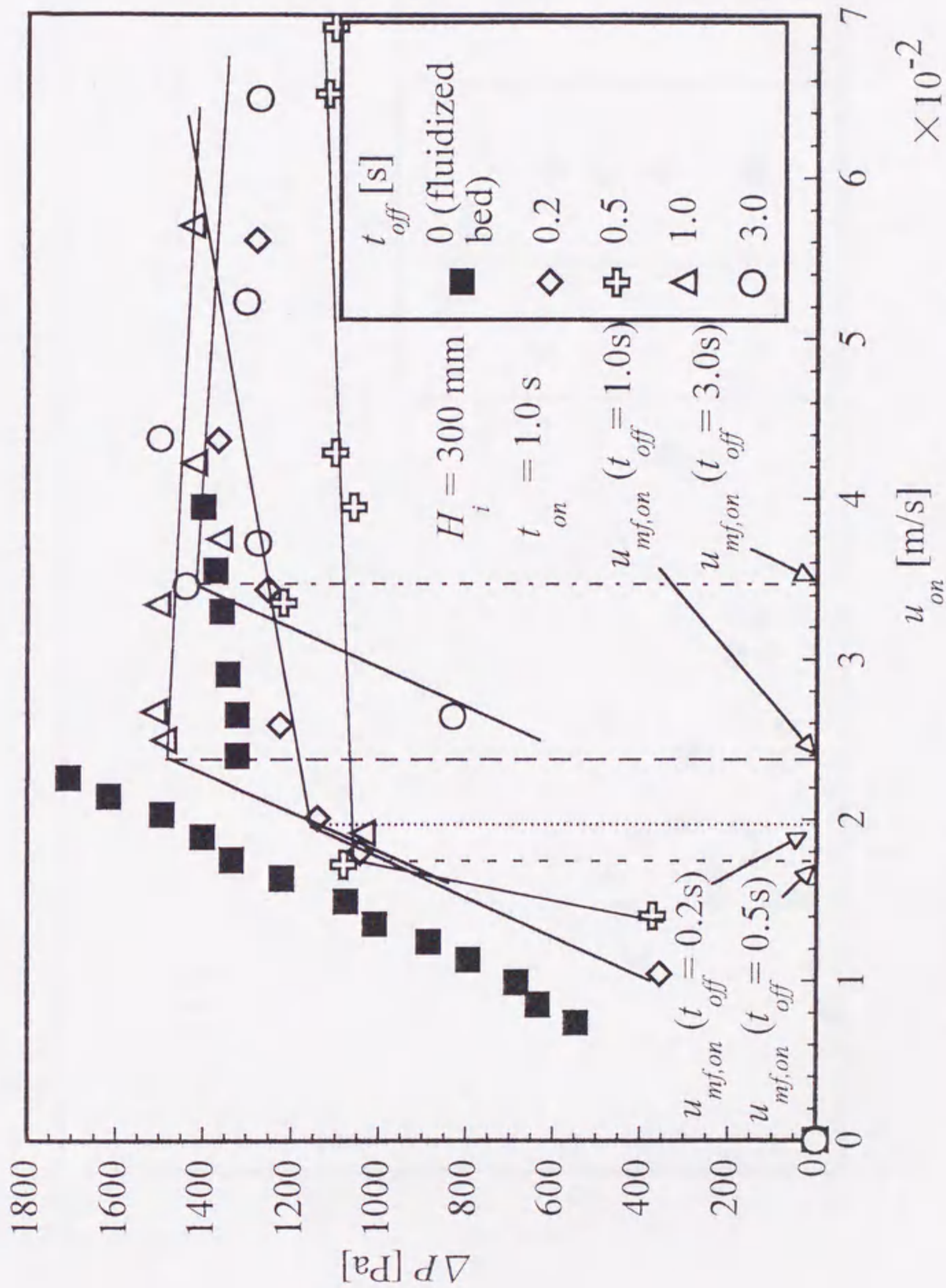


Fig.1-9 Effect of smaller initial bed height on mean pressure drops

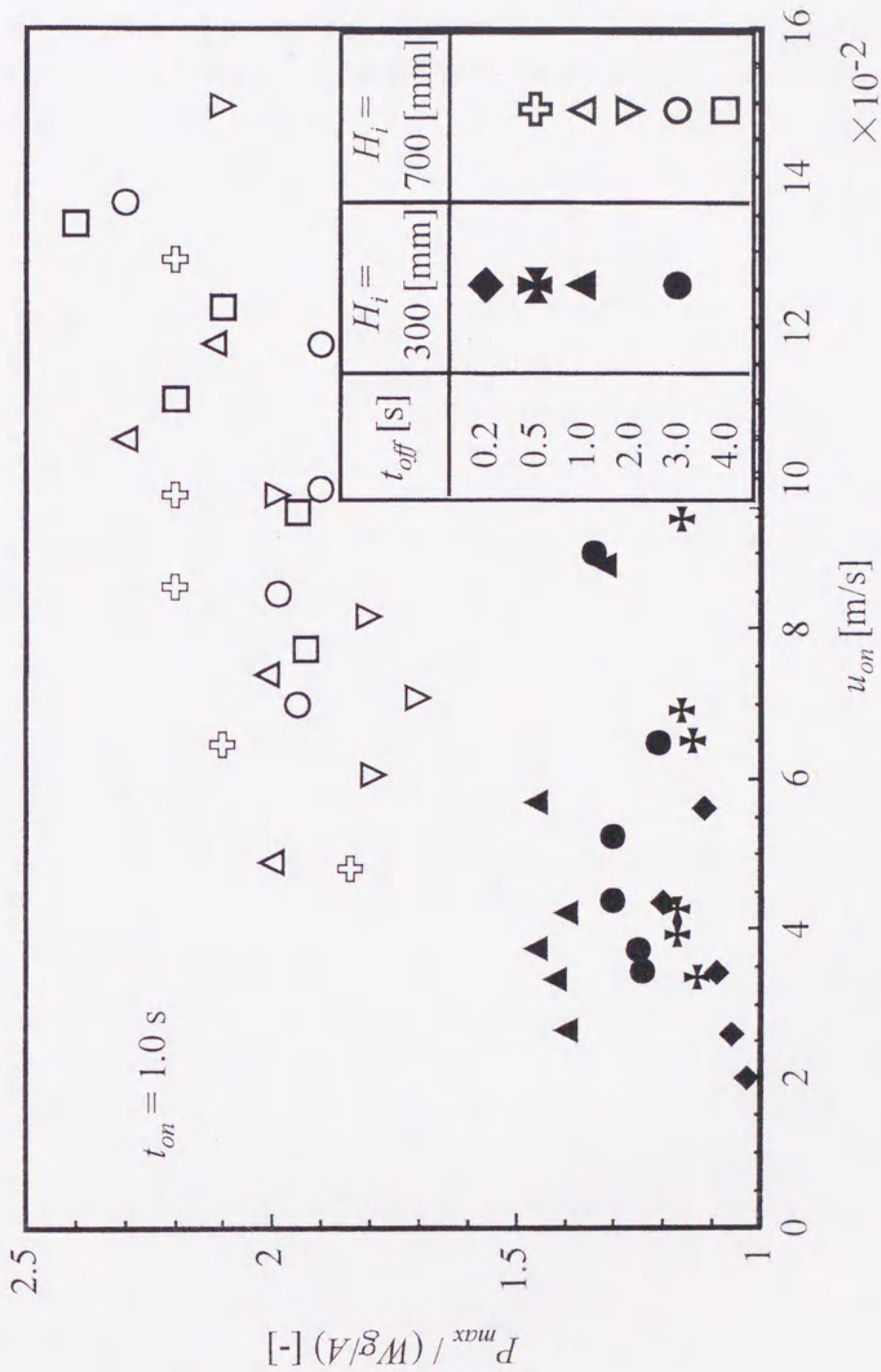


Fig.1-10 Comparison of maximum pressure drop

損失は空気流入期間初期に静止層もしくは静止部分を解砕するために Wg/A を大きく上回り、後半では発達した気泡が層最上面で潰れるために Wg/A を下回ることが確認された。これらの現象により、既往の研究において見解の不一致が得られたものと考えられる。

結言

パルス流動層の粒子流動特性を明らかにすることを目的として、パルス周期と平均空気流速、及び初期粒子層高をパラメータとして、層圧力損失の経時変化の計測を行うと共に、ビデオカメラによる流動状態の観察を行った。本システムにおける粒子流動特性は、空気閉止期間における静止層形成の影響を大きく受けることが分かった。静止層は、 u_{on} や t_{on} によらず t_s 以上で t_{off} を操作した場合に層全体で形成され、それにより $u_{mf,on}$ 、 ΔP は高い値を示すことが実験的に確認された。また、 H_i を 300 mm から 700 mm へ増加させると、空気閉止期間に形成される静止層部分層高さが増大することにより、各 t_{off} について、 $P_{max} / (Wg/A)$ はより大きな値を取ることが明らかとなった。

Nomenclature

A	= cross sectional area of riser	[m ²]
g	= gravitational acceleration	[m/s ²]
H_i	= initial bed height	[mm]
N_{total}	= total number of bubbles	[-]
t	= lapse time after starting to inject fluidization air into bed	[s]
t_{off}	= off-period duration without injecting fluidization air	[s]
t_{on}	= on-period duration with injecting fluidization air	[s]
t_s	= bubble transit time through bed	[s]
$u_{mf,on}$	= minimum fluidization air velocity based on on-period duration in pulse cycle	[m/s]
u_{on}	= superficial mean air velocity based on on-period duration in pulse cycle	[m/s]
W	= total mass of bed material	[kg]
ΔP	= mean pressure drop during on-period duration in pulse cycle	[Pa]
P_{max}	= maximum pressure drop during on-period duration in pulse cycle	[Pa]

Literature cited

- 1) Belik, L. : *Chem. Ing. Tech.*, 32, 253 (1960)
- 2) Bhattacharya, S. C. and D. Harrison : *Trans. Instn. Chem. Engres.*, 54, 281 (1976)
- 3) Bokun, I. A. and S. S. Zabrodskii : A. V. Lykov, ed., *Nauka i Tekhnika*, 27 (1966)
- 4) Bretsnajder, S., M. Jazczak and W. Pasiuk : *Ind. Chem. Eng.*, 3, 496 (1963)
- 5) Bukharov, M. V., V. A. Chlenov and N. V. Mikhailov : *Ind. Chem. Eng.*, 9, 119 (1969)
- 6) Keairns, D. I. : *Annual Report submitted to Office of Coal Research*, US Dept. of Int., OCR Contract No. 14-32-0001-1514 (1973)
- 7) Kobayashi, M., D. Ramaswami and W. T. Brazelton : *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, 105, 47 (1970a)
- 8) Kobayashi, M., D. Ramaswami and W. T. Brazelton : *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, 105, 58 (1970b)
- 9) Massimilla, I., G. Volpicelli and G. Raso : *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, 62, 63 (1966)
- 10) Mitkevich, E. M. : *Zhur. Prikl. Khim.*, 33, 1253 (1971)
- 11) Wong, H. W. and M. H. Baird : *Chem. Eng. J.*, 2, 104 (1971)
- 12) Zabrodskii, S. S. and I. A. Bokun : A. V. Lykov, ed., *Nauka i Tekhnika*, 135 (1966)

第2章 パルス流動層の断続的流動下における気泡特性

緒言

序章で述べたように、パルス流動層に関する既往の研究は伝熱促進や流動特性の解明を課題として行われ、それらはパルス周期が 1.0 sec 以下の比較的短いサイクルを扱ったものがほとんどである^{1, 2, 3, 4, 5, 6, 10, 11)}。Massimilla らの報告⁸⁾によれば、ガス流入期間とガス閉止期間の比が 1:1 の運転条件において、パルス周期の時間の増加と共に、次の三つの流動状態が順次観察されるとしている。①ガスを連続供給する通常の流動層との違いがほとんど見られない流動層的流動。②ガス流入時に粒子層が押し上げられ、その後通常の流動層と同様に気泡が成長し、気泡が層上部に残存する間に次のガス流入が行われる栓流的流動。③ガス閉止期間に静止層状態が形成される断続的流動。装置特性や粒子性状による差異はあるものの、既往研究の多くは、パルス周期から、Massimilla ら⁸⁾の言う流動層的流動状態における検討と考えられる。

パルス流動層の伝熱特性や粒子流動特性に直接影響を及ぼす気泡特性については、僅かに二次元可視化装置で 723 μm の砂粒子について報告されている¹⁾。これによれば、パルス周期 0.1~1.0 sec、ガス流入期間とガス閉止期間の比が 1:1 の運転条件において、周期の増加と共に気泡径が増大することが示された。しかしながら、気泡特性に及ぼす粒子径や初期粒子層高の影響は明らかにされておらず、また、さらなる気泡径増大に伴う層内粒子混合促進が期待される、ガス閉止期間に層全体で静止層が形成する断続的流動状態となる長いパルス周期で運転した場合の検討例はない。

第1章では、既往研究よりも大きくパルス周期を変化させ、最小流動化速度、層圧力損失に及ぼすパルス周期、平均空気流速ならびに初期粒子層高の影響を検討した。その結果、操作条件によって、ガス閉止期間に層全体で静止層が形成される状態が確認され、また、このような断続的流動状態において通常の流動層に比べて高い最小流動化速度や圧力損失が示された。そこで本章では、先ず断続的流動状態が形成される条件を選定し、その条件における気泡特性を検討した。気泡特性については、気泡数ならびに気泡径の経時変化をデジタルビデオカメラにより評価した。流入空気による気泡生成、その分裂と合一など気泡特性に及ぼす空気流速、粒子径

ならびに初期粒子層高の影響を検討した。併せて、得られた気泡特性と層頂水位ならびに圧力損失の経時変化を対比した。

2-1 実験

実験装置は、第 1 章と同一のものを使用した。使用粒子性状、パルス周期など実験条件範囲を Table 2-1 に示す。流動粒子として、前章で用いた平均粒子径 90 μm のガラスビーズ（粒度分布 70~120 μm , GB90）に加えて、平均粒子径 340 μm のガラスビーズ（粒度分布 260~450 μm , GB340）を使用した。

Table 2-1 Experimental conditions

Bed material:	glass beads
Density:	2500 kg/m ³
50% cumulative mean size:	90, 340 μm
Initial bed height (H_i):	300, 500 or 700 mm
Fluidization gas:	air
Superficial mean velocity based on on-period duration (u_{on}):	0~0.20 m/sec
Initial temperature:	room temperature
Pulsating operation:	
On-period duration (t_{on}):	1.0 sec
Off-period duration (t_{off}):	0.5~4.0 sec

パルス流動層試験装置の運転は、前章と同様に行った。流動状態の撮影は、前章と同様に、実験装置から 2 m 離れた位置に固定した一台のデジタルビデオカメラ（Handycam、SONY 社製、30 frames/sec）によりライザー側面より行い、DV 静止画キャプチャーボードキット（SONY 社製）によりパソコンに取り込んだ静止画像から気泡数ならびに気泡径を測定した。その際の撮影範囲は、ライザー高さ方向に 1000 mm、周方向に外周の 17/36 の大きさで、ライザー全外表面のほぼ半分である。撮影は運転を開始してから一定時間経過後より始め、気泡数と気泡径については連続運

転した際の 20 周期分を平均化した。なお、本二重管型実験装置は中心軸対象であることから、気泡の周方向分布は無視できるとして観察は一方向より行った。また、気泡流路となる流動層径方向幅は 26 mm と充分狭いことから、流動層外表面から得られる情報で層全体の気泡特性を評価できるとした。鉛直方向気泡長さ（気泡高さ）と水平方向気泡長さ（気泡幅）は、パソコンに取り込んだ静止画像から Feret 径（定方向接線径）表示法にて計測した。本章では、代表気泡径（ D_b ）には、装置の円筒形状から水平方向長さは正確性を欠くことと、ほぼ全ての気泡について 1 以上のアスペクト比（気泡高さ/気泡幅）が得られたことから、長径となる鉛直方向気泡長さを選んだ。なお、計測した気泡の最小径は 10 mm であった。

2-2 結果及び考察

2-2-1 静止層形成と最小流動化速度

Fig. 2-1 に、GB340、 $H_i = 700$ mm で $t_{on} = 1.0$ sec、 $u_{on} = 0.20$ m/sec における N_{total} の 1 周期あたりの経時変化を、 $t_{off} = 0.5, 1.0, 3.0$ sec の場合について示す。また、Figs. 2-2、2-3 には、Fig. 2-1 に示した各パルス周期の 1 周期あたりの流動状態及び静止部分層高さ（ H_s ）の経時変化を示した。なお、 H_s は層中を上昇する最終気泡の最下点から分散板までの距離であり、 $N_{total} = 0$ の状態を層全体での静止層形成と定義する。

Fig. 2-1 より、 $t_{off} = 1.0, 3.0$ sec の場合について、 N_{total} は空気閉止開始より約 1.0 sec 後に 0 となった。空気閉止開始より $N_{total} = 0$ となるまでのこの t_s は、 $t_{off} \geq t_s$ の場合のみ得られ、空気閉止期間後半に $t_{off} - t_s$ の時間だけ層全体に静止層が形成されることになる。Fig. 2-1 と同一条件下において t_{off} のみ 1.0~4.0 sec で変更したが、 t_s は 10 % 程度の小さなばらつきでほぼ 1.0 sec 一定となり、 t_{off} は t_s にほとんど影響を及ぼさないことが確認された。一方、 $t_{off} < t_s$ では、Figs. 2-2、2-3 に示すように、空気流入開始時に前周期の気泡が層上部に残存することから、空気閉止期間には層底部に静止状態になった層が部分的に形成されることになる。この $t_{off} < t_s$ における流動状態は、気泡が層上部に残存する間に次の空気流入が行われるという点で、Massimilla らの分類³⁾ の栓流的流動に類似すると考えられる。なお、Fig. 2-3 より、 $t_{off} = 0.5$ sec における空気流入開始時の H_s は、360 mm と H_i のほぼ半分であった。 t_s は 1.0 sec であることから、 $t_{off} < t_s$ における空気流入開始時の H_s は、 H_i を (t_s/t_{off}) で除した値で近似できることが示唆される。

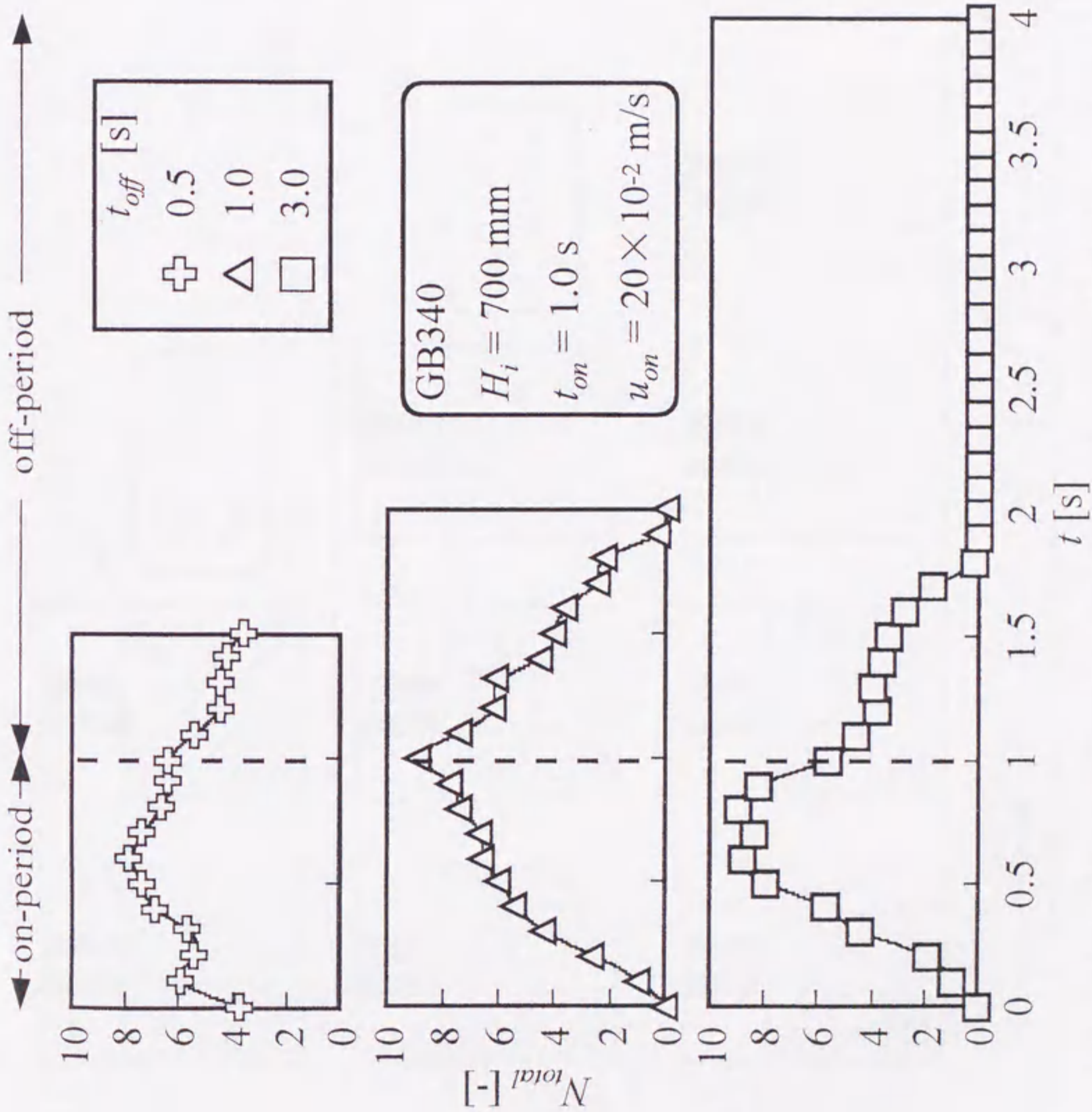


Fig.2-1 Change in total number of bubbles during pulse cycle under different off-period duration

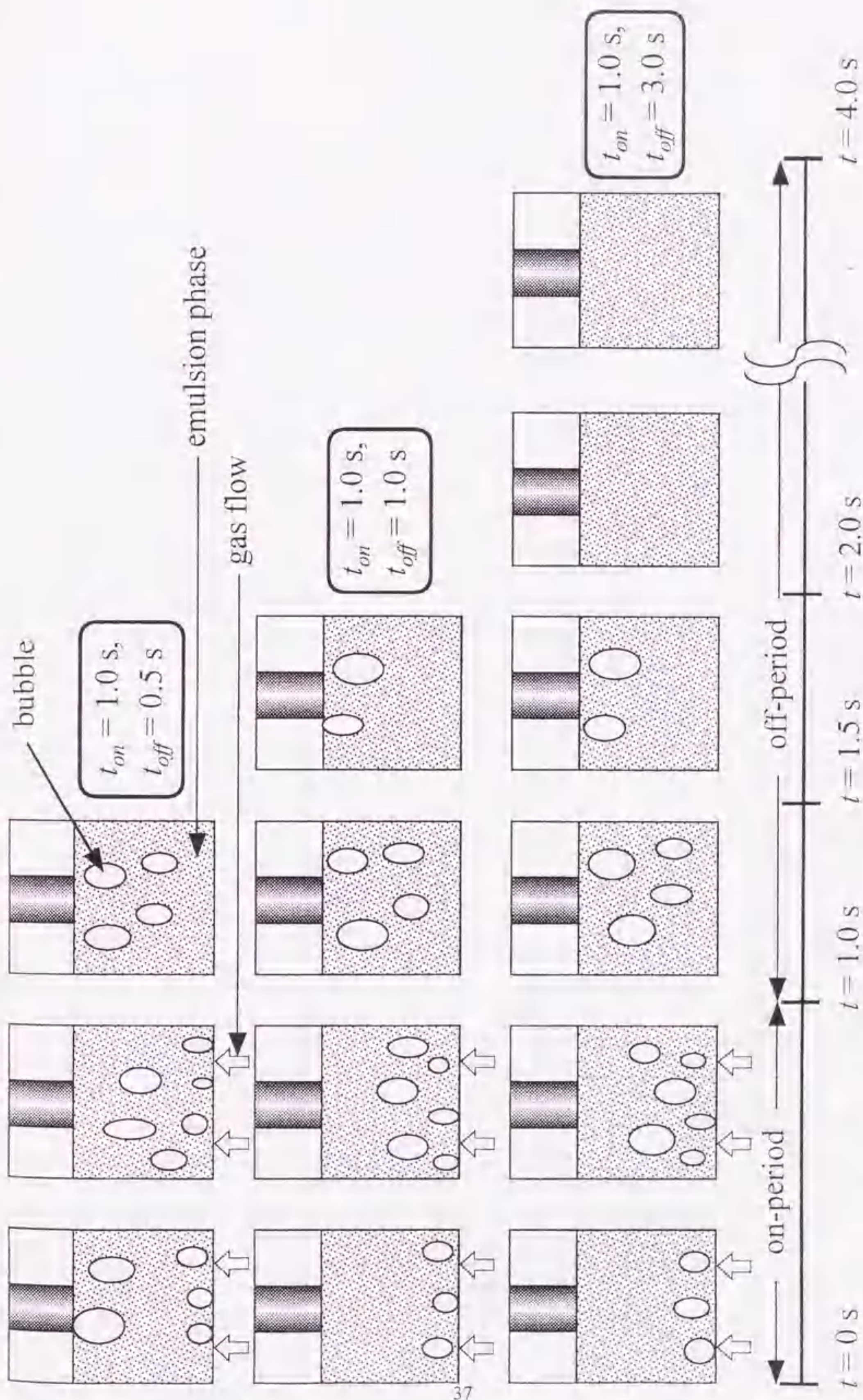


Fig.2-2 Image of the fluidizing state in each pulse cycle

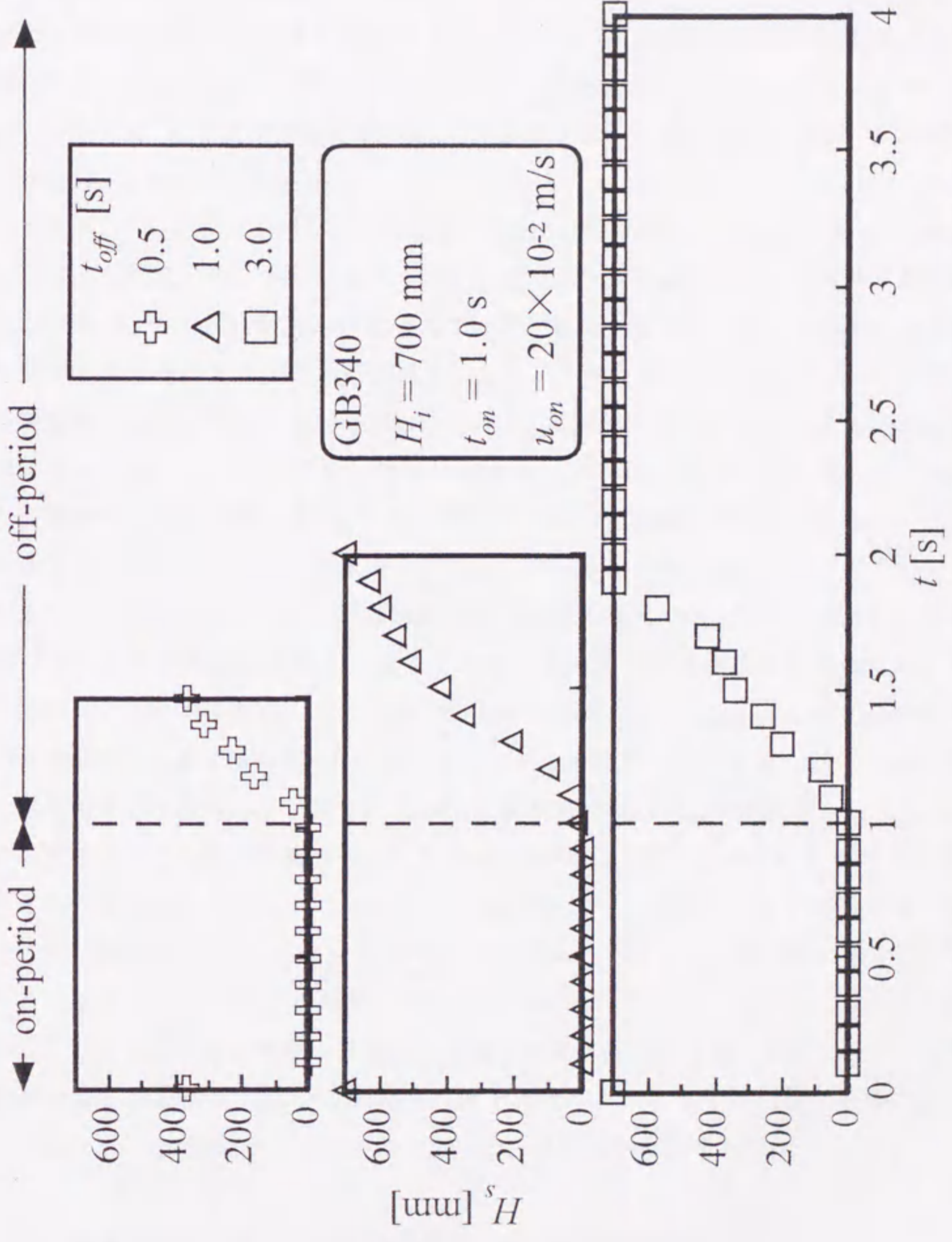


Fig.2-3 Change in height of static part in bed for different off-period duration

Fig. 2-4 に t_{on} 基準の最小流動化速度 ($u_{mf,on}$) と t_{off} の関係の一例として、GB90 及び GB340 の、 $H_i = 700$ mm、 $t_{on} = 1.0$ sec 一定での結果を示す。本図では、 $u_{mf,on}$ は連続的に空気を供給する通常の流動層 ($t_{off} = 0$ sec) の場合の最小流動化速度 (u_{mf}) で規格化し、 $u_{mf,on}$ の大きく異なる粒子種間での比較のための指標とした。なお、本条件下での t_s は、目視観察からそれぞれ 10% 程度の小さなばらつきで GB90 では 2.0 sec、GB340 は 1.0 sec であった。

