



Title	微粒子の気系流動化による定量供給
Author(s)	千葉, 忠俊
Citation	北海道大學工学部研究報告, 162, 219-230
Issue Date	1993-01-29
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/42328
Type	departmental bulletin paper
File Information	162_219-230.pdf



微粒子の気系流動化による定量供給

千葉 忠俊

(平成4年9月18日受理)

A Solid Feeder of Fluidised Agglomerates of Fine Particles

Tadatoshi CHIBA

(Received September 18, 1992)

Abstract

In an effort to examine gas fluidisation and transportation of several different kinds of non-fluidisable and fluidisable fine particles such as submicron ceramics, commercial carbon black and catalyst particles, pressure drop and expansion of the particle beds were measured in a 50mm i. d. fluidised column. It was shown from the measurements that smooth fluidisation is obtainable even for some submicron particles if they grow to agglomerates with mean diameters of ca. $100\mu\text{m}$ by gas passage through the bed. Entrainment of these fluidised particles out of the column, particularly of carbon black and FCC catalyst, was also examined equipping a gas jet tube and a riser tube inside the column. The rate of particle entrainment was shown to depend on the gas velocity in the riser tube, the diameter of the riser tube, the depth of the riser bottom in the bed and the distance between the nose of the jet tube and the bottom of the riser tube. Existing theories were applied to estimate the effective diameter of agglomerates and the rate of entrainment.

1. ま え が き

最近の材料製造やエネルギー利用プロセスには、サブミクロン粒子を含む微粒子の連続供給および排出などのハンドリング工程が含まれることが多い。ところが、固体粒子は粒径が小さくなるとともに表面の付着性が増し、粒子層は凝集しやすくなるので、ハンドリングは難しくなる。気系流動化は、粒子間隙にガスを流通させて粒子に抗力を与え、粒子を無重力状態にして粒子層全体をあたかも流体のように変化させる操作であり、すでに反応装置や吸着、乾燥などの単位操作装置として工業的にも広く応用されている操作法である。しかしながら、上記の凝集の影響は粒径が数ミクロン以下になるととくに顕著になるので、サブミクロン粒子の気系流動化はこれまで経験的に不可能とされており¹⁾、流動特性に関する研究は少ない^{2,3)}。そこで、本研究では凝集を起こしやすい数種の微粒子を試料として、これらの流動化特性と流動化したときの層外への搬送特性を実験的に検討して、結果を考察した。

2. 実 験

2.1 粒子試料

これまで実験に使用した微粒子の関連物性値を表1に示す。これらの微粒子は比較的広い粒径分布をもつ。表中、 d_{10} と d_{20} はそれぞれレーザー回折法による体積累積分布平均径と SEM 写真画像解析法による円相当径を表している。サブミクロン粒子の場合、これらの平均径は測定法により異なる。粒子の真密度 ρ は、ヘリウムガスを用いた自動平衡式圧力比較法（気体容積法）により測定した値である。また、各微粒子層の充填状態を反映する密度としては、粉体テスターにより測定したタッピング充填層平均密度 ρ_T とエアレーション粗充填層平均密度 ρ_L を示してある。

表1 使用粒子の平均物性

粒 子	平 均 径		平 均 密 度		
	$d_{02}^{1)}$ [μm]	$d_{02}^{2)}$ [μm]	ρ [g/cm^3]	$\rho_T^{3)}$ [g/cm^3]	$\rho_L^{4)}$ [g/cm^3]
SiC	0.6	0.59	2.15	1.11	0.57
Si_3N_4	0.8	0.48	3.18	1.27	1.03
$\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$	0.9	0.29	3.90	1.33	0.97
$\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$	8.2	1.83	3.40	0.41	0.23
TiO_2	1.0	0.56	4.16	0.97	0.38
carbon black	—	0.46	1.85	0.50	0.30
FCC	24.0	—	2.05	0.60	0.53
glass beadrn	26.6	18.5	2.46	1.56	1.25

1) レーザー回折法による体積累積分布平均径
 2) SEM による算術平均円相当径
 3) 粉体テスターによる平均タッピング充填層密度
 4) 粉体テスターによる平均粗充填層密度

2.2 実験装置と方法

1) 流動特性：流動層装置のフローシートを図1に示す。流動層装置本体は、内径が50mm、高さが700mmのガラス製円管であり、流動化ガスとしては湿分の影響を除くため、市販ボンベからの窒素ガスを直接用いた。窒素ガスはローターメーターで計量後、球状真鍮粒子焼結板とステンレス濾過板をサンドイッチにしたガス分散板を通して層に送入した。

実験では、試料粒子を充分乾燥後、所定量流動層装置に充填し、十分の窒素ガス流速下において約15分間流動化後、ガス速度を徐々に減少させながら、各ガス速度における層の圧力損失と流動層高を測定した。

