ドラフトチューブ付噴流層の流動特性と応用技術

Flow Characteristics of Draft Tube Spouted Bed and Its Application

幡 手 泰 雄*, 伊 地 知 和 也*, 上 村 芳 三*

Yasuo HATATE*, Kazuya IJICHI*, Yoshimitsu UEMURA*

Key Words : Spouted Bed, Draft Tube, Bypassing Flow, Solids Circulation

はじめに

図1に典型的な流動層と噴流層の概略図を示す。噴流層は1955年のMathurらの穀物の乾燥に関する報告¹⁾以来盛んに研究が行われ、Mathurの有名な成書²⁾等々に示されているように、乾燥以外に混合、造粒、コーティングなどのプロセスに使われており、多くの報告がなされている。この装置は低い操作圧力、粒子の安定した動き、また操作の容易さという点で優れており、1 mm以上の比較的大きな粒子の流動化や混合に用いられ、特に穀類の乾燥装置として開発研究が行われている。一般的な粒子の流動化の観点で言えば、いわゆる Geldart の分類でD粒子のうち、流動

化の困難となる粒子が噴流層に適していると言われている。これは流動層で流動化できるならその方がよいということで、噴流層の気固接触装置としての位置付

図1 代表的な流動層と噴流層

1996年12月5日受付

*鹿児島大学工学部応用化学工学科

(〒890 鹿児島市郡元1-21-40) TEL. 099-285-8355

Dept. of Appl. Chem. & Chem. Eng., Fac. of Eng., Kagoshima Univ., (1-21-40 Korimoto, Kagoshima-shi 890)

〈著者紹介〉

幡手康雄

昭和42年九州大学工学部卒、九州大学助手を経て昭和49年鹿児島大学助教授、昭和63年より教授、昭和47年工学博士。

専門：化学工学、現在、常圧、800℃での石炭ガス化装置を開発中、他に機能性無機、有機微粒子の製造や焼酎等について“化学工学”の範囲で研究を進めている。

伊地知和也

昭和44年鹿児島大学工学部卒、昭和47年鹿児島大学助手、平成4年鹿児島大学助教授、平成3年博士（工学）。

専門：流動層工学、粉粒体工学、特殊流動層のドラフトチューブ付き噴流層の流動特性およびその応用について研究中、他に、ビルドアップおよびブレイクダウン方式による微粒子製造の研究に取り組んでいる。

上村芳三

昭和52年東京工業大学工学部化学工学科卒業、三井東圧化学㈱を経て昭和58年鹿児島大学助手、平成2年助教授。平成2年工学博士。

専門：触媒及びエネルギー工学、高分子工学。最近、水素吸蔵合金を利用した膜分離型反応器による二酸化炭素の資源化、水性会合性高分子の分子設計、リサイクルポリマーの熱分解による資源化等に取り組んでいる。

けを表すものである。噴流層は、通常ガス吹き込み口ノズルから流入したガスのうち、30～70%が中央部に形成された噴流部を通過し、固体粒子とあまり接触することなしに流出するので、当然気固接触装置として流動層と比較した場合は不利になる。しかしながら、粉体空気輸送類似の挙動を示す噴流部と移動層の流動特性を持つアニュラス部という流動層では実現不可能な形態は、前者は輸送、後者は反応場として利用した場合には極めて優れた（流動層を越えた）装置にもなり得ると考えられるのである。このような特質は、図2で示すような噴流層の中央部にドラフトチューブを備え付けた、ドラフトチューブ付き噴流層とすることでさらに強調される。すなわち、ドラフトチューブを付けることで噴流部高さに制限がなくなり、また噴流部とアニュラス部との粒子の交換もなくなる。この事は粒子の循環速度や滞留分布が均一化することを意味しており、またドラフトチューブを備えた

図2 ドラフトチューブ付き噴流層

図3 ドラフトチューブ付噴流・流動層

事で新たに加わった装置因子 H_D や D_T などを変化させれば、容易に粒子循環速度をコントロール出来るように、装置特性が著しく向上したという事が出来る。また、アニュラス部のガス流量を増大させ（さらに、流動化させ）るため考案された図3のような中央部のノズル吹き込み以外に側面コーン部からもガス（異種ガスも可）を吹き込むことが出来るタイプのドラフトチューブ付き噴流・流動層では、異なった装置特性が期待できる。事実、著者らが現在開発中の「蓄熱粒子循環型石炭ガス化装置」は、この一つの応用技術であるが、この場合には、ドラフトチューブ部（噴流部）は燃料ガスを燃焼させることにより、燃焼部としても作用し、熱を蓄熱した循環粒子の輸送管として使われている。また、アニュラス部は完全な移動層と見なせるので、逆混合が激しい流動層に比べて、格段に反応（水蒸気と石炭とのガス化反応）効率が良くなり、従来の石炭ガス化装置にみられないような高水素含有ガスを取り出すことが出来るようになっている。

図4 スロット型噴流層装置

上述の石炭ガス化装置も厳密に言えば図2に示す典型的なドラフトチューブ付き噴流層とは言い難く、用途に応じて変形改善したドラフトチューブ付き噴流・移動層ということが出来る。ここでは、最初に、種々の形式のドラフトチューブ付き噴流層について概説し、穀類の乾燥装置として発展してきた歴史的背景を考慮して、伝熱特性に関する最近の研究を簡単に紹介することとする。比較的詳細な研究が行われ成果も上がりつつあると思われる粒子循環速度等の流動特性や、実用を目指した応用技術の研究に関しては、章を改めて紹介していく。

種々のドラフトチューブ付き噴流層 Whiting らの円筒と半円筒を比較した研究³⁾によると、噴流層では噴流挙動に及ぼす壁効果の影響は余り考えなくて良いことから、二次元ドラフトチューブ付き噴流層も少し修飾すれば実用的意味を持ってくる。Mujumdar ら⁴⁾は、通常、円筒形で操作される装置を矩形とし、入り口ノズルもスロット型にすることで、ドラフトチューブ付き噴流層の大きな問題であるスケールアップに容易に対応出来るとしている。Law-Kwet-Cheong ら⁵⁾は、図4に示したスロット型噴流層（横0.202m×縦0.05m×層高さ0.85m）装置について、ピーナツ、トウモロコシ、大麦、小麦を用いて実用的な観点から多くのデータを蓄積した。Kalwar ら^{6, 7)}は、図4で示したドラフトチューブ付き噴流装置の、スケールアップ上問題になる壁効果を調べるため、装置特性に及ぼす種々の装置、操作因子の影響を検討した。安定噴流化速度は、実験規模装置（横0.05m×縦0.04m×層高さ1.5m）の方がパイロット規模装置（横0.75m×縦0.47m×層高さ2.0m）より小さくす

装置特性

層横幅 0.75m $U_G = 0.75 - 2.40 \text{ m/s}$
 層縦幅 0.05m 固体粒子: 大豆
 層高 1.35m
 開角 60°

図5 固体循環速度に及ぼすチューブ間距離の影響

操作条件

粒子径 $610 \mu\text{m}$
 粒子密度 2631 kg/m^3
 チューブ径 31mm
 オリフィス径 8.25mm

図7 ライザー断面横当たりの粒子循環速度に及ぼす補助ガス速度の影響

図6 内部循環型流動層の概略図

むこと、しかし実験ユニットは壁効果のため粒子循環速度（アニュラス部の粒子速度として検出）がパイロットより小さいこと、また縦幅を増すとドラフトチューブ内での空気流速の均一化の達成が難しくなる以外は、スケールアップは容易に行うことが出来ることを明らかにした。この場合、圧損、最小噴流化速度及び粒子循環速度の装置、操作因子による相関式を提出した。図5はパイロットの実験結果の一例である ($U_G = 0.75 \sim 2.4 \text{ m/s}$)。この装置に関連するものとしては、1986年ガスを脈流として流入させドラフトチューブ内で強力なせん断力を発生させることで、連

