旋回流型気流層石炭ガス化炉の流れモデル炉における 粒子滞留時間の推算[†]

森原 淳・小山俊太郎

(株)日立製作所 日立研究所^{††}

一つのガス化室内で燃焼・ガス化反応を同時に行う一室二段反応型気流層石炭ガス化炉では、上段バーナから供給した粒子の滞留時間が効率を左右するため、この算出方法の開発が必要である。そこで、乱流中に存在する粒子は乱流場の変動により見かけ上濃度勾配にしたがって拡散すると仮定し、粒子の運動方程式と拡散方程式を連立させて粒子濃度を算出し粒子滞留時間を計算する手法を開発した。本計算手法により、平均粒子滞留時間に及ぼす上段ガス量及び出口径の影響が求められた。

また、ガス化炉の流れを模擬した常温常圧のモデル炉を用いてパルス応答法により粒子滞留時間を実測した。本計算手法により得られた結果と実測値を比較した結果、両者には良好な相関が得られた。

緒 言

石炭は、可採埋蔵量が豊富であり地域的偏在も少ないことから供給安定性に優れており、原料やエネルギーの柱として位置付けられている¹⁵⁾。石炭ガス化は、固体である石炭を気化させ水素原料などの使用しやすい状態に変換する手段であり、石炭の利用拡大には不可欠の技術である。

気流層は、流動層や固定層と比較して炉内温度を高温化できるため石炭の炭素利用率を高めることができ、石炭ガス化炉として優れているが^{7,14)}、更に生成ガス発熱量の増大を目的とした2段方式や、熱損失の低減を目的とした旋回方式などの改良が進められている⁵⁾。

これらの改良を組み合わせた日本独自の石炭ガス化方式が開発され、高信頼性・高性能化を目的に開発が進められている³⁾。このガス化炉では、炭素の転換率を増大させ、生成ガスの発熱量を増大させるには、上段バーナより供給した石炭の挙動を明確とし粒子滞留時間を長くすることが不可欠である^{9,10,11)}。

旋回流を形成させた燃焼炉において、旋回流中の粒子と気体の流動機構について研究がみられ、炉内のガス旋回流が典型的な渦の速度分布である自由渦や強制渦である場合について、単粒子の運動方程式からその軌跡が求められた¹²⁾。一方、反応器ではないが、粒子に遠心力が加わる類似の系であるサイクロンでは、粒子が気流と分

離する指標として気体の抗力と遠心力がバランスする時の粒子径（限界粒子径）についての研究がみられ、内部に円錐を仮想して界面で限界粒子径を算出された^{2,4)}。

しかし、力学的にバランスした限界粒子径であっても、乱流旋回流中では乱流の拡散作用により一部の粒子が飛散し、特に気流層ガス化炉では炭素転換率の低下が引き起こされる。この粒子飛散機構を明らかとし、飛散する可能性を持つ粒子をどのようにして長時間層内に滞留させ、反応率の向上を図るかが、旋回流型気流層の性能を大きく左右する。

そこで、乱流拡散機構を含めて粒子滞留時間を算出し、実験結果との比較を行うこととした。

1. 実験装置及び方法

1.1 実験装置

実炉においては、石炭粒子は反応するので、粒子径・比重が変化する。また、石炭バーナから供給した時点では石炭及び酸素の混相流であり、炉内の一様なガス状態とは異なっている。これらの理由により、コールドモデルにより実炉を完全に模擬することはできない。しかし、着目する現象に限定してスワール数やレイノルズ数、フルード数を模擬して得られた流れの情報は炉内流動状態の解析には有効である。

700φ 常温流れモデル炉の詳細を Fig. 1 に示す。炉径は 50 t/d 規模の石炭ガス化炉パイロットプラントと等しくした。モデル炉外壁は、粒子挙動を観察するため、透明なアクリル製とした。同一平面上にバーナを4本ずつ、上段バーナ、下段バーナとも同様に配置した。同一

[†] 1994年3月3日受理

^{††} 〒312 勝田市堀口 832-2

Fig. 1 Schematic flow of cold flow model

平面上に設置したバーナの水平方向角度を表すパラメータとして、旋回半径を用いた。旋回半径は、複数バーナの延長線に内接する仮想の円を表す。空気は、0.14 MPaの圧力で供給された後、流量調節弁で流量を調節し、各バーナに送られる。