2) 流動化微粒子気流搬送特性：流動層装置本体は上と同一である。流動化微粒子の気流搬送は所定のガス速度で流動化した流動層内に、図のように垂直に挿入したガラス製ガス噴射管から、これと対向した上方のガラス製気流搬送管に、種々の速度で窒素ガスを噴射することにより行なった。実験では、気流搬送管から排出する粒子を図のようにして層内に循環した。排出粒子速度は切替えコックにより循環粒子を一定時間サンプリングして求めた。また、排出管内粒子濃度は管両端における圧力差を測定して決定した。測定はガス噴射管径 d_0 、搬送管径 d_r 、層表面から噴射管先端までの深さ H 。および噴射管先端と搬送管底の間隔 L 。を変えて行ない、排出粒子速度に

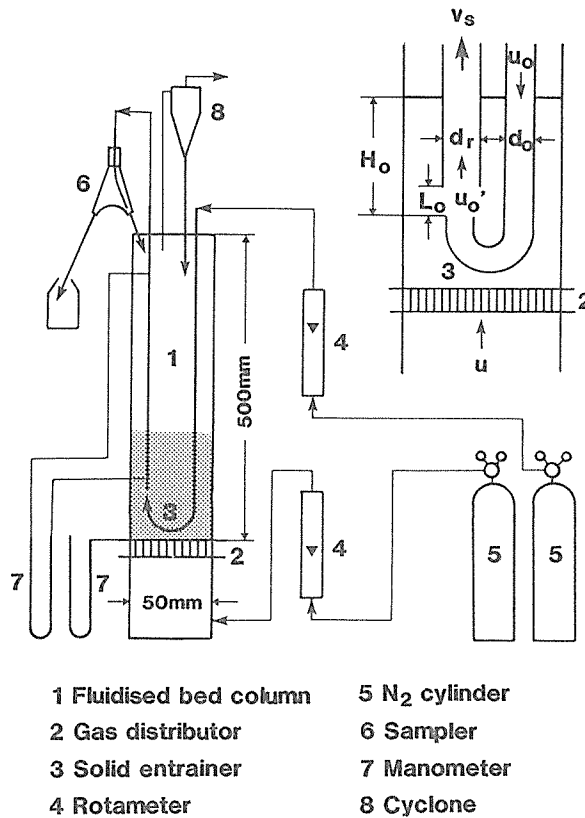


図1 気系流動層実験装置のフローシート

対するこれらの変数の影響を検討した。また、測定には表1の試料のうち、とくにカーボンブラックと FCC 触媒粒子を用いた。

3. 結果および考察

3.1 微粒子の流動特性

試料粒子をそれぞれカーボンブラックと FCC 触媒粒子として、ガス速度を高速度から低速度へと減少すると、層の圧力損失変化は図2のように変化する。ここで、縦軸の層圧力損失 ΔP は、充填した粒子がすべて流動化したときの値 W/A で無次元化してある。これをみると、FCC 触媒粒子の場合には十分の速度下ではすべての粒子が流動化するのに対し、カーボンブラック粒子の場合には一部の粒子が流動化されていないことがわかる。後者の場合には、粒子同志が付着して凝集粒子が形成し、充填した粒子の一部は流動化されずに層底に偏析するためである。また、この場合には速度の減少とともにチャンネルングや空孔形成などの現象が観察され、層圧力損失の変化は不規則となる。また、層表面のガス分散板からの高さ H (以下、層高) は、どの粒子の場合にもガス速度の減少とともに減少するが、減少のようすは粒子によって異なり、一様ではなかった。カーボンブラック粒子の場合、層膨張比 H/H_{mf} がもっとも大きく、ガス速度が 6 cm/s 以上ではほぼ 2 以上であったが、4 cm/s 以下に減少すると、層高は急減した。これに対し、 γ - Al_2O_3 粒子の場合には、層膨張比は高速度範囲でも 1.5 以下であり、速度低下とともに単調に漸減した。