続的に放射性核物質を効率良く混合する装置が特許出願されている⁸⁾。

ガス流速や粒子循環速度のより正確なコントロールを可能にし、アニュラス部の気固接触効率を上げるため、Milne ら⁹⁾は図6に示すような、ドラフトチューブ下部にアニュラス部からの粒子流入用のオリフィスをもち、上部にサイクロン用気固分離器を付し、またコーン部に垂直に多数の小孔を設けてアニュラス部をスムーズに流動化させる装置（内部循環型流動層）を発展させた。半円筒による基礎研究を行い、たとえば図7の結果を得た。横軸は補助ガス（アニュラス部への吹き込みガス）速度を表しており、縦軸はライザー（ドラフトチューブ）断面横当たりの粒子循環速度を表している。オリフィス孔を通じて補助ガスの大部分がライザー（ドラフトチューブ）内に入り（図省略）、補助ガス速度を変えることでほとんど直線的に粒子の循環速度を制御できるという結果を得た。このような装置は、（急激な加熱速度を達成するための）高速固体粒子循環速度と均一なガス滞留時間を必要とする炭化水素熱分解に向いているとしている。この装置は、アニュラス部固体粒子は極めて穏やかな流動状態にあり、乾燥装置としても優れた特性を発揮すると考えられる。

ドラフトチューブを付けることで、吹き込みノズルガスのより多くがドラフトチューブに流入し、かつアニュラス部ガスと噴流部ガス（ドラフトチューブ内ガ

図8 側面出口を持つドラフトチューブ付き噴流層 (1)

図9 側面出口を持つドラフトチューブ付き噴流層 (2)

ス)との交換が無くなり乾燥効率が低下することになる。それを防止するために、ドラフトチューブを多孔質にすることが必要になった¹⁰⁾。

服部ら^{11, 12)}は側壁に排気口を設けた円筒型噴流層を考案した。これはガス流れの多くの部分が噴流層のみを通過し、気固接触に問題を残していると考え、送入ガスのすべてを環状粒子層を通過させるための工夫であるが、当然図8に示すようにドラフトチューブ付き噴流層にもこれを適用し、他の装置の場合と同様にドラフトチューブを付けることで圧力損失の減少を認め、送入ガスや粒子の滞留時間がより均一になり、ドラフトチューブを設けない場合に比べて格段に性能が改善されることを明らかにした。さらに、ガスの排出方法を図9のように改善することで、ガス出口孔に張った網への粒子の詰まりを防ぎ、この装置の特性を生かすことが出来た^{13, 14)}。最近、服部らはこの装置の延長として、噴流層が中央部にガス吹き込み口を設置し

図10 服部らにより新しく提案されたドラフトチューブ付き噴流層

なくてもアニュラス部に十分なガス流速が存在すれば粒子が安定的に循環するという事実から、図10のような、通常みられるガス吹き込みノズルやオリフィスを取り除き、層底部にスクリーンを設けることで装置全体を一樣なガス速度で通過出来るようにした、ドラフトチューブ付き噴流層装置を作成した。この装置を試験した結果、当然の事ながら、アニュラス部への大幅なガス流の増加を観測し、且つ圧力損失の減少も認められており、乾燥装置として今後有望な装置として注目される¹⁵⁾。成瀬ら¹⁶⁾の高速流動層と移動層を組み合わせたCFM層型固気接触も、ドラフトチューブ付き噴流層の一種と考えても良いと思われる。

ドラフトチューブ付き噴流層の伝熱特性 Freireら¹⁷⁾は、0.51mの円筒形噴流層における管壁と層粒子間の伝熱係数 h (wall to bed heat transfer coefficient) を、コーン部の角度を30度から60度の間で変化させて測定した。代表的な結果を図11に示す。 h は粒子径が大きくなるほど大きくなるが、層高が高くなるほど減少した。しかし、ガス流速には依存しないことがわかった。またコーン部の角度を増加 ($\theta = 30^\circ \rightarrow 60^\circ$) するほど h は小さくなり、ドラフトチューブを挿入すると h は小さくなることがわかった。これは結局、管壁付近の粒子の移動速度が大きいほど h が大きくなることを示しているものである。

実験条件

図中の番号	静止層高 (m)	ガラスビーズ 粒子径 $d_p \times 10^3$ (m)	ドラフトチューブ の有無
①	0.17	2.6	無
②	0.21	2.6	無
③	0.26	2.6	無
④	0.26	2.6	有
⑤	0.26	1.8	有
⑥	0.26	0.9	有

図 11 噴流層における粒子の伝熱特性

また、ドラフトチューブを挿入した場合には、ドラフト内とアニュラス部とのガスの交換が無くなったため、ガス流のより多くの部分がドラフトチューブ内を流れることによって、アニュラス部のガス流が減少したために h が小さくなったと考えられる。彼らは最終的に次式のような相関式を得た。

$$Nu (=hD_p/\gamma) = 8.4 Ar^{0.02} (H/D_p)^{-1.26} (\cos \theta)^{0.88}$$

ただし、 Ar はアルキメデス数で次式で定義される。

$$Ar = gD_p^3 (\rho_p - \rho_f) \rho_f / \mu_f^2$$

Barrett ら¹⁸⁾、Claflin ら¹⁹⁾ は、回分加熱方式により噴流層の総括的伝熱特性を検討した。層内を完全混合とみなし次式のような熱収支式をたてた。

$$MC_{ps} \frac{dT}{dt} = mC_{pg}(T_i - T_e) - K(T_b - T_a)$$

ここで、 T_b 、 T_i 、 T_e 及び T_a はそれぞれ層、ガス入り口、ガス出口及び外界の温度、右辺の K を含む第 2 項は外界への熱損失を表している。接触効率 $\eta (= (T_i - T_e) / (T_i - T_b))$ を導入し、時間 t と層温度 T_b との関係を導出し、ドラフトチューブ無しの場合が接触効率が約 0.8 であったのに対し、ドラフトチューブ付きは約 0.7 になったことを報告している。

噴流層における流体-粒子間の熱伝達係数については、Mujumdar⁴⁾ が指摘しているように、アニュラス部で $50 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$ のオーダーにあり、噴流部内ではその 8 倍 ($400 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$) ぐらいになっている。前者は充填層や移動層における伝熱係数、後者は空気輸送における伝熱係数と同様に考えることで上述のことが言える訳であるが、通常の乾燥ではアニュラス部の比較的低い伝熱係数と長い滞留時間による伝熱が、噴流部の高い伝熱係数を短い滞留時間 (< 1 秒) によるそれを上まわると言われている²⁾。Claflin ら¹⁰⁾ は噴流部 (ドラフトチューブ) に粒子の (表面温度ではなく) 平均温度に基づく伝熱係数 h_s^* ($\approx 100 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$) を導入し、アニュラス部をガス熱的平衡にあると仮定することで粒子層高、流入ガス温度さらにドラフトチューブ壁のタイプ (porous, non-porous) の層温度に及ぼす影響についてモデル計算し、概念モデル計算値が実測値と合致するとしている。

