固気流動層内での密度偏析における最下層への低密度粉体の取り込みの有無

林 省吾¹, 押谷 潤^{2*}, 後藤 邦彰¹

Presence or Absence of Capturing a Lighter Particles at a Lowest Layer in Gas Fluidization of Binary Particles

Shogo Hayashi¹, Jun Oshitani^{2*} and Kuniaki Gotoh¹

Received 15 September 2016; Accepted 21 October 2016

Four pairs of binary mixtures of glass beads and iron powder were fluidized at various air velocities. The size of iron powder was constant at 180–212 μm , while that of glass beads was varied to be 250–300 μm , 300–355 μm , 425–500 μm and 610–700 μm . It was found, in the four pairs, that glass beads (lighter particles, flotsam) move up and iron powder (heavier particles, jetsam) move down at middle ranged air velocities; density segregation appears regardless of the glass beads size. However, if the lower iron-powder-rich layers were investigated carefully for the pairs of 250–300 μm and 300–355 μm glass beads, the volume fraction of iron powder decreases with lowering the bed height, that is, the glass beads are captured in the lowest layer. On the other hand, the capturing of the glass beads does not occur in the pairs of 425–500 and 610–700 μm glass beads. The origin of the glass beads capturing, and the reason of the presence or absence at different glass beads sizes were discussed considering the particles mobility at the interface between upper and lower layers, the particles packing structure of the lower layers, and the local air velocity at the lower layers.

Keywords: Density segregation, Fluidized bed, Dry separation.

1. 緒 言

密度やサイズが異なる 2 成分混合粉体を下部からの送風により流動化させると、密度やサイズが小さな粉体が上層に、大きな粉体が下層にそれぞれ移動する偏析現象が生じる。この偏析現象は、密度差に基づく密度偏析とサイズ差に基づくサイズ偏析に区別され、いずれに関しても基礎研究が古くから盛んに行われてきた[1–14]。著者らは、密度偏析を粒状混合物の乾式比重分離技術に適用することを検討し、これまでに粒状の鉄鉱石と石炭の高品位化に同技術を利用可能であることを明らかにしている[15,16]。

Fig. 1 (a) ~ (d) に密度が異なる 2 種類の粉体をかさ体積基準で等量混合して流動化させた場合の特徴的なパターンを示す。まずは、2 種類の粉体の密度差が著しく

小さい場合で、(a) のように密度偏析が生じず両粉体が混合した状態になる。密度差の増加に伴い (b) のように下層ほど高密度粉体の割合が多い状態となり、密度差が極めて大きい場合は (c) のように低密度粉体が上層に、高密度粉体が下層に分離した状態になる。なお、同じ密度差の混合粉体であっても風速の大小により (a) ~ (c) の間で状態変化が生じる場合もある。

もう 1 つの特徴的なパターンが本研究で注目した (d) で、下層では下方ほど高密度粉体の割合が小さく、低密度粉体の割合が大きいという常識的には理解しにくい状態である。著者らはこれまでの固気流動層を用いた一連の研究を通じて、ごく稀ではあるが (d) が生じることを経験的に確認してきた。また、偏析現象に関する論文を調べたところ、著者らが知る限りでは、同密度異粒子径の 2 成分混合粉体を対象とした数値シミュレーションの論文[9]において (d) の状態の存在が報告されているが、実験的にどのような条件で (d) が生じるかなどの詳細は未だ明らかとなっていない。そこで本研究では、球形のガラスビーズと鉄粉の混合系において、鉄粉の粒子径を一定とし、ガラスビーズの粒子径を変化させた 4 組の混合粉体を用意し、風速を詳細に変化させて密度偏析を調べ、(d) の状態が生じるかどうかを検討した。

1 岡山大学大学院 自然科学研究科 応用化学専攻
(〒 700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1)
Division of Applied Chemistry, Graduate School of Natural Science and Technology, Okayama University
(3-1-1 Tsushima-naka, Kita-ku, Okayama 700-8530, Japan)
2 岡山理科大学 工学部 バイオ・応用化学科
(〒 700-0005 岡山市北区理大町 1-1)
Department of Applied Chemistry and Biotechnology, Faculty of Engineering, Okayama University of Science
(1-1 Ridai-cho, Kita-ku, Okayama 700-0005, Japan)
* Corresponding Author oshitani@dac.ous.ac.jp

Fig. 1 Schematic drawings of density segregation patterns
(a) completely mixing (b) increase of the bulk volume fraction of jetsam with decreasing the bed height (c) completely separating (d) decrease of the volume fraction of jetsam with decreasing the bed height at lower height

