

図・本館

CFM層型固気接触装置の粒子流動特性と
燃焼装置への応用に関する研究

名古屋大学図書	
和	1030364

成 瀬 一 郎

目次

ページ

序 章

1. 各種固気接触装置の特性	1
2. 固気接触装置の石炭燃焼操作への応用	6
3. 本研究の目的と内容	10
Literature cited	13

第1章 C F M層型固気接触装置内流動の基本特性に関する2次元コールドモデル実験

緒 言	15
1・1 実験装置および方法	15
1・2 使用固体粒子	17
1・3 実験結果および考察	19
1・3・1 内管部および環状部粒子流動状態	19
1・3・2 内管部粒子流動特性	20
1・3・3 内管部および環状部粒子速度分布	24
1・3・4 装置内での粒子の滞留時間	27
結 言	30
Nomenclature	31
Literature cited	33

第2章 C F M層2次元コールドモデル内の粒子流動特性に及ぼす粒子見かけ密度の影響

緒 言	34
2・1 実験装置および方法	34
2・2 実験結果および考察	36
2・2・1 内管部粒子流動状態	36
2・2・2 装置内粒子速度分布	42

2・2・3	装置内粒子滞留時間に及ぼす粒子見かけ密度の影響	45
結 言		45
	Nomenclature	47
	Literature cited	48

第3章 CFM層型固気接触装置の3次元コールドモデルにおける内管部粒子流動特性

緒 言		49
3・1	実験装置および方法	49
3・2	実験結果および考察	52
3・2・1	内管部粒子流動状態	52
3・2・2	内管部粒子流動の安定操作の下限条件	54
3・2・3	内管部軸方向圧力損失分布	56
3・2・4	内管部粒子ホールドアップと内部粒子循環効果	58
結 言		60
	Nomenclature	62
	Literature cited	63

第4章 熱循環式CFM層型石炭燃焼装置の燃焼特性

緒 言		64
4・1	実験装置および方法	66
4・2	使用固体燃料	68
4・3	実験結果および考察	70
4・3・1	流体力学的下限条件： $\bar{u}_{gl, min}$	70
4・3・2	安定過濃燃焼限界	70
4・3・3	安定希薄燃焼限界	75
結 言		79
	Nomenclature	80
	Literature cited	81

第5章 熱天秤による固体燃料の燃焼速度測定ならびにその評価

緒言	82
5・1 実験装置および方法	83
5・2 実験結果の解析	85
5・3 実験結果および考察	85
5・3・1 試料ホルダーの材質・形状ならびに保護管の材質の影響	85
5・3・2 導入ガス流量の影響	87
5・3・3 非等温燃焼実験における昇温速度の影響	88
5・3・4 試料充填量の影響	89
5・3・5 試料粒径の影響	91
5・4 得られた燃焼速度データの評価	91
結言	95
Nomenclature	96
Literature cited	97

第6章 高速流動層内の粒子・流体間伝熱特性

緒言	98
6・1 実験装置ならびに方法	98
6・2 粒子・流体間伝熱係数の解析方法	101
6・3 実験結果および考察	103
6・3・1 ライザー内温度分布	103
6・3・2 局所伝熱係数	106
6・3・3 平均伝熱係数	108
結言	110
Nomenclature	111
Literature cited	113

終章	114
----	-----

謝辞、論文および国際会議目録

序 章

1. 各種固気接触装置の特性

固気接触装置は、現在の化学工業における単位操作として必要かつ欠くべからざるプロセスとなっており、その使用目的もFCC（流動接触分解）プロセスなどの触媒反応操作あるいは微粉炭ボイラーをはじめとする燃焼反応操作などの化学反応装置から、流動層を用いた乾燥操作、移動層を利用した吸着操作などの物質移動操作まで、様々な単位操作に適用されている。また、近年では、ファインセラミックスのような多機能高付加価値製品を流動層または気流層型の固気接触装置で製造するプロセス¹⁾あるいは半導体製造用の多結晶シリコンの製造プロセス¹⁾に至るまで、よりファインな領域における固気接触装置の開発研究が行われ始めた。換言すれば、来る固気接触装置は、温度あるいは流動方式の制御性の精度が要求されるようになってきた。

現在までに、各種固気接触装置が提案、実用化されており、これらの総合的な分類は、装置の構造形式に基づく分類（充填層、移動層、流動層、希薄輸送層、攪拌層、その他）²⁾などがなされている。しかし、固気接触装置のハンドリングの立場から考察する場合には、装置内に占める固体の割合を指標として分類する方法も有効である。

まず、固体（粒子）の割合が最も大きいものは、粒径にも依存するが充填層である。充填層を用いた用途例は、アンモニア合成³⁾、ナフサ接触改質反応⁴⁾などの固体触媒を媒体としてガスを生成物とするタイプ、現在開発中である固気化学反応を利用した高温用ケミカルヒートポンプ⁵⁾のような固体自身が反応するものあるいは熱交換、蓄熱を目的とする熱風炉、蓄熱室などが挙げられる。

充填層方式の固気接触装置は、後述する各装置に比べ、数多くの実用化された例（とりわけ触媒反応操作）を有する。この理由は、装置構造が簡素であること、粒子の流動がないことにより摩耗がなく装置寿命が長いこと、粒子のハンドリングが容易であること、また、反応工学的立場から鑑みればガス滞留時間が見積り易く装置設計が容易であることなど、主として装置安定性が良好であることに起因している。しかし、同時に様々な短所も有している。1つは、

充填層の粒子物性に起因する層内の伝熱条件の問題である。触媒反応操作において、発熱を伴う反応例は多く、層内でのホットスポットの発生による触媒劣化あるいは装置の損傷などの危険性がある。現在では、層内への伝熱管の設置あるいは2重管構造などにより対処しているが、今後の伝熱促進技術のブレイクスルーが待たれる。つぎに挙げられるのは固体粒子のファイン化に伴う粒子ハンドリング上の問題である。ナノメートルオーダの触媒が開発され、直観的には装置サイズのコンパクト化が期待できるのであるが、粒子の付着力の増大による凝集効果によって閉塞現象が生じる可能性がある。もちろん、これに対してはハニカム担体への触媒担持により実用化されているのであるが、装置容量の増大はやむおえず、この点に関し、サブミクロン粒子をハンドリングする他の装置の研究開発¹⁾も活発である。

上述した充填層型装置は、粒子は不動であることから、固体を生成物とする場合、バッチプロセス以外は固体処理能力の点で劣っている。つまり、処理能力の観点からみれば、充填層と同様な固体濃度を有し、しかも連続処理が可能である固気接触装置、移動層型固気接触装置⁶⁾が有効となる。移動層の利点は、粒子が移動することから、充填層より伝熱ならびに物質移動特性が優れている点、粒子の粒度分布にあまり制限がない点、固体粒子の滞留時間が均一に近いことより反応率の分布が少なく装置設計が容易である点、操作性に関し操業開始、終了が短時間で可能である点などが挙げられる。しかし、粒子が移動するため、粒子の粉化や、入口、出口での粒子ハンドリング、粒子の閉塞などに留意する必要がある。

移動層型は、充填層型と異なり、ガスとともに粒子も移動する方式であるので、ガスの流通方向、粒子の移動形態の違いにより様々な形式がある。しかし、総じて、各種移動層型装置の共通点は、粒子を位置エネルギーの高い位置から供給し、低いところから排出している点である。粒子が垂直方向に下降する場合は、ガス流れが粒子流れと同一である並流型、対向する向流型、交差する十字流型に区別される。一方、粒子流れが緩い傾斜のついた部分をほぼ水平方向に流れる方式には、ベルトコンベヤー型、ロータリーキルン型などがあり、この場合には両者とも粒子を移動させるための駆動機器が必要となる。

これらの各種移動方式の固気接触装置は、立型である製鉄用高炉⁷⁾、直接還

元炉⁷⁾、石灰の焼成炉および廃棄物の焼却炉⁸⁾から横型であるロータリーキルンを用いたセメント焼成炉⁹⁾など比較的高温下での反応、焼結（焙焼）操作で実用化されている。近年では、十字流方式を用いた排ガス処理装置¹⁰⁾、集塵装置¹¹⁾なども提案され、研究開発中である。

移動層型の粒子の流動は、ほぼピストン流であることから、固気間の接触時間は装置高さによってある程度制限されてしまうが、流動層型の固気接触装置は、ガス流速と粒子物性（粒子径を含む）を適切に選べばコンパクトな装置でも高い固気接触効果が期待できる。この流動層方式の基本特性の充填層あるいは移動層との相違は、固体粒子に流動性を与え、層内において粒子がほぼ完全混合状態を呈する点にある。この点により、層内温度が容易に均一化できること、熱交換用の層内伝熱管周りの伝熱係数が高いこと、またこれらと関連して、流動層は多量の均一温度の粒子を有し熱容量が大きいことから操作安定性に優れていることなどである。一方、短所としては、粒子が比較的高速で不規則に運動するために、装置の摩耗や粒子の粉化が防止できないこと、流動層から飛び出した粒子がガスに同伴され系外に放出されてしまうこと、さらに高温固気反応の場合、粒子に付着性があると互いに凝集し、分散板、内壁面に付着して流動化を妨げるなどがある。

流動層の概念は、1879年のC. E. Robinsonによる硫化鉍の焙焼技術に関する特許が起源とされている。また、流動層固気接触装置の工業化は、1926年ドイツIG社によるWinklerガス化炉という石炭の原料ガス化装置が最初である。さらに、1942年、The Standard Oil社による軽油を分解してガソリンを製造する流動接触分解（FCC）プロセス¹²⁾によって、流動層技術が注目され、数多くのプロセスに流動層方式が適用されている発端となっている。

現在までに実用化に至っている流動層技術を挙げるのは充填層方式と同様枚挙に暇がないが、主として、FCC¹²⁾、無水マレイン酸合成¹³⁾、アクリロニトリル合成¹⁴⁾などのような触媒反応によりガスを生成物とするプロセスと、石炭流動層燃焼装置のような熱（スチーム）を発生させるプロセスに大別できる。また、この両者を区別する指標は、反応中粒径が変化するか否かであり、粒径が変化する後者のプロセス開発は、コールドモデルでの研究のみでは実機レベルのプロセス内の現象を把握するのは困難であるのが現状である。

流動層の流動化状態を決定する因子は、粒子物性、装置構造ならびに操作条件の3要素であり、それぞれの因子により別々な分類ができる。粒子物性の分類では、平均粒径と粒子・流体の密度差によって流動化状態を分類する Geldart map¹⁵⁾ が広く知られている。最近では、微粒子に分類されるC粒子の中にまた別な流動化を呈する粒子グループが存在する可能性のある研究も見られる¹⁶⁾。装置構造による分類は、大別すれば、分散板を有するような一般的な流動層と噴流層と呼ばれる分散板を有しない単一ノズル構造の方式に分けられる。両者の流動化の典型的な相違は、前者は気泡が存在、後者はガスジェットと粒子の循環運動が生じる点にある。なお、噴流層と類似したものに、ガスノズルが粒子層上部から挿入され、粒子層を流動化させる方式のものが都市ガス燃焼用のラジアントチューブとして開発されている。

最後に、流動層の操作条件（主としてガス流速）について分類する。なお、ここでは、流動化開始速度以上のガス流速条件について考える。一般に、一定層高の粒子層の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化状態を順に呈する。流動層技術が注目を浴びるようになって以来、気泡流動化およびスラッキングの流動状態の研究^{17,18)}は、わが国のみならず各国で数多く研究例がみられる。これらの研究に引続き、現在では、流動層の高速操作¹⁹⁾の分野（濃厚層から希薄層へ）が注目されている。一方、粉体の空気輸送の分野では、粒子流れが見かけ上均一である希薄輸送層の研究^{20,21)}が固気2相流という扱いで行われており、水平管、垂直管、ベンド部分などの粒子運動、圧力損失について実験、解析されている。この分野では、流動層技術とは逆に、希薄輸送層から濃厚輸送層への研究^{22,23,24)}へ傾向しているのが現状である。つまり、ここ10年間において、流動層の高速操作と粉体の空気輸送における濃厚輸送操作との間に接点が生まれ始めた。

乱流流動化あるいは高速流動化状態にさせるような流動層の高速操作の操作条件は、ガス流速で約 $4 \sim 10 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ の領域である。このような操作の利点は、従来型のバブリング状態よりも固気接触が良好、単位断面積当りのガスおよび粒子の処理能力が大きいこと、粒子を高速で流動させるため付着性粒子へもハンドリングが可能なことなどが挙げられる。対して、短所としては、粒子が高速

で移動することによる摩耗の問題、ライザーから飛び出した高濃度の粒子を捕捉するための装置が必要であること、また、粒子を循環させる場合の供給方法の選定の問題（L-バルブ、ニューマチックバルブ）などがあり、現在のところ経験的に開発している部分が多い。

このような流動層の高速操作は、ライザーから飛び出した粒子をサイクロン（あるいはセラミックフィルタ）で捕捉し、再びライザーに供給する循環流動層がおもに実用化に至っており²⁵⁾、その用途は現在のところ石炭燃焼装置のみである。しかし、ガスならびに粒子の処理能力が大きい利点は魅力があり、鉄鉱石の還元²⁶⁾あるいは触媒反応操作のようなプロセスへの適用の研究開発もなされている。

最後に、流動状態が希薄輸送層あるいは噴流層に類似する気流型がある。気流型（以下では噴霧層と呼ぶことにする。）の一般的な形式は、単一ノズルからガス（一般には、液相を伴う場合が多い）と粒子を一緒に噴出させるもので、通常、ナフサの接触分解装置のライザー部²⁷⁾、Texaco式の石炭ガス化炉、微粉炭燃焼炉あるいはスプレードライヤーなどが該当する。噴霧層は、粒子が高速でノズルから飛び出すことから、固気接触が流動層より良好となる。しかし、粒径分布を適当に調整して用いないと大きな搬送動力が必要となること、粒子滞留時間を稼ぐために装置容量が大きくなること、粒子の飛散防止策が重要なことなどの短所も併せ持っている。

以上のように、現在までの基本的な固気接触装置を固体濃度の濃厚なものから希薄な順で分類した。各方式には、様々な長所とともに短所を有していることから、プロセスの操作条件（例えば、原料あるいは生成物の相、温度領域、処理量、制御性）によって装置形式を選択するのが、今後も根本的な指針となる。しかし、装置開発の立場では、1つの装置で比較的応用性に富むものが、多品種少量高付加価値生産という社会的状況では必要となろう。つまり、来る固気接触装置の必須条件は、広範な操作条件に対応が可能であること、制御性が良好であるとともに容易であること、装置スケールがコンパクトであることなどが挙げられる。このような装置の開発のためには、新たな層の発見、あるいは各層の複合化が装置工学の見地から重要となると考えられる。

2. 固気接触装置の石炭燃焼操作への応用

石炭などのような固体燃料の燃焼装置は、急激な発熱反応を伴う固気接触装置である。また、若干の例外を除いて、気体や固体を主たる目的生成物とするものではなく、燃焼過程中に発生する反応熱が重要な目的生成物となる。従って、燃焼装置の基本的な設計概念は、固気接触を良好にし燃焼効率を高め、より多くの燃焼熱を他の媒体に熱交換することである。しかし、現在では、その他に厳しい環境規制とわが国のエネルギー事情の遷移をも考慮する装置でなくてはならない。例えば、それは、燃焼過程で生成される NO_x 、 SO_x および煤塵などの環境汚染物質の抑制、国内炭のみならず海外炭への適用性、オイルあるいは天然ガスと石炭との競合性、エネルギー需要のサイドから生じる燃焼装置の規模の問題である。

このような観点から、燃焼に適用する固気接触方式を選択すると粒子が移動するタイプである移動層、流動層および噴霧層などが妥当である。実際に、わが国でも微粉炭燃焼方式は、電力業界で1000MW級の微粉炭ボイラ²⁹⁾が運開されているとともに、流動層ボイラも産業用ボイラとして化学工業界で数多く使用されている。また、現在電源開発事業団において、電力業務用の50MW流動層ボイラ実証試験研究が継続中である。一方、移動層方式は、流動層、微粉炭焚きに比べ、伝熱係数が低いために、ボイラとしてよりも固体廃棄物の処理装置として利用される例が多い。以上のような現状のもとで、各燃焼方式の長所と短所を列挙し、個々のシステム（あるいはプロセス）の適用性を考察する。

石炭燃焼ボイラとして、現在までに最も広く用いられているものは、噴霧層（気流型）に相当する微粉炭焚きボイラである。一般に、微粉炭ボイラで使用される石炭は、揮発分を比較的多く含む瀝青炭あるいは亜瀝青炭であり、100 μm 以下に粉碎後、乾燥をして使用される。燃焼方式は、1次空気によって、粉碎、乾燥された粒子を搬送し、単一ノズルから炉内へ噴霧させる。空気比の調整は、1次空気ノズルの周りに2次空気ノズルがあり、全空気比として若干過剰に供給される。1000MW級の大規模な微粉炭ボイラでは、このような単一ノズルの集合をコーナーあるいは炉壁中央に配置し、体積負荷を増大させて運転するのが通例である。固気分離は、炉内温度が1500~1700Kに達することから、石炭中に含まれる灰の一部が溶融してできるスラグとして炉底から分離する場合と、使

用粒径が細かいために炉外へ飛び出すフライアッシュの形でバグフィルタにて分離する場合がある。また、ボイラとして機能するための熱交換は、炉壁にある伝熱管と、高温排ガスの熱交換を目的とした過熱器ならびにエコノマイザーによって行われる。

従来の微粉炭ボイラは、環境対策の上で炉本体のほかに脱硫、脱硝および集塵装置を付設しなければならないことから、大規模燃焼装置に適している。このような状況のために近年では、炉内で環境汚染物質を低減させるために後述するような各種の手法が試みられている。炉内脱硝法³⁰⁾には、バーナーに関して、i)バーナー幾何形状、ii)燃焼噴射システム、iii)1次、2次空気比の割合などを細微に変化させ、NOの生成量の変化を検討している。一方、炉の全体構造として、主バーナー燃焼領域の上部に、OFA(Overfire Air)を導入し、2段燃焼を行う方法や、さらにその上に脱硝用の固体燃料を噴霧し還元状況を形成させ脱硝しその上に3段空気を供給する3段燃焼法³⁰⁾なども考案されている。つぎに、炉内脱硫法に関しては、石炭と一緒に脱硫剤である石灰石を同時吹き込みする方法³¹⁾も試みられている。このような各種の炉内低減法が試験されているのであるが、留意する点はNO_xあるいはSO_xを低減させるための操作領域と燃焼効率を向上させる領域には差異がある点である。両者を満足するためには、各反応の温度依存性を予め認識し、ボイラ仕様に基づいて最適化する必要がある。しかし、現状では、経験的な知見が主であり、今後、反応工学的にミクロな見地での研究が重要である。

このような観点から、微粉炭ボイラを評価すると、このボイラは、環境対策の面から脱硫、脱硝装置が必要であるが故に大規模装置に適していると考えられる。また、これに付随して、オペレーションはペースロードが燃焼効率の面から考えて適しているであろう。しかし、装置の規模を一度固定した場合には、炭種の適応性が困難となりえ、高燃料比炭が多い海外炭の使用にあたってはバーナーの改良などを要する。

このように、微粉炭ボイラは、現状では、環境対策を炉内で行うことに限界があるのに対して、流動層ボイラは、微粉炭ボイラの短所をある程度補う意味で実用化に至っている。流動層ボイラの一般的な操作は、石炭粒子と脱硫剤である石灰石粒子を同時に流動層内に供給し燃焼させるとともに、炉内にて脱硫

をも行う。NO_xの低減に関しては、流動化ガスである1次空気の空気比を量論比以下にし、フリーボードからトータルとして過剰空気となるよう2次空気を供給する2段燃焼法を採用する。温度領域も1000～1200Kと微粉炭ボイラよりも低温で、石灰石の分解温度、脱硫反応の最適温度領域であるとともにThermal NO_xの生成も考慮しなくてよい。熱交換は、粒子流動が微粉炭ボイラのそれと比較して緩慢な点から、層内に伝熱管が挿入可能であるとともに、伝熱管に接触して粒子流動が存在していることから伝熱係数の向上による熱交換効率も増大させることができる。また、燃焼が生じている流動層内は、粒子がほぼ完全混合状態であることから、層内温度が均一でしかも熱容量が大きい。よって、難燃性な燃料も燃焼させることができるとともに大粒径粒子も供給できることから、炭種および粒径の依存性があまりなく、粉碎、乾燥過程が簡略化できる利点もある。よって、このような数多くの長所を有する流動層燃焼装置は、難燃性物質を数多く含むゴミ焼却³²⁾から石炭燃焼ボイラまで柔軟に適用可能であるといえる。

しかし、流動層方式の欠点は、粒子・粒子あるいは粒子・壁との衝突ならびに熱衝撃などにより、粒子が粉化して系外へ飛散する現象が生じることである。つまり、燃焼効率はその飛散量によって一義的に決定され、それらを防止するためには、フリーボード部を高くしたり、ボイラ断面積を広くするなど装置構造に依存してくる問題となる。また、流動層を微粉炭ボイラ級までスケールアップするには、層内での粒子の完全混合性が失われるために粒子の供給管本数を分割する必要があるとともに、層高を高くすると圧力損失が急増することから炉床面積を増大させる必要がある。つまり、炉床負荷のみならず炉体積負荷が微粉炭ボイラに比し低下する点はスケールアップにおいてやむを得ない特色となる。

このような現状から近年では、飛び出し粒子を積極的に循環するというシステムと粒子ならびにガスの処理能力が高いという特性を有する流動層の高速操作を組み合わせた循環流動層燃焼装置(CFBC)が提案された^{33, 34, 35)}。CFBCの構造は、粒子流動が高速流動化状態を示すライザーと粒子リサイクル用の高温・高濃度サイクロンおよび粒子をライザーへ再び供給するためのダウンカマールによって構成されている。このように粒子を循環する方式を採用していることか

ら、脱硫剤の利用効率が向上する点、ガス流速が高速であることから粒子の処理能力が高く高負荷燃焼が可能である点などの特徴が現れてきた。しかし、最近のCFBCの研究の進展とともに若干の課題が生じてきた。例えば、装置高さが決定してしまうと滞留時間が決まってしまう、難燃性固体燃料はサイクロンあるいはダウンカマーにて燃焼されクリンカトラブルの問題となること、ダウンカマーの粒子層高にライザーの粒子層高が依存し、操作条件がそれによって一義的に決定してしまうこと³⁶⁾、またライザー層高の変化に基づいて2段燃焼を行うための2次空気の供給位置が依存してしまう問題などがある。つまり、CFBCは、粒子循環系を導入したことから、制御性が複雑になり操作性の自由度が限られる可能性がある。

最後に、移動層燃焼方式は、粒子が高速で流動する流動状態ではないことから、所要動力は流動層に比べて小さいのであるが、反対に粒子・壁（あるいは伝熱管）の伝熱係数が低くなることから、ボイラ用途よりも焼却炉（ガス化燃焼³⁷⁾）としてのニーズに適している。つまり、燃焼特性の明確でない都市ゴミや農業廃棄物などの焼却に使用されている。このような低品位固体燃料は、一般に、固体熱分解反応と燃焼という順序で処理される例が多く、固体熱分解反応は反応効率、伝熱性に優れている向流型³⁸⁾、燃焼は環境対策の面から並流型という方式^{39)・40)}が採られている。移動層の利点は、滞留時間の制御がある範囲で可能であること、駆動部がなく粒子ハンドリングが容易なこと、空気導入の所要動力が小さいことなどが挙げられる。しかし、短所としては、反応速度が早い燃焼性を持つ燃料はホットスポットの発生による装置の損傷の点から用い得ないこと、反応効率が低いことなどが挙げられ、緩慢な燃焼や廃棄物のような低付加価値のものにしか適用できない。

以上、石炭燃焼の各方式について、それらの特徴とともに現在までの実用化の状況を概観した。そこで、将来の石炭燃焼装置あるいは燃焼方式がどうあるべきかを考える。前述したように、微粉炭方式は大規模装置に、流動層方式は中規模装置に適しており、それぞれ実用化されている。しかし、小規模なボイラ、例えばスチームで $10\text{t}\cdot\text{h}^{-1}$ 程度のパッケージボイラは、わが国においてニーズは大きいのであるが、重油、軽油あるいは天然ガスというような燃料が広く使用され、石炭焚きの小型ボイラはみられない。では、小規模な石炭焚きボイ

ラを開発するにあたり如何なる問題が提起されるであろうか。まず第一に、小型であるが故に脱硫、脱硝あるいは熱交換部を付設できない点である。つまり、炉内において環境対策と熱交換を行う必要がある。第2に、海外炭の導入政策により、炭種（燃料比、水分、N分、S分）の順応性を有する必要がある。また、ほぼ類似した理由から、粒径への順応性も併せ持たなければならない。最後に挙げられるのは、燃焼立ち上げ、停止、負荷変動操作を司る制御性の問題である。これらの条件は、ともすれば操作条件によって相反する要素を有することとなり、今後、この分野について、トータルバランスのとれた燃焼装置の開発研究のブレイクスルーが急務であると考えられる。

3. 本研究の目的と内容

上記の観点から、本研究では、各種固気接触プロセスへ汎用性があり、しかもスモールスケールに適用可能な装置として、新たにCFM層型（Combined Fast Fluidized Bed and Moving Bed）固気接触装置を提案するとともに、その装置の装置特性を可視化コールドモデルによって検討を行った。つぎに、本装置を小規模な石炭燃焼装置へ応用することを目的とし、実験室規模の燃焼装置を試作して、本装置の燃焼特性を明らかにした。また、燃焼装置の設計として必要となる固体燃料の燃焼速度について、熱天秤により測定を行い、同時にその測定法の評価をも行った。さらに、燃焼装置のみならず他の固気接触装置の設計に関して必要なもう1つのパラメータ、粒子・流体間の伝熱に関し実験的な検討を行った。

本論文は、下記に示す6章から構成されている。

- (1) CFM層型固気接触装置内の粒子流動特性に関する2次元コールドモデル実験（第1章、第2章）
- (2) CFM層型固気接触装置の3次元コールドモデルにおける内管部粒子流動特性（第3章）
- (3) 熱循環式CFM層型石炭燃焼装置の燃焼特性（第4章）
- (4) 熱天秤による固体燃料の燃焼速度測定ならびにその評価（第5章）
- (5) 高速流動層内の粒子・流体間伝熱特性（第6章）

第1章では、新しい固気接触装置として、高速流動層と移動層とを組み合わ

せたCFM層型固気接触装置を提案した。本装置の適用性を調べるための第1段として、ガラスビーズ粒子を用い、圧力損失、粒子ホールドアップ、粒子速度分布、粒子滞留時間などの粒子ならびにガスの基本的な流動特性を、2次元可視化コールドモデルによって実験、観察した。本実験結果より、内管において安定した高速流動層を形成する最小ガス流速（最小高速流動化速度）が存在すること、内管内粒子ホールドアップはガス流速の増加とともに指数関数的に減少すること、装置内粒子速度分布は、単一粒子の挙動に基づいて理論解析した結果と比較的良好な一致を示すことおよび粒子滞留時間は塔高の1次にほぼ比例することなどが明らかとなった。

第2章では、CFM層型固気接触装置の各種プロセスへの適用性ならびにスケール効果をより詳細に検討するために、粒子見かけ密度の異なる3種類の粒子（アルミナボール、活性アルミナおよび石炭粒子）を試料として第1章と同様な装置を用い、最小高速流動化速度、粒子ホールドアップ、粒子速度分布および粒子滞留時間などの測定を行った。その結果、内管部において、最小高速流動化速度は単一粒子の終末速度に総体的に一致したが、一部、内管高さの増大とともに増大する傾向が認められ、その傾向は粒子見かけ密度の大きい粒子ほど顕著であった。また、粒子ホールドアップおよび粒子滞留時間は、第1章で示したガラスビーズの結果とほぼ同様な傾向を示し、ガス流速の増大に伴って指数関数的に減少した。なお、粒子速度分布は、内管部では見かけ密度の違いが現れたが、環状部では単なる自由落下現象であることが明らかになった。

第3章では、CFM層型固気接触装置の各種プロセスへの実用化の可能性を模索するために、2次元モデルよりもより実装置に近い3次元可視化コールドモデルを試作して実験を行った。本章ではとくに、本装置の操作範囲を支配する内管部粒子流動状態、軸方向圧力損失分布、粒子ホールドアップ、内部粒子循環効果などの内管部粒子流動特性に注目して検討を行った。その結果、内管部の粒子流動状態は、低ガス流速の条件において不規則な運動を呈し内管内で粒子循環が存在したことが観察された。また、内管部軸方向圧力損失分布が粒子供給部付近を除きほぼ直線的に減少したことから、内管内は濃厚層、希薄層の区別がない単一層の流動状態であることが認められた。さらに、内管

部の粒子ホールドアップの実測値と単一粒子の運動方程式より推算した結果との差（見かけの内部粒子循環量）は、ガス流速の減少および粒子供給量の増加とともに増加することが明らかとなるとともに、ある程度推算可能である知見を得た。

第4章では、第3章までのコールドモデル実験の結果から、本装置を石炭粒子の燃焼装置に適用し、本装置内における燃焼特性を実験的に検討した。本実験では、比較的低位炭に分類されるLoy Yang炭およびコークスを試料として用い、それらの過濃ならびに希薄燃焼限界範囲の検討を行った。その結果、広い空気比条件で連続的に安定着火が可能であること、本装置の着火機構は内管部での粒子循環効果のみならず環状部から内管部への熱循環効果も寄与することが明らかになった。

第5章では、固体燃焼装置設計の基本データとなる燃焼速度を測定するとともにその測定法の妥当性に関して検討を行った。一般に、固体燃焼装置の設計にあたり、石炭の燃焼速度データの信頼性は重要な因子の一つであるが、得られたデータは装置および実験方法の違いに依存したデータとして解釈する必要がある。本実験では、コンパクトでしかも操作条件を広範に変化可能な熱天秤を用い、本装置における燃焼速度を求めるための基本的な操作パラメータ（試料ホルダの形状・材質、保護管の材質、導入ガスの流量、昇温速度、試料充填量および試料粒径）について検討を行った。結果として、燃焼速度測定の基本操作条件が確立されるとともに、得られたデータは再現性ならびに精度のあるデータとして評価できることが明らかとなった。

第6章では、本装置の内管部の粒子流動状態のような高速流動層を用いる固気接触装置の設計における物質移動あるいは熱移動の推算および燃焼過程における揮発分蒸発速度ならびに着火遅れ時間の推算に関し、重要な設計パラメータとなる粒子・流体間の伝熱特性について検討した。本実験では、加熱した固体粒子と室温のガス間の高速流動層状態における粒子・流体間の伝熱係数を実験的に求めた。その結果、管軸方向の伝熱係数は粒子供給部に近づくにしたがって大きくなった。また、管全体の粒子・流体間の伝熱係数は、スリップ速度の増加あるいは固体粒子径の減少とともに増加する傾向が認められた。

Literature cited

- 1) 化学工学協会編："流動層プロセッシング", 化学工学シンポジウムシリーズ No.12(1988)
- 2) 橋本編著：工業反応装置, 4(1984)
- 3) Levenspiel, O. and K.B. Bischoff: *Advan. Chem. Eng.*, 4, 95(1963)
- 4) Sutton, E.A., A.R. Greenwood and F.H. Adams: *Oil & Gas Journal*, 70, 21, 52(1972)
- 5) 松田、宮崎、架谷、梁取：化学工学論文集, 14, 6, 769(1988)
- 6) 鞭：化学工学, 36, 710(1972)
- 7) 井手、守岡、永井：燃料と燃焼, 47, 1(1980)
- 8) 伊東、永井、白田：川崎重工技法, 70, 15 (1979)
- 9) セメント協会編：燃料専門委員会報告T-14, "SP, NSPキルンに関する調査", セメント協会(1981)
- 10) 化学協会東海支部編："移動層の装置設計と技術開発", 化学工学東海支部(1982)
- 11) 外山、森："移動層技術の現状と新展開", 化学工学シンポジウムシリーズ No.15, 41(1988)
- 12) Enos, J.L. 著、加藤、北村訳："石油産業と技術革新", 幸書房(1972)
- 13) 松浦：化学と工業, 23, 943(1970)
- 14) *Hydrocarbon Processing*, 60, 11, 125(1981)
- 15) Geldart, D.: *Powder Technol.*, 7, 285(1973), 19, 133(1978)
- 16) 千葉：化学工学協会第21回秋季大会講演要旨集, 594(1988)
- 17) Abrahamsen, A.R. and D. Geldart: *Powder Technol.*, 26, 35(1980)
- 18) Stewart, P.S.B. and J.F. Davidson: *ibid.*, 1, 61(1967)
- 19) 堀尾：粉体工学会誌, 23, 2, 80(1986)
- 20) Matsumoto, S.: *J. Chem. Eng. Japan*, 10, 273(1977)
- 21) 越智：日本機械学会論文集, 43, 3816(1977)
- 22) Chan, S.M.: *Can. J. Chem. Eng.*, 60, 581(1982)
- 23) 狩野：粉体工学会誌, 15, 134(1978)

- 24) 綱川: *ibid.*, 16, 249 (1979)
- 25) 清水: *ケミカルエンジニアリング*, 10, 792 (1988)
- 26) Kunitomo, K., Hayashi: *Proc 2nd SCEJ Symp. on CFB*, 125 (1988)
- 27) 城野、平野: *工業加熱*, 19, 73 (1982)
- 28) 松浦: *化学経済*, 28, 8, 13 (1981)
- 29) 佐藤: *燃料協会誌*, 67, 7, 595 (1988)
- 30) 城戸: *化学工学*, 46, 264 (1980)
- 31) 高本、植田、正路、木田、宮本: *化学工学協会第21回秋季大会講演要旨集*, 672 (1988)
- 32) Hirota, T., T. Ohshima, T. Higo, S. Kosugi and I. Inumaru: *Proc 2nd SCEJ Symp. on CFB*, 133 (1988)
- 33) Nack, H., K.T. Lin and G.W. Felton: *Proc. 5th Intl. FBC Conf., MITRE Corp.*, vol. II, 223 (1978)
- 34) Schwieger, B: *Powder*, S1 (1985)
- 35) Reh, L.: *特許公報 (B2)*, 昭57-28046 (1982)
- 36) Wirth, K.E.: *Chem. Eng. Technol.*, 11, 11 (1988)
- 37) 新井: *ケミカルエンジニアリング*, 33, 3, 22 (1988)
- 38) Szekely: *"Gas Solid Reactors"*, Academic Press (1976)
- 39) 架谷、新井: *化学工学論文集*, 7, 6, 615 (1981), 7, 6, 651 (1981)
- 40) 新井、架谷: *ibid.*, 10, 3, 343 (1984)

第1章 CFM層型固気接触装置内流動の基本特性に関する2次元コールドモデル実験

緒言

最近、固気接触装置の一つである流動層の高速操作、とくに高速流動層に対する関心が高まっており、固体燃焼をはじめ各種固気接触プロセスへの応用が検討されている³⁾。これに関連して、流動層の高速領域における流動状態の研究^{2, 5, 7, 8)}も多方面から精力的に行われている。