Stocker ら²⁰⁾ は、ドラフトチューブ付き噴流層に対してアニュラス部、ドラフトチューブ内、ドラフトチューブ上の噴流部の各部で別々の物質及び熱収支式を立て、また粒子循環速度や伝熱係数等の推算は既存の相関式を使用することでモデル計算を行った。これにより、各部のガス及び粒子の温度予測が可能になった。モデルシミュレーションによって、炭化水素の熱分解のような高速、競争反応には、ドラフトチューブ付き噴流層が非常に有効なことが示された。Eng ら²¹⁾ はドラフトチューブ付き噴流層の温度特性を知るため、定常状態のみならず過渡的状態についても適用できるモデル化 (ダイナミックモデル化) を行った。計算値はベンチスケール ($D_c = 0.11 \text{ m}$) の応答実験の結果 (ドラフトチューブ内ガス温度分布) を良く説明している。

1. 噴流挙動に関する研究

ドラフトチューブを挿入することにより、アニュラス部からスパウト部への粒子の流れがなくなり、また、チューブが非透過性であれば、スパウト部からアニュラス部へのガス浸透流れもなくなり、流動状態が大幅に改善される。ドラフトチューブ付き噴流層操作の特性は以下のごとく示される^{18, 22)}。

- 1) 滞留時間を制御できる。
- 2) 連続操作が可能で、流れは栓流を仮定できる。
- 3) 通常の噴流層に比べ、圧力損失や最小噴流化速度が小さく、操作上の自由度が大きい。
- 4) 粒子充填層高に制限が無い。

表1 主たる噴流因子に関する論文

主な対象特性	研究者	文献	塔形状, 塔径, 開角, ノズル径 (mm)	チューブ構造, チューブ径 (mm)	使用粒子, 粒子密度 ρ_p (kg/m^3)	平均粒径 D_p (μm)	空塔速度 (m/s)	備考
噴流特性 全般	石倉ら 1996	36	円筒 0.1 60° 0.012	多孔, 千鳥配列 porous 12, 14, 18, 23	ガラスビーズ 2480	803-1914	入口基準 0.3-1.5	DSB
	石倉ら 1994	23	円筒 0.1 0.012	solid 12-23	ガラスビーズ 2480	803-1914	入口基準 0.1-0.7	DSB
	Claflin 1984	10	円筒, 半円筒 0.3 60° 0.05	solid 60-80 porous 網メッシュ (14×24)	AS小麦 1400	3,500 (5.5×3.2)	入口基準 15.3-38.3	DSB
	Yang & Kearns 1983	29	半円筒 0.286 60, 90	0.0955m solid	ポリエチレンビーズ 910 エポキシ球 210	2800 2800	1-4.3 [SCMM]	DSB
	Buchanan et al. 1965	22	円筒 0.15, 0.076 60deg 0.007, 0.013, 0.022	solid 15, 37, 70	小麦, 菜種子 ポリエチレンビーズ, PVC	微粉から 20mm 程度	0.39-2.94 [1b/min]	DSB
噴流化曲線 滞留時間	S. J. Kim 1990	14	半円筒 0.128 180deg 0.0186	solid 21	ガラスビーズ 2460 2400 2840	540 850 1390	入口基準 0.02-0.8	DSB
圧損分布 滞留時間	Mathew et al.	32	半円筒 0.152 180deg 0.010-0.0254	solid 28.6 44.5	ガラスビーズ 2490 2580 2890	462 180 1300	0-0.23×10 ⁻³ (m ³ /s)	DSB 固液系
圧損分布 粒子循環量	Law et al. 1986	5	2次元 20.2 180deg 0.01, 0.03	solid 35, 65	大麦 トウモロコシ エンドウ豆 小麦	bulk 612, 715, 684, 719	塔基準, 0.5-3.2	DSB
噴流化曲線 最小安定噴流 化速度	伊地知ら 1988	24	円筒 0.05 60deg 0.01	solid 8, 10, 14	ガラスビーズ 2500	950, 1670, 2360, 3210	入口基準 1-17	DSB
最小噴流化速度 スケール効果	服部ら 1981	26	円筒 0.1, 0.15, 0.2 60deg 0.2D	solid 20, 30, 40	ガラスビーズ 2500	270-1800	入口基準 7.3-8.3	DSB
最小噴流化速度	Barrett et al. 1983	18	円筒 0.3 — 0.05	solid 0.05	小麦 Celcon	3500 2500	安定域から チョーキン グ迄	DSB
アニュラスガス 流量 粒子循環量	Milne et al. 1992	9	半円筒 0.2 60deg 0.026	31, 44 小孔: 6.25, 8.25, 11.1	珪砂 2630 ポリエチレンビーズ 1200	610 1310 1280	入口基準 2.41 (1/s) 9.13 (1/s)	DSFB
アニュラスガス 流量 多孔管モデル	Claflin et al. 1983	31	円筒, 半円筒 0.3 60° 0.05	solid 50-80 porous 網メッシュ (14×24)	AS小麦 1400	3,500 (5.5×3.2)	入口基準 15.3-38.3	annular gas flow separation distance
粒子循環量	Kalwar et al. 1993	7	2次元 0.75, 0.50 45° 60° 0.333 0.05	solid 50, 75, 100	トウモロコシ 732 大豆 756 小麦 765	8050 6630 3630	記載なし	DSB
粒子循環量 アニュラスガス 流量	Muir et al. 1990	33	半円筒 0.2 60° 0.027	solid 23, 40	珪砂 2560	1020	入口基準 13-45	DSB DSFB
粒子循環量 粒子ホールド アップ	伊地知ら 1990	28	円筒 0.05 60° 0.01	solid 11.4, 18.0	鉄粉 7660	205	0-0.003 (m ³ /s)	DSB
実験結果とモデル 計算との比較	Claflin et al. 1982	30	円筒, 半円筒 0.3 60deg 0.058 0.076	solid porous 58-76	小麦 1350 1400	3700 3500	0-0.108 (m ³ /s)	DSB

5) 通常の噴流層よりスケールアップが容易である。
 しかし、ドラフトチューブを挿入することにより、通常の噴流層に比べ、操作因子が増加した上に新たにドラフトチューブの閉塞の危険性も生じてくる。したがって、安定的に本装置を操作するためにはその流動特性を的確に把握しておく必要がある。

本章では、ドラフトチューブ付き噴流層の各パラメータに関する研究について概観する。また、噴流挙動の実験に関する論文を表1にまとめて示した。

1.1 噴流特性

一般に反応装置は透明ではないので外部からの観察が困難である。供給ガス流量と圧力損失との関係を示す流動特性曲線を把握しておけば、装置内の流動状態が予測できる。ドラフトチューブ付き噴流層の流動特性曲線に関しては Buchanan ら²²⁾ に始まって、多くの研究者^{14, 23~25)} によって測定されている。石倉ら²³⁾ の塔圧力損失と入口ガス速度との関係、およびチューブ内圧力損失と入口ガス速度との関係の測定結果を図12、13に示す。塔圧損失およびチューブ圧力損失

