



# HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	噴流層における気固反応の解析
Author(s)	上牧, 修; Uemaki, Osamu; 藤川, 昌久 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 88, 59-68
Issue Date	1978-08-10
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/41476">https://hdl.handle.net/2115/41476</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	88_59-68.pdf



## 噴流層における気固反応の解析

上 牧 修\* 藤川 昌久\* 久 郷 昌夫\*

(昭和 52 年 12 月 28 日受理)

### A Chemical Reaction in a Spouted Bed

Osamu UEMAKI, Masahisa FUJIKAWA and Masao KUGO

(Received December 28, 1977)

#### Abstract

A theoretical model of vapour phase chemical reaction in a spouted bed reactor is proposed to estimate the conversion of water gas reaction in a thermal cracking equipment of residual oil, and experiments of water gas reaction alone were carried out for testing the validity of the proposed model.

The experimental results indicated that the data obtained were consistent with the predicted values from the model, and that reasonable conversion of water gas reaction can be calculated readily from the present model derived from the hydrodynamic features of spouted beds and will be applicable to estimate the heat and mass balance in thermal cracking equipments.

#### 1. 緒 言

噴流層に関する従来の研究は、伝熱や物質移動などの物理的操作で問題となる層内のガスの流れの状態や粒子運動を主にマクロ的に取り扱ったものが多かったが<sup>1,2,3)</sup>、近年噴流層を石炭のガス化などの反応操作に応用することが注目されるに到り、噴流層で気固反応をおこなう場合の反応率の理論的な推定が試みられるようになってきた<sup>4,5,6)</sup>。しかし実際に噴流層で反応をおこなった実験的研究は少く、通常円筒形噴流層で石油類の熱分解実験をおこなった著者らの研究<sup>7,8)</sup>と特殊な寸法の二次元噴流層 (8 mm × 186 mm) でオゾンの分解反応に及ぼすパルスの影響をしらべた Volpicelli の研究<sup>9)</sup>があるのみで、モデルより推定される反応率と実験結果との比較を試みた研究は見当たらない。

本研究では残渣油の軽質化やオレフィンガスの製造を目的とする、噴流層方式の重質油熱分解装置で二次的な反応として起る水性ガス反応が、反応器内の炭素収支および熱収支の調節上重要な問題となることに着目し、その反応率を理論的に推定するための反応モデルを導くとともに、実測値とモデルからの計算値との比較をおこない、モデルの妥当性を確めた。

#### 2. 反 応 モ デ ル

Fig. 1 に示されるように噴流層内の気体の流れは層中心部の速度の大きい噴流部流れと、それを囲む速度の比較的小さい環状部流れとに分れているため、気固の接触条件は噴流層では環状部と噴流部では異なっている。したがって着目成分の反応率も噴流部と環状部では異なっているものと考えられるので、層を流動化条件の異なる 2 つの粒子層に分けて取り扱うことに

\* 応用化学科第一講座

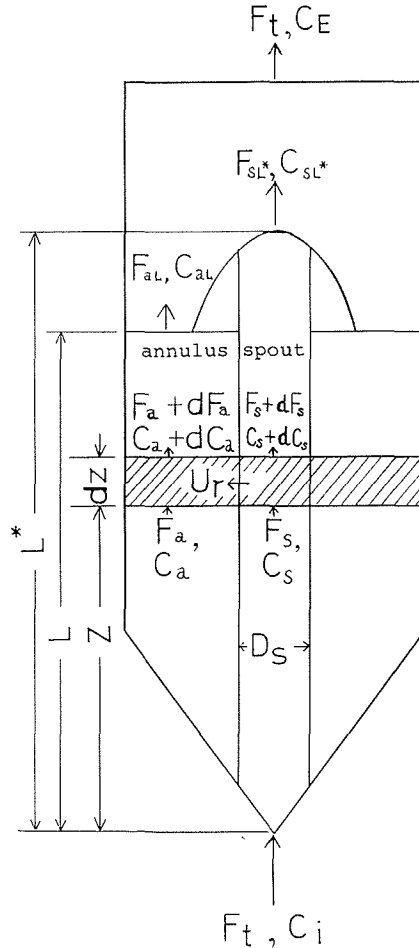


Fig. 1 Hydrodynamic feature of a spouted bed

する<sup>9)</sup>。

このように考えると着目成分の層出口における濃度  $C_B$  と、その反応率  $\eta$  は Fig. 1 に示す記号を用いると各々次式 Eq. (1) と Eq. (2) で表わすことができる。