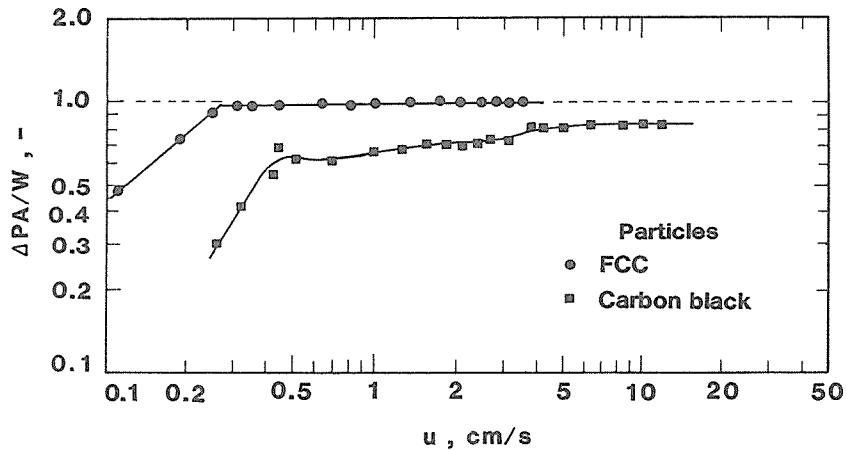


図2 層圧力損失のガス速度減少に伴う変化

以上のように、サブミクロン微粒子の流動化特性は粒子の付着力を支配する表面物性の影響を受けて大きく異なる。例えば、カーボンブラックと Si_3N_4 粒子は平均径がほぼ等しいにもかかわらず、前者の場合にはガス速度の減少とともに層は気泡流動化状態から固定層状態へスムーズに移行するのに対し、後者の場合には層は低速度範囲になるとチャンネリングを起こしたり、空孔を発生して不安定な局所流動状態を経過しながら固定層に移行した。そこで、このような粒子の凝集状態の差について、以下のような解析を試みた。

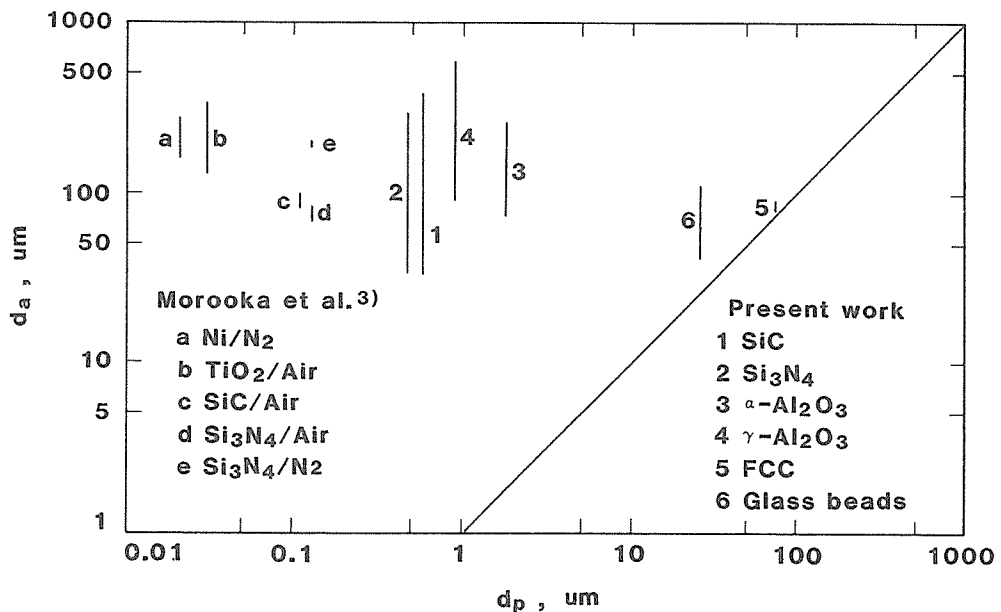


図3 1次粒子径と凝集粒子径の関係

図3に、1次粒子の平均径 d_p と凝集粒子の平均有効径 d_a を比較する。ここで、 d_a はつぎのようにして推定したものである。すなわち、微粒子から成る流動層においては、複数個の1次粒子が凝集した2次粒子やこれらがさらに凝集した多次凝集粒子が濃厚相を構成し、ガスは凝集粒子

群の間隙を通過するものと考え、凝集粒子の比表面積径 d_{sp} は Kozeny-Carman 式から

$$d_{sp} = 13.42 \times \{ \mu Q L / (A \Delta P) \}^{1/2} \{ (1 - \varepsilon) / \varepsilon^{3/2} \} \quad (1)$$

と与えられる。上式により d_{sp} を求めるには、空隙率 ε を推定しなければならず、そのためには凝集粒子密度の値が必要である。いま、凝集粒子の有効密度 ρ^* を 1 次粒子の総質量 m を凝集粒子の周りに生ずる死空間の体積も含めた凝集粒子の有効体積 V^* で除した値 ($= m/V^*$) とすると、 ρ^* は凝集粒子の総体積 v と密度 ρ_a を用いて、

$$\rho^* = \rho_a v / V^* \quad (2)$$

と書かれる。さらに、凝集粒子は一般には不規則な形状をもつと考えられるので、体積形状係数を v とすると、 v は ϕ_v と凝集粒子径 d_a から

$$v = \phi_v d_a^3 \quad (3)$$

と書かれる。また、 V^* は

$$V^* = (\pi/6) d_{sp}^3 \quad (4)$$

であるので、(2)～(4)式から ρ^* は

$$\rho^* = (6/\pi) \phi_v (d_a/d_{sp})^3 \rho_a \quad (5)$$

と表わされ、凝集粒子間の空隙率 ε は、凝集粒子の有効密度 ρ^* を用いて

$$\varepsilon = 1 - (\rho_b/\rho^*) \quad (6)$$

と書かれる。ここで、 ρ_b は凝集粒子層の密度であり、上式に (5) 式の関係を代入すると

$$d_{sp} = \{ (6/\pi) \phi_v (\rho_a/\rho_b) (1 - \varepsilon) \}^{1/3} d_a \quad (7)$$