Table 1 Characteristics of iron powder and glass beads

		Iron powder	Glass beads			
		I.P.	G.B.1	G.B.2	G.B.3	G.B.4
Diameter	[μm]	180~212	250~300	300~355	425~500	610~700
Mean diameter D_{LP} & D_{GB}	[μm]	196	275	328	463	655
Diameter ratio $D_{\text{GB}}/D_{\text{LP}}$	[-]	—	1.4	1.7	2.4	3.3
Density ρ_{LP} & ρ_{GB}	[g/cm ³]	4.5	1.5	1.5	1.5	1.5
Density ratio $\rho_{\text{LP}}/\rho_{\text{GB}}$	[-]	—	3.0	3.0	3.0	3.0

2. 実験方法

実験に用いた1種類の鉄粉 (I.P.) と粒子径の異なる4種類のガラスビーズ (G.B.1~4) の粒子径, かさ密度, およびそれらの比の値を **Table 1** に示す。鉄粉の粒子径が180~212 μm であるのに対し, ガラスビーズの粒子径を250~300 μm , 300~355 μm , 425~500 μm , 610~700 μm とし, いずれも篩一段分となるようにした。なお, 鉄粉のかさ密度はガラスビーズよりも3.0倍大きい値であるのに対し, ガラスビーズの粒子径は鉄粉よりも1.4倍~3.3倍大きい値となっている。密度偏析を調べるために, 鉄粉と各粒子径のガラスビーズをかさ体積基準で等量混合し, 鉄粉のかさ体積混合割合 $V_{\text{LP}} = 50\%$ の混合粉体を4組用意した。また, 各混合粉体において, $V_{\text{LP}} = 0, 20, 40, 50, 60, 80, 100\%$ でのかさ密度を十分なタッピング下で測定し, かさ密度と V_{LP} の関係を示す検量線を作成した。

流動層カラムとして内径100 mm, 高さ500 mm, 厚さ5 mm のアクリル円筒管を用い, その底部に孔径8 mm, ピッチ10 mm, 開孔率58%のステンレス多孔板2枚でろ布を挟んだ空気分散板を設けた。コンプレッサーからの空気をレギュレーターで圧力調整し, マスフローコントローラーで風速 (空塔速度 u_0) を制御した後にカラム底部から送り込んだ。

まず, 各粉体の最小流動化速度を求めるために, カラムに各粉体を別々に層高50 mm となるように充填し, u_0 をゼロから徐々に増加させながら粉体層底部の圧力損失 ΔP を測定した。一般的な手法に基づき[17], ΔP の増加部分の直線と一定部分の直線の交点を粉体が流動化し始める最小流動化速度 u_{mf} として求めた。

次に, 4組の混合粉体での密度偏析を調べるために, カラムに各混合粉体を別々に層高100 mm となるように20 mm ずつ5回に分けて充填し, 所定の u_0 で10分間流動化させた。送風停止後, 層上部から10層に分けて吸引機により1層ずつ回収して各層のかさ密度をタッピングに注意して測定し, 上記のかさ密度と V_{LP} の関係を示す検量線を用い, 各層の V_{LP} をそれぞれ求めた。最後に Eq. (1) を用い, 各層の V_{LP} の値が完全混合時の50%からどの程度ずれているかを計算し, それらの平均値から密度偏析の度合いを数値化した E_{seg} を求めた。なお, E_{seg} の値は, ガラスビーズと鉄粉が上下層に完全分離の場合は1, 完全混合の場合は0となるように定義されている。これら一連の操作を4組の混合粉体に対して u_0 を細かく変化させて行った。

$$E_{\text{seg}} = \left[\frac{1}{10} \sum_{i=1}^{10} \frac{|V_{\text{LP},i} - 50|}{50} \right] \times 100 \quad (1)$$

3. 実験結果と考察

Fig. 2 に各粉体での u_0 と ΔP の関係を示す。いずれの粉体においても, u_0 の増加と共に ΔP が増加する固定層状態と ΔP が一定値を示す流動層状態が確認された。**Fig. 3** にガラスビーズの u_{mf} を平均粒子径に対して示すと共に, 鉄粉の u_{mf} を点線で示す。G.B.1 と G.B.2 の u_{mf} は鉄粉よりも小さな値であり, G.B.3 と G.B.4 の u_{mf} は鉄粉よりも大きな値であった。

次に, G.B.1 での密度偏析の結果を示す。**Fig. 4** に各 u_0 での各層の V_{LP} を, **Fig. 5** (a) と (b) に上5層と下5層の V_{LP} を u_0 に対してそれぞれ示す。なお, Fig. 5 (a) と (b) の点線は, G.B.1 と鉄粉の u_{mf} をそれぞれ示す。鉄粉の u_{mf}

よりも小さな $u_0 = 8.0$ cm/s では、最上層の V_{LP} が 23% と小さいがその他の層の値は約 50% であり、ほぼ混合状態であった。鉄粉の u_{mf} よりも大きな $u_0 = 9.5$ cm/s では、1~4 層は $V_{LP} \approx 0\%$ で G.B.1 がほぼ 100% を占めているのに対

し、6~10 層の V_{LP} の値は大きく、G.B.1 と鉄粉が上下層に偏って存在する密度偏析が見られた。ここで注目したのが 6~10 層からなる下 5 層であり、6 層と 7 層は $V_{LP} \approx 100\%$ で鉄粉がほぼ 100% を占めているのに対し、グラフ

Fig. 2 Pressure drop ΔP vs. superficial air velocity u_0

Fig. 3 Minimum fluidization velocity u_{mf} vs. mean diameter of glass beads $D_{G.B.}$

Fig. 5 Bulk volume fraction of iron powder V_{LP} of (a) upper five layers and (b) lower five layers vs. superficial air velocity u_0 for G.B.1&I.P. mixture

Fig. 4 Bulk volume fraction of iron powder V_{LP} in each layer at various superficial air velocity u_0 for G.B.1&I.P. mixture

Fig. 6 Bulk volume fraction of iron powder V_{LP} in each layer at various superficial air velocity u_0 for G.B.2&I.P. mixture

Fig. 7 Bulk volume fraction of iron powder V_{LP} of (a) upper five layers and (b) lower five layers vs. superficial air velocity u_0 for G.B.2&I.P. mixture

中に点線で示すように8～10層では下方ほど V_{LP} の値が小さくなるというFig. 1 (d)の傾向が確認された。これは、本来上層に移動すべき低密度粉体であるG.B.1が最下層に取り込まれた状態に成り得ることを明確に示している。

このような現象が生じる要因として、初期の混合状態から送風時間が経過すると上層の鉄粉が下層に移動し、界面近傍となる6層と7層の鉄粉の割合が増加するが、その割合がほぼ100%になると6層と7層の運動性が極めて低下し、それらの層よりも下の8～10層のG.B.1の上層への移動が阻害されるためではないかと現在のところ考えている。さらに u_0 を増加させても、 $u_0 = 10.0 \sim 11.8$ cm/sで見られるようにG.B.1の最下層への取り込みは見られたが、Fig. 5 (b)に示されるように u_0 の増加と共に10層の V_{LP} の値は増加し、G.B.1の最下層への取り込み量が減少する結果となった。これは、 u_0 の増加と共に界面近傍の6層と7層の運動性が高まり、最下層のG.B.1の上層への移動が容易になったためであると考えられる。一方、 u_0 の増加と共に6層の V_{LP} は減少し、1～5層の V_{LP} はわずかながら増加した。これらの結果も界面近傍の運動性の高まりと関連すると考えられ、特にわずかではあるが1～5層の鉄粉の存在は、上層のG.B.1の流動化が激しくなるために界面近傍の鉄粉が上層に巻き込まれることによると想像される。なお、 u_0 が13.5 cm/sを超えると上下層の V_{LP} が50%に近づく結果となったが、これは風速が増加すると層全体の運動性が極めて高くなり密度偏析が阻害されるためであると考えられる。

G.B.2での結果をG.B.1と同様にFig. 6とFig. 7にそれぞれ示す。 $u_0 = 9.8 \sim 10.8$ cm/sにおいては、G.B.1と同様にG.B.2の最下層への取り込みが見られた。したがって、Fig. 1 (d)の傾向が異なる粉体混合系で様々な風速において見られたことから、このような現象が再現性と言う観点で間違いなく生じることが明らかとなった。また、G.B.2においても u_0 の増加と共に最下層への取り込み量が減少したことから、同現象の信憑性の高さが示されていると考えられる。

G.B.3と4での結果をFigs. 8～11にそれぞれ示す。G.B.