と入口ガス流速との関係は、その圧力損失の大きさは異なるが似たような挙動を示しており、層の挙動はチューブ内の粒子挙動に依存していることが示されている。通常の噴流層（ドラフトチューブ無し）の場合は、最小噴流化速度以上のガス速度では実質的には一定の圧力損失を示すが、ドラフトチューブ付き噴流層の場合は、チューブの圧力損失が付加され、ガス速度の増加とともに増加傾向を示す^{22~24)}。ガス速度を増加させて噴流化実験を行うと、ガス量が小さい領域ではチューブの閉塞が生じる。Buchanan ら²²⁾ の場合、チューブ閉塞をガス圧で除去するのに安定噴流時の10倍以上の圧力損失が必要となっている。したがって、測定は十分なガス量で完全噴流状態を形成させたのちガス量を徐々に減少させて行われている。一般にドラフトチューブ付き噴流層の最小噴流化速度 U_{ms} は、定常噴流からガス流量を減少させたとき、噴流が停止し、固定層状態に戻るときのガス速度として定義されている。しかしながら、噴流状態はスパウト部の粒子が輸送された後形成されるので、 U_{ms} は粒子物性、噴流化ガスの物性および層の形状に依存することになる。Barrett ら¹⁸⁾ は、小麦を流動化粒子として用いた実験で、通常の噴流層とドラフトチューブ付き噴流層での最小噴流化速度を測定し、ドラフトチューブ付き噴流層の場合、スパウト部からアニュラス部へのガス浸透流れが無くなるため、最小噴流化速度が小さくなることを示している。実験結果を図14に示す。また、図中には、塔圧損と充填層高の関係も示されており、ドラフトチューブ付き噴流層の場合は、チューブ

図12 塔圧損と入口ガス量の関係

図13 チューブ圧損と入口ガス量の関係

(C : 通常噴流層, D-T : ドラフトチューブ付き噴流層 (ソリッドチューブ, チューブ間距離=0.15m, チューブ径=0.05m, チューブ長=1.3m))

図14 最小噴流化速度および塔圧損に対する通常噴流層とドラフトチューブ付き噴流層との比較

を挿入することにより、スパウトからアニュラスへのガス流れがないために塔圧損が小さくなっていることがわかる。服部ら²⁶⁾ (1981) は、スパウト部の固気接触効率を改善するための側方排気型の装置を用い、石倉ら²³⁾ は円筒型の装置を用いて U_{ms} を測定し、それぞれ U_{ms} は流動粒子の終末速度の 80、70 % のガス速度で与えられるとしている。また、定常噴流からガス流量を減少させたときの圧力損失曲線の極小値を、最小安定噴流化速度 U_{mss} として定義する提案もみられる²⁴⁾。 U_{mss} を過ぎてガス速度を小さくしていくと、粒子ホールドアップが増加しチューブ閉塞へとつながるが、この領域では U_{mss} から U_{ms} までの短区間ながら粒子ホールドアップが高く、良好な固気接触効率が期待できるという特性があり、装置特性を知るためにはこの特性を的確に把握する必要がある。Kim¹⁴⁾ と Law-Kwet-Cheong ら⁵⁾ (1986) は、それぞれ半円筒型でファウンティン部に内筒を取り付けた装置および二次元型、変形二次元型の装置を用い、噴流域から固定層領域までの圧力損失と空塔速度との関係を示しているが、装置形状の複雑さに比例してその挙動も複雑になることが示されている。

Grbavcic ら²⁷⁾ は、液系のドラフトチューブ付き噴流流動層に対して、最小噴流流動化速度、軸方向圧力損失、アニュラス部液速度、粒子循環量などの噴流化特性値の実験値とモデル計算の結果との比較を行っている。Kalwar ら⁸⁾ は、スケールアップの容易さから二次元型のドラフトチューブ付き噴流層を用いて、その圧力損失曲線や最小噴流化速度およびその実験式を得ている。

1.2 アニュラス部ガス流量

ドラフトチューブ付き噴流層におけるバイパス流量、すなわちアニュラス部ガス流量は、流動粒子や流動化ガスの滞留時間や粒子循環量に大きく影響を及ぼすので、その特性を把握するために多くの研究者により検討がなされている^{8, 9, 18, 23, 28-31)}。通常、アニュラス部ガス流量は、アニュラス部の粒子下降速度がガス速に比べて小さいことから固定層を仮定して、アニュラス部の圧力損失からガス流速を予測する手法が取られている^{23, 28, 30)}。しかし、粒子下降速度が大きい場合、その分を補正する必要がある、さらにアニュラス部が流動化する場合にはこの方法は使えない。アニュラス部ガス流量は塔とチューブの塔径比、チューブと入口ノズル径の比、チューブ間距離、使用粒子、充填量、入口ガス流量等の設計因子や操作因子に大きく影響される。図15は、前出の Barrett ら¹⁸⁾ によるアニ

(C : 通常噴流層, $Q_T = 0.05 \text{ m}^3/\text{s}$; Cp : 合成チューブ (0.3m porous + 0.5m solid), $Q_T = 0.03$; S : ソリッドチューブ, P : 多孔チューブ, M : モデル, $Q_T = 0.035$)

図15 層高とアニュラス部ガス流量との関係

ュラス部流量比と充填層高の関係を示したものである。通常のチューブと多孔質チューブとを比較すると、充填層高が高い領域では、アニュラスからスパウトへのガスの逆流が生じている現象が示唆されている。したがって、多孔チューブの場合、スパウトからアニュラスへのガス浸透流れを注意深く考慮する必要がある⁸⁾。多孔質チューブは、ガスの滞留時間を増すためにチューブ間距離を小さくする場合においても、処理量を増すために全ガス量を大きくとった場合においても、通常のチューブに比べ有利であるとしている³¹⁾。アニュラス部にエアレーションを行う噴流流動層型の場合、噴流用とエアレーション用の二つのガス流れがあるので、エアレーション用ガスの吹込み量により、層全体の挙動が通常の場合とは全く異なり複雑になる²⁸⁾。スパウトからアニュラスへのバイパスガス量の検討には、トレーサ法が有効となる。Claflin ら³¹⁾ は、塔径 0.3m の噴流層で、円筒と半円筒、更に、多孔質のドラフトチューブと通常のチューブを取り付けて幅広く噴流化実験を行っている。図16、17は Claflin らが、半円筒で多孔質チューブを用い、正面に配列された圧力タップからの圧損データから得られた、アニュラスガス流れの速度ベクトル図と高さ方向のアニュラス部流量比率である。多孔質チューブの場合、軸方向圧力損失分布のために、アニュラス部下部では速度ベクトルがチューブ方向を向いており、この付近に流量の最大値があることが示されている。さらに、スパウト部に垂直方向希薄輸送層、アニュラス部に移動層を仮定したモデル計算からもこの特性の存在が示されている。Matthew ら³²⁾ は、ドラフトチューブ付き噴流層の環状部内の流動特性を記述するのに、二次元の Darcy & Ergun モデルを用いて、液系の噴流に対し、圧力と流れ関数の実験データと推算値

(多孔チューブ, 1/2bed, $Q_T = 0.024 \text{ m}^3/\text{s}$, $L_D = 0.8 \text{ m}$, $H_D = 0.15$, $H_m = 0.8$)

図16 各層高におけるアニュラス部のガス速度ベクトル

(多孔チューブ, $L_D = 0.8 \text{ m}$, $H_D = 0.15$, $H_m = 0.8$, $D_T = 0.058$)

図17 アニュラス部流量比に及ぼす層高と全ガス流量の影響

は良く一致することを示している。図18に石倉ら²³⁾の、入口ガス流量とアニュラスガス流量比との関係の測定結果を示す。アニュラス部ガス流量比は、入口ガス速度の減少とともに減少するが、アニュラス部ガス流速は、入口ガス速度の減少とともに減少し、極小値をとったのち最小噴流化速度まで増加する^{23, 24)}。また、アニュラス部ガス流量は、チューブ間距離、充填粒子径を増すと増加し、粒子充填量、チューブ径を増すと減少する。アニュラスガス流量に及ぼす層形状や入口流量の影響を更に明確にするためには、流体力学を基にした環状部へのバイパス流れの研究が必要となる。