となる。したがって、凝集粒子の有効径 d_a は、(1) と (7) 式から

$$d_a = 13.42 \times \{ \mu Q L / (A \Delta P) \}^{1/2} \{ \pi / (6 \phi_v) \rho_b / \rho_a \}^{1/3} \{ (1 - \varepsilon)^{2/3} / \varepsilon^{3/2} \} \quad (8)$$

と表わされる。

一方、 d_{sp} と d_a の関係は、通常 $d_{sp} \geq d_a$ であるので、 ε は

$$\varepsilon \leq 1 - \{ \pi / (6 \phi_v) \} (\rho_b/\rho_a) \quad (9)$$

の関係により規定される。さらに、上式において凝集粒子形が球と立方体の中間であるとする、 $\pi/6 < \phi_v < 1$ であるので、 ε の最大値は次式を満足する値となる。

$$1 - (\rho_b/\rho_a) < \varepsilon \leq 1 - 0.524 \times \rho_b/\rho_a \quad (10)$$

ここで、凝集粒子密度 ρ_a は粗充填層密度 ρ_L からタッピング充填層密度 ρ_T までの範囲の値

$$\rho_L \leq \rho_a \leq \rho_T \quad (11)$$

と考えられる。

図 3 の d_a は、流動化実験中に固定層を形成するガス速度範囲で、層圧力損失とガス速度および

静止層高から求めた層密度 ρ_0 を用いて, (10) と (11) 式の条件を満足する粒径を (8) 式から計算したものである。図から, 粒子の種類によって d_a は異なるが, ここで使用した粒子については約 $20 \sim 500 \mu\text{m}$ であり, 1 次粒子径 d_p のおよそ $10 \sim 100$ 倍の大きさであることがわかる。この結果は本実験や既存の目視観測結果²⁾ともほぼ一致するので, 本推算法は妥当と思われるが, 図中の d_p と d_a の関係には大きなバラツキがみられる上, d_a は d_p が $10 \mu\text{m}$ 以上では d_p 減少とともに減少するのに対し, d_p が $1 \mu\text{m}$ 以上では増加しており, このような結果は凝集粒子径ばかりでなく, 充填構造をも考慮しなければならないことを示唆している。そこで, ここでは凝集粒子の充填構造を Rumpf の式⁴⁾

$$\sigma = \{(1 - \varepsilon) / \pi\} k(\varepsilon) F_H / d_p^2 \quad (12)$$

に基づいて推定した。上式において, 同種粒子の場合には F_H が充填状態には依存しないと考えると, 上述のタッピングおよび粗充填層それぞれの σ_T と σ_L の関係は

$$\sigma_L / \sigma_T = \{(1 - \varepsilon_L) / (1 - \varepsilon_T)\} k(\varepsilon_L) / k(\varepsilon_T) \quad (13)$$

となり, σ_L / σ_T は充填構造だけの関数となる。いま, 上式中の ε_L と ε_T を実測結果から与え, $k(\varepsilon_L)$ と $k(\varepsilon_T)$ を Suzuki らの式⁵⁾から推算して, σ_L / σ_T を d_p あるいは d_a に対して点綴すると, 図 4 のようになる。まず, σ_L / σ_T と d_p の関係を見ると, σ_L / σ_T は d_p と d_a の関係と同様に d_p が $1 \mu\text{m}$ 近傍で極小となっているが, ε_L や ε_T の測定中に凝集を起こす粒子もあり, この関係の現象論的意味は必ずしも明確ではない。さらに, σ_L / σ_T と d_a の関係をみても大きなバラツキがみられるので, この点については今後さらに粒子表面の微視的な物性を考慮した解析が必要である。