常温流れモデル炉による実験条件を Table 1 に示す。表中の空塔速度は供給した全ガス量を炉断面積で割ることで求め、旋回半径はバーナを設置した水平角度より算出した。下段ガス量とは下段バーナから供給したガス量の総和を表す。

1.2 粒子滞留時間の測定方法

上段バーナより微粉炭粒子をトレーサ粒子としてパルス状に供給し、粒子滞留時間を測定した。粒子滞留時間測定装置は、トレーサ（微粉炭粒子）供給装置、トレーサ濃度検出装置で構成した。

トレーサ供給装置は、3個の電磁弁、トレーサポットより成る。トレーサ粒子として微粉炭（約100 mg）を電磁弁(1)を通してトレーサポットに投入した。初めに、電磁弁(3)を開放状態、電磁弁(2)を遮断状態とし Line-2 に空気を通過させた。トレーサ注入時には、正確に0.1秒間電磁弁(2)を開放状態、電磁弁(3)を遮断状態にした。この操作により、バーナを通じてモデル炉へ、パルス状にトレーサを供給した。

トレーサ濃度検出装置は、光散乱式ダストモニターと信号処理装置から成る。炉の出口に内径2 mmφのガスサンプル孔を設置し炉内空気を吸引して、ダストモニターの検出部に導いた。

10 μs 間隔で粒子の有無を検出し、信号処理装置より濃度（個・m⁻³）として出力させた。このため、粒子濃度の測定上限は5000 mg・m⁻³であった。本研究では粒子濃度の最大値を600 mg・m⁻³とした。

出口部における粒子濃度の時間変化から Eq. (1) に

Table 1 Calculation condition

position	contents	dimension
furnace	diameter	0.7m
	height	1.4m
	velocity	0.71m・s ⁻¹
	constriction diameter	0.21m
upper burner	height	1.1m
	circulation diameter	0.49m
	velocity	14.8m・s ⁻¹
lower burner	height	0.1m
	circulation diameter	0.21m
	velocity	23.3m・s ⁻¹
	ratio of lower mass to total mass	0.6 —

基づき、平均粒子滞留時間を求めた。

$$\theta_s = \frac{\int_0^{\infty} t \cdot C(t) dt}{\int_0^{\infty} C(t) dt} \quad (1)$$

2. 実験結果及び考察

2.1 粒子滞留時間の算出

本研究では、複雑な3次元の旋回流れの中に粒子径分布を持つ微粉炭での滞留時間を算出するので、詳細な数値計算での解析は膨大な計算時間を必要とし実用的でない。そこで、流れをモデル化して滞留時間算出を試みることにした。

ガス速度分布の実測結果を解析すると、単純に力学的なバランスで計算した限界粒子径よりも大きい粒子が多数飛散しており、これは乱流の拡散現象によるものと考えられた^{9,10}。特に、限界粒子径よりも大きい粒子の挙動は、拡散現象が主体になる。ここで、本研究では気流層であるので粒子濃度が低く粒子間の相互作用は考慮しないものとした。

次に、周方向速度分布は、半径方向、軸方向の速度分布と比較して十分に大きいので、乱流拡散現象に支配的であると考えられる。この周方向速度分布は、高さ方向での変化が少なく、半径方向の変化が大きいので、半径方向を主体にモデル化した。

以上から、半径方向の拡散現象を支配因子とした1次元的な解析でモデル化した。粒子は炉壁から供給されて中心に向かい、出口径の内側では強い上昇流により粒子は速やかに排出されると考えた。したがって、粒子滞留時間は、粒子が炉壁から出口径の位置まで移動するのにかかる時間とほぼ等しいと考え、中心方向の粒子流れだけの1次元的な数式で粒子滞留時間を算出することとした。この粒子滞留時間の算出モデルの概念を Fig. 2 に

Fig. 2 Model of particle motion

示す。

炉径と炉出口径の間では、粒子濃度 C の円筒状の槽から拡散作用と力学的な作用により粒子が移動する。粒子群の中心方向平均速度 V は、ガスの中心方向速度から粒子の終端速度を引いた値と考え、高さ方向では中心方向速度 V は均一とした。