本図から、GB90、GB340 とともに t_s までの t_{off} の増加により $u_{mf,on}/u_{mf}$ は大きく増加している。これは、Fig. 2-3 において示したように t_{off} の増加と共に空気閉止期間に形成される H_s が大きくなり、空気流入開始時に層の抗力を打ち消して流動化させるのに要する空気の運動エネルギーが増加したためと考える。 t_s 以上の t_{off} では、静止層が層全体に形成されているため、 t_s までの t_{off} の増加で見られたような $u_{mf,on}/u_{mf}$ の増加は見られない。このように、パルス流動層の流動化に要する空気流速は、空気流入開始直後の層の状態つまり H_s の影響を受けることが確認された。そこで、パルス流動層の流動化条件を記述する値として、 H_s が一定になる t_s 以上の t_{off} について得られた $u_{mf,on}$ の平均値をパルス流動層飽和最小流動化速度 ($u_{mf,on,str}$) と定義し、図中実線で示すと共に断続的流動下の異なる条件における空気流速の規格化のために以下で用いる。なお本図から、 $H_i = 700$ mm において両粒子の $u_{mf,on,str}/u_{mf}$ は、GB340 で約 1.7、GB90 はその 2 倍の約 3.4 となった。これとほぼ同じ結果は $H_i = 500$ mm においても確認されており、 $H_i = 300$ mm においては GB340 は 1.3、GB90 は 1.7 と、 $u_{mf,on,str}/u_{mf}$ は上記の値よりも小さい値を示したものの、他の H_i と同じく GB90 の方が GB340 よりも大きな値を示した。ここで粒子の流動性を示す一指標として安息角を測定したところ、GB340 の 36.2° に対して GB90 は 40.4° と大きく、粒子径の減少による粒子表面間力つまり付着性の増大のため流動性は低いことが示された。パルス流動層では、長い t_{off} では各周期の空気流入開始時に層底部で静止層の壊砕を経て流動状態を形成することから、粒子の流動性の低下と共にこれに要する空気の運動エネルギーが増加し、GB90 において大きな $u_{mf,on,str}/u_{mf}$ が得られたと考える。

2-2-2 気泡特性に及ぼす平均空気流速ならびに粒子径の影響

$t_{off} \geq t_s$ の条件下においては、パルス流動層に特徴的な層全体に及ぶ静止層形成と流動化を繰り返す断続的流動が形成される。前述ならびに後述の H_i や u_{on} を変えた同

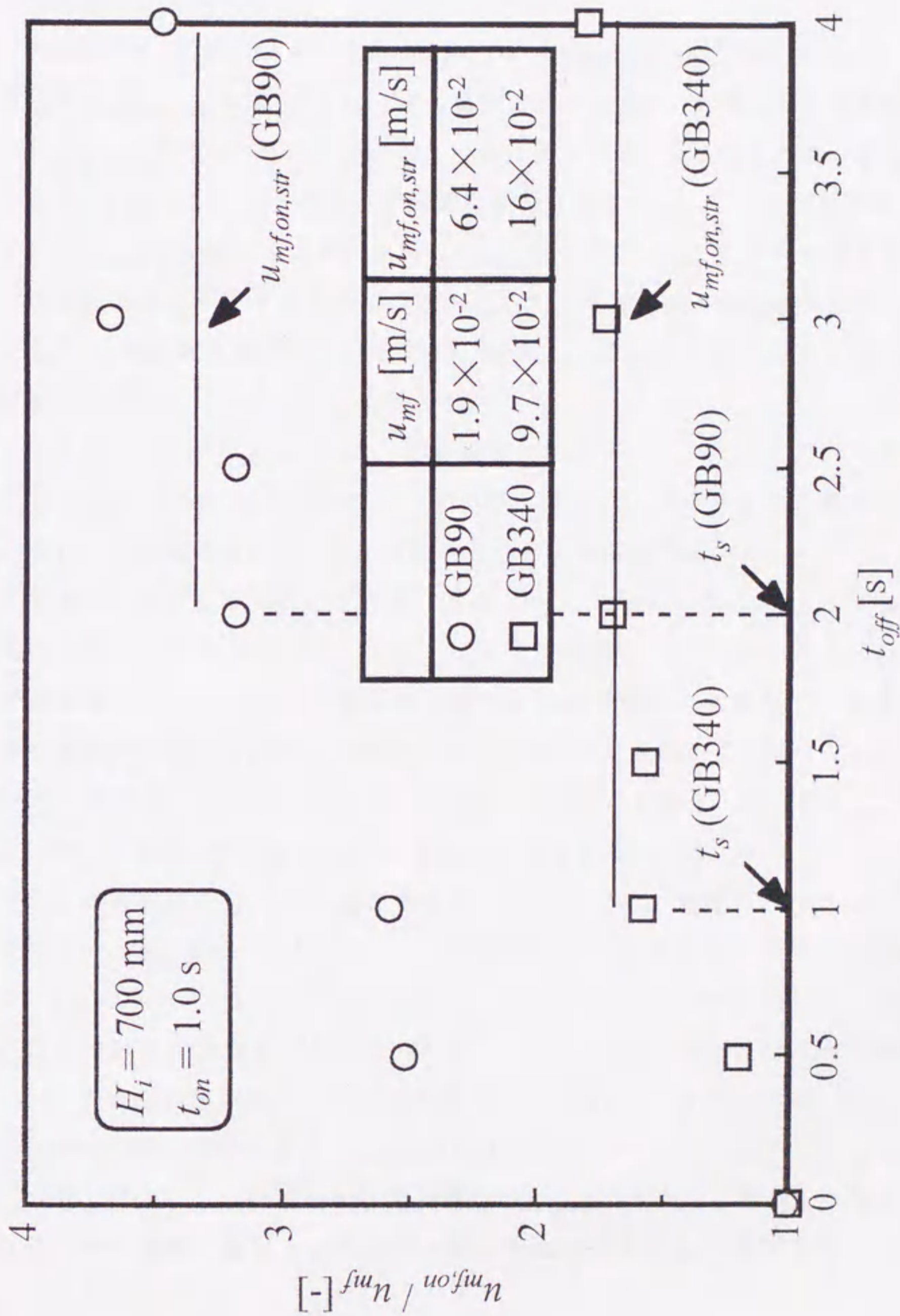


Fig.2-4 Relation between off-period duration and minimum fluidization air velocity

様な検討により、この境界となる t_s は本実験条件下においては t_{off} や u_{on} の影響をほとんど受けず、粒子性状ならびに H_i により決まることが明らかとなった。本節以降では、断続的流動が形成される t_s 以上の t_{off} 条件の結果を示し、パルス流動層に特徴的な気泡特性を考察する。

Fig. 2-5 に、GB340、 $H_i = 700$ mm、 $t_{on} = 1.0$ sec、 $t_{off} = 3.0$ sec における N_{total} の経時変化を $u_{on}/u_{mf,on,str} = 1.3, 1.9, 2.5$ の場合について示す。本図より、2倍ほどの大きな $u_{on}/u_{mf,on,str}$ の変化に対して、 t_s のばらつきは僅かで 1.0 sec 付近の値を取ることが確認できる。Fig. 2-5 と同一条件下での算術平均気泡径 ($D_{b,ave}$) の計測結果を Fig. 2-6 に示す。 $D_{b,ave}$ は、各サイズの気泡数 (N_{each}) について N_{total} に対する個数割合を求め、その個数割合と各サイズとの積の総和とした。本図では、空気流入期間については t を t_{on} で、空気閉止期間については $t-t_{on}$ を N_{total} の経時変化から得た t_s で、それぞれ規格化した無次元時間について整理した。

Figs. 2-5、2-6 から N_{total} と $D_{b,ave}$ の経時変化を $u_{on}/u_{mf,on,str} = 1.3$ について見てみると、 N_{total} は空気流入開始と同時に立ち上がり、緩やかな増減を示した後に空気閉止直前より $t = 1.2$ sec にかけてすばやく減少し、その後緩慢な減少が $t = 1.6$ sec まで続いて再度減少速度を上げることが確認できる。 $D_{b,ave}$ についても、 N_{total} と同様に空気流入開始と同時に立ち上がりを見せた。その後気泡の合一が原因と考えられる緩やかな増加傾向を示し、空気閉止直前より緩やかな減少傾向に推移して、層全体での静止層形成直前には急激な減少が確認できた。空気閉止直前から $t = 1.2$ sec にかけての $D_{b,ave}$ の緩やかな減少は N_{total} の急激な減少を伴うことから、気泡合一と、気泡合一により形成された上昇速度の速い大気泡の層頂部からの散逸という $D_{b,ave}$ の増減からは相反する現象が併発していると考えられる。ここで、基礎データとして、空気閉止直前から $t = 1.2$ sec にかけて N_{each} の経時変化についてまとめたものを Fig. 2-7 に示す。Fig. 2-7 から、 t の増加と共に、30 mm 以下の小気泡と 30 mm より大きな気泡いずれもが減少する様子が見受けられる。このことから、上昇速度の遅い小気泡の合一と大気泡の層頂からの散逸が併発していると考えられる。Figs. 2-5、2-6 から、層全体での静止層形成直前の $D_{b,ave}$ の急激な減少については、 $t = 1.2 \sim 1.6$ sec にかけての N_{total} 及び $D_{b,ave}$ の緩やかな減少の後に起こることから、層内気泡数の減少による気泡の合一頻度の低下と上昇速度の遅い小気泡がより長く層に滞留することが原因と考えられる。

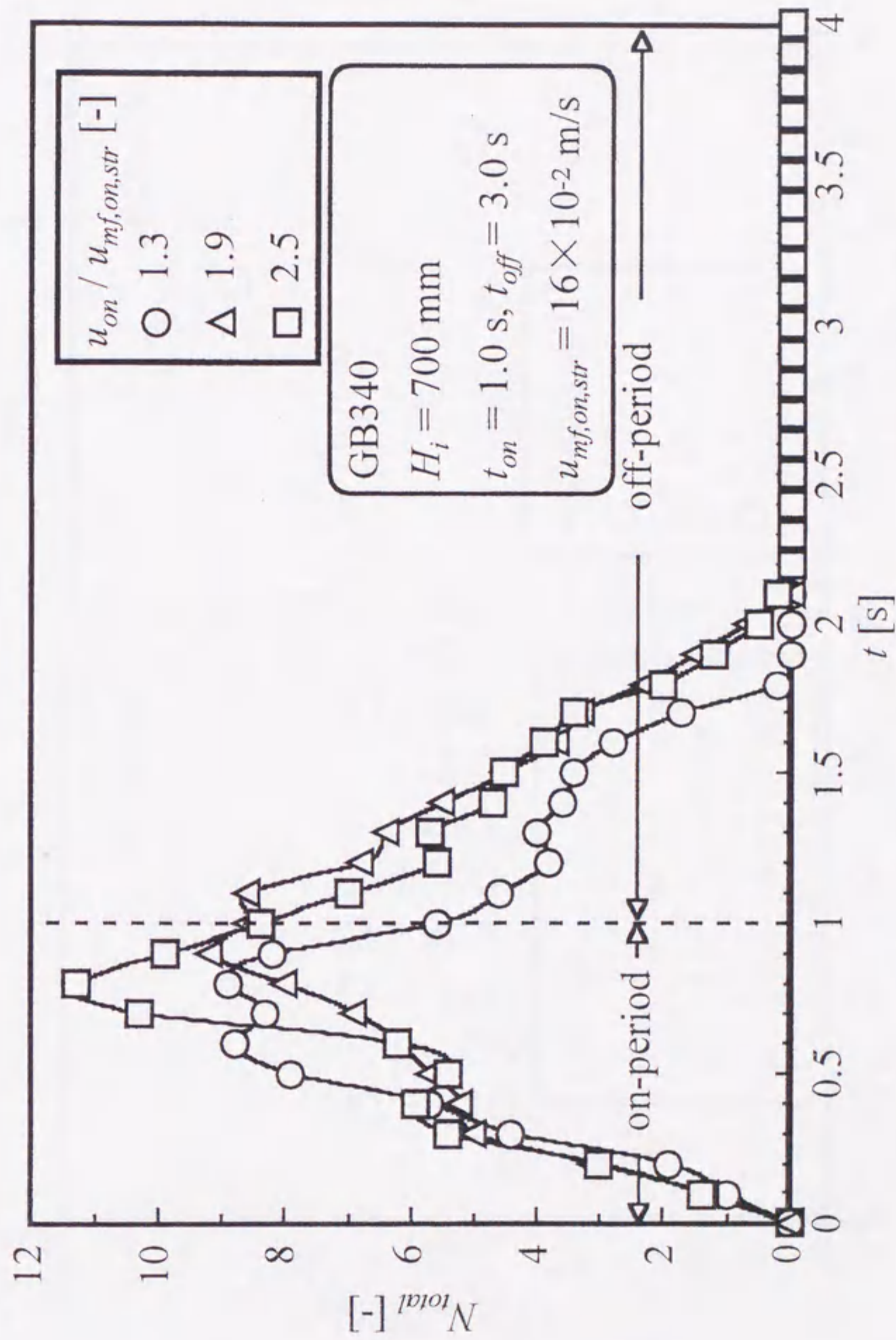


Fig.2-5 Change in total number of bubbles during pulse cycle under different air velocity for GB340

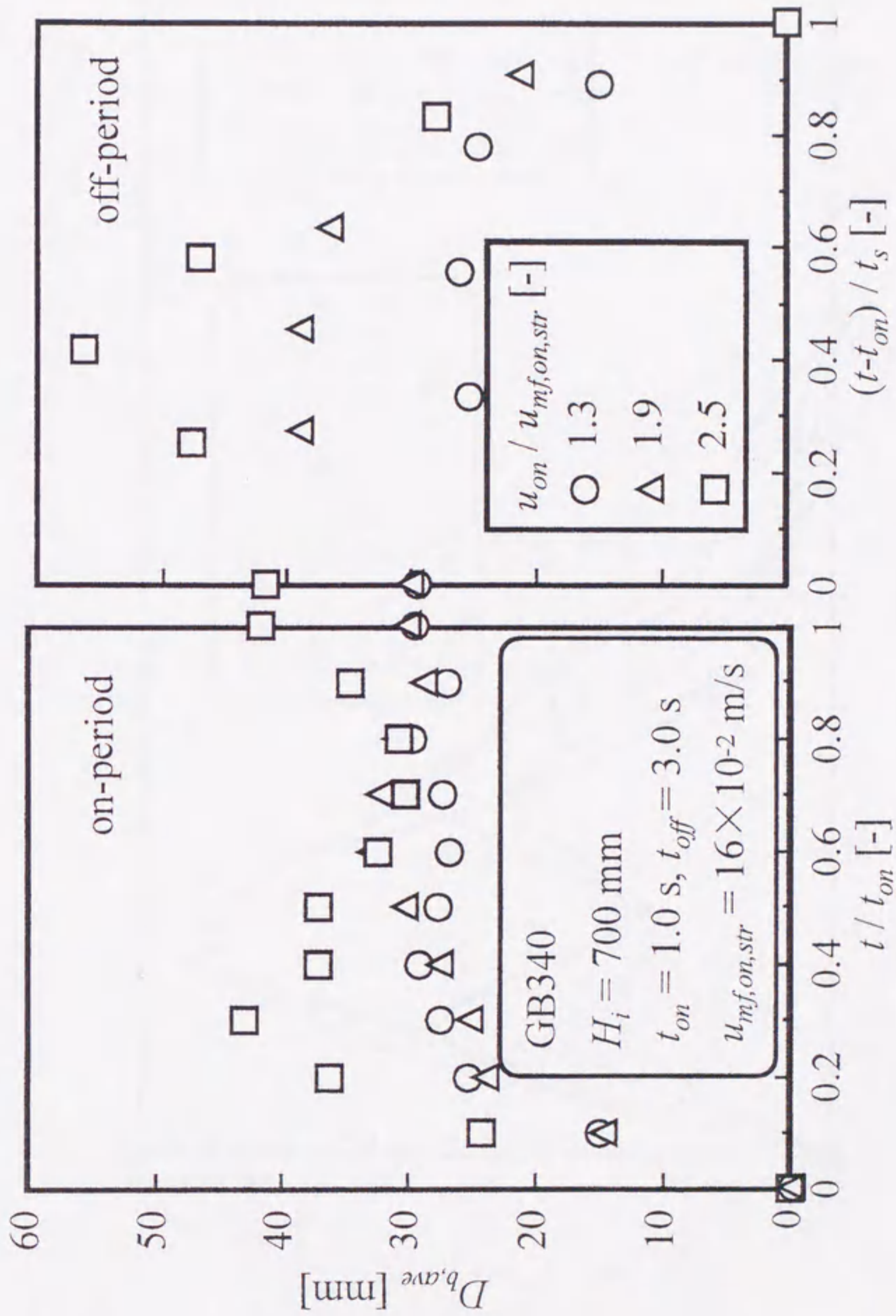


Fig.2-6 Effect of air velocity on average bubble size for GB340

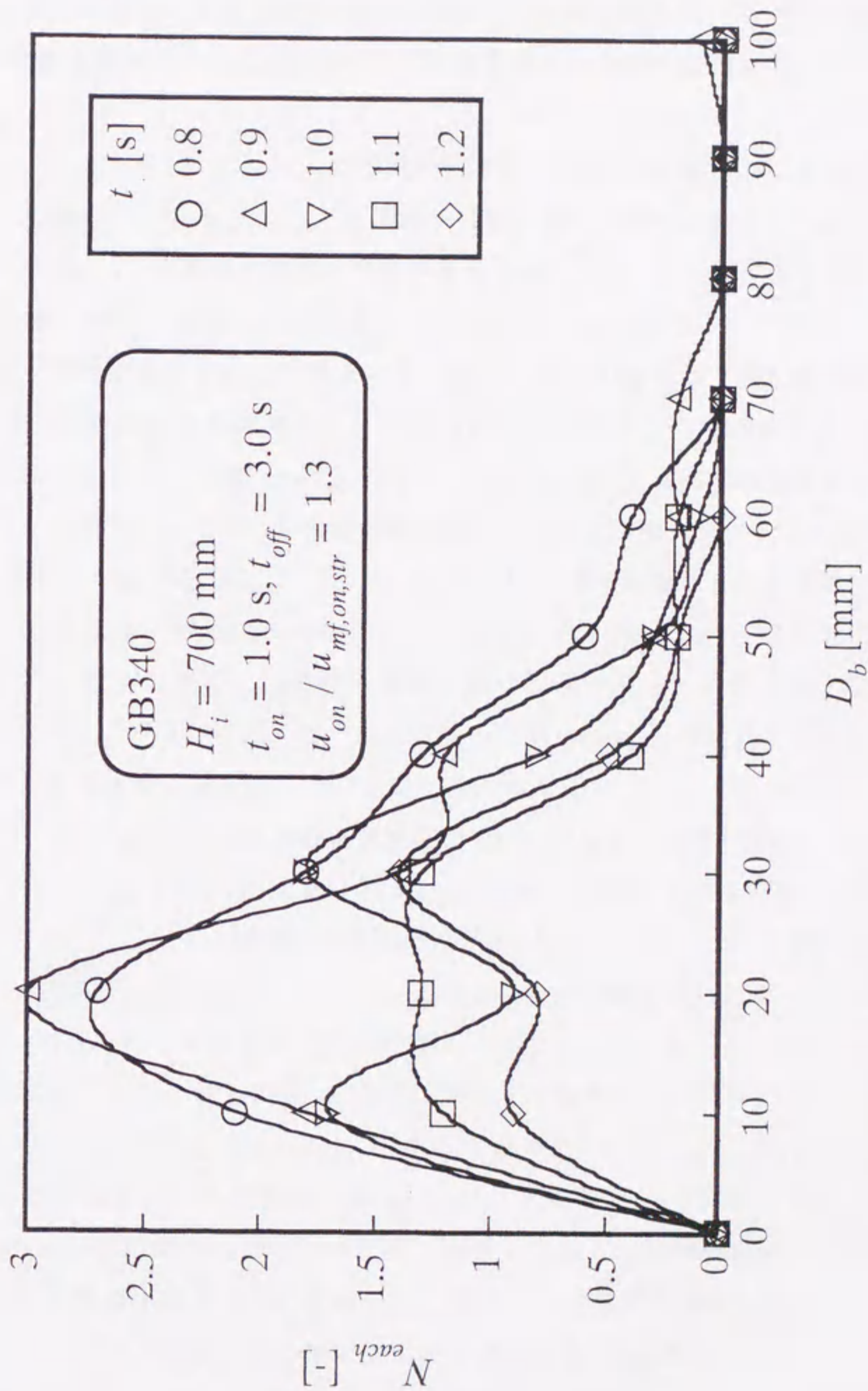


Fig.2-7 Change in bubble size distribution

次に $u_{on}/u_{mf,on,str} = 1.9$ について見てみると、空気流入期間では、 N_{total} 、 $D_{b,ave}$ 共に $u_{on}/u_{mf,on,str} = 1.3$ の場合とほぼ同様な傾向を示すことが確認できる。空気閉止期間では、 $D_{b,ave}$ の増加が確認され、 u_{on} の増加による気泡頻度の増加が起因しているものと考えられる。

最後に $u_{on}/u_{mf,on,str} = 2.5$ に関して、空気閉止期間の $D_{b,ave}$ の顕著な増加とそれに続く減少は上記した他の二つの $u_{on}/u_{mf,on,str}$ と同様な現象によると考えられる。しかし、空気流入期間では $D_{b,ave}$ の空気流入開始と同時の急激な立ち上がり、 $t/t_{on} = 0.3$ における極大値、その後の減少と増加といった著しく異なる気泡特性が得られた。ここで得られた空気流入開始直後の $D_{b,ave}$ が 30 mm を上回る大気泡の生成は、静止層のリフトを伴うことが目視観察により確認され、その後静止層の下部からの壊砕を伴いながら徐々に分裂し $t/t_{on} = 0.3$ 以降の $D_{b,ave}$ の減少に移行した。空気流入開始直後の層膨張の経時変化を測定したところ、層頂面の初期水位からの上昇幅 (H_{be}) は、 $t/t_{on} = 0.3$ において 58 mm となり、 $u_{on}/u_{mf,on,str} = 1.3$ 、 1.9 の $t/t_{on} = 0.3$ の場合と比べ 2 倍以上の値であった。空気流速の増加以上の層頂面の上昇が認められ、また目視観察の結果からも、他の二つの空気流速とは異なる流動状態に推移することが伺える。なお、空気閉止直前の $D_{b,ave}$ の増加は気泡合一によるものであり、 u_{on} の増加による気泡頻度の増加がこの大きな成長に起因しているものと考えられる。

Figs. 2-8、2-9 に、Figs. 2-5、2-6 とほぼ同程度の $u_{on}/u_{mf,on,str}$ について、GB90、 $H_s = 700$ mm、 $t_{on} = 1.0$ sec、 $t_{off} = 3.0$ sec における N_{total} 及び $D_{b,ave}$ の経時変化を示す。Fig. 2-8 から、いずれの $u_{on}/u_{mf,on,str}$ も t_s はほぼ同程度で 2.0 sec 付近の値になることが分かる。また両図から、空気閉止期間において、 N_{total} にはほとんど差異が見られないが、 $D_{b,ave}$ は $u_{on}/u_{mf,on,str} = 1.5$ では一定値を示した後に減少し、空気流速の高い $u_{on}/u_{mf,on,str} = 2.3$ では増加後に減少した。これも、 u_{on} の増加に起因する気泡頻度の増加によるものと考えられる。空気流入期間における N_{total} と $D_{b,ave}$ の経時変化は、 $u_{on}/u_{mf,on,str} = 1.5$ 、 2.3 とともに、Figs. 2-5、2-6 に示した GB340 の $u_{on}/u_{mf,on,str} = 2.5$ と同様な傾向を示していることが確認できる。ここで、Figs. 2-8、2-9 と同一条件下での H_{be} の経時変化を Fig. 2-10 に示す。なお、空気閉止期間後半については、層頂からの粒子飛散のため、 H_{be} は正確に測定できていない。本図から、特に空気流入開始から $t/t_{on} = 0.3$ にかけて、 H_{be} が大きく増加することが分かる。その後、 H_{be} の増加速度は緩やかになるが、再び $t/t_{on} = 0.6$ より大きく増加する。Fig. 2-9 においても、 $D_{b,ave}$ は、空気流入開始から $t/t_{on} = 0.3$