1.3 粒子循環量

ドラフトチューブ付き噴流層を反応装置として利用

図18 アニュラス部流量比と入口ガス流量との関係

図19 粒子循環量と入口ガス速度との関係に及ぼす補助ガス流量の影響

する場合、粒子循環量を確実に制御しなければ高効率・高収率は望めない。ドラフトチューブ付き噴流層では、アニュラスからエントレインメントゾーンに供給された粒子はすべてスパウト部、すなわちチューブ内を輸送されるので、粒子循環量はアニュラス部からの粒子供給量と等しい。また、アニュラス部の粒子挙動はエントレインメントゾーンでのガスの挙動に大きく影響される。粒子循環量を簡単に測定する方法としては、粒子速度、そこでの粒子ホールドアップ、粒子密度から計算により求める方法^{7, 29)}、循環粒子群の衝撃力から求める方法²⁸⁾、粒子の流路を瞬間的に変更し、一定時間サンプリングの後秤量して求める方法²⁵⁾などが考えられる。粒子循環量に影響を与える重要な因子としては、チューブ間距離、入口ガス量、粒子充填量などが考えられる。Muirら³³⁾は、半円筒型の実験結果を基に、ドラフトチューブ付き噴流層およびドラフトチューブ付き噴流流動層の粒子循環量についての

詳細な検討結果を示している。粒子循環量の測定結果の一例を図19に示す。図より、入口ガス量の増加に対し、粒子循環量は極大値をとった後減少することが示されている。これは、入口ガス量を増すと、アニュラスガス流量も増加し、アニュラスからの粒子排出が制御されるためと考えられ、石倉ら²³⁾、伊地知ら²⁸⁾による論文でも同様の結果が得られている。

Kalwarら⁷⁾(1993)は、二次元型のドラフトチューブ付き噴流層の場合、円筒型の場合に比べて層底部の形状の影響を受けやすいとして、形状の影響を検討するために噴流化実験を行っている。その結果、層底部の開角 θ が粒子循環時間に影響を与えることを示し、また、粒子循環量の推算式を次元解析から得ている。

また、Milneら⁹⁾(1992)は、アニュラス部を通るガスはスパウト部を流れるガスより滞留時間が大きく、これが操作条件やプロセスの効率に大きく影響を与えるとして、ドラフトチューブにオリフィスを設けてアニュラス部に補助ガスを送入する方式(ICFB)を用いて、ガスバイパスの除去を試みている。その結果として、ICFBは入口ガスとは独立に補助ガスにより粒子循環量を設定でき、ガスの滞留時間を正確に制御できることを示している。

高温の場合については、粒子循環量は基礎的な層および粒子・流体系の物理的パラメータを基にした既存の相関式では推算できないことが予想される。さらに、噴流層における粒子循環量の形状や、層の物理的パラメータの依存性を明らかにするためには、鉛直方向ガスジェットによる粒子同伴のメカニズムを解明する必要があると思われる。

1.4 チューブ内粒子のホールドアップ

Khoeら³⁴⁾は、ドラフトチューブ付き噴流層装置を小麦の乾燥に利用し、チューブ内の粒子ホールドアップが乾燥性能に大きく影響を与えることを指摘している。また、チューブの閉塞を避けながら固気接触効率を高めるため、ホールドアップの高い状態で安定に操作するためには、チューブ内粒子の挙動を把握しておく必要がある。チューブ内の粒子は、エントレインメントゾーンに取り込まれた時点で、上昇速度ゼロの状態からある速度まで加速され、更にファウンティンで速度ゼロから下向き流れに移行する。以上の区間は非定常区間であるが、安定噴流域でのチューブ内の固気流れは希薄輸送層と考えられている。チューブ内のガス速度を減少させていくとチューブ内粒子ホールドアップは増加し、間歇噴流からチューブ閉塞に至る。装置の複雑さのため、チューブ内粒子ホールドアップの

図20 粒子ホールドアップとチューブ内ガス速度との関係

測定データは少ない。成瀬ら³⁵⁾はCFM層型固気接触装置を提案し、そのチューブ内の粒子ホールドアップをチューブ内粒子平均速度から算出している。通常は、粒子速度と粒子循環量から推算される^{23, 36)}。伊地知ら²⁸⁾(1990)は流動粒子として研磨用の磁性鉄粉を用い、チューブ内の粒子ホールドアップをインダクタンス法を用いて測定している。測定結果の一例を図20に示す。チューブ内に粒子下降流が無く、粒子ホールドアップがチューブ内のガス速度にほとんど影響されない希薄輸送層状態と、粒子下降流が存在し、粒子ホールドアップがチューブ内ガス速度に大きく影響される濃厚輸送層状態があることを示している。さらに、粒子ホールドアップは、チューブ間距離、粒子充填量を増すとともに増加し、入口ガス速度を増すと減少することを示している。

1.5 滞留時間

通常の噴流層は、アニュラス部のあらゆる位置からスパウト内へ粒子が同伴されるため、循環粒子の滞留時間が一定でなく、本質的に連続操作には使い難いが、ドラフトチューブ付き噴流層の場合は、塔底部のエントレインメントゾーン以外に粒子同伴区間はなく、また、栓流が仮定できるので、連続操作に使用可能と考えられる。滞留時間には、アニュラス部に対して粒子とガス、そして、スパウト部に対して粒子とガスの4つが考えられる。Stockerら²⁰⁾は、ドラフトチューブ付き噴流層反応装置を、スパウト部、アニュラス部、ファウンティン部に分けてモデル化している。シミュレーションの結果として、チューブ内のガスの滞留時間が30ms以下で、高速熱分解に適した反応装置であることを示している。また、固気接触効率を高めるために、スパウト部を出るガスをアニュラス部に戻すような装置でのアニュラス部のガスと粒子の

表2 入口ガス量および設計因子の増加に対する操作因子の傾向

設計因子	操作因子	アニュラス部 ガス流量	粒子循環量	チューブ内粒子 ホールドアップ	ガス滞留時間 チューブ内 アニュラス部
入口ガス量	増加	減少後増加傾向	増加後減少	減少傾向	減少傾向 減少傾向
チューブ間距離	増加	増加傾向	増加傾向	増加傾向	増加傾向 減少傾向
流動粒子径	増加	増加傾向	増加傾向	減少傾向	増加傾向 減少傾向
粒子充填量	増加	減少傾向	増加傾向	増加傾向	減少傾向 増加傾向

滞留時間を測定している¹⁴⁾。ガスも粒子も流線が複雑になり、通常のドラフトチューブ付き噴流層に比べて滞留時間は長かつ分布は広がっている。Claflin^{30, 31)}は、エントレインメント部のスパウト径はチューブ径と等しいと仮定して、スパウト部に空気輸送モデル、アニュラス部に充填移動層を仮定したモデル計算を行い、各部の滞留時間を求めている。モデル計算の結果として、ドラフトチューブ付き噴流層は、粒子挙動の制御と高い固気接触効率を必要とする操作に適しているとしている。

噴流挙動のまとめとして、入口ガス量、チューブ間距離などに及ぼす設計因子を増加した場合の傾向を表に纏めると表2の如くなるようである。

2. 応用に関する研究

本章においては、ドラフトチューブ付き噴流層の各種プロセスへの応用を、最近の研究についてまとめる。表3にそれらの研究の一覧を示す。表に示すように、大きく非反応と反応に分類できる。非反応には乾燥、コーティング、混合及び輸送があり、反応には石炭ガス化・燃焼、都市ゴミ燃焼、炭化水素熱分解及び二酸化硫黄の酸化があった。以下、個別に解説する。