$$C_B = \frac{C_{aL}F_{aL} + C_{sL}^*F_{sL}^*}{F_t} \quad (1)$$

$$\eta = 1 - \frac{C_B}{C_i} \quad (2)$$

ところで Fig. 1 中の  $C_{aL}$ ,  $F_{aL}$ ,  $C_{sL}^*$ ,  $F_{sL}^*$  はいずれも層の高さ方向の位置を示す  $z$  の関数であるから、 $C_B$  を求めるためには噴流部および環状部の微小高さに関する着目成分の物質収支をとり、その濃度と層高の関係を求めなければならない。

さて取り扱う反応に対して次の仮定

- (1) 気体の流量は反応の前後で変化しない。
- (2) 層内の温度は均一である。
- (3) 粒子径は反応中に変化しない。(触媒反応または粒子の反応率が小さい場合)
- (4) 噴流部、環状部とも気体の逆混合は無視できる<sup>10)</sup>。

が成り立つものと考えると噴流部の微小高さ ( $dz$ ) に関する着目成分の物質収支は Eq. (3) で表わされる。

$$F_s C_s = (F_s + dF_s)(C_s + dC_s) + \left(-\frac{dN}{dt}\right) + \pi D_s u_r C_s dz \quad (3)$$

出量を与える右辺の第2項目は着目成分の反応による消失量であり、第3項目は気体の半径方向の流れによって流出する着目成分の量である。ここで取り扱う反応が反応律速で粒子表面でおこる一次不可逆反応であれば、その反応速度式は次式で与えられる。

$$-\frac{dN}{dt} = k_c (S_p)_s C_s \quad (4)$$

一方気体の半径方向の流速  $u_r$  は ( $dz$ ) 部に対する気体の収支より

$$u_r = -\frac{dF_s}{\pi D_s dz} \quad (5)$$

で表わされる。なお Eq. (4) の噴流部の微小高さ ( $dz$ ) 間に存在する粒子の表面積  $(S_p)_s$  は次式で与えられる。

$$(S_p)_s = \frac{3\pi D_s^2 (1-\varepsilon_s) dz}{2D_p \phi_s} \quad (6)$$

したがってこれら Eq. (4)~Eq. (6) の関係を Eq. (3) に代入して整理すると  $F_s$  および  $C_s$  と  $z$  の関係は次式で表わすことができる。

$$F_s \frac{dC_s}{dz} + \frac{3\pi k_c D_s^2 (1-\varepsilon_s)}{2D_p \phi_s} C_s = 0 \quad (7)$$

ただし  $z=0$  で  $C_s=C_i$ 、 $z=L^*$  で  $C_s=C_{sL^*}$ 。

同様に環状部の微小高さ ( $dz$ ) に関する着目成分の物質収支は次式で表わされる。

$$F_a C_a + \pi D_s u_r C_s dz = (F_a + dF_a)(C_a + dC_a) + \left(-\frac{dN}{dt}\right) \quad (8)$$

Eq. (8) 中の左辺第2項目の  $u_r$  は環状部の気体の流量変化量  $dF_a$  を用いると

$$u_r = \frac{1}{\pi D_s} \frac{dF_a}{dz} \quad (9)$$

で、また右辺第2項目の反応速度式は Eq. (4) と同様に次式で

$$-\frac{dN}{dt} = k_c (S_p)_a C_a \quad (10)$$

与えられる。Eq. (10) 中の環状部微小高さ ( $dz$ ) に存在する粒子の表面積  $(S_p)_a$  は

$$(S_p)_a = \frac{3\pi(D_c^2 - D_s^2)(1-\varepsilon_a) dz}{2D_p \phi_s} \quad (11)$$

で表わされる。

したがってこれら Eq. (9)~Eq. (11) を Eq. (8) に代入して整理すると  $F_a$ 、 $C_a$ 、 $C_s$  と  $z$  の関係は次式で表わすことができる。

$$F_a \frac{dC_a}{dz} + (C_a - C_s) \frac{dF_a}{dz} + \frac{3\pi k_c (D_c^2 - D_s^2)(1-\varepsilon_a)}{2D_p \phi_s} C_a = 0 \quad (12)$$

ただし  $z=0$  で  $C_a=C_s=C_i$ 、 $z=L$  で  $C_a=C_{aL}$ 。

このように着目成分の濃度  $C_a$ 、 $C_s$  は Eq. (7) と Eq. (12) で与えられるので、これらの式を解くことにより、 $C_{sL^*}$  と  $C_{aL}$  が得られ、したがって Eq. (1) と Eq. (2) より着目物質の反応率が求められる。なお Eq. (7) と Eq. (12) 中の  $D_s$  と  $\varepsilon_a$  は従来の実験結果より層の高さ方向の位置  $z$  には依存しないが<sup>5,11)</sup>、 $F_s$ 、 $F_a$ 、 $\varepsilon_s$  は層高  $z$  の関数になっており、それぞれ次式で与えられることが報告されている<sup>12,13)</sup>。

$$F_a = F_{al} \left[ 1 - \left( 1 - \frac{z}{L} \right)^3 \right] \quad (13)$$

$$F_s = F_l - F_{al} \left[ 1 - \left( 1 - \frac{z}{L} \right)^3 \right] \quad (14)$$

$$\varepsilon_s = 1 - k \left( \frac{z}{L} \right) \quad (15)$$

なお Eq. (13) 中の  $F_{al}$  は環状部出口における気体の流量で、層が噴流化可能な最大の層高 ( $L_{\max}$ ) で運転される場合には  $F_{al} = A_a u_{mf}$  と粒子の最小流動化速度と直接関係づけて表わすことができる<sup>12)</sup>。しかし噴流層が噴流化可能な最大層高さ以下で運転される場合には  $F_{al}$  を表わす一般的な式は与えられていない。したがって使用する粒子層に対し別に実験的に  $(F_{al}/A_a \cdot u_{mf})$  対  $(L/L_{\max})$  の関係を測定して、与えられた層高  $L$  に対する  $F_{al}$  を求めなければならない。また Eq. (15) 中の定数  $k$  は粒子の種類によって異なり、一般に  $k=0.7\sim 0.9$  の値をとる。Eq. (7) および Eq. (12) 中の噴流部直径  $D_s$  は McNab の実験式<sup>14)</sup>

$$D_s = \frac{0.118 G^{0.49} D_c^{0.68}}{\rho_b^{0.41}} \quad (16)$$

より求めることができる。ただし Eq. (16) では  $D_s, D_c$  [m],  $G$  [kg/m<sup>2</sup> sec],  $\rho_b$  [10<sup>6</sup>g/m<sup>3</sup>] の単位を用いている。

以上反応率の計算に必要なすべての式が与えられたので、操作条件と Eq. (13)~Eq. (16) および反応速度定数  $k_c$  を Eq. (7) へ代入してこれを解くと、噴流部における着目成分の濃度が得られる。同様の方法により Eq. (12) を解くと環状部の着目成分の濃度が得られる。したがってこれらの値を Eq. (1) と Eq. (2) へ代入することにより、すべての操作条件に対し、着目成分の反応率が求まることになる。

なお Eq. (7) と Eq. (12) を解析的に解くことは  $C_s$  および  $C_a$  が  $z$  の複雑な関係となるため非常に困難であり、数値解法によらなければならない。この著者らのモデルに基づいて Mathur らは着目成分の反応率の操作条件に対する依存性をしらべている<sup>5)</sup>。

しかしこれに対し噴流層内のガス流れの実験結果に基づいて、反応速度が比較的遅い化学反応に対しては次のようなモデルの単純化をおこなうことによって反応率の計算は非常に容易となる。すなわち Mathur ら<sup>11)</sup>, Mamuro ら<sup>12)</sup>が報告しているように、層下部に吹き込まれた気体は層底部で急速に噴流部から環状部へと流入するが、層高がほぼ  $z/L=0.3$  以上では各部を流れる気体の流量変化は小さくなることが明らかにされているので、その平均の流量  $\bar{F}_a$  および  $\bar{F}_s$  は層高  $z$  に依存しないものと考え、実験値より環状部出口気体流量  $F_{al}$  と次の関係式で表わすことができる。

$$\bar{F}_a = 0.9 F_{al} \quad (17)$$

$$\bar{F}_s = F_l - 0.9 F_{al} \quad (18)$$

このように噴流部から環状部への気体の流入は空間率の大きい、すなわち固体粒子の濃度の比較的小さい層底部で起るため、この部分での反応量は層全体で起る反応量にはあまり影響を与えないものと考えられ、したがって噴流層を操作条件の異なる2つの反応器が並列に組み合わせられたものとして取扱うことが可能となり、反応率を与える式は非常に簡単となる。なお高温操作の本実験では Eq. (11) 中の  $\varepsilon_a$  と Eq. (15) 中の  $k$  の実測は困難であるため、著者らが別に物質移動速度の測定実験より得た層内に存在する全粒子中噴流部に存在する粒子数の割合 ( $\alpha$ ) を用いて粒子の表面積を与える Eq. (6) と Eq. (11) を次のように書き直し、反応率の計算に用いる。

$$(S_p)_s = \frac{6\alpha W dz}{D_p \phi_s \rho_s L^*} \quad (19)$$

$$(S_p)_a = \frac{6(1-\alpha) W dz}{D_p \phi_s \rho_s L} \quad (20)$$

ただし  $\alpha$  は次式で与えられる<sup>15)</sup>。

$$\alpha = 5.0 \left( \frac{D_p}{D_c} \right)^{1.7} \left( \frac{u}{u_{ms}} \right)^{0.95} \left( \frac{D_c}{L} \right) \quad (21)$$

このようにモデルを単純化すると噴流部における着目成分の濃度を与える Eq. (7) は次式のように

$$\frac{dC_s}{dz} + \frac{6\alpha R}{L^* \bar{F}_{sr}} C_s = 0 \quad (22)$$

ただし  $z=0$  で  $C_s=C_i$ ,  $z=L^*$  で  $C_s=C_{sL^*}$ 。

また環状部における着目成分の濃度を与える Eq. (12) は次式

$$\frac{dC_a}{dz} + \frac{6(1-\alpha)R}{L \bar{F}_{ar}} C_a = 0 \quad (23)$$

ただし  $z=0$  で  $C_a=C_i$ ,  $z=L$  で  $C_a=C_{aL}$

のように簡単となる。上式では次のように変数の無次元化をおこなった。

$$R \equiv \frac{k_c W}{D_p \phi_s \rho_s F_i}, \quad \bar{F}_{sr} = \frac{\bar{F}_s}{F_i}, \quad \bar{F}_{ar} = \frac{\bar{F}_a}{F_i} \quad (24)$$

以上の式 Eq. (22) と Eq. (23) を解くと  $C_{sL^*}$  および  $C_{aL}$  を与える次式を得る。

$$C_{sL^*} = C_i \exp\left(-\frac{6\alpha R}{\bar{F}_{sr}}\right) \quad (25)$$

$$C_{aL} = C_i \exp\left(-\frac{6(1-\alpha)R}{\bar{F}_{ar}}\right) \quad (26)$$

したがって着目成分の反応率は Eq. (1) と Eq. (2) より次式で与えられる。

$$\eta = 1 - \left[ \bar{F}_{sr} \exp\left(-\frac{6\alpha R}{\bar{F}_{sr}}\right) + \bar{F}_{ar} \exp\left(-\frac{6(1-\alpha)R}{\bar{F}_{ar}}\right) \right] \quad (27)$$

なお Eq. (24) 中の  $\bar{F}_s$  と  $\bar{F}_a$  の値は別に実験的に求めた ( $F_{aL}/A_a u_{mf}$ ) 対 ( $L/L_{max}$ ) の関係より、また Eq. (27) 中の  $\alpha$  は Eq. (21) よりそれぞれ求まり、またその他の変数はすべて実験条件より与えられるので Eq. (27) より反応率を計算することができる。

### 3. 実験および実験結果の解析

実験装置のフローシートを Fig. 2 に示す。

水蒸気はオリフイスで流量を測定されたのち加熱炉へ送られ、所定の温度にまで加熱されて反応塔下端へ吹き込まれる。反応塔（塔高は 750 mm、ノズル径比は  $D_i/D_c=0.122$ 、円錐部角度は 60 度で、塔内径が 105 mm と 131 mm の 2 種類を使用）ではコークス粒子 ( $D_p=1.52$  mm,  $\rho_s=1.420$ ,  $\phi_s=0.70$ , 固定炭素=99%, 灰分=0.2%以下, 塔内滞留量=750~2,000 g) がこの加熱水蒸気によって噴流化の状態に保たれており、コークスと水蒸気間に水性ガス反応が起る。反応生成ガスを含んだ噴流化媒体の水蒸気はサイクロンを通ったのち冷却器に入り、ここで凝縮して受器は集められる。

一方生成ガスは一度ガスホルダーに集められたのちガスメータで計量されて系外へ排出される。分析用のガスは受器出口において採集され、ガスクロで組成が測定される。実験条件は下記に示す通りである。

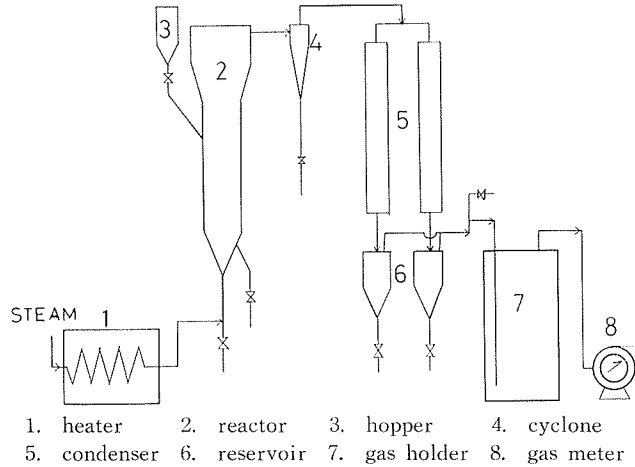


Fig. 2 Flowsheet of experimental equipment

Table 1 Examples of experimental data

Run No.	12	14	8	16	7
reaction temp. (°C)	680	740	777	800	813
weight of coke in bed (g)	1,000	1,000	2,000	1,600	1,700
flow rate of steam (moles/hr)	513	500	647	700	627
$u/u_{ms}$	1.01	1.03	1.02	1.20	1.08
column diameter (cm)	10.5	10.5	13.1	10.5	13.1
$L/D_c$	2.33	2.33	2.07	3.41	1.81
$\bar{F}_{ar}$	0.336	0.330	0.332	0.283	0.314
$\bar{F}_{sr}$	0.664	0.670	0.668	0.717	0.686
$k_c$ (cm/sec)	$1.2 \times 10^{-3}$	$3.5 \times 10^{-3}$	$6.7 \times 10^{-3}$	$9.8 \times 10^{-3}$	$1.25 \times 10^{-2}$
produced hydrogen (moles/hr)	2.7	8.7	20.4	19.6	35.2
fractional conversion	0.005	0.017	0.032	0.028	0.056

反応温度	700~830°C
反応圧力	20~60 mm Hg (ゲージ圧)
$L/D_c$	1.5~3.4
$u/u_{ms}$	1.01~1.30

実験結果の数例を Table 1 に示す。

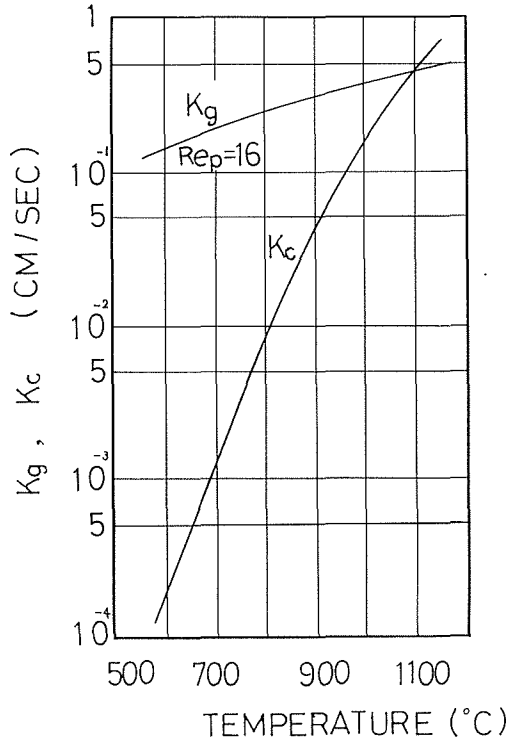
一般にコークスと水蒸気間に起る水性ガス反応は非常に複雑であるが、本実験に用いたコークスのように揮発分と灰分の少いものを常圧、700°C 以上の温度で反応させる場合には次に示す2つの反応式



を考えるだけで十分であり、さらに反応 (B) の速度は反応 (A) に比べると十分遅いので<sup>16,17)</sup>、本実験のように気固の接触時間が極めて短い (0.4 秒以下) 反応条件下では、水蒸気の反応率に及ぼす反応 (B) の影響は小さく、無視できるものと考えられる。また生成ガスの分析結果からもそれが確認された。したがって本実験では反応 (A) のみを考慮して水性ガス反応の解析をおこなうこととし、着目成分の水蒸気の反応率は層に吹き込まれた水蒸気量と生成した水素量とか

Table 2 Reaction rate constant of water gas reaction<sup>19)</sup>

temperature (°K)	900	1,000	1,100	1,200	1,300
$k_c$ (cm/sec)	$3.65 \times 10^{-4}$	$2.88 \times 10^{-3}$	$1.58 \times 10^{-2}$	$6.47 \times 10^{-2}$	$2.14 \times 10^{-1}$

Fig. 3 Comparison of reaction rate constant  $k_c$  with mass transfer coefficient  $k_g$ 

ら求めた。反応 (A) の反応次数は水蒸気分圧が  $7 \times 10^{-3}$  mm Hg 以上、反応温度が  $700^\circ\text{C}$  以上では水蒸気濃度に対して 1 次反応とみなし得る<sup>19)</sup>。また反応 (A) の反応速度定数  $k_c$  の値は Mayer の実測値より反応速度定数を求めた矢木ら<sup>19)</sup>の値を用いた。その値を **Table 2** に示す。

さて通常の気固反応ではその速度式の導出に際し境膜における気体の拡散速度、気固間の化学反応速度、さらに固体粒子内での気体の拡散速度の 3 つを考慮する必要がある。しかし本実験に用いたコークスは灰分が非常に少ないので、固体粒子内の気体の拡散抵抗は無視できるものと考えられる。したがって粒子表面の境膜での気体の拡散抵抗と化学反応による抵抗の 2 つを考慮して反応 (A) の速度式を求めると次式 Eq. (28) を得る。

$$-\frac{dN_{\text{H}_2\text{O}}}{dt} = \frac{1}{\frac{1}{k_c} + \frac{1}{k_g}} S_p C_{\text{H}_2\text{O}} = k_l S_p C_{\text{H}_2\text{O}} \quad (28)$$

ただし  $k_l$  は総括反応速度定数、 $k_c$  は化学反応速度定数、 $k_g$  は境膜内物質移動定数である。

ここで **Table 2** に示した反応速度定数  $k_c$  と著者らの実験式<sup>15)</sup>より求めた本実験条件下での境膜内物質移動定数の値とを比較して示すと **Fig. 3** を得る。この **Fig. 3** から明かなように、コークスの粒子径が約 1.5 mm、反応温度が  $900^\circ\text{C}$  以下の本実験条件の反応 (A) では気固間の化学反応が反応の律速段階になっていることが認められる。したがって Eq. (28) において  $k_l = k_c$  とおくことができるので、反応率を与える Eq. (27) に実験条件と **Table 2** の反応速度定

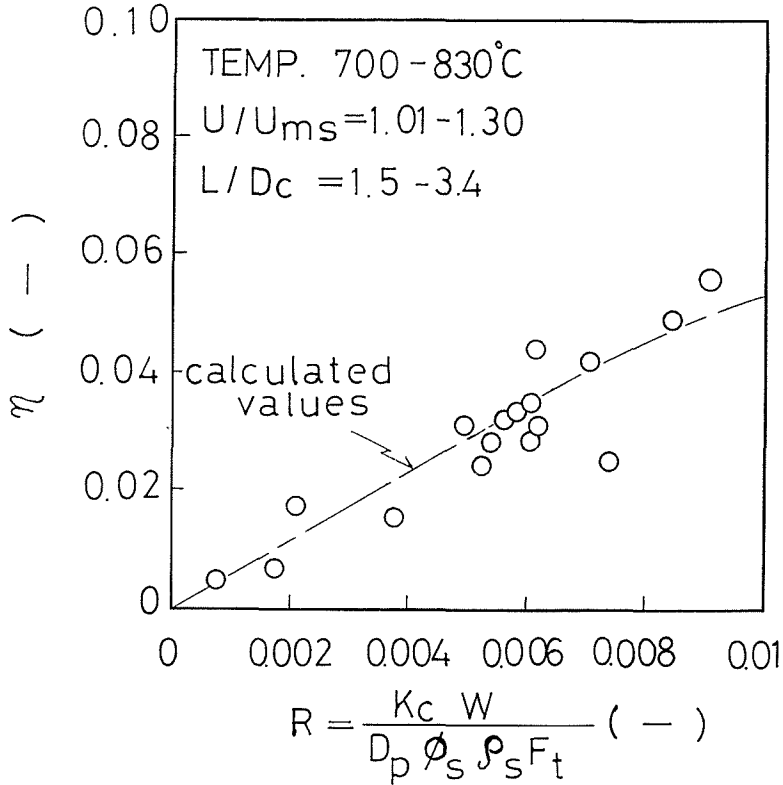


Fig. 4 Comparison of calculated values with experimental conversion

数を代入することにより、与えられた条件下の水蒸気の理論反応率を求めることができる。

このようにして得られた計算値を反応条件を表わす無次元数  $R(=k_c W/D_p \phi_s \rho_s F_t)$  を横軸にとって実測の反応率と比較して Fig. 4 に示した。Fig. 4 から明かなように Eq. (27) による計算値と反応率の実測値の間にはほぼ満足すべき一致性が認められ、900°C 以下の反応温度で進行する水性ガス反応のように、反応速度が比較的遅い反応に対しては提出した簡略化モデルで着目物質の反応率を精度良く推定できることが確かめられた。

なお本実験結果から明らかなように、本実験では水蒸気およびコークスの反応率は十分小さいので式の誘導の際に用いた仮定はすべて満足されているものと考えられる。

#### 4. 結 論

重質油の軽質化やオレフィンガスの製造を目的とする、噴流層方式の重質油熱分解装置内で二次的反応として起る水性ガス反応の理論反応率を求めるため、反応モデルを導き理論式より得た反応率の計算値と実測値との比較検討を試みた。その結果 700~830°C,  $u/u_{ms}=1.01\sim 1.30$ , 化学反応律速の条件下で得られた実測値と、モデルより予想される反応率とがほぼ満足すべき一致性を示すことが認められ、比較的速度の遅い反応に対しては簡略化モデルの適用の妥当性が明らかとなった。このモデルの使用により重質油の熱分解装置内で起る水性ガス反応の反応率を容易に推定することが可能であり、反応装置の設計の際に必要なとされる炭素収支および熱収支の計算に本モデルは非常に有効であると考えられる。

## Nomenclature

$A_a$	=cross-sectional area of annulus	(cm <sup>2</sup> )
$C$	=concentration of reactant	(mole/cm <sup>3</sup> )
$C_a$	=concentration of reactant in annulus gas	(mole/cm <sup>3</sup> )
$C_{aL}$	= $C_a$ at $z=L$	(mole/cm <sup>3</sup> )
$C_B$	=concentration of reactant in total gas leaving the reactor	(mole/cm <sup>3</sup> )
$C_i$	=concentration of reactant in gas entering the reactor	(mole/cm <sup>3</sup> )
$C_s$	=concentration of reactant in spout gas	(mole/cm <sup>3</sup> )
$C_{sL}^*$	= $C_s$ at $z=L^*$	(mole/cm <sup>3</sup> )
$D_c$	=column diameter	(cm)
$D_i$	=gas inlet diameter	(cm)
$D_p$	=particle diameter	(cm)
$D_s$	=spout diameter	(cm)
$F_a$	=gas flow rate in the annulus	(cm <sup>3</sup> /sec)
$\bar{F}_a$	=average gas flow rate in the annulus	(cm <sup>3</sup> /sec)
$F_{aL}$	=gas flow rate in the annulus at $z=L$	(cm <sup>3</sup> /sec)
$F_s$	=gas flow rate in the spout	(cm <sup>3</sup> /sec)
$\bar{F}_s$	=average gas flow rate in the spout	(cm <sup>3</sup> /sec)
$F_{sL}^*$	=gas flow rate in the spout at $z=L^*$	(cm <sup>3</sup> /sec)
$F_t$	=total gas flow rate in the spouted bed	(cm <sup>3</sup> /sec)
$G$	=gas mass flow rate in the spouted bed	(g/cm <sup>2</sup> ·sec)
$k$	=constant in Eq. (15)	(—)
$k_c$	=reaction rate constant	(cm/sec)
$k_g$	=mass transfer coefficient	(cm/sec)
$k_t$	=overall reaction rate constant	(cm/sec)
$L$	=bed height	(cm)
$L^*$	=value at $z$ at top of fountain	(cm)
$L_{max}$	=maximum spoutable bed depth	(cm)
$N$	=moles of reactant	(moles)
$R$	=dimensionless reaction rate group	(—)
$S_p$	=surface area of particles	(cm <sup>2</sup> )
$(S_p)_a$	=surface area of particles in the annulus at $dz$	(cm <sup>2</sup> )
$(S_p)_s$	=surface area of particles in the spout at $dz$	(cm <sup>2</sup> )
$t$	=time	(sec)
$u$	=superficial gas velocity	(cm/sec)
$u_r$	=radial gas velocity	(cm/sec)
$u_{mf}$	=minimum superficial gas velocity for fluidizing	(cm/sec)
$u_{ms}$	=minimum superficial gas velocity for spouting	(cm/sec)
$W$	=weight of particles in the bed	(g)
$z$	=vertical distance from gas inlet	(cm)
$\alpha$	=fraction of particles existing in the spout	(—)
$\epsilon_a$	=annulus voidage	(—)
$\epsilon_s$	=spout voidage	(—)
$\eta$	=fractional overall conversion of reactant	(—)

$\rho_b$	= particles bulk density	(g/cm <sup>3</sup> )
$\rho_s$	= particle density	(g/cm <sup>3</sup> )
$\phi_s$	= shape factor	(—)

### Literature cited

- 1) Becker, H. A.: *Chem. Eng. Sci.*, **13** (1961), p. 245.
- 2) Chatterjee, A.: *Ind. Eng. Chem. Process Des. Develop.*, **9** (1970), 4, p. 531.
- 3) Vukovic, D. V.: *Can. J. Chem. Eng.*, **54** (1976), p. 33.
- 4) 上牧 修: 学位論文 (北海道大学) (1968), p. 141.
- 5) Mathur, K. B.: *Chem. Eng. Sci.*, **29** (1974), p. 789.
- 6) 竹田邦彦, 服部博嗣: 化学工学論文集, **2** (1976), 5, p. 507.
- 7) 上牧 修, 久郷昌夫他: 工化誌 **73** (1970), 3, p. 453.
- 8) 上牧 修, 久郷昌夫他: 工化誌 **74** (1971), p. 933.
- 9) Volpicelli, G.: *Ingegneria Chimica Italiana*, **1** (1965), 2, p. 37.
- 10) Lim, C. J., Mathur, K. B.: *AIChE Journal*, **22** (1976), 4, p. 674.
- 11) Mathur, K. B., Gishler, P. E.: *AIChE Journal*, **1** (1955), 2, p. 157.
- 12) Mamuro, T., Hattori, H.: *J. Chem. Eng. Japan*, **1** (1968), 1, p. 1.
- 13) Mathur, K. B., Epstein, N.: *Spouted Beds* (1974) p. 111, Academic Press.
- 14) McNab, G. S.: *Brit. Chem. Eng. Proc. Tech.*, **17** (1972), p. 532.
- 15) 上牧 修, 久郷昌夫: 化学工学, **32** (1968), p. 895.
- 16) Lowry, H. H.: *Chemistry of Coal Utilization* (1963) p. 900, John Wiley & Sons.
- 17) 馬場有政他: 石炭化学工業 (1960) p. 162, 産業図書.
- 18) Lowry, H. H.: *Chemistry of Coal Utilization* (1963) p. 890, John Wiley & Sons.
- 19) 矢木 栄他: 化学工学便覧 (1958) p. 266, 丸善