固・気二相流中の粉塵濃度測定及び対数正規分布による粒度推定法[†]

吉田英人・松浦慎也・金川浩司・馬 劼夫
永橋啓一*・赤堀達也*・牧野尚夫**

広島大学工学部化学工学講座^{††}

非等速吸引による分級効果を利用し、固・気二相流中の粒子濃度及び粒径分布自動測定装置及びデータ処理に関して実験及び理論により検討を行った。

サンプリングで捕集した粒子をサイクロン及びフィルター部へ導入しかつ全量を電子天秤にて計量することにより粒子質量を長時間にわたり連続的に測定できる。得られた粒子質量は測定時間に比例しており、粒子質量計測の連続的自動化が可能となった。

データ処理に Levin の式及び最急降下法を用い、粒度分布の平均径及び幾何標準偏差を一義的に決定した。

本法で得られた粒度分布は従来法のインパクターによる結果とほぼ一致した。

緒 言

管路内を流れる含塵気流及び作業場内あるいは大気中の粒子の一部を抽気採取する操作のことを粉塵粒子のサンプリングと呼ぶ。その操作を用いて固気二相流中の浮遊粒子の正確な濃度の測定を行う際には、管路内の流速と吸引流速とが等しい等速吸引による採取が必要とされ、等速吸引ができない場合には、誤差の補正が行われてきた。つまり、非等速吸引時には、サンプリング部において分級が起こっていると考えられる。

従来より、粒径分布の測定は濃度の測定と同様に、等速吸引を用いたサンプリングによりカスケードインパクターなどの分級器に流入させ、粒径毎に秤量し求められていた。非等速吸引誤差に関しては、従来より詳細に検討されている (Makino *et al.*, 1995, Yoshida *et al.*, 1978)。また、牧野らは非等速吸引誤差を利用して二相流中の粒子濃度及び粒径分布の自動化について検討している。しかしながら、データ処理において対数正規分布を仮定した場合、幾何標準偏差を規定しなければならないという問題点があった。

本報では、牧野らのデータ処理に改良を加え、また、質量測定部を自動化することにより、濃度・粒径分布の自動測定装置及びデータ処理について詳細に検討し、興味ある知見を得たので報告する。

1. 実験装置及び方法

実験装置を Fig. 1 に示す。実験に使用した粉体は粒径の異なる 3 種類のフライアッシュで、粉体はテーブルフィーダーから供給し、ノズル型分散器及び Mixing chamber を経てサンプリングプローブにおいて吸引される。吸引された粉体は図中の記号 6 に示すサイクロン 1 に入り、粗粉は捕集箱、微粉は、サイクロン 1 の下に設置されたフィルターによって捕集される。尚、質量測定部の自動化を行うため、新しくサイクロン 1 の下部にフィルター部を独自に設け、サイクロン及びフィルター部 8 の両者を電子天秤にて測定しパソコンにてデータ処理できるようにした。この場合、サイクロン 1 は、粗粒子によるフィルターの目づまりを可能な限り防止することができ、長時間の連続測定が可能となる。吸引流速は 2 分間隔で変え、すべての捕集質量を電子天秤から連続的に計算機にとり込み、真の濃度及び粒径分布をデータ処理により求めた。

ここで、Fig. 2 に連続的に捕集された粉体質量の時間変化を示す。実験では、粉体供給量を約 3 g/min と 4 g/min で行い、電子天秤から計算機に直接入力したデータである。これより、いずれの供給量においても捕集質量は時間と共に一定の割合で増加しており、本法での質量測定部が有効に作用することがわかる。

実験条件としては、主流流速を 10~15 m/s で吸引流速は主流流速との比が 0.8~1.9 の範囲で行った。粉体供給量は約 3 g/min、サンプリングプローブは内径 7 mm の円形プローブを用いた。使用した試料は、火力発電所から副生した 2~13 μm の 3 種類のフライアッシュで、遠心沈降法で求めた粒度分布測定結果を Table. 1 に示

[†] 1995 年 6 月 21 日受理；化学工学会山口大会（宇部市 1995 年 7 月）にて一部発表

^{††} 〒 739 広島市鏡山 1-4-1

* 三田工業（株）

** 電力中央研究所

Fig. 1 Experimental apparatus

Fig. 2 Relationship between mass of the particles and time

Table 1 Sample (Fly ash) Data

	Median particle diameter in mass basis D_{p50} [μm]	Geometric standard deviation σ_g [-]
sample 1	13.3	2.8
sample 2	5.5	2.5
sample 3	2.5	2.0