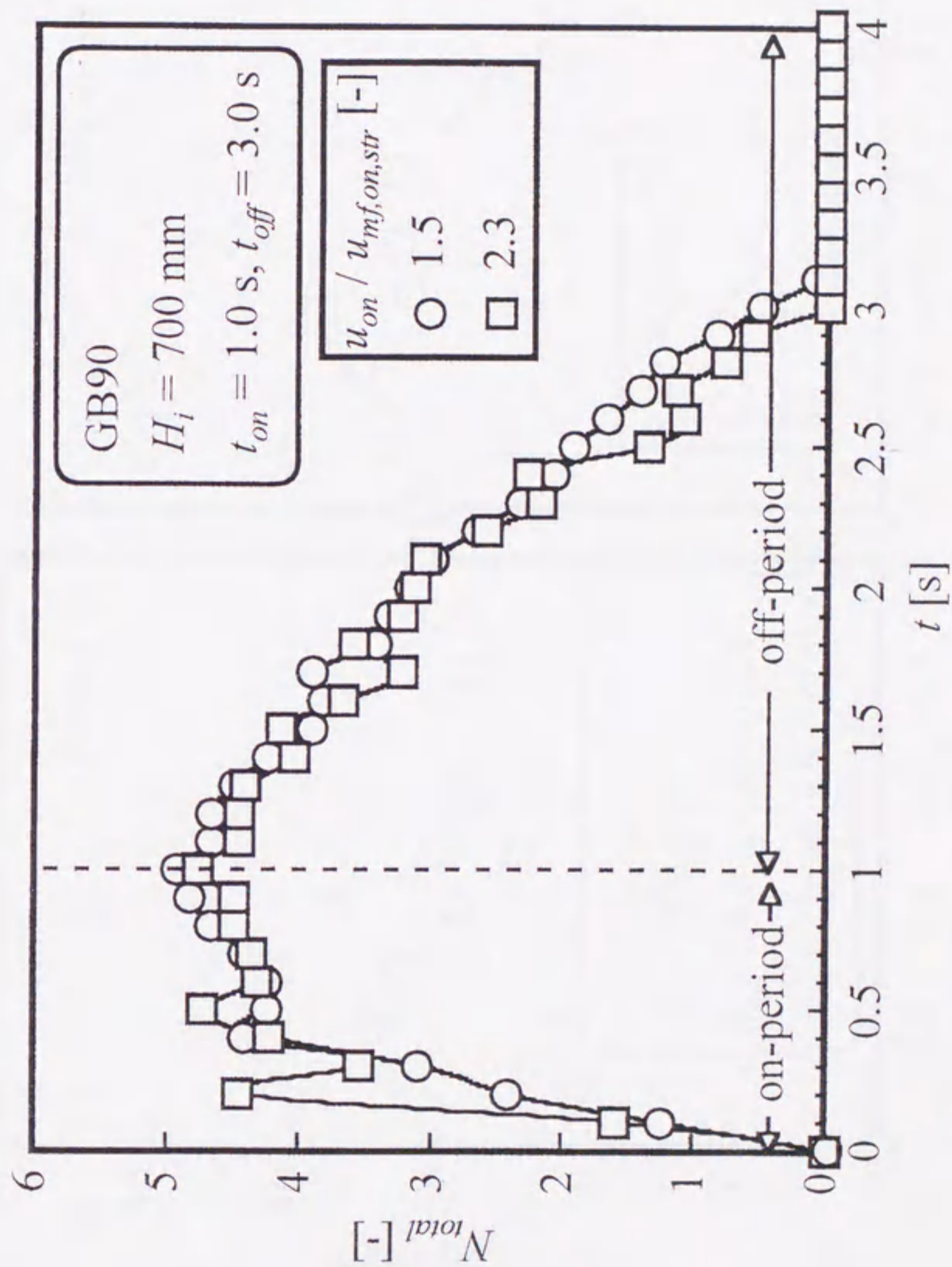


Fig.2-8 Change in total number of bubbles during pulse cycle for GB90

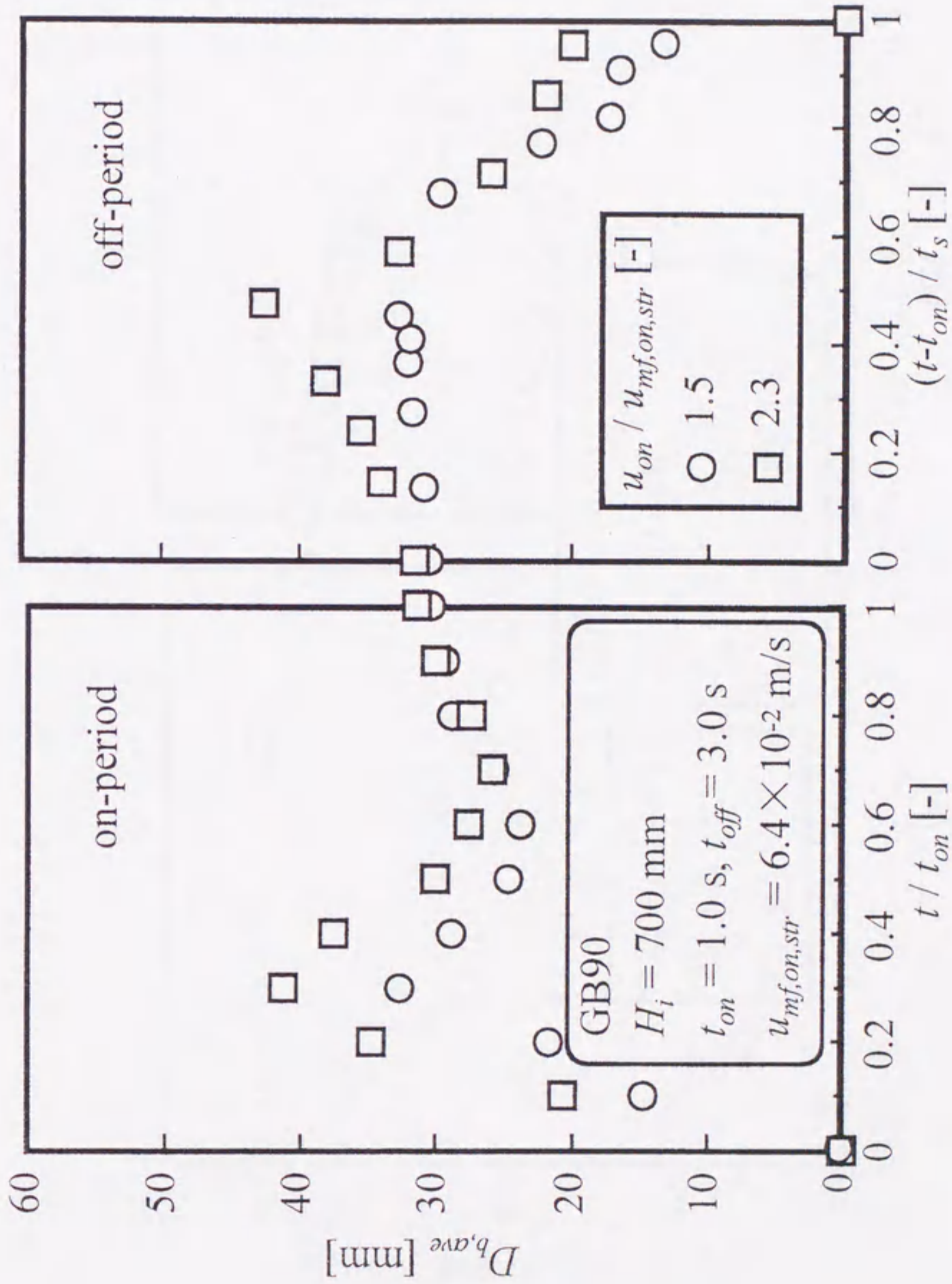


Fig.2-9 Effect of air velocity on average bubble size for GB90

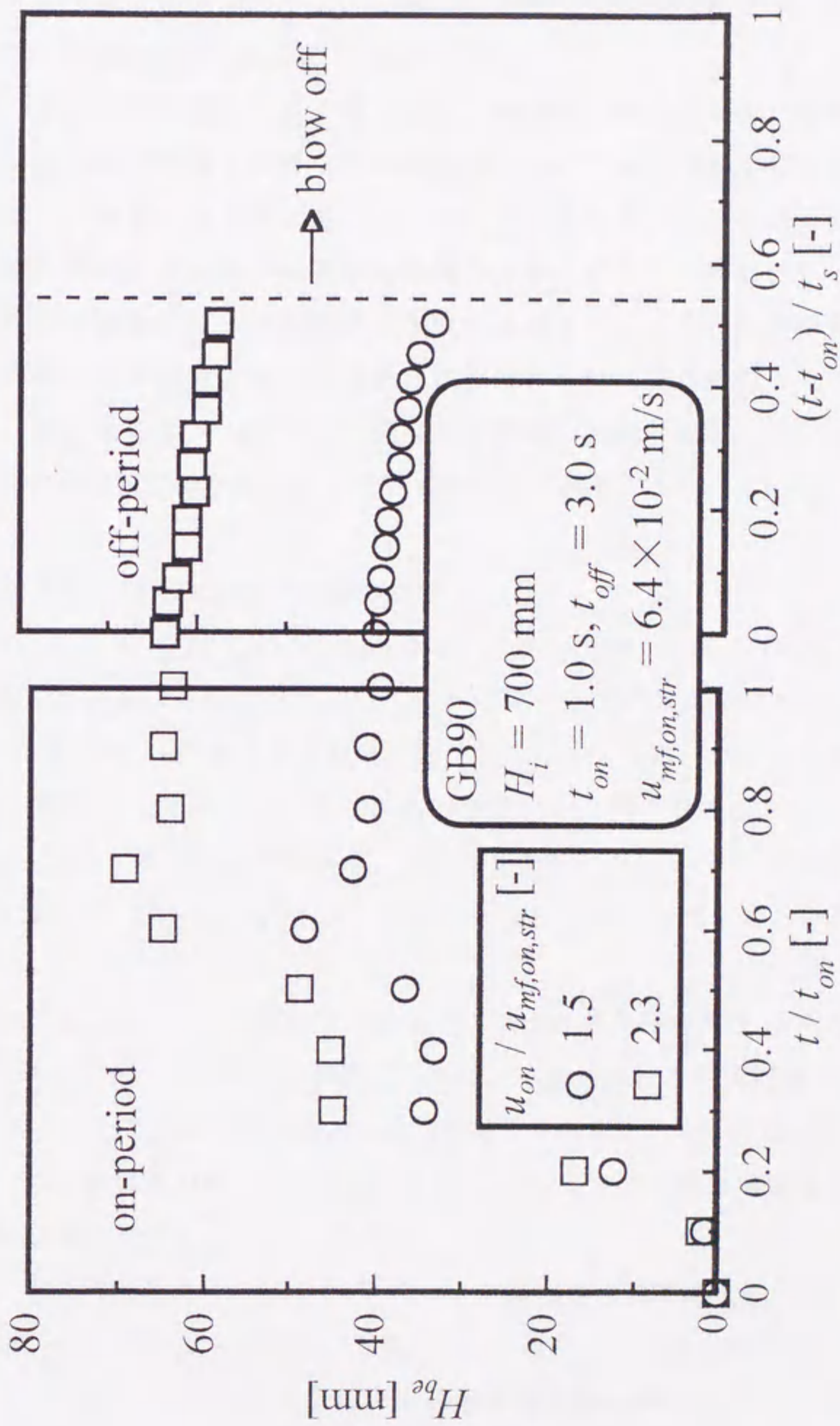


Fig.2-10 Change in bed expansion with time for GB90

にかけて増大した後、減少し、再び $t/t_{on} = 0.6$ より増大する。目視観察からも、やはり空気流入開始直後に静止層のリフトを伴う大気泡の生成が確認され、その後に層の壊砕を伴う大気泡の分裂と気泡合一が起こった。

以上より、パルス流動層における層全体に形成された静止層への空気流入は、通常の流動層に見られる層壊砕を伴う気泡流動層の形成、または静止層と内挿物表面ならびに外壁との剥離による静止層リフトのいずれかを起こすことが分かった。流入空気の流速の増加に伴い通常の気泡流動層から静止層リフトに移行し、また粒子性状の違いにより流動状態の空気流速依存性が異なることから、粒子付着性に起因する静止層の結合力や内挿物表面や外壁との密着性との相関が影響を及ぼすものと考えられる。静止層のリフトを伴う大気泡の生成後、気泡の分裂、再合一が起こることから、それら現象に伴う優れた粒子混合が示唆される。

2-2-3 気泡特性に及ぼす初期粒子層高の影響

Fig. 2-11 に、GB90、 $t_{on} = 1.0$ sec、 $t_{off} = 3.0$ sec、 $H_i = 300, 500, 700$ mm の $D_{b,ave}$ の経時変化を示す。なお、本図には $u_{on}/u_{mf,on,str}$ がほぼ一定での結果を示した。また、この時の $H_i = 300, 500$ mm の t_r はそれぞれ約 1.0, 1.5 sec であった。本図から、空気流入開始と同時の $D_{b,ave}$ の立ち上がりは、 H_i の減少と共に緩やかになり、 $t/t_{on} = 0.3 \sim 0.4$ の極大値も小さくなることが分かる。空気閉止期間において、 $H_i = 300$ mm では $D_{b,ave}$ が単調に減少しており、 $H_i = 500, 700$ mm については大きく立ち上がった後に減少した。

Fig. 2-12 に、Fig. 2-11 と同一条件における大小気泡数の経時変化を $H_i = 300, 500, 700$ mm について示す。大小気泡の境界としては、本装置の径方向流路幅 26 mm とアスペクト比が 1 以上であることを考慮して 30 mm を基準とした。なお、 $D_b > 30$ mm の気泡については本装置の径方向流路幅 26 mm よりも大きな装置周方向長さを有していることが確認された。

本図より、空気流入期間における $D_b > 30$ mm の気泡数の経時変化は、 $t/t_{on} = 0 \sim 0.3$ にかけて増加、その後 $t/t_{on} = 0.6$ までに減少しているが、その変化幅は H_i の増加に伴い大きくなっている。以上より、空気流入開始直後の静止層のリフトを伴う大気泡の生成とその後の層壊砕を伴う大気泡の分裂は、 H_i の増加と共に起こりやすくなることが確認された。一方、空気閉止期間において、 $H_i = 300$ mm では空気閉止開始よ

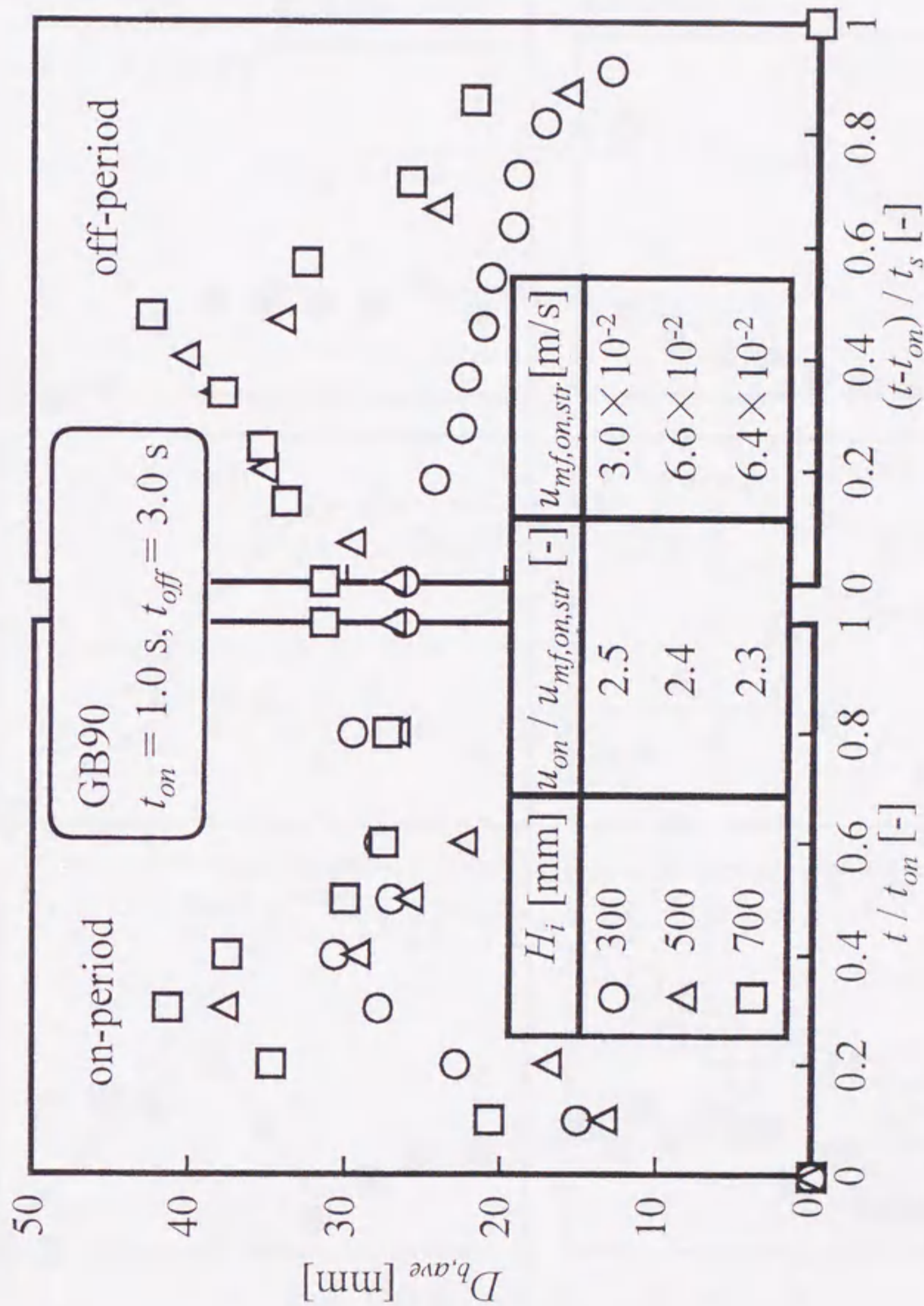


Fig.2-11 Comparison of average bubble size under different initial bed height

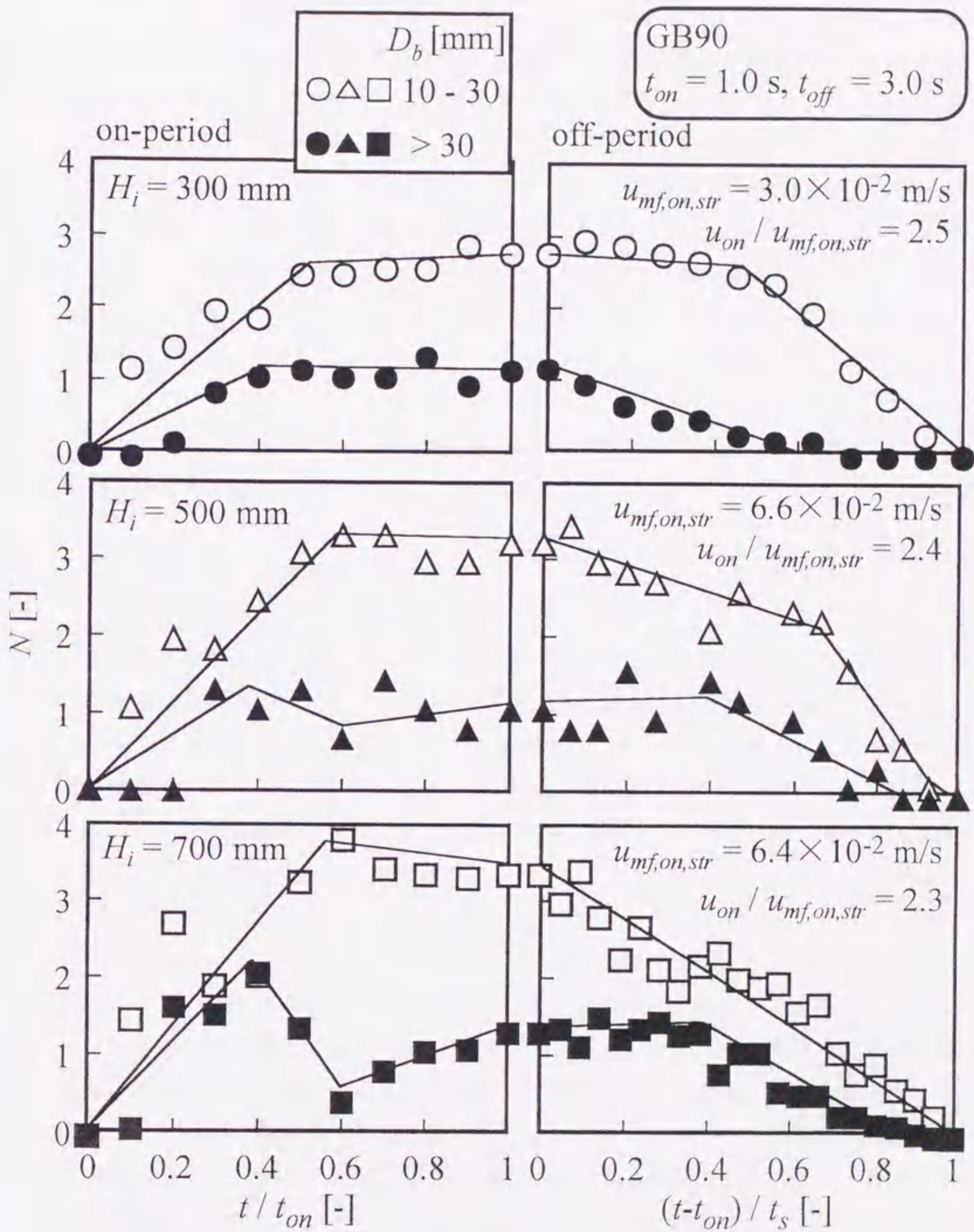


Fig.2-12 Difference of bubble behavior under different initial bed height

り $D_b > 30$ mm の気泡が直線的に減少することが確認できる。この時、 $10 \text{ mm} \leq D_b \leq 30$ mm の気泡はしばらく一定値を維持することから、層高が低く t_s が短い $H_l = 300$ mm では、上昇速度の速い大気泡から先に層頂部から散逸し、これにより Fig. 2-11 に示した $D_{b,ave}$ の単調な減少が得られたと考える。 $H_l = 500, 700$ mm においては、 $D_b > 30$ mm の気泡は、 $(t-t_{on})/t_s = 0.3$ 付近まで一定値もしくは若干の増加傾向を示した後に減少している。この時に、 $10 \text{ mm} \leq D_b \leq 30$ mm の気泡数の減少を伴っていること、 t_s が長く気泡の層内滞留時間が充分あること、 u_{on} が大きく層単位体積当たりの空気量が多いことなどから、大気泡による小気泡の取り込みや小気泡の合一が頻繁に行われると考えられる。また、これにより Fig. 2-11 の $D_{b,ave}$ の大きな増加が得られたと考える。

以上より、パルス流動層の気泡特性は H_l の影響を大きく受け、 H_l の増加により大気泡流動状態が形成されやすくなることを確認した。

2-2-4 スラッキング流動層との比較

これまでに述べたように、断続的流動下において、 $u_{on}/u_{mf,on,str}$ 及び H_l によって、パルス流動層特有の静止層リフトを伴う大気泡流動状態が形成される。一方、通常の流動層では、装置直径にまで大気泡が発達した流動状態はスラッキングと定義される。そこで本節では、本研究で示された静止層リフトを伴う大気泡流動と、通常の流動層のスラッキング（以下、スラッキング流動層と称する）を比較、検討する。

スラッキング流動層には、(a) 弾頭状で軸対象のスラグが連続的に層内を上昇するタイプ、(b) 管壁に沿って上昇するスラグ（壁スラグ）が形成されるタイプ、(c) スラグが管横方向に広がって扁平、柱状化し、ゆっくりと上昇するタイプ、といくつかの種類が存在する。このようなスラッキング流動層では、スラグは層底部で小気泡が合一して生成され、その後、層内を上昇、層頂から散逸する。層頂水位は、スラグ通過に伴い周期的な上下動を繰り返す。一方、本パルス流動層で得られた静止層リフトを伴う大気泡流動状態において、層頂水位は、空気流入開始直後に大きく上昇し、気泡の層頂からの離散が始まるまで上昇した後、次の空気流入開始時には初期水位まで下降しており、パルス周期に従って上下動する。ここで、スラッキング流動層の層頂水位の変動について、Matsen ら⁹⁾は、二相説に基づき層膨張比に関してまとめた次式を提出している。

$$\frac{H_{max}}{H_{mf}} = 1 + \frac{u_{on} - u_{mf}}{0.35\sqrt{gD}} \quad (1)$$

ここで、 H_{max} は流動時の最大粒子層高、 H_{mf} は最小流動化速度の時の粒子層高を表す。

Fig. 2-13 に、(1) 式より求めたスラッキング流動層の空気流速と層膨張比の関係を直線で示す。なお、Matsen ら⁹⁾の定義では D は管径であるが、本実験装置は二重管型であり、スラグは気泡流路幅を満たすほどに成長した気泡と置き換えて考えられることから、 D には本実験装置の気泡流路幅を代入した。併せて、本研究において静止層リフトを伴う大気泡流動状態が確認された各条件での空気流速と層膨張比の実測値も示す。なお、その際に、 H_{max} は各条件で測定された最大 H_b より算出し、

(1) 式の u_{mf} には $u_{mf,on,str}$ を、 H_{mf} にはパルス流動層の最小流動化時の最大粒子層高をそれぞれ用いた。本図から、本研究で得られた静止層リフトを伴う大気泡流動状態の層膨張比は、いずれの場合も、(1) 式より求めた値よりも小さくなることが分かる。参考として、 D に外管内径を代入した場合も点線で示したが、いずれにしても、静止層リフトを伴う大気泡流動状態の層膨張比の方が小さくなった。スラッキング流動層に関して、層底部にて小気泡の合一によりスラグが生成した後、上昇に伴い合一や分裂は行われなくなり、単一スラグとして層内を通過することが知られている。しかしながら、本研究で得られた静止層リフトを伴う大気泡流動状態では、空気流入開始直後の静止層のリフトを伴う大気泡の生成後、層壊砕を伴う大気泡の分裂が生じるため、層頂水位の上昇幅はスラッキング流動層よりも低くなったと考えられる。

なお、本研究で得られた静止層リフトを伴う大気泡流動状態の空気流速と層膨張比の関係は、15%の誤差で下式のように近似できた。

$$\frac{H_{max}}{H_{mf}} = 1 + \frac{u_{on} - u_{mf,on,str}}{1.25} \quad (2)$$

2-2-5 層圧力損失と気泡特性の関係についての考察

最後に、静止層リフトを伴う大気泡流動状態の気泡特性について、圧力損失との対比によって考察する。第1章の Fig. 1-8 で示したように、本パルス流動層の圧力損失の経時変化は、空気流入開始から $t/t_{on} = 0.3$ にかけての急激な増加、その後の緩や

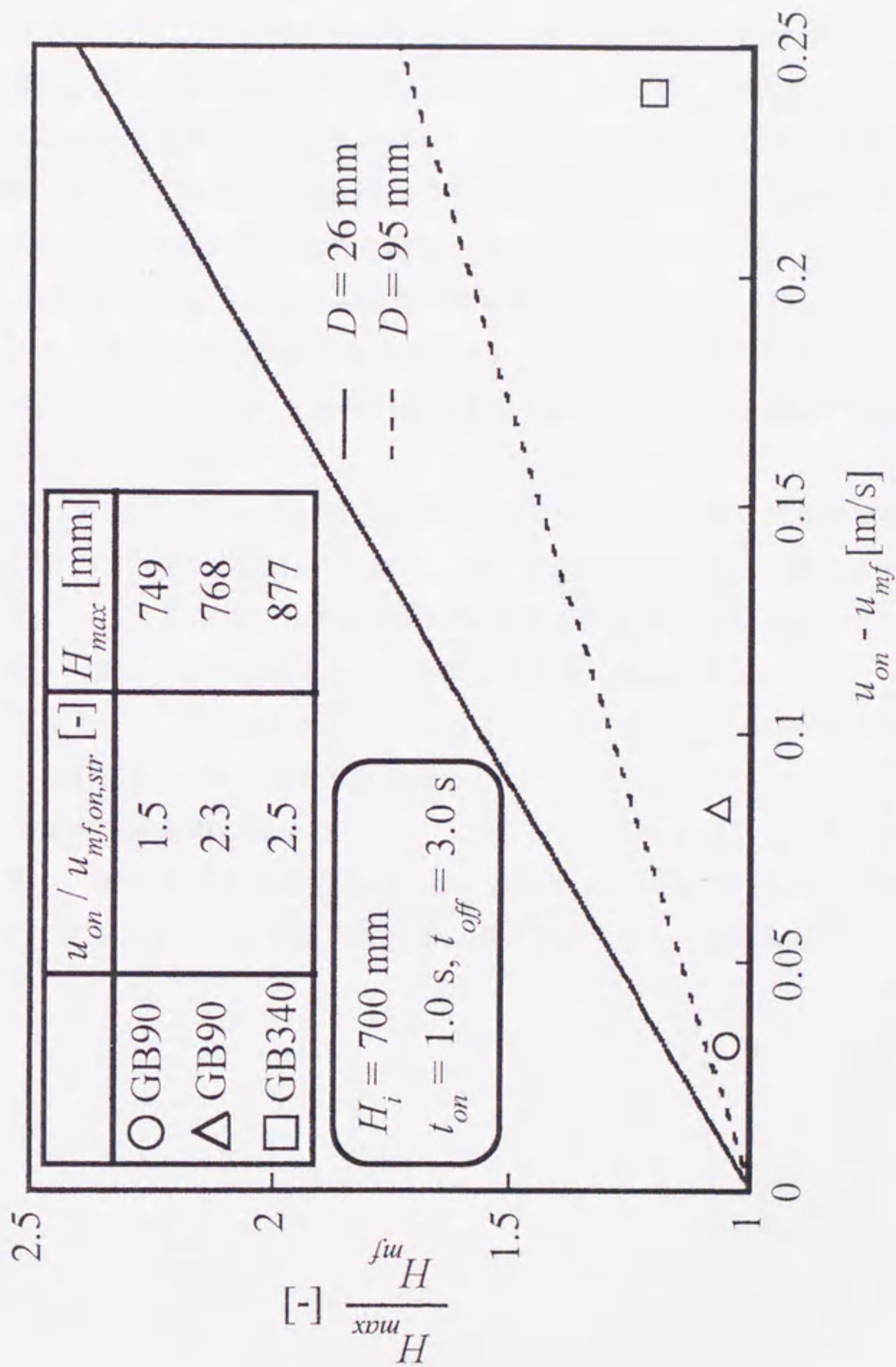


Fig.2-13 Comparison of bed expansion ratio between slugging and pulsated fluidized bed

かな減少に大別できる。その際、空気流入期間後半 ($t/t_{on} = 0.6 \sim 1.0$) において、通常の流動層の定常運転時における理論圧力損失 Wg/A より小さくなる。一方、本章より静止層リフトを伴う大気泡流動状態において、空気流入開始直後から $t/t_{on} = 0.3$ にかけての $D_{b,ave}$ 及び H_{be} の増大が明らかにされ、その後、 $D_{b,ave}$ については減少、 H_{be} については緩やかな推移を示した後、いずれも $t/t_{on} = 0.6$ から再び増大し始める。以上より、静止層リフトを伴う大気泡流動状態において、特に空気流入期間に関して、以下に示す現象が空気流入開始より連続して起こると考えられる。