表3中のガス線速度について少々補足を行う。第一に、各々のガス線速度の値は標準状態で値である。乾燥(100~150℃)やコールドモデル実験(室温)では、実際の線速度とほとんど変わらない。一方、石炭ガス化・燃焼、都市ゴミ燃焼、炭化水素の熱分解及び二酸化硫黄の酸化では、操作温度は大ざっぱに言って1000Kであるので、表中の値を3倍すれば実際の線速度に近い値が得られる。第二に、論文によってはドラフトチューブと環状部へのガスの分離比が記載されていないものがあったので、それらについては、丁度

半分づつに別れると仮定して、各部の線速度を算出した。

2.1 非反応

2.1.1 乾燥

Mathurらが1955年に発表した最初の噴流層に関する論文¹⁾、およびBuchananらが1965年に発表した最初のドラフトチューブ付き噴流層に関する論文²²⁾のいずれにおいても、すでに乾燥への応用についての記述がある。このように乾燥は最も古くから噴流層の応用分野であり続けてきた結果、乾燥に関しては一分野では最高の6つの報告^{5, 19, 34, 37~39)}がなされている。乾燥に関するこれらの論文が、乾燥すべき物質として特定しているものは、熱変性を受けやすい物質、大別すると小麦をはじめとする穀類^{5, 19, 34, 37, 39)}及び食品懸濁液³⁸⁾である。

第一の含湿穀類の乾燥は、穀類粒子を空気により循環させつつ乾燥させるというものである。100から160℃程度の加熱空気を装置底部から送り込んで、含水率20から30%の穀類粒子をドラフトチューブ付き噴流層内を循環させ、含水率10%程度まで減らすのが通常の操作のようである。Colleyら³⁷⁾は、対流加熱と高周波加熱との比較を行った。Law-Kwet-Cheongら⁵⁾は、環状部層高及びチューブ間距離が圧力損失、循環開始ガス速度及び固体循環速度に及ぼす影響を検討した。Claflinら¹⁹⁾は、ドラフトチューブの有無により流動特性及び乾燥性能がどのように変わるかを検討した。Khoeら³⁴⁾は、主としてチューブ間距離を変えて粉穀つき米粒の乾燥実験を行い、乾燥操作中の熱及び物質移動について考察した。米粒は、ドラフトチューブ内を上昇中にバルクガスから熱を外表面近傍に受け取り、環状部を下降する間に自己の内部の温度及び含水率分布を均一化する。したがって、通

表3 ドラフトチューブ付き噴流層の応用に関する研究の一覧表

分類	研究者	内 容	文 献	装置主要寸法 (m)			ガス線速 (m/s) at STP		備 考
				塔 径	ドラフト チューブ径	チューブ 間距離	環 状 部	ドラフト チューブ	
非 反 応	M. I. Colley <i>et al.</i> 1993	小麦の乾燥, ラジオ波/対流加熱の併用	37	0.3	0.1	記載 なし	0.3	8	
	D. S. Povrenovic <i>et al.</i> , 1991	食品懸濁液の乾燥 (循環媒体粒子へのスプレードライ)	38	0.25	0.06	記載 なし	0.4-0.7	6-11	
	L. L-K-Cheong <i>et al.</i> , 1986	穀類の乾燥	5	0.2 × 0.05	(.035- 0.065) × 0.05	0.05- 0.1	1-2	4-8	
	J. K. Claflin <i>et al.</i> 1984	小麦の乾燥, 気固熱移動	19	0.3	0.05- 0.08	0.1, 0.15, 0.2	0.2-0.4	5-13	
	G. K. Khoe <i>et al.</i> 1983	初穀つき米粒の乾燥, 性能評価	34	0.29	0.054	0.02, 0.08, 0.1, 0.12, 0.15, 0.2	0.06-0.1	7-12	
	J. Nemeth <i>et al.</i> 1983	噴流層乾燥機のスケールアップ と改良	39	記載 なし	記載 なし	記載なし	記載なし	記載なし	
	H. Ichikawa <i>et al.</i> , 1994	アクリルラテックスによるラク トースのコーティング	40	記載 なし	記載 なし	記載なし	記載なし	記載なし	
	D. L. Shuck <i>et al.</i> 1982	核燃料粉の混合 (特許)	8	0.064 × 1.1*	0.05 × 0.05	0.1*	0.02	3	*図より 推定
	T. S. Pugsley <i>et al.</i> , 1996	粉体粒子供給装置	41	0.2	0.5	0.01のオリ フィス8個	0.02- 0.06	3-6	
	M. C. Ferreira <i>et al.</i> , 1992	固体供給システムとしての性能 評価	25	記載 なし	0.055	0.027, 0.04, 0.05 1, 0.06	0.01- 0.03	1-4	
反 応	幡手ら 1996	石炭水蒸気ガス化	42	0.15	0.011	0.003, 0.006	0.02	6, 8	ホット
	幡手ら 1994	石炭水蒸気ガス化	43	0.15	0.011	0.003, 0.007, 0.014	0.01-0.3	10-80	コールド
	Y. Hatate <i>et al.</i> 1992	石炭水蒸気ガス化	44	0.15	0.011	0.003	0.02	9	ホット
	成瀬ら 1989	石炭燃焼	16	0.036	0.2	クリアランス 無し	下部入り 口無し	0.3-	ホット
	R. K. Konduri <i>et al.</i> , 1995	都市ゴミ, 下水スラッジの焼却 に関する基礎研究	45	0.1	0.016	0.073	0.2	7-9	ホット
	R. K. Stocker <i>et al.</i> , 1989	プロパン熱分解	46	0.2	0.04	記載なし	0.2	5	ホット
	J. H. Eng <i>et al.</i> 1989	プロパン熱分解 (すべてシミュ レーションだが, ホットのデー タ引用)	21	0.014	0.025	0.067	記載なし	記載なし	ベンチ
	SO ₂ 酸化	二酸化硫黄の三酸化硫黄への接 触酸化	48	0.146	0.102	0.01	微小	1	コールド
	W. J. Ryan <i>et al.</i> 1969			0.102	0.076	0.01	微小	0.4	ホット

図21 ドラフトチューブ付き噴流層実験装置図

常の噴流層より高い環状部層高をとることができるドラフトチューブ付き噴流層は、このような熱に敏感な含水物質の乾燥に適していると結論づけられた。図21に彼らが使用した実験装置を、図22に典型的な実験結果を示す。図22には、被乾燥試料の含水率と装置各部の温度がプロセス時間に対しプロットされている。最初0.3であった含水率は直線的に0.1まで減少しており、恒率乾燥であることが明瞭に示されている。装置各部の温度は、入口空気160℃が、ドラフトチューブを上に行った位置ほど20-30℃刻みで減少している。Nemethら³⁹⁾は、1983年に乾燥機としての噴流層のスケールアップと改良について報告した。その中に、外筒の半分程度の内筒を備えた噴流層型乾燥装置が“A novel type spouted bed dryer equipped with an inner cylinder”という表現で紹介されている。高含水率物質の乾燥をはじめとする大量の空気を送る必要がある場合にとられた改良策である。通常のドラフトチューブより少し径比（外筒に対する）が大きく、ドラフトチューブという名も冠されていないが、その特性からしてドラフトチューブ付き噴流層といってよいと思われる。ドラフトチューブ付き噴流層の乾燥装置への応用に関しては、見出せた限りこれが最も古い報告である。最初のドラフトチューブ付き噴流層に関する報告は、冒頭で触れたとおり、1965年のBuchananら²²⁾によるものである。