す。

2. 理 論

非等速吸引時の濃度誤差については、様々な研究報告がなされている。本実験では、Davies の式 (Davies, 1968) と Levin の式 (Levin and Belyaev, 1974) を使い、それぞれの式に粒径分布を考慮して検討した。

Davies の式は次式で表わされる。

$$\frac{C_i}{C_0} = \frac{U_0}{U_i} \left(\frac{P(D_p)}{P(D_p) + 0.5} \right) + \frac{0.5}{P(D_p) + 0.5} \quad (1)$$

ここで P は慣性パラメーターである。

また、Levin の式は次のように表される。

Fig. 3 Anisokinetic sampling error by Davies' eq. and Levin's eq.

$$\frac{C_i}{C_0} - 1 = \frac{P(D_p) \left(1 + 0.31 \frac{U_i}{U_0} \right)}{1 + P(D_p) \left(1 + 0.31 \frac{U_i}{U_0} \right)} \left(\frac{U_0}{U_i} - 1 \right) \quad (2)$$

上式より種々の慣性パラメーターの値における濃度誤差を計算した結果を Fig. 3 に示す。これより、Davies の式は、流速比、濃度比が 1 を通る直線を表し、Levin の式も流速比、濃度比が 1 の等速近傍ではほぼ直線であることがわかる。また、両式は単一粒径におけるものであるため、粒径分布関数 $f(D_p)$ を持つ粒子群については粒径分布関数で加重平均する必要がある、その結果 Eq. (3) が得られる。

$$\frac{C_i}{C_0} = \frac{U_0}{U_i} \int_0^\infty \left\{ \frac{P(D_p)}{P(D_p) + 0.5} \right\} f(D_p) dD_p + \int_0^\infty \left\{ \frac{0.5}{P(D_p) + 0.5} \right\} f(D_p) dD_p \quad (3)$$

$$\text{ただし、} f(D_p) = \frac{1}{\ln \sigma_g D_p \sqrt{2\pi}} \exp \left\{ -\frac{(\ln D_p - \ln D_{p50})^2}{2(\ln \sigma_g)^2} \right\}$$

同様に Levin の式を利用した場合は次式となる。

$$\frac{C_i}{C_0} = \frac{U_0}{U_i} \int_0^\infty \frac{P(D_p) \left[1 + 0.31 \frac{U_i}{U_0} \right]}{1 + P(D_p) \left[1 + 0.31 \frac{U_i}{U_0} \right]} f(D_p) dD_p$$

$$+ \int_0^{\infty} \frac{1}{1+P(D_p) \left[1+0.31 \frac{U_i}{U_0} \right]} f(D_p) dD_p \quad (4)$$

本報では、フライアッシュの粒径分布関数として、質量基準の対数正規分布関数に従うと仮定してデータ処理を行った。これは工業粉塵の大部分はほぼ対数正規分布に従うからである。

次に、両式より粒径分布を測定する方法を説明する。

2.1 手法 1

Davies の式では、Eq.(3)より、測定濃度 C_i と真濃度 C_0 の比と流速比 U_0/U_i の間には直線関係が成立するため次式で表すことが可能である。

$$C_i/C_0 = Ax_i + B, \text{ ただし } x_i = U_0/U_i \quad (5)$$

これより、

$$\left. \begin{aligned} A &= \int_0^{\infty} \left[\frac{P(D_p)}{P(D_p)+0.5} \right] f(D_p) dD_p \\ B &= \int_0^{\infty} \left[\frac{0.5}{P(D_p)+0.5} \right] f(D_p) dD_p \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

となりデータ処理では Eq.(6) を満足する $f(D_p)$ を求めることに帰着する。慣性パラメータ $P(D_p)$ は各 D_p において容易に計算できるため、変数は粒径分布関数のみとなる。ただし、粒径分布関数を 2 個の変数即ち平均径と幾何標準偏差をもつと考えれば、Eq.(6)を用いて対数正規分布に従うと仮定した場合の分布関数を求めることができる。

Fig. 4 に Davies の式における平均径 D_{p50} と幾何標準偏差 σ_g の関係を示す。幾何標準偏差が広い範囲で変化しても平均径 D_{p50} の変化は少ないことが分かる。よって、幾何標準偏差を一定値に仮定しても平均径にはあまり影響がないので、例えばフライアッシュであれば幾何標準偏差 σ_g を一般的な値である 2.5 に設定することにより、粒径分布を一義的に求めることができる。

2.2 手法 2

Deives の式を利用する方法は、独立の式が 1 つしか存在せず、未知数は二つ存在するため幾何標準偏差を仮定して計算しなければならない。実際には幾何標準偏差は、種々の粒子では異なるため、容易に仮定値を設定することは難しい。そこで、今回新しいデータ処理の手法として独立な方程式の数を増やすことにより幾何標準偏差と平均径の 2 変数を同時に求めることを検討した。

粒径分布関数 $f(D_p)$ を持つ粒子においては、測定量と特性関数の間に以下に示す様な第 1 種 Fredholm 型積分方程式が成立する。

$$g(x_i) = \frac{m_i}{m_0} = \int_0^{\infty} K(x_i, D_p) f(D_p) dD_p \quad \text{データ } i \quad (i=1 \sim n) \quad (7)$$

Fig. 4 Relationship between geometric standard deviation and Mean diameter

ここで、 f は粒径分布関数、 K は特性関数、 $g(x)$ は測定量を表している。 m_0 は等速吸引時での捕集重量を、 m_i は吸引速度 U_i における捕集重量である。実際の測定では、離散化された x_i について粒径分布も、ある幅 ΔD_{pi} に対する $f(D_{pi}) \Delta D_{pi}$ として求められるので、Eq.(7) は次のように表される。

$$g(x_i) = \sum_j K(x_i, D_{pi}) f(D_{pi}) \Delta D_{pi} \quad \text{データ } i \quad (i=1 \sim n) \quad (8)$$

この方程式による未知数は、粒径分布関数を対数正規分布に従うとしたときは、幾何標準偏差 σ_g と平均径 D_{p50} である。ここで、特性関数としては以下に示す Levin の式を用いた。

$$K(x_i, D_p) = \frac{C_i U_i}{C_0 U_0} = \frac{U_i}{U_0} + \frac{P(D_p) \left[1+0.31 \frac{U_i}{U_0} \right]}{1+P(D_p) \left[1+0.31 \frac{U_i}{U_0} \right]} \cdot \left[1 - \frac{U_i}{U_0} \right] \quad (9)$$

Eq.(9) における特性関数の物理的意味としてはサンプリングプローブにおける捕集効率を表す。

手法 1 における Eq.(5) は直線の傾きが粒子径のみの関数であったが、手法 2 において非等速吸引誤差に Levin の式を用いた場合は、粒子径及び流速比の関数となる。このことより、未知数 D_{p50} 、 σ_g の両者に対して、独立な式がデータ点数 n だけ設定できることになり、Davies の式を用いた場合と異なり σ_g を規定しなくてもよいことになる。

幾何標準偏差 σ_g 、平均径 D_{p50} を解くためには修正 NEWTON-RAPHSON 法など様々な数値解法があるが、Eq.(8)の方程式を直接解くと解の発散が予想されるので、ここでは評価関数（目的関数）の値が最小となるようなパラメータの近似点を求める最適化を用いる。また、評価関数は以下に示すものを用いた。

Fig. 5 Relationship between measured concentration and velocity ratio (sample. 1, 2, 3)

Fig. 6 Relationship between concentration ratio and velocity ratio (sample. 1, 2, 3)

$$J = \sum_{i=1}^n (g_{i,cal} - g_{i,exp})^2 \quad (10)$$

式 (10) は、各流速比における重量分率の計算値と実験値の差の自乗をとったものである。ここでは、平均径及び幾何標準偏差を決定に際して最急降下法 (S. D. M.) (Kojima and Machida, 1898) を用いた。

3. 実験結果及び考察

Fig. 5 に、試料 1, 2, 3 のそれぞれの吸引流速比を変化させたときの、測定濃度 (C) と吸引流速比 (U_0/U_i) の関係を示した。○印は試料 1, △印は試料 2, □印は試料 3 の結果である。ここで横軸は流速比 U_0/U_i , 縦軸は測定濃度 C である。主流速 U_0 を 10~15 [m/s] で行った。また濃度は、それぞれの捕集質量と吸引流量から求めたものである。 $U_0/U_i=1$ の場合の濃度が管路内を浮遊している粒子の濃度でこの時の濃度は真の濃度 C_0 である。一方、粒径分布を求めるために、測定濃度比 C/C_0 と流速比 U_0/U_i の両者で整理し Fig. 6 に示す。この直線の傾きを求めることにより、平均径 D_{p50} を一義的に求めら

Fig. 7 Cumulative particle size distribution (sample. 1)

Fig. 8 Cumulative particle size distribution (sample. 2)

Fig. 9 Cumulative particle size distribution (sample. 3)

Table 2 Size distributions of sample. 1. 2. 3.

		Method 1	Method 2	Cascade impactor method
Mean particle diameter D_{p50} [μm]	Sample. 1	13.0	10.0	14.0
	Sample. 2	5.8	6.4	6.3
	Sample. 3	2.5	5.0	3.5
Geometric standard deviation σ_g [—]	Sample. 1	2.50	1.84	1.92
	Sample. 2	2.50	1.86	1.90
	Sample. 3	2.50	2.34	1.58

れる。この場合、若干データにばらつきがあるので、最小2乗近似により直線に近似すると、直線の式はそれぞれ $y=0.808x+0.189$, $y=0.548x+0.425$, $y=0.271x+0.729$ となる。当然ながら、粒径の大きいサンプル1が非等速吸引誤差が大きくなり、粒径の最小なサンプル3の誤差が小さくなる。この結果からそれぞれの場合の傾き $A=0.808, 0.548, 0.279$ を用い σ_g を規定する方法で整理し平均径を求め試行法による粒径分布を求めると Fig. 7~9 の(細線及び一点鎖線で示した)結果が得られた。ただし、非等速吸引誤差式として、Davies の式及び Levin の式を用いた。本法と従来法の粒径分布を比較するため、カスケードインパクターのデータに Twomey の変換 (Tohno et al., 1981) を行い、黒丸で示した。Davies の式より求めた結果を破線、Levin の式より求めた結果を実線で示している。これより、本法による粒径分布は、対数正規分布として計算されているため直線で表わされており、カスケードインパクターで表されるフライアッシュの分布のように頻度分布の二岐性は表されていない。しかしながら、50% 分離径を見ると従来法のインパクターによる測定値とほぼ等しくなっており、簡単な操作によって濃度と粒径分布の同時測定法が可能であると言える。更に、Levin の式の場合が Davies の式の場合よりも若干平均径を大きく推定しているが両者に大差はない。又、サンプリングにおいてよく問題とされるプローブの管の内壁への沈着量や、管内沈着量は、捕集質量の1% 未満であった。

次に、最急降下法 (S. D. M.) を用い2変数同時決定の結果を示す。実験方法は前述と同様に各流速毎の濃度を求め、それより真濃度を推定し、各流速毎の濃度比を計算し、Eq. (8) の $g(x_i)$ の項を求めた。評価関数として Eq. (10) を用い最急降下法により数値解析し平均径、幾何標準偏差を求めた。計算結果を Fig. 7~9 に試料1~3についてそれぞれ太い実線で示す。ここでもカスケードインパクターに Twomey 法でデータ処理したものを併記して示した。これより、幾何標準偏差を仮定して求めた場合と同様に、本法もインパクター法とほぼ等しい平均径 D_{p50} を表している。さらに、幾何標準偏差は試

料1~3においてそれぞれ1.84, 1.86, 2.34と3者異なっており、また全体的には手法1による σ_g を規定する場合に比べてかなりインパクターの実験値に一致するようになった。よって、対数正規分布関数を満足する粉体においてはほぼ妥当な結果を得ることが可能であると考えられる。

本試料は複雑な粒径分布を持つ粒子であるが、平均径付近の分布は精度良く求めることが可能である。以上の実験データに基づく平均径と幾何標準偏差をまとめたものを Table. 2 に示す。

結 言

本報では、非等速吸引時の粒子濃度測定結果から管路内を流れる浮遊粒子の濃度及び粒径分布を測定する方法を考案し、3種類の粒径の異なるフライアッシュを用いて検討を行った。以下にここで得られた知見を記す。

- 1) 第1種 Fredholm 型方程式を最急降下法を用いて解くことにより粒径分布の平均径及び幾何標準偏差を一義的に決定することができる。
- 2) 自動化装置を用いれば、サンプリングにより捕集された粉体の全捕集質量すなわちサイクロン部とフィルター部での捕集質量を長時間にわたり連続的に計算機にデータ入力できる。
- 3) 非等速吸引時の測定濃度と真の濃度の比をとり流速比との関係を求め、Levin の式を用いることにより粒径分布が求めることが可能である。得られた粒径分布は、これまでよく利用された測定法であるカスケードインパクターにより得られた結果とほぼ一致している。

Nomenclature

- C = measured particle concentration at sampling velocity U_i [kg/m³]
 C_0 = particle concentration at sampling velocity U_0 [kg/m³]
 C_m = Cunningham's slip correction factor [—]
 D_p = particle diameter [μm]

D_{p50} = mass median particle diameter	$[\mu\text{m}]$	Literature cited
D = diameter of sampling probe	$[\mu\text{m}]$	
$f(D_p)$ = particle size distribution	$[\mu\text{m}^{-1}]$	Davies, C. N. ; "The Entry of Aerosols into Sampling Tubes and Haeds", Brit. J. Appl. Phys., Ser. 2, 1, 921-932 (1968)
g_i = mass faction of the particles	$[-]$	Kojima, N. and T. Machida Ed, "FORTRAN Ouyou Suchi-keisan", p. 142-158, Tokai Univ. Pub. (1989)
J = performace index	$[-]$	Levin, L. M. and S. P. Belyaev ; "Techniques for Collecting of Representative Aerosol Sampling", <i>J. Aerosol Sci.</i> , 5, 325-338 (1974)
K = kernel function defined by Eq. (9)	$[-]$	Makino, H., H. Tsuji, M. Kimoto, H. Yoshida and K. Iinoya ; "New Estimation Method of Particle Size Distribution by Anisokinetic Sampling", <i>Kagaku Kogaku Ronbunshuu</i> , 21, 896-903 (1995)
m_0 = mass of the particles by Isokinetic Sampling	$[\text{g}]$	Tohno, S., M. Itoh and K. Takahashi ; "Estimation of Aerosol Particle Size Distribution by Cascade Impactor and EAA", <i>J. Soc. Powder Technol. Japan</i> , 18, 880-886 (1981)
m_i = mass of the particles by Anisokinetic Sampling	$[\text{g}]$	Yoshida, H., T. Osugi, H. Masuda, S. Yu and K. Iinoya ; "Anisokinetic Sampling Errors for Aerosols", <i>Kagaku Kougaku Ronbunshuu</i> , 2, 336-340 (1878)
P = inertial parameter	$[-]$	
U_i = sampling velocity	$[\text{m/s}]$	
U_0 = main flow velocity	$[\text{m/s}]$	
x_i = velocity ratio, U_0/U_i	$[-]$	
σ_g = geometric standard deviation	$[-]$	

On the Study of Measurement Apparatus for Particle Concentration and Estimation of Particle Size by Log-Normal Distribution in Gas-Solid Pipe Flow

Hideto Yoshida, Shinya Matsuura,
Kouji Kanagawa, Ma Jiefu, Keichi Nagahashi*
Tatsuya Akahori* and Hisao Makino**

Key Words: Particle Size Distribution, Anisokinetic Sampling, Sampling Error, Particle Concentration

Experimental and theoretical studies have been conducted on a method for measuring particle concentration and size distribution in gas-solid pipe flow. The measurement can be done continuously and automatically by the use of anisokinetic sampling.

The total mass of the sampled particles, cyclone and filter box is measured by an electronic mass balance. The mass of the collected particles is proportional to the measurement time.

In the reduction of experimental data, mass median diameter and geometric standard deviation are determined uniquely by the use of Levin's Equation and the steepest descent method.

Particle size distribution obtained in this way agrees well with the conventional impactor method.

* Mita Industrial Co., Ltd., Chuo-ku, Tamatsukuri 1, Osaka, 540

** Yokosuka Research Lab., Central Research Institute of Electric Power Industry, Yokosuka, 240-01