このモデルでは、炉出口径 R_a が炉径より小さい場合にはこの部分の粒子が速やかに排出されると仮定できる。具体的には、炉出口径 R_a が炉径の半分以下であったとき、この領域での空塔速度は4倍以上、体積も $1/4$ 以下となるので滞留時間は $1/16$ となる。本論文ではこの部分の滞留時間は十分に小さいものと仮定した。

本モデルでは粒子滞留時間の評価に乱流場での粒子の拡散作用を考慮した。すなわち、粒子濃度が、力学的な物質移動の作用と拡散作用により決められるとした。粒子濃度に関する拡散方程式を Eq. (2) に、この境界条件を Eq. (3) に示す。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(D_r \cdot r \frac{\partial C}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} (r \cdot V \cdot C) \quad (2)$$

$$\left(D_r \cdot r \frac{\partial C}{\partial r} + V \cdot C \right) \Big|_{r=R_o} = V_o \cdot C_o \quad (3)$$

粒子を連続的に炉壁付近より供給し定常状態となった場合には、Eq. (2) における時間微分項を省略できる。この境界条件で Eq. (3) を整理し Eq. (4) を得る。

$$r \left(D_r \cdot r \frac{\partial C}{\partial r} + V \cdot C \right) = R_o \cdot V_o \cdot C_o \quad (4)$$

したがって炉壁位置より粒子を連続的に供給して定常状態になった粒子濃度の半径方向分布は、Eq. (4) より算出できる。

出口径から炉径までの間で粒子濃度を積分して炉内の粒子滞留量を算出し、この粒子滞留量を炉壁位置より供給する粒子量の総和で割ることにより、粒子滞留時間

θ_{so} (出口径から炉径までの区間) を Eq. (5) により算出できる。

$$\theta_{so} = \frac{\int_{R_a}^{R_o} 2\pi r C dr}{2\pi R_o V_o C_o} \quad (5)$$

炉出口径より内側では、完全混合状態にあると考え粒子濃度が均一であると仮定して Eq. (6) により炉出口径より内側での粒子滞留時間 θ_{si} を算出した。

$$\theta_{si} = \frac{\int_0^{R_a} 2\pi r C dr}{2\pi R_o V_o C_o} \quad (6)$$

以上により粒子の終端速度と中心方向速度が与えられれば、上段領域での粒子滞留時間は θ_{so} と θ_{si} の和として算出することができる。以下では Eq. (5) の粒子濃度算出に必要な拡散係数 D_r 及び粒子の中心方向速度 V の算出方法について述べる。

2.2 粒子中心方向速度

粒子中心方向速度は Eq. (7) に示す単一粒子の運動方程式により算出する。

$$\rho \frac{\pi (\phi D_p)^3}{6} \cdot \frac{dV}{dt} = \frac{\pi (\phi D_p)^3}{6} (\rho_p - \rho) g_r + C_d \frac{\pi (\phi D_p)^2}{4} \cdot \frac{\rho (v - V) \cdot |v - V|}{2} \quad (7)$$

遠心力 g_r は、粒子とガスの周方向速度がおおよそ等しいとし Eq. (8) により算出した。

$$g_r = \frac{W^2}{r} \quad (8)$$

粒径は数 $10 \mu\text{m}$ 程度なので、粒子の慣性力は小さい。したがって、粒子は遠心力とガスから受ける力が速やかにバランスした速度で移動すると考える。定常状態では Eq. (7) 左辺の時間微分項を省略でき、Eq. (9) により粒子とガスの相対速度 (終端速度) を算出できる。

$$V_i = \left(\frac{4(\rho_p - \rho) g_r}{3C_d \phi} \right)^{1/2} (\phi D_p)^{1/2} \quad (9)$$

Eq. (9) における抵抗係数 C_d は、レイノルズ数 Eq. (10) により変化する。

$$Re = \frac{\rho V_i D_p}{\mu} \quad (10)$$

Eq. (10) で算出したレイノルズ数に対応した粒子終端速度の算出式を Eqs. (11), (12), 及び(13)に示す。

$$Re < 1 \quad V_i = \frac{(\rho_p - \rho) g_r}{18\mu} (\phi D_p)^2 \quad (11)$$

$$1 \leq Re < 500 \quad V_i = \left(\frac{4(\rho_p - \rho)^2 g_r^2}{225\mu} \right)^{1/3} \phi D_p \quad (12)$$

$$500 \leq Re \quad V_i = \left(\frac{3.03(\rho_p - \rho) g_r}{\rho} \right)^{1/2} (\phi D_p)^{1/2} \quad (13)$$

また、形状係数 ϕ は Eq. (14) により算出した⁶⁾。

Table 2 Shape factor

Observer	Material	ϕ
Leve et al.	sand	0.600, 0.861
	iron catalyst	0.578
	bituminous coal	0.625
	Celite cylinders	0.625
Uchida and Fujita	broken solid	0.63
Shirai	sand	0.534-0.628
	silica	0.534-0.628
	pulverized coal	0.696

$$\phi = \left(\frac{\text{surface of sphere}}{\text{surface of particle}} \right)_{\text{both of same volume}} \quad (14)$$

実験で得られた形状係数を Table 2 に示す。本研究で対象とする微粉炭粒子に対して形状係数として 0.696 を用いた。粒子の中心方向速度は、ガスの中心方向速度から粒子終端速度を引いた速度とした。これを Eq. (15) に示す。

$$V = v - V_t \quad (15)$$

2.3 乱流場での粒子拡散係数

乱流中の粒子拡散係数 D_T と気体拡散係数 D_f の関係についてはストークス数の関数として与えられており、粒径が $40 \mu\text{m}$ 以下の場合にはほぼ等しいと報告されている¹⁾。したがって、本研究では粒子拡散係数 D_T と気体拡散係数 D_f は等しいと考えた。また気体の拡散係数 D_f は乱流動粘性係数 ν_f と乱流シュミット数 Sc により Eq. (16) で求められる。

$$Sc = \frac{\nu_f}{D_f} = 0.7 \quad (16)$$

乱流シュミット数 Sc は実測されておりおよそ 0.7 とされている。したがって、乱流動粘性係数 ν_f を推定できれば、粒子拡散係数 D_T を算出できる。

乱流動粘性係数は混合距離 l_m と周方向速度 w により Eq. (17) で求められる。

$$\nu_f = l_m^2 \cdot \left| r \frac{\partial}{\partial r} \cdot \frac{w}{r} \right| \quad (17)$$

ここで混合距離 l_m は、単純な旋回流において中心からの距離 r に比例するとされている¹³⁾。これを Eq. (18) に示す。

$$l_m = C_r \cdot r \quad (18)$$

ここでは普遍係数 C_r は 0.05 とした。

本研究の炉では半径位置で出口径と炉径の間の旋回流は、自由渦の速度分布を示し Eq. (19) で示される。

$$W = W_a \frac{R_a}{r} \quad (19)$$

自由渦の速度式 Eq. (19)、及び Eq. (18) を、Eq. (17) に代入し乱流動粘性係数を Eq. (20) で算出した。

Fig. 3 Particle density profile in radius direction

$$\nu_f = 2C_r^2 W_a R_a \quad (20)$$

Eq. (16) と Eq. (19) とから Eq. (21) により粒子拡散係数を表した。

$$D_T = D_f = \frac{2C_r^2 W_a R_a}{Sc} \quad (21)$$

2.4 平均粒子滞留時間の算出

平均粒子滞留時間は、炉内の粒子滞留量を供給する粒子量で割れば求めることができる。粒子の滞留量を求めるために、まず Eq. (4) を数値積分により解き粒子濃度を求めた。数値解析手法としては、スタッガードメッシュを用いたコントロールボリューム法により算出した⁸⁾。計算結果を Fig. 3 に示す。

縦軸は出口粒子濃度に対する粒子濃度の割合を、横軸は半径位置を示す。粒径の増大に応じて終端速度が大きくなり、その結果炉内で滞留量が增大することを示している。また、大きな半径位置での粒子濃度が高い。次に、各粒径での平均滞留時間をガス滞留時間を基準値とし Fig. 4 に示す。粒径の増大により平均粒子滞留時間は増大した。

2.5 滞留時間分布の算出

次に滞留時間分布を槽列混合モデルにより算出した。槽列混合モデルで表現された粒子濃度は Eq. (22) で表される。

$$C = \frac{N(N\theta)^{N-1}}{(N-1)!} \exp(-N\theta) \quad (22)$$

槽列数が大きくなるにつれピストン流れに近づくので、応答はパルス応答に近くなる。混合拡散モデルと槽列モデルとの比較に関して、槽列数と拡散係数の関係についても多数報告されているが、ここでは広く受け入れられている Levenspiel の関係式を使用する。これを Eq. (23) に示す。

Fig. 4 Effect of particle diameter on particle residence time

$$N = \frac{1}{2\lambda_L - 2\lambda_L^2(1 - \exp^{-1/\lambda_L})} \quad (23)$$

Levenspiel が提案している Vessel dispersion number は、拡散係数、炉の長さ、及び出口速度で表現されるペクレ数である。本研究では、出口径の位置での速度 v_a 、平均粒子滞留時間と出口径での速度の積で表される炉の長さ ($v_a \theta_c$)、拡散係数 D_T を用い Eq. (24) により λL を算出した。

$$\lambda_L = \frac{D_T}{v_a \cdot (v_a \cdot \theta_c)} \quad (24)$$

粒径が 20, 30, 40, 50 μm の粒子滞留時間分布の計算値を Fig. 5 に示す。また、粒子滞留時間の測定でトレーサとして使用した微粉炭の粒径分布が 20 μm から 50 μm まで均一に分布していると想定し、20 μm から 50 μm までの粒子を 2 μm 間隔で当量供給した場合について粒子の平均滞留時間を求めた。その結果を Fig. 5 に示す。

まず単一の粒径についてみると、粒径が大きくなるにつれて滞留時間が大きくなり、それと同時に、分散も大きくなることがわかる。また、20 μm から 50 μm までの粒子を平均的に供給した時の計算値の傾向は、実測値と定性的に一致した。計算値の極大値は、実測値より小さかった。これは、計算では粒子を均等に分布させたが、実際には特定の粒子が多かったためと考える。また、今回用いた 1 次元的な計算手法では流れの偏流による粒子の抜け出しが考慮されていないので実測値の方が急な分布になったものと考えられる。

2.6 平均滞留時間の計算値と実測値の比較

実験では、出口における粒子濃度を 40 秒間計測して

Fig. 5 Profile of particle residence time

Fig. 6 Effect of outlet diameter on particle residence time

粒子滞留時間を測定した。そこで、ここで比較する計算値も供給した粒径ごとの平均滞留時間ではなく、出口で検出される粒子全体の濃度の 40 秒間の積算値から平均粒子滞留時間を算出した。粒子滞留時間の計算値を炉出口径の影響の試験結果を Fig. 6 に示す。

出口径を小さくするにつれて、また、粒径が大きくなるほど、粒子滞留時間が大きくなり、粒子は炉から排出されにくくなった。また、計算値は、実測値よりやや大きくなった。これは、実際には、バーナからの粒子は、炉壁付近だけでなく炉中心付近にも供給され、これらは直接炉出口から噴出されるため、滞留時間が短くなるのに対し、計算では全ての粒子が炉壁より供給されるとしたためと考えられる。ほぼ計算値と実測値は傾向的に一致する結果が得られた。

Fig. 7 に粒子滞留時間に及ぼす上段バーナ噴出速度の影響を示す。実線は計算値をプロットは実測値を表す。

Fig. 7 Effect of upper burner velocity on particle residence time

下段バーナ速度を 64.8 m/s で一定として上段バーナの 14.8 m/s から 95.4 m/s まで速度を増大させると、噴出速度の増大により旋回力が増大するため粒子滞留時間は大きく増大する。計算値は、実測値を良好に表現できた。

結 言

粒子の濃度分布を力学的移動及び乱流の拡散作用によりモデル化し、炉出口での粒子滞留時間を数値的に算出した。計算値を実測値と比較し以下の結論が得られた。

(1) 炉出口径の影響を評価した結果、実測値の概略の傾向を本手法により計算で表現できた。

(2) 粒子滞留時間に及ぼす上段バーナ噴出速度の影響を求めた結果、計算値は実測値をほぼ良好に表現できた。

〔謝 辞〕 本研究は、通産省サンシャイン計画の中で新エネルギー・産業技術総合開発機構よりの委託研究として推進されました。付記に関係の方々に深甚なる謝意を表します。

Nomenclature

$C(t)$	=particle concentration	[—]
C_d	=shape constant	[—]
C_r	=mixing length constant	[—]
D_r	=turbulence diffusivity	[s ⁻¹]
D_p	=particle diameter	[m]
D_r	=diffusivity	[s ⁻¹]
g_r	=centrifugal force	[m·s ⁻²]
lm	=mixing length	[m]
N	=cell number	[—]
R_a	=outlet radius	[m]
Re	=Reynolds number	[—]
Ro	=furnace radius	[m]

r	=radius	[m]
Sc	=Schmidt number	[—]
t	=time	[s]
V	=particle radial velocity	[m·s ⁻¹]
V_t	=terminal velocity	[m·s ⁻¹]
v	=gas radial velocity	[m·s ⁻¹]
v_a	=gas radial velocity at outlet	[m·s ⁻¹]
W	=particle tangential velocity	[m·s ⁻¹]
W_a	=particle tangential velocity at outlet	[m·s ⁻¹]
w	=gas tangential velocity	[m·s ⁻¹]
θ_s	=particle residence time	[s]
λ_L	=vessel dispersion number	[—]
ρ	=gas density	[kg·m ⁻³]
ρ_p	=particle density	[kg·m ⁻³]
μ	=viscosity	[Pa·s]
ν_t	=turbulence viscosity	[m·s ⁻¹]
ϕ	=particle shape constant	[—]
<Subscript>		
O	=at wall	

Literature cited

- Ando, A., Y. Sadada, K. Hishida and A. Maeda: *Kikai-gakkai Ronbunshu*, **56**, 45–50 (1990)
- Iinoya, K.: *Kikai-gakkai Ronbunshu (B)*, **19**, 90–95 (1953)
- Ikeda, Y.: *Nenryo Kyokai-shi*, **60**, 643–648 (1981)
- Ikemori, K.: *Huntai Kougakukai-shi*, **27**, 35–41 (1990)
- Koyama, S., S. Tanaka, M. Matsuo, A. Morihara and S. Nogita: *Nenryo Kyokai-shi*, **65**, 746–755 (1986)
- Levenspiel, O. and D. Kunii: "Fluidization Engineering", 64–73 (1968)
- Mihara, S.: *Nenryo oyobi Nensyo*, **42**, 5–10 (1981)
- Mizutani, Y., S. Kouzuki and S. V. Patankar: *Netsu Idō to Nagare no Sūchi Kaiseki*, Morikita Syuppan, 42–115 (1985)
- Morihara, A., S. Koyama and Nogita, S.: *Kagaku Kagaku Ronbunshu*, **12**, 427–432 (1986)
- idem.: *ibid.*, **16**, 245–251 (1990)
- Nogita, S., S. Koyama and A. Morihara: *Sunshine Journal*, **7**, 70–77 (1986)
- Sadakata, M., T. Saki, H. Tominaga, S. Yamamoto and K. Suzuki: 22nd Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute, 183–191 (1988)
- Tani, I.: "Ryutai Rikigaku no Shinpo", Maruzen, 18–24 (1982)
- Taniyama, T. and G. Karawatari: *Nenryo Kyokai-shi*, **39**, 705–710 (1989)
- Yoshimura, U.: *ibid.*, **68**, 3–8 (1989)

Estimation of Particle Residence Time in Flow Model Furnace for Rotational Entrained-bed Coal Gasifier

Atsushi Morihara and Syuntaro Koyama

Hitachi Research Lab., Hitachi Ltd. Katsuta 312

Key Words : Fluid Mechanics, Coal Gasification, Particle Size Classification, Particle Residence Time, Centrifugal Separation

The gasification process discussed in this paper consists of a two-stage process, combustion and gasification, in a one-room reactor. The development of a calculation method for particle residence time is important because of the residence time effects on the efficiency of gasification. The average particle residence time was calculated by using the density profiles of particles in the outer gas. The density profiles were calculated by particle motion equation and diffusion by turbulence. The effect of upper burner flow rate and outer diameter on average particle residence time can be determined with our model.

Furthermore the particle residence time was measured by a pulse response method at room temperature and atmospheric pressure by using a flow model for the furnace of the coal gasifier. The calculated results agree with the experimental data.