乾燥の原動力は大部分が加熱空気から供給される熱であるが、上述のように1件だけ高周波加熱を用いた報告³⁷⁾が見うけられる。加熱空気による乾燥は、空気から穀類外表面への熱移動と、穀類外表面からバルクへの水の移動との釣り合いにより生じており、通常の恒率乾燥もしくは減率乾燥で記述されるはずである。すなわち、乾燥速度は加熱空気から穀類粒子外表

図22 (a) 各測定点の位置: T_1 — T_5 , チューブ内の空気温度; T_∞ , T_0 , 環状部の空気温度; T_0 , T_∞ , 環状部の穀類粒子の温度; $X_\bullet$, $X_\circ$, 穀類粒子の含水率
(b) 穀類含水率と装置各部の温度の経時変化

面への熱移動、及び粒子内の熱移動に律されることになる。一方、加熱に高周波を用いると、被加熱物質に加わる単位時間あたりの熱量は高周波の出力そのものなので、熱移動の制約からは逃れられるという利点を持つ。当然、粒子外表面近傍に乾燥層ができて本来なら減率乾燥になる領域でも、恒率乾燥的な特性を示すことになる。ただし、高周波加熱は、高周波から被加熱物質へのエネルギー移行の特徴を知悉した上で行われるべきであろう。例えば、高周波用電極の形状・位置が挙げられる。先に紹介した論文では、電極は、ドラフトチューブと外筒（アース側）とに設置されている。この場合、環状部の移動層に高周波加熱が行われることになる。局所的エネルギー入力半径の二乗に反比例するので、例えばドラフトチューブが10mm、外筒が100mmなら、ドラフトチューブのすぐ外を移動中の粒子は、外筒のすぐ内を移動する粒子の100倍もの熱エネルギーを受けとることになる。ドラフトチューブのすぐ外側の粒子が受け取るエネルギーの上限を考慮することや、スパウト部における粒子の再分配が十分になるよう考慮することが求められるのは言うまでもない。また、高周波加熱は余分な整

備投資を必要とすることも事実であり、それを克服できるような場合にのみ適用可能であろう。

第二に食品懸濁液の乾燥に関する Povrenovic らの 1991 年に発表された研究³⁸⁾ においては、媒体であるポリプロピレン粒子を空気循環させておき、食品懸濁液をドラフトチューブ直下のノズルからスプレーする操作を想定して実験が行なわれた。懸濁液は、ポリプロピレン粒子表面に付着した後、ドラフトチューブ内を上昇しながら乾燥する。こうして乾燥した食品懸濁液由来の表面付着物は、ポリプロピレン粒子がドラフトチューブ上部の板にたたきつけられると同時に剥がれ落ちる。ポリプロピレン粒子は環状部へ戻り、剥がれ落ちた乾燥食品粉末は乾燥器外に去った後サイクロンで捕集される。実際の実験では、基礎的検討として、食品懸濁液のかわりに蒸留水が用いられた。

2.1.2 その他（コーティング、混合、粒子供給）

乾燥への応用以外では、コーティング、混合及び粒子供給への応用が報告されている。

Ichikawa ら⁴⁰⁾ は、1994 年にドラフトチューブ付き噴流層のコーティングへの応用を報告した。内容は、乳糖をアクリルラテックスによりコーティング後マイクロカプセル化するものであり、徐放性薬剤調製への応用である。その研究で使用されたドラフトチューブ付き噴流層は、実験室規模（粒子充填量約 300g）の既製品であり、スプレーノズルからラテックスを噴射し、循環している乳糖粒子をコーティングするものである。その後、加熱キュアによりカプセル化している。

Shuck ら⁸⁾ は、1982 年にドラフトチューブ付き噴流層の混合への応用について特許を出願した。この特許では、酸化ウランウム粉に酸化プルトニウム粉を、その含有量が 2~6wt % となるように、凝集を防ぎつつ混合するためには、ドラフトチューブ付き噴流層が有効であるとクレームされている。粒子の大きさは 10 μ m 以下で、噴流層が扱う物質としては異例に細かいものである。通常 1mm 以下の粒子は、流動層で扱うことが一般的であるが、10 μ m はその下限を下回っており、噴流層が有効な方法として再浮上したものと考えられる。装置の特徴を二点紹介する。第一は、厚み 2inch、横幅 40inch 程度の平べったい形をしているということである。一種の二次元噴流層であるが、内部観察のためではなく、核燃料が臨界点を越えないための配慮である。第二は、ドラフトチューブに内部流れに直交する方向につけたノズルからも、空気をドラフトチューブ内に吹きこんでいることである。これ

は、凝集防止のためにとられた方策である。

Ferreira ら²⁵⁾ は、1992 年に一種のドラフトチューブ付き噴流層装置を固体粒子供給に応用しようとし、固体粒子循環量を制御するための基礎的検討を行った。彼らは、チューブ間距離と供給ガス速度が固体粒子循環量に及ぼす影響を測定し、内径 55mm のドラフトチューブを用いた場合、2.8mm のガラスビーズが 0.01 から 0.6kg/s の範囲内で自由に制御できることを報告した。小径粒子（200 μ m の石英砂）に関する同様の報告が 1996 年に Pugsley ら⁴¹⁾ によりなされた。

2.2 反 応

2.2.1 石炭ガス化・燃焼および都市ゴミ燃焼

石炭ガス化^{42~44)}・燃焼⁴⁵⁾、都市ゴミ燃焼⁴⁵⁾に関する応用においては、石炭粒子もしくは都市ゴミが装置下部から導入される空気／燃料混合ガスにより循環させられ、その間ガス化や酸化を受け、反応ガス及び排ガスが装置外へ排出されるというものである。熱媒体として砂⁴⁵⁾やセラミック粒子^{42~44)}が用いられた。

筆者ら^{42~44)} は、ここ 10 年来ドラフトチューブ付き噴流層による、石炭のガス化プロセスに関する実験的検討を行ってきた。石炭のガス化は、従来、移動層、噴流流動層やドラフトチューブが無い噴流層によって実施されてきた。筆者らは、ドラフトチューブ付き噴流層が石炭水蒸気ガス化に適した装置上の特性を持つと予測し、コールドモデル実験を経て最近のホットモデル実験でこれを実証した。コールドモデル装置（アクリル製）を図 23 に、ホットモデル装置（ステンレス製）を図 24 に、実験結果の一例を図 25 に示した。このガス化装置においては、ドラフトチューブは燃焼ガス燃焼ゾーンで、環状部は水蒸気による石炭ガス化ゾーンとなる。ドラフトチューブを付けたことにより、ドラフトチューブ環状部間のガス・固体の混合を防ぐことができた。また、循環熱媒体として耐熱セラミックビーズを用いることにより、ドラフトチューブ内で発生する熱エネルギーを効率良く環状部に伝えることができた。図 25 は、最近のホットモデル実験による生成ガスの組成である。水素を 50 % 以上含むガスが生成したことがわかる。

成瀬ら¹⁶⁾ は、1989 年に高効率石炭燃焼装置として、高速流動層（石炭部分燃焼）と移動層（チャー燃焼）とを組み合わせた装置を提案した。

Konduri ら⁴⁵⁾ は、1995 年に都市ゴミ、下水スラッジ用焼却炉に関する基礎的検討を報告した。プロパン内部燃焼により加熱が行われた装置内に 1.85mm の砂

図23 石炭水蒸気ガス化のためのコールドモデル実験装置（アクリル製の図）

図24 石炭水蒸気ガス化ホットモデル実験装置図

粒子を循環させ、環状部の滞留時間（底部形状、ドラフトチューブの有無、環状部層高により制御）が燃料利用効率や一酸化炭素残存率をはじめとする種々の効率に及ぼす影響を検討した。ゴミやスラッジの模擬物は使用されなかった。従来、焼却炉は流動層型が一般的であり、それに関する基礎的検討も多く報告されている。しかしながら、噴流層に関する報告はそう多くない。特に、ドラフトチューブ付き噴流層による焼却炉の基礎研究に関しては Konduri らの報告が唯一見出せたものである。噴流層の流動層に対する優位性は、 NO_x のコントロールと燃料選択に巾があることである。