本研究では、上記のような研究動向とともに、各種固気接触プロセスへ汎用性があり、しかもスモールスケールに適用可能な新しいタイプの固気接触装置、高速流動層と移動層とを装置内で一体に組み合わせた固気接触装置（以降、CFM層と呼ぶ）を提案した。本装置の基本的形状は、後述のFig. 1-2に示すような2重管型であり、内管部を固体粒子が鉛直上向き方向に高速流動化または気流化されて環状部へ噴出される。引続き、固体粒子は環状部を内管部と向流で流下し、環状部出口付近で移動層を形成しつつ排出される。本装置の特徴としては、内管部で高速流動層または気流層を形成させることによる固体ならびにガス処理能力の増大、ガス流速ならびに粒子供給量の操作範囲の広域化および多成分粒子あるいは付着性粒子に対しても安定操作が可能なことなどが期待できる。以上のような特徴を有する本装置を開発するにあたり、本研究では、第一段階として実験室規模の2次元非反応系可視化装置（コールドモデル）を試作し、まず、種々の粒径のガラスビーズを試料に選んで、コールドモデル装置内における流動状態を観察し、その結果より、装置内粒子速度とガス流速との関係、粒子ホールドアップ、粒子滞留時間などCFM層内流動の基本特性について実験的観点より検討を行った。

1・1 実験装置および方法

Fig. 1-1に本実験で用いた2次元コールドモデル装置のフローダイアグラムを

* Combined Fast Fluidized Bed and Moving Bedの略

示す。送入ガスは常温・常圧の空気を使用した。ブロワー(1)により供給された空気は、バルブ(2)およびオリフィスマーター(3)によって流量調節した後、内管下部へ導入される。粒子はホッパー(6)よりスクリュウフィーダによって内管部分散板(4)上へ一定供給される。なお、本実験の分散板にはSUS304製400mesh金網を用いた。送入粒子は、分散板上に供給されたのち、送入空気により内管部(7)を高速流動化あるいは気流化され環状部(8)へ噴出し、アッシュボックス(10)において固気分離される。装置内部の各位置における圧力損失分布は、圧力タップ(図中×印)を介して水マンノメータにおける水柱高さから測定される。

つぎに、Fig.1-2に装置本体の詳細図を示す。装置は幅20mm、奥行き10mmの矩形流路を内管部とし、その両側に幅40mmの環状部矩形流路が設けられている。塔頂部は内径100mmφの半円構造となっており、内管部からの噴出粒子を環状部にスムーズに導けるようになっている。本実験では、内管部高さが550、950および1800mmの3種類の装置を用いた。内管部ならびに環状部の材質は、流動粒子・壁面間の静電引力を極力防止することを前提として装置前後面はガラス製、また、側面部は装置の構造強度を確保するためにアクリル樹脂製とした。環状部出口部分は、実装置においてはバッフルを充填し、排出粒子による移動層の形成を想定している。

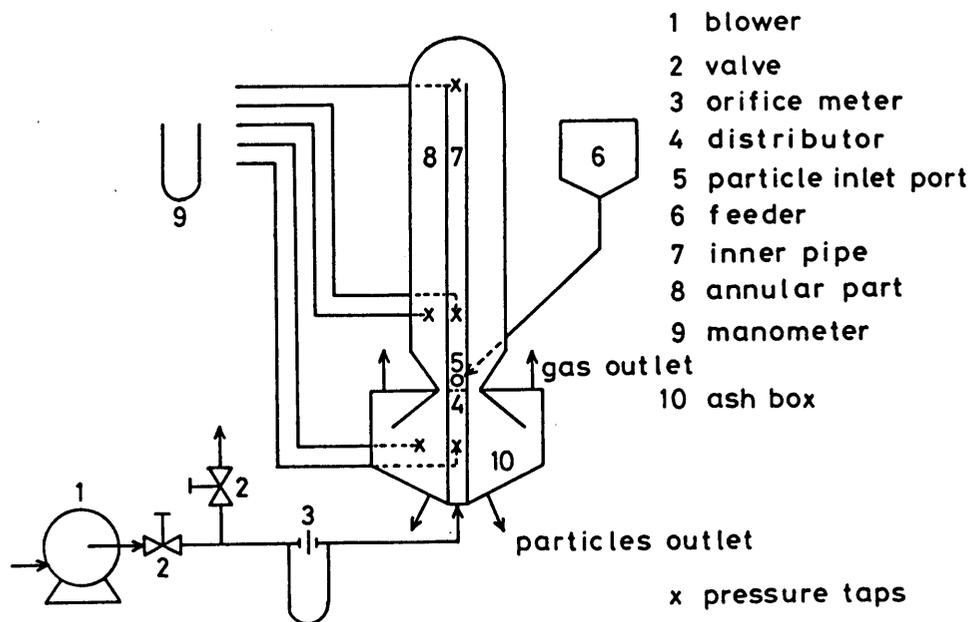


Fig.1-1 Flow diagram of the experimental apparatus employed

実験は、空気流量ならびに粒子供給量一定のもとで、各圧力タップ間の差圧が定常的に一定となった状態をもって粒子流動が定常状態に達したとみなし、このときの装置内圧力損失分布を各圧力タップによって測定した。また、内管部および環状部の粒子速度は、各部位位置において写真撮影により測定した。すなわち、粒子軌跡をカメラにより撮影（ $250\sim 500\text{s}^{-1}$ ）し、そのネガフィルムを拡大して得られる粒子軌跡の平均長さから粒子速度を決定した。

1・2 使用固体粒子

本実験で使用した固体粒子は粒径の異なるガラスビーズ（東芝パロティーニ製）で、Table 1-1に粒径、見かけ密度、流動化開始速度ならびに終末速度を示す。表中、見かけ密度 ρ_p は水銀置換法、流動化開始速度 u_{mf} は実測によって求めた値を、さらに終末速度 u_t は単一粒子に対するつぎのEq. (1-1)の推算式より求めた静止流体中での粒子終末速度を示す。

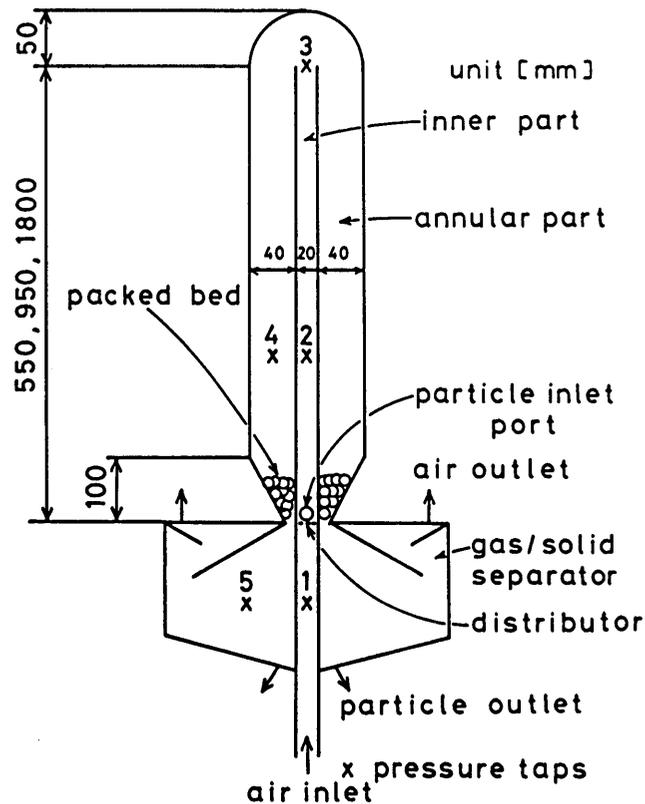
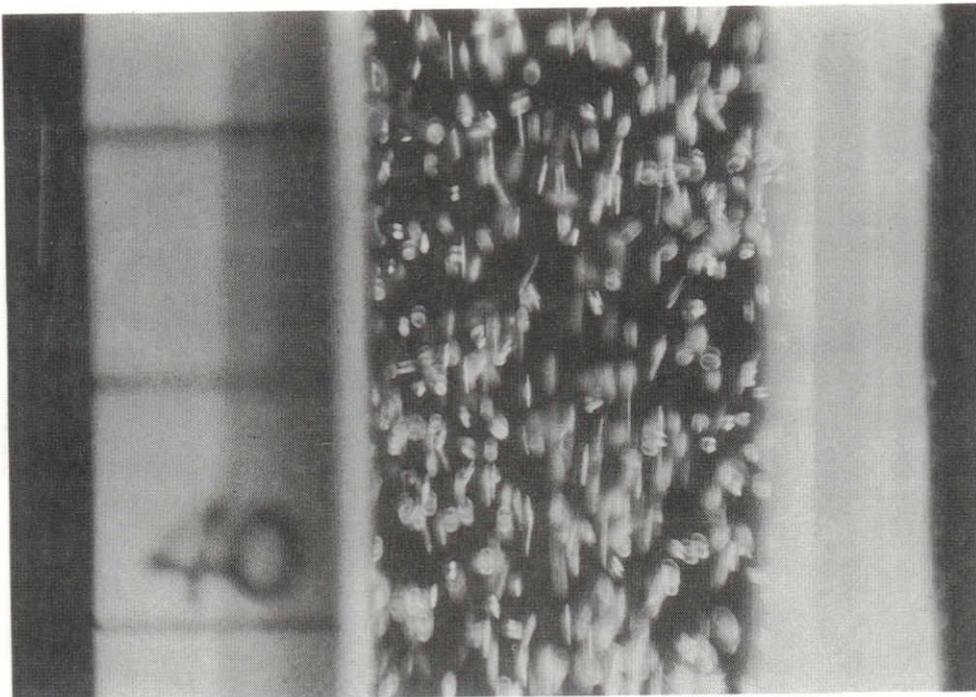


Fig.1-2 Details of the 2-dimensional cold model employed

$$u_t = \begin{cases} \frac{g(\rho_p - \rho_f)d_p^2}{18\mu_f} & , \quad Ar \leq 104 \\ d_p \left\{ \frac{4g^2(\rho_p - \rho_f)^2}{225\rho_f\mu_f} \right\}^{1/3} & , \quad 104 < Ar \leq 9.43 \times 10^4 \\ \left\{ \frac{3g(\rho_p - \rho_f)d_p}{\rho_f} \right\}^{1/2} & , \quad 9.43 \times 10^4 < Ar < 3 \times 10^9 \end{cases} \quad (1-1)$$

Table 1-1 Characteristics of the glass beads employed

sample	d_p [μm]	ρ_p [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]	$u_{mf} \times 10^2$ [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]	u_t [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]	shape
glass	37- 74		0.79	0.22	
beads	177-250	2500	3.39	1.70	sphere
	420-590		25.5	4.21	



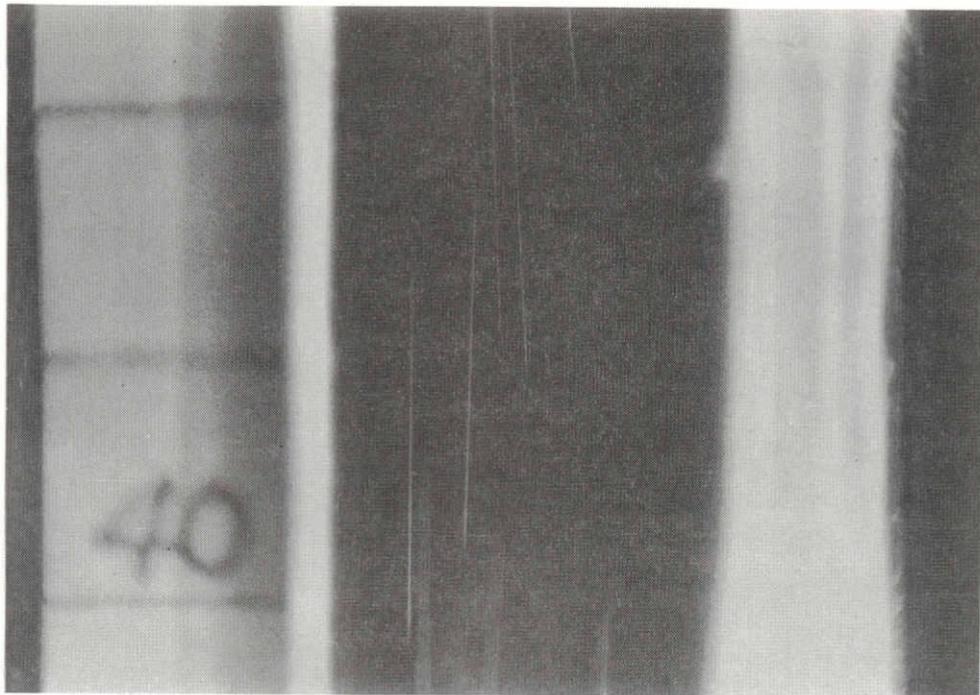
inner part $\bar{u}_{gi} = 4.1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$

Fig.1-3 Photograph of the glass beads flowing upwards through the inner pipe at a relatively low gas flow rate

1・3 実験結果および考察

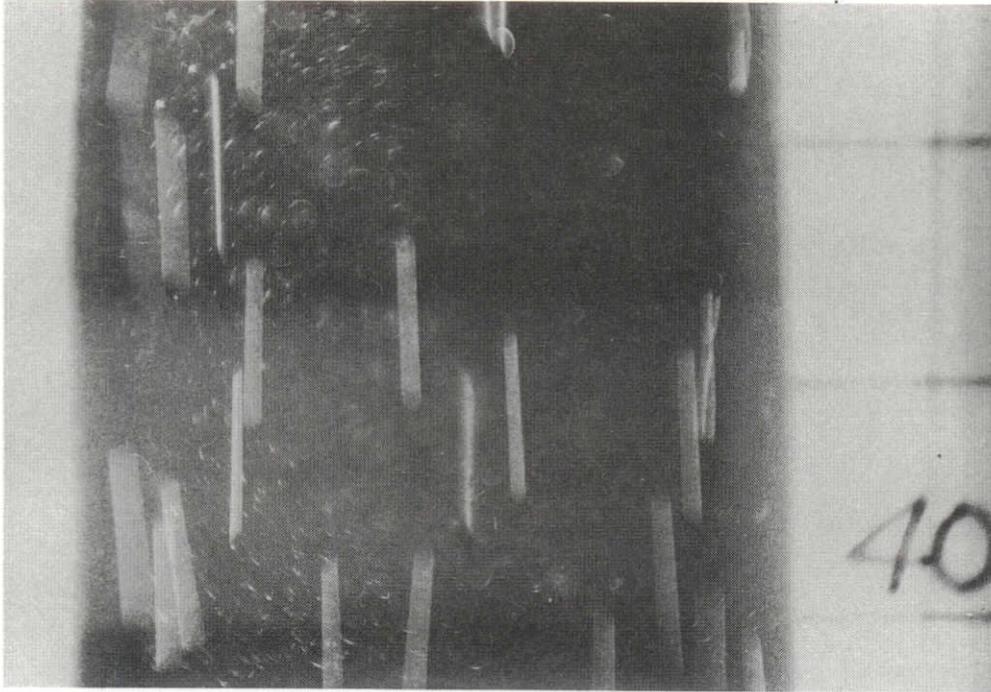
1・3・1 内管部および環状部粒子流動状態

Figs.1-3,1-4,1-5および1-6に内管部平均ガス流速 \bar{u}_{gi} が $4.1\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ および $12.25\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 、粒子供給量 $w_0=0.867\times 10^{-3}\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$ の条件で、分散板からの上向き距離 $l_i=0.40\text{m}$ における内管部 (Figs.1-3および1-4) ならびに環状部 (Figs.1-5および1-6) の粒子流動状態の写真を示す。内管部の低ガス流速における粒子流動状態は、Fig.1-3および目視観察から、中心部で上昇流、壁近傍で下降流を呈し、激しい粒子循環が見られた。しかし、高ガス流速域では、粒子軌跡がほぼガスの流れ方向と平行で粒子循環現象は見られなかった。また、環状部粒子流動状態は、Figs.1-5および1-6を比較してもほとんど相違はなく、単なる自由落下現象であると考えられる。



inner part $\bar{u}_{gi}=12.25\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$

Fig.1-4 Photograph of the glass beads flowing upwards through the inner pipe at a relatively high gas flow rate



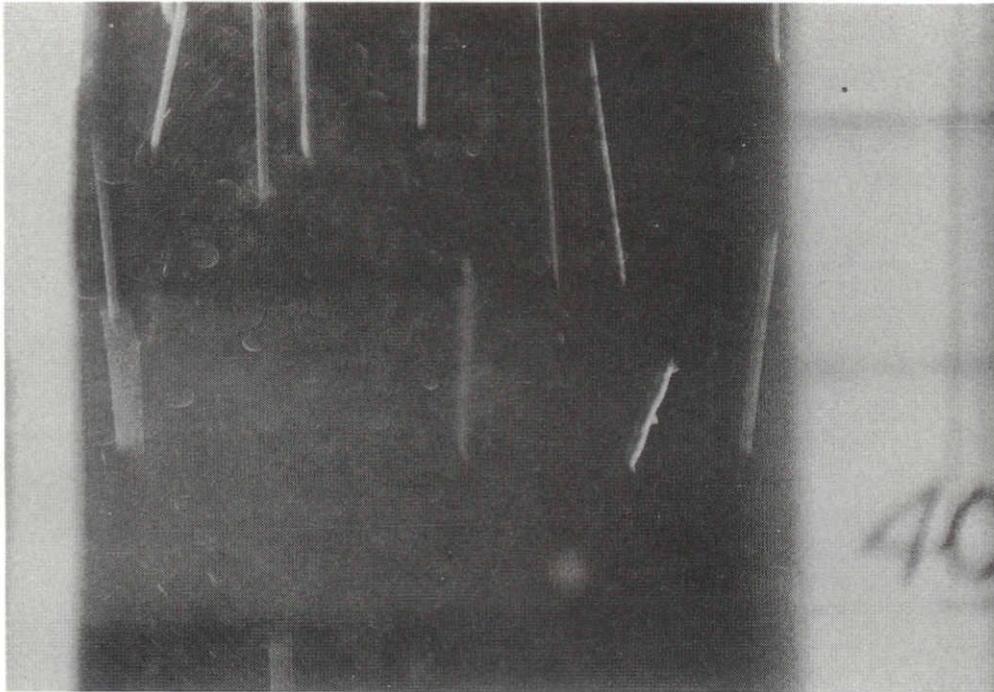
annular part $\bar{u}_{gi} = 4.1 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, $\bar{u}_{ga} = 1.03 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$

Fig.1-5 Photograph of the glass beads flowing downwards in the annular part at a relatively low gas flow rate

1・3・2 内管部粒子流動特性

i) 最小高速流動化速度 一般に、鉛直方向の希薄固気混相流において、一定粒子供給量のもとでガス流速を減少させていくと混相流体・壁面間の摩擦損失の減少にともない圧力損失は減少する。しかし、さらにガス流速を減少させると、ある流速を境にして、圧力損失は粒子ホールドアップの増大にともなって極小値を有したのち増加して閉塞する状態（チョーキング現象^{4,5)}）に達することが知られている。本研究では、これに関連して、まず、本装置内管部での鉛直固気混相流の安定操作が可能である最小ガス流速について検討した。

Fig.1-7にガラスビーズを一定供給量 $v_{p0} = 4.0 \times 10^{-7} \text{ m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ で供給しつつ、内管部空気流速 \bar{u}_{gi} を $5.4 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ から徐々に減少させた時の内管部圧力タップ1-3間の差圧 ΔP_{1-3} の変化を示した。本図より、本実験条件下では、 \bar{u}_{gi} が約 $4.2 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 以上では ΔP_{1-3} は時間 τ によらずほとんど一定値を示しており、この



annular part $\bar{u}_{gi} = 12.25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, $\bar{u}_{ga} = 3.06 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$

Fig.1-6 Photograph of the glass beads flowing downwards in the annular part at a relatively high gas flow rate

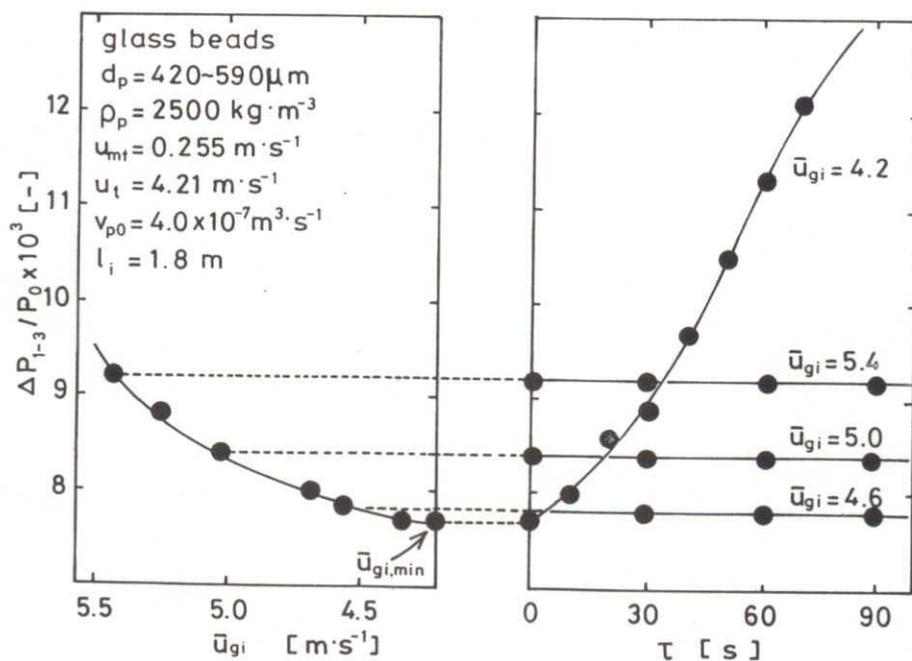


Fig.1-7 Time change of the pressure drop through the distributor

流速域の内管部粒子流動状態は、ほぼ安定な高速流動層を形成する領域にあるものと考えられる。しかし、空気流速が約 $4.2\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 以下になると ΔP_{1-3} は τ とともにほぼ直線的に上昇し、粒子流動状態は高速流動層から濃厚層に移行していくと考えられる。したがって、本実験条件に対して、 $\bar{u}_{gi}=4.2\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ は内管部において安定した高速流動層を形成する最小ガス流速に相当し、本研究では以後 $\bar{u}_{gi,\min}$ と表し最小高速流動化速度と呼ぶことにする。

一般に、 $\bar{u}_{gi,\min}$ は粒子の種類、粒径、内管部高さ、粒子供給量などによって変化すると考えられるが、Fig.1-8に、上述の方法に基づいて測定したガラスビーズの $\bar{u}_{gi,\min}$ の結果の一例を示す。本図は、粒径 d_p ならびに内管部高さ l_i をパラメータとし、 $\bar{u}_{gi,\min}$ を体積基準の粒子供給量 v_{p0} に対してプロットし

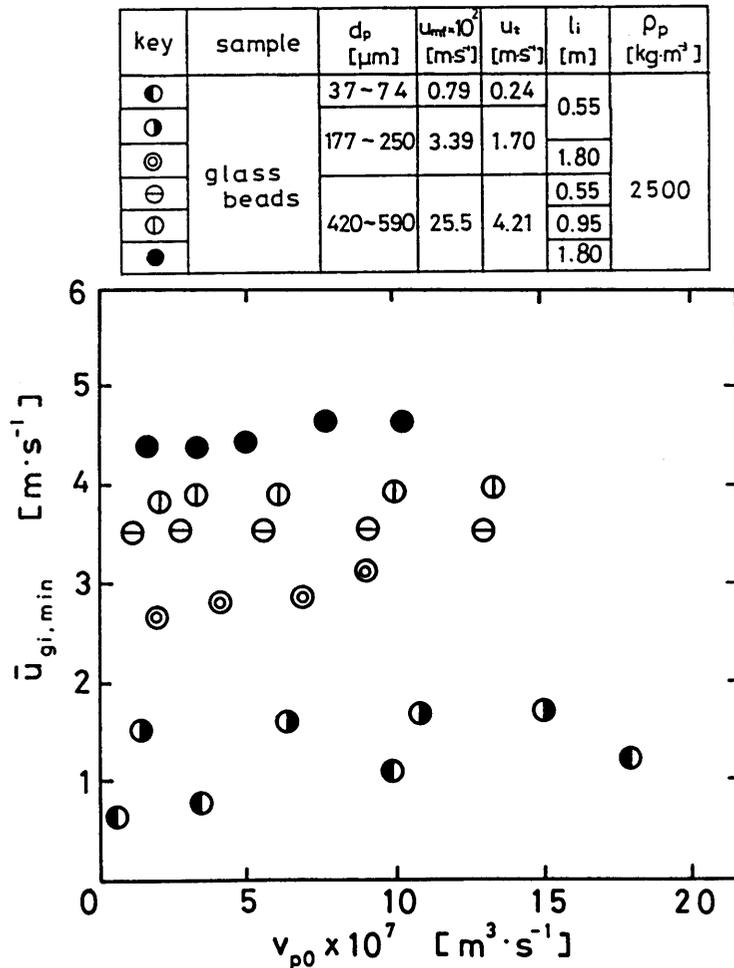


Fig.1-8 Relation between the minimum fast fluidization velocity, $\bar{u}_{gi,\min}$ and the volumetric feed rate of glass beads, v_{p0}

たものである。 $\bar{u}_{g,i,min}$ の定義により、各プロットの上部が安定した高速流動層（または気流層）の形成される領域、下部が濃厚流動層へ遷移する領域に相当する。本実験では、 $\bar{u}_{g,i,min}$ は大略 v_{00} に対して右上がりの傾向を示しているとともに粒子径 d_p ならびに内管高さ l_i の増加とともに大きくなっている様子がみられる。そこで、得られた $\bar{u}_{g,i,min}$ と粒子の終末速度 u_t との比 $\bar{u}_{g,i,min}/u_t$ をそれぞれの結果について求めると、 $d_p=420\sim 590\mu m$ の比較的大きい粒子は0.85~1.05程度と u_t とほぼ一致するが、粒径が小さくなるにつれて1.0より大きくなった。なお、Capesら¹⁾も1.08~2.9mmと大きなガラスビーズに対する実験結果から、ほぼ $\bar{u}_{g,i,min}/u_t$ は1であると報告している。また、同一粒径粒子で塔高の影響を調べたところ、塔高の増大により $\bar{u}_{g,i,min}$ も増加する傾向が認められた。なお、これらの $\bar{u}_{g,i,min}$ のデータは、本CFM層型固気接触装置を実際に設計、運転するに際して、基本的に重要となる操作条件の下限值を示すものと考えられる。これらの $\bar{u}_{g,i,min}$ の存在理由は、現在のところ詳細には明らかでないが、粒子・粒子間および粒子・壁面間の衝突ならびに管内のガス流速分布などの管内の粒子・ガスのマイクロな挙動に起因するものと考えられる。この点について、今後さらに粒子の種類などを変えたより詳細な検討が必要である。

ii)内管部粒子ホールドアップ Fig.1-9に内管部粒子ホールドアップ(1- ϵ_i)の測定結果の一例を示す。本図の粒子ホールドアップは後述する内管部粒子速度分布の実測値に基づいて平均速度を求め、Eq.(1-2)より算出した。ただし、管内の粒子循環は無視している。

$$1-\epsilon_i = \frac{w_0}{\rho_p \bar{u}_{pi} W_i t} \quad (1-2)$$

ここで、 w_0 は粒子供給量、 W_i は内管幅、 t は内管の奥行きを示す。図中、実線は内管部高さ $l_i=1.8m$ 、破線は $l_i=0.95m$ の時の内管部粒子ホールドアップと平均ガス流速との関係を示す。本図より、粒子ホールドアップは内管部平均ガス流速 $\bar{u}_{g,i}$ の増加とともに徐々に指数関数的に減少していく様子が窺える。また、粒子ホールドアップに及ぼす塔高の影響は、 w_0 の増大にともない認められた。なお本図より、粒子ホールドアップは、 l_i の大きい方が大きい値を与える

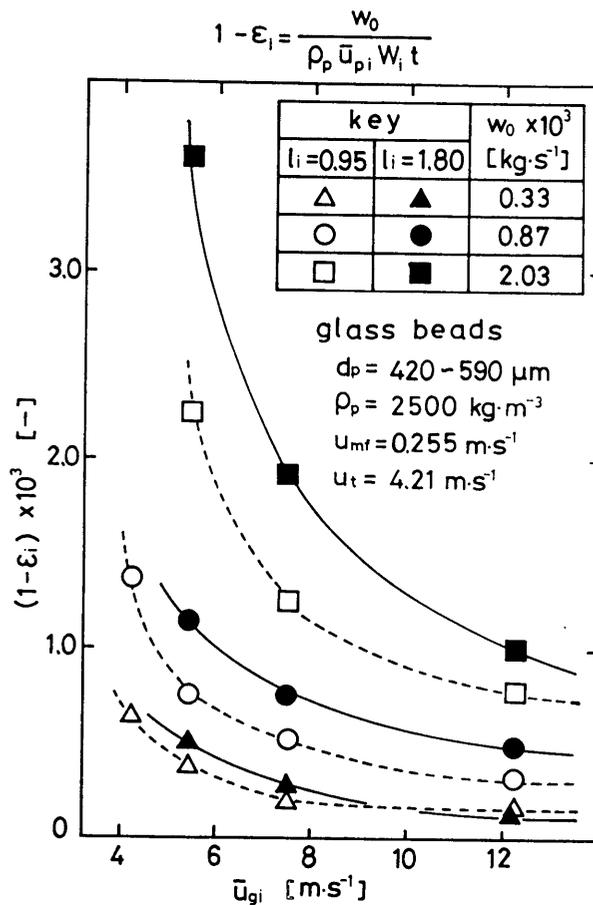


Fig.1-9 Particle holdup in the inner pipe
 calculated by the mean particle velocity
 with the particle circulation neglected

様子が認められるが、この原因としては、Fig.1-8の $\bar{u}_{gi, min}$ の結果でも認められているように、粒子供給量の増大に伴って内管壁・粒子、粒子・粒子間の相互作用あるいは内部粒子循環などの諸因子が複雑に絡み、その結果として総体的に u_{gi} が小さくなったためと考えられる。また、本実験では、粒子循環の影響は無視した解析を行ったが、Fig.1-3にも示したように内管部ガス流速 \bar{u}_g が小さい条件では明らかに粒子循環がみられ、粒子滞留時間 θ へも大きく影響することが考えられる。今後、この点についても詳細に検討する必要がある。

1・3・3 内管部および環状部粒子速度分布

Fig.1-10に粒径 $420 \sim 590 \mu\text{m}$ のガラスビーズの内管ならびに環状部での粒子速度分布を示す。ここで、 z は内管部の分散板を基準とした軸方向上向き距離、

1. は内管の先端を基準にした環状部軸方向下向き距離を表す。図中、各プロットは写真撮影によって求めた実測局所粒子速度であり、実線は、Eqs. (1-3)～(1-6)に示す単一粒子に基づく運動方程式⁶⁾を理論解析して得られた計算結果である。

・内管部

$$\frac{\pi d_p^3 \rho_p}{6} \cdot \frac{d^2 z_i}{d \theta^2} = \frac{\pi}{8 \phi_S} C_D d_p^2 \rho_f \left(\bar{u}_{gi} - \frac{dz_i}{d \theta} \right)^2 - \frac{\pi}{6} d_p^3 (\rho_p - \rho_f) g \quad (1-3)$$

$$\text{I.C.: } \theta = 0, z_i = 0; u_{pi} = \frac{dz_i}{d \theta} = 0 \quad (1-4)$$

・環状部

$$\frac{\pi d_p^3 \rho_p}{6} \cdot \frac{d^2 z_a}{d \theta^2} = \frac{\pi}{8 \phi_S} C_D d_p^2 \rho_f \left| \bar{u}_{ga} - \frac{dz_a}{d \theta} \right| \cdot \left(\bar{u}_{ga} - \frac{dz_a}{d \theta} \right) + \frac{\pi}{6} d_p^3 (\rho_p - \rho_f) g \quad (1-5)$$

$$\text{I.C.: } \theta = 0, z_a = 0; u_{pa} = \frac{dz_a}{d \theta} = 0 \quad (1-6)$$

式中の抵抗係数 C_D は以下のEqs. (1-7)および(1-8)によって求めた。

$$C_D = \begin{cases} 24 \text{Re}_r^{-1} & , \quad \text{Re}_r \leq 5.76 \\ 10 \text{Re}_r^{-0.5} & , \quad 5.76 < \text{Re}_r \leq 517 \\ 0.44 & , \quad 517 < \text{Re}_r \leq 10^5 \end{cases} \quad (1-7)$$

ここに

$$\text{Re}_r = \frac{\rho_f (\bar{u}_g - \bar{u}_p) d_p}{\mu_f} \quad (1-8)$$

なお、理論解析にあたって、 d_p は標準ふるい目開きに基づく算術平均値を用い、形状係数 ϕ_s は1.0、 ρ_r 、 μ_r は常温空気の値を用いた。また、 u_{oi} 、 u_{oa} はEq s. (1-3)～(1-6)をRunge-Kutta法によって数値解析することによって求めた。

本図より、内管部の粒子速度 u_{oi} の実験結果と計算結果を比較すると、 \bar{u}_{gi} が高い場合に内管部出口付近で実験結果が計算結果を下まわる傾向がみられる。この原因は、ガスおよび粒子の塔頂部への衝突などの端効果によるものと考えられる。なお、 $\bar{u}_{gi}=7.46$ および $5.50\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ の条件での実験は、両塔高とも計算結果と比較的一致していたが、さらに低い \bar{u}_{gi} 、つまり $\bar{u}_{gi, \min}$ 付近の条件では、管内粒子循環の影響が強くなり、よりミクロ的な解析をしなければなら

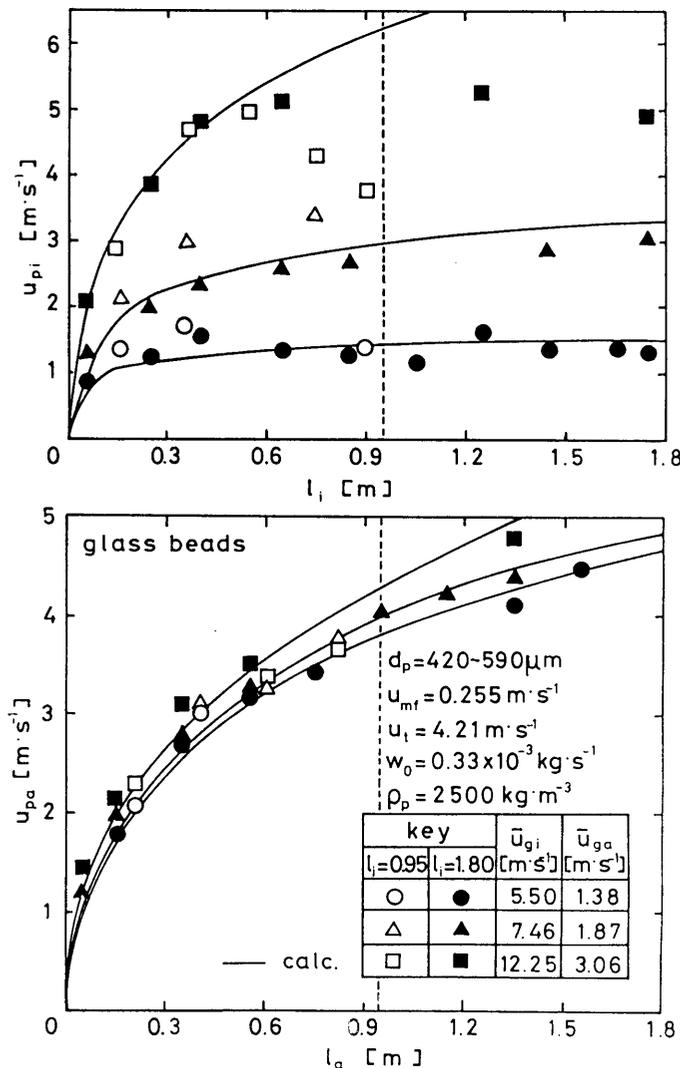


Fig.1-10 Particle velocity distribution along the axes of the inner and the annular parts