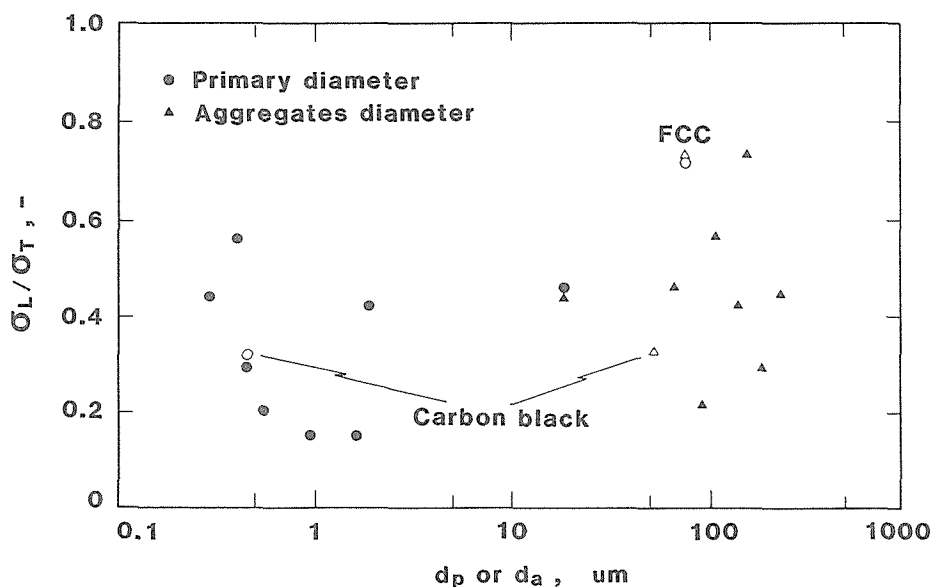


図4 凝集粒子構造パラメーターと粒子径の関係

以上のように, 1 次粒子径がサブミクロンから数十ミクロンの微粒子の流動特性は, これらが形成する凝集粒子によって左右される。十分のガス速度下で約 $100 \mu\text{m}$ 以上の凝集粒子が形成する場合には, 良好な流動状態が得られるガス速度範囲があることが明らかである。

3.2 流動化微粒子の気流搬送特性

1次あるいは凝集粒子が流動化すれば、これらを連続的に供給したり、排出することが可能となる。そこで、ここでは前節の実測結果に基づき、1次粒子および凝集粒子が良好な流動性を示す試料としてそれぞれ FCC 触媒粒子とカーボンブラック粒子を選び、これらの気流搬送特性に対する種々の操作条件の影響を検討し、解析した。

層表面からガス噴射管先端までの深さ H_0 およびガス噴射管の先端と排出粒子管底の間隔 L_0 が一定の場合でも、排出粒子の質量速度 v_s と粒子搬送ガス速度 u_0' の関係は流動化ガス速度 u および排出粒子管の管径 d_r に依存する。すなわち、図5 a&b に示したように、 v_s は u_0' が小さな範囲で

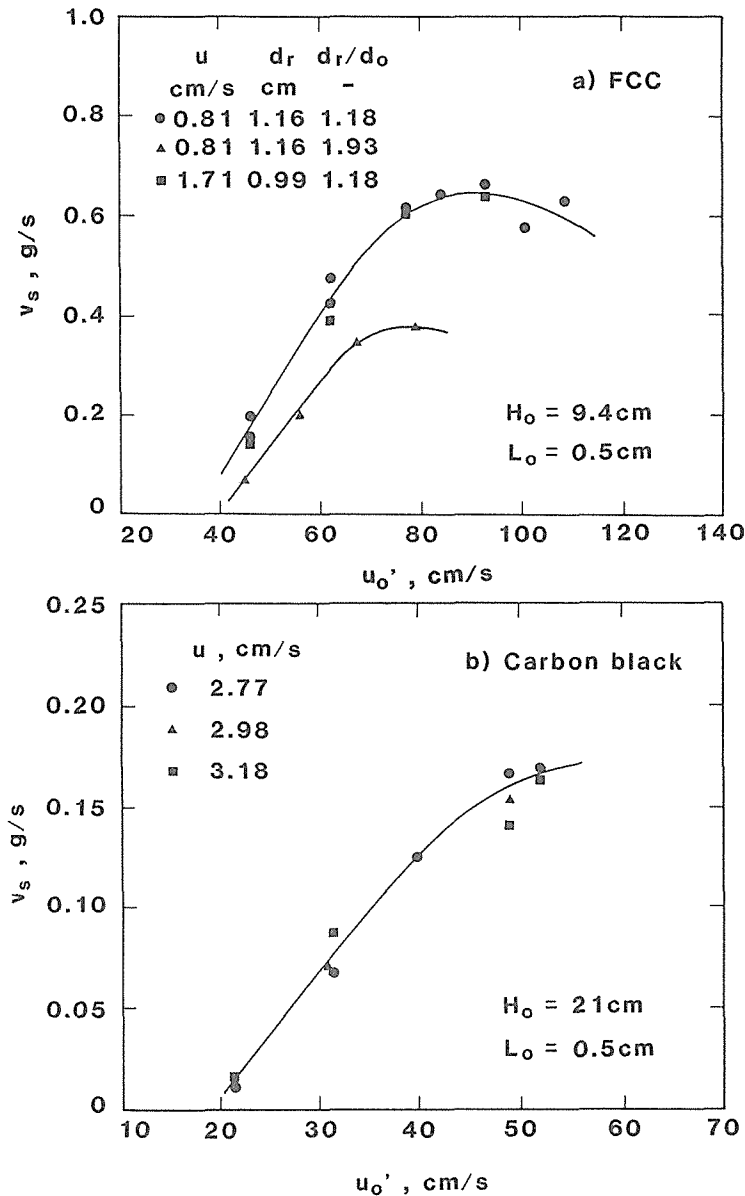


図5 粒子排出速度の搬送管ガス速度による変化

は u_o' とともに増加するが、それ以上の u_o' では減少する傾向がみられる。また、この関係は排出管径と噴射管径の比 d_r/d_o に大きく依存するが、流動化ガス速度 u による差はほとんどみられない。なお、粒子層が流動化していない場合には粒子はガスの噴射直後は搬送されるが、まもなく停止する。図6 a&b は、排出粒子質量速度 v_s に対する H_o の効果を示したものである。これをみると、低ガス速度域を除けば、 v_s はガス噴射管の深さ H_o とともに増加することがわかる。さらに、図7 は v_s に対する両管の間隔 L_o の影響を示しており、 u_o' が大きな場合には v_s に極大値がみられ、これを与える L_o は u_o' が大きいほど大きくなることが明らかである。