(1) $t/t_{on} = 0 \sim 0.3$ では、流入空気は粒子層の重力及び粒子付着力等の抗力を受け、その抗力とつり合うまで圧力損失は上昇する。その際、流入空気は層中へ速やかに侵入できず、層底部でピストン流れが形成される。このため、層底部で大気泡が生成し、層頂も大きく上昇する。

(2) $t/t_{on} = 0.3 \sim 0.6$ では、空気流入がさらに進行することで流入空気の運動エネルギーが粒子層の抗力を上回る。その結果、層底部の大気泡が層内に押し上げられるように上昇し、リフトされていた静止層は層底部より壊砕する。これより、流入空気が粒子層から受ける抗力は弱まり、圧力損失は大きく減少する。

(3) $t/t_{on} = 0.6 \sim 1.0$ では、気泡の合一による大気泡の生成及び大気泡の層頂への上昇が起こり、層頂からの気泡離散も開始する。

なお、空気流入開始時の現象について、ピストンモデルを想定し、圧力損失と、粒子層の重力、粒子層の上昇加速度ならびに液架橋力に代表される付着力等について収支式を立てることで時間変化に関する記述が可能であると思われる。

結言

空気閉止期間に層全体で静止層が形成される断続的流動下において、パルス流動層の気泡特性に及ぼす操作条件の影響を調べた。その結果、層全体に形成された静止層への空気の流入は、通常の気泡流動化または静止層リフトを伴う大気泡生成のいずれかを起こすことが分かった。また、 $u_{on}/u_{mf,on,str}$ や H_i の増加により、通常の気泡流動化から静止層リフトを伴う大気泡流動に移行することが確認された。粒子径の減少により、低 $u_{on}/u_{mf,on,str}$ においてパルス流動層に特徴的な静止層リフトを伴う大気泡流動が確認され、粒子付着性による影響と推察された。静止層リフトを伴う大気泡生成後、気泡の分裂、再合一が起こり、それら現象に伴う優れた粒子混合が示唆された。静止層リフトを伴う大気泡流動状態は、気泡径、層頂水位及び圧力損失の経時変化により良く記述できた。

Nomenclature

A	= cross sectional area of riser	[m ²]
D	= bed diameter or distance between outer and inner tube	[mm]
D_b	= representative bubble size	[mm]
$D_{b,ave}$	= average bubble size	[mm]
g	= gravitational acceleration	[m/s ²]
H_{be}	= bed expansion height	[mm]
H_i	= initial bed height	[mm]
H_{max}	= maximum bed height	[mm]
H_{mf}	= bed height in minimum fluidization	[mm]
H_s	= height of static part in bed	[mm]
N	= number of bubbles in described size range	[-]
N_{each}	= number of bubbles in each size range	[-]
N_{total}	= total number of bubbles	[-]
t	= lapse time after starting to inject fluidization air into bed	[s]
t_{off}	= off-period duration without injecting fluidization air	[s]
t_{on}	= on-period duration with injecting fluidization air	[s]
t_s	= bubble transit time through bed	[s]
u_{mf}	= minimum fluidization air velocity for normal fluidized bed	[m/s]
$u_{mf,on}$	= minimum fluidization air velocity based on on-period duration in pulse cycle	[m/s]
$u_{mf,on,str}$	= saturated minimum fluidization air velocity for pulsated fluidized bed	[m/s]
u_{on}	= superficial mean air velocity based on on-period duration in pulse cycle	[m/s]
W	= total mass of bed material	[kg]

Literature cited

- 1) Bhattacharya, S. C. and D. Harrison : *Trans. Instn. Chem. Engres.*, 54, 281 (1976)
- 2) Bokun, I. A. and S. S. Zabrodskii : A. V. Lykov, ed., *Nauka i Tekhnika*, 27 (1966)
- 3) Bretsnajder, S., M. Jazczak and W. Pasiuk : *Ind. Chem. Eng.*, 3, 496 (1963)
- 4) Bukarov, M. F., V. A. Chlenov and N. V. Mikhailov : *Ind. Chem. Eng.*, 9, 119 (1969)
- 5) Kobayashi, M., D. Ramaswami and W. T. Brazelton : *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, 105, 47 (1970a)
- 6) Kobayashi, M., D. Ramaswami and W. T. Brazelton : *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, 105, 58 (1970b)
- 7) Köksal, M. and H. Vural : *Powder Tech.*, 95, 205 (1998)
- 8) Massimilla, I., G. Volpicelli and G. Raso : *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, 62, 63 (1966)
- 9) Masten, J. M., S. Hovmand and J. F. Davidson : *Chem. Eng. Sci.*, 24, 1743 (1969)
- 10) Mitkevich, E. M. : *Zhur. Prikl. Khim.*, 33, 1253 (1960)
- 11) Wong, H. W. and M. H. Baird : *Chem. Eng. J.*, 2, 104 (1971)

第3章 二次元パルス流動層の気泡特性と横方向粒子混合との相関

緒言

流動層は、(1) 粒子とガスの温度が等しく、層内がほぼ均一な温度に保たれる (2) 伝熱面における伝熱係数が大きい (3) 層内の温度制御が容易である、といった伝熱特性を有する。通常、流動層内伝熱は、粒子運動に伴う顕熱移動の過程により主に支配されるため、気泡挙動及びそれに依存する粒子混合が伝熱性能に果たす役割は極めて大きい。従って、気泡特性や粒子混合特性の把握は、流動機構のみならず伝熱機構の解明にも大きな意義を有する。

序章で述べたように、パルス流動層の伝熱特性に関してはいくつか報告されている^{1, 2, 3, 4, 8, 12, 14)}。しかしながら、通常の流動層における気泡特性、粒子混合特性に関する既往研究の充足に対し、パルス流動層に関しては、気泡特性については Köksal⁹⁾ の報告があるのみで、粒子混合特性を扱ったものならびにその両方をとりまとめたものについては報告されていない。

本研究では前章までに、パルス流動層の流動特性を明らかにするため、パルス周期や粒子層高をパラメータとし、気泡特性に関して得られた知見を基に検討を行ってきた。その結果、空気閉止期間に層全体で静止層が形成される断続的流動条件下において、気泡流路を満たす程に成長した大気泡が観察された。

本章では、本研究に採用したヒーター垂直内挿型装置のヒーター・粒子層間伝熱に大きく寄与すると考えられる横方向粒子混合について検討する。気泡や粒子の挙動の追跡をより精度よく行うため、新たに、奥行きが極めて短い二次元コールドモデル可視化装置を試作した。パルス流動層の気泡特性と横方向粒子混合特性の相関を明らかにすることを目的とし、空気閉止期間を変化させて、気泡特性として気泡数と気泡径を、横方向粒子混合特性として粒子層内に充填したトレーサー粒子の濃度変化を測定した。

3-1 実験

3-1-1 実験装置及び方法

Fig. 3-1 に実験装置の概略を、Table 3-1 に実験条件を示す。装置本体は透明アクリル樹脂製で、流動化領域は幅 100 mm、高さ 1000 mm で、奥行きは 5 mm である。

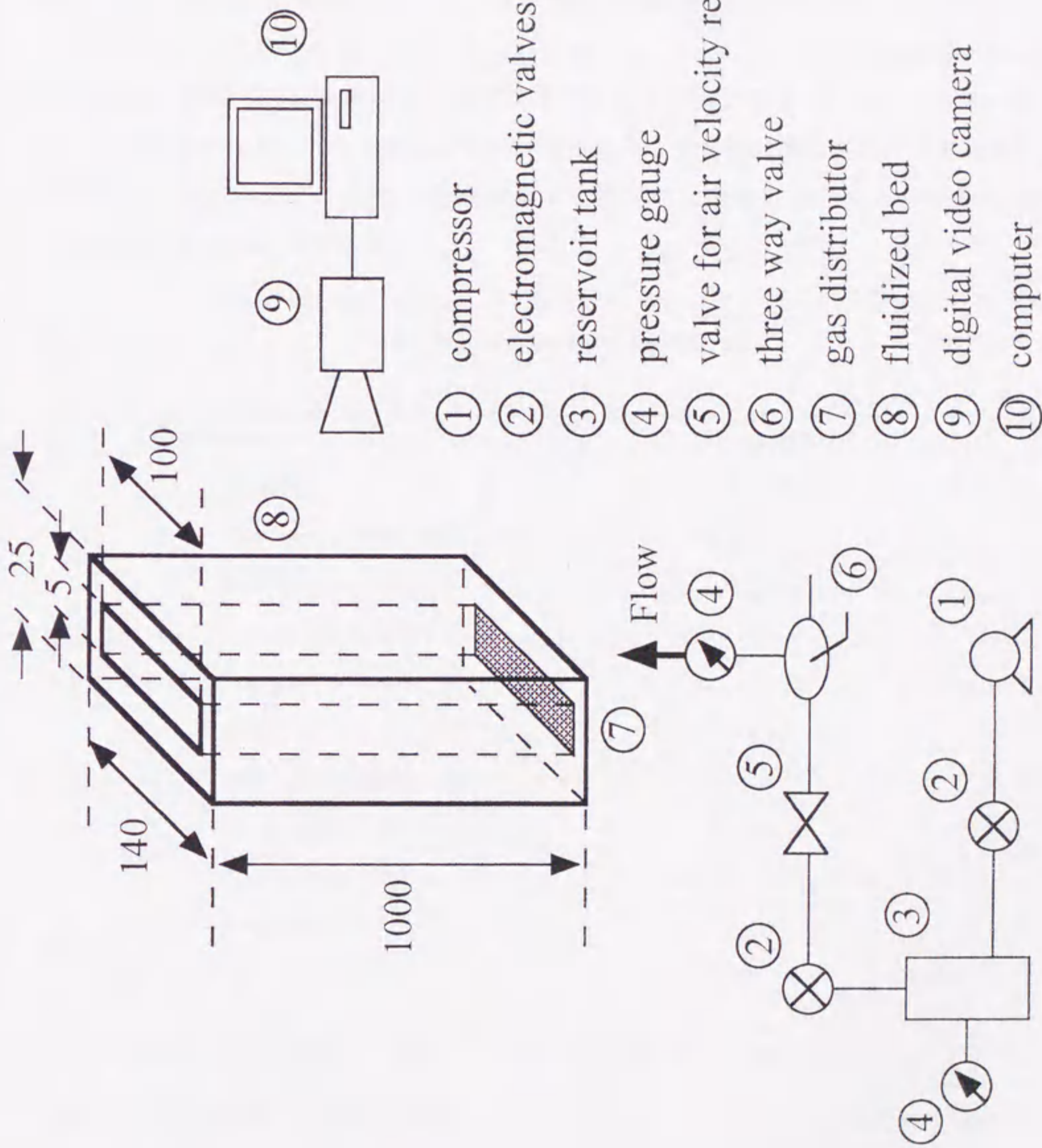


Fig.3-1 Schematic drawing of experimental apparatus

ガス供給部については、前章までと同一のシステムを用いた。流動化ガスには、これまでと同じく、空気を用いた。流動粒子には、平均粒子径 90 μm のガラスビーズ (GB90) を使用した。本実験装置は層断面積が小さく、チャネリング形成の恐れがあるため、各パルス周期について、気泡流動が確認され、かつ装置上方から系外への粒子飛び出しの起こらなかった $H_i = 300 \text{ mm}$ 、 $u_{on} = 0.09 \text{ m/sec}$ で実験を行った。前章で確認された大気泡流動がより起こりやすいと考えられる高 H_i 条件ではないが、気泡流路が狭いため、 $H_i = 300 \text{ mm}$ においても発達した気泡が確認されている。なお、本実験条件下において、空気を連続供給する通常の流動層の場合の最小流動化速度 (u_{mf}) は 0.01 m/sec であった。

Table 3-1 Experimental conditions

Bed material:	glass beads
Density:	2500 kg/m^3
50% cumulative mean size:	$90 \mu\text{m}$
Particle size range:	$70 \sim 120 \mu\text{m}$
Initial bed height (H_i):	300 mm
Fluidization gas:	air
Density:	1.2 kg/m^3
Superficial mean velocity based on on-period duration (u_{on}):	0.09 m/sec
Initial temperature:	room temperature
Pulsating operation:	
On-period duration (t_{on}):	1.0 sec
Off-period duration (t_{off}):	$0.5, 1.0, 3.0 \text{ or } 4.0 \text{ sec}$

実験は、前章までと同様に、所定量の GB90 を充填し、各パルス周期に制御された空気を流入する。流動状態をビデオカメラ撮影し、得られた画像から、気泡数、気泡サイズならびに層内トレーサー粒子濃度変化を測定した。

3-1-2 測定

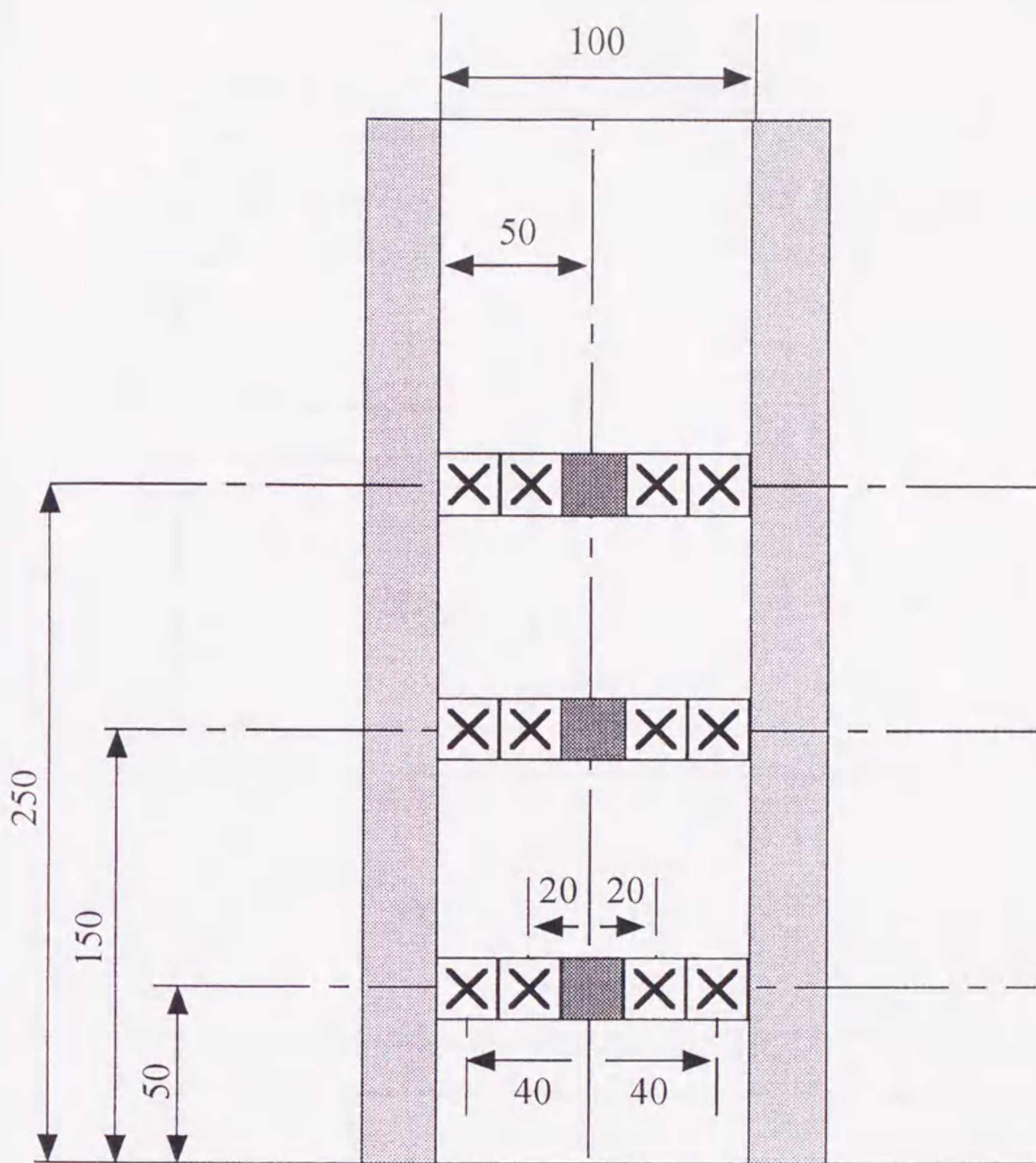
流動状態の撮影とパソコンへの画像取り込みは、前章までと同じデジタルビデオカメラ（Handycam、SONY社製、30 frames/sec）及びDV静止画キャプチャーボードキット（SONY社製）により行った。撮影範囲は、幅100 mm、高さ1000 mmで装置一面全域である。また、撮影は一方向より行った。なおその際に、前、後面からの撮影方向の違いによる流動状態の異なりは確認されなかった。鉛直方向気泡長さ（気泡高さ）と水平方向気泡長さ（気泡幅）は、パソコンに取り込んだ静止画像からFeret径（定方向接線径）表示法にて計測した。粒子混合度は、画像解析ソフト（Transform、Fortner Research LLC社製）により、画像の輝度を256階調に分割、数値化することで評価した。今回使用したGB90が白色であるため、トレーサー粒子には、GB90を黒インクで着色したものをを用いた。凝集等による粒子径の変化を防ぐため、着色後、マッフル炉にて加熱し、その後選別したものをトレーサー粒子として粒子層内に充填した。また、トレーサー粒子の密度は 2540 kg/m^3 と非着色粒子のそれと比べて僅か1.6%の違いしかなく、本研究で用いたトレーサー粒子は流動粒子を十分に模擬していると考えられる。

Fig. 3-2に、トレーサー粒子充填及び濃度変化測定範囲を示す。トレーサー粒子は、装置幅方向中心軸上の、分散板より高さ50、150、250 mmの点を中心として、 $20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ の範囲に充填した。トレーサー粒子濃度変化の測定は、上記充填範囲、及び各充填範囲の中心より水平方向に20 mmならびに40 mm離れた点を中心とする $20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$ の範囲について行った。画像解析ソフトにより、各測定範囲を576点に分割、その全点について数値化したものを平均して、各測定範囲の代表濃度とした。

3-2 結果及び考察

3-2-1 気泡特性

Fig. 3-3に、 $H_f = 300 \text{ mm}$ 、 $t_{on} = 1.0 \text{ sec}$ 一定で、 t_{off} を0.5~4.0 secで変化させた時の、 N_{total} の1パルス周期あたりの経時変化を示す。併せて、同装置において得られた、空気を連続供給する通常の流動層の場合の時間平均値を図中一点鎖線で示す。本図から、パルス流動層の N_{total} は、全般に通常の流動層を下回ることが確認できる。また、 $t_{off} = 3.0$ 、4.0 secの場合では、空気閉止期間後半において N_{total} が0になること



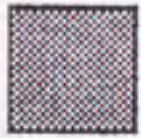

-  initial position of tracer particle
-  measuring area

Fig.3-2 Initial position of tracer particle and measuring area

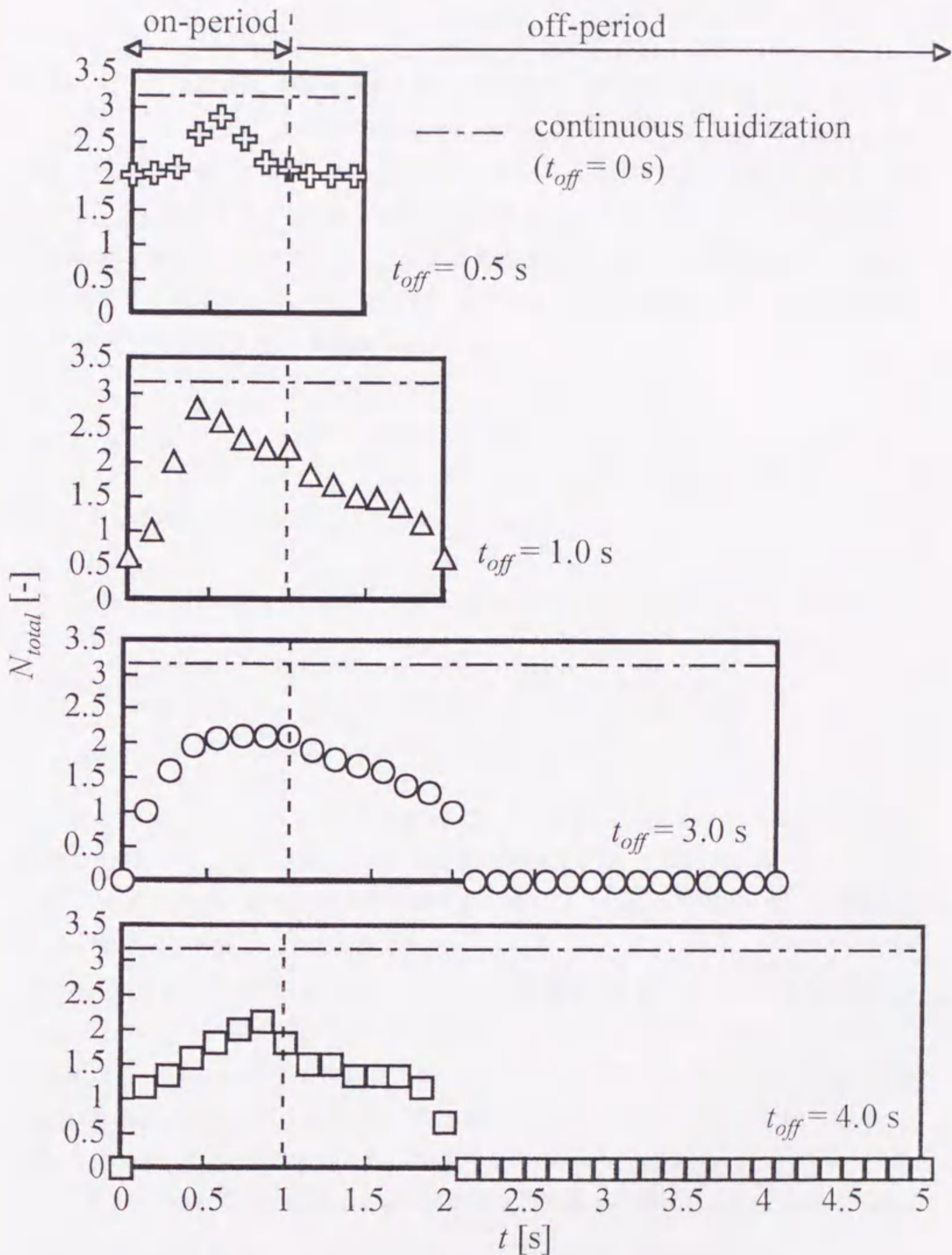


Fig.3-3 Change in total number of bubbles with time for several off-period durations ($H_i = 300$ mm, $t_{on} = 1.0$ s)

から、全ての気泡が粒子層を通過し終え、層全体で静止層が形成されることが分かる。さらに、 $t_{off} = 3.0, 4.0 \text{ sec}$ の最大 N_{total} は、 $t_{off} = 0.5, 1.0 \text{ sec}$ の場合のそれよりも小さくなっている。ここで、各 t_{off} について気泡の大きさを比較するため、Table 3-2 に、各 t_{off} で測定された全気泡の平均相当直径 ($D_{be,ave}$) を示す。また、併せて通常の流動層の結果も示す。なお、 $D_{be,ave}$ の算出の際には、二次元流動層において、非真円形状の気泡の気泡径からその気泡と同一面積を有する真円気泡の気泡径 (相当直径、 D_{be}) が導かれる (1) 式⁵⁾ を利用した。

$$D_{be}/D_{bw} = 0.84 \exp(0.06D_b) \quad (1)$$

なお、 D_{bw} は測定した気泡径 (気泡幅) である。

Table 3-2 Effect of off-period duration on average equivalent diameter of bubbles

t_{off} [s]	0	0.5	1.0	3.0	4.0
$D_{be,ave}$ [mm]	33	35	36	41	41

本表より、 $t_{off} = 3.0, 4.0 \text{ sec}$ の $D_{be,ave}$ は、 $t_{off} = 0.5, 1.0 \text{ sec}$ の場合のそれよりも約 16% 程度大きく、また、 $t_{off} = 0.5, 1.0 \text{ sec}$ と通常の流動層で $D_{be,ave}$ を比較すると、 $t_{off} = 0.5, 1.0 \text{ sec}$ の場合の方が約 7% 程大きな値を示している。このことから、 $D_{be,ave}$ の増大により、最大 N_{total} は減少したと考えられる。

横方向粒子混合に対して直接的にその寸法が影響すると考えられる実測気泡径 D_{bw} について、 $H_t = 300 \text{ mm}$ 、 $t_{on} = 1.0 \text{ sec}$ 一定で、 t_{off} を 0.5~4.0 sec に変化させた時の、分散板からの高さ (H) との関係を図 3-4 に示す。併せて、本装置にて得られた通常の流動層の結果も示す。本図では、粒子層を高さ方向に 0~100 mm、100~200 mm、200~300 mm の三つの領域に分け、各領域で観察された全気泡の D_{bw} について平均した値をその領域での代表 D_{bw} とし、各領域の中間高さの値として表示した。また、流動層に関する既往研究との比較のため、(2) 式⁷⁾ より、本実験条件下における D_{bw} と H の関係を算出した。

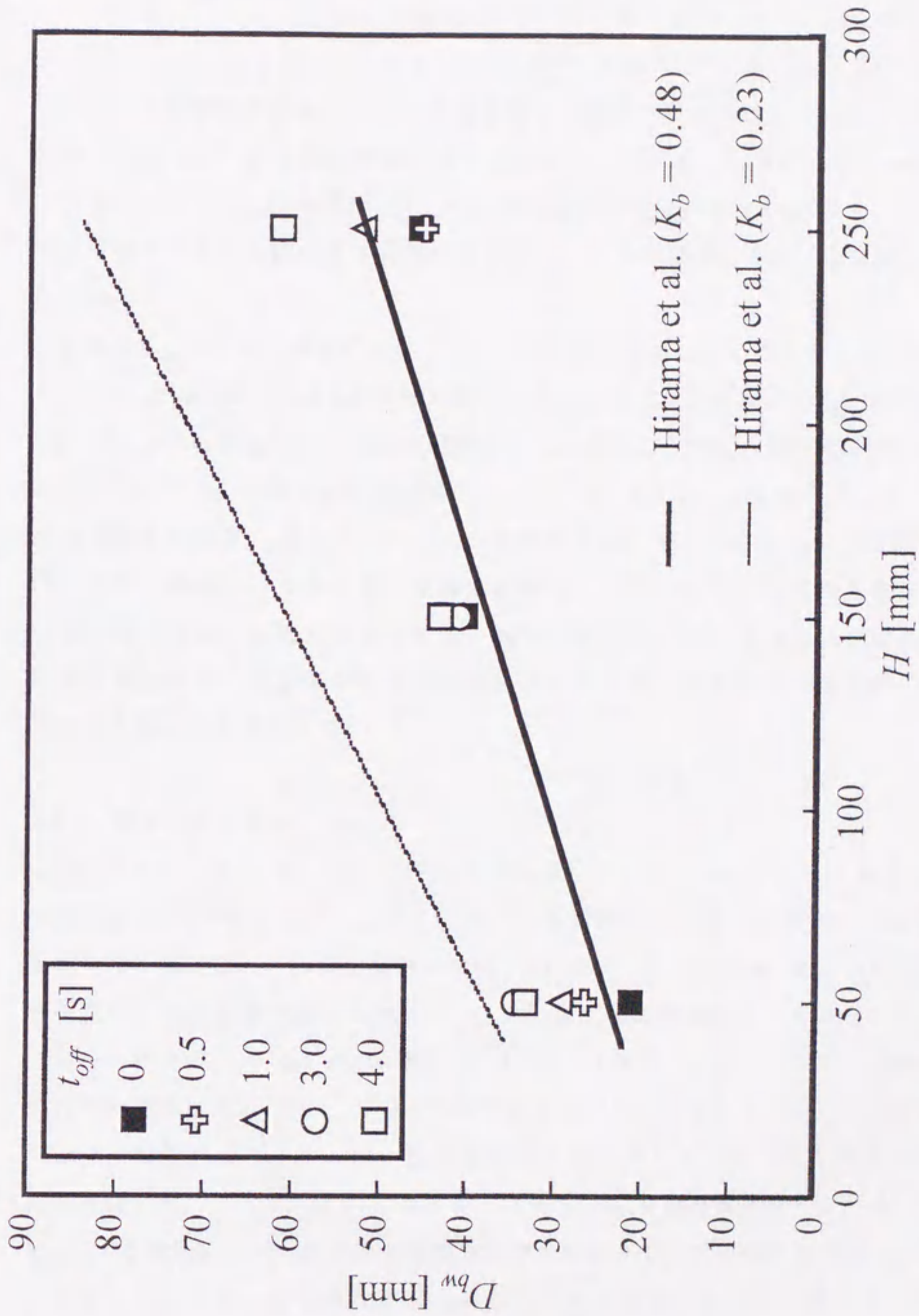


Fig.3-4 Relation between bubble diameter and height above gas distributor ($H_i = 300$ mm, $t_{on} = 1.0$ s)

$$D_{bw} = 1.1(u_{on} - u_{mj})^{0.6} H^{0.6} B^{0.1} / (K_b^{0.67} g^{0.3}) \quad (2)$$

ここで、 B は装置奥行きを、 K_b は気泡上昇速度係数を表す。二次元流動層について、Pyle - Harrison¹³⁾ から気泡流動状態での気泡について $K_b = 0.48$ が、Layzer¹¹⁾ からガススラグについて $K_b = 0.23$ が、それぞれ提出されている。そこで、(2) 式にそれぞれの値を代入した結果を Fig. 3-4 に呈示し、以下気泡 D_{bw} - H 式、スラグ D_{bw} - H 式と称する。

本図から、いずれの条件についても、 D_{bw} は H の増加と共に増大することが分かる。また、 D_{bw} と H の関係は t_{off} の増加と共に気泡 D_{bw} - H 式からスラグ D_{bw} - H 式に近づき、 $t_{off} = 3.0$ sec を越えるとその傾向が弱まることが認められる。特に低 H について、 t_{off} の増加に伴う D_{bw} の増大化傾向は強く、 $t_{off} = 3.0, 4.0$ sec の場合の D_{bw} は、通常の流動層の結果の約 1.7 倍になっている。前章にて述べたように、 t_{off} が増加すると空気閉止期間に形成される静止部分層高さは増大し、それに伴い空気流入開始時に流入空気が層から受ける抗力も増大する。本章で用いた二次元可視化装置においても、同様な理由から、層全体で静止層が形成されるパルス周期では、層底部において大気泡が生成されると考える。

3-2-2 横方向粒子混合

Fig. 3-5 に、 $H = 50, 150, 250$ mm の位置におけるトレーサー粒子濃度 (C) 変化の結果を示す。横軸に、トレーサー粒子充填範囲の中心から横方向への距離 (Δx) を表した。その際に、各測定範囲の中心 ($\Delta x = 0, 20, 40$ mm) を代表位置とした。本図では、横方向粒子混合に及ぼす t_{off} の影響が顕著に現れると考えられる。本実験において最小の $t_{off} = 0.5$ sec の場合と、Table 3-2 及び Fig. 3-4 において気泡サイズ増大の飽和傾向が見られた $t_{off} = 3.0$ sec の場合について比較した。 C には、測定したトレーサー粒子濃度をトレーサー粒子充填範囲の初期トレーサー粒子濃度で規格化した値を用いた。ここで、 $C = 1$ はトレーサー粒子充填範囲の初期トレーサー粒子濃度を、 $C = 0$ はトレーサー粒子非充填測定範囲の初期トレーサー粒子濃度を表す。

なお、トレーサー粒子濃度測定に関して、パルス運転を何回も繰り返すと、各測定範囲間のトレーサー粒子濃度差が小さくなり混合挙動の差を記述できなくなる。さらに、層全体での対流によるトレーサー粒子の流入のために横方向 1 次元での粒子混

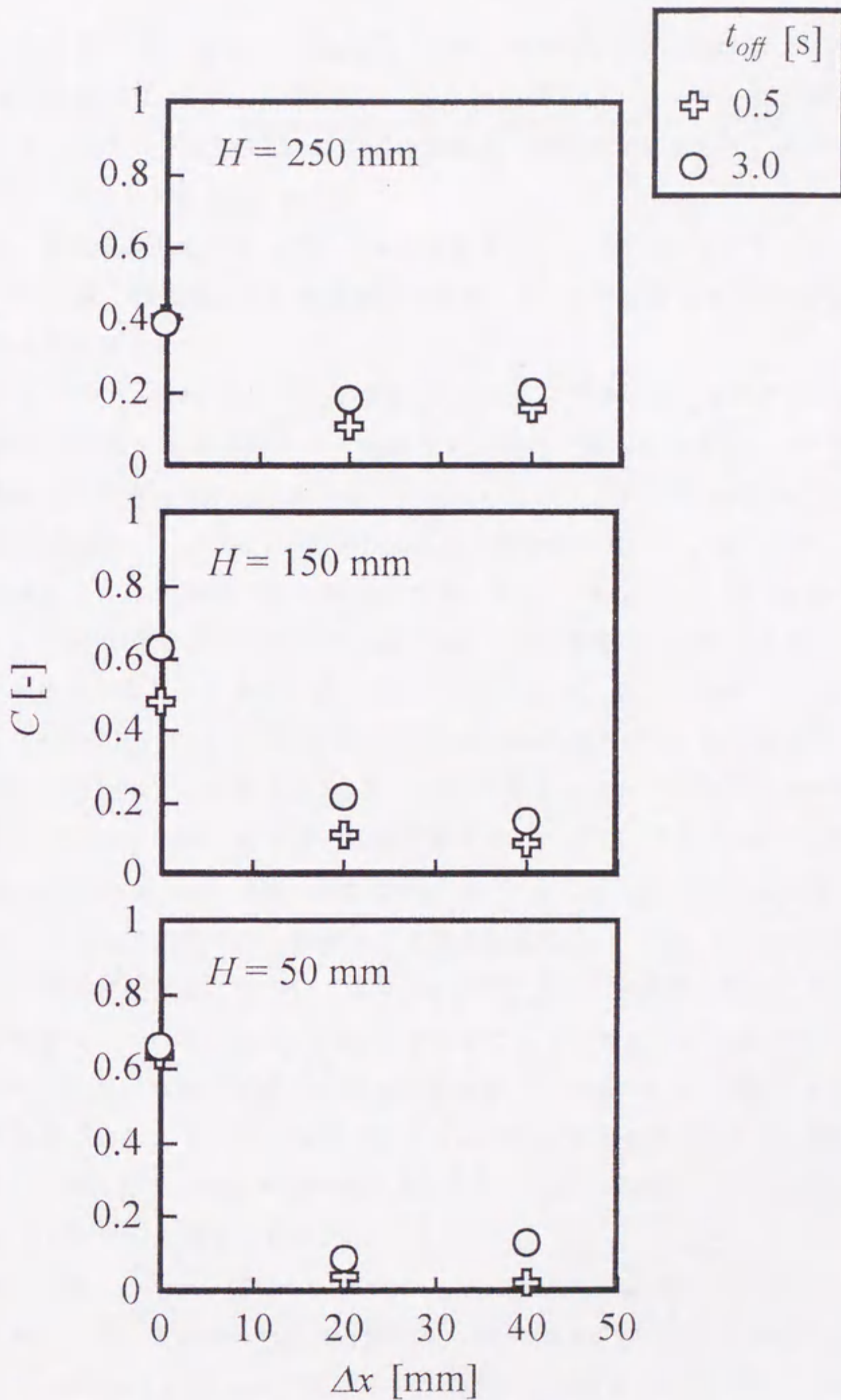


Fig.3-5 Comparison of tracer particle concentration between short and long off-period duration ($H_i = 300$ mm, $t_{on} = 1.0$ s)

合挙動の記述は困難になる。予備実験より、それぞれのパルス周期について 3 回のパルス連続運転後までは、ほぼ直線的、かつ比較的高いトレーサー粒子濃度変化が確認されたことから、本図では 3 回連続運転後の測定値で評価した。なお、予備実験の結果の一例を、Fig. 3-6 に示す。

測定は、現象の再現性を数十回のパルス運転について確認した上で行った。 $\Delta x = 20, 40$ mm の C は、装置幅方向中心軸を境に両側についてほぼ同じ値が得られたことから、両側の平均値とした。

本図から、 $\Delta x = 0$ mm の C は、いずれの t_{off} においても、 H の増加に伴い減少することが確認できる。気泡上昇に伴う気泡成長により、充填したトレーサー粒子の移動が活発になると考えられる。 $\Delta x = 20, 40$ mm の C は、いずれの H においても、 $t_{off} = 3.0$ sec の場合の方が $t_{off} = 0.5$ sec の場合よりも大きな値を示している。ここで、Fig. 3-4 から分かるように、 D_{bw} は、 $H = 150$ mm を除く H について、 $t_{off} = 3.0$ sec の場合の方が $t_{off} = 0.5$ sec の場合よりも大きい。横方向への粒子移動は気泡径の大きさに支配される¹⁰⁾ ため、このような結果が得られたと考えられる。なお、 $H = 150$ mm において、Fig. 3-4 では $t_{off} = 3.0$ sec の場合と $t_{off} = 0.5$ sec の場合で D_{bw} はほぼ等しい値を示しているにも関わらず、本図では $t_{off} = 3.0$ sec の場合の方が C は大きな値が得られている。ここで、 $H = 150$ mm における全観察気泡について、アスペクト比の全気泡平均値を求めたところ、 $t_{off} = 3.0$ sec の場合については 1.4、 $t_{off} = 0.5$ sec の場合については 1.0 となった。アスペクト比が 1.0 を越える気泡は、アスペクト比の増加と共に相互干渉の傾向が強まる⁶⁾ とされており、本研究においても同様な傾向が見られ、 $t_{off} = 3.0$ sec の場合について、 $t_{off} = 0.5$ sec の場合よりも C の値が大きくなった。

連続運転する際の指標となる 1 パルス運転基準での評価のため、Fig. 3-5 の C をパルス運転回数で除した 1 パルス運転あたりの横方向粒子混合度 (R_{lp}) を、Fig. 3-7 に示す。なお、各位置での横方向粒子混合と気泡径の関係を明確にするため、 $\Delta x = 20, 40$ mm 及び H について整理し直した。

本図から、 $\Delta x = 40$ mm では、いずれの t_{off} についても、 H の増加と共に R_{lp} は増加することが分かる。これは、Fig. 3-4 に示した H の増加に伴う D_{bw} の増大化によると考えられる。また $\Delta x = 40$ mm では、いずれの H においても、 R_{lp} は $t_{off} = 3.0$ sec の場合の方が $t_{off} = 0.5$ sec の場合よりも大きい。特に $H = 50$ mm において、 $t_{off} = 3.0$ sec の場合と $t_{off} = 0.5$ sec の場合の R_{lp} の値の差が、他の H よりも大きくなっている。Fig. 3-4

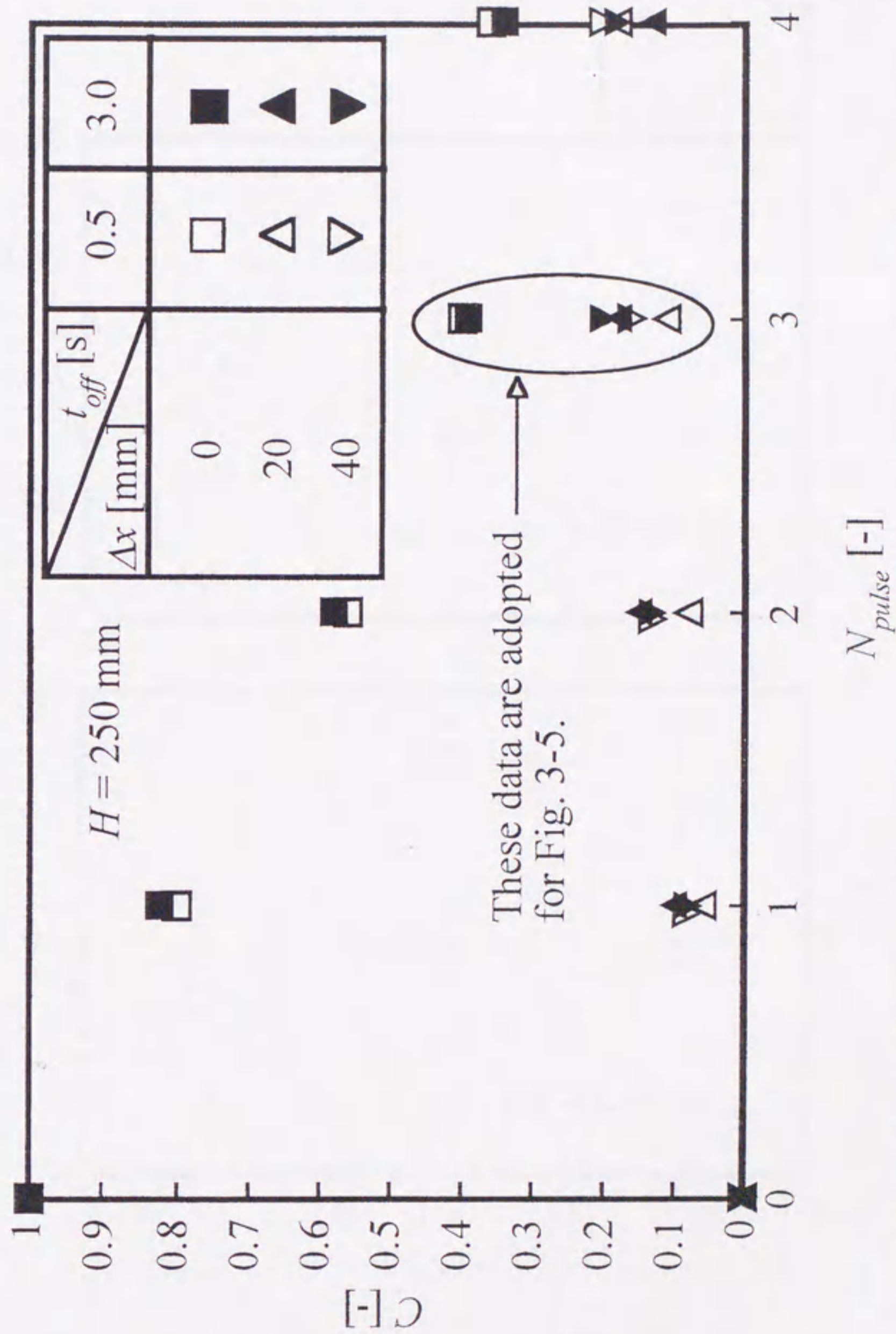


Fig.3-6 Change in tracer particle concentration with continual pulse operation ($H_i = 300 \text{ mm}$, $t_{on} = 1.0 \text{ s}$)

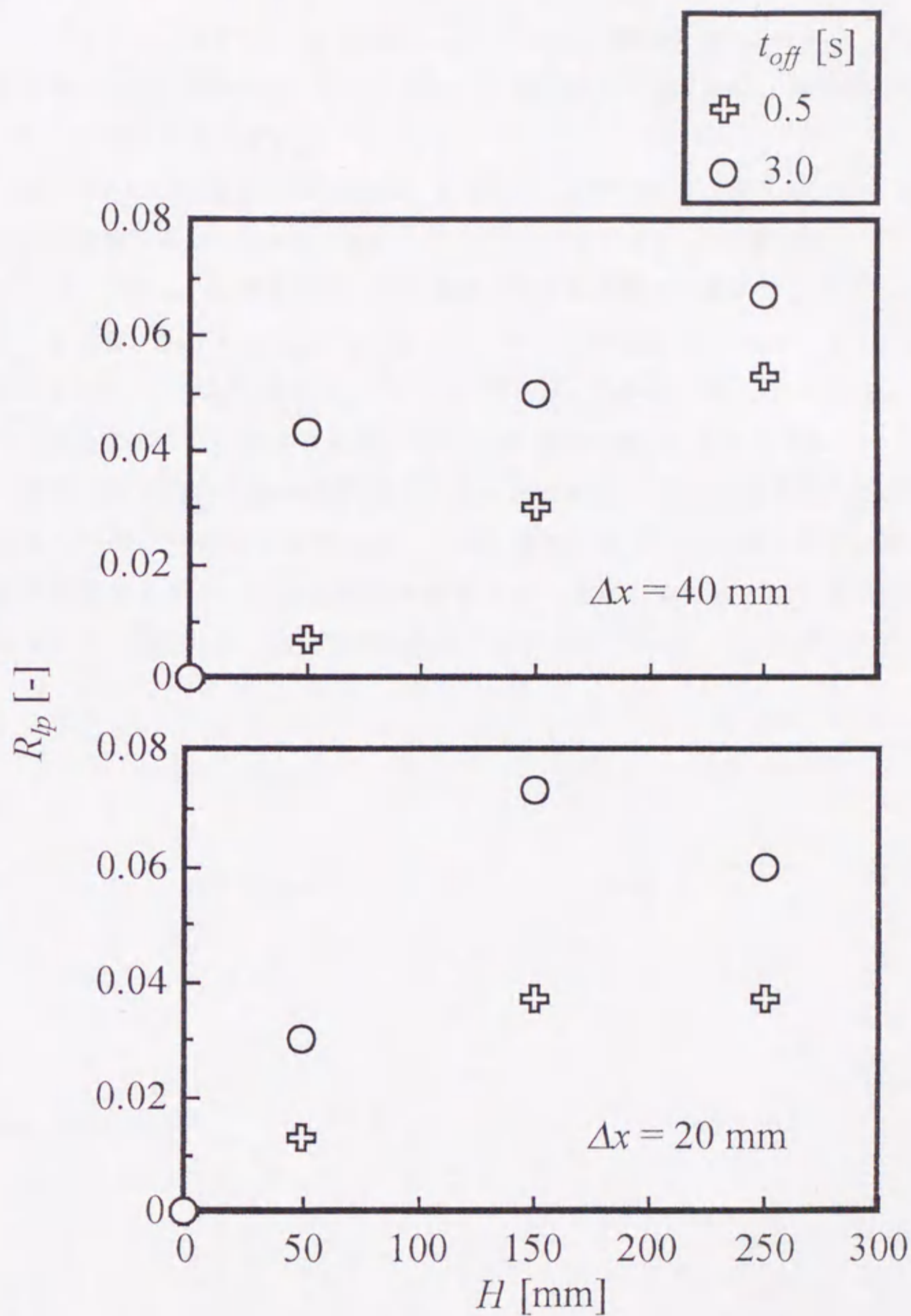


Fig.3-7 Comparison of ratio of lateral particle mixing per single pulse cycle between short and long off-period duration ($H_i = 300$ mm, $t_{on} = 1.0$ s)

から、 $H = 50$ mm における D_{bw} は、 $t_{off} = 3.0$ sec の場合には 34 mm、 $t_{off} = 0.5$ sec の場合には 26 mm であった。このことから、層底部において特に、大気泡生成が R_{ip} の増大化に有効であることが分かる。

$\Delta x = 20$ mm に関しては、 R_{ip} は、いずれの t_{off} についても $H = 50 \sim 150$ mm にかけて増加した後、 $H = 150 \sim 250$ mm にかけては、 $t_{off} = 3.0$ sec の場合については若干の減少、 $t_{off} = 0.5$ sec の場合についてはほぼ一定になる傾向が見受けられる。Fig. 3-4 で示したように、いずれの t_{off} の場合についても、 $H = 150 \sim 250$ mm では D_{bw} は 40 mm を越えている。このことから、 $H = 150 \sim 250$ mm にかけては、 $\Delta x = 20$ mm の測定範囲の大半は気泡によって占有され、 R_{ip} の増加傾向は鈍化したと考える。

横方向粒子混合に最適な気泡をもたらす条件の選定にはさらなる検討が必要ではあるものの、空気閉止期間の短いパルス周期に比べ、空気閉止期間に層全体で静止層が形成される長いパルス周期で運転することは、空気流入時に層底部における大気泡生成をもたらし、横方向粒子混合促進に有効であることが確認された。

結言

パルス流動層の気泡特性と横方向粒子混合特性の関係を明らかにすることを目的として、二次元コールドモデル可視化装置においてビデオカメラによる流動状態の観察を行った。 t_{off} を変化させて、気泡数と気泡サイズを測定し、また、二種類の t_{off} の場合についてトレーサー粒子濃度変化を測定、比較した。その結果、空気閉止期間に層全体で静止層が形成される t_{off} の場合には、層全体で静止層が形成されない t_{off} の場合と比べて、最大 N_{total} の減少と気泡の増大が確認された。特に、低 H において D_{bw} の増大化傾向が強く認められ、それに伴う R_{lp} の増加が明らかとなった。空気閉止期間の短いパルス周期と比べ、空気閉止期間に層全体で静止層が形成される長いパルス周期で運転することが、横方向粒子混合促進に有効であることが確認された。

Nomenclature

B	= bed depth	[mm]
C	= tracer particle concentration in bed	[-]
D_{bw}	= bubble width	[mm]
D_{be}	= equivalent diameter of bubble	[mm]
$D_{be,ave}$	= average equivalent diameter of bubble	[mm]
g	= gravitational acceleration	[m/s ²]
H	= height above gas distributor	[mm]
H_i	= initial bed height	[mm]
K_b	= coefficient of rising velocity of bubble	[-]
N_{total}	= total number of bubbles	[-]
N_{pulse}	= number of continual pulse operation	[-]
R_{lp}	= ratio of lateral particle mixing per single pulse cycle	[-]
t	= lapse time after starting to inject fluidization air into bed	[s]
t_{off}	= off-period duration without injecting fluidization air	[s]
t_{on}	= on-period duration with injecting fluidization air	[s]
u_{mf}	= minimum fluidization air velocity for normal fluidized bed	[m/s]
u_{on}	= superficial mean air velocity based on on-period duration in pulse cycle	[m/s]
Δx	= lateral distance from center of bed	[mm]

Literature cited

- 1) Belik, L : *Chem. Eng. Tech.*, 32, 253 (1960)
- 2) Bhattacharya, S. C. and D. Harrison : *Trans. Instn. Chem. Engres.*, 54, 281 (1976)
- 3) Bokun, I. A. and S. S. Zabrodskii : A. V. Lykov, ed., *Nauka i Tekhnika*, 27 (1966)
- 4) Bretsnajder, S., M. Jazczak and W. Pasiuk : *Ind. Chem. Eng.*, 3, 496 (1963)
- 5) Goldsmith, J. A. and P. N. Rowe : *Chem. Eng. Sci.*, 30, 439 (1975)
- 6) Hatano, H., R. Yang and M. Ishida : *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 18, 133 (1992)
- 7) Hirama, T., M. Ishida and T. Shirai : *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 1, 272 (1975)
- 8) Kobayashi, M., D. Ramaswami and W. T. Brazelton : *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, 105, 58 (1970)
- 9) Köksal, M. and H. Vural : *Powder Tech.*, 95, 205 (1998)
- 10) Kunii, D. and O. Levenspiel : *J. Chem. Eng. Japan*, 2, 122 (1969)
- 11) Layzer, D. : *Astrophys. J.*, 122, 1 (1955)
- 12) Mitkevich, E. M. : *J. App. Chem. of the USSR.*, 33, 1253 (1960)
- 13) Pyle, D. L. and D. Harrison : *Chem. Eng. Sci.*, 22, 531 (1967)
- 14) Zabrodskii, S. S. and I. A. Bokun : A. V. Lykov, ed., *Nauka i Tekhnika*, 135 (1966)

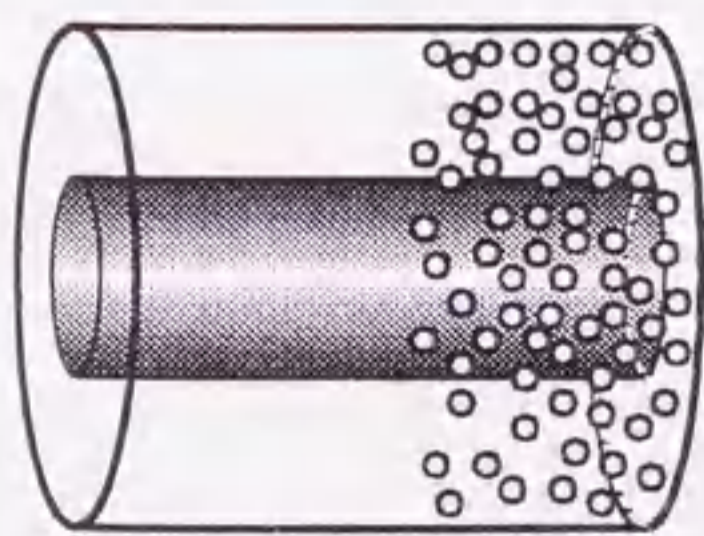
第4章 パルス流動層の伝熱特性と気泡特性との相関

緒言

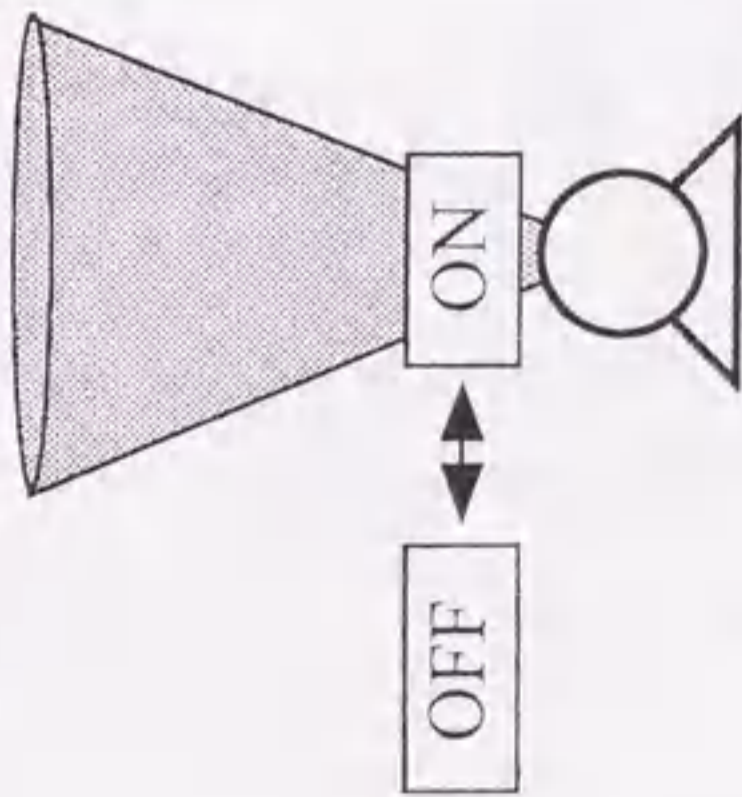
序章で述べたように、流動層は比較的高い伝熱性能を有することが知られている。これは、流動層固有の粒子群移動による対流伝熱と、高温場における粒子群輻射によるものであり、これを積極的に利用した高効率熱交換器ならびに熱輸送器などが開発研究されている¹⁰⁾。さらに流動層の熱・物質移動性能の向上を目指した研究として、流入ガスの圧力⁵⁾や熱伝導度¹³⁾の影響を検討した例がある。流動粒子ならびに伝熱面や装置形状が及ぼす影響については、Bockら³⁾、Grewalら⁹⁾やGelperinら⁸⁾の研究がある。

一方、ガスの流入と閉止を周期的に行う特異な流動層であるパルス流動層も、良伝熱性が得られることから古くより研究され、序章で述べたように、通常の流動層に対する伝熱促進効果が報告されている^{1, 2, 4, 6, 12, 14, 15)}。

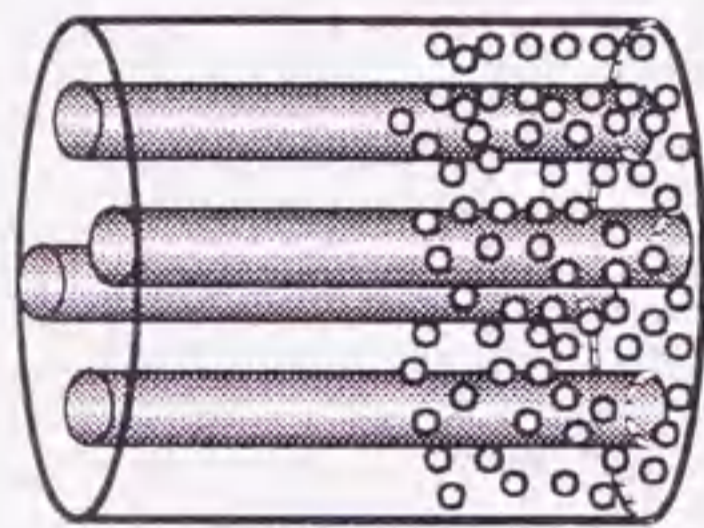
そのようなパルス流動層の伝熱促進効果ならびに通常の流動層と異なる運転手法を踏まえ、本章では新たにパルス流動層多層多伝熱管型システムを提案する。その概念図を、Fig. 4-1に示す。比較として、本システムと層体積及び伝熱面積が等しい単層単伝熱管型ならびに単層多伝熱管型システムの概念図も併せて示す。単層単伝熱管型ならびに単層多伝熱管型システムに関して、システム全体へのガスの流入をパルスのように操作するため、システム上流側への負荷変動の負担がかかる。一方、パルス流動層多層多伝熱管型システムでは、各層のパルス操作に適当な位相差を付けることで、システム全体へのガス供給を連続的かつ一定に、また各層でのガス流速も一定とすることが可能であり、上流側への負荷変動は無くシステムは定常的に運転される。加えて、ガスの供給される層面積が小さくなるため、システム上流側からのガス流量が低い場合でも大きな線流速が得られ、流動状態を形成することが可能である。さらに、ガスの流入が連続的ではなく閉止期間に粒子沈降が起こるため、大流量においてもシステムからの微細粒子散逸を防ぐ操作が可能と考えられる。また、システム全体の粒子インベントリーを他のシステムと同一とすると、層分割により断面積に対する粒子層高の比が大きくなり、ガス流速の向上もあって大気泡が生成されやすい¹¹⁾。Davidsonら⁷⁾によれば、大気泡が層内を上昇すると気泡上部の粒子は気泡側面方向に押され、その後下降することが確認されている。従って、この大