いものと考えられる。

つぎに、環状部粒子速度 u_{pa} については、ガス流速、塔高によらず実験結果と理論結果はほぼ一致し、環状部の粒子挙動は自由落下現象と同様であると考えられる。

1・3・4 装置内での粒子の滞留時間

i) 環状部移動層部での粒子滞留状況 環状部出口付近において移動層を形成させる利点は、固気接触率の向上による反応率の増大、環状部から内管部への伝熱促進が挙げられるが、逆に、装置内圧の増大、粒子の目詰まり、ホットスポットの発生等の欠点も考えられる。そこで、本装置において実際に移動層の形成実験を行い、環状部出口付近で移動層ができやすいようにバッフル（平均粒径 3 mm のガラスビーズ）を充填した。また移動層形成の確認はバッフル前

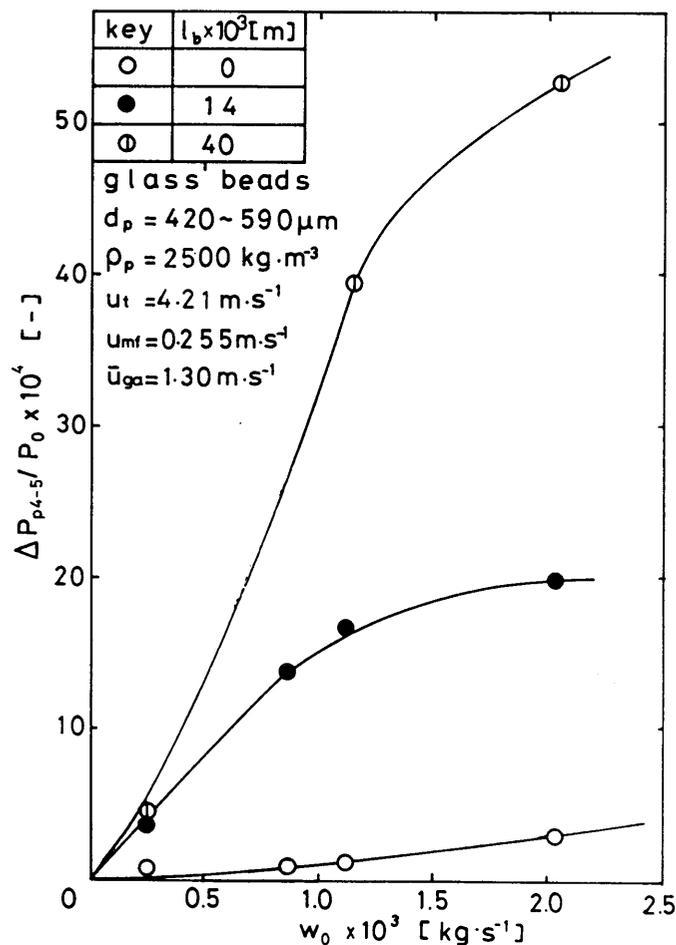


Fig.1-11 Pressure drop through the baffle

子供給量によって多少のばらつきはあるものの本実験条件において、 θ_i 、 θ_t はともに \bar{u}_{gi} の増加につれて指数関数的に減少している。また、 θ_i および θ_t に及ぼす粒子供給量 w_0 の影響は、本図中、 \bigcirc または \bullet で示した程度のばらつきが生じ、そのばらつきは低ガス流速ほど大きく、低ガス流速域では高ガス流速域ほど粒子流動状態が均一になっていないことによるものと考えられる。

つぎに、Fig. 1-13に滞留時間に及ぼす塔高のスケールアップの効果を示す。本図より、 $l_i=0.95\text{m}$ に対する $l_i=1.80\text{m}$ の滞留時間比 $\theta_{1.80}/\theta_{0.95}$ は本実験範囲内では \bar{u}_{gi} にあまり依存せず、これは、 θ_i および θ_t ともほぼ2.0~2.5の範囲におさまっており、このことから、滞留時間はほぼ塔高 l_i の1次に比例するものと考えられる。これらの滞留時間の結果は、燃焼・ガス化・触媒再生・乾燥などの反応および物質移動を伴う系について重要なパラメータであるが、本実験の高ガス流速の結果は妥当性のあるものと考えられる。しかし、 $\bar{u}_{gi, \min}$ 付近の流速領域においては、粒子循環の影響は無視できず、より詳細な検討が必要である。

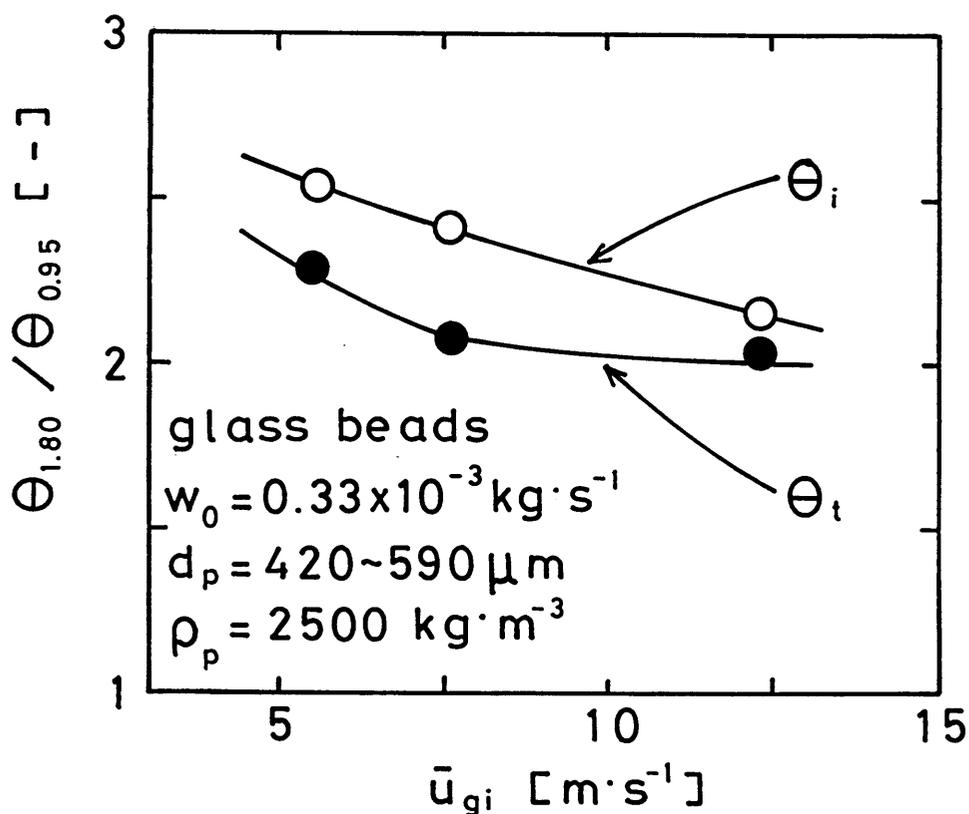


Fig.1-13 Scale-up effect on the residence time of the particle

結言

C F M層型固気接触装置の開発にあたり、その基礎段階として2次元非反応系可視化装置を試作し、C F M層内の粒子挙動の基本特性を実験的に明らかにした。その結果、下記が明らかとなった。

i) 本装置において、定常操作の下限流速の存在が明らかとなり、これを最小高速流動化速度 $\bar{u}_{0, \min}$ と称した。この $\bar{u}_{0, \min}$ は、粒径および内管高さに依存するとともに高速流動層から濃厚流動層の遷移流速と考えられる。

ii) 内管部粒子ホールドアップおよび粒子滞留時間は、ガス流速の増大とともに指数関数的に減少した。また、粒子滞留時間の塔高の影響については、塔高の1次にほぼ比例した。

iii) 粒子速度分布の実験結果について、単一粒子の運動方程式により理論解析したところ、内管部において、高ガス流速域では端効果が現れたものの第1次近似的にはほぼ良好な一致を示した。

iv) 環状部移動層部において、バッフル高さおよび粒子供給量を増大させることによって、バッフル層内はほぼ安定な移動層に近い状態を呈した。

以上、これらの結果は、本C F M層型固気接触装置を種々の固気接触プロセスへ適用するに際して基本的な知見を供するものと思われる。

Nomenclature

Ar	= Archimedes number ($=d_p^3 \rho_f (\rho_p - \rho_f) / \mu_f^2$)	[-]
C_D	= drag coefficient	[-]
d_p	= particle diameter	[μm]
g	= gravitational acceleration	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$]
l	= height	[m]
P_0	= atmospheric pressure	[Pa]
Re_r	= Reynolds number ($\rho_f (u_g - u_p) d_p / \mu_f$)	[-]
t	= depth of the inner pipe	[m]
u	= velocity	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
u_{mf}	= minimum fluidization velocity	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
u_t	= terminal velocity	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
v_{p0}	= volumetric particle feed rate	[$\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$]
W_i	= width of the inner part	[m]
w_0	= particle feed rate	[$\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$]
z	= position	[m]
ΔP	= pressure drop	[Pa]
ϵ	= void fraction	[-]
θ	= residence time or time lapse	[s]
μ	= viscosity	[Pa·s]
ρ	= density	[$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]
τ	= time	[s]
ϕ_s	= shape factor	[-]

< Subscripts >

a	= annular
b	= baffle
f	= fluid

g = gas
i = inner
p = particle
t = total
< Superscript >
- = mean

Literature cited

- 1) Capes, C.E. and K. Nakamura: Can. J. Chem. Eng., 51, 31(1973)
- 2) Chen, B. and M. Kwauk: "Circulating Fluidized Bed Technology", P. Basu (ed.), Pergamon Press, 127(1985)
- 3) Horio, M.: Funtai Kogaku-Kaishi, 23, 2, 80(1986)
- 4) Kunii, D. and O. Levenspiel: "Fluidization Engineering", 382(1969)
- 5) Leung, L.S.: "Fluidization", J.R. Grace and J.F. Masten(eds.), Prentice Hall Press, 25(1980)
- 6) Mochi, I., S. Mori and M. Horio: "Ryudoso no Hanno Kogaku", Baifukan, 17(1984)
- 7) Yang, W.C.: Can. J. Chem. Eng., 51, 779(1973)
- 8) Yerushalmi, J. and A. Avidan: "Fluidization", J.F. Davidson, R. Crift and D. Harrison(eds.), Academic Press, 25(1980)

第2章 CFM層2次元コールドモデル内の粒子流動特性に及ぼす粒子見かけ

密度の影響

緒言

第1章において、新しいタイプの固気接触装置として、CFM層型固気接触装置を提案し、本装置を開発するための基礎段階として、2次元コールドモデル装置を試作して、内管部内での粒子流動状態、粒子ホールドアップならびに装置内粒子速度分布および粒子滞留時間などの基本特性を、まずガラスビーズを試料粒子に用いて明らかにした。その結果、安定操作の下限流速が存在すること、粒子ホールドアップならびに粒子滞留時間は内管ガス流速の増大とともに指数関数的に減少することおよび粒子速度分布は比較的低ガス流速領域において単一粒子の運動方程式が適用しうることなどが明らかとなった。しかし、本装置を各種固気接触プロセスへ実用化あるいはスケールアップするためには、より広範な条件で実験を行ない、本装置の適用範囲などについて統一的に明らかにする必要がある。

そこで本章では、このような観点から、まず本装置に及ぼす固体粒子の影響を調べるために粒子見かけ密度の異なる種々の試料粒子を用いて実験を行い、装置内粒子流動特性への影響を明らかにした。さらに、本装置の適用範囲を検討するために、本章で得られた結果を前章のそれと併せて考察した。

2・1 実験装置および方法

本実験に使用した2次元コールドモデル装置はFig. 2-1に概略示すように第1章で用いたものと同様である。すなわち、装置の基本構造は2重管型であり、内管部において高速流動層あるいは気流層が、環状部において移動層が形成されるように設計されている。なお、本章で使用した装置の内管部高さは、500、950、1800mmの3種類である。

固体粒子は、比較的粒子密度を広範に変化させることを前提として、アルミナボール、活性アルミナ、石炭粒子ならびにガラスビーズの4種類を選んだ。なお、ガラスビーズについては第1章で本装置内における基本的な挙動を明ら

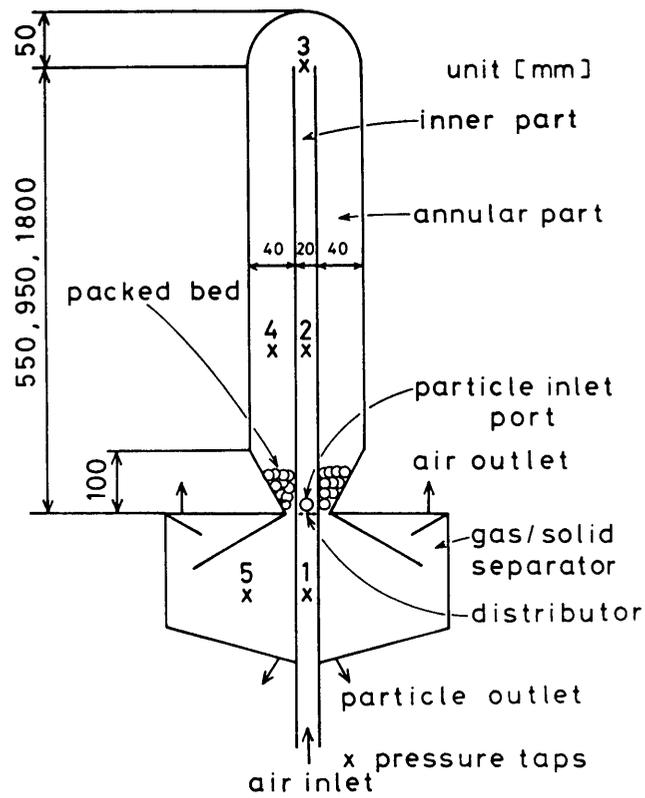


Fig.2-1 Details of the 2-dimensional cold model apparatus employed

Table 2-1 Characteristics of the solid particles employed

sample	d_p [μm]	ρ_p [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]	$u_{mf}\times 10^2$ [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]	u_t [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]	shape
glass beads	37- 74		0.79	0.21	sphere
	177-250	2500	3.39	1.70	
	420-590		25.5	4.21	
alumina ball	420-710	3600	46.0	6.74	sphere
activated alumina	420-840	1000	13.3	2.26	sphere
Australian brown coal	420-710	1300	13.2	3.07	

かにしているが、本章は粒子見かけ密度を代表的なパラメータとして本装置内の粒子挙動を整理するために、一部第1章のデータを併せて使用した。Table 2-1にこれらの試料粒子の諸物性を一括して表示した。

実験方法は、第1章とほぼ同様であり、各試料ごとに内管部および環状部の装置内各位置における定常圧力分布の測定と写真撮影による固体粒子軌跡から粒子速度を測定し、粒子流動状態を観察した。なお、本実験では、移動層を形成させるためのバツフルは充填せずに行った。

2・2 実験結果および考察

2・2・1 内管部粒子流動状態

i) 最小高速流動化速度 第1章で一部示したように、本装置では、内管部の固気混相流動状態において、一定粒子供給のもとで徐々にガス流速を減少させていくと、混相流体・管壁間の摩擦損失の減少に伴い圧力損失は減少する。しかし、ある流速を境に層状態は希薄輸送層から高速流動層、濃厚流動層へ遷移し、チョーキング状態に至る。このときの遷移ガス流速が安定操作ガス流速の下限値に対応し第1章で最小高速流動化速度 $\bar{u}_{gi, min}$ と定義した。本章では、まず本装置を安定操作する場合に基本的に重要な操作パラメータとなるこの最小高速流動化速度 $\bar{u}_{gi, min}$ を各試料ごとに測定し考察を行った。

Figs. 2-2および2-3に、アルミナボールならびに石炭および活性アルミナに対して、内管部ガス流速 \bar{u}_{gi} を徐々に減少させていったときの内管内部の差圧 ΔP_{1-3} (分散板下部と内管塔頂部との間の差圧) の変化をそれぞれ示した。Fig. 2-2の左図は、粒子供給量 w_0 をパラメータとしたときの内管部圧力損失 ΔP_{1-3} を大気圧 P_0 で除したものとガス流速との関係を、また、Fig. 2-2の右図には、ガス流速の低下によって層が高速流動層から濃厚流動層へと遷移し、これに伴う層内の圧力上昇の様子を示した。すなわち、 $\Delta P_{1-3}/P_0$ の時間に対して上昇し始めるガス流速が、第1章で示した最小高速流動化速度 $\bar{u}_{gi, min}$ に相当する。本図より、粒子見かけ密度が $3600 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ と他の粒子と比べて大きいアルミナボールでは、圧力損失 ΔP_{1-3} は w_0 の増大に伴って大きくなっている。また、ガス流速 \bar{u}_{gi} が減少するにつれて、 ΔP_{1-3} も徐々に減少しているが、ある流速

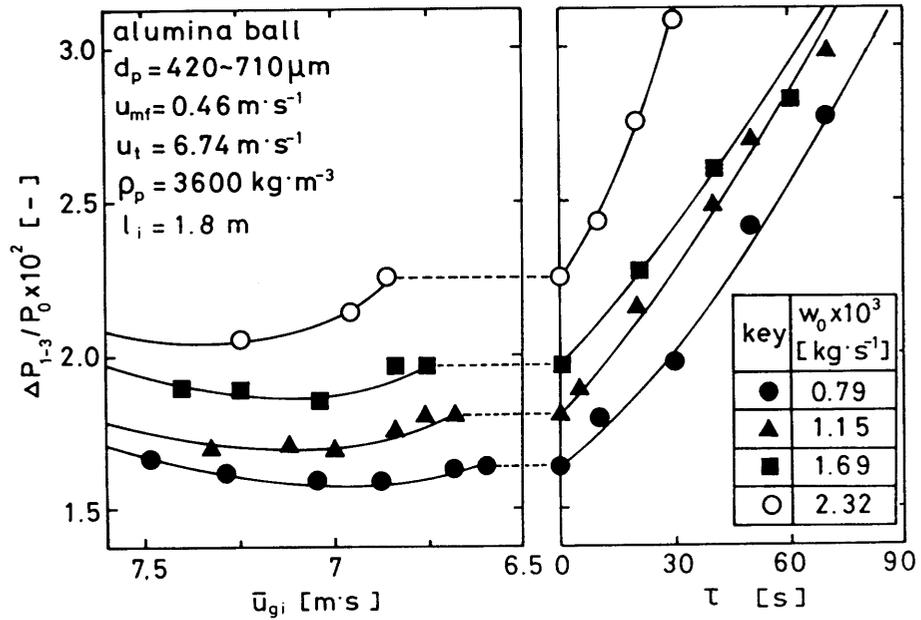


Fig.2-2 Time change of the pressure drop in the inner pipe through the distributor in case of alumina balls

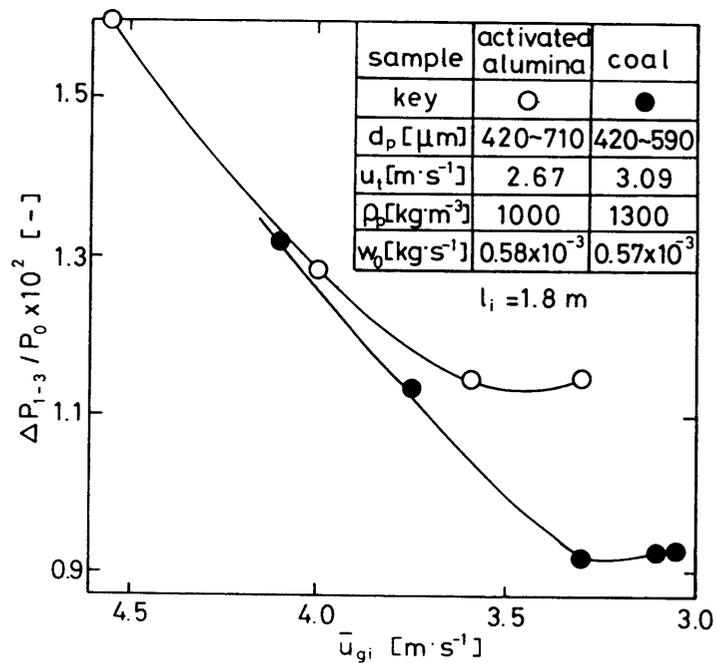


Fig.2-3 Time change of the pressure drop in the inner pipe through the distributor in case of activated alumina balls and coal particles

で ΔP_{1-3} は極小値を示したのち、 $\bar{u}_{oi, min}$ に達する現象が認められた。さらに、本実験条件下では、 $\bar{u}_{oi, min}$ は w_{o0} の増大に伴って大きくなっており、極小値と $\bar{u}_{oi, min}$ 間の圧力損失の差も増大している。この原因として、Zhangら³⁾、Capesら²⁾、および Arastoopourら¹⁾ などの報告でも一部認められているように、おもに w_{o0} の増大による粒子の内部循環の増大および粒子・粒子間あるいは粒子・壁間の相互作用の増大によるものと推測される。

一方、Fig. 2-3に示す活性アルミナならびに石炭粒子については、 ΔP_{1-3} の極小値はほとんど認められない。また、両粒子とも定常高速流動層を形成している領域において、粒子供給量 w_{o0} の ΔP_{1-3} および $\bar{u}_{oi, min}$ に及ぼす影響は本実験条件下ではほとんど認められなかった。これは、活性アルミナ、石炭粒子ともアルミナボールに比べて粒子見かけ密度 ρ_p が約 1/3 程度と小さく、気流化しやすいためと考えられる。また、粒子見かけ密度が軽い活性アルミナの $\bar{u}_{oi, min}$ が石炭のそれを上回っている理由は、活性アルミナの粒径分布が石炭よりも大きいことによるものと考えられる。

以上、このような実験によって求めた各粒子ごとの最小高速流動化速度 $\bar{u}_{oi, min}$ を Fig. 2-4に一括して示した。なお、横軸 v_{o0} は粒子供給量を示し、体積基準で表した。また、本図には、第1章のガラスビーズに対する結果も一部示されている。 $\bar{u}_{oi, min}$ の定義により、各プロットの上部が安定な高速流動層あるいは気流層の形成し得る領域、下部が非定常な濃厚流動層の形成される領域を示す。本図より、 $\bar{u}_{oi, min}$ は粒子見かけ密度ならびに塔高の増大とともに増加しているが、粒子見かけ密度の比較的小さい活性アルミナおよび石炭粒子などでは、 $\bar{u}_{oi, min}$ に対する塔高の影響はあまり顕著ではなかった。また、本実験条件下では $\bar{u}_{oi, min}$ は粒子供給量によって若干増加する傾向を示しているが、その程度はわずかであった。

つぎに、Fig. 2-5にFig. 2-4で示されたこれらの $\bar{u}_{oi, min}$ の実測データを Table 2-1に示した各粒子の静止流体中の粒子終末速度 u_t に対してプロットして示した。ここで、図中の各 $\bar{u}_{oi, min}$ のデータは $v_{o0} = 8.0 \times 10^{-7} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ のもとに得られた実験結果を用いた。本図より、本実験範囲において、 $\bar{u}_{oi, min}$ と u_t は比較的良好な相関関係にあり、1対1に対応している様子が認められた。しかし、 $u_t = 6.74 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ のアルミナボールの結果について、 $l_i = 0.95 \text{ m}$ と 1.80 m の $\bar{u}_{oi, mi}$

key	sample	d_p [μm]	$u_{wt} \cdot 10^4$ [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]	u_t [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]	l_i [m]	ρ_p [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]	
○	glass beads	37~74	0.79	0.24	0.55	2500	
⊙		177~250	3.39	1.70			
⊖		420~590	25.5	4.21			0.95
●							1.80
△	alumina ball	420~710	46.0	6.74	0.95	3600	
▲					1.80		
□	coal	420~590	13.2	3.09	0.95	1300	
■					1.80		
▽	activated alumina	420~840	13.3	2.67	0.95	1000	
▼					1.80		

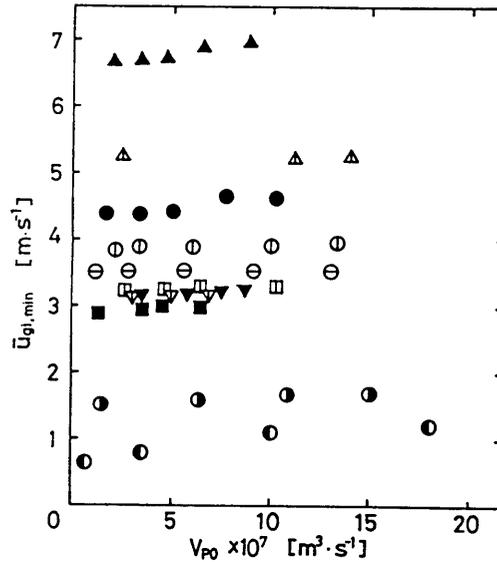


Fig.2-4 Relation between the minimum fast fluidization velocity, $\bar{u}_{gi,min}$ and the volumetric feed rate of the solid particles, v_{p0}

の結果を比較すると、約 $0.8\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ の差がみられ、内管部塔高 l_i の影響が現れた。また、 $l_i=1.8\text{m}$ の装置でのガラスビーズ $177\sim 250\mu\text{m}$ と $420\sim 590\mu\text{m}$ の $\bar{u}_{gi,min}$ の結果を比較すると、前者の $\bar{u}_{gi,min}$ の値は u_t よりも大きな値を示し、 $\bar{u}_{gi,min}$ の粒径依存性も見受けられた。これに対して、 $u_t=2.26\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ の活性アルミナおよび $u_t=3.07\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ の石炭粒子の結果はほぼ塔高に依らず u_t と一致している。

つぎに、Fig.2-6にほぼ同程度の粒子径の4種の粒子を用いて得られた $\bar{u}_{gi,min}$ を内管部塔高 l_i をパラメータとして、粒子の見かけ密度 ρ_p に対してプロットして示す。なお、図中の実線は、 $d_p=420, 630$ および $840\mu\text{m}$ に対する u_t の計算値を示す。本図より、 ρ_p が大きくなるにしたがって、 $\bar{u}_{gi,min}$ は増大してお

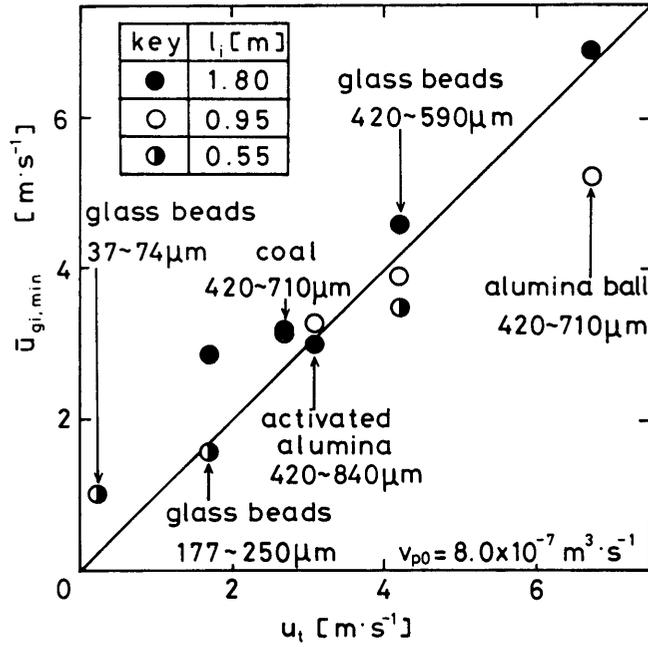


Fig.2-5 Relation between $\bar{u}_{gi,min}$ and the terminal velocity of a solid particle, u_t

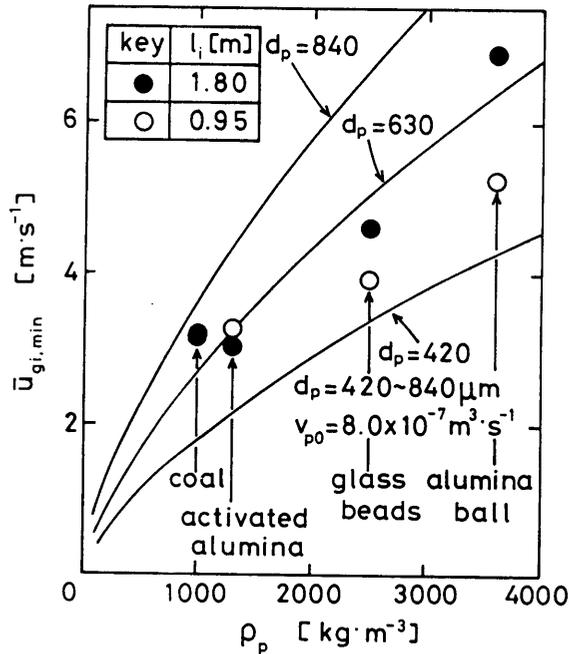


Fig.2-6 Effect of the apparent density of the solid particles on $\bar{u}_{gi,min}$

り、塔高 l_i の影響も大きくなっている。これは、塔高 l_i が増大するにしたがい、内管内部での粒子循環量が增大し、それにより定常状態を確保するためのガス流速 $\bar{u}_{g,i,min}$ が増大したものと推測される。

ii) 内管部粒子ホールドアップ Figs. 2-7および2-8に塔高0.95mの $\bar{u}_{g,i} > \bar{u}_{g,i,min}$ の条件におけるアルミナボールならびに活性アルミナの内管部内粒子ホールドアップ $(1-\epsilon_i)$ の測定結果の一例をそれぞれ示す。なお、本図において粒子ホールドアップは、第1章でも示したように粒子循環効果を見捨て平均粒子速度から計算した。石炭粒子については、実験中粒子が装置ガラス面に付着し、粒子速度測定が行えなかったため、粒子ホールドアップは求めていない。両図より、粒子ホールドアップ $(1-\epsilon_i)$ は内管部平均ガス流速の増加とともに徐々に減少しており、その傾きは、比較的慣性力の小さい活性アルミナの方が急である。また、第1章のガラスビーズの $(1-\epsilon_i)$ の結果と同様に、 $\bar{u}_{g,i}$ の増加に伴って最終的には、各粒子供給量ごとに一定値に漸近していく様子が窺える。

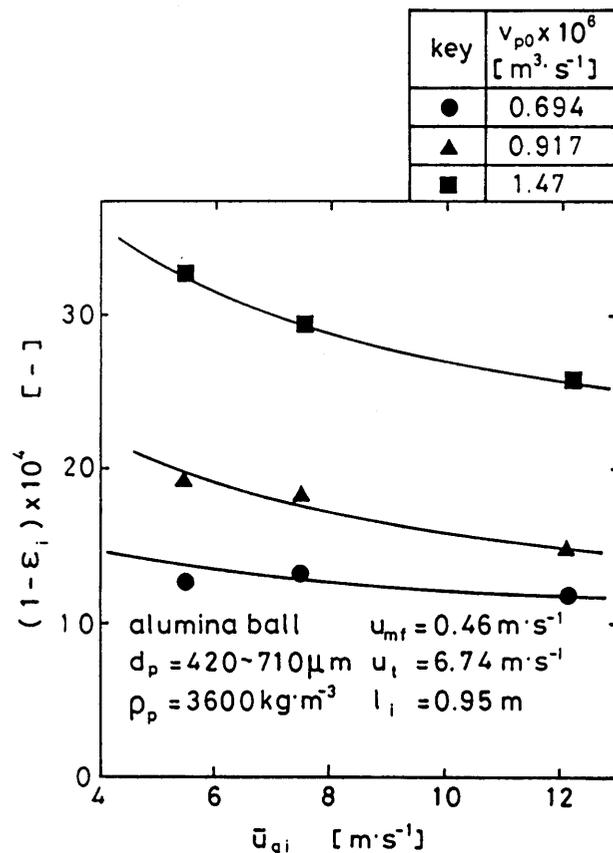


Fig.2-7 Particle holdup of alumina balls by the mean particle velocity with the particle circulation neglected

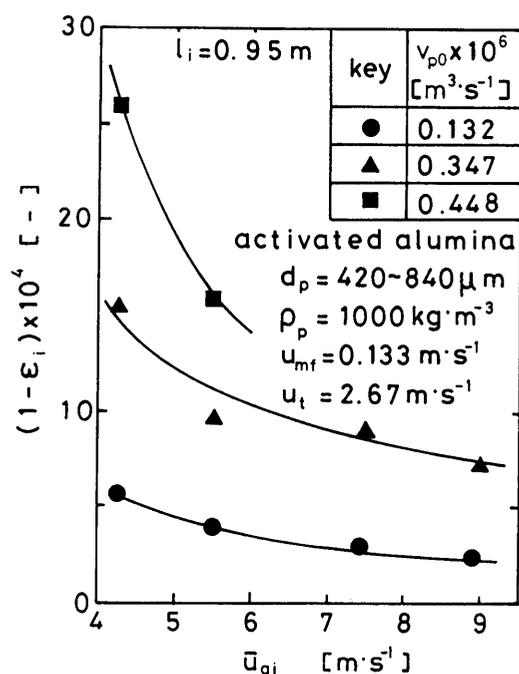


Fig.2-8 Particle holdup of activated alumina balls by the mean particle velocity with the particle circulation neglected

両粒子の $(1-\epsilon_i)$ のオーダを体積基準の粒子供給量に対して比較するとアルミナボールより活性アルミナの方が上回っているが、これは、粒径分布の相違によるものと考えられる。

2・2・2 装置内粒子速度分布

Figs. 2-9 および 2-10 にアルミナボールならびに活性アルミナ粒子の内管部と環状部での粒子速度分布をそれぞれ示す。ここで、 l_i は内管部の分散板を基準とした軸方向上向き距離、 l_o は内管の先端を基準とした環状部軸方向下向き距離を表す。図中、各プロットが写真撮影法による実測粒子平均速度であり、実線は、第1章で示した単一粒子の運動方程式による理論解析結果である。両図より、内管部の粒子速度 u_{oi} は第1章で示したガラスビーズの結果と同様、ガス流速 \bar{u}_{gi} が低い場合において実験結果と計算結果は比較的良好な一致を示したが、 \bar{u}_{gi} の増加とともに実験結果は計算結果を下回る傾向がみられた。しかし、活性アルミナとアルミナボールの $\bar{u}_{gi} = 7.46 m \cdot s^{-1}$ の結果を比較すると、活性アルミナよりアルミナボールの結果が比較的良好く一致しており、密度の大き

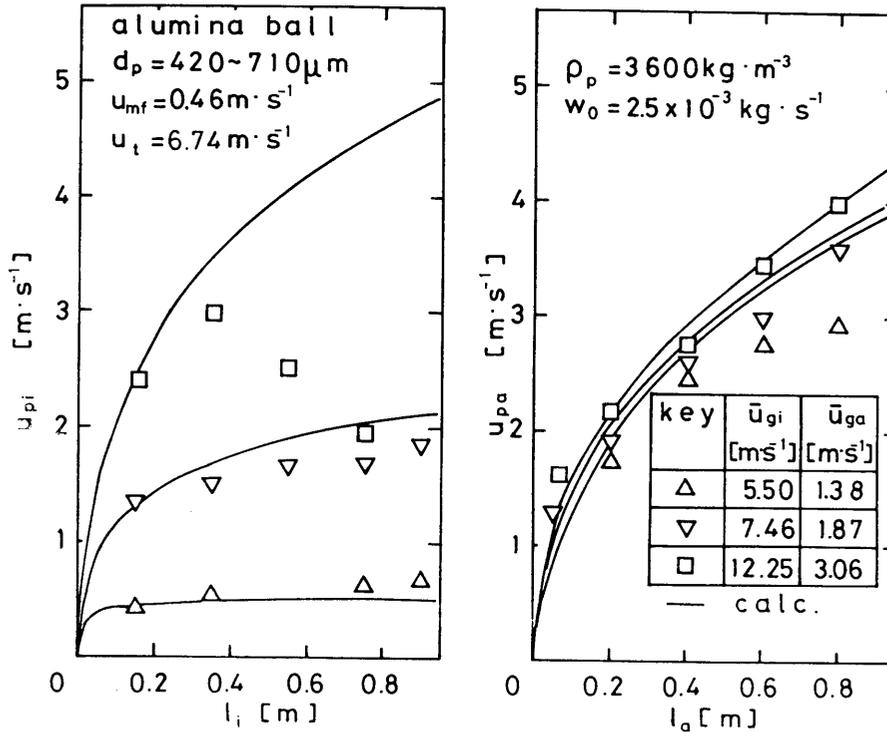


Fig.2-9 Particle velocity distribution of alumina balls along the axes of the inner and the annular parts

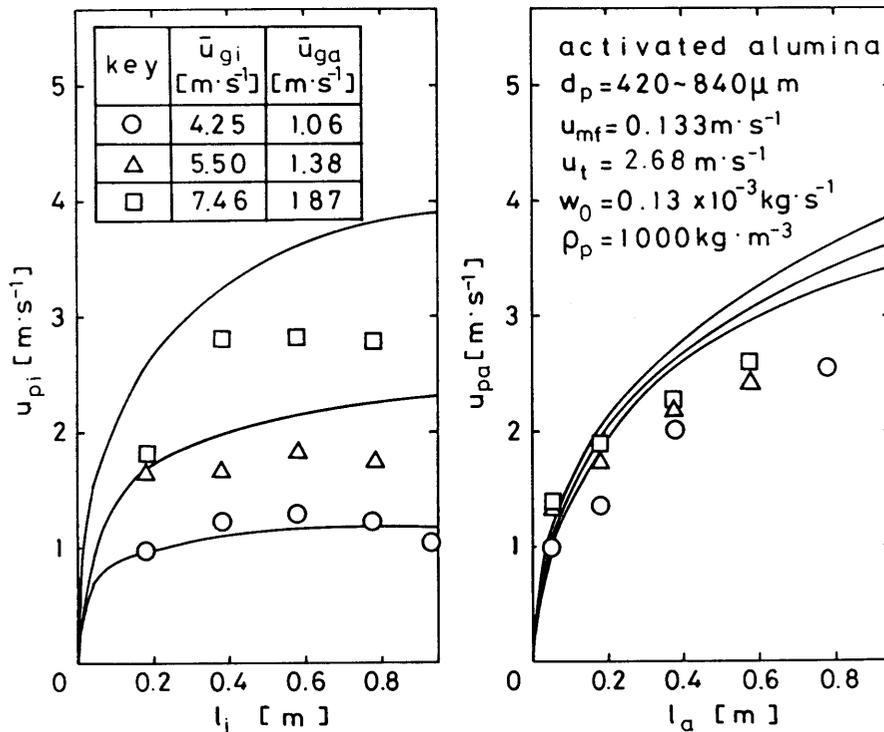


Fig.2-10 Particle velocity distribution of activated alumina balls along the axes of the inner and the annular parts

2・2・3 装置内粒子滞留時間に及ぼす粒子見かけ密度の影響

Fig. 2-11に、第1章で示したガラスビーズの装置滞留時間の結果と、本実験で使った粒子の中で見かけ密度が最大であるアルミナボールの滞留時間の結果を比較して示す。両粒子とも塔高 $l_i = 0.95\text{m}$ の結果であり、図中、 θ_i が内管部粒子滞留時間、 θ_t が内管部および環状部を合わせた装置内全体の滞留時間を表す。図中、 \ominus および \oplus は粒子供給量 v_{p0} を変化させた場合のばらつきの範囲を示す。本図より、アルミナボールの θ_i 、 θ_t の結果は、第1章のガラスビーズの結果と同様な結果を示し、 $\bar{u}_{g,i,min}$ 付近の低ガス流速では、 v_{p0} による影響が存在するが、比較的高ガス流速では v_{p0} の影響はあまり見られなかった。また、 $\bar{u}_{g,i}$ の増加につれて滞留時間は指数関数的に減少する様子がみられる。なお、アルミナボールとガラスビーズの θ_i を比較すると、 $\bar{u}_{g,i} = 5.71\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ の低流速ではその比は約3.1、 $\bar{u}_{g,i} = 12.0\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ の高流速では約1.8と両粒子の密度比1.44に徐々に近づいていく傾向を示した。さらに、両粒子のそれぞれの環状部滞留時間、つまり $(\theta_t - \theta_i)$ を比較すると、本実験条件下ではほぼ一致しており、本装置の環状部では粒子は単なる自由落下現象に近い挙動を示すものと考えられる。

結言

第1章で提案したCFM層型固気接触装置の各種固気接触プロセスへの適用性ならびにスケール効果を詳細に検討するために、2次元可視化コールドモデル装置によって、第1章のガラスビーズ粒子に対する内管内部での粒子流動状態、粒子ホールドアップ、粒子速度分布および粒子滞留時間などの基本特性に加えて、本章では、粒子見かけ密度の異なる3種の粒子（アルミナボール、活性アルミナおよび石炭粒子）を用いて同様な検討を行なった。その結果、本実験範囲内において、内管部で定常高速流動層あるいは気流層を形成しうる最小高速流動化速度が存在し、それは静止流体中の粒子終末速度にほぼ一致したが、粒径の小さい粒子ならびに見かけ密度の大きな粒子では、粒子・粒子間ならびに粒子・壁間の相互作用が無視できず、最小高速流動化速度と終末速度との差は大きくなることが明らかとなった。内管部粒子ホールドアップは、ガラスビーズの実験結果と同様に指数関数的に減少していくものの、粒子見かけ密度の

増大によってその減少傾向は緩やかとなった。粒子速度分布は、見かけ密度の大きい粒子ほど単一粒子の挙動と類似した。さらに、内管部粒子滞留時間は高ガス流速に至るにしたがい、見かけ密度の違いによる内管部滞留時間比が両粒子の見かけ密度比に漸近する様子が認められ、対して、環状部粒子滞留時間は見かけ密度に依存せず、単なる自由落下現象であることが見受けられた。

これらの結果は、本装置を燃焼あるいはガス化装置ならびに乾燥装置などの種々の固気接触装置へ適用する際の安定操作の下限流速、装置内粒子滞留状況、装置スケールアップなどに対し、基本的な指針を呈するものと考えられる。

Nomenclature

d _o = particle diameter	[μ m]
l = height	[m]
P _o = atmospheric pressure	[Pa]
u = velocity	[m·s ⁻¹]
u _{mf} = minimum fluidization velocity	[m·s ⁻¹]
u _t = terminal velocity	[m·s ⁻¹]
v _{po} = volumetric particle feed rate	[m ³ ·s ⁻¹]
w _o = particle feed rate	[kg·s ⁻¹]
ΔP = pressure drop	[Pa]
ε = void fraction	[-]
θ = residence time	[s]
ρ = apparent density	[kg·m ⁻³]
τ = time	[s]

<Subscripts>

a = annular
g = gas
i = inner
min = minimum fast fluidization
p = particle
t = total

<Superscript>

— = mean

Literature cited

- 1) Arastoopour, H., S.C. Lin and S.A. Weil: AIChE J., 28, 3, 467 (1982)
- 2) Capes, C.E. and K. Nakamura: Can. J. Chem. Eng., 51, 31 (1973)
- 3) Zhang, J.Y. and G.Y. Yang: Ind., Eng. Chem. Process Des. Dev., 25, 590 (1986)

第3章 CFM層型固気接触装置の3次元コールドモデルにおける内管部粒子流動特性

緒言

循環流動層燃焼装置をはじめとする流動層の高速操作³⁾ならびにその装置開発に関心が高まっており、前章までに、高速流動層を形成させしかも装置のコンパクト化を図ることを目的としたCFM層型固気接触装置を提案した。また、本装置の基本的な粒子流動特性（粒子流動状態、圧力損失、粒子ホールドアップ、粒子速度分布、粒子滞留時間）を明らかにするために、第1段階として、2次元可視化コールドモデルを試作して実験を行った。

しかし、本装置を石炭燃焼およびガス化、乾燥、固体処理装置などの各種固気接触プロセスへ適用するためには、2次元のような矩形流路のモデルから、より実装置に近い3次元モデルにするとともに、本装置の操作範囲に影響する内管部の粒子流動特性の結果を補足する必要がある。また、既往の研究では、本研究で目的としている装置のコンパクト化を図るための、つまり、スモールスケールの装置での粒子流動特性の結果が乏しいことから独自に実験を行う必要がある。

近年、乱流流動化あるいは高速流動化状態について、その粒子およびガス流動挙動の研究^{2,6)}が盛んに行われているが、それらはほとんどサイクロンあるいはセラミックフィルタで粒子を捕集しライザーへ供給する循環タイプの装置で検討されている。つまり、ライザーと粒子供給部（ダウンカマー）とが独立ではなく並ループで構成されていることから、Wirth⁹⁾が検討しているように、装置内全体に占める粒子量、装置高さおよびガス流速によってある程度ライザー内のマクロな流動状態が決まる可能性がある。しかし、本研究で提案したようなライザーと粒子供給部が独立でしかもコンパクトな装置での粒子流動状態を検討している既往の研究は少なく、本装置を各種固気接触プロセスへ適用するには、スモールスケールの装置を試作し検討する必要がある。

3・1 実験装置および方法

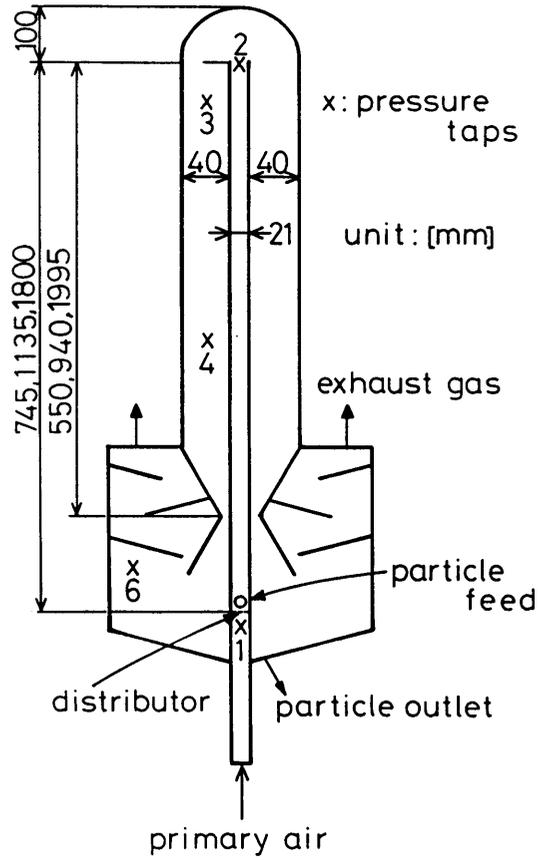


Fig.3-1 Details of 3-dimensional cold model employed

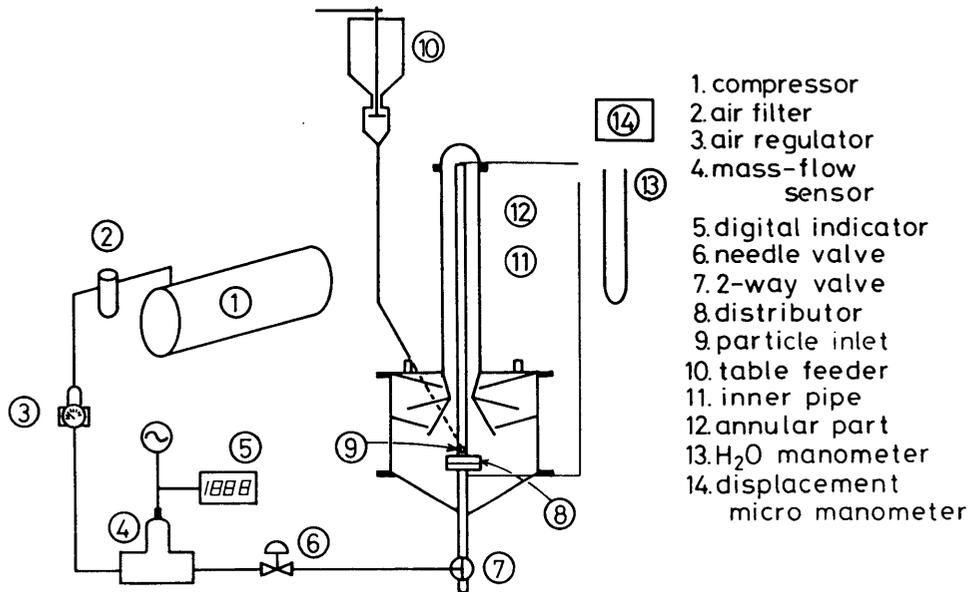


Fig.3-2 Flow diagram of the experimental apparatus

本実験で用いた3次元コールドモデル装置は、第1章で用いた2次元モデルをほぼ円筒状に3次元化したもので、その概略図をFig. 3-1に示す。使用した内管は、内径21mmφ、塔高0.745、1.135および1.80mのガラス管であり、1.8m管については、内管内軸方向の圧力損失分布を計測するための圧力タップが備え付けてある。また、Fig. 3-2のフローダイアグラムが示すように、流動化ガスは、吐出圧を一定とするためにコンプレッサーを用い供給した。コンプレッサーから排出された空気は、マスフローメータにて流量計測された後、内管の底部につけられた分散板（400meshステンレス製金網）下部から供給される。一方、粒子供給は、小流量の場合、スクリューフイーダを、大流量の場合はバブリング状態の流動層フィーダを用いた。流動層フィーダの場合、流動層高を一定に保つために補助フィーダが備え付けてあり、ライザーと供給部との独立性は保たれている。

実験は、所定流量の流動化ガスを導入した後各フィーダによって粒子を内管へ供給し、圧力損失分布が定常になった時点を粒子流動が定常状態に至ったとみなした。定常状態の粒子流動状態は写真撮影により、圧力損失は水マノメータによりそれぞれ観察測定した。内管部の粒子ホールドアップは、ガスと粒子を同時に停止させ内管下部に堆積した粒子を採取し重量測定をすることによって決定した。

本実験で使用した作動粒子は粒径の異なる3種のガラスビーズ（東芝パロテニーニ製）でその物性値をTable 3-1に示す。

Table 3-1 Properties of the glass beads employed

sample	$d_p[\mu\text{m}]$	ρ_p [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]	$u_{mf}\times 10^2$ [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]	u_t [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]	shape
glass beads	74-125	2500	0.82	0.75	sphere
	177-250		3.39	1.70	
	297-420		10.5	2.85	
	420-590		25.5	4.21	

3・2 実験結果および考察

3・2・1 内管部粒子流動状態

Figs.3-3a, bおよびcに、本実験で使用した3次元コールドモデルにおける内管部粒子流動状態の写真を示す。本写真は、塔高 $l_i=0.745\text{m}$ の内管分散板より30cm上部での写真であり、粒子供給量は $G_s=1.73\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ と一定でガス流速を変化させている。Fig.3-3aの粒子流動状態は、粒子流れ方向がガス流れとほぼ平行に均一分散され流れている様子が観察できる。よって、希薄輸送層の範中に分類されると考えられる。Fig.3-3bの流動状態は、本実験条件における圧力損失対ガス空塔速度両対数プロット上で極小値の条件である。本図から、内管部の粒子濃度がFig.3-3aよりも大きく粒子流れも壁近傍で若干不規則に流動しているが、内管コア部での粒子流れはまだガス流れと平行に流動している様子が観察できる。Fig.3-3cの流動条件は、第1章で定義した最小高速流動化速度

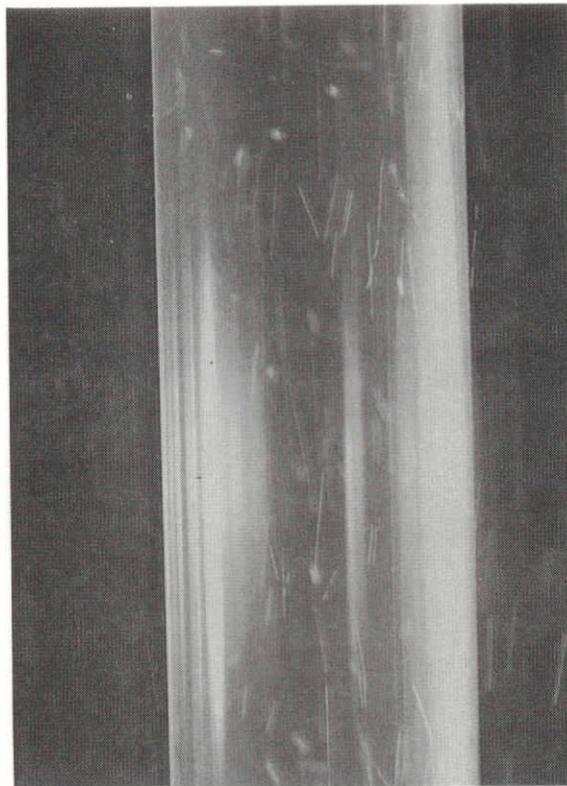


Fig.3-3a Photograph of the glass beads flowing upwards through the inner pipe in the condition of $\bar{u}_{gi}=5.72\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $G_s=1.73\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ at $z_i=0.3\text{m}$

Fig.3-3b Photograph of the glass beads flowing upwards through the inner pipe in the condition of $\bar{u}_{gi}=4.73\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $G_S=1.73\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ at $z_i=0.3\text{m}$

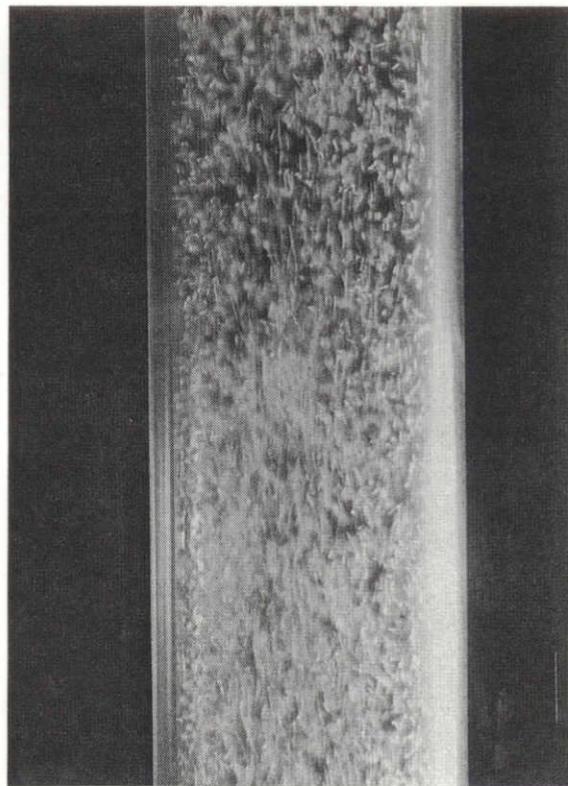
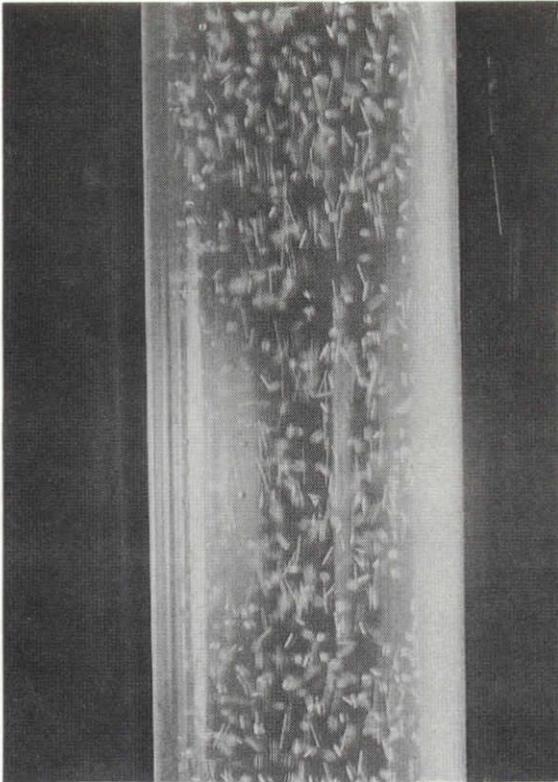


Fig.3-3c Photograph of the glass beads flowing upwards through the inner pipe in the condition of $\bar{u}_{gi}=3.92\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $G_S=1.73\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ at $z_i=0.3\text{m}$

$\bar{u}_{gi,min}$ 付近での粒子流動状態である。本条件の粒子濃度は、他に比較し一番高く、粒子流れも管全体で不規則流れとなっている。また、内管入口から出口までの全体の粒子流れを観察すると、波上の帯のようなものが振動しながら出口方向に移動する状態が観察できた。しかし、供給部付近を除けば、濃厚層、希薄層という明確な区別は認められなかった。

なお、Figs. 3-3a, bおよびcの各写真の流動化状態をHorioら³⁾の流動化マップに対応させると、aが希薄輸送層、bが希薄輸送層と高速流動層の境界ならびにcが高速流動層と乱流流動層の境界に位置した。

3・2・2 内管部粒子流動の安定操作の下限条件

Fig. 3-4に本3次元モデルの安定操作の下限条件である $\bar{u}_{gi,min}$ と粒子供給量 G_s との関係を示す。図中、各プロットが実験結果であり、実線はチョーキングを生じるガス流速についてのPunwaniら⁷⁾の経験式Eqs. (3-1)および(3-2)によって求めた計算結果である。

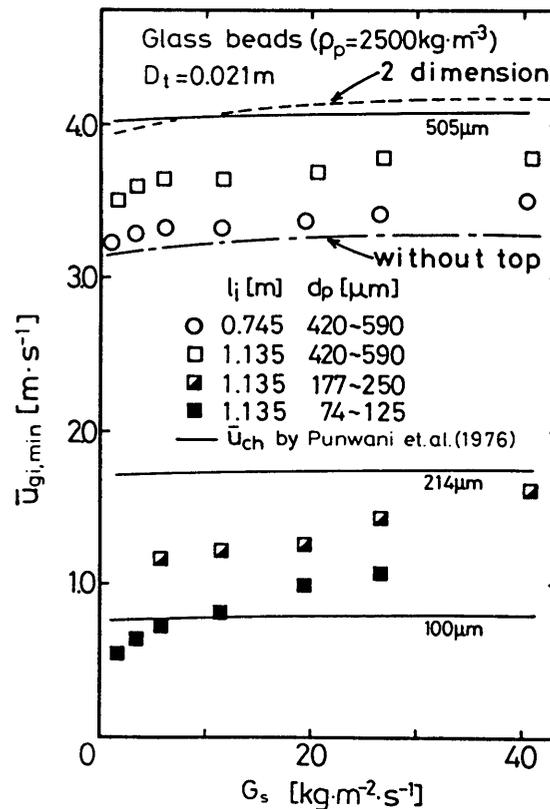


Fig.3-4 Relation between $\bar{u}_{gi,min}$ and u_t

$$\frac{(\bar{u}_{ch}-u_t)^2}{2gD_t} = \left(\frac{1.6}{\rho_f^{0.77}}\right)(\epsilon_{ch}^{-4.7}-1) \quad (3-1)$$

$$\frac{G_s}{\rho_p(1-\epsilon_{ch})} = \bar{u}_{ch} - u_t \quad (3-2)$$

式中、 \bar{u}_{ch} がチョーキング流速、 ϵ_{ch} は \bar{u}_{ch} での空間率、 ρ_f は流体密度を示す。計算は、Eq. (3-2)を(3-1)に代入し、Trial&Errorによって \bar{u}_{ch} を求めたものである。なお、図中の破線および一点鎖線は、2次元コールドモデルの $\bar{u}_{oi,min}$ を $l_i=1.135m$ に換算した結果および $l_i=1.135m$ 装置での端効果を検討するために塔頂部を除去した場合の結果をそれぞれ示す。

本図より、3次元コールドモデルにおける $\bar{u}_{oi,min}$ は、第1章の2次元モデルの結果と同様、粒径の増大により増加した。これは、粒径の違いによる終末速度の違いによるものである。また、本実験条件下において、粒子供給量ならびに塔高についてもわずかではあるが影響がみられた。これは、 G_s および塔高が大きくなるほど粒子・粒子間および粒子・壁間の相互作用が増大することに起因するためと考えられる。

本図において、Punwaniらの経験式は、小粒径ほど本実験結果と一致する傾向がみられている。これは、小粒径でしかも終末速度に近いガス流速ほど加速域が短くなるために装置のスケール効果がみられないことによるものと考えられる。また、 $\bar{u}_{oi,min}$ に及ぼすモデルの違いは、2次元モデルが3次元モデルの $\bar{u}_{oi,min}$ より約 $0.4m \cdot s^{-1}$ 大きな値となっており、2次元モデルが矩形、3次元モデルが円管であることに起因すると考えられる。この流路の違いの効果をブラシウス式によるそれぞれの相当直径比に基づく摩擦係数の比と比較すると、その割合だけ2次元モデルの $\bar{u}_{oi,min}$ は大きくなっていた。

つぎに、3次元モデルで塔頂の端効果を検討するために、キャップを外した場合の $\bar{u}_{oi,min}$ の測定を行った。一点鎖線で示すように、キャップがない場合はある場合よりも若干低い値となっている。この端効果の影響は、本実験条件では最大5%程度であり、 G_s の増加とともに増大する傾向を示している。これは、循環流動層で見られる塔頂部付近で粒子濃度が濃くなる現象に類似してお

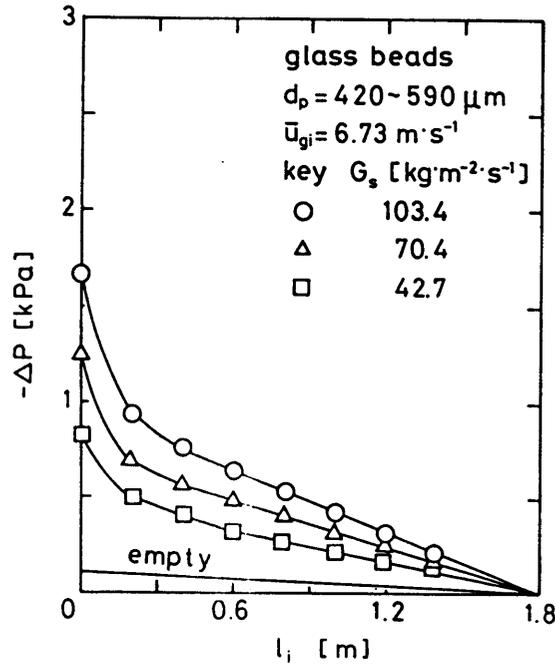


Fig.3-5 Pressure drop distribution along the axis of the inner pipe at a relatively high gas velocity

り、端効果が安定操作条件に影響を及ぼすことが明らかとなった。

3・2・3 内管部軸方向圧力損失分布

内管部の粒子流動状態を定性的に知るために、1.8m塔高の装置で圧力損失の軸方向分布の測定を行った。本実験では、圧力損失を大きくするために粒子供給量を大きくすることができる流動層フィーダを用いた。なお、層高を約1.0mと常に一定とするためフィーダ上部に補助フィーダが設けられており、ライザーと供給部の独立性は保たれている。また、基本的な圧力損失分布を求めるためキャップは取り外してある。

Figs.3-5および3-6に内管空塔ガス流速 6.73 と $3.85 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ の軸方向圧力損失分布をそれぞれ示す。なお、前者は希薄輸送層状態、後者は高速流動化状態の流動領域である。両者とも、粒子の加速域に相当する分散板約 0.3 m 以下の領域を除けば、圧力損失は直線的に減少している。本実験条件下において、この傾向は、ガス流速ならびに粒子供給量に影響せず常に同様な現象がみられた。つまり、この結果は、内管内で濃厚層と希薄層の区別がない流動化状態を意味し、Monceauxら⁵⁾の塔頂部が解放に近いCFBによる結果と類似している。なお、各圧

Fig.3-6 Pressure drop distribution along the axis of the inner pipe at a relatively low gas velocity

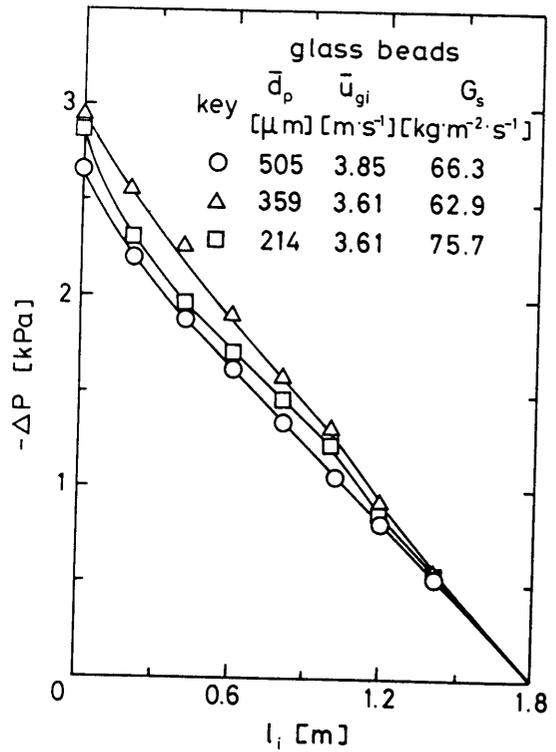
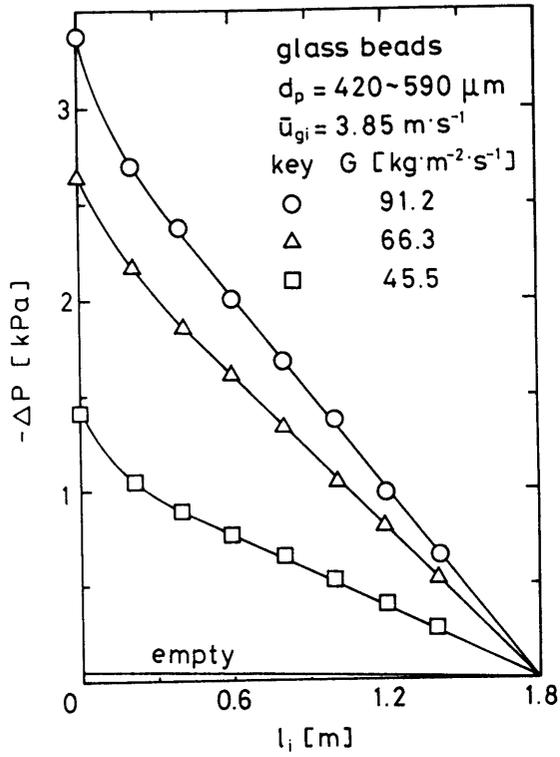


Fig.3-7 Effect of mean particle diameter on pressure drop distribution along the axis of the inner pipe

力損失分布の傾きは、粒子ホールドアップに相当することから、本結果より、粒子供給量の増大あるいはガス流速の減少とともに粒子ホールドアップは増加することが認められた。つぎに、ガラスビーズ粒子径を変化させた場合の軸方向圧力損失分布をFig.3-7に示す。本図より、粒径が小さいほど圧力損失分布は一直線上からずれていることが認められる。しかし、本実験条件下では、小粒径であっても濃厚層、希薄層の明確な区別はみられなかった。

このような軸方向圧力損失分布が直線的に減少する傾向は、ライザーと粒子供給部が独立であり、ガス流速と粒子供給量がある程度自由度をもって操作できる点に起因すると考えられる。この点に関しては今後の検討課題であるが、実際に、ライザーと粒子供給部が独立していないと考えられる循環流動層の既往の研究^{2,6)}において濃厚層・希薄層間のインフレクションポイントが、ダウンカマーの粒子ヘッドに影響されるという傾向が一部の研究で認められる。

3・2・4 内管部粒子ホールドアップと内部粒子循環効果

Fig.3-8に内管部粒子ホールドアップの結果を粒子供給量 G_s をパラメータとしガス流速に対して示した。図中、各プロットがガスと粒子を同時に止める流

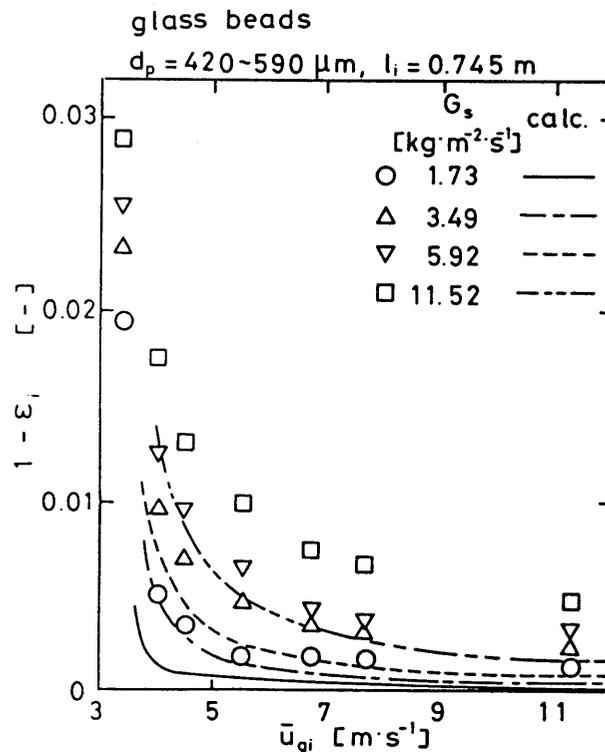


Fig.3-8 Particle holdup in the whole of the inner pipe

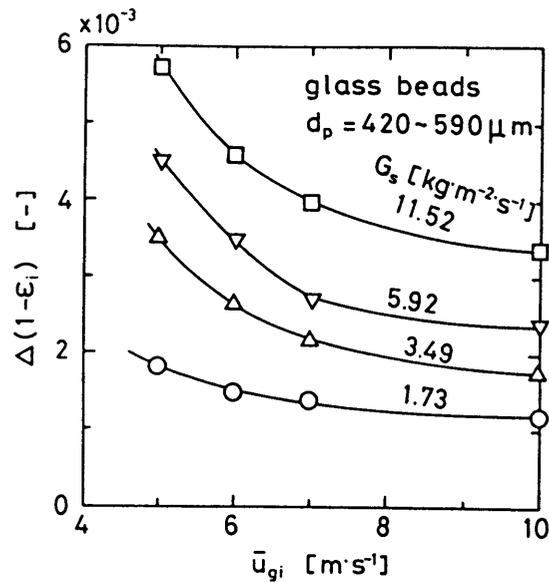


Fig.3-9 Relation between apparent particle holdup of internal particle circulation, $\Delta(1-\epsilon_i)$ and the gas velocity in the inner pipe, \bar{u}_{gi}

動化急停止法によって求めた実測結果を、各曲線は単一粒子の運動方程式により求めた計算結果を示す。なお、本計算結果で用いた粒子径は、ふるい目開きの中位径 \bar{d}_p である $505\mu\text{m}$ を用いた。したがって、 $505\mu\text{m}$ 粒子基準の終末速度以下でも実測は可能であったが、計算上では求めることができない。

本図より、実測粒子ホールドアップは、ガス流速の増加にともない指数関数的に減少している。また、 G_s が大きいほどその減少割合は高くなっている。また、本図において、 $\bar{u}_{gi} = 3.4\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ 付近が $\bar{u}_{gi, \min}$ の条件に相当するが、その実測粒子ホールドアップは最高0.03まで達し、コンパクトな装置ではあるが、Capesら¹⁾およびSatijaら⁸⁾の結果と同様な傾向を示した。

実測結果と計算結果の差は、単一粒子の運動方程式の粒子運動をガス流れと平行に流れると仮定した解析であることから、見かけの内部粒子循環量に相当するものと考えられる。そこで、Fig.3-9に実測結果と計算結果の差 $\Delta(1-\epsilon_i)$ をガス流速 \bar{u}_{gi} に対してプロットして示した。本図より、見かけの粒子循環量 $\Delta(1-\epsilon_i)$ は、ガス流速の増加とともに減少しているが、その減少傾向は、 G_s の減少とともに緩やかになっている。つぎに、 $\Delta(1-\epsilon_i)$ と G_s との関係をガス流速をパラメータとしてFig.3-10に両対数プロットして示した。本図より、本

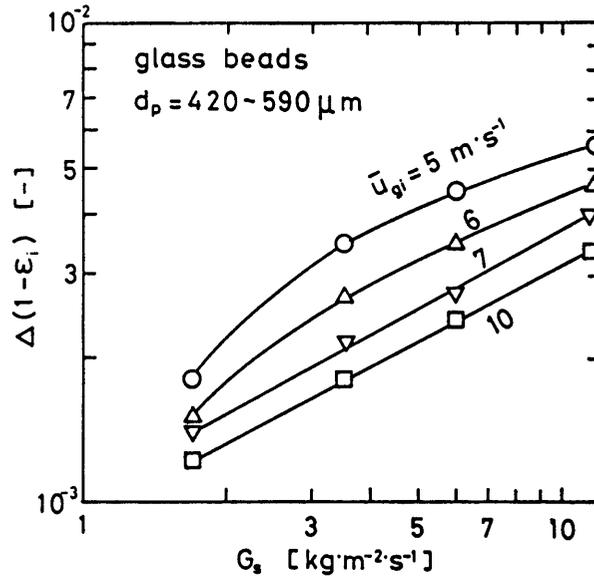


Fig.3-10 Relation between apparent particle holdup of internal particle circulation, $\Delta(1-\epsilon_i)$ and the particle feed rate, G_s

実験条件では、 \bar{u}_{gi} が大きいほど両者の関係は対数プロット上で直線になっていることが認められる。しかし、 $\bar{u}_{gi}=5$ および $6\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ の条件では、上に凸の分布を示しており、流動状態が高ガス流速域と異なることを意味していると考えられる。この結果は、高ガス流速域で示す希薄層状態での $\Delta(1-\epsilon_i)$ と G_s との関係が、ある程度推定できることを意味する。なお、粒子循環量の結果ではないが、Katoら⁴⁾の報告でも希薄層の $\epsilon_i/(1-\epsilon_i)$ と G_s が対数プロット上で直線関係になることを示している。

結言

流動層の高速操作をとりいれたCFM層型固気接触装置の各種プロセスへの実用化の可能性を模索するために3次元コールドモデルを用いて、定常操作に重要な因子となり得る内管部の粒子流動特性について検討を行った。その結果、定常操作の下限条件である最小高速流動化速度は流路の違いから2次元より3次元モデルのそれが小さくなった。また、3次元モデルに関して、端効果が若干ではあるが認められた。軸方向圧力損失分布の測定を行ったところ、本実験条件下では、濃厚層と希薄層の明確な区別を持たない単一層の流動化状態であることが認められた。また、内管部の粒子ホールドアップを測定し見かけの粒

子循環量を求めたところ、ガス流速の増加とともに緩やかに減少すること、粒子供給量の増加とともに増加すること並びに高ガス流速域の見かけの粒子循環量と粒子供給量の関係がある程度推定できることが認められた。

Nomenclature

d_p	= particle diameter	[μm]
D_i	= inner diameter of the inner pipe	[-]
g	= gravitational acceleration	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$]
G_s	= particle feed rate per unit area	[$\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$]
l_i	= height of the inner pipe	[m]
\bar{u}_{ch}	= choking gas velocity	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
\bar{u}_{gi}	= gas velocity in the inner pipe	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
$\bar{u}_{gi, min}$	= minimum fast fluidization velocity	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
u_{mf}	= minimum fluidization velocity	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
\bar{u}_{pi}	= particle velocity in the inner pipe	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
u_t	= terminal velocity of a single particle	[$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]
V_{p0}	= volumetric particle feed rate	[$\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$]
z_i	= distance from the distributor	[m]
$-\Delta P$	= pressure drop in the inner pipe	[Pa]
$\Delta(1-\epsilon_i)$	= apparent particle holdup of internal particle circulation	[-]
ϵ_{ch}	= void fraction at choking	[-]
ϵ_i	= void fraction in the inner pipe	[-]
ρ_p	= apparent density of a particle	[$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]
ρ_f	= density of air	[$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]

Literature cited

- 1) Capes, C.E. and K. Nakamura: Can. J. Chem. Eng., 51, 31(1973)
- 2) "Circulating Fluidized Bed Technology", P. Basu(ed.), Pergamon Press (1985)
- 3) Horio, M.: Funtai Kogaku Kaishi, 23, 2, 80(1986)
- 4) Kato, K., Y. Ozawa, H. Endo, M. Hiroyasu and T. Hanzawa:
"FLUIDIZATION V", K. Ostergaard and A. Sorenson(eds.), Engineering Foundation, 265(1986)
- 5) Monceaux, L., M. Azzi, Y. Molodtsov and J.F. Large: "Circulating Fluidized Bed Technology", P. Basu(ed.), Pergamon Press, 185(1985)
- 6) Proc. 2nd Intl. Conf. on Circulating Fluidized Beds, (1988)
- 7) Punwani, D.V., M.V. Modi and P.V. Tarman: Proc. Intl. Powder and Bulk Solids Handling and Processing Conf., Powder Advisory Centre, Chicago (1976)
- 8) Satija, S., J.B. Young and L.S. Fan: Powder Technol., 93, 257(1985)
- 9) Wirth, K.E.: Chem. Eng. Technol., 11, 11(1988)

第4章 熱循環式CFM層型石炭燃焼装置の燃焼特性

緒言

従来の固体燃焼装置、とりわけ石炭燃焼装置は、微粉炭燃焼、流動層燃焼ならびに移動層燃焼方式が、広く一般的に適用され実用化されている。しかし、近年のエネルギー事情ならびに環境問題の観点から、来る石炭燃焼装置は次のような条件を満足しなければならないと考えられている。i)高効率燃焼、ii)NO_x、SO_xおよび灰粒子のような環境汚染物質の燃焼室内での低減、iii)脱硫剤利用効率の向上、iv)多炭種ならびに広い粒径分布への適用性、v)燃焼装置の小型化。これらの課題は、場合によっては相反する要素を有し、従来型の燃焼装置では、その操作条件がある狭い領域しか適合できなくなる可能性がある。

前章までに、流動層の高速操作⁴⁾の応用装置の1つとして、内管部に高速流動層あるいは気流層を環状部に移動層を形成させるCFM層型固気接触装置を提案するとともに、塔高の異なる2次元および3次元コールドモデルを試作して、定常操作の下限条件である最小高速流動化速度、粒子ホールドアップ、粒子速度分布、装置内圧力損失および粒子滞留時間を見かけ密度の異なる4種の粒子(ガラスビーズ、アルミナボール、活性アルミナおよび石炭粒子)を用いて明らかにした。そこで、本章では、これらの2次元および3次元コールドモデルの基本的な粒子流動特性の結果を参考にし、このCFM層型固気接触装置を比較的小型の石炭燃焼ボイラへ応用することを検討した。

Fig. 4-1に、前述した来る石炭燃焼装置の必要条件を最適化するような本CFM層型燃焼装置の設計概念図を示す。固体燃料ならびに脱硫剤である石灰石粒子は内管下部に供給され、内管部において第1段燃焼である部分燃焼が行われる。引続き、内管部から噴出したチャー粒子は、内管部出口付近の2箇所から供給される2次空気によって、環状部を巡回しながら流下し、第2段燃焼であるチャー燃焼が行われる。ここで、チャー粒子の燃焼熱により環状部温度が内管部のそれより高温になり、燃焼熱の一部が環状部から内管部へ熱循環する。この現象により、内管部における部分燃焼の促進が期待できる。最後に、Carbon Burnup Cell(CBC)の概念から、環状部出口付近の縮流部に2~3cmの粒子を充填することにより、チャー粒子の滞留時間を長くするとともにその部分をチ

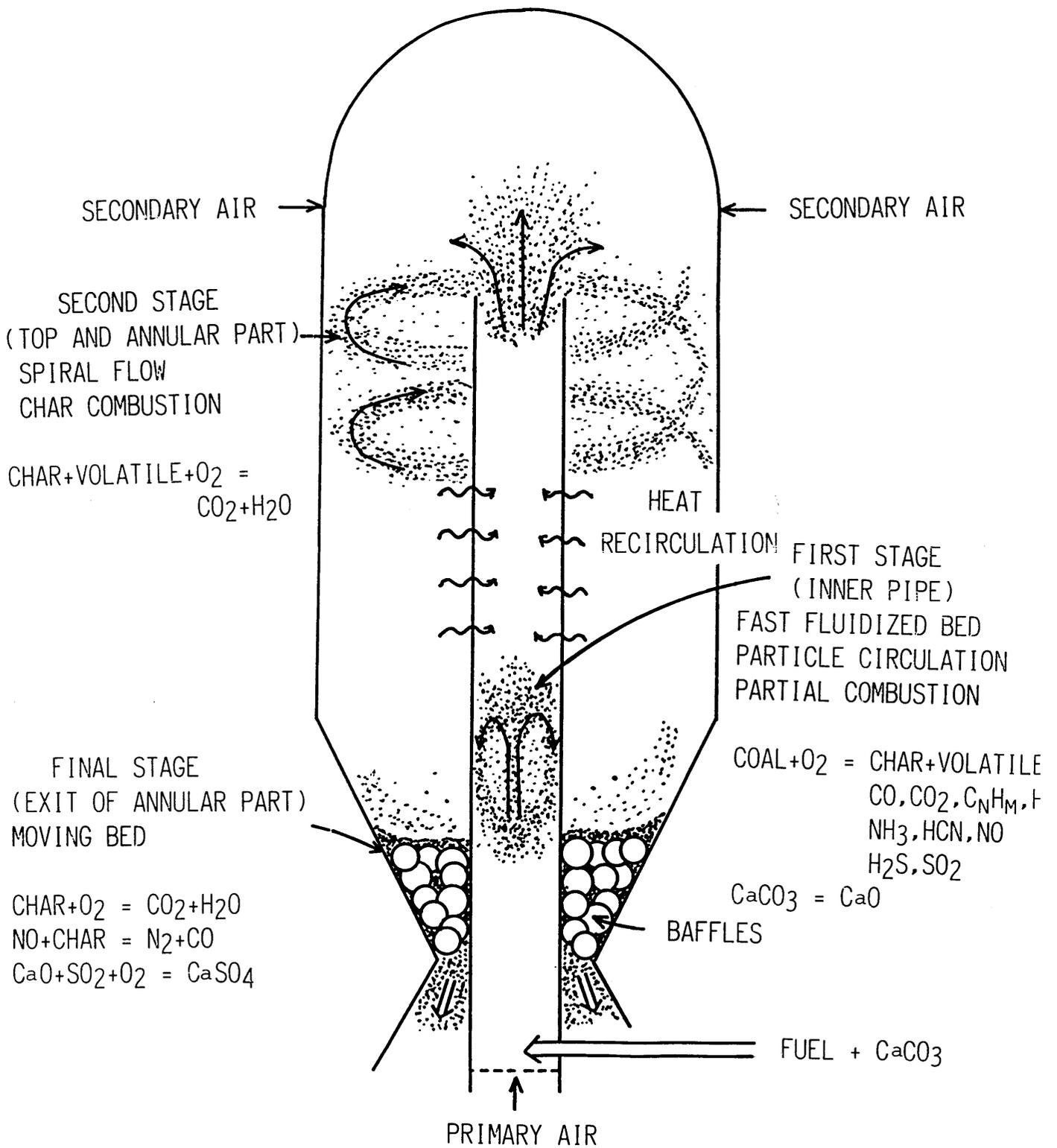


Fig.4-1 Conceptual drawing of CFM-bed combustor

チャー粒子ならびにアッシュによる移動層に近い状態にし、最終段燃焼場を形成させる。この移動層の役割は、燃焼および脱硫の完結^{2,3)}、未燃チャーならびにCaOによるNO_xの低減^{1,5)}などである。また、ボイラとして機能するための伝熱部は、粒子による摩耗が少ない環状部ならびに装置外壁に設定可能である。

本章では、実験室規模のCFM層型燃焼装置を試作し、本装置における基本的な燃焼特性を豪州褐炭であるLoy Yang炭ならびにコークスの2種の低品位固体燃料を用いて明らかにした。また、従来メタンなどのようなガス燃焼の分野では燃焼装置（バーナーなど）の安定燃焼限界に関する研究が数多くなされているが、固体燃焼装置における固体燃料の着火限界に関してはほとんど検討されていない。そこで、固体燃焼装置の操作安定性を評価する意味で本装置における安定過濃燃焼限界および希薄燃焼限界について実験的に検討を試み、本装置の操作範囲について明らかにした。さらに、燃焼実験の温度分布の結果などから各燃料の本装置における着火機構に関しても検討を行った。

4・1 実験装置および方法

Fig. 4-2に、本燃焼装置のフローダイアグラムを示す。1次および2次空気ともブロー(1)により供給され、流量調整バルブ(2)、オリフィス(3)、予熱部(4)を通り、1次空気は内管部へ、2次空気は環状部の2箇所から接線方向にそれぞれ導入される。固体燃料はスクリーフィーダ(6)によって内管部分散板(5)直上部に一定供給される。塔頂部には固体燃料着火用のメタン-空気バーナー(8)が取り付けられている。排ガスならびに排出アッシュはアッシュボックス(10)ならびにダストコレクター(11)において固気分離される。

つぎに、本CFM層型固体燃焼装置の詳細図をFig. 4-3に示す。本装置はSUS 316L製で、塔高が2000mmと比較的コンパクトな形状である。内管は高さ1700mm、内径36mm、環状部は長さ800mm、幅84mmである。分散板はステンレス製400mesh金網を用い、粒子供給口の直下部に取り付けられている。図中、×印は0.3mmC.A.熱電対の挿入位置を表し、打点式記録計によって常時温度分布が測定できる。実験中、燃焼ガスならびに燃焼粒子を採取するために、3mm外径のステンレス管が内管部に挿入可能であり、環状部には水冷ジャケット(長さ100mm)付きのサンプルプローブ(長さ415mm、内径6.5mmφ)が5本備え付けてある。また、

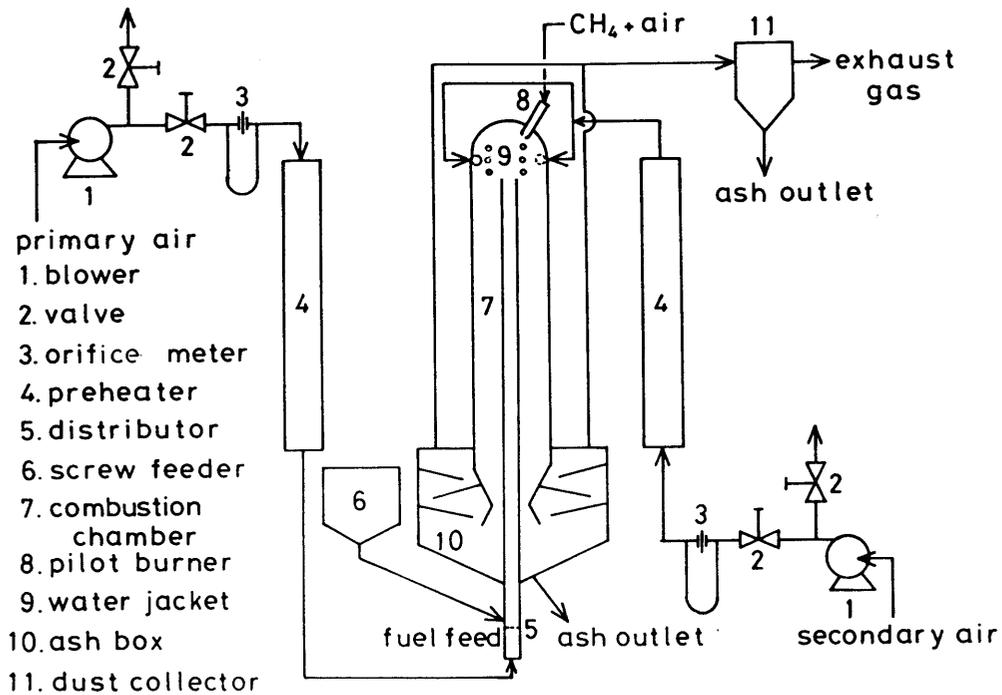


Fig.4-2 Flow diagram of the combustion experimental apparatus

本装置外壁には、燃焼室からの熱損失を防ぐことを目的として、カンタルヒーターならびにカオウール断熱材（厚さ110mm）が巻かれてある。

実験方法は、まず、1次および2次空気を予熱部(4)によって約573Kまで加熱するとともに、燃焼室外壁に巻かれてあるカンタルヒーターによっても加熱を行う。燃焼室内温度分布がほぼ均一になったところで、塔頂部の着火バーナーを点火し、スクリーフィーダによって粒子の供給を開始する。熱電対示度温度の経過より、固体燃料がほぼ安定に着火していることが確かめられたら着火バーナーを切るとともに各予熱空気を徐々に約323Kまで冷却していく。なお、この際のカンタルヒーターは、極力管壁からの放熱損失を防ぐために、環状部軸方向の温度分布をモニタリングしながら通電した。その後、燃焼室および外壁の熱電対示度が一定となった時点を燃焼状態が安定でしかも定常状態に達したとみなし、各サンプルプローブから燃焼ガスおよび燃焼粒子を採取する。サンプルされた燃焼ガスはガスクロマトグラフ（柳本製G-3800およびHSG-1）およびNO_xメーター（柳本製ECL-7S）によって、燃焼粒子はCHNコーダー（柳本製MT-2）によってそれぞれ分析定量される。

なお、本章では、本CFM層型燃焼装置の基本燃焼特性ならびに固体燃料の

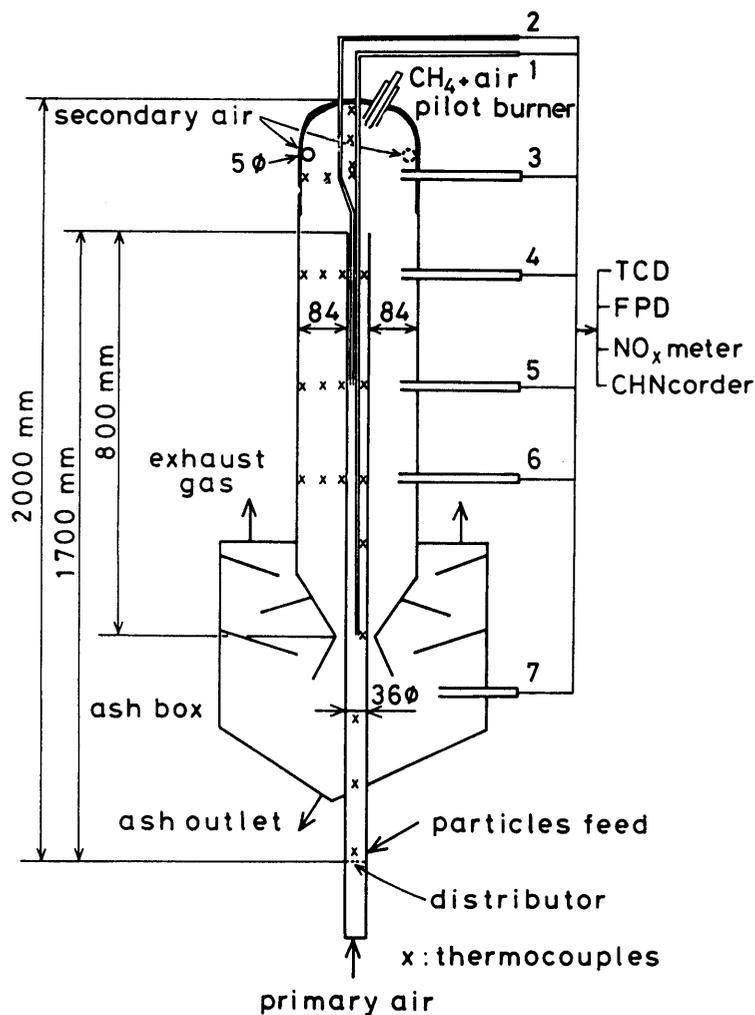


Fig.4-3 Details of CFM-bed combustor

安定燃焼限界を明らかにすることを目的としたため、各々の実験は2次空気を供給せず1段燃焼法によって行った。また、同様な意味から環状部出口付近において移動層を形成するための充填粒子は詰めなかった。

4・2 使用固体燃料

本実験で使用した固体燃料は、低品位炭に属するLoy Yang炭およびコークスの2種で、それらの固体分析結果をTable 4-1に示す。Loy Yang炭は、粉碎後所定の粒径にふるい分けて燃焼実験に用いたが、コークスはコークス工場のバグフィルタで集塵されたもので本表に示す粒径分布である。本表からわかるようにLoy Yang炭は比較的揮発分、水分が多く含まれているが灰分は少ない。低発熱量も $22.2\text{MJ}\cdot\text{kg}^{-1}$ と小さく低品位炭に属するものと考えられる。一方、コーク

Table 4-1 Sample solid fuels employed

Loy Yang coal

Ultimate Analysis[wt%]		Proximate Analysis[wt%]	
C	68.6	Fixed Carbon	41.1
H	5.0	Volatile Matter	45.6
N	0.6	Moisture	12.2
S	0.29	Ash	1.1
O	24.41		

$d_p = 125-250, 250-540 \mu\text{m}$

Coke

Proximate Analysis[wt%]		Diameter Distribution	
Fixed Carbon	98.6	- 53 μm	72.2 %
Volatile Matter	0.5	53- 74	9.3
Moisture	0.2	74-105	5.7
Ash	0.7	105-149	5.7
		149-	7.1

Yallourn coal

$\rho_p = 1300 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$

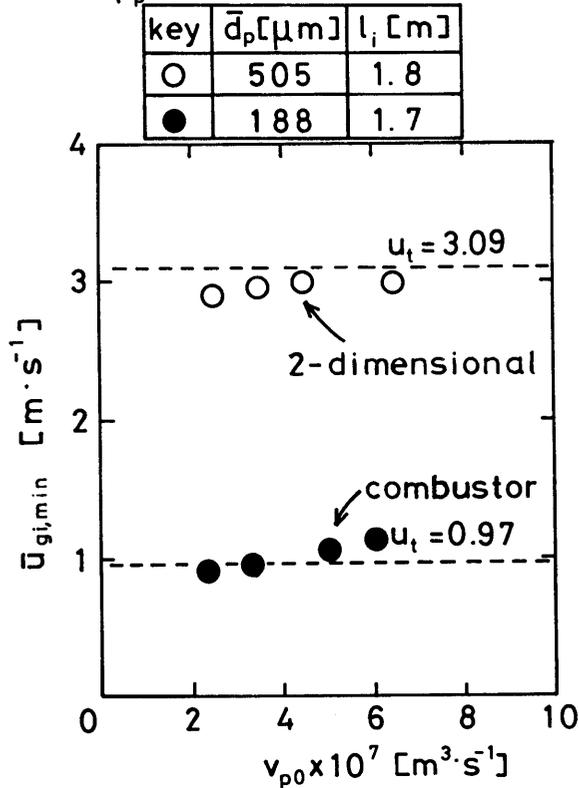


Fig.4-4 Hydrodynamic critical gas velocity in the inner pipe under the non-combustion state

スは、低発熱量が $34.1\text{MJ}\cdot\text{kg}^{-1}$ と高いのであるが、一般的に燃焼速度が小さいため、その意味から低品位炭として取り扱った。

4・3 実験結果および考察

4・3・1 流体力学的下限条件; $\bar{u}_{0,i,min}$

前章までの2次元および3次元コールドモデル実験における内管ガス流速に関して、定常操作の安定条件が存在することを明らかにし、これを $\bar{u}_{0,i,min}$ と定義した。さらに、この $\bar{u}_{0,i,min}$ が各粒子の静止流体中の終末速度と相関されることも示した。本実験では、この $\bar{u}_{0,i,min}$ が後述する安定過濃燃焼限界と関連するものと考え、まず、本燃焼装置のコールド時における $\bar{u}_{0,i,min}$ を測定した。Fig. 4-4にYallourn炭を試料に用いた場合のコールド時の $\bar{u}_{0,i,min}$ の結果を示す。本実験に使用したYallourn炭は、燃焼実験で取り扱うLoy Yang炭と同じ種類の豪州褐炭であり、見かけ密度 ρ_p は $1300\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ である。図中、 $v_{p,0}$ は体積基準の粒子供給量を表し、破線は平均粒径 \bar{d}_p における静止流体中の終末速度 u_t を示す。本図より、 $\bar{u}_{0,i,min}$ は約 $1.0\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ となりこれ以上であれば安定した高速流動層あるいは気流層状態を呈するものと考えられる。比較として、粒径は異なるが第2章の2次元コールドモデル実験における $\bar{u}_{0,i,min}$ の実験結果をプロットした。両結果ともほぼ u_t と一致した。

4・3・2 安定過濃燃焼限界

i) 小粒径Loy Yang炭 本章では、先述したように基本的な燃焼特性を明らかにするために、2次空気を供給しない1段燃焼法によって燃焼実験を行った。すなわち、本章で定義する安定過濃燃焼限界とは、定常的に着火する適当な1次空気比の条件から実験を開始し、その後徐々に空気比を減少させ固体燃料の着火が不可能になるまでの1次空気比の値として定義した。現象としては、空気比の変化にともなって温度分布が降下し、その後、定常にならないような条件の空気比を求めた。

Figs. 4-5および4-6にLoy Yang炭 $125\sim 250\mu\text{m}$ （以後、小粒径と呼ぶ）を試料として燃焼実験を行った場合の燃焼室内温度分布ならびにガス組成分布の結果をそれぞれ示す。図中、 w_0 は粒子供給量、 A_0 は理論空気量、 m_1 は1次空気比

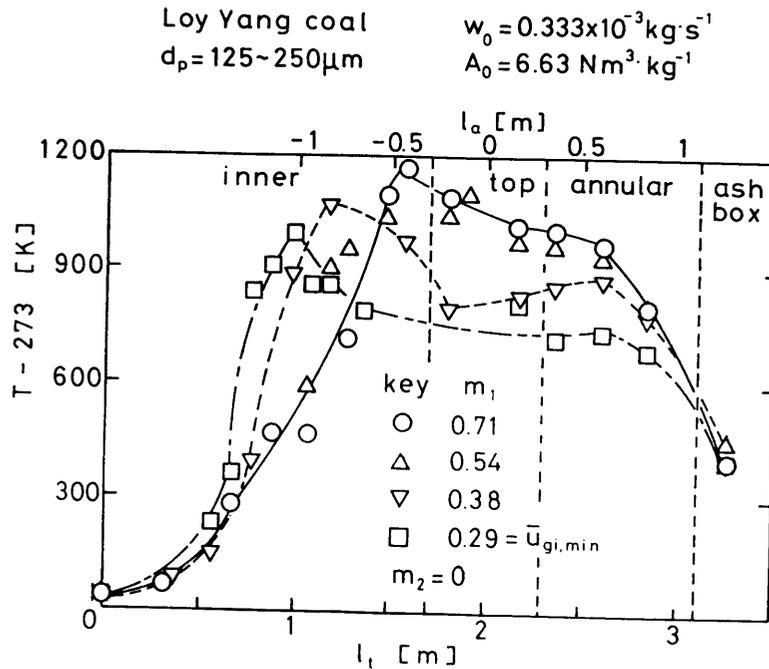


Fig.4-5 Temperature distribution in the combustor during the combustion of Loy Yang coal with a fine diameter (Rich combustion limit)

をそれぞれ示す。また、縦軸は燃焼室内熱電対示度温度を、横軸の l_t および l_a は内管部入口からアッシュボックス出口までの距離および塔頂部トップを基準とした内管部ならびに環状部の距離をそれぞれ表す。なお、 $w_0 = 0.333 \times 10^{-3} \text{kg} \cdot \text{s}^{-1}$ は内管部断面積基準の負荷量に換算すると約 $7.26 \text{MW} \cdot \text{m}^{-2}$ に相当し、濃厚流動層燃焼装置に比較して大きい値である。本実験は、本装置における小粒径 Loy Yang 炭の安定過濃燃焼限界を求めるために行ったもので、実験方法は 1 次空気比 m_1 を 0.71 から徐々に減少させ最終的にはコールド時の $\bar{u}_{gr, min}$ に相当する空気比 $m_1 = 0.29$ まで下げて行った。

Fig. 4-5 より、各条件における温度パターンは空気比の減少にともない低下しながら内管下部の方へ移動している。また、トップから 1 m の距離 ($l_a = \pm 1 \text{m}$) における環状部と内管部の温度差は、 m_1 が減少するほど小さくなり、 $m_1 = 0.38$ および 0.29 の条件においては、内管部温度が環状部温度より高くなっていることが認められる。なお、本実験の環状部の温度分布が出口に近づくにつれて低下しているのは、本装置のアッシュボックスが取り付けられているフランジからの放熱損失によるものと考えられる。

本実験の燃焼室内の温度分布の傾向は、Fig. 4-6に示したガス組成分布からも見受けられる。例えば、 O_2 の濃度変化の結果を見ると、 m_1 が小さくなるほど環状部での O_2 の消費が小さくなり、主として内管部で消費されていることがわかる。ただし、本実験の CO_2 ならびに CO 濃度の結果については、装置内が還元状態にあるために炭素、 CO ならびに CO_2 などが複雑に相互作用するものと考えられ、統一的な現象の説明は得られなかった。これらの結果より、本燃焼装置における着火機構を考察すると、 $m_1=0.29$ および 0.38 の様な空気比が低い場合は環状部から内管部への熱循環効果は小さいので着火熱源としては内管内部での粒子循環現象が影響していると考えられる。一方、 $m_1=0.71$ のように空気比が大きい条件では環状部から内管部への熱循環効果が大きくなっており、粒子循環効

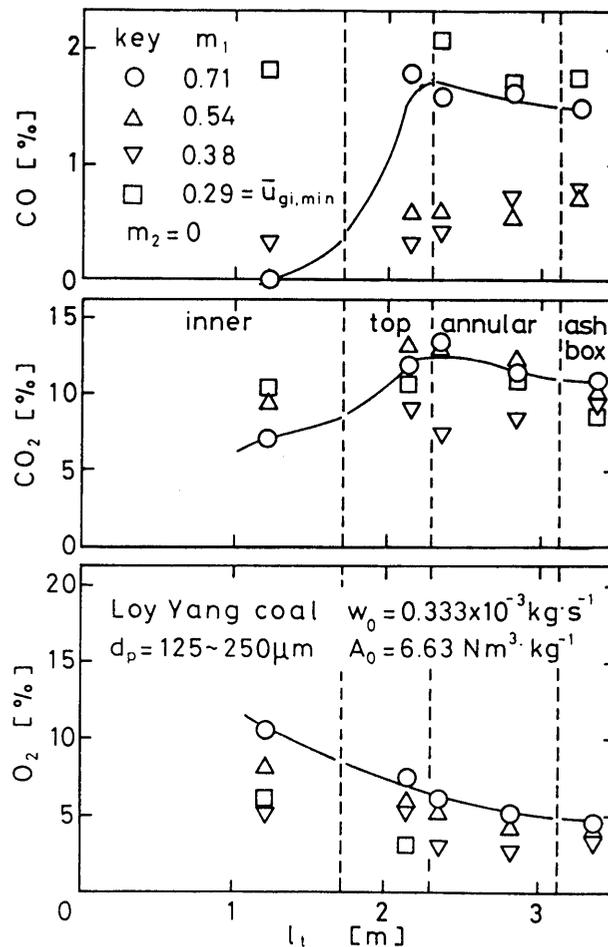


Fig.4-6 Combustion gas-composition distribution in the combustor during the combustion of Loy Yang coal with a fine diameter (Rich combustion limit)

果のみならず熱循環効果も寄与していると推測される。なお、前者で述べた粒子循環現象は、第3章のガラスビーズを作動粒子として用いた3次元コールドモデルの粒子ホールドアップの実測結果ならびに目視観察からも認められた。

以上の結果より以下に、本装置における小粒径Loy Yang炭の安定過濃燃焼限界について考察する。Fig. 4-5において、 $m_1=0.71$ 、 0.54 ならびに 0.38 の実験条件では定常的に安定燃焼が行われたが、さらに空気比を下げコールド時の $\bar{u}_{o,i,min}$ に相当する $m_1=0.29$ の条件になると、固体粒子は空気の膨張効果によって粒子流動の安定操作は可能であったものの温度分布はやや不安定状態を示すことが観察された。よって、この $m_1=0.29$ における実験結果は、装置本体の持つ大きな熱容量で一時的に着火し燃焼しただけで、小粒径Loy Yang炭の安定過濃燃焼限界はほぼ $m_1=0.3$ 付近に存在するものと考えられ、本実験条件下では、 $\bar{u}_{o,i,min}$ と一致した。本結果は、ガス燃焼における逆火現象が固体燃料の燃焼において生じないことを意味する。

なお、参考として、Table 4-2に $l_t=1.27\text{m}$ （内管部出口近傍）および $l_t=2.84\text{m}$ （環状部出口近傍）におけるアッシュ重量基準のH、CおよびNの割合ならびに燃焼効率 η_c を示す。なお、この η_c は、供給燃料中のC分の各位置における CO_2 への転化量の割合から算出した。また、各H、CおよびNの値は原炭（L

Table 4-2 Weight fraction of H, C and N and combustion efficiency (Rich combustion limit)

element	H*		C*		N*		η_c [%]	
raw coal	4.5		62.4		0.55		—	
l_t [m]	1.27	2.84	1.27	2.84	1.27	2.84	1.27	2.84
$m_1=0.71$	0.71	0.04	35.9	7.3	0.56	0.11	26.6	43.8
0.54	0.08	0.13	—	21.5	0.14	0.17	27.5	36.0
0.38	0.18	0.28	29.2	28.9	0.32	0.40	13.2	16.9
0.29	0.51	0.37	46.6	39.1	0.49	0.40	16.2	17.2

$l_t=1.27\text{ m}$: inner, $l_t=2.84\text{ m}$: annular

* ash weight basis

oy Yang炭)のアッシュの割合が1.1%と少ないために、測定誤差あるいはサンプルの不均一性が存在するものと考えられるので、ここでは総体的な傾向だけを考察する。本表より、全体の燃焼効率に占める内管部の燃焼効率の割合は、60~94%と空気比が小さいほど大きくなっている。さらに、サンプル粒子中のC分割合の環状部における減少変化量も m_1 が減少するにしたがって小さくなっていることがわかる。これらの結果から、 m_1 が低くなるほど主燃焼帯は内管部へ移行していることが認められ、Fig.4-5の温度分布の結果と大略一致する。

ii)大粒径Loy Yang炭 Fig.4-7に、本CFM層型燃焼装置における大粒径Loy Yang炭(250~540 μm)の燃焼室内温度分布の結果を示す。図中、熱循環効果の一応の目安を示すために、トップからの距離 l_a が0.8mにおける環状部温度と内管部温度の差を ΔT で表した。また、1次空気比 $m_1=0.63$ の条件は、コールド時における大粒径Loy Yang炭の流体力学的下限条件 $\bar{u}_{gi,min}$ である。本図より、内管部の温度分布は、小粒径の実験結果と異なり $m_1=0.63\sim 1.32$ という

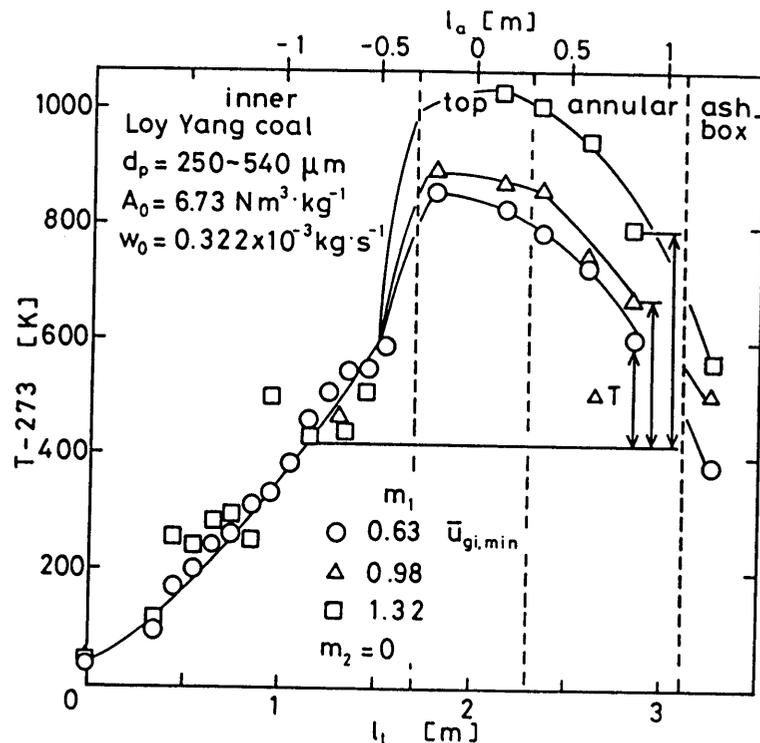


Fig.4-7 Temperature distribution in the combustor during the combustion of Loy Yang coal with a coarse diameter (Rich combustion limit)

実験条件下においてほぼ同様な分布を示している。一方、環状部温度分布は m_1 の減少にともない低下し、ピーク温度も 1283~1020K まで下がっている。また、本実験条件下における $l_a = \pm 0.8\text{m}$ における環状部と内管部の温度差 ΔT は 170~390K に達し、しかもほぼ環状部全体が内管部より高温になっている。

ここで、これらの結果より、大粒径の場合の着火機構を推測する。まず、大粒径であるので前述した小粒径の場合より内管内部における粒子循環効果は増大するものと考えられるが、粒径の増大にともなって物質移動抵抗ならびに熱抵抗などが増大しこのときの燃焼速度は小粒径のときよりも減少することが考えられる。このことと環状部温度が内管部全体にわたって高温であるという結果を併せ考察すると、本実験条件における着火機構は粒子循環効果ばかりではなくおもに熱循環効果による影響が大きいものと考えられる。

また、本実験条件下では、 $m_1 = 0.63$ というコールド時における流体力学的下限条件においても定常操作が可能であったので、安定過濃燃焼限界は $m_1 = 0.63$ 以下にあると考えられる。

4.3.3 安定希薄燃焼限界

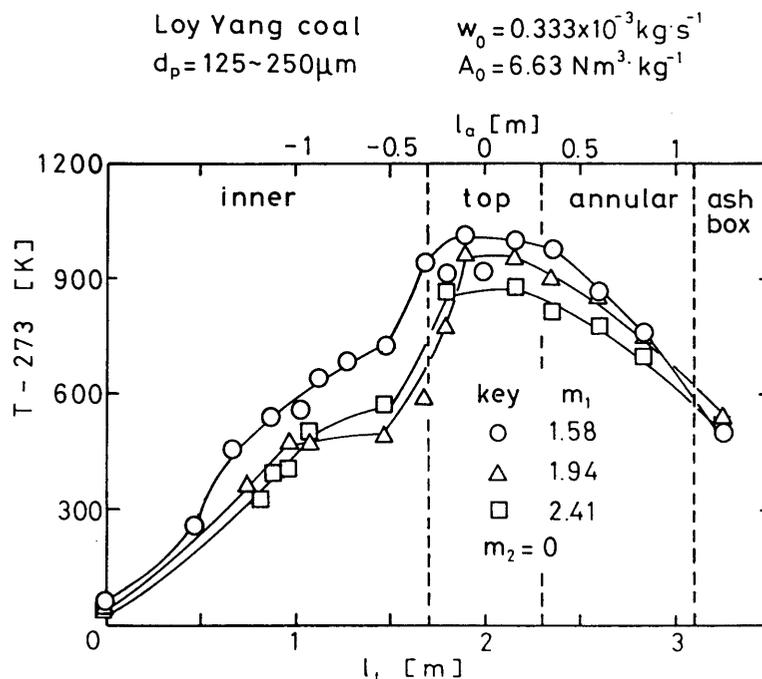


Fig.4-8 Temperature distribution in the combustor during the combustion of Loy Yang coal with a fine diameter (Lean combustion limit)

i) 小粒径Loy Yang炭 Fig. 4-8に、小粒径Loy Yang炭を用いて、1次空気比 m_1 を1.58から2.41と希薄な領域で燃焼させた実験の燃焼室内温度分布の結果を示す。本図より、本実験条件下において、装置内温度レベルは空気比の増大にともなって下がっているもののお互いの温度パターンは類似している。また、本実験の内管部の温度勾配はFig. 4-7の大粒径の内管部の温度分布と同様な傾向を示しており、環状部温度は内管部のそれより高くなっている。これらの結果は、空気量の増大にともなう希釈効果ならびに空気比の増大にともなう内管部ガス流速の増大による内管内での粒子循環効果の減少によって生ずるものと考えられる。従って、着火に必要な熱源は環状部からの熱循環によるものと考えられる。

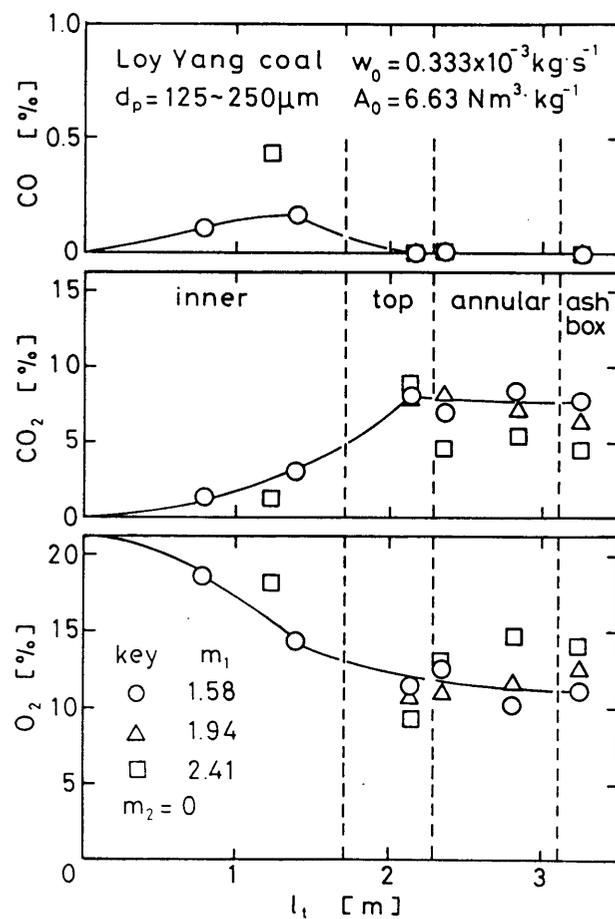


Fig.4-9 Combustion gas-composition distribution in the combustor during the combustion of Loy Yang coal with a fine diameter (Lean combustion limit)

Table 4-3 Weight fraction of H, C and N and combustion efficiency
(Lean combustion limit)

element	H*		C*		N*		η_C [%]	
	raw coal		62.4		0.55		—	
l_t [m]	1.27	2.84	1.27	2.84	1.27	2.84	1.27	2.84
$m_1=1.58$	0.11	0.00	8.0	0.06	0.09	0.00	25.6	96.0
1.94	—	—	—	—	—	—	—	95.3
2.41	1.21	—	31.8	—	0.49	—	16.9	94.3

$l_t=1.27$ m : inner, $l_t=2.84$ m : annular

* ash weight basis

Fig. 4-9に、Fig. 4-8の実験の燃焼室内ガス組成分布の結果を示す。本図より、本実験条件下における内管部の O_2 ならびに CO_2 の濃度変化は、それぞれ滑らかに減少ならびに増加する傾向がみられる。また、 CO は内管部において少量の発生が認められるものの環状部においてその生成は認められず、本燃焼室内ではほぼ完全燃焼していることが推測される。参考として、Table 4-3に、前に述べた燃焼効率 η_C を示す。本表より、内管部出口近傍 ($l_t=1.27$ m) では16~26%と低く、内管部ではあまり燃焼していない。一方、環状部出口付近 ($l_t=2.84$ m) の燃焼効率は約95%となり、空気比が2.41と希薄な条件でも高効率燃焼が行われた。

この様に、本実験条件下では、 $m_1=2.41$ と希薄な条件でも安定燃焼が達成でき、小粒径Loy Yang炭の本装置における安定希薄燃焼限界は $m_1=2.41$ 以上であると考えられる。

ii) コークス Fig. 4-10に、280mesh以下72.2%のコークス粒子を本燃焼装置によって燃焼させたときの燃焼室内温度分布の結果を示す。本実験において、粒子供給量 w_a は先のLoy Yang炭の実験とほぼ同様な負荷量になるように設定した。まず、 $m_1=1.37$ の条件で定常燃焼実験を行い、引き続き、1次空気比を1.51まで徐々に増加させた。本図より、 $m_1=1.37$ の条件での燃焼室内温度は、内管部において徐々に上昇し塔頂部付近でピークを示しその後低下するという傾向

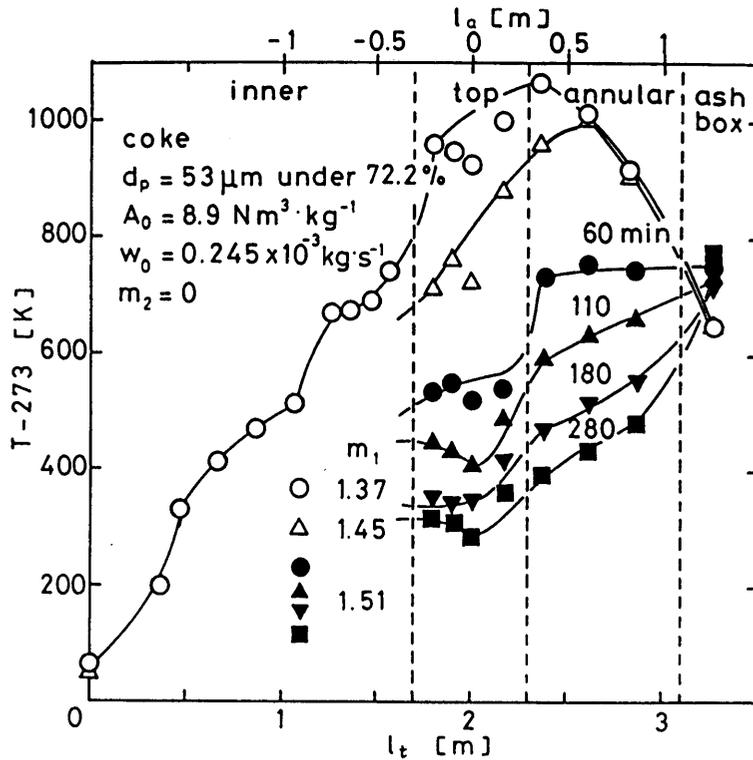


Fig.4-10 Temperature distribution in the combustor during the combustion of coke (Lean combustion limit)

を示している。つぎに $m_1=1.37$ から 1.45 まで空気比を増加させると、温度レベルは下がりしかも温度ピークが環状部出口方向へ移行している。この現象は主燃焼帯が空気比の増加とともに燃焼室出口の方へ移動していることを意味するものと考えられる。さらに、1次空気比を 1.45 から 1.51 まで増加させると時間とともに温度は低下していき、温度ピークも 110 分以後はアッシュボックスに移行している。この結果は本実験条件においてコークスが燃焼室内でほとんど燃焼していないことを示すとともに本実験で使用したコークスの安定希薄燃焼限界が $m_1=1.5$ 付近に存在することを表すものと考えられる。以上の結果より、本燃焼装置において $m_1=1.45$ という希薄な状態でも、揮発分をほとんど有しない難燃性固体燃料であるコークスが常温空気で十分着火し、安定燃焼可能であることが明らかとなり、本燃焼装置が比較的広い領域で適用できることが認められた。

結言

第1章で提案したCFM層型固気接触装置を低品位固体燃料の燃焼装置へ応用し、実験室規模のCFM層型燃焼装置を試作した。

そこで、本燃焼装置開発の第1段階として、本装置における燃焼基本特性である各固体燃料（Loy Yang 炭およびコークス）の安定過濃および安定希薄燃焼限界について実験的に検討を行った。その結果、Loy Yang炭125～250 μ m粒子は、1次空気比0.21～2.41という比較的広い空気比条件で安定した着火が可能であること、また、コークス粒子は1次空気比で1.5まで安定燃焼操作ができ、この条件が安定希薄燃焼限界であることなどが明らかとなった。さらに、本燃焼実験の燃焼室内温度分布、ガス組成分布ならび燃焼粒子組成分布の結果から、本CFM層装置における各固体燃料の着火機構は内管内部での粒子循環効果のみならず環状部から内管部への熱循環効果も寄与していることが推測された。

Nomenclature

A_0	= thoretical quantity of air	$[m^3 \cdot kg^{-1}]$
d_p	= particle diameter	$[\mu m]$
l_a	= distance from the top of the combustor	$[m]$
l_i	= height of the inner pipe	$[m]$
l_t	= total distance from the distributor	$[m]$
m	= combustion air ratio	$[-]$
T	= temperature	$[K]$
$\bar{u}_{qi, min}$	= minimum fast fluidization velocity	$[m \cdot s^{-1}]$
u_t	= terminal velocity of a particle	$[m \cdot s^{-1}]$
v_{p0}	= volumetric feed rate of solid particles	$[m^3 \cdot s^{-1}]$
w_0	= particle feed rate	$[kg \cdot s^{-1}]$
ΔT	= temperature difference between the annular part and the inner pipe	$[K]$
η_c	= combustion efficiency	$[\%]$
ρ_p	= apparent particle density	$[kg \cdot m^{-3}]$

<Subscripts>

1	= primary combustion air
2	= secondary combustion air

<Superscript>

-	= mean
---	--------

Literature cited

- 1)Furusawa, T., M. Tsunoda, S. Ichikawa and D. Kunii:ACS-Division of Fuel Chem., 27, 1, 262(1982)
- 2)Hasatani, M., M. Yuzawa, and N. Arai:Kagaku Kogaku Ronbunshu, 8, 1, 45(1982)
- 3)Hasatani, M., M. Yuzawa and I. Yajima:ibid., 9, 2, 166(1983)
- 4)Horio, M.:Funtai Kogaku Kaishi, 23, 2, 80(1986)
- 5)James, N.J.:Environ. Sci. and Tech., 11, 1191(1977)

第5章 熱天秤による固体燃料の燃焼速度測定ならびにその評価

緒言

エネルギーの代替化の促進にともない、固体燃料とりわけ石炭の見直しがされるとともに、循環流動層をはじめとする新たな石炭燃焼装置の研究開発も急ピッチで行われている。このような装置開発ならびに本研究で提案したCFM層型石炭燃焼装置の設計にあたり、石炭を含む各種固体燃料の燃焼速度データの信頼性は重要な因子の一つと考えられる。現在までに、Smith¹⁴⁾によって約50種類の固体燃料の燃焼速度データが総括されている。しかし、これらの結果を得るための実験方法は様々であり、装置エフェクトおよび実験条件の差異を含んだデータとして解釈する必要がある。

現在までに提案されている燃焼速度測定装置は、酸素-不活性ガス予混合層流炉にその上方から固体燃料を投入する落下法¹²⁾、燃焼炉と天秤を組み合わせた熱天秤法^{1, 5, 9)}、その他に充填層法^{11, 13)}、流動層法⁶⁾、噴流層法^{3, 8)}、気流層法¹³⁾などである。

しかし、上述の各測定法を使用する場合に留意すべき点は、反応過程中的伝熱ならびに物質移動条件などの違いに対する吟味が十分でないこと（例えば、発熱に伴う粒子温度の上昇、燃焼過程中的境膜酸素濃度の変化）であり、それらを考慮したモデルあるいは制御した実験方法によって、各実験結果を整理し考察する必要があると考えられる。

このような現状に鑑み、本章では、測定装置がコンパクト、実験条件が広範に変化可能、少量の試料で正確に測定が可能、燃焼過程中的重量変化が計測可能、過去に測定データが多くあるという観点から熱天秤を利用して、とりあえず揮発分が少なくかつ既往のデータとの比較が容易なグラファイト粒子を固体燃料に用いてその燃焼速度を測定した。しかし、この熱天秤は上述した理由から固体燃料の燃焼速度測定に広く使用されているにもかかわらず、既往の研究では、燃焼反応にともなう試料温度の上昇および燃焼ガスと試料との間に温度差が生じる可能性があることなどは考慮されておらず、また、導入ガス流量、試料充填量、試料粒径などの燃焼速度に及ぼす影響も十分に吟味されていないのが現状である。

そこで、本実験では、熱天秤の有する長所を生かすと同時にまだ吟味されていない実験条件あるいは操作パラメータ（試料ホルダーの形状・材質、保護管の材質、導入ガス流量、昇温速度、試料充填量および試料粒径）の影響を個々に考慮しつつ燃焼速度の測定を行った。また、そこで得られた燃焼速度データについて既往の研究と比較し、本測定法の評価も行った。

5・1 実験装置および方法

Fig.5-1に実験装置の概略図を示す。本実験で使用した熱天秤は、リガク製（TG-10377型）であり、急速昇温可能な高温型赤外炉熱天秤である。本装置は、燃焼室ならびに天秤室からなる熱天秤本体と、両者を制御するTGコントローラおよび記録計で構成されている。燃焼室の構造は、R熱電対からなる試料支持棒と試料ホルダー、それらを覆う保護管、加熱源である赤外線ヒーターからなる。この赤外線ヒーターにより、保護管を通して、試料および試料ホルダー

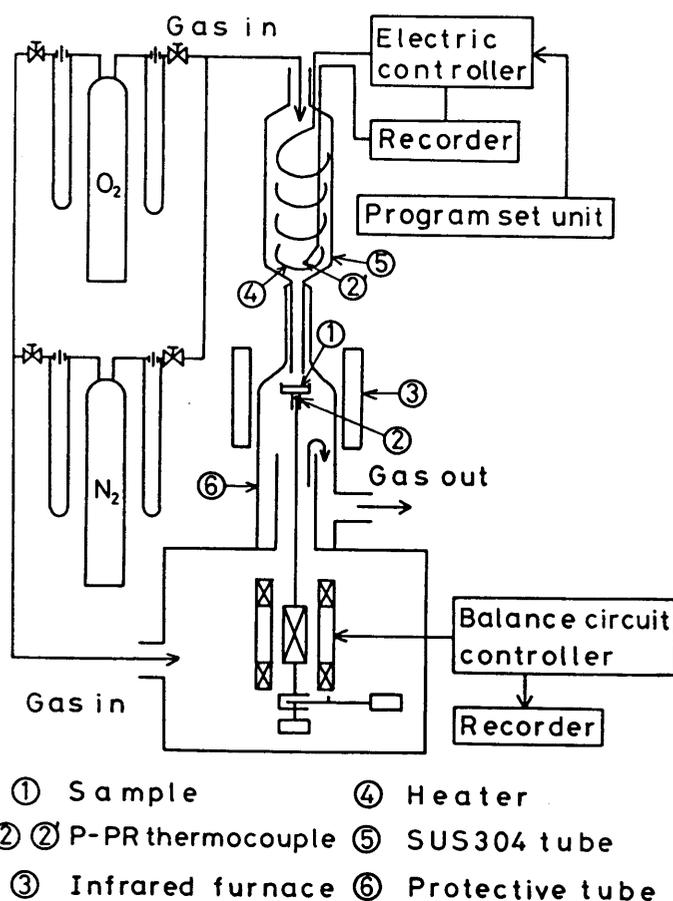


Fig.5-1 Details of thermobalance employed

が加熱される。導入ガスは、窒素-酸素の予混合ガスを用い、天秤の上部と下部からそれぞれ供給可能となっている。上部から供給する場合は、導入ガスを炉内温度と実験期間中できる限り同一にするために、PID制御可能な予熱装置を新たに備え付け、導入ガス温度を制御した。上部ガスは、この予熱装置を通り、外径2mmφ（内径1.5mmφ）のステンレス管から試料直上部に吹き付けられる。なお、その際、天秤室を守るために下部からも同濃度のカーテンガスを $25 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ 供給している。また熱天秤制御用ならびに窒素-酸素予混合ガス予熱制御用の各熱電対は、図中の②および②'の位置にそれぞれある。

実験方法は、まず、試料ホルダーに試料を仕込んだのち、所定濃度の $\text{N}_2\text{-O}_2$ 混合ガスを流し天秤を安定させる。その後、本実験では測定時間の短縮のために、予めプログラムした一定昇温条件にて燃焼実験を行った。また、同時に、試料重量の減少量（TGカーブ）およびその微分値（DTGカーブ）を記録した。なお、後述するように、一部については等温実験も行った。

本実験で使用した試料粒子は、揮発分が少なくかつ既往の研究との比較を容易にするために、主としてグラファイトを用いた。その分析結果をTable 5-1に示す。表中、空隙率 ϵ は水銀ポロシメーターによって、比表面積 A_0 は窒素吸着によるBET法によりそれぞれ求めた。なおGraphite A（片山化学製3345）は比較的灰分を多く含む韓国産天然グラファイトである。一方、Graphite B（東海カーボン製G2080）はモールド成形法で製造されたものである。なお、このグラファイトは、ピッチをバインダーとして用いたコークスをプレス成形、焼成後、黒鉛化したものである。

Table 5-1 Characteristics of the graphite employed

	Fixed carbon [%]	Ash [%]	ϵ [-]	ρ_p [$\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$]	D_p [μm]	A_0 [$\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$]
Graphite A	88.0	12.0	0.26	1670	37- 74	1.8×10^4
					- 37	1.8×10^4
Graphite B	99.9	0.1	0.21	1780	37- 74	1.7×10^4
					149- 250	3.7×10^3
					1000-1410	1.2×10^3

5・2 実験結果の解析

実験結果の解析にあたって、実験温度範囲が1273K以下で行ったことおよびTable 5-1で示したように各グラファイトが多孔体構造であることより、後述するように反応速度は真の化学反応速度によって支配される化学反応律速であると仮定しうると考えられ、Araiら²⁾あるいはBasuら³⁾が採用したような体積反応モデルに基づく燃焼速度式Eq. (5-1)をまず工学的近似式として適用した。

$$\frac{dx}{dt} = kA_0(1-x)^n P_{O_2}^m \quad (5-1)$$

式中、 x は反応率、 A_0 は粒子の初期比表面積、 P_{O_2} は導入ガスの酸素分圧を示す。また、 k は反応速度定数であり、Eq. (5-2)のようなArrhenius式で示すことができる。

$$k = A \exp\left(-\frac{E}{R_g T}\right) \quad (5-2)$$

$$K = k P_{O_2}^m \quad (5-3)$$

Eq. (5-1)中の x および dx/dt は重量減少曲線(TGカーブ)およびその微分値(DTGカーブ)よりそれぞれ算出を行った。

5・3 実験結果および考察

5・3・1 試料ホルダーの材質・形状ならびに保護管の材質の影響

熱天秤において、燃焼反応のような発熱を伴う系を取り扱う場合、試料温度の上昇により試料温度と炉制御温度との間に温度差が生じることが考えられる。また、同様な現象が試料ホルダーの形状および材質の差異、保護管の材質による試料の加熱方法の相違によっても生じる可能性がある。そこで、本節では、試料ホルダーに熱伝導度の異なる石英製・白金製の2種を用いるとともに、それらの形状を変えて、燃焼過程中の試料温度 T_{sam} と炉制御温度 T_{fur} との温度差を測定した。また、保護管の材質に関し、近赤外線を透過しやすい石英製と、それを全く透過しないアルミナ製の2種を用いて同様に行った。

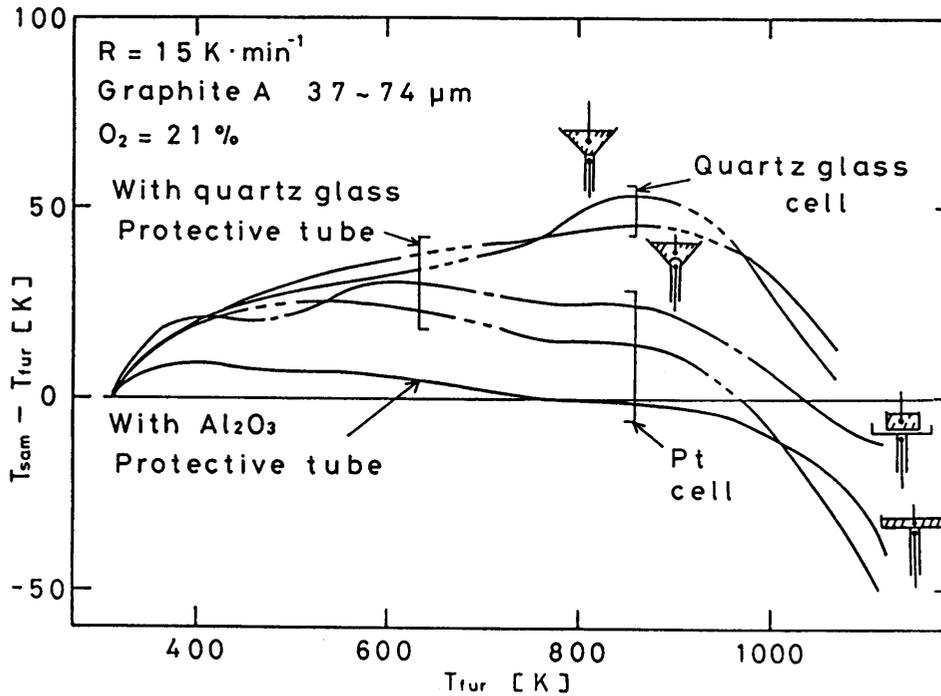


Fig.5-2 Difference between sample temperature and controlling temperature during the combustion

実験は燃焼終了後でも試料ホルダー内に粒子が残存するように灰分の多いGraphite A(37~74 μ m)を約8mg充填し、昇温速度15K \cdot min $^{-1}$ の条件で行った。なお、試料温度 T_{sam} の測定には、0.1mm ϕ K熱電対を充填層の中心部に挿入することによって実験中常時モニタリングした。

Fig.5-2に本実験で得られた($T_{sam}-T_{rur}$)と炉制御温度との関係を示す。本図において、($T_{sam}-T_{rur}$)の値が0に近い程、炉制御温度と試料温度との差がないことに相当し、精度がよい測定を行うことができることになる。

本図より、まず、石英製保護管を用いた場合、石英および白金製の両ホルダーでも昇温開始後から、すでに T_{sam} は T_{rur} を上まわっている。これは保護管が石英製のために、炉からの輻射熱が直接試料ホルダーを加熱していることによるものと考えられる。また、燃焼が生じる温度領域(813~1003K)において($T_{sam}-T_{rur}$)は石英製ホルダーの場合が白金のそれに比べ大きくなっているのは、石英の熱伝導度が1.5W \cdot m $^{-1}$ \cdot K $^{-1}$ と白金の約1/10であることによる断熱効果に起因するものと考えられる。また、白金製ホルダーの形状の影響は、皿状の方が皿

にホルダーを置く場合よりも若干($T_{s,a,m}-T_{r,u,r}$)が0に近かった。これは熱天秤制御用熱電対が試料に近い位置にあるためと思われる。これらの結果より皿状の白金製ホルダーを用いた場合が($T_{s,a,m}-T_{r,u,r}$)が比較的0に近いことから、アルミナ製保護管については皿状の白金製ホルダーのみを用いた。

アルミナ製保護管を用いて同様な実験を行った場合、室温から約973Kの温度領域で($T_{s,a,m}-T_{r,u,r}$)が0に近い結果が得られた。ただし、燃焼がほぼ終了した約973K以上の温度領域では十分に導入ガスが予熱されていないことにより、試料および試料ホルダーが冷却された様子が認められる。

以上の実験結果より、本操作条件の範囲では皿状の白金製試料ホルダー、アルミナ製保護管使用の場合が、燃焼の主として生じる温度領域(813~1003K)において、($T_{s,a,m}-T_{r,u,r}$)が0に近い結果より、以後の実験ではこれらのホルダー、保護管を使用した。

5・3・2 導入ガス流量の影響

熱天秤では、試料と反応を行わせ生成ガスを速やかに系外へ排出するために外部から燃焼ガスを導入しているが、燃焼実験を行う際、導入ガスの流量は物質移動条件に影響する因子の一つと成り得ることから、本節では、上部ガス流量をパラメータとし実験を行った。

導入ガスのガス流量をパラメータとした非等温条件の場合の未反応率で換算したTGおよびDTGカーブをFig.5-3に示す。本図において、 $Q_{u,p}$ (上部ガス)は燃焼ガス、 $Q_{l,o}$ (下部ガス)は燃焼排ガスから天秤室を守るためのカーテンガスである。本結果より、本試料および本実験条件下ではガス流量による影響はあまり見受けられず、この結果は、本実験で用いた灰分の多いGraphite Aにおいて、粒子層間隙での拡散の影響が少ないことを意味している。

ただし、本装置において、上部ガス流量を $90 \times 10^{-6} \text{m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ にまで増やすと、850K以上の温度領域において約0.07mgに相当するドリフトが認められた。対して、 $Q_{u,p}=50 \times 10^{-6} \text{m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ では、実験中常時安定したTGカーブが得られ、以下の実験では、上部ガスを $50 \times 10^{-6} \text{m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ で供給した。なお、この際、ホルダーからの試料粒子の飛散は認められなかった。

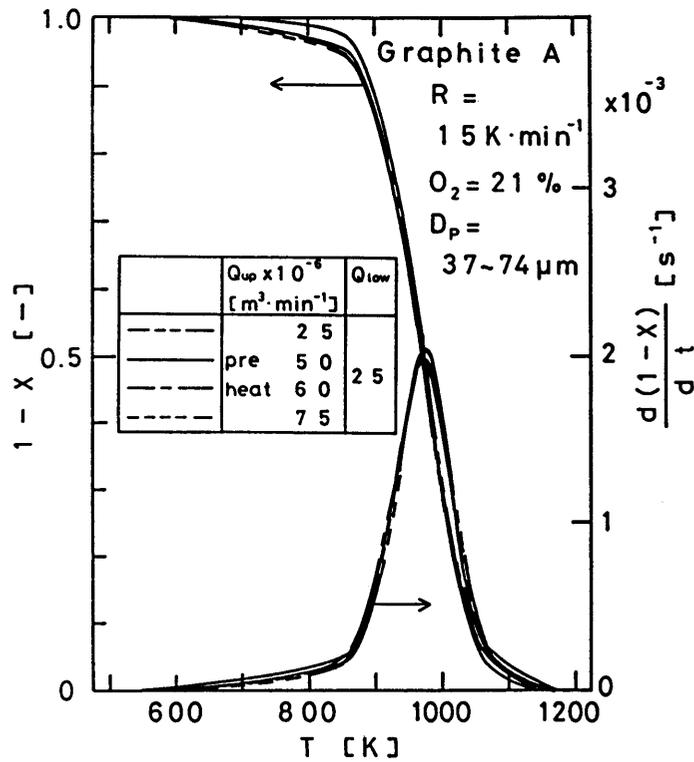


Fig.5-3 Influence of gas flow rate on combustion characteristics during the combustion

5.3.3 非等温燃焼実験における昇温速度の影響

一定昇温速度で加熱するという動的な温度条件下で温度および時間に対する重量変化を得る非等温燃焼実験では、その昇温速度も操作条件の一つのパラメータである。

Fig.5-4に昇温速度をパラメータ（5、15および45 $\text{K} \cdot \text{min}^{-1}$ ）とした場合の、未反応率で換算したTGおよびDTGカーブを示す。本図より、昇温速度が大きい程、反応時間は短縮されピークもシャープになる。また、後述する方法によって、Eq.(5-3)よりKを求めArrheniusプロットした結果、 $R = 5 \text{ K} \cdot \text{min}^{-1}$ の条件では直線部分が一番短くなった。一方、 $R = 45 \text{ K} \cdot \text{min}^{-1}$ の条件では、Rが大きいため燃焼反応の進行が急激となり、ピーク温度に40K程度のばらつきがみられた。これらの結果より、比較的再現性があり、Arrheniusプロットの直線部分が長い結果が得られた $R = 15 \text{ K} \cdot \text{min}^{-1}$ を本実験の昇温速度とした。

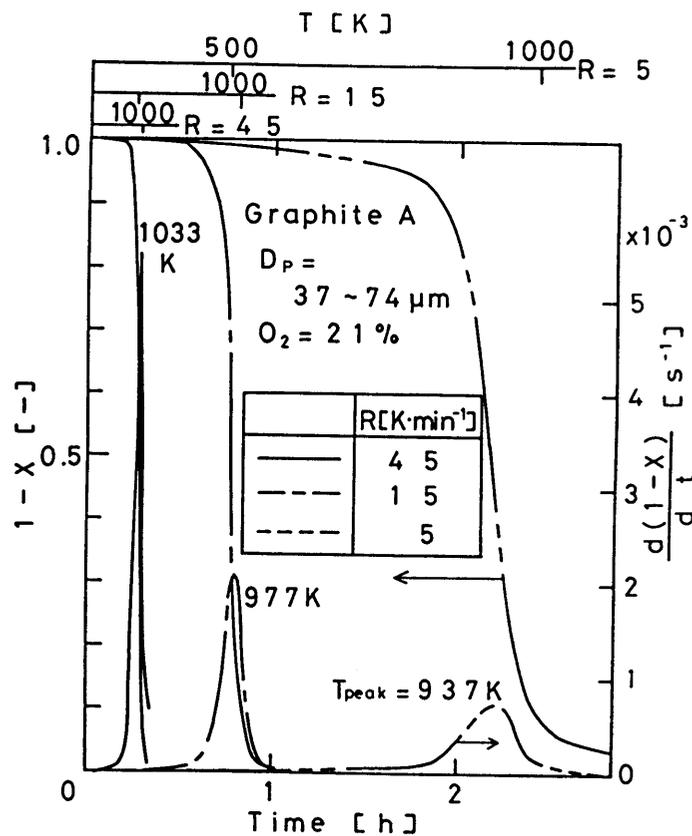


Fig.5-4 Influence of heating rate on combustion characteristics during the combustion

5.3.4 試料充填量の影響

熱天秤は一種の充填層燃焼と考えられるが、試料層中に温度分布およびガス濃度分布の生じない範囲で試料充填量を選ぶ必要がある。

Fig.5-5に初期試料充填量をパラメータとした場合の未反応率で換算したTGおよびDTGカーブを示す。なお充填量約11mgが本実験で使用した試料ホルダーの充填限界である。本結果より、本試料および本実験条件下では試料充填量による影響は見受けられず、試料は均一に燃焼していると考えられる。これは、試料ホルダーの形状が浅くて平たいことにより、伝熱ならびに物質移動条件が試料充填量にあまり影響されなかったものと考えられる。本結果も、粒子層間隙内での拡散が、本実験条件下で少ないことを意味している。本実験では、充填層燃焼実験のNinomiyaら¹⁰⁾、Otakeら¹¹⁾によって行われた実験条件を考慮するとともに、天秤の精度の安定性から、初期試料充填量を粒子が1～2層である約2.5mgとした。

Fig.5-5 Influence of mass of sample particles on combustion characteristics during the combustion

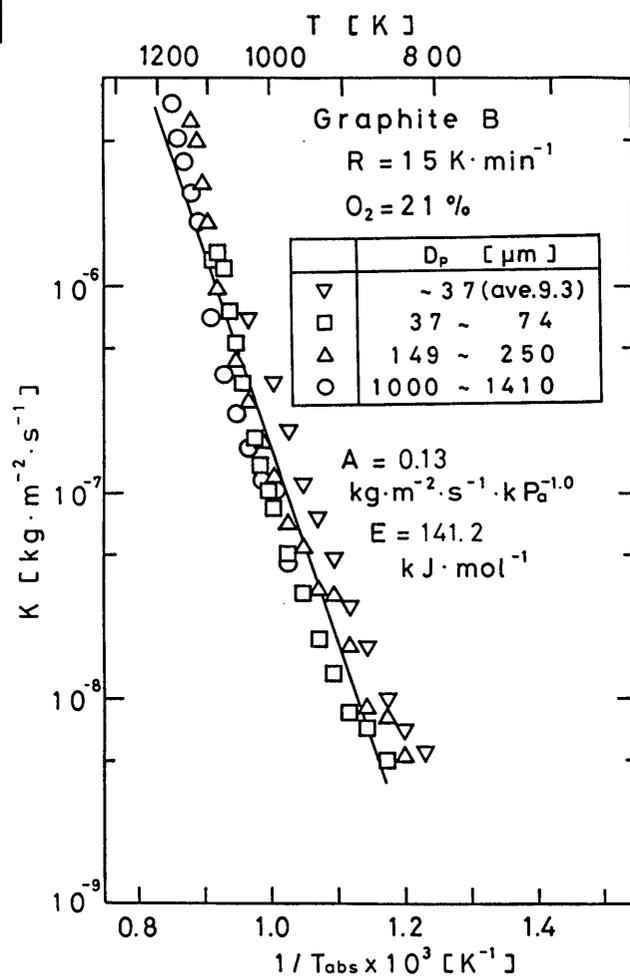
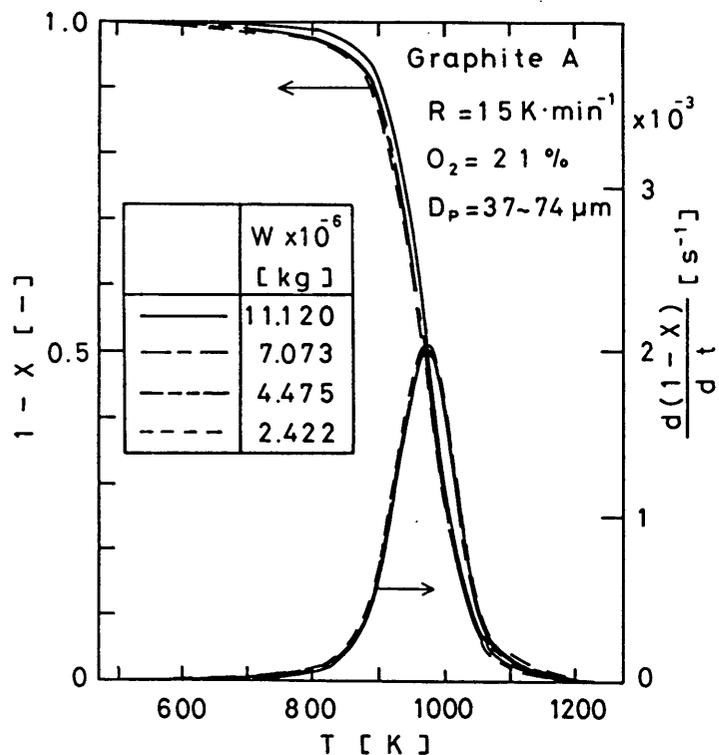


Fig.5-6 Influence of particle diameter of sample particles on combustion characteristics during the combustion

5.3.5 試料粒径の影響

5.2節で述べた本実験条件が化学反応律速で進行するという仮定の妥当性を確認するために、粒径を変化させて燃焼実験を行った。Fig.5-6に灰分の少ないGraphite Bを用いて後述する方法によって得られたArrheniusプロットを示す。本図より、本実験条件下では、粒径を変化させても各プロットはほぼ一直線上にのり、粒径の影響はわずかであった。このことから、燃焼反応は化学反応律速で進行するという仮定は妥当であると考えられる。なお、灰分の多いGraphite Aについて、37~74 μm と37 μm 以下の粒径で同様な実験を行ったところ、粒径の依存性は認められなかった。

5.4 得られた燃焼速度データの評価

まず、得られた燃焼速度データの評価にあたって、Eq. (5-1)中の反応次数 n 、および酸素分圧次数 m 、Eq. (5-2)式中の頻度因子 A および活性化エネルギー E を37~74 μm のGraphite AおよびBの結果についてそれぞれ求めた。反応次数 n はFig.5-7に示すFreeman-Carroll法³⁾によって求めGraphite Aは $n = 1.0$ 、Bは $n = 0.7$ 、酸素分圧次数 m は、Fig.5-8に示す酸素濃度を変化させた等温実験より、

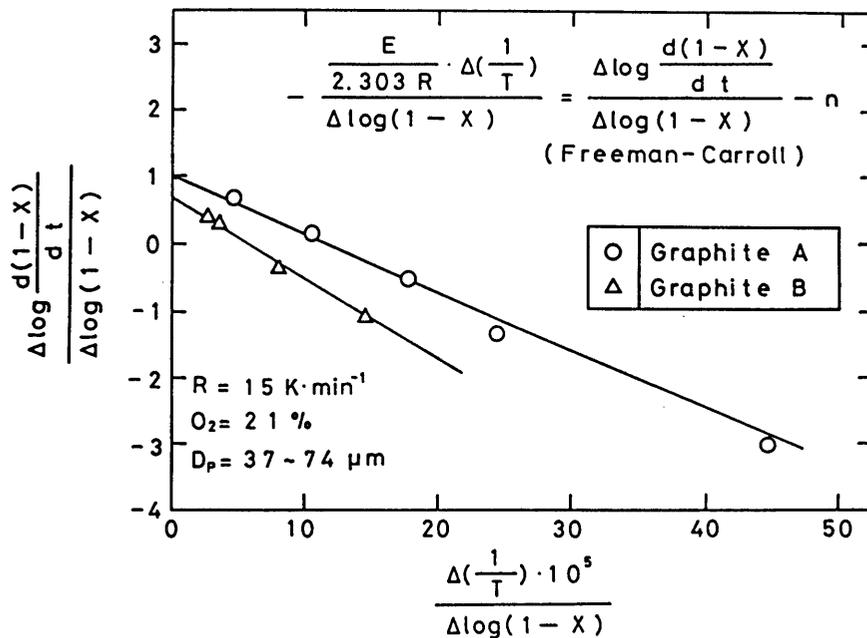


Fig.5-7 Freeman-Carroll method to calculate the reaction order, n

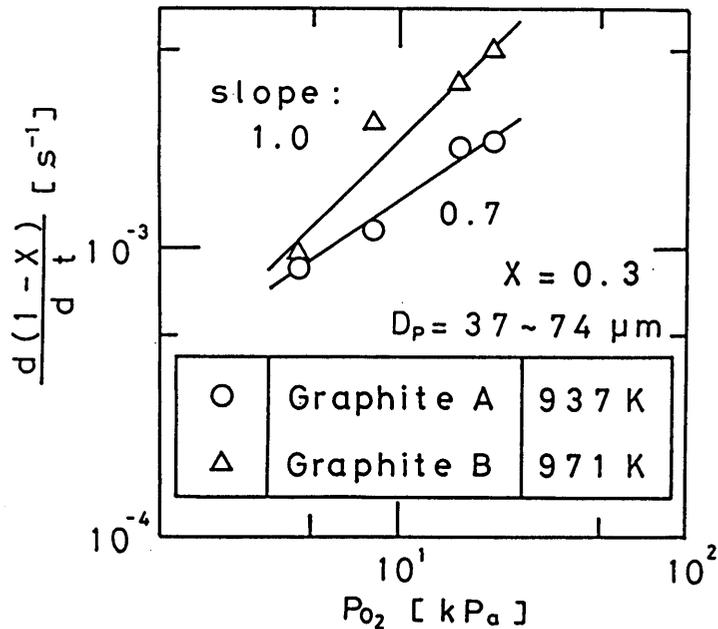


Fig.5-8 Relation between combustion rate, $d(1-x)/dt$ and partial pressure of oxygen, P_{O_2}

Graphite Aについて $m=0.7$ 、Bについて $m=1.0$ を得た。また、A、Eは得られた n 、 m を用い、前述したFig.5-6および後述するFig.5-10に示すArrheniusプロットをして算出し、Graphite Aについて $A=4.24\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{kPa}^{-0.7}$ 、 $E=169.9\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ 、Bについて $A=0.13\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{kPa}^{-1.0}$ 、 $E=141.2\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ をそれぞれ得た。なお、両者の反応次数、酸素分圧次数およびこれらに基づく活性化エネルギー、頻度因子の違いは、天然グラファイトであるGraphite Aが人造のBより黒鉛化が進んでいることによるものと推測される。この黒鉛化の進行の違いは、SEM写真からも観察できた。

これらの値を用いて計算によって、Graphite Aの本実験条件で得られたTGならびにDTGカーブを再現した(Fig.5-9)。図中、破線が実験結果、実線が計算結果を示す。本図より、後述するFig.5-10の直線部分から外れている部分に相当する980K以上のDTGカーブに若干のずれは認められるが、大略、計算結果は実験結果を再現しており、実験結果の妥当性を示している。

また、本実験では、簡便に測定を行いうる非等温条件で測定を行ったが、過去で測定の際に多く用いられた等温条件でも測定を行った。Fig.5-10に、各温

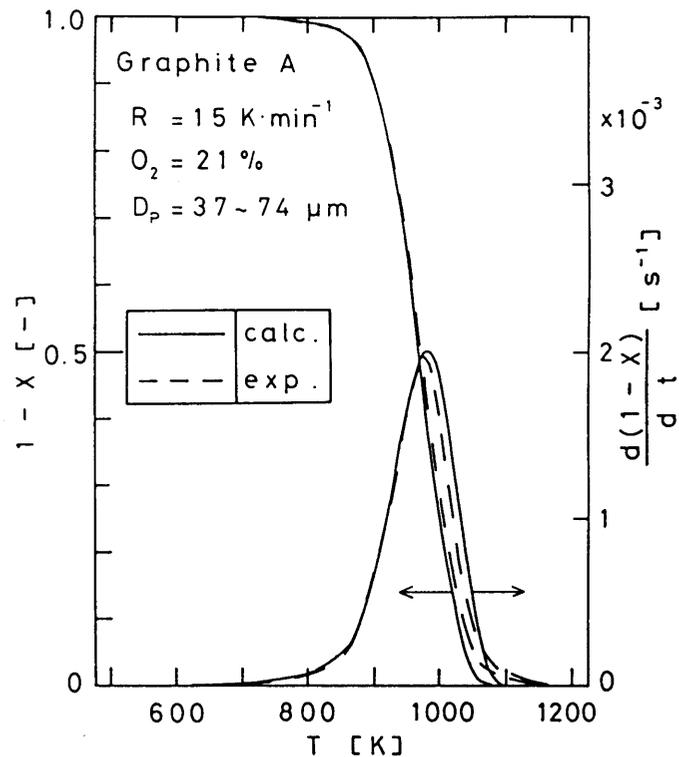
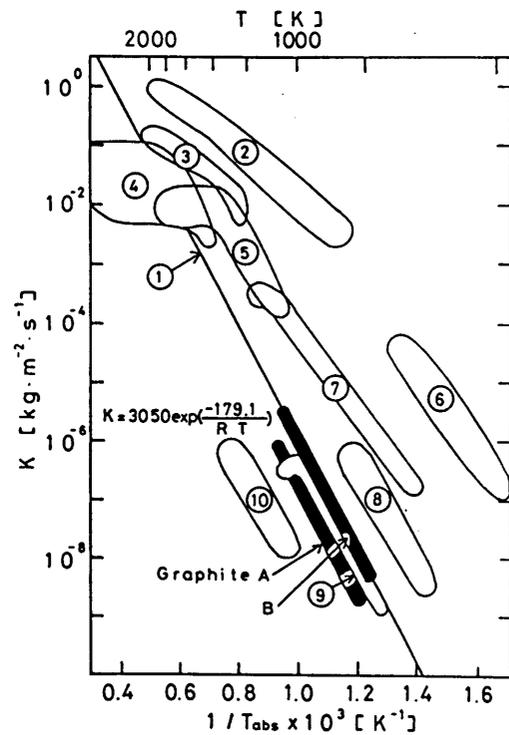
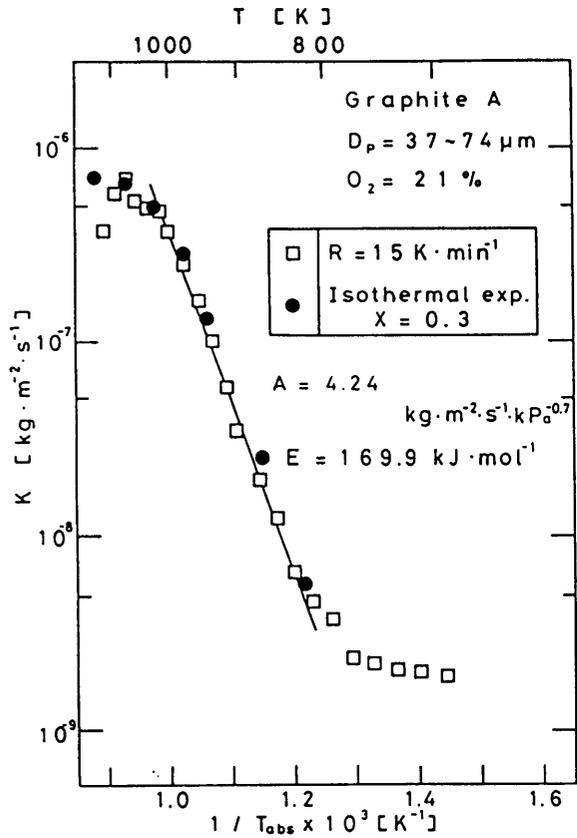


Fig.5-9 Recalculated results of TG and DTG curves

度の等温条件で得られたKと本研究で確立した実験条件で行った非等温条件の結果をそれぞれ示す。本図において、両条件のプロットがほぼ対応していることから、本実験手法は、等温、非等温条件の違いによる燃焼速度計測に与える影響がないことが認められた。

最後に、既往のデータと比較検討するために、本実験で得られた燃焼速度データと過去提出されたデータ^{1, 3, 5, 7, 8, 9, 12, 13)}をFig.5-11に総括した。本結果は、熱天秤を用い、Carbon blackを使用したMiyajimaら⁹⁾の結果に近い位置にきたことが認められる。また、熱天秤を用い、Graphiteを使用したAndrewら¹⁾およびHillら⁵⁾の結果に対して小さな値となっているが、AndrewらおよびHillらは試料がGraphite平板であることにより、試料自身の温度上昇の影響があると考えられる。また、熱電対の埋め込まれた試料粒子に加熱されたガスを吹き付け、試料の重量変化をもとに燃焼速度を求めたBasuら³⁾の結果に対して大きな値となっているが、Basuらが用いた試料粒子の粒径は7~9mmと大きいこととならびに比表面積が本実験で用いた試料よりも2桁程度オーダが小さいことによるものと考えられる。

Fig.5-10 Comparison between in the condition of constant heating rate and temperature



NO.	Equipment	Sample	Resercher	Ref.
1		Various samples	Smith	14)
2	Entrainment reactor	Coal char	Smith et al.	13)
3	Drop tube furnace	Coke	Sadakata et al.	12)
4		Coal char	Lewis et al.	7)
5	Flat frames of gas	Graphite	Matsui et al.	8)
6	Fixed bed reactor	Coal char	Smith et al.	13)
7	Themobalance	Graphite	Hill et al.	5)
8	Themobalance	Graphite	Andrew et al.	1)
9	Themobalance	Carbon black	Miyajuma at al.	9)
10	Flat frames of gas	Electnode carbon	Basu et al.	3)

Fig.5-11 Comparison between the combustion rates presented and those proposed by other studies

結言

固体燃料の燃焼装置の設計にあたり重要となる燃焼速度に関し、固体燃料の燃焼速度測定装置の一つである熱天秤を用いて測定を行うとともに、本装置における燃焼速度を求めるための基礎的な操作条件を実験的に検討した。その結果、下記が明らかとなった。

i) 試料ホルダー、保護管として、それぞれ白金製皿状ホルダー、アルミナ製保護管が試料温度と熱天秤制御用温度が燃焼過程中ほぼ一致した。

ii) 導入ガスの流量、昇温速度、試料充填量をパラメータとした実験を行い、妥当な操作条件として、導入ガスの流量は $50 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ 、昇温速度は $15 \text{ K} \cdot \text{min}^{-1}$ 、試料充填量は約 2.5 mg を得た。なお、試料充填量、導入ガス流量ならびに粒径の影響は、本実験条件下では少なく、反応が化学反応律速であることが認められた。

iii) 得られた反応次数、酸素分圧次数、頻度因子および活性化エネルギーを用いて、TGならびにDTGカーブを再現したところ、両者には良好な一致がみられた。

iv) 非等温条件の結果は、等温条件のそれとほぼ一致した。

以上の点から、燃焼速度データを評価する上で、本研究で確立した熱天秤による燃焼速度測定法は、一つの測定操作条件の基準を示すものと考えられる。

Nomenclature

A	= frequency factor	[kg·m ⁻² ·s ⁻¹ ·kPa ⁻ⁿ]
A ₀	= relative surface area	[m ² ·kg ⁻¹]
D ₀	= particle diameter	[m]
E	= activation energy	[kJ·mol ⁻¹]
K	= combustion rate constant	[kg·m ⁻² ·s ⁻¹]
k	= reaction rate constant	[kg·m ⁻² ·s ⁻¹ ·kPa ⁻ⁿ]
m	= partial pressure order of oxygen	[-]
n	= reaction order	[-]
P	= partial pressure	[kPa]
Q	= flow rate	[m ³ ·min ⁻¹]
R	= heating rate	[K·min ⁻¹]
R ₀	= gas constant	[J·K ⁻¹ ·mol ⁻¹]
T	= temperature	[K]
t	= time lapse	[s]
W ₀	= mass of the sample	[kg]
x	= conversion	[-]
ε	= voidage	[-]
ρ	= apparent density of sample particles	[kg·m ⁻³]

<Subscripts>

sam = sample
 fur = furnace
 O₂ = oxygen

Literature cited

- 1) Andrew, K.F., E.A. Gulbransen:Fuel Gasification, 44, 1034(1952)
- 2) Arai, N., M. Hasatani and S. Sugiyama:Kagaku Kogaku Ronbunshu, 7, 6, 611(1981)
- 3) Basu, P., P.K. Haldar:Can. J. Chem. Eng., 65, 696(1987)
- 4) Freeman, E.S., B. Carroll:J. Physical Chemistry, 62, 394(1958)
- 5) Hill, M.W., F.K. Earp:25th Industrial Carbon and Graphite, 326 (1957)
- 6) Kunii, T., N. Kojima and T.Furusawa:Kagaku Kogaku Ronbunshu, 5, 596 (1984)
- 7) Lewis, P.F., G.A. Simons:Comb. Sci. and Tech., 20, 117 (1979)
- 8) Matsui, K., H. Tsuji:Comb. and Flame, 26, 283(1976)
- 9) Miyajima, K., T. Miyadera and M. Kawai:Kogai, 21, 35(1986)
- 10)Ninomiya, Y., K. Yokoi, N. Arai and M. Hasatani:Kagaku Kogaku Ronbunshu, 13, 511(1987)
- 11)Otake, K., K. Okudo:Proc. "Kagaku Kogaku Kyokai Gifutaikai", 188 (1988)
- 12)Sadakata, M., M. Saito, I. Ikeda, T. Arai and T.Sagai: 23th Symp. on Comb., 25(1985)
- 13)Smith, I.W., R.J. Tyler:Comb. Sci. and Tech., 9, 87(1974)
- 14)Smith, I.W.:19th Symp. (Intl.) on Comb., 1045(1982)

第6章 高速流動層内の粒子・流体間伝熱特性

緒言

循環流動層をはじめとする流動層の高速操作⁵⁾は、固気接触が良好であること、ガスならびに粒子の処理能力が大きいこと、高ガス流速域(2~10m・s⁻¹程度)で操作可能であることにより従来のバブリング流動層では扱いが困難である付着性粒子などの種々の粒子に対して適用が可能であることなどの特徴を有している。よって、このような利点を有している流動層の高速操作は、循環流動層燃焼装置(CFBC)¹⁰⁾を代表としておもに石炭燃焼の分野へ適用され実用化され始めており、乾燥、触媒反応、鉄鉱石の還元¹¹⁾などの種々の固気接触装置への適用も試みられている。本研究でも、第1章において、流動層の高速操作を利用したCFM層型固気接触装置を提案した。しかし、現状では、これら固気接触装置の設計ならびにスケール効果に関する重要な因子のひとつである伝熱に関する検討は、石炭燃焼装置に関連した流動層・伝熱面間の伝熱が主である^{3,4)}。つまり、本研究で提案したCFM層型固気接触装置の内管部粒子流動状態に相当する高速流動層内の粒子・流体間伝熱特性については、ほとんど検討がされていない。この粒子・流体間伝熱特性を明らかにすることは、例えば、乾燥装置の粒子・流体間の物質移動あるいは熱移動速度の推算、第4章で提案したような固体燃焼装置内における固体燃料からの揮発分蒸発速度あるいは固体燃料の着火遅れ時間などの基本的な装置設計パラメータに知見を供するものと考えられる。

このような現状から本章では、高速流動層状態における層内の粒子・流体間の伝熱について、加熱された粒子から室温のガスへの熱交換を行うことによって実験的な検討を行い、それに影響する諸因子(粒子供給量、ガス流速ならびにそれらに従属する圧力損失、粒子ホールドアップ、スリップ速度)について考察した。

6・1 実験装置ならびに方法

本実験で用いた装置の概略を Fig. 6-1aに示す。本装置は、テストセクション(ライザー(16))、粒子供給用の流動層フィーダ(17)およびそれぞれへ流動化

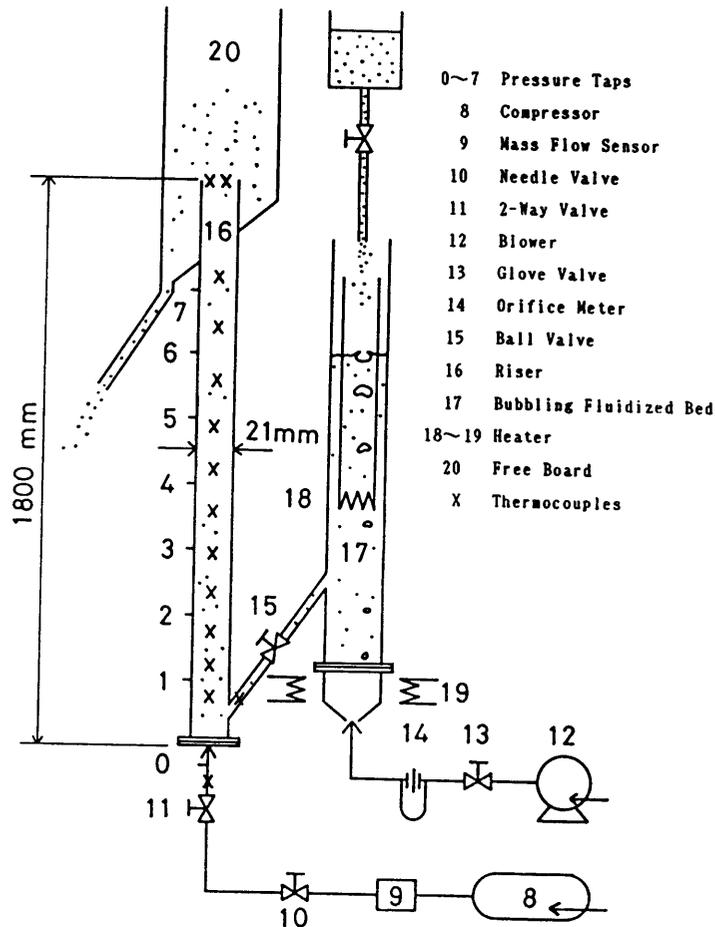


Fig.6-1a Experimental apparatus employed for the heat transfer experiments

ガスを供給するコンプレッサー(8)とブロワー(12)より構成されている。ライザーは内径0.021m、長さ1.8m、流動層フィーダは、内径0.10m、長さ1.8mの亚克力樹脂製円管を使用した。

流動化ガスとして用いる空気はコンプレッサーから流量計を経てライザーに供給される。一方、粒子は流動層フィーダから粒子供給量調節に用いるボールバルブ(15)を経てライザー分散板上部約25mmの位置へ供給される。つぎに、供給された粒子は、流動化ガスによってライザー内を高速で流動し、フリーボード部(20)に飛び出して固気分離される。このとき、粒子はすべて出口パイプへ落下しそこで粒子供給量の測定を行った。なお、本実験で用いた分散板は40 meshステンレス製金網である。

伝熱実験は、約340Kに加熱した粒子と室温の空気を用いて、粒子から流体への熱交換により行った。粒子は、流動層内に懸垂させたカンタルヒーターとブ

ロワーからの流動化ガスの予熱によって行った。なお、本装置は放熱損失を極力小さくするために全体に断熱材が巻かれている。ライザー内の軸方向ガス温度は、径0.1mmC.A.熱電対を組み入れてある自作の吸引式熱電対により測定を行った。この熱電対は、吸引時に粒子の吸い込みを防ぐためにその先端を400meshのステンレス製金網で覆ってある。

Fig.6-1bにガスならびに入口粒子温度測定用の熱電対の位置と軸方向圧力損失測定用の静圧タップの位置をそれぞれ示す。図中、×印が吸引式熱電対の取り付け位置を、▲印がライザー入口粒子温度測定用の径0.3mmC.A.熱電対の取り付け位置をそれぞれ示している。また、(0)～(7)は、200mm間隔で設けられた層内軸方向圧力損失測定用の静圧タップの位置である。

実験は、流動層フィーダにおいて加熱された粒子をライザーに供給し、流動化ガスによってライザー内で高速流動化させる。流動状態ならびにライザー内

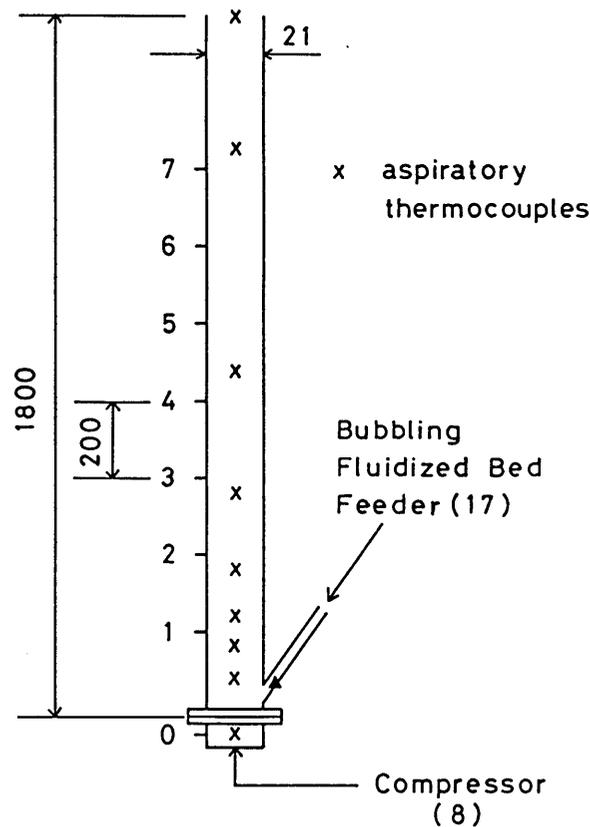


Fig.6-1b Details of the riser pipe

Table 6-1 Characteristics of glass beads employed

sample	d_p [μm]	ρ_p [$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$]	u_t [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]	ϕ_s [-]
glass beads	177-250	2500	1.70	1.0
	297-420		2.86	
	420-590		4.21	

温度が定常となった後、軸方向圧力損失分布、軸方向ガス温度分布、入口粒子温度および粒子供給量を測定する。さらに、粒子・流体間の有効伝熱面積を求めるために必要なライザー内の粒子ホールドアップは、ボールバルブ(15)と2-wayバルブ(11)を同時に閉じる流動化急停止法により測定した。

本実験で使用した粒子は、Table 6-1に示したような粒径の異なるガラスビーズで、その比熱は $670\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ である。なお、表中の終末速度 u_t は、それぞれの粒子の中心粒径を用いて求めた。

6・2 粒子・流体間伝熱係数の解析方法

本実験では、ライザー内における粒子・流体間伝熱状態を伝熱係数を用いて評価した。以下に、伝熱係数を求めるための解析手法を示す。伝熱係数を求めるためには、ライザー内のガス温度分布および粒子温度分布の測定が不可欠となるが、粒子が軸方向にすばやい運動をしていることから実測することが困難であると考えられる。そこで、本解析では、軸方向粒子温度分布を見積るために、測定可能である入口ガス温度 T_{gi} およびライザー内ガス温度 T_g と入口粒子温度 T_{si} を用いてEq. (6-1)に示すような熱収支式をたてて決定した。なお、本式は、第1次近似として、断熱条件ならびに粒子およびガス流れは栓流であると仮定している。

$$G_g S C_{pg} (T_g - T_{gi}) = G_s S C_{ps} (T_{si} - T_s) \quad (6-1)$$

よって、ライザー内での任意断面における粒子温度は、Eq. (6-2)で表される。

$$T_s = T_{si} - \frac{G_g c_{pg}}{G_s c_{ps}} (T_g - T_{gi}) \quad (6-2)$$

測定されたガス温度分布と Eq. (6-2) で表される粒子温度分布より、ライザーの任意断面 (z_1, z_2) 間での局所伝熱係数 h_p はガス側基準で Eq. (6-3) のように表される。

$$h_p = \frac{G_g S c_{pg} (T_g^{z_2} - T_g^{z_1})}{A (T_s - T_g)_{z_2 - z_1}} \quad (6-3)$$

ここで、 $(T_s - T_g)_{z_2 - z_1}$ は粒子・流体間の平均温度差を示し、Eq. (6-4) で定義される。実際の計算では断面のガスおよび粒子温度分布を区積分することにより求めた。

$$(T_s - T_g)_{z_2 - z_1} = \frac{1}{z_2 - z_1} \int_{z_1}^{z_2} (T_s - T_g) dz \quad (6-4)$$

Eq. (6-3) 中の A は粒子・流体間の接触面積を表している。粒子表面積がすべて有効に伝熱に寄与していると仮定すると、 A は Eq. (6-5) のように表される。

$$A = \frac{6}{d_p \phi_s} (1 - \epsilon) V \quad (6-5)$$

一般に、高速流動層では、軸方向に粒子ホールドアップの分布が存在することが知られているが、現状ではいまだその推算をすることが難しい状況であるとともに、本実験で用いた装置では、軸方向粒子ホールドアップ分布を実測することができない。よって、本解析では、流動化急停止法によって実測したライザー内全体の粒子ホールドアップと第1章の単一粒子の運動方程式を用いて算出した軸方向粒子ホールドアップの差を軸方向に重みをつけ分配することによって軸方向粒子ホールドアップ分布を決定した。

つぎに、平均伝熱係数は、同様な解析より Eq. (6-6) のように表される。

$$\bar{h}_p = \frac{G_g S c_{pg} (T_{go} - T_{gi})}{A' (T_s - T_g)_{L-0}} \quad (6-6)$$

6・3 実験結果および考察

6・3・1 ライザー内温度分布

ライザー内のガス温度および粒子温度分布の例を、それぞれの粒径の試料について Figs. 6-2、6-3 および 6-4 にそれぞれ示す。また、その下部にそれぞれのライザー内の軸方向粒子圧力損失勾配もあわせて示してある。本図より、ライ

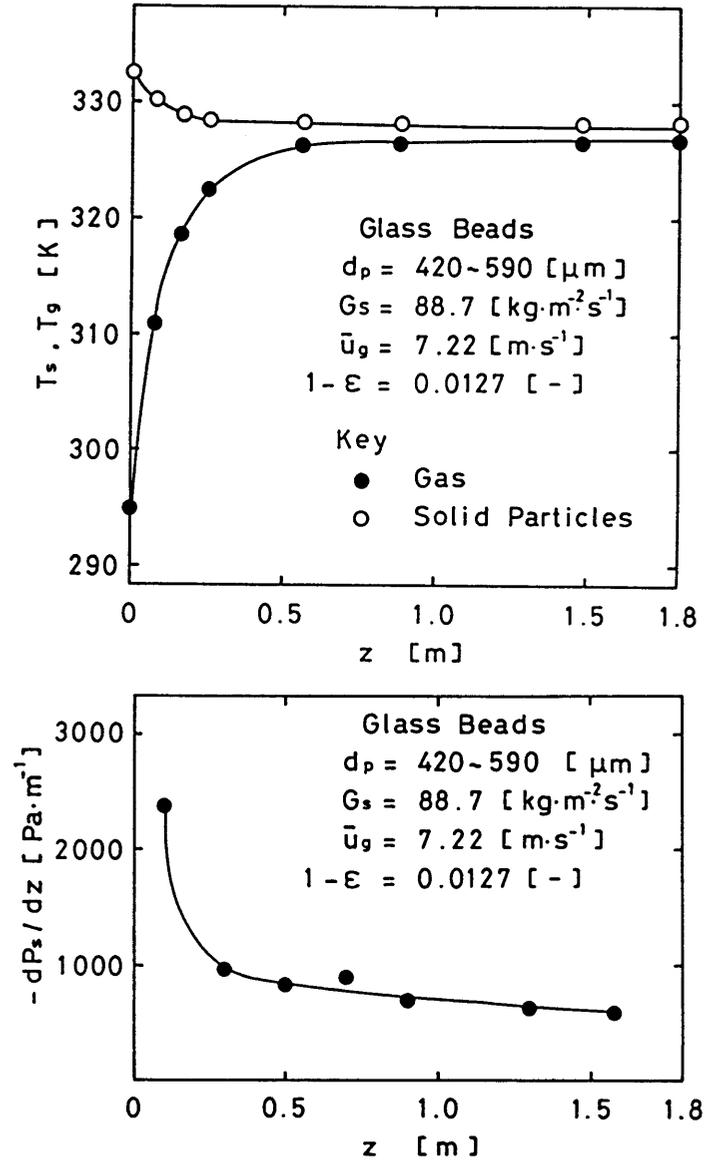


Fig.6-2 Temperature profiles of both gas and solid particles and the gradient of the particle pressure drop in the riser ($d_p=420\text{--}590\mu\text{m}$)

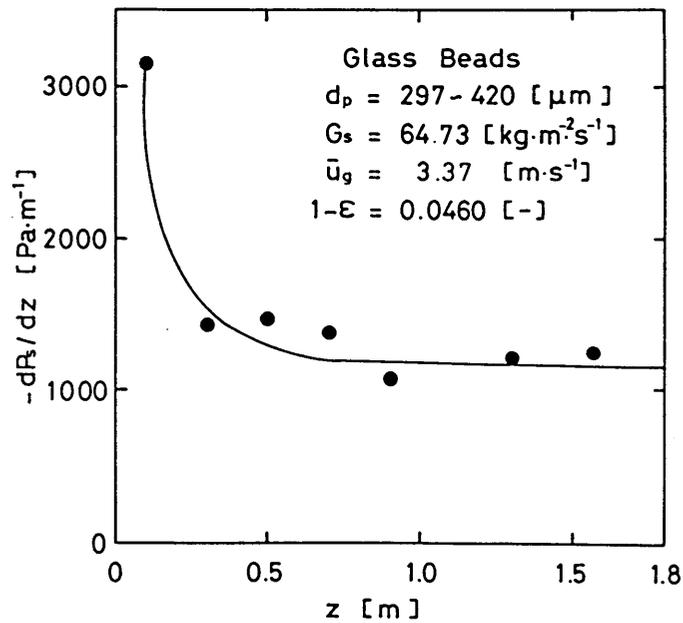
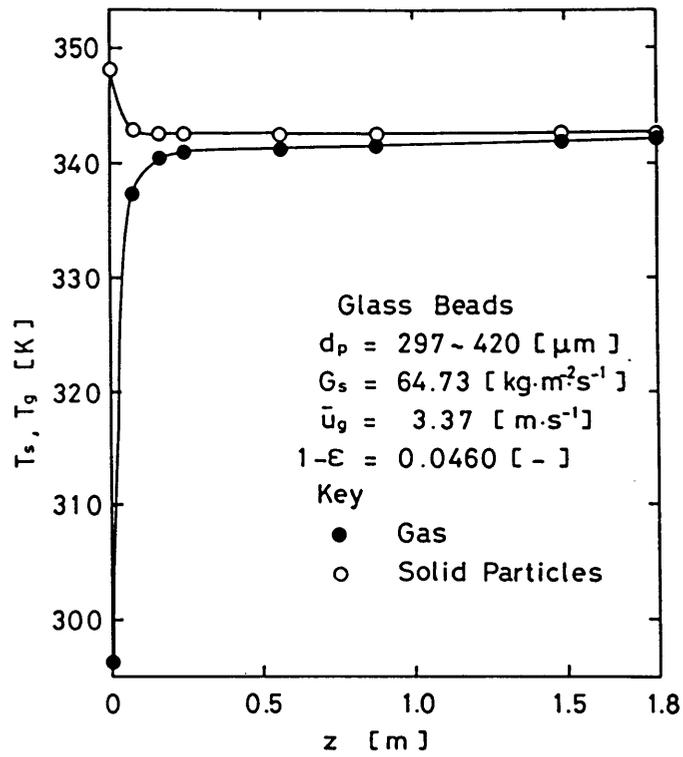


Fig.6-3 Temperature profiles of both gas and solid particles and the gradient of the particle pressure drop in the riser ($d_p=297-420\mu\text{m}$)

ザー内のガス温度は、粒子と流動化ガスが出会うライザー下部で急激に温度上昇し、その後ほぼ一定温度となり平衡に達している様子が窺える。また、軸方向粒子圧力損失勾配も同様に、ライザー下部においては大きく、その後急激に減少して、およそ0.5m付近でほぼ一定値に達した。従って、このような温度分

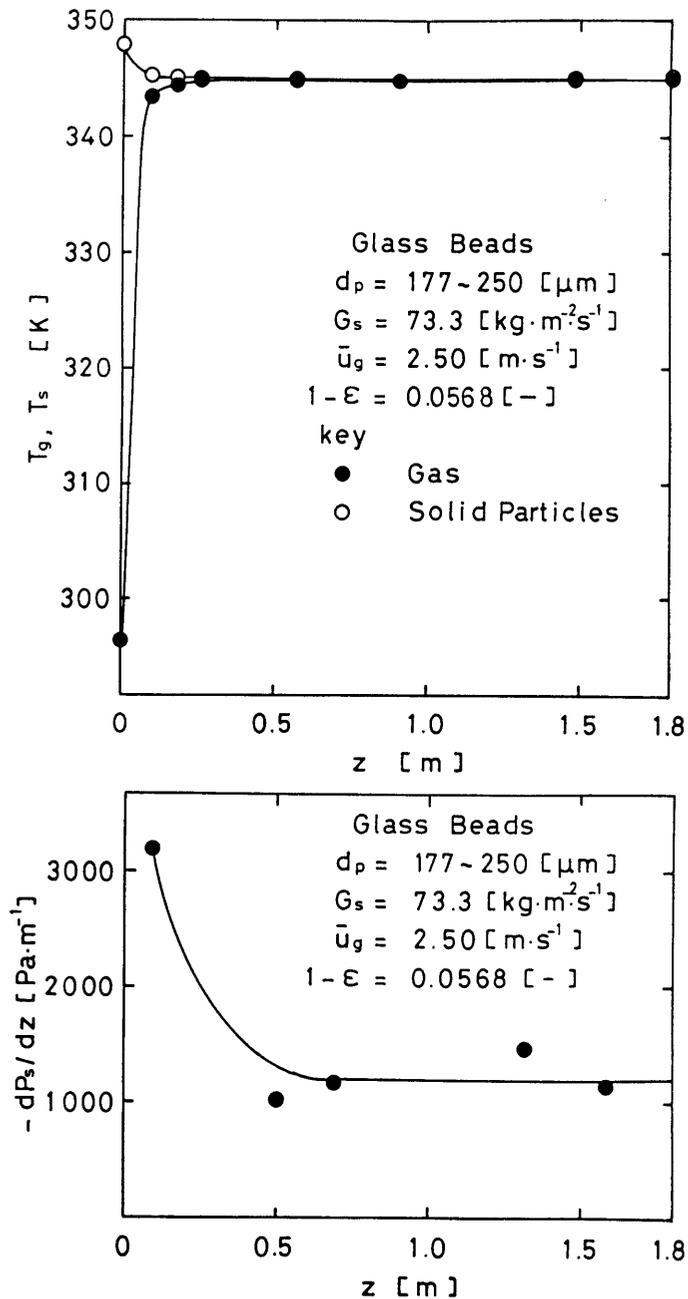


Fig.6-4 Temperature profiles of both gas and solid particles and the gradient of the particle pressure drop in the riser ($d_p=177-250\mu\text{m}$)

布が得られたのは、ライザー下部において粒子濃度が大きいことより粒子・ガス間の混合が激しいことおよび温度推進力が大きいことによるものと考えられる。このような傾向は粒径を変化させても本実験条件下では同様であった。しかし、例えばFig. 6-4が示すように、 $d_p=177\sim 250\mu\text{m}$ という条件では、ライザー分散板上約0.2mですでに熱的平衡に達している。つまり、平衡温度に達するまでの距離は、初期温度推進力がどの粒径でもほぼ等しいことから、これはおもにライザー内軸方向の粒子ホールドアップ分布に起因し、その変化の因子であるガス空塔速度、粒子供給量および粒径に大きく影響されると考えられる。従って、流動層の高速操作を用いた各種固気接触プロセスの装置設計を行う際にはこの現象を考慮する必要がある。なお、一般的なバブリング流動層では、分散板直上で迅速に熱的平衡状態に達することが報告されている⁸⁾。

6・3・2 局所伝熱係数

Fig. 6-5は、粒径 $420\sim 590\mu\text{m}$ を用い、ほぼ同一な粒子供給量の条件でガス流速を変化させたときの局所伝熱係数 h_p の軸方向分布を示す。本図から、局所伝熱係数 h_p の値はライザー下部程大きく、その後急激に減少した後ライザー分散板より0.5m付近ではほぼ一定値を示していることがわかる。この結果は、Fig. 6-2に示した軸方向の粒子圧力損失勾配と同様の傾向を示している。また、 h_p の値は、ガス流速の増大にともなって大きくなっている。Fig. 6-6は、粒径が $297\sim 420\mu\text{m}$ の実験結果であり、Fig. 6-5の結果と同様な傾向を示している。なお、両結果の伝熱係数の違いは、粒径の違いによる終末速度およびガス流速の違い、つまり、スリップ速度の相違によるものと考えられる。

両図の h_p の値は、先述した軸方向粒子ホールドアップ分布を考慮した結果であるので、この手法が妥当であると仮定すると、本結果は、ライザー内での粒子・流体間のスリップ速度の分布に起因していると考えられる。Fig. 6-7にスリップ速度(\bar{u}_s-u_s)と局所伝熱係数 h_p の関係を示す。ただし、ここでの粒子速度 u_s は第1章の単一粒子の運動方程式より算出した値を用いた。なお図中の実線はRanz-Marshall式を表している⁷⁾。本図より、局所伝熱係数とスリップ速度の間には大まかではあるが相関関係が見受けられる。実験結果とRanz-Marshall式とに相違がみられるのは、従来言われているような粒子相互の影響あるいは

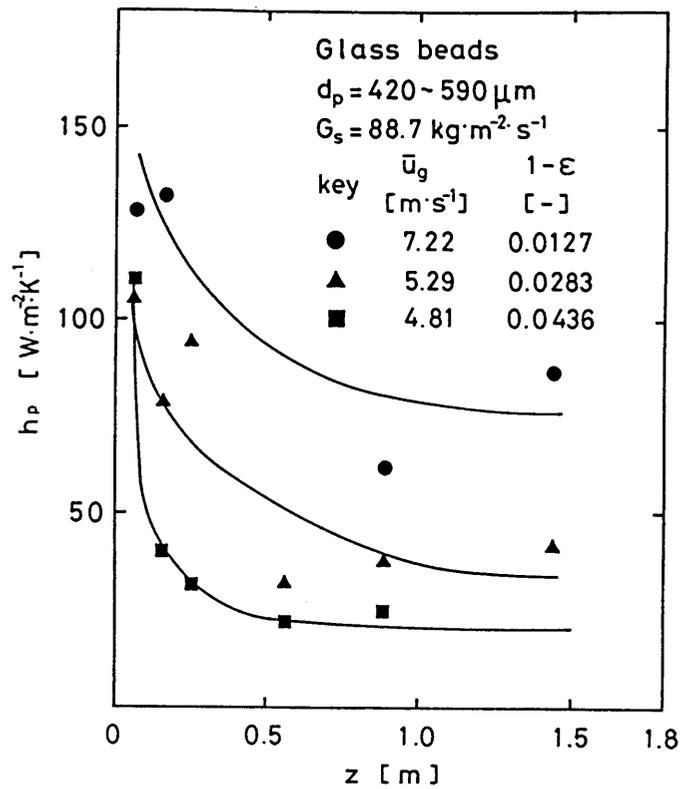


Fig.6-5 Local interfacial heat transfer coefficient between gas and solid particles in the riser ($d_p = 420 - 590 \mu\text{m}$)

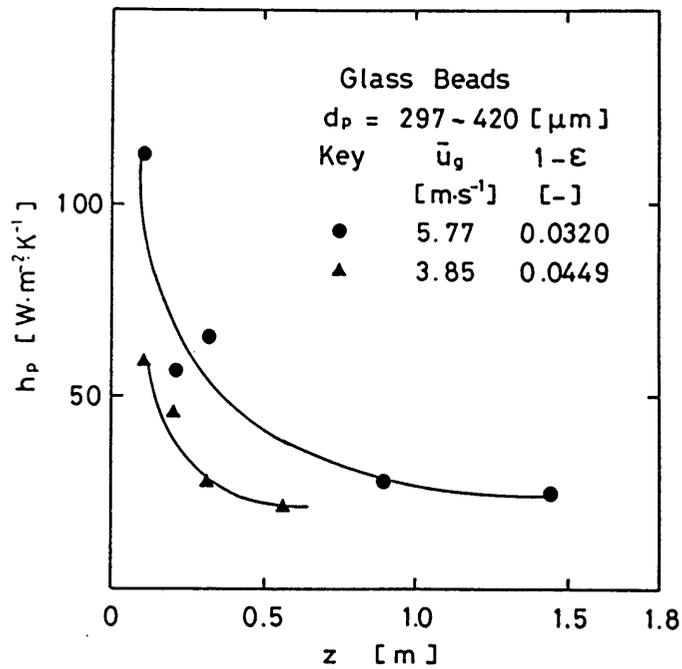


Fig.6-6 Local interfacial heat transfer coefficient between gas and solid particles in the riser ($d_p = 297 - 420 \mu\text{m}$)

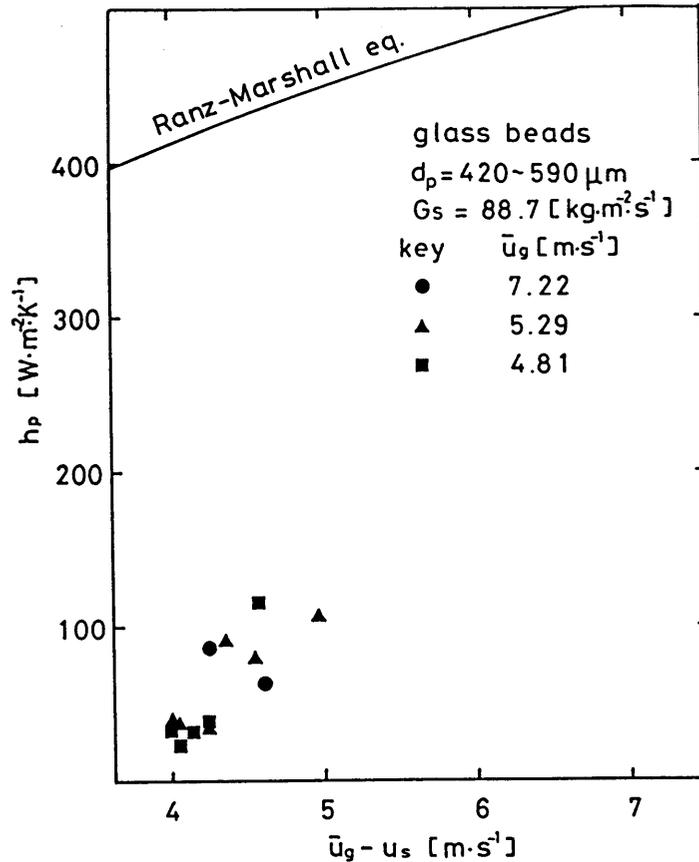


Fig.6-7 Relationship between the local heat transfer coefficient and the slip velocity

本実験条件がRanz-Marshall式の適用範囲外に相当することなどによるものと考えられる。

6・3・3 平均伝熱係数

Fig.6-8に平均伝熱係数基準の粒子ヌッセルト数と粒子レイノルズ数との関係を示す。図中の実線は、Ranz-Marshall式による計算結果を示す。本図より、実験結果は総体的に直線関係にあることが認められる。従って、従来のバブリング流動層伝熱実験で得られる $Nu_p = nRe_p^m$ 型の整理が可能であると考えられる^{2,6,8,12,)}。

実験結果のばらつきの原因は測定の困難さによる問題も考慮しなければならないが、おもに実験条件での粒子ホールドアップの違いによるものと考えられる。すなわち、粒子ホールドアップの大きい状態では、粒子相互作用が大きくなり単一粒子の運動としては必ずしも扱えないような状態が生じている可能性

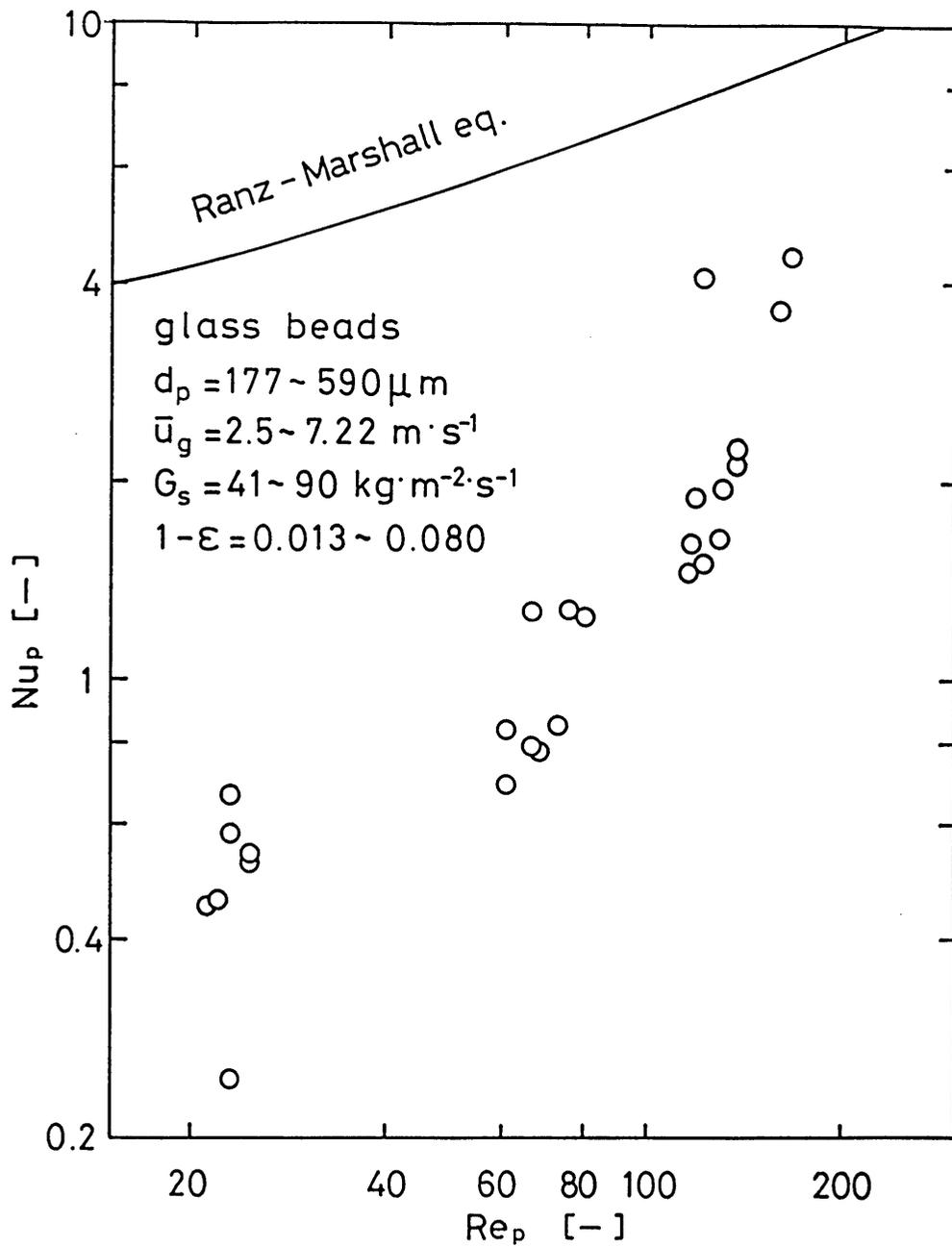


Fig.6-8 Relationship between particle Nusselt number and particle Reynolds number

がある。Ranz-Marshall式との差がみられるのは、本実験で測定された粒子ホールドアップが約0.013~0.080という高速流動化状態^{1,9)}に分類されることにより、単一粒子で求められたRanz-Marshall式とは異なる流動化状態であることによるものと考えられる。なお、本実験条件を堀尾ら⁵⁾のFlow map上に対応させると、従来のバブリング流動領域と希薄輸送領域の境界（高速流動または乱流流動化状態）領域であった。

結言

高速流動層状態における粒子・流体間伝熱特性について、軸方向ガス温度分布および圧力損失勾配を測定して実験的に検討を行うとともに、これらの測定結果より、局所ならびに平均伝熱係数を求めて粒子・流体間伝熱状態の評価を行った。

その結果、熱的平衡状態に達するまでの距離は、ガス流速、粒子供給量および粒径に起因すること、局所粒子・流体間の伝熱係数は、スリップ速度および粒子ホールドアップに依存することが明らかになった。また、ライザー内の平均伝熱係数は、本実験条件下において、第1次近似ではあるが、粒子レイノルズ数との間に相関関係のあることが認められた。

Nomenclature

A, A'	= contact area between gas and solid particles	[m ²]
Ar	= Archimedes number (=d _p ³ ρ _g (ρ _s - ρ _g)g/μ _g ²)	[-]
c _p	= specific heat at constant pressure	[J·kg ⁻¹ ·K ⁻¹]
d _p	= particle diameter	[μm]
g	= gravitational acceleration	[m·s ⁻²]
G _s	= particle feed rate	[kg·m ⁻² ·s ⁻¹]
h _p	= local interfacial heat transfer coefficient between gas and solid particles	[W·m ⁻² ·K ⁻¹]
h _o	= overall interfacial heat transfer coefficient between gas and solid particles within the riser	[W·m ⁻² ·K ⁻¹]
k	= thermal conductivity	[W·m ⁻¹ ·K ⁻¹]
L	= height of the riser	[m]
Nu _p	= particle Nusselt number (=h _p d _p /k _g)	[-]
P _s	= particle pressure drop	[Pa]
Re _p	= particle Reynolds number (=d _p ρ _g (u _g - u _s)/μ _g)	[-]
S	= cross sectional area	[m ²]
T	= temperature	[K]
u	= velocity in the riser	[m·s ⁻¹]
u _t	= terminal velocity of a single particle	[m·s ⁻¹]
V	= volume of the riser	[m ³]
z	= arbitrary distance from the distributor	[m]
ε	= voidage in the riser	[-]
μ _g	= viscosity of gas	[Pa·s]
ρ _s	= apparent density of solid particles	[kg·m ⁻³]
φ _s	= shape factor	[-]

<Subscripts>

g = gas
s = solid particles
i = entrance
o = exit

<Superscript>

- = mean

Literature Cited

- 1) Capes, C.E. and K. Nakamura: Can. J. Chem. Eng., 51, 31 (1973)
- 2) Ferrion, J.R. and C.C. Wstson: Chem. Eng. Prog. Symp. Ser., 58, 38, 79 (1962)
- 3) Grace, J.R.: "Circulating Fluidized Bed Technology", P. Basu (ed.), Pergamon Press, 63 (1986)
- 4) Glicksman, L.R.: Proc. 2nd Intl. Conf. on Circulating Fluidized Beds, (1988)
- 5) Horio, M: Funtai Kogaku Kaishi, 23, 2, 80 (1986)
- 6) Kettenring, K.N., E.L. Manderfield and J.M. Smith: Chem. Eng. Prog., 46, 3, 139 (1950)
- 7) Ranz, W.E and W.R. Marshall: Chem. Eng. Prog., 48, 247 (1952)
- 8) Richardson, J.F. and P. Ayers: Trans. Instn. Chem. Engtrs., 37, 314, (1959)
- 9) Satija, S., J.B. Young and L.S. Fan: Powder Technol., 93, 257 (1985)
- 10) Shimizu, T: Chem. Eng., 10, 973 (1988)
- 11) Takamoto, N., A. Ueda, K. Masamichi, E. Kida and T. Miyamoto: Proc. 21st Shuki-Taikai, Kagaku Kogaku Kyokai, 672 (1988)
- 12) Wamsley, W.W. and L.N. Johanson: Chem. Eng. Prog., 50, 7, 347 (1954)

終 章

本研究は、各種固気接触プロセスへ汎用性がありしかもスモールユニットの装置の開発を目的として、CFM層型（高速流動層と移動層を組み合わせた）固気接触装置を提案するとともに、本装置を石炭燃焼装置に適用して、その燃焼特性を明らかにした。また、燃焼装置の設計において重要なパラメータと成り得る固体燃料の燃焼速度の測定およびその測定法の評価ならびに装置内の粒子・流体間伝熱特性についても併せて検討を行った。以上、本論文は、装置開発とともに装置工学上重要と考えられる諸問題を6章にまとめたものである。

第1章および第2章では、本研究で提案したCFM層型固気接触装置の装置開発の第1段階として、本装置の2次元可視化コールドモデルを試作し、装置内の粒子流動特性について検討した。

第3章では、装置開発の第2段階として、2次元モデルからより実装置に近い3次元コールドモデルを用いて、装置操作上重要となる内管部の粒子流動特性について検討した。

第4章では、CFM層型固気接触装置をスモールスケールの石炭燃焼プロセスへ適用することを目的とし、実験室規模の燃焼装置を試作して本装置における燃焼特性を検討した。

第5章では、石炭燃焼装置設計に重要となる固体燃料の燃焼速度について、熱天秤を用いて測定を行うと同時に精度の良い測定法の操作パラメータを確立して本測定法の評価を行った。

第6章では、CFM層型固気接触装置の内管部設計において必要となる粒子・流体間伝熱特性について、内管部の粒子流動状態に相当する高速流動化状態にてその特性の検討を行った。

以上、第1章から第6章までの研究内容は、装置開発とともに装置工学上の諸問題について検討を行ったが、ここでは、得られた結論の主なものを要約して以下に示す。

第1章では、新たな固気接触装置としてCFM層型固気接触装置を提案し、その開発にあたり、第1段階として、2次元非反応系可視化コールドモデルを

試作してCFM層内の粒子挙動の基本特性を実験的に明らかにした。その結果、下記が明らかとなった。

i) 本装置において、定常操作の下限流速が存在し、これを最小高速流動化速度と称した。これは、粒径および内管高さに依存するとともに高速流動層から濃厚流動層の遷移流速と考えられる。

ii) 内管部粒子ホールドアップおよび粒子滞留時間は、ガス流速の増大とともに指数関数的に減少した。また、粒子滞留時間の塔高の影響については、塔高の1次にほぼ比例した。

iii) 粒子速度分布の実験結果について、単一粒子の運動方程式により理論解析したところ、内管部において、高ガス流速域では端効果が現れたものの第1次近似的にはほぼ良好な一致を示した。

iv) 環状部移動層部において、バッフル高さおよび粒子供給量を増大させることによって、バッフル層内はほぼ安定な移動層に近い状態を呈した。

第2章では、2次元モデル内のより詳細な粒子流動特性の検討を行うために、粒子見かけ密度の異なる粒子を用いて内管内部での粒子流動状態、粒子ホールドアップ、粒子速度分布および粒子滞留時間などの特性を明らかにした。その結果、本実験範囲内において、最小高速流動化速度は静止流体中の粒子終末速度にほぼ一致したが、粒径の小さい粒子ならびに見かけ密度の大きな粒子では、粒子・粒子間ならびに粒子・壁間の相互作用が無視できず、両者の差は大きくなることが明らかとなった。内管部粒子ホールドアップは、ガラスビーズの実験結果と同様に指数関数的に減少していくものの、粒子見かけ密度の増大によってその減少傾向は緩やかとなった。粒子速度分布は、見かけ密度の大きい粒子ほど単一粒子の挙動と類似した。さらに、内管部粒子滞留時間は高ガス流速に至るにしたがい、見かけ密度の違いによる内管部滞留時間比が両粒子の見かけ密度比に漸近する様子が認められ、対して、環状部粒子滞留時間は見かけ密度に依存せず、単なる自由落下現象であることが見受けられた。

第3章では、2次元モデルからより実装置に近い3次元コールドモデルを試作して、定常操作に重要な因子となり得る内管部の粒子流動特性について検討を行った。その結果、最小高速流動化速度は、流路の違いから2次元より3次元モデルのそれが小さくなるとともに、装置の端効果が若干ではあるが認めら

れた。軸方向圧力損失分布の測定を行ったところ、本実験条件下では、濃厚層と希薄層の明確な区別を持たない単一層の流動化状態であることが認められた。また、内管部の粒子ホールドアップを測定し見かけの粒子循環量を求めたところ、ガス流速の増加とともに緩やかに減少すること、粒子供給量の増加とともに増加することならびに高ガス流速域の見かけの粒子循環量と粒子供給量の関係がある程度推定できることが認められた。

第4章では、CFM層型固気接触装置をコンパクトな低品位固体燃料の燃焼装置へ適用し、実験室規模のCFM層型燃焼装置を試作した。そこで、本燃焼装置開発の第1段階として、本装置における燃焼基本特性である各固体燃料の安定過濃および安定希薄燃焼限界について実験的に検討を行った。その結果、本装置は、比較的広い空気比条件で安定した着火が可能であった。また、本燃焼実験の燃焼室内温度分布、ガス組成分布ならびに燃焼粒子組成分布の結果から、本CFM層型装置における各固体燃料の着火機構は内管内部での粒子循環効果のみならず環状部から内管部への熱循環効果も寄与していることが推測された。

第5章では、燃焼装置の設計上のパラメータとなる固体燃料の燃焼速度について、熱天秤を用い燃焼速度測定を行い、精度の良い燃焼速度を求めるための基礎的な操作条件を実験的に検討した。その結果、下記が明らかとなった。

i) 試料ホルダー、保護管として、それぞれ白金製皿状、アルミナ製が試料温度と熱天秤制御用温度が燃焼過程中ほぼ一致した。

ii) 導入ガスの流量、昇温速度、試料充填量をパラメータとした実験を行い、妥当な操作条件として、導入ガスの流量は $50 \times 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{min}^{-1}$ 、昇温速度は $15 \text{ K} \cdot \text{min}^{-1}$ 、試料充填量は約 2.5 mg を得た。なお、試料充填量、導入ガス流量、粒径の影響は、本実験条件下では小さく、反応が化学反応律速で進行していることが認められた。

iii) 得られた反応次数、頻度因子および活性化エネルギーを用いて、TGならびにDTGカーブを再現したところ、両者には良好な一致がみられた。

iv) 非等温条件の結果は、等温条件のそれとほぼ一致した。

以上の点から、燃焼速度データを評価する上で、本章で確立した熱天秤による燃焼速度測定法は、一つの測定操作条件の基準を示すものと考えられる。

第6章では、固気接触プロセスにおける粒子・流体間伝熱特性について、本装置の内管部の粒子流動状態に相当する高速流動層にて検討し、軸方向ガス温度分布および圧力損失勾配の測定を行った。これらの結果より、局所ならびに平均伝熱係数を求めて粒子・流体間伝熱状態の評価を行った。その結果、熱的平衡状態に達するまでの距離は、ガス流速、粒子供給量および粒径に起因すること、局所粒子・流体間の伝熱係数は、スリップ速度および粒子ホールドアップに依存することが明らかになった。また、ライザー内の平均伝熱係数は、本実験条件下において、第1次近似ではあるが、粒子レイノルズ数との間に相関関係のあることが認められた。

以上、各章で得られた結論を要約したが、本論文では、新たな固気接触装置を提案、開発するとともに、本装置をスモールユニットの石炭燃焼装置へ適用した。また、装置設計上重要となる燃焼速度測定ならびに装置内の伝熱特性についても検討した。現在のところ、本CFM層型固気接触装置は、本研究で用いた装置が唯一であり、今後、各種の固気接触プロセスへ適用されることを希望する。

謝 辞

本研究は、名古屋大学工学部・架谷昌信教授の懇切な御指導のもとに行われたものであります。ここに謹んで感謝の意を表します。また、本論文を作成するにあたり、名古屋大学工学部・神保元二教授には、有益な御助言を賜りました。同新井紀男助教授ならびに松田仁樹先生には、研究当初から今日に至るまで終始たゆまぬ御教示と有益な御助言を賜りました。ここに、衷心より深く感謝致します。

なお、本研究を行うにあたり、名古屋大学工学部化学工学科・伊東銈三先生、渡辺藤雄先生、板谷義紀先生、群馬工業高等専門学校・田部井康一助教授、岐阜大学工学部・坂東芳行助教授、東京農工大学工学部・二宮善彦先生ならびに名古屋大学工学部化学工学科の諸先生方には、貴重なる御示唆を頂きました。ここに、厚く御礼申し上げます。

末筆になりましたが、実験および論文をまとめる際に直接御援助頂きました杉田浩昭氏、三好一仁氏、近藤聖氏、渡辺智秀氏をはじめとする名古屋大学工学部化学工学科第3講座の卒業生、在校生に厚く御礼申し上げます。

平成元年

成瀬 一郎

論文目録

題 名	雑 誌 名	共 著 者
C F M 層型固気接触装置内流動の基本特性に関する 2 次元コールドモデル実験	化学工学論文集, 13, 4, 404(1987)	松田、架谷
C F M 層 2 次元コールドモデルにおける粒子流動特性に及ぼすみかけ密度の影響	化学工学論文集, 13, 5, 671(1987)	松田、架谷
熱循環式 C F M 層型 2 段燃焼装置における石炭の燃焼限界	化学工学論文集, 15, 1, 105(1989)	松田、架谷
熱天秤による黒鉛粒子の燃焼速度測定	化学工学論文集、投稿中	近藤、架谷
鉛直上昇固気 2 相流中の粒子 - 流体間伝熱	東海熱工学研究、投稿中	渡辺、架谷

国際会議目録

題 名	雑 誌 名	共 著 者
Combined Fast Fluidized Bed/ Moving-Bed Combustor for Low-Grade Solid Fuels	Proc. of the 1st Intl. Conf. on Cir- culating Fluidized Beds, 417(1985)	M. Hasatani, H. Matsuda, H. Sugita, N. Arai
Combined Entrained-Bed/ Moving-Bed Combustor for Low-Grade Solid Fuels	Proc. of the 5th Eng. Foundation Conf. on Fluidiza- tion, 555(1986)	M. Hasatani, H. Matsuda, H. Sugita, N. Arai
Flow Behaviors of Solid Particles in Three- Dimensional Cold Model of CFM-Bed Gas-Solid Contactor	Proc. of the 1st Korea-Japan Sympo- sium on Fluidiza- tion, 88(1987)	M. Hasatani, H. Matsuda, H. Sugita, N. Arai
Combustion of Low-Grade Solid Fuels in Two-Stage CFM-Bed with Exhaust Heat Recirculation	Proc. of the 1st Intl. Symposium on Coal Combustion, 743 (1987)	M. Hasatani, N. Arai, H. Matsuda

題 名	雜 誌 名	共 著 者
Combustion Limit of Coals in Two-Staged CFM-Bed with Exhaust Heat Recirculation	Proc. of the 2nd Intl. Conf. on Circulating Fluid- ized Beds, 547(1988)	M. Hasatani, H. Matsuda
Combustion Characteristics in CFM-Bed Coal Combustor with Exhaust Heat Recircu- lation	Proc. of the 3rd China-Japan Sympo- sium, 390(1988)	M. Hasatani, H. Matsuda