Fig. 8 Bulk volume fraction of iron powder V_{LP} in each layer at various superficial air velocity u_0 for G.B.3&I.P. mixture

Fig. 9 Bulk volume fraction of iron powder V_{LP} of (a) upper five layers and (b) lower five layers vs. superficial air velocity u_0 for G.B.3&I.P. mixture

3 の $u_0 = 11.5 \sim 12.8$ cm/s の結果と G.B.4 の $u_0 = 11.8 \sim 13.2$ cm/s の結果を見ると、G.B.1 と 2 の場合とは異なって下層については下方ほど V_{LP} の値が小さくなるような傾向にはならず、ガラスビーズの最下層への取り込みが確認されなかった。したがって、同現象が生じるかどうか

かは、低密度粉体であるガラスビーズの粒子径に依存することが明らかとなった。ここで注目したのは、同現象が生じた粒子径の小さな G.B.1 と 2 の u_{mf} は鉄粉の値よりも小さく、密度偏析はガラスビーズの u_{mf} よりも大きな風速域で見られたのに対し、同現象が生じなかった粒子径の大きな G.B.3 と 4 の u_{mf} は鉄粉の値よりも大きく、密度偏析はガラスビーズの u_{mf} よりも小さな風速域で見られた点である。同現象が G.B.1 と 2 で生じた要因については、上記の通り、上下層の界面近傍の運動性が低いことが考えられたが、G.B.3 と 4 で生じなかった要因については、混合粉体の充填層の構造に着目して以下のように推察した。G.B.3 と 4 の場合では、ガラスビーズの粒子径が大きいために G.B.1 と 2 の場合よりも単位断面積当たりの粒子間接触点数が少なく、混合粉体の充填層中を空気が通り抜ける空間が小さいため、局所的な風速が G.B.1 と 2 の場合よりも大きくなり、鉄粉の運動性が相対的に高いと考えられる。さらに、G.B.3 と 4 の場合では、ガラスビーズの u_{mf} よりも小さな風速域が対象であることから、充填層中を通り抜ける空気はガラスビーズを動かすことができず、G.B.1 と 2 の場合よりも鉄粉の運動性をより高めると考えられる。以上の結果、G.B.1 と 2 の場合で生じたと想像される最下層のガラスビーズの上層への移動の障害が、G.B.3 と 4 の場合では生じなかったのではないかと推察される。

一方、G.B.3 と 4 の特徴として、Fig. 8 の $u_0 = 11.5$ cm/s のグラフ中に点線で示すように上層では下方ほど V_{LP} の値が小さくなるという傾向が、G.B.3 の $u_0 = 11.5 \sim 12.0$ cm/s と G.B.4 の $u_0 = 11.8 \sim 13.2$ cm/s で見られる点が挙げられる。これらの要因に関する推察は非常に困難であるが、鉄粉の u_{mf} よりも大きな風速域であるため、鉄粉の割合が大きな下層の運動性は高く、界面近傍の鉄粉は下層に移動しやすいのに対し、ガラスビーズの u_{mf} よ

Fig. 10 Bulk volume fraction of iron powder V_{LP} in each layer at various superficial air velocity u_0 for G.B.4&I.P. mixture

Fig. 11 Bulk volume fraction of iron powder V_{LP} of (a) upper five layers and (b) lower five layers vs. superficial air velocity u_0 for G.B.4&I.P. mixture

りも小さな風速域であるため、ガラスビーズの割合が大きな上層の運動性は低く固定層となっている可能性もあり、上層の鉄粉が下層に移動しにくいことから、点線で示した上層下方の鉄粉の割合が小さくなったのではないかと考えられる。

Fig. 12 Density segregation efficiency E_{seg} vs. superficial air velocity u_0 for the four mixtures

最後に、工学的観点から“ガラスビーズと鉄粉の乾式比重分離”という視点で4組の混合粉体での結果を比較する。**Fig. 12**に各組での密度偏析の度合いを数値化した E_{seg} を u_0 に対して示す。いずれの混合粉体においても E_{seg} は最大値を示し、分離に適した u_0 の存在が明らかとなった。これらの結果は、混合粉体の流動性の強さと密度偏析の度合いとの関連性を示している。各組での最大値を比較すると、まずG.B.4の組が75%と最も小さな値であった。これは、密度偏析が見られた u_0 がG.B.4の u_{mf} の約0.5倍と非常に小さいことから、混合状態から密度偏析が進行して上層のG.B.4が増加すると、上層が固定層となって鉄粉の下層への移動が阻害されたためであると考えられる。G.B.1~3を比較すると、ガラスビーズの粒子径の減少に伴いわずかながら E_{seg} は増加したが、いずれにおいても95%を下回っており、ガラスビーズと鉄粉を上下層に完全には分離できない結果となった。特にG.B.1と

2では、ガラスビーズの最下層への取り込みが100%の分離を妨げていることから、より高効率な分離のためには同現象の防止に向けた対策が必要であると考えられる。

4. 結 言

ガラスビーズと鉄粉の混合粉体からなる固気流動層を用いた実験により、ある風速において下層では下方ほど

高密度粉体の割合が小さくなり、低密度粉体が最下層に取り込まれるという特異的な密度偏析現象が生じることが明らかになった。また、その現象が生じるか否かは、低密度粉体の粒子径に依存することも明らかになり、混合粉体の充填構造の違いが現象の有無の要因ではないかと考えられた。

References

- [1] P. N. Rowe, A. W. Nienow, Particle mixing and segregation in gas fluidized beds: a review, *Powder Technol.*, 15 (1976) 141–147.
- [2] W. C. Yang, D. L. Kealms, Rate of particle separation in a gas fluidized bed, *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 21 (1982) 228–235.
- [3] R. W. Rice, J. F. Brainovich Jr., Mixing/segregation in two- and three-dimensional fluidized beds: binary systems of equidensity spherical particles, *AIChE J.*, 32 (1986) 7–16.
- [4] R. Bilbao, J. Lezaun, M. Menendez, M. T. Izquierdo, Segregation of straw/sand mixtures in fluidized beds in non-steady state, *Powder Technol.*, 68 (1991) 31–35.
- [5] A. C. Hoffmann, L. P. B. M. Janssen, J. Prins, Particle segregation in fluidized binary mixture, *Chem. Eng. Sci.*, 48 (1993) 1583–1592.
- [6] A. Marzocchella, P. Salatino, V. D. Pastena, L. Lirer, Transient fluidization and segregation of binary mixture of particles, *AIChE J.*, 46 (2000) 2175–2182.
- [7] G. A. Bokkers, M. van Sint Annaland, J. A. M. Kuipers, Mixing and segregation in a bidisperse gas-solid fluidised bed: a numerical and experimental study, *Powder Technol.*, 140 (2004) 176–186.
- [8] K. P. Galvin, R. Swann, W. F. Ramirez, Segregation and dispersion of a binary system of particles in a fluidized bed, *AIChE J.*, 52 (2006) 3410–3410.
- [9] Y. Q. Feng, A. B. Yu, Microdynamic modelling and analysis of the mixing and segregation of binary mixtures of particles in gas fluidization, *Chem. Eng. Sci.*, 62 (2007) 256–268.
- [10] X. Wang, N. J. Miles, S. Kingman, Segregation of ultrafine particles in a centrifugal fluidized bed separator, *Adv. Powder Technol.*, 19 (2008) 335–348.
- [11] M. Yoshida, J. Oshitani, K. Ono, M. Ishizashi, K. Gotoh, Control of apparent specific gravity in binary particle systems of gas-solid fluidized bed, *KONA Powder Part. J.*, 26 (2008) 227–237.
- [12] K. G. Palappan, P. S. T. Sai, Influence of feed entry on the segregation of a binary mixture of solids in a continuous fast fluidized bed, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 50 (2011) 13056–13065.
- [13] C. Tagliaferri, L. Mazzei, P. Lettieri, A. Marzocchella, G. Olivieri, P. Salatino, CFD simulation of bubbling fluidized bidisperse mixtures: Effect of integration methods and restitution coefficient, *Chem. Eng. Sci.*, 102 (2013) 324–334.
- [14] O. O. Olaofe, A. V. Patil, N. G. Deen, M. A. van der Hoef, J. A. M. Kuipers, Simulation of particle mixing and segregation in bidisperse gas fluidized beds, *Chem. Eng. Sci.*, 108 (2014) 258–269.
- [15] J. Oshitani, M. Ohnishi, M. Yoshida, G. V. Franks, Y. Kubo, S. Nakatsukasa, Dry separation of particulate iron ore using density-segregation in a gas-solid fluidized bed, *Adv. Powder Technol.*, 24 (2013) 554–559.
- [16] J. Oshitani, K. Teramoto, M. Yoshida, Y. Kubo, S. Nakatsukasa, G. V. Franks, Dry beneficiation of fine coal using density-segregation in a gas-solid fluidized bed, *Adv. Powder Technol.*, 27 (2016) 1689–1693.
- [17] J. F. Davidson, R. Clift, D. Harrison, *Fluidization*, 2nd ed., Academic Press, London (1985).