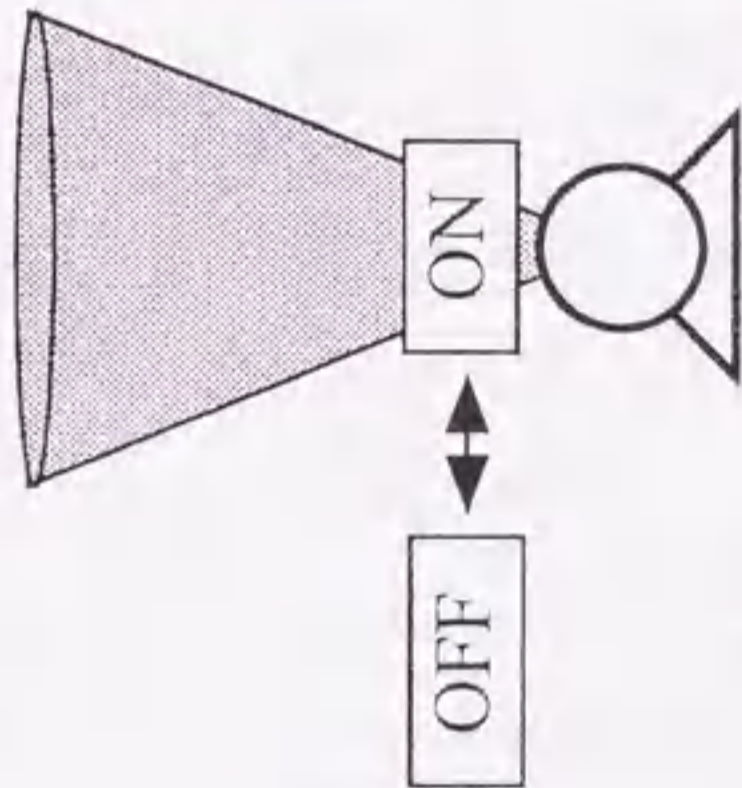
Flow



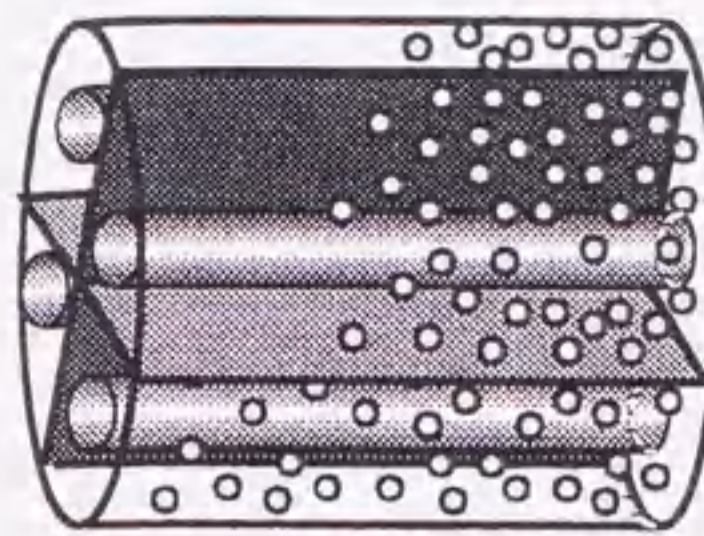
(a) one heat transfer tube
in one bed



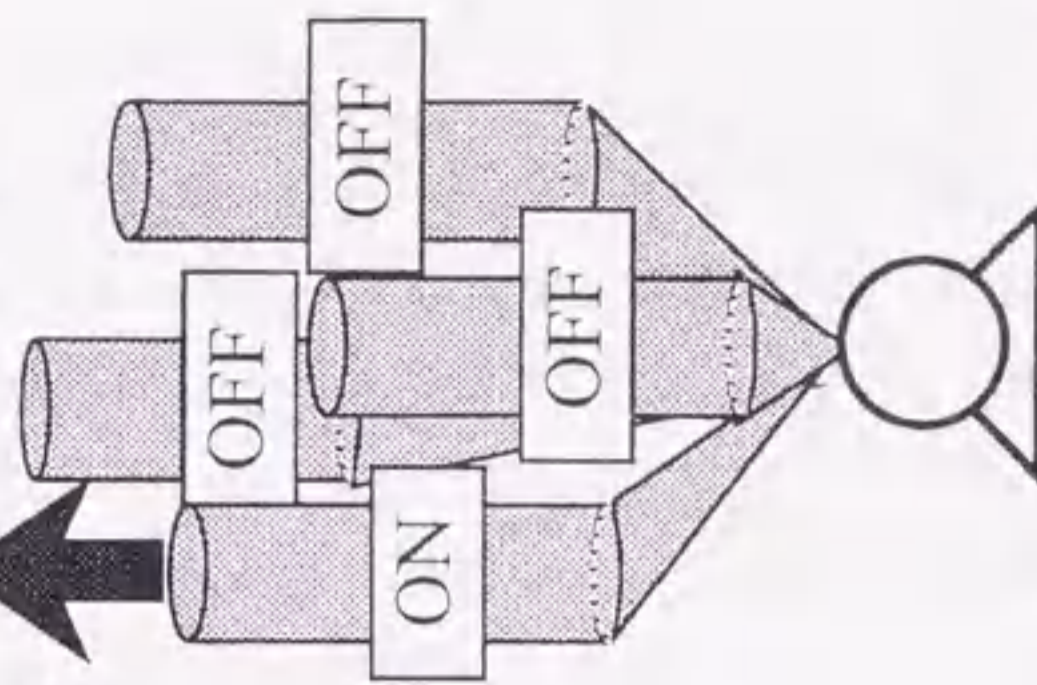
Flow



(b) multi heat transfer tube
in one bed



Flow



(c) multi heat transfer tube
in multi bed

Fig.4-1 Conceptual drawing of utilization of the
pulsated fluidized bed as a heat exchanger system

気泡流動化により伝熱面近傍の粒子更新ならびに層内粒子の大循環が誘発され伝熱促進につながると考えられるが、これまでの報告では検討されていない。

筆者らは、本多層多伝熱管型システムの構築を目指し、この一層を模擬したパルス流動層コールドモデルを試作した。第 1、2 章で述べたように、パルス周期、初期粒子層高、空気流速などを変化させて流動特性を検討したところ、空気閉止期間に十分高い静止層が形成される断続的流動条件下において、パルス流動層に特徴的な大気泡流動が起こりやすくなることを確認した。第 3 章では、空気閉止期間の短いパルス周期と比べ空気閉止期間に層全体で静止層が形成される長いパルス周期で運転することが、大気泡流動を起こし、層内横方向粒子混合を促すことを明らかにした。

そこで本章では、伝熱促進につながると考えられる大気泡流動状態が形成される操作条件を中心に、種々の流動粒子を用いてパルス流動層の伝熱特性を調べた。第 1、2 章と同一のパルス流動層試験装置を用い、内挿ヒーターを通电加熱したホットモデルにおいて、伝熱係数を測定した。得られたパルス流動層の伝熱結果を連続的に空気を供給する通常の流動層の結果と比較し、さらにホットモデルにおいて得られた気泡特性との相関について検討した。

4-1 実験

Fig. 4-2 に実験装置の概略を、Table 4-1 に実験条件範囲を示す。実験装置は前章までと同一のものを使用した。ライザーは、内径 95 mm、高さ 1000 mm のパイレックスガラス製円筒であり、その中心には外径 43 mm、高さ 960 mm (加熱面長さ 960 mm) のステンレス製ヒーターが挿入してある。ステンレス製ヒーターの下部にはステンレス管と同一外径、高さ 40 mm の円筒耐熱れんがが設置してある。また、上部はステンレス製フランジに溶接され、ステンレス製フランジの周りには断熱材が巻き付けてある。各測定高さ (z) でのヒーター表面温度 ($T_h(z)$) は、各測定点でステンレス管に直径 1 mm 程度の穴を開け、管内側より埋め込んだシース K 熱電対により測定した。層温度 ($T_b(z)$) は、外径 1 mm のシース K 熱電対を装置上部より層中に挿入して測定した。流動化ガスには空気、流動粒子にはガラスビーズ (GB90: 平均粒子径 90 μm 、粒度分布 70~120 μm と、GB340: 平均粒子径 340 μm 、粒度分布 260~450 μm) と銅粒子 (Cu90: 平均粒子径 90 μm 、粒度分布 60~140 μm) を使用した。

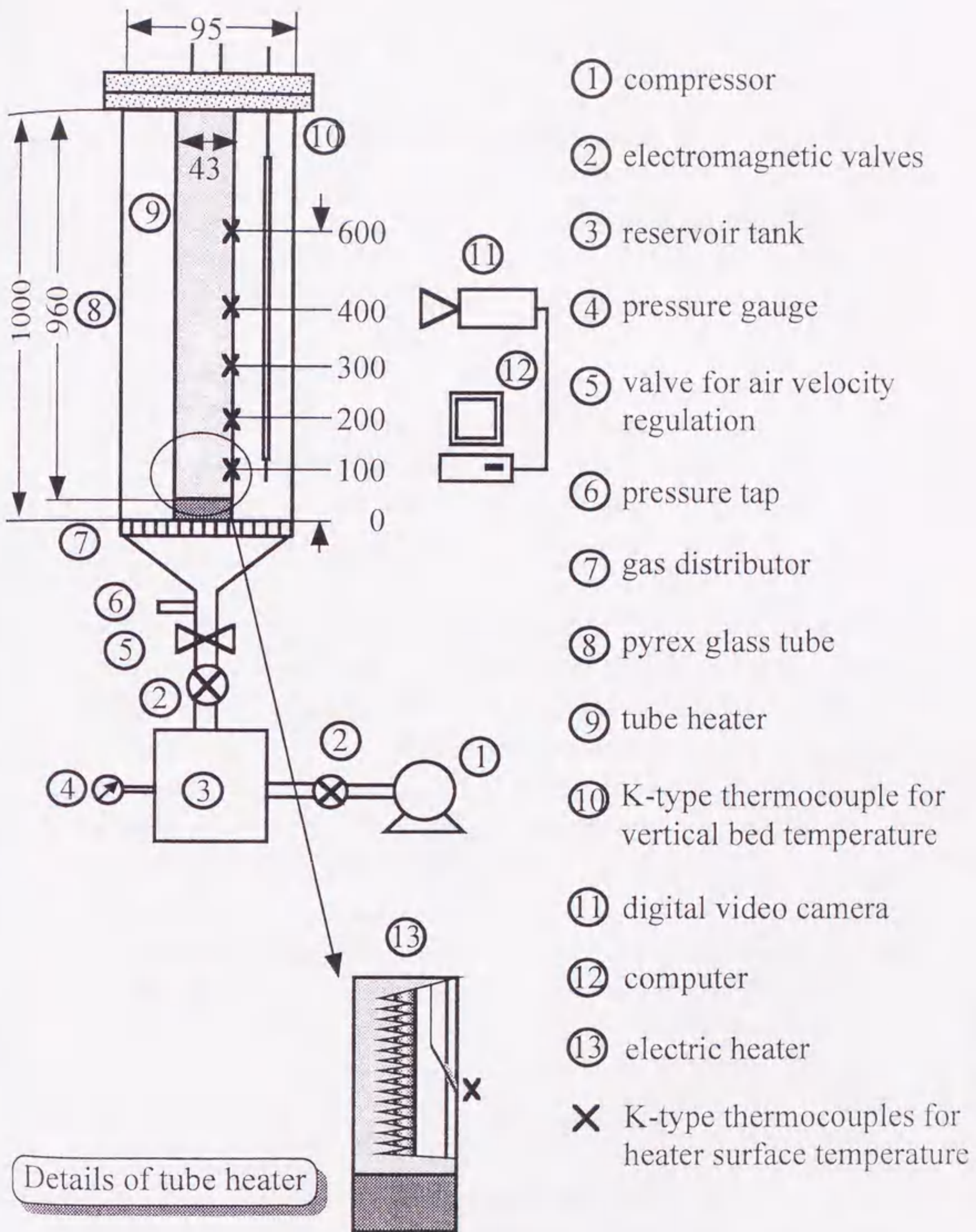


Fig.4-2 Schematic drawing of experimental apparatus

Table 4-1 Experimental conditions

Bed material:	glass beads (GB), copper (Cu)
Density:	2500 kg/m ³ (GB), 8900 kg/m ³ (Cu)
50% cumulative mean size:	90, 340 μm (GB), 90 μm (Cu)
Initial bed height (H_i):	700 mm
Fluidization gas:	air
Initial temperature:	room temperature
Pulsating operation:	
On-period duration (t_{on}):	0.5, 1.0 sec
Off-period duration (t_{off}):	0.5~4.0 sec

実験は、ライザー内へ所定量の流動粒子を充填し、パルス周期、流入速度の制御された空気を流入させる。内挿ヒーターに所定電力 (Q) 154 W を投入し、定常状態を確認後、分散板上 100、200、300、400 及び 600 mm の高さで $T_h(z)$ と $T_b(z)$ を測定する。本研究では、まず、パルス流動層特有の気泡挙動が粒子運動に伴う顕熱移動に及ぼす影響を検証することを目的とした。そこで、 $T_h(z)$ は 373 K 以下になるように Q を設定し、系全体の伝熱過程に及ぼす輻射の影響を少なくした。温度計測は約 0.1 sec 間隔で 1 分間行った。その際、本実験条件下では、各測定点で 3~4 K の温度変動が見られたが、それはパルス周期に対応した変動ではなく、また通常の流動層でも同程度の温度変動幅が確認された。そこで、 $T_h(z)$ と $T_b(z)$ は、計測時間あたりの算術平均とした。下記式 (1) より局所伝熱係数 (h_{local}) を算出し、その算術平均をヒーター一面基準の伝熱係数 (h_{ave}) とした。

$$h_{local} = \frac{Q}{A_h(T_h(z) - T_b(z))} \quad (1)$$

なお、内挿ヒーターの上部と底部には断熱が施してあるため、ヒーター表面より粒子層へ供給される熱の大部分は水平方向に流れると考えられる。装置全体の熱収支を考えると、装置上方から系外へのガス顕熱損失はあるものの、本伝熱実験測定

範囲の後流に位置し、その放熱が h_{ave} の絶対値としての信頼性に及ぼす影響は小さいと考える。

伝熱実験と併せて、ホットモデルにおける気泡特性を第 1、2 章と同様な方法で調べた。

4-2 結果及び考察

4-2-1 最小流動化速度

Fig. 4-3 に、 $H_i = 700$ mm、 $Q = 154$ W、 $t_{on} = 1.0$ sec 一定における、異なる t_{off} での最小流動化速度を示す。本図には、Fig. 4-1 にて提案した本システムのホットモデルにおける流動特性の基礎データとして、多層多伝熱管型システム基準の最小流動化速度 ($u_{mf,cycle}$) と、流動化空気の流入される層の断面積・空気流入時間基準の最小流動化速度 ($u_{mf,on}$) を示した。本実験装置は単層単伝熱管形状ではあるが、多層多伝熱管型システムへの展開を考慮し、多層多伝熱管型システムの単層での評価を模擬して $u_{mf,cycle}$ についても整理した。 $u_{mf,cycle}$ は空気流入期間に供給した空気量を層断面積と 1 パルス周期 (t_{on} と t_{off} の和) で除した空気流速 u_{cycle} 基準の最小流動化速度であり、また、 $u_{mf,on}$ は前章で使用した u_{on} 基準の最小流動化速度である。なお、本図では、 $u_{mf,cycle}$ 、 $u_{mf,on}$ とともに空気を連続供給する通常の流動層の場合 ($t_{off} = 0$ sec) の最小流動化速度 (u_{mf}) で規格化し、 $u_{mf,cycle}$ 、 $u_{mf,on}$ の大きく異なる粒子種間での比較のための指標とした。また目視観察から、GB90、GB340、Cu90 の t_s は、 t_{off} によらず、それぞれ約 2.0、1.0、1.0 sec となりコールドモデル時と同一であった。

本図から、前章までに示したコールドモデルでの結果と同様に、いずれの粒子についても、 t_s まで t_{off} の増加と共に $u_{mf,on}/u_{mf}$ は大きく増加することが確認できる。これは、前章で述べたように、 t_{off} の増加と共に空気閉止期間に形成される静止部分層高さが増大し、空気流入開始時に粒子層から受ける抗力が増すためである。また、 t_s 以上の t_{off} においては、空気閉止期間中に層全体に静止層が形成されるため、ほぼ一定の $u_{mf,on}/u_{mf}$ が得られた。

$u_{mf,cycle}/u_{mf}$ について、Cu90 では 1 を大きく上回る値を示したが、GB90 と GB340 では t_{off} によらず 1 を下回る値が得られた。この結果は、GB90 と GB340 については、通常の流動層では流動化できない低流速において流動状態が得られることを示している。一方、Cu90 については、 $u_{mf,cycle}/u_{mf}$ は 1 を越えている。 $u_{mf,cycle}$ についても上述

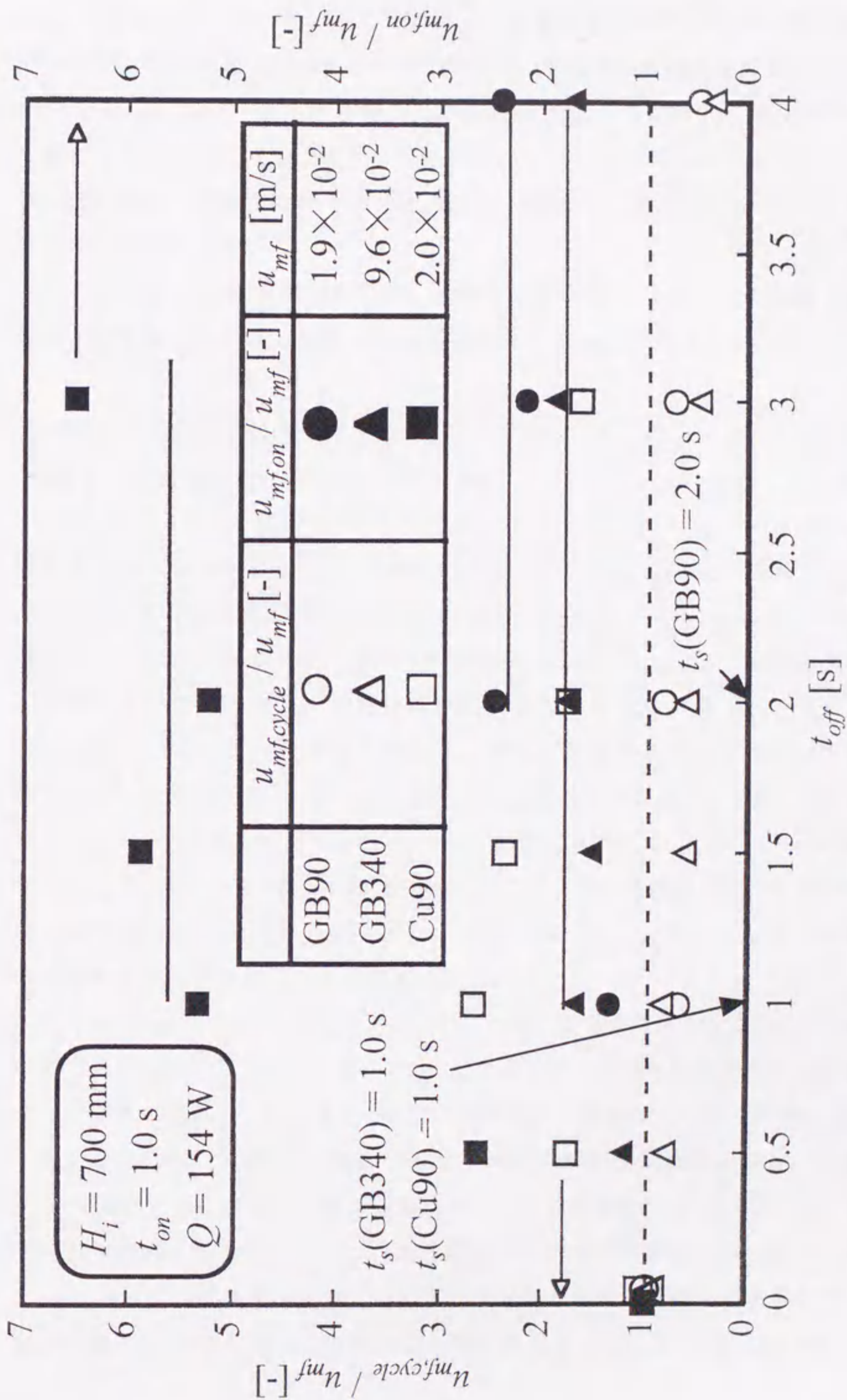


Fig.4-3 Relation between off-period duration and minimum fluidization air velocity for different particles

の t_{off} の増加に伴う静止部分層高さの増大の影響を受けるが、Cu90の密度は 8900 kg/m^3 と、GB90、GB340の 2500 kg/m^3 に比べて高く、静止層の慣性力も大きい。併せてCu90は粒子径も小さく、壁との摩擦のため付着性によっても静止層の慣性力は増加すると推察される。従って、Cu90では静止層が流入空気に対し抗力としてより大きく働き、その結果、流動化に要する空気流速は、GB90とGB340に比べてCu90の方が大きくなったと考える。

なお、以後の伝熱実験の結果は、多層多伝熱管型システムへの展開を考慮し、多層多伝熱管型システムの単層での評価を模擬した u_{cycle} で整理した。

4-2-2 各粒子のパルス流動伝熱特性

4-2-2-1 ガラスビーズ (平均粒子径 $90 \mu\text{m}$)

Figs. 4-4、4-5に、GB90、 $H_t = 700 \text{ mm}$ 、 $Q = 154 \text{ W}$ 、各 t_{off} における h_{ave} と u_{cycle} の関係を t_{on} が 1.0 sec と 0.5 sec の場合について示す。 u_{cycle} は u_{mf} で規格化した。なお、本実験装置の供給空気流量の制限から、長い t_{off} 条件では高 u_{cycle}/u_{mf} での伝熱結果は得られていない。両図より、パルス流動層の h_{ave} は、 u_{cycle}/u_{mf} の増加と共に低流速でまず緩やかに増加した後急激な直線的増加傾向を示し、高流速では再び緩やかな増加に推移している。この変化挙動は、空気を連続的に供給する通常の流動層に類似している。また、各 t_{off} における最小の h_{ave} が得られた u_{cycle}/u_{mf} は、Fig. 4-3に示した $u_{mf,cycle}/u_{mf}$ と一致しており、 $t_{on} = 1.0 \text{ sec}$ では $t_{off} \geq 1.0 \text{ sec}$ 、 $t_{on} = 0.5 \text{ sec}$ の場合には $t_{off} \geq 1.5 \text{ sec}$ において1未満の値となった。これより、連続的にガスを流入する通常の流動層では流動化できない低流速において、本パルス流動層多層多伝熱管型システムは伝熱の優位性を持つことが確認された。

ここで、Figs. 4-4、4-5の条件下における t_s は、目視観察から t_{on} によらずほぼ 2.0 sec であった。従って、 $t_{off} < 2.0 \text{ sec}$ では t_{off} の増加と共に空気閉止期間に形成される静止部分層高さが増大し、 $t_{off} \geq 2.0 \text{ sec}$ では空気閉止を開始してから 2.0 sec 以降は層全体が静止層となり、一般に伝熱に不利と考えられる状況が形成される。しかし、両図から $t_{off} \geq 2.0 \text{ sec}$ においても良伝熱性を示すことが確認できる。そこで、Fig. 4-4と同一条件において、 $D_{b,ave}$ の1パルス周期あたりの経時変化を調べた。一例として、 $u_{cycle}/u_{mf} = 1.8$ の結果をFig. 4-6に示す。図中の破線は、空気を連続供給する通常の流動層の場合における層内平均気泡径の時間平均値 ($D_{b,ave,f}$) である。本図から、パル

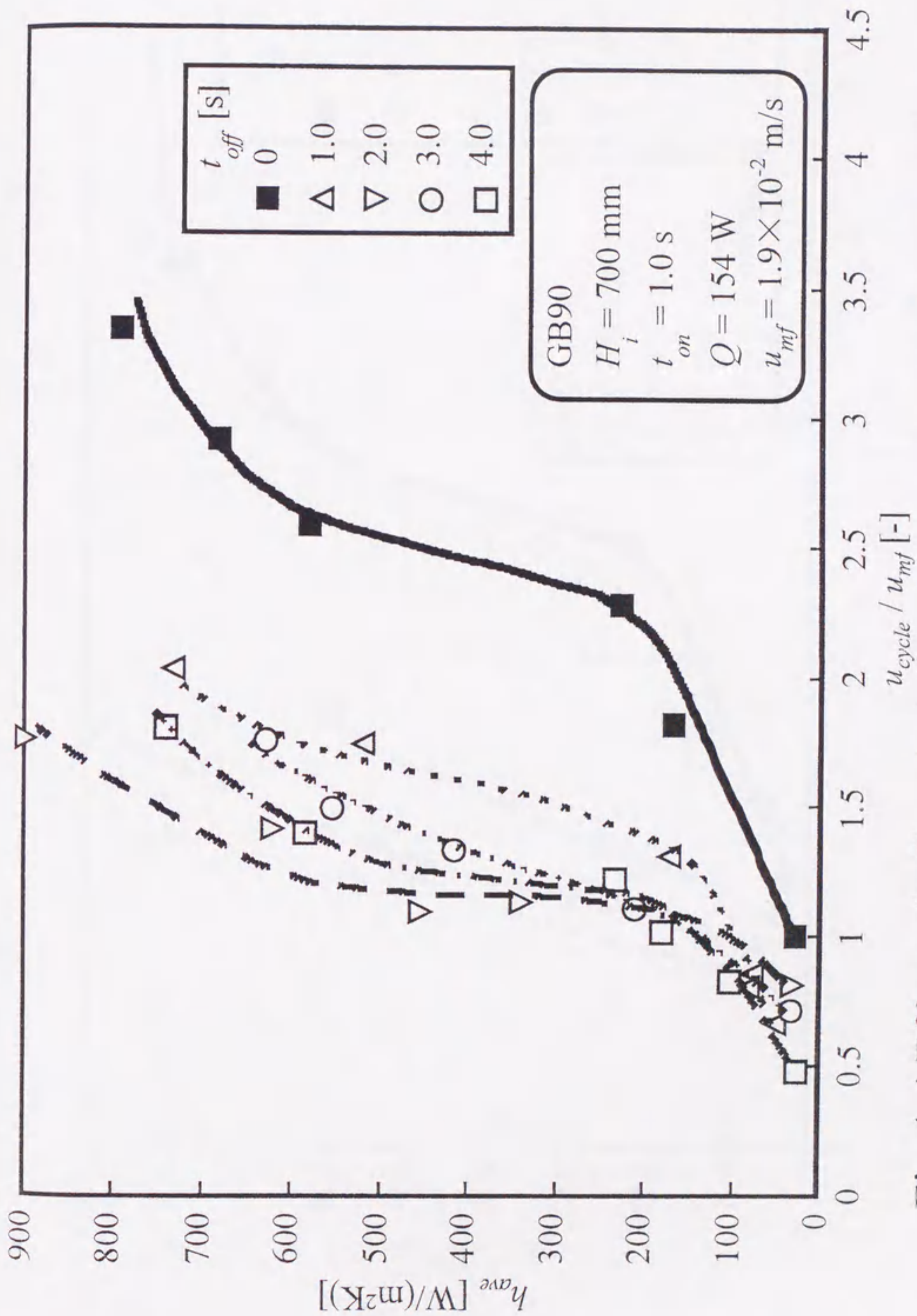


Fig.4-4 Effect of off-period duration on average heat transfer coefficient for GB90 ($t_{on} = 1.0$ s)

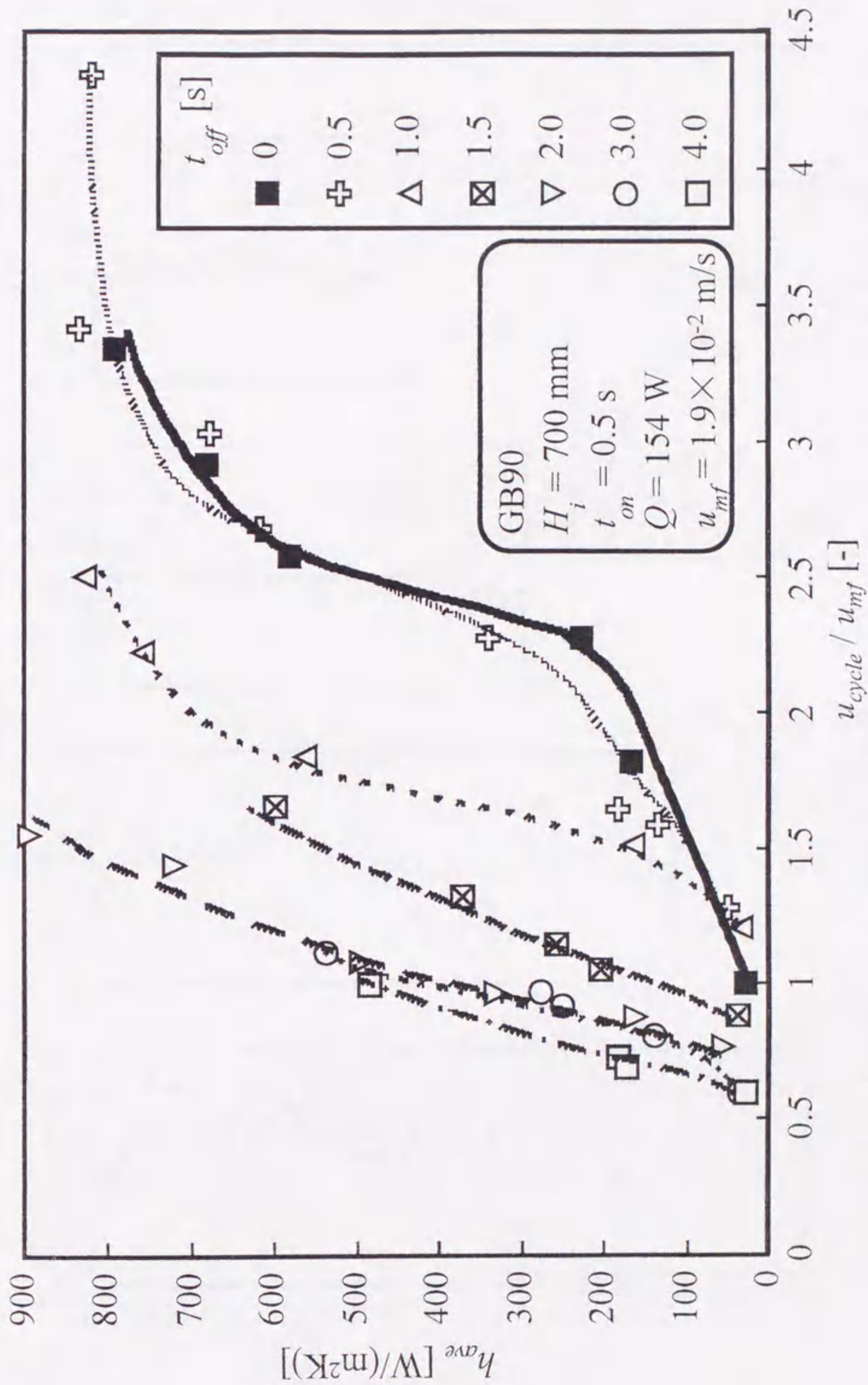


Fig.4-5 Effect of off-period duration on average heat transfer coefficient for GB90 ($t_{on} = 0.5$ s)

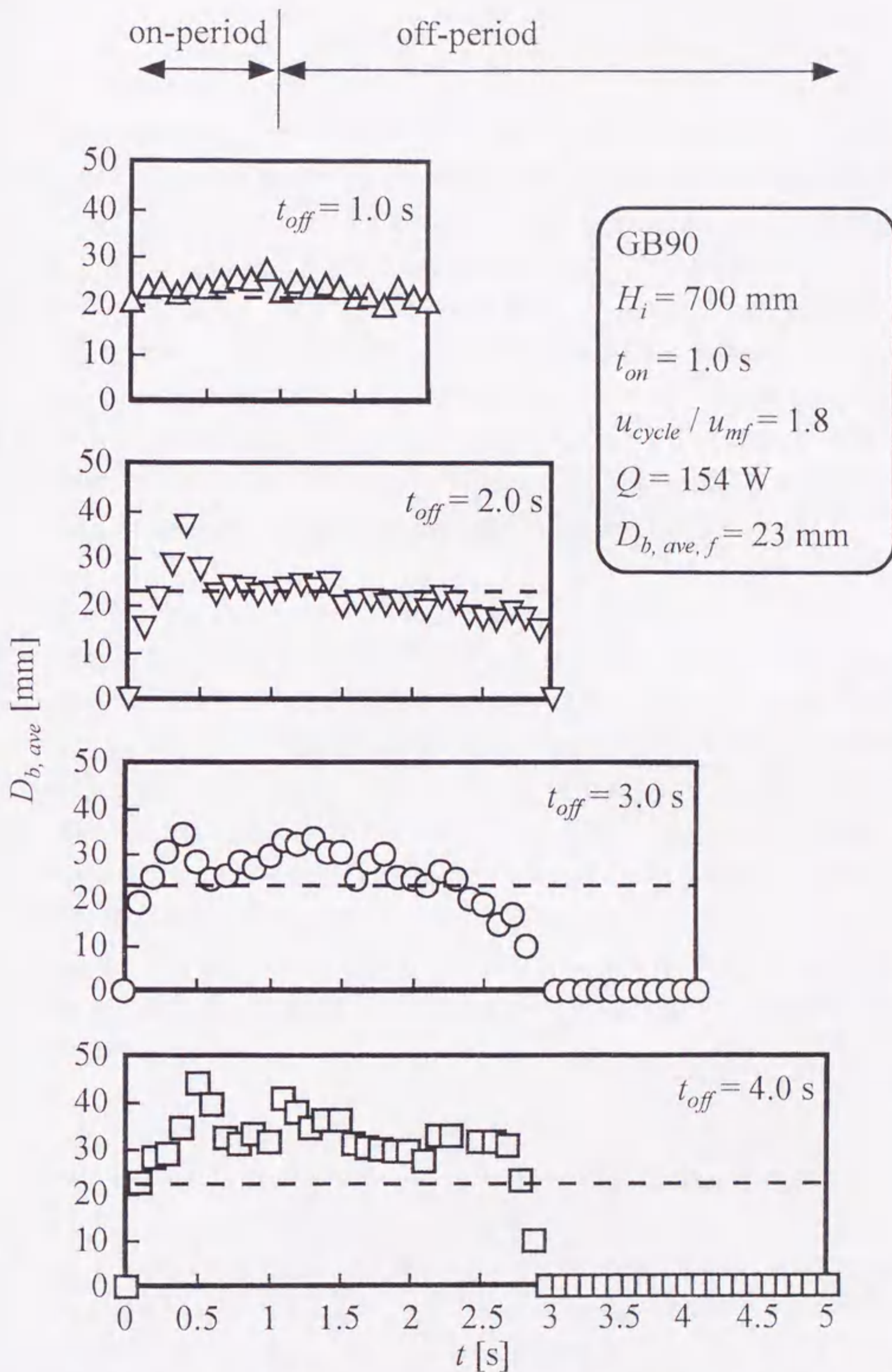


Fig. 4-6 Change in average bubble size during pulse cycle under different off-period duration for GB90

ス操作により $D_{b,ave,f}$ よりも大きな $D_{b,ave}$ が得られることが分かる。 $t_{off} = 1.0 \text{ sec}$ では $D_{b,ave,f}$ に比べて僅かながら $D_{b,ave}$ は増加し、空気閉止期間に層全体で静止層が形成される $t_{off} \geq 2.0 \text{ sec}$ では、空気流入開始直後に大きな気泡が形成された。この大気泡は、第 2 章のコールドモデルにおける観察結果と同様に、空気閉止期間に形成された静止層のリフトを伴うことが目視により確認できた。さらに $t_{off} = 3.0, 4.0 \text{ sec}$ のような長い t_{off} では、パルス周期の大半において空気を連続供給した場合よりも $D_{b,ave}$ は大きく、また t_{off} の増加と共に $D_{b,ave}$ は増加する傾向にある。この大気泡の生成と緒言で示した Davidson ら⁷⁾ の示した大気泡周辺の粒子流動により、粒子と伝熱面との接触頻度及び層内粒子混合が促進され、空気閉止期間に層全体で静止層が形成される $t_{off} = 3.0, 4.0 \text{ sec}$ においても高い伝熱性能が得られたと考える。

4-2-2-2 ガラスビーズ (平均粒子径 340 μm)

Figs. 4-7, 4-8 に、GB340、 $H_i = 700 \text{ mm}$ 、 $Q = 154 \text{ W}$ での各 t_{off} における h_{ave} と u_{cycle}/u_{mf} の関係を、 t_{on} が 1.0 sec と 0.5 sec の場合について示す。両図から、GB90 と同様に、 h_{ave} は u_{cycle}/u_{mf} に対して通常の流動層に類似した変化挙動を示すことが分かる。また、目視観察から本条件での t_s は 1.0 sec であるが、やはり t_s を越える長い t_{off} においても良伝熱性が確認された。両図に示した t_{on} と t_{off} の全ての条件において $u_{cycle}/u_{mf} < 1$ より h_{ave} は立ち上がりを見せ、連続的にガスを流入する通常の流動層では流動化状態が得られない低流速における優位性が示された。Fig. 4-9 に示した Fig. 4-7 と同一条件、 $u_{cycle}/u_{mf} = 1.2$ における $D_{b,ave}$ の 1 パルス周期あたりの経時変化から、GB90 と同様に t_{off} の増加により $D_{b,ave}$ が増加することが確認でき、大気泡流動化による伝熱促進が得られたと考えられる。

4-2-2-3 銅粒子 (平均粒子径 90 μm)

Fig. 4-10 に、Cu90 で $H_i = 700 \text{ mm}$ 、 $Q = 154 \text{ W}$ 、 $t_{on} = 1.0 \text{ sec}$ 、 $t_{off} = 0 \sim 3.0 \text{ sec}$ における h_{ave} と u_{cycle}/u_{mf} の関係を示す。ここで用いた Cu90 について、大気泡生成の指標となる Keairns の判定式¹¹⁾ から計算したスラッシング静止層高は GB340 と同程度であり、目視観察からも条件によっては GB90 や GB340 と同程度の大気泡の生成が確認された。しかし、Fig. 4-3 に示した通り、Cu90 の $u_{mf,cycle}/u_{mf}$ は大きく 1 を越え、これから予測される通り $u_{cycle}/u_{mf} < 1$ での h_{ave} の立ち上がりは認められなかった。また、

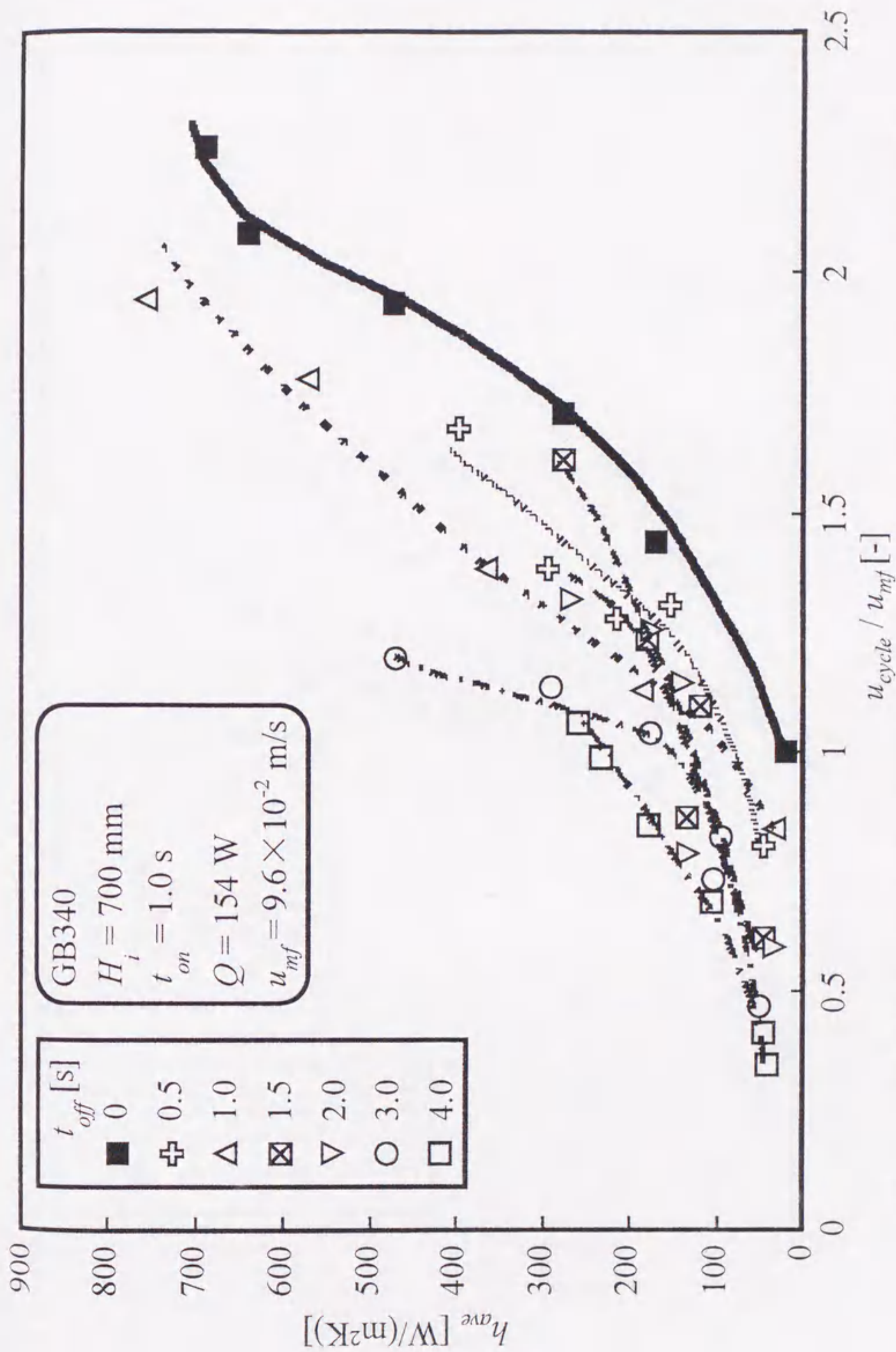


Fig.4-7 Effect of off-period duration on average heat transfer coefficient for GB340 ($t_{on} = 1.0$ s)

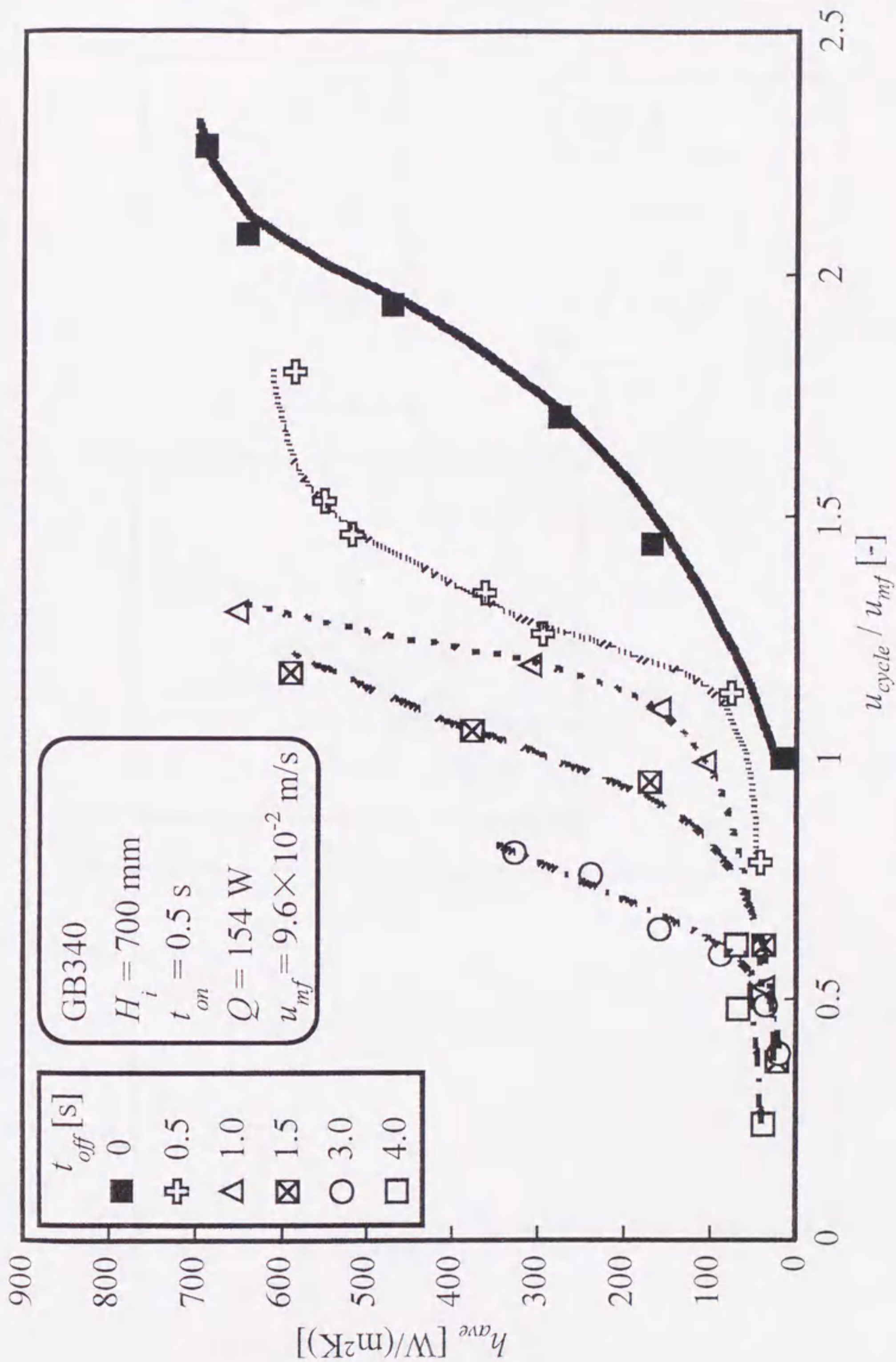


Fig.4-8 Effect of off-period duration on average heat transfer coefficient for GB340 ($t_{on} = 0.5$ s)

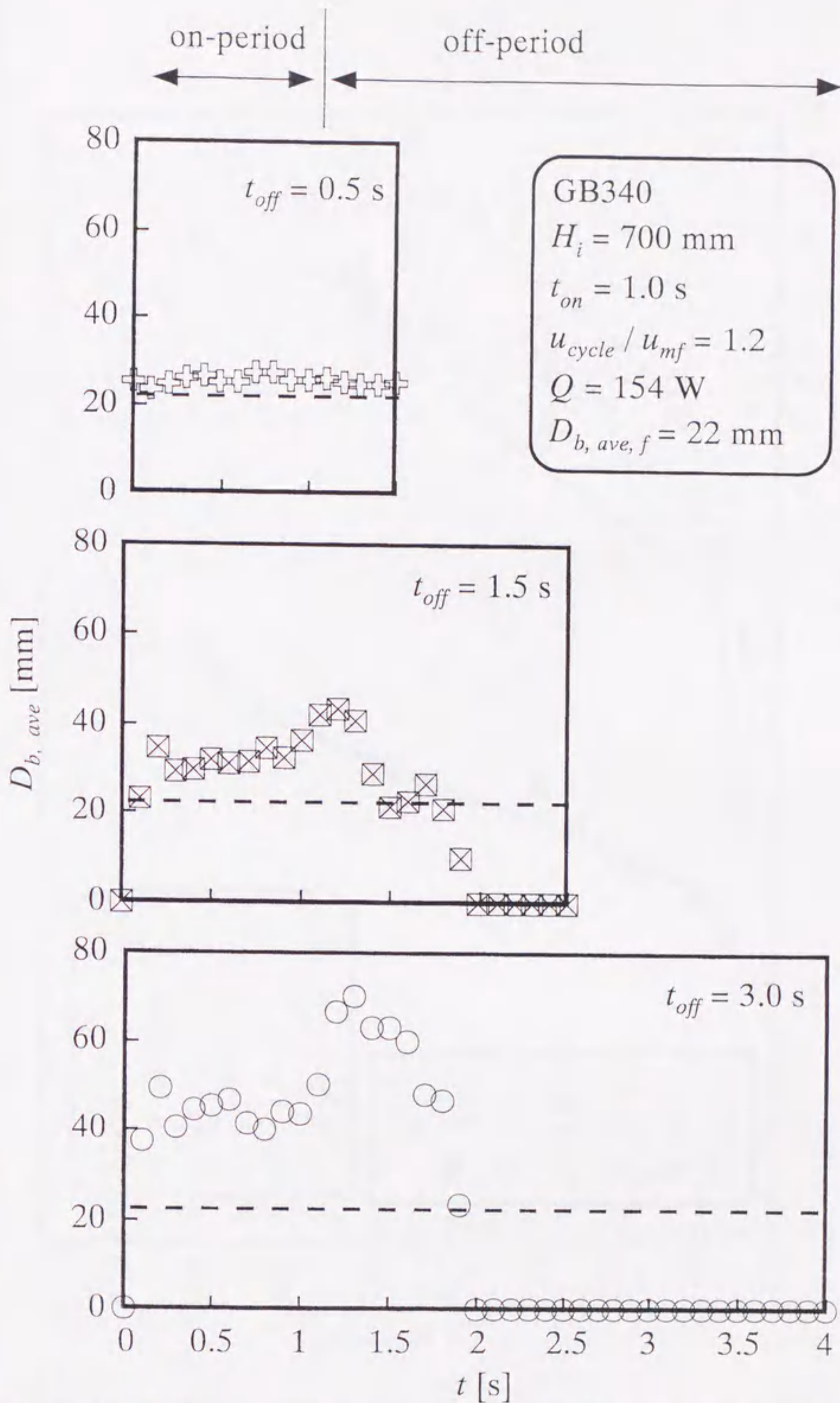


Fig. 4-9 Change in average bubble size during pulse cycle under different off-period duration for GB340

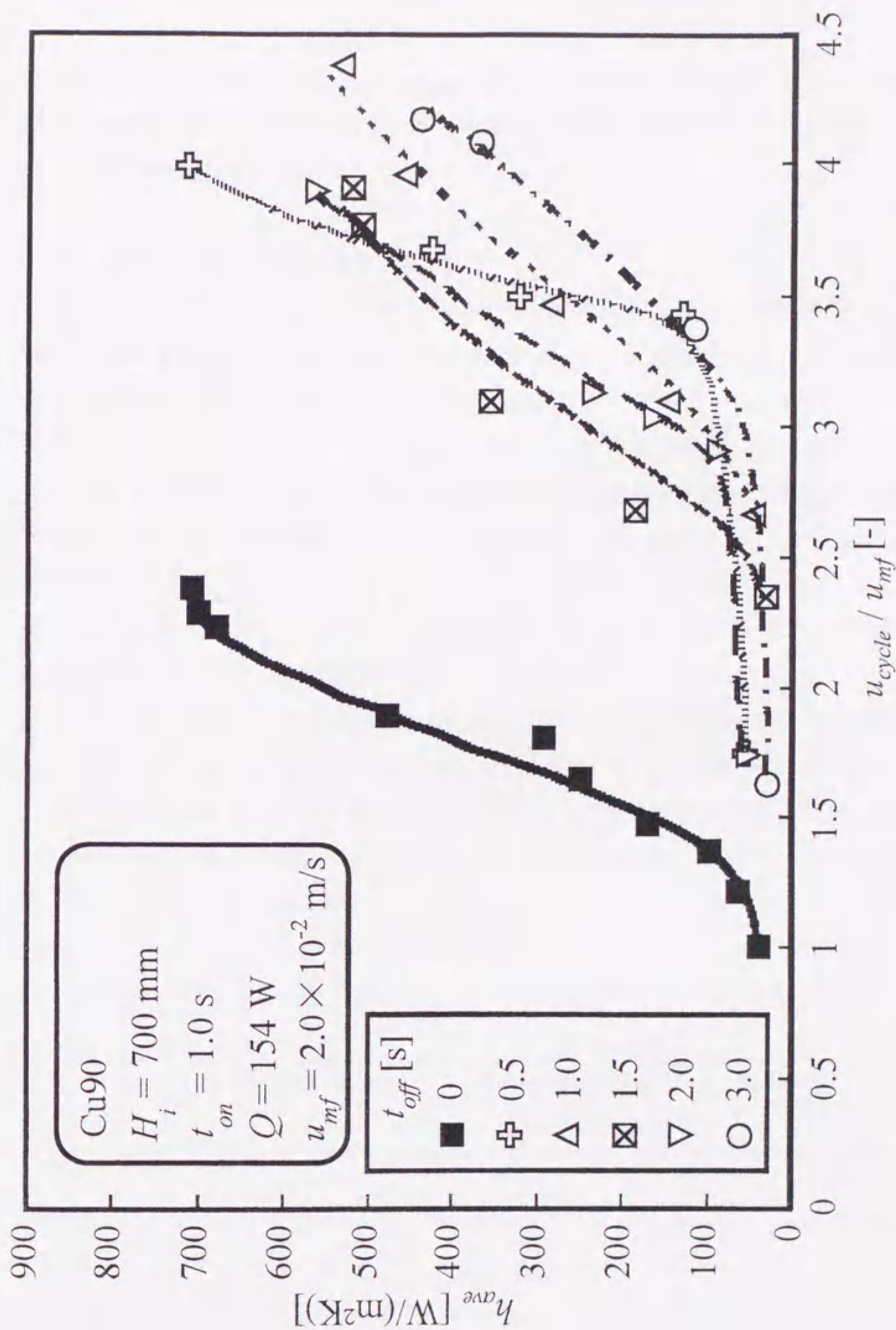


Fig.4-10 Effect of off-period duration on average heat transfer coefficient for Cu90 ($t_{on} = 1.0 \text{ s}$)

本実験条件範囲では、一定の u_{cycle}/u_{mf} においてパルス流動層の h_{ave} が空気を連続供給する通常の流動層の場合のそれを越えることはなく、Cu90 ではパルス操作による伝熱の優位性は得られなかった。

4-2-3 最適空気閉止期間の検討

パルス流動層では、 t_{off} の増加により大気泡流動状態となり、流動粒子によっては通常の流動層に比べて伝熱の優位性が得られた。 t_{off} の増加は、空気閉止期間に形成される静止部分層高さを増加させるため Keairns の判定式¹¹⁾ から推測できる通り大気泡が得られやすくなり、Davidson ら⁷⁾ の示した大気泡周辺の粒子流動により伝熱が促進される。その一方で、大気泡の生成により通常の流動層の場合よりも良伝熱性が得られた GB90 と GB340 に関して、Figs. 4-4、4-5 から GB90 では $t_{off} \geq 2.0$ sec、Figs. 4-7、4-8 から GB340 では $t_{off} \geq 3.0$ sec において、 t_{off} の増加に対する h_{ave} 曲線の低 u_{cycle}/u_{mf} 側へのシフトは頭打ちになる傾向が見られる。良伝熱性が認められなかった Cu90 については、 h_{ave} 曲線は $t_{off} \geq 1.5$ sec では高 u_{cycle}/u_{mf} 側へシフトしている。このような伝熱性向上鈍化傾向は、 t_{off} の増加による静止層状態持続時間の増加のために得られたと考えられる。このような伝熱促進傾向から伝熱性向上鈍化傾向へ推移する際の境界となる t_{off} が、本実験条件範囲でのパルス流動層多層多伝熱管型システムの最大熱交換効率を与えると考えられる。Table 4-2 に、本実験にて得られた各種条件下での最適 t_{off} を示す。

Table 4-2 Optimum length of off-period duration under this experimental condition

	on-period duration (t_{on})	optimum length of off-period duration (t_{off})
GB90	0.5 sec	2.0 sec
GB90	1.0 sec	2.0 sec
GB340	0.5 sec	3.0 sec
GB340	1.0 sec	3.0 sec
Cu90	1.0 sec	1.5 sec

なお、本実験条件範囲では $T_b(z)$ は最大で 373 K と低く、伝熱モードの異なる高温レベルにおいては、上述の最大熱交換効率を与える t_{off} 操作条件のみならず他のパルス流動層操作条件に流動粒子の熱物性値が大きく影響を及ぼすと考えられ、今後これに関する基礎的試料の充足が必要と考える。

4-2-4 既往研究との比較

最後に、本研究で得られた結果を既往のパルス流動層の伝熱データと比較検討する。Fig. 4-11 に、本実験条件範囲下で良好な伝熱結果が得られた GB90 と GB340 それぞれの最適 t_{off} における h_{ave} と、過去に提出されたデータを総括した。比較対象として、本実験と類似した条件下において、ヒーター垂直内挿型装置を用いてヒーター・粒子層間伝熱係数を測定した Kobayashi ら¹²⁾、Bhattacharya - Harrison²⁾の結果を呈示し、併せて Table 4-3 に各研究の実験条件をまとめた。

Table 4-3 Experimental conditions for several studies

References	Bed material	50% cumulative mean size	Pulse cycle (t_{on} , t_{off})
This study	glass beads	90 μm (GB90)	1.0 sec, 2.0 sec
This study	glass beads	340 μm (GB340)	1.0 sec, 3.0 sec
Kobayashi et al. ¹²⁾	glass beads	138 μm (GB138)	0.5 sec, 0.5 sec
Kobayashi et al. ¹²⁾	glass beads	301 μm (GB301)	0.25 sec, 0.75 sec
Bhattacharya and Harrison ²⁾	sand	225 μm (Sand225)	0.25 sec, 0.25 sec

パルス流動層のデータ (PB) と対比して、各研究で得られた通常の流動層の場合の結果も併せて Fig. 4-11 に示し、図中色付記号 (FB) で表した。なお既往研究に関して、パルス周期は、各々で最も良い伝熱結果が報告されていたものを選んだ。

本図から、通常の流動層での結果に対するパルス操作による低 u_{cycle}/u_{mf} 側への h_{ave} 曲線のシフトについて、Kobayashi ら¹²⁾ の GB301 での結果を除いて、本実験結果は既往データよりもシフト幅は大きく、パルス流動層の伝熱性能向上が得られたと考

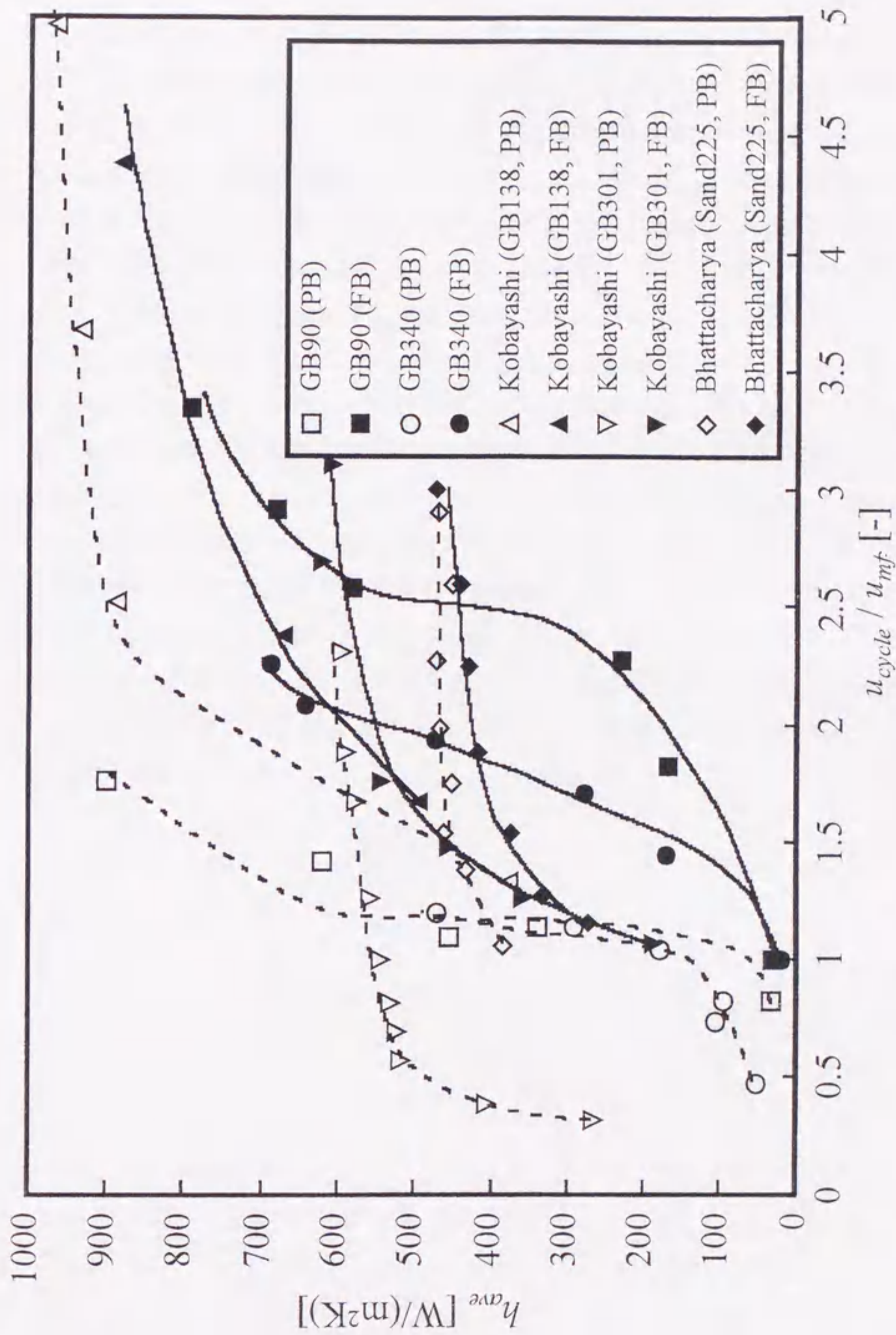


Fig.4-11 Comparison of heat transfer coefficient between this study and other studies

える。既往研究のパルス周期は 1.0 sec 以下と短いことから、 t_{off} を長く設定することによる大気泡流動状態の形成がパルス流動層の伝熱性能向上に効果的であることが分かる。これは、短パルス周期運転により形成される振動流動状態に起因する粒子-粒子間及び粒子-伝熱壁間の接触頻度増加よりも、ガス流、特に気泡流れを積極的に利用した大気泡流動状態に起因する対流及び粒子-伝熱壁間の接触頻度の増加の方が、伝熱促進効果が高いためであると考えられる。Kobayashi ら¹²⁾ の GB301 での結果については、その時の流動状態に関する記述がなされていないので正確には分かり得ないが、 t_{on} に対する t_{off} の比が 3 と大きいことから、本実験の長い t_{off} 条件のようにガス流入時に粒子層からの抗力を受けやすい状態が形成され、パルス周期は短いながらも、本実験と類似した粒子挙動が起きているのではないかと推察される。なお、同一装置を用いた Kobayashi ら¹²⁾ の GB138 での結果については、GB301 での結果と比べパルス操作によるシフト幅の減少傾向が伺え、Kobayashi ら¹²⁾ によると、さらに粒子径を小さくするとパルス流動層の優位性が得られていないとも報告されていることから、小粒子への適応性は低いと考えられる。一方、本装置に関しては、GB90 と GB340 の 2 種類の検討ではあるものの、いずれの粒子についても $u_{cycle}/u_{mf} < 1$ での h_{ave} の立ち上がり及び大きなシフト幅が見られ、広範な粒子径への適応の可能性が示唆されていると考える。

結言

パルス流動層の伝熱特性に及ぼすパルス周期ならびに粒子性状の影響を検討し、併せてビデオカメラにより気泡挙動を観察した。パルス流動層の h_{ave} の u_{cycle}/u_{mf} に対する変化挙動は、空気を連続的に供給する通常の流動層に類似していた。GB90、GB340 に関して、 t_{off} 条件によっては 1 未満の u_{cycle}/u_{mf} において流動化ならびに h_{ave} の立ち上がりが認められ、通常の流動層では流動化できない空気流速において、パルス操作による伝熱性向上が示された。空気閉止期間に層全体で静止層が形成される長い t_{off} 条件において、空気を連続供給する場合に比べ大気泡流動化に起因する良伝熱性が得られた。過度の t_{off} 増加は静止層状態持続時間の増加のため伝熱性向上鈍化傾向を示すことが実験的に明らかとなり、パルス流動層伝熱に対する最適条件の存在が示された。

Nomenclature

A	= cross sectional area of riser	[m ²]
A_h	= heater surface area	[m ²]
$D_{b,ave}$	= average bubble size	[mm]
$D_{b,ave,f}$	= average bubble size with time for normal fluidized bed	[mm]
h_{ave}	= average heat transfer coefficient between heater and bed	[W/(m ² K)]
h_{local}	= local heat transfer coefficient between heater and bed	[W/(m ² K)]
H_i	= initial bed height	[mm]
Q	= heat input	[W]
t	= lapse time after starting to inject fluidization air into bed	[s]
t_{off}	= off-period duration without injecting fluidization air	[s]
t_{on}	= on-period duration with injecting fluidization air	[s]
t_s	= bubble transit time through bed	[s]
$T_b(z)$	= bed temperature	[K]
$T_h(z)$	= heater surface temperature	[K]
u_{cycle}	= superficial mean air velocity based on single pulse cycle duration	[m/s]
u_{mf}	= minimum fluidization air velocity for normal fluidized bed	[m/s]
$u_{mf,cycle}$	= minimum fluidization air velocity based on single pulse cycle duration	[m/s]
$u_{mf,on}$	= minimum fluidization air velocity based on on-period duration in pulse cycle	[m/s]
z	= temperature measuring point	[mm]

Literature cited

- 1) Belik, L : *Chem. Eng. Tech.*, 32, 253 (1960)
- 2) Bhattacharya, S. C. and D. Harrison : *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, 54, 281 (1976)
- 3) Bock, H. J., J. Schweinzer and O. Molerus : *Ger. Chem. Eng.*, 6, 301 (1983)
- 4) Bokun, I. A. and S. S. Zabrodskii : A. V. Lykov, ed., *Nauka i Tekhnika*, 27 (1966)
- 5) Borodulya, V. A., V. L. Ganzha and A. I. Podberezsky : *Int. J. Haet. Mass. Trans.*, 26, 1577 (1983)
- 6) Bretsnajder, S., M. Jazczak and W. Pasiuk : *Ind. Chem. Eng.*, 3, 496 (1963)
- 7) Davidson, J. F. and D. Harrison : *Chem. Eng. Sci.*, 21, 731 (1966)
- 8) Gelperin, N. I., V. G. Ainshtein and L. A. Korotyanskaya : *Int. Chem. Eng.*, 9, 137 (1969)
- 9) Grewal, N. S. and S. C. Saxena : *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.*, 22, 367 (1983)
- 10) Himeji, Y. and M. Kumada : *Proc. of 34 th National Heat Transfer Symposium of Japan*, 767 (1997)
- 11) Keairns, D. L. : *Annual Report submitted to Office of Coal Research*, US Dept. of Int., OCR Contract No. 14-32-0001-1514 (1973)
- 12) Kobayashi, M., D. Ramaswami and W. T. Brazelton : *Chem. Eng. Progr. Symp. Ser.*, 105, 58 (1970)
- 13) Martin, H. : *Chem. Eng. Comm.*, 13, 1 (1981)
- 14) Mitkevich, E. M. : *J. App. Chem. of the USSR.*, 33, 1253 (1960)
- 15) Zabrodskii, S. S. and I. A. Bokun : A. V. Lykov, ed., *Nauka i Tekhnika*, 135 (1966)

終章

1 本研究で得られた成果

本研究では、各種プロセスに広く利用されている流動層技術について、プラントの処理能力、エネルギー効率を決定する粒子混合性能ならびに伝熱性能の向上を図るため、粒子層へのガスの流入、閉止を周期的に繰り返し行うパルス流動層について取り上げ、実験的に検討した。

既往研究においては、パルス周期の長さ及びガス流入、閉止期間の組み合わせ方や初期粒子層高を大きく変化させた場合の流動特性、伝熱特性に関する知見、ならびに気泡特性、粒子混合特性に関する検討が不足している。そこで、パルス流動層装置設計の基礎的指針を得るため、実験条件を広範にとり、流動、伝熱、粒子混合特性について装置工学的検討を行った。まず、基礎的な流動特性を把握するため、実験条件範囲、特に最重要操作因子であるパルス周期や、装置ホールドアップの際の検討項目になる初期粒子層高を大きく変化させて、定常操作時の下限条件である最小流動化速度、ならびに層圧力損失について検討した。さらに、その際に明らかとなったパルス流動層に特有の断続的流動条件を中心に、先述の諸特性について、それらに直接的に寄与する気泡挙動の解明を基に検討を行い、本パルス操作による流動層の性能向上を検証した。

以上、本論文は、装置開発及び装置工学上重要と考えられる諸問題を4章にまとめたものである。以下に各章で得られた成果を概説する。

第1章では、パルス流動層の粒子流動特性を明らかにすることを目的として、ヒーター内挿型二重管式パルス流動層可視化装置を試作し、内挿ヒーターを通电加熱しないコールドモデルで検討を行った。パルス周期と平均空気流速、及び初期粒子層高をパラメーターとして、層圧力損失の経時変化の計測を行うと共に、ビデオカメラによる流動状態の観察を行った。その結果、以下のことが明らかとなった。

- 1) 本システムにおける粒子流動特性は、空気閉止期間における静止層形成の影響を大きく受ける。静止層は、気泡の層通過時間以上で空気閉止期間を操作した場合に層全体で形成され、それにより高い最小流動化速度、層圧力損失がもたらされる。
- 2) 初期粒子層高を増加させると、空気閉止期間に形成される静止層部分層高さが増

大することにより、各パルス周期について、パルス流動層の最大圧力損失 P_{max} は通常の流動層の定常運転時における理論圧力損失 Wg/A より大きな値をとるようになる。

以上の知見から、パルス流動層の流動特性は主に空気閉止期間と初期粒子層高によって支配され、空気閉止期間を気泡の層通過時間以上の長さに設定して運転すると、パルス流動層に特有な空気閉止期間に層全体で静止層が形成される断続的流動状態になることを示した。また、その他の章の結果も踏まえると、本実験条件下において、気泡の層通過時間は、平均空気流速、空気流入期間ならびに空気閉止期間の大きさに影響されず、初期粒子層高及び粒子種によって決まる。

第 2 章では、第 1 章と同一装置、コールドモデルにて、断続的流動下におけるパルス流動層の気泡特性に及ぼす操作条件の影響を調べた。その結果、以下のことが明らかとなった。

- 1) 層全体に形成された静止層への空気の流入は、通常の気泡流動化または静止層リフトを伴う大気泡生成のいずれかを起こす。
- 2) 無次元空気流速 $u_{an}/u_{mf,an,str}$ や初期粒子層高の増加により、通常の気泡流動化から静止層リフトを伴う大気泡流動に移行する。
- 3) 粒子径の減少から推察される粒子付着性の増加により、低 $u_{an}/u_{mf,an,str}$ においてパルス流動層に特徴的な静止層リフトを伴う大気泡流動が起こる。
- 4) 静止層リフトを伴う大気泡流動状態は、気泡径、層頂水位及び圧力損失の経時変化により良く記述できる。

これから総じて、断続的流動状態において、空気流速及び初期粒子層高の増加ならびに粒子径の減少に伴い、静止層のリフトを伴う特異な大気泡流動が起こることを示した。静止層のリフトを伴う大気泡流動状態では、層底部における大気泡生成、分裂、再合一が観察され、優れた粒子混合性が示唆された。

第 3 章では、伝熱特性に大きく寄与する横方向粒子混合と気泡特性との関係を明らかにすることを目的として、気泡ならびに粒子の挙動追跡を精度よく行うため新たに二次元コールドモデル可視化装置を試作し、ビデオカメラによる流動状態の観察を行った。空気閉止期間を変化させて、気泡数と気泡サイズを測定し、また、空気閉止期間に層全体で静止層が形成される場合、されない場合の二種類の空気閉止期間の場合についてトレーサー粒子濃度変化を測定、比較した。その結果、以下のことが明らかとなった。

1) 層全体で静止層が形成される空気閉止期間の場合には、層全体で静止層が形成されない場合と比べて、気泡の増大化に伴い最大気泡数は減少する。特に層底部において気泡径の増大化傾向が強くと認められ、気泡径の増大に伴い横方向粒子混合度は増加する。

上記知見より、空気閉止期間に層全体で静止層が形成されるパルス周期で運転することは層底部での大気泡生成をもたらす、この大気泡の層内流通が横方向粒子混合促進に効果的であることが示された。

第4章では、パルス流動層の特性を踏まえた新システム（多層多伝熱管型システム）を提案し、そのシステムの単層基準での評価を模擬した検討を行った。第1章、第2章で用いたパルス流動層可視化装置にて、内挿ヒーターを通電加熱したホットモデルで、伝熱特性に及ぼすパルスサイクルならびに粒子性状の影響を検討した。また、併せてビデオカメラにより気泡挙動を観察し、伝熱特性との相関を調べた。その結果、以下のことが明らかとなった。

1) パルス流動層におけるヒーター面基準の伝熱係数 h_{ave} について、無次元空気流速 u_{cycle}/u_{mf} に対する変化挙動は、空気を連続的に供給する通常の流動層に類似する。

2) 流動粒子、空気閉止期間の条件によっては、1未満の u_{cycle}/u_{mf} において流動化ならびに h_{ave} の立ち上がりが認められ、空気を連続的に供給する通常の流動層では流動化できない空気流速において、パルス操作により伝熱性が向上する。

3) 空気閉止期間に層全体で静止層が形成される長い空気閉止期間条件において、空気を連続供給する通常の流動層の場合に比べ大気泡流動化に起因する良伝熱性が得られる。

4) 過度の空気閉止期間増加は、静止層状態持続時間の増加のため伝熱性向上鈍化傾向を示す。そのため、パルス流動層伝熱に対する最適空気閉止期間条件が存在する。

以上より、本システムにおいて、パルス操作による流動層の伝熱性能向上が認められた。特に、パルス操作による伝熱係数の低空気流速側へのシフトは、パルス流動層に関する既往研究の結果を上回る値が認められ、本研究で試みた大気泡流動を伴う長パルス周期での操作が伝熱性能向上に有効であることが明らかとなった。このことから、現在流動層が用いられている熱的操作を伴うプロセスに、本パルス流動層を適用することによるそれらプロセスのエネルギー効率向上の可能性が示唆される。

2 今後の課題

これまでに述べたように、本論文で取り上げたパルス流動層は、特に大気泡流動状態において通常の流動層よりも優れた粒子混合性能ならびに伝熱性能を示す。しかしながら、本装置の実用化開発にあたっては、次のような検討課題が考えられる。

- 1) 第1章で述べたように、空気流入開始直後に通常の流動層の定常運転時の理論圧力損失 Wg/A を越える圧力損失を伴うことから、通常の流動層と比べて送風動力の増加を招くと考えられる。しかしながら、この空気流入開始時の大きな圧力損失と層底部における大気泡生成には相関があるため、トータルでのエネルギー評価に基づく検討が必要である。
- 2) 本実験条件にて優れた粒子混合性能、伝熱性能が示された大気泡流動状態に関して、その制御指標である気泡の層通過時間と空気閉止期間の相関について定量的整理が必要である。また、大気泡生成メカニズムの解明のため、空気流入開始時の静止層と流入空気の関係について、圧力バランス等による微視的な現象解析を要すると考える。
- 3) 気泡挙動に大きく寄与する装置構造に関して、今回は初期粒子層高と装置直径の関係について考慮し、既往の大気泡生成条件判定式に基づいて条件設定した。しかしながら、気泡挙動に影響するその他の因子として、層内での気泡の合体や分裂に影響する内挿物形状や、層底部における生成気泡径に直接影響する分散板形状が挙げられ、これらについて今後様々な検討がなされるべきと考える。
- 4) 本研究で提案した多層多伝熱管型システムの開発のためには、単層での詳細な検討がさらに必要である。具体的には、上述した装置構造に関する各種パラメータのみならず、ガス物性や粒子物性が今回取り上げた流動、伝熱、粒子混合特性に及ぼす影響について定量的、総括的検討が必要である。
- 5) 高効率熱交換器、熱輸送器等への発展利用のためには、高温場での伝熱性能評価が不可欠である。特に、系全体の伝熱における粒子群輻射の影響が極めて大きい1000 K以上の温度条件下において、本パルス流動層特有の大気泡流動が伝熱性能向上に効果的か検証を要する。
- 6) 本パルス流動層の各種プロセスへの適用性の確認として、具体的には、層内に熱交換用伝熱管を配置する乾燥装置や流動層燃焼器での実証試験が望まれる。本研究

においては、これらプロセスへの適応性を示す知見として、低空気流速での良伝熱性や大気泡流動状態における粒子混合促進が確認されており、序章の流動層開発の課題の中で挙げた、乾燥プロセスにおけるエネルギー効率の向上や必要ガス量の低減、及び燃焼プロセスにおけるガスと粒子の接触率向上による燃焼むらの改善に効果を発揮することが期待される。

流動層技術は、20世紀に大きな発展を遂げたが、さらなる飛躍が21世紀には期待されている。今後、上記諸課題の解決を経て、新たな流動層技術としてパルス流動層が各種プロセスの発展に貢献することを切に希望する。

論文目録

1. 学術論文

No	論文題目	発表雑誌及び発表年月	筆者
1	パルス流動層の流動特性 に及ぼすパルスサイクル ならびに粒子層高の影響	化学工学論文集 25 巻, pp. 395-399 (1999)	西村 顕、出口清一 松田仁樹、架谷昌信 Arun S. Mujumdar
2	パルス流動層の断続的 流動下における気泡特性	化学工学論文集 26 巻, (2000) (印刷中)	西村 顕、出口清一 松田仁樹、架谷昌信 Arun S. Mujumdar
3	パルス流動層の伝熱特性 と気泡特性との相関	化学工学論文集 (掲載決定)	西村 顕、出口清一 松田仁樹、架谷昌信 Arun S. Mujumdar
4	Relation between Bubble Behavior and Lateral Particle Mixing in Two-Dimensional Pulsated Fluidized Bed	Journal of Chemical Engineering of Japan (投稿中)	西村 顕、星野博司 小林敬幸、架谷昌信

論文目録

2. 国際会議

No	論文題目	発表雑誌及び発表年月	筆者
1	Hydrodynamics and Heat Transfer Characteristics in a Pulsated Fluidized Bed as a Heat Exchanger	6 th China-Japan Symposium on Fluidization (Beijing, P.R. China) pp. 69-74 (1997)	西村 顕、出口清一 松田仁樹、架谷昌信 Arun S. Mujumdar
2	Solid Flow Patterns and Heat Transfer Characteristics in a Pulsated Fluidized Bed with Flowing Large Bubbles	11 th International Heat Transfer Conference (Kyongju, Korea) Vol. 4, pp. 485-490 (1998)	西村 顕、出口清一 松田仁樹、架谷昌信 Arun S. Mujumdar
3	Effects of Particle Properties on Hydrodynamic Behaviors and Heat Transfer Characteristics in Pulsated Fluidized Bed	8 th Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering (Seoul, Korea) Vol. 3, pp. 1741-1744 (1999)	西村 顕、出口清一 松田仁樹、小林敬幸 架谷昌信 Arun S. Mujumdar

謝辞

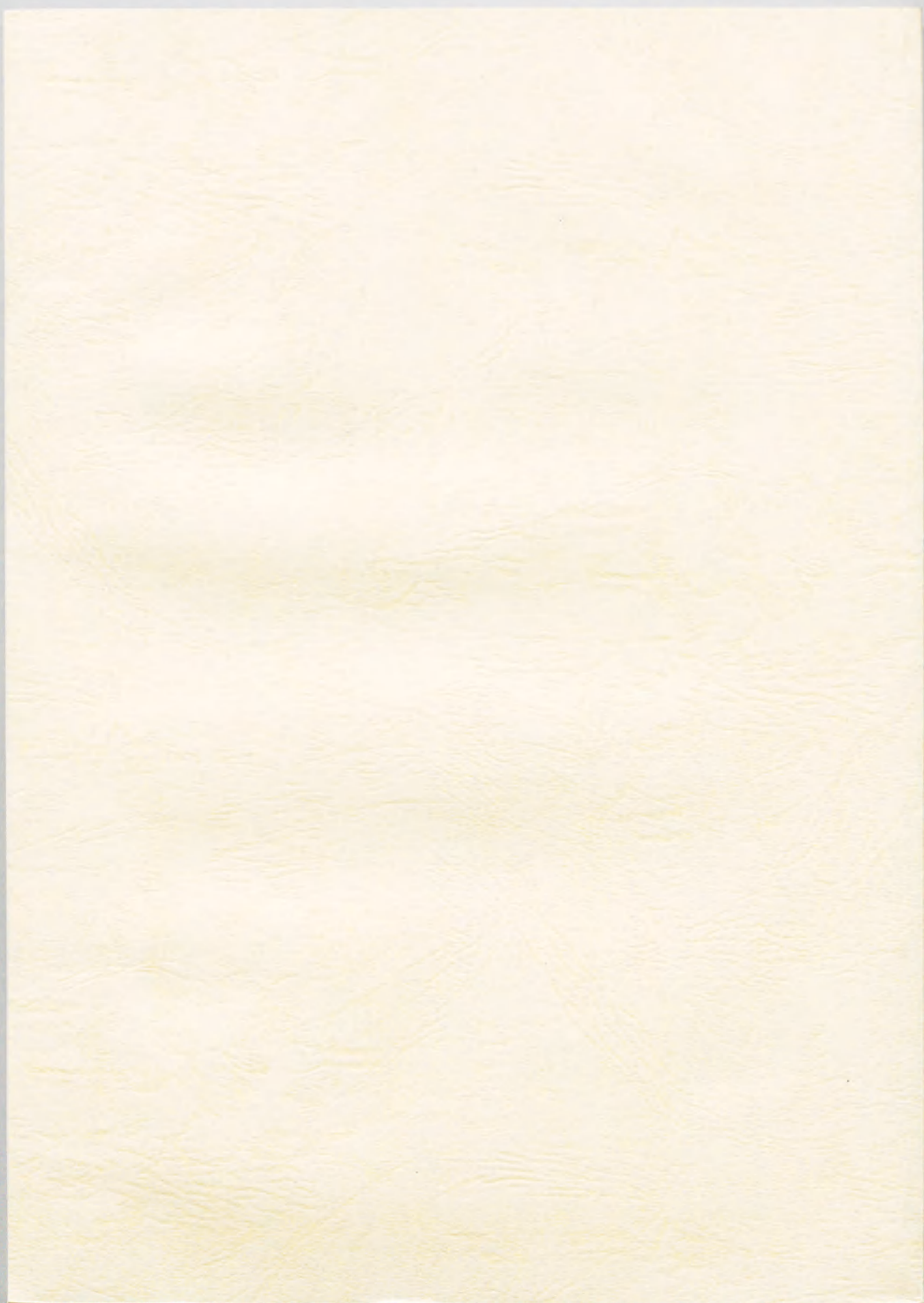
本研究は、名古屋大学大学院工学研究科エネルギー理工学専攻 架谷昌信教授の御指導のもとに行われたものであります。架谷昌信教授には終始一貫して懇切、丁寧な御指導を賜りました。ここに衷心より深く御礼申し上げます。

本論文を作成するにあたり、名古屋大学難処理人工物研究センター 松田仁樹教授、名古屋大学大学院工学研究科エネルギー理工学専攻 久木田豊教授ならびに名古屋大学大学院工学研究科エネルギー理工学専攻 小林敬幸助教授には有益な御示唆、御助言を賜りました。ここに厚く御礼申し上げます。名古屋大学理工科学総合研究センター 出口清一先生には、本研究の全般にわたり親身なる御指導下さいました。謹んで御礼申し上げます。

なお、本研究を遂行するにあたり、McGill 大学化学工学科 Arun S. Mujumdar 教授、名古屋大学大学院工学研究科エネルギー理工学専攻 渡辺藤雄先生、名古屋大学大学院工学研究科分子化学工学専攻 板谷義紀助教授ならびに諸先生方には、日頃より有益な御教示をいただきました。ここに、謹んで御礼申し上げます。

末筆となりましたが、本研究に直接協力、援助していただきました星野博司氏をはじめとする名古屋大学大学院工学研究科エネルギー理工学専攻第3講座、及び名古屋大学大学院工学研究科分子化学工学専攻 E7 講座の卒業生、在校生の皆様には厚く御礼申し上げます。

2000年
西村 顕



inches 1 2 3 4 5 6 7 8
cm 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19

Kodak Color Control Patches

© Kodak, 2007 TM: Kodak



Kodak Gray Scale



© Kodak, 2007 TM: Kodak

A 1 2 3 4 5 6 **M** 8 9 10 11 12 13 14 15 **B** 17 18 19