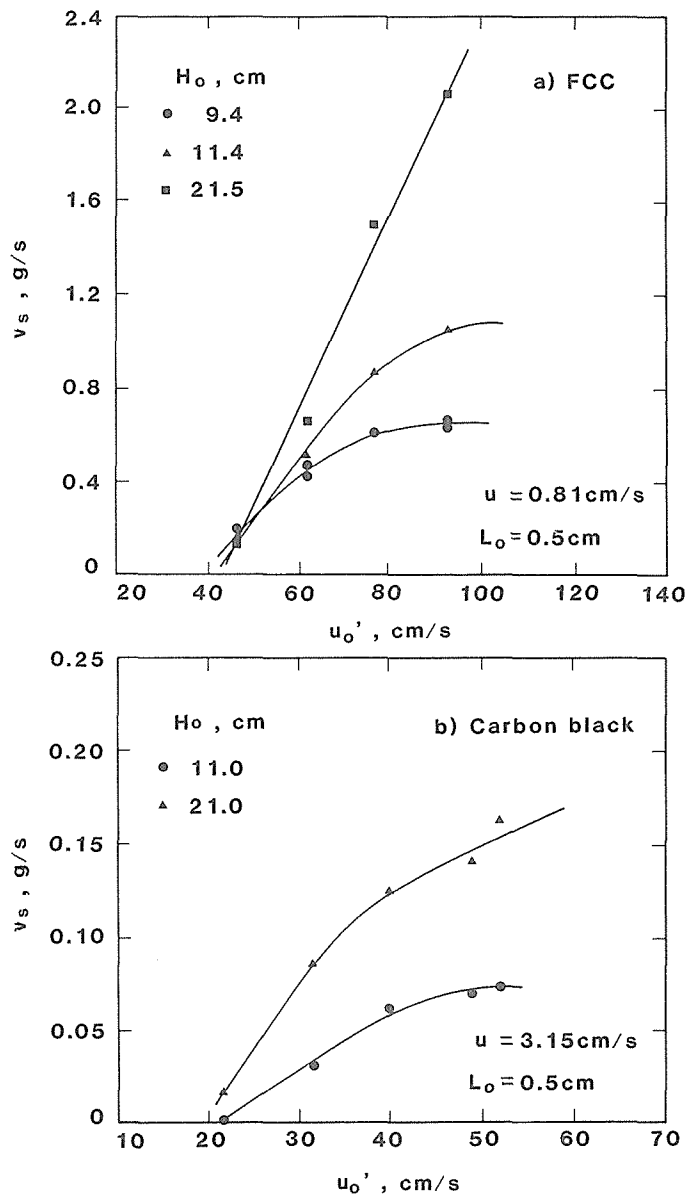


図6 粒子排出速度に対するガス噴射管深さの影響

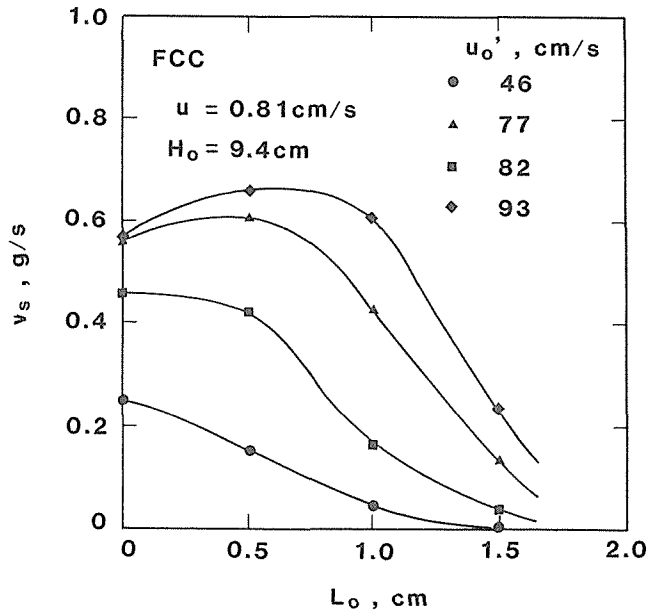


図7 粒子排出速度に対するガス噴射管先端と粒子搬送管底端の間隔の影響

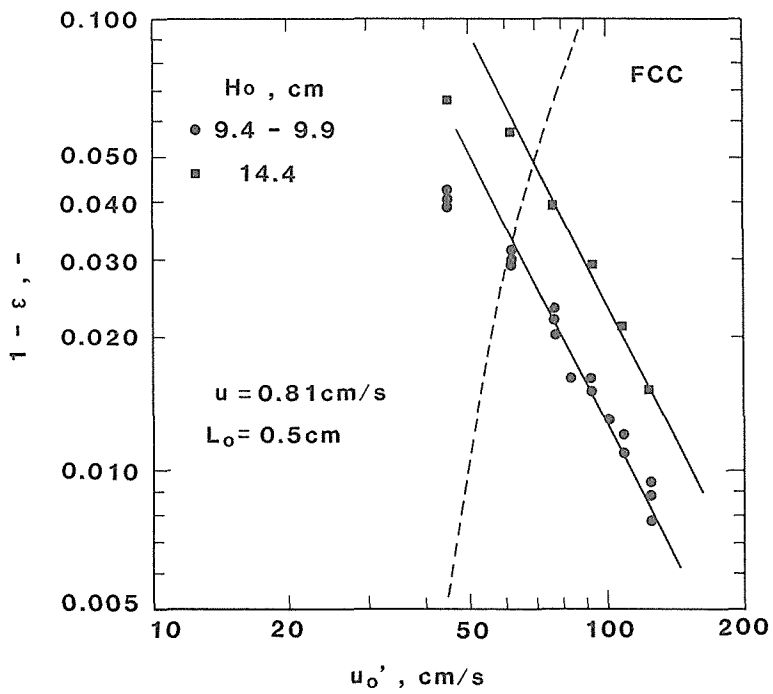


図8 粒子搬送管内粒子濃度の搬送管ガス速度による変化

以上のような粒子排出特性は、つぎのように理解できる。いま、排出粒子管内における空隙率を ε とすると、粒子のホールドアップ $(1-\varepsilon)$ は、 L の間隔で測定された圧力損失 ΔP から

$$1-\varepsilon = \Delta P / (\rho_p g L) \quad (14)$$

と与えられる。上式に基づき、FCC 粒子を用いたときの空隙率と速度の関係をプロットしたのが図 8 である。本実験範囲での空隙率は 0.90～0.99 であり、 $(1-\varepsilon)$ はほぼ $u_0'^{-2}$ に比例して変化することがわかる。このように、 $(1-\varepsilon)$ が与えられ、粒子が均一気流搬送状態にあると仮定すれば、排出粒子速度 v_s は

$$v_s = \rho_p (1-\varepsilon) (\pi d_t^2 / 4) (u_0' - u_t) \quad (15)$$

となる。そこで、上式に FCC 粒子の場合の Allen の式⁶⁾ による u_t の推算値 ($=34\text{cm/s}$) を代入し、 v_s を求めて u_0' に対してプロットし、実測値と比較したのが図 9 である。計算値は実測値を上回っているが、 v_s の u_0' による変化を良く説明している。このことは、 u_0' の増加とともに噴射ガスに同伴されて排出管に吹込まれる粒子量は増すが、これと同時に排出管内の空隙率も次第に増加するので、 v_s に最大値がみられる結果となることを示唆している。

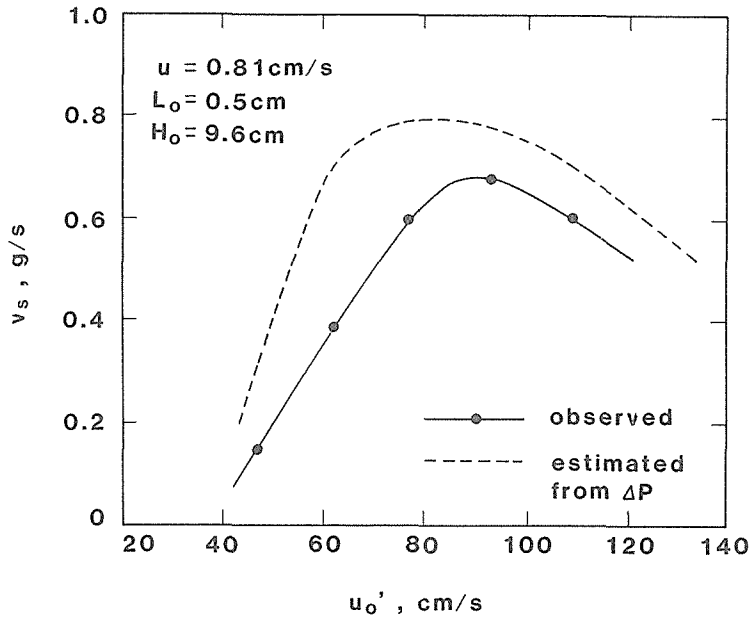


図 9 粒子排出速度の実測値と推算値の比較

また、FCC 粒子の場合、 v_s は $u_0' \geq 62\text{cm/s}$ では H_o に比例して増加するのにに対し、 46cm/s のときにはほとんど増加しなかった。この結果はつぎのように説明できる。Yang⁷⁾ によれば、気速度の減少とともに粒子層が希薄輸送層状態からスラッシングを伴う濃厚層流へ遷移するチョーキングの条件は、

$$2gd(\varepsilon^{-4.7}-1)/(u_{ch}-u_t)^2 = 6.81 \times 10^5 (\rho_g/\rho_p) 2.20 \quad (16)$$

$$G_s = \rho_p (1-\varepsilon) (u_{ch}-u_t) = v_s / (\pi d^b / 4) \quad (17)$$

と与えられる。そこで、これらの式から本実験の場合のチョーキング速度 u_{ch} を求めると約50～60 cm/sであった。したがって、 u_o' がこの速度以下の場合には排出管内の粒子は希薄輸送層状態ではなく、これ以上の速度の場合と異なった変化を示したものと考えられる。

4. ま と め

内径が50mmの気系流動層装置において、サブミクロン粒子を含む数種の微粒子層の流動化特性と流動化微粒子の層外への気流搬送特性を実測し、本実験範囲で以下のことを明らかにした。

- (1) 1次粒子径がサブミクロンから数十ミクロンの微粒子の流動特性は、これらが形成する凝集粒子によって左右される。サブミクロン粒子でも、これが十分のガス速度下で約100 μ m以上の凝集粒子を形成する場合には、良好な流動状態が得られるガス速度範囲がある。
- (2) 本研究で考案した流動化粒子の気流搬送法はサブミクロンから数十ミクロンの微粒子の層外への定量排出に有効であり、粒子の質量排出速度は層表面からガス噴射管先端までの深さおよびガス噴射管の先端と排出粒子管底の間隔が一定の場合でも、粒子搬送ガス速度や流動化ガス速度、粒子排出管径に依存する。
- (3) 凝集粒子の有効径と排出速度は既存の理論に基づいて推算できる。

使用記号

A	；流動層断面積	[cm ²]
d_o	；ガス噴射管内径	[cm]
d_a	；凝集粒子径	[cm]
d_p	；1次粒子径	[cm]
d_r	；気流搬送管内径	[cm]
d_{sp}	；凝集粒子の比表面積径	[cm]
F_H	；平均粒子間力	[g・cm/s ²]
G_s	；粒子質量速束	[g・cm ⁻² ・s ⁻¹]
H	；流動層高	[cm]
H_{mf}	；流動化開始時層高	[cm]
H_o	；層表面からガス噴射管先端までの深さ	[cm]
L	；圧力検出端子間距離	[cm]
L_o	；ガス噴射管先端と排出粒子管底端の間隔	[cm]
m	；粒子の総質量	[g]
ΔP	；層圧力損失	[g・cm ⁻¹ ・s ⁻²]
Q	；ガス流量	[cm ³ /s]
u	；空塔基準流動化ガス速度	[cm/s]
u_o	；空塔基準噴射ガス速度	[cm/s]
u_o'	；粒子搬送ガス速度	[cm/s]
u_{ch}	；チョーキングガス速度	[cm/s]
u_t	；粒子終末速度	[cm/s]
v	；凝集粒子体積	[cm ³]
V^*	；凝集粒子の見掛け体積	[cm ³]
v_s	；排出粒子質量速度	[g/s]

ε	；空隙率	[—]
μ	；ガス粘度	[g・cm ⁻¹ ・s ⁻¹]
ρ	；粒子真密度	[g/cm ³]
ρ_a	；凝集粒子密度	[g/cm ³]
ρ_b	；バルク密度 [g/cm ³]	
ρ_g	；ガス密度	[g/cm ³]
ρ_L	；粗充填層密度	[g/cm ³]
ρ_p	；粒子見掛け密度	[g/cm ³]
ρ_T	；タッピング層密度	[g/cm ³]
ρ^*	；凝集粒子有効密度	[g/cm ³]
σ_L	；粗充填層の引張り強度	[g・cm ⁻¹ ・s ⁻²]
σ_T	；タッピング層の引張り強度	[g・cm ⁻¹ ・s ⁻²]
ϕ_v	；凝集粒子体積形状係数	[—]

参 考 文 献

- 1) Geldart, D. : Powder Tech., **6** (1973), 201
- 2) Chaouki, J., Chavarie, C., Klvana, D. and Pajonk, C. : Powder Tech., **43** (1985), 117
- 3) Morooka, S., Kusakabe, K., Kobata, A. and Kato, Y. : J. Chem. Eng. Japan, **21** (1988), 41
- 4) Rumpf H., Chem. Ing. Tech., **42** (1970), 538
- 5) 鈴木ら, 化学工学論文集, **6** (1980), 59
- 6) 化学工学便覧 (改訂三版), (1968), p. 869
- 7) Yang, W.C. : Powder Tech., **35** (1983), 143