図25 石炭水蒸気ガス化の実験結果（環状部出口ガスの組成）

図26 パイロットスケールのプロパン熱分解水蒸気噴流層装置図

2. 2. 2 炭化水素の熱分解

前節の石炭のガス化・燃焼においては、固体の石炭粒子が装置内を循環もしくは通過する間に酸化剤ガス（酸素）やガス化剤ガス（水蒸気）と接触し、反応するものである。これらの場合、粒子表面での気固反応速度が比較的遅いため、ガス化の場合反応の場は環状部であり、燃焼の場合反応が終了するまで石炭粒子が循環し続けるというものである。一方、低級炭化水素の熱分解は比較的早く、100ミリ秒オーダーの滞留時間で充分である。そこで、固体触媒粒子が装置内を循環し、反応ガスはドラフトチューブ内を高速でただ一度通過するというプロセスが構築^{21, 46)}された。

Stocker ら⁴⁶⁾は、1989年にドラフトチューブ付き噴流層による、プロパンの高速熱分解を報告した。ジャケットヒーターで所定温度に保たれた装置内（図26）

図27 パイロットスケール装置によるプロパン熱分解
実験結果（生成物の組成）とシミュレーション
との比較

で、直径1mmの石英砂が水蒸気により循環している中、プロパンが反応原料として送り込まれた。層温度を変えて3条件下（720, 790, 880℃）で実験が実施された。図27にその結果を示すように、反応温度880℃で、水素、メタン及びエタンが高収率で得られた。このことから、ドラフトチューブ付き噴流層は、高速気相反応を始めとする滞留時間が制限的な因子となるような応用に、適していることが実証されたと言える。Eng ら²¹⁾ が1989年に発表した論文も、上述のものと同じくプロパンの高速熱分解をテーマにしたものである。内容は主としてシミュレーションであり、データはすべて1987年に発表された Stocker の学位論文⁴⁷⁾ からのものである

2. 2. 3 二酸化硫黄の接触酸化

Ryan ら⁴⁸⁾ は、1969年にドラフトチューブ付き噴流層による二酸化硫黄の三酸化硫黄への接触酸化を報告した。送入ガスが反応原料であり且つワンパスで装置内を通り抜けるという点では、2. 2. 2項の炭化水素の熱分解と同様の操作であるが、Ryan らがドラフトチューブ付き噴流層を適用するに至った理由は、炭化水素の熱分解の場合とは全く異なっている。従来、

二酸化硫黄の酸化は固定層で行われてきたが、固定層では、圧損の観点から粒子径や流速に制限があり、それを軽減できる流動層ではバックミキシングという問題が生じる。そこで、彼らはドラフトチューブ付き噴流層の適用を試み、100μm程度の酸化チタン触媒循環下で二酸化硫黄の三酸化硫黄への酸化を行った。475℃で最も大きな転化率50%が得られた。この温度下での固定層での反応成績はほとんど平衡転化率95%であり、Ryan らの低転化率は滞留時間の不足によるものと考えられる。

おわりに

ドラフトチューブ付き噴流層に関する最近の研究について調査し、流動・伝熱特性及び応用例についてその結果をまとめてみた。本文中何度も述べたように、従来型の噴流層を「ドラフトチューブ付き」とすることで、噴流層と流動層のもつ不規則な混合流れが規則性（均一性）を持つ流れに変えられたという点で、全く異なる装置になったと考えても良いと思われる。しかしながら、ドラフトチューブ付き噴流層の応用技術は、主として噴流層の延長や改善という形で発展してきたので、噴流層→ドラフトチューブ付き噴流層という発想からのものが多い。その中では、我々が現在開発中の石炭ガス化装置のようにプロセスを実現するために広範な反応装置群から、最も反応効率を上げるための装置という観点から、ドラフトチューブ付き反応器を選択したのは特異的といえるものである。

ドラフトチューブ付き噴流層装置はガスや粒子群の均一的な流れが実現でき、しかもそれらが装置上からも操作条件からも、ある程度制御できる（この方面への今後の研究が待たれているのが現状であるが）という二つの大きな特長を持っており、それが決定的に重要な多くのプロセスにとっては、極めて有力な装置としてもう少し注目されて良いと思われる。

Nomenclature

Ar : アルキメデス数	(-)	h : 伝熱係数	(W/(m ² ・℃))
C_{DK} : ガスの熱容量	(J/(kg・℃))	H : 静止層高	(m)
C_{DS} : 粒子の熱容量	(J/(kg・℃))	H_0 : チューブ間距離	(mm)
D_C : 塔径	(m)	K : 熱損失係数	(W/℃)
D_n : 入口ノズル径	(m)	L_c : 塔高さ	(m)
D_p : 平均粒子径	(μm)	L_T : ドラフトチューブ長さ	(m)
D_T : ドラフトチューブ径	(m)	Nu : ヌッセルト数	(-)
g : 重力加速度	(m/s ²)	m : 空気の質量速度	(kg/s)
G_s : 粒子循環量	(kg/(m ² ・s))	M : 粒子充填量	(kg)

ΔP_D : チューブ内圧力損失	(Pa)	U : 入口ガス空塔速度	(m/s)
ΔP_S : ドラフトチューブ付き噴流層の圧力損失	(Pa)	U_{ms} : 最小噴流化速度	(m/s)
Q_f : 補助ガス流量	(m ³ /s)	U_{mss} : 最小安定噴流化速度	(m/s)
Q_T : 入口ガス流量	(m ³ /s)	Z : チューブ高さ	(m)
Q_A : アニュラス部ガス流量または流量パーセント	(m ³ /s, %)	β : 多孔質チューブの開口率	(%)
T : 温度	(°C)	γ : 熱伝導率	(W/(m · °C))
t : プロセス時間	(s)	ε : 空隙率	(-)
T_a : 外界の温度	(°C)	η : 接触効率	(-)
T_b : 層温度	(°C)	θ : 円錐部開角	(deg)
T_c : ガス出口温度	(°C)	μ_f : ガス粘度	(Pa · s)
T_i : ガス入口温度	(°C)	ρ_f : ガス密度	(kg/m ³)
		ρ_D : 粒子密度	(kg/m ³)

References

- Mathur, K. B. and P. E. Gishler : *AIChE J.*, **1**, 157-164 (1955)
- Mathur, K. B. and N. Epstein : "Spouted Beds," Academic Press, New York (1974)
- Whiting, K. J. and D. Geldart : *Chem. Eng. Sci.*, **35**, 1499-1501 (1980)
- Mujumdar, A. S. : "Drying '84," Ed. by Mujumdar A. S. and S. Arun, p. 151-157 (1984)
- Law-Kwet-Cheong, L., K. Malhotra and A. S. Mujumdar : *Powder Technol.*, **46**, 141-148 (1986)
- Kalwar, M. I., G. S. V. Raghavan and A. S. Mujumdar : *Can. J. Chem. Eng.*, **70**, 887-894 (1992)
- Kalwar, M. I. and G. S. V. Raghavan : *Powder Technol.*, **77**, 233-242 (1993)
- Shuck, D. L. and I. E. Kundsens : United States Patent 4, 577, 972 (1986)
- Milne, B. J., F. Berruti, L. A. Behie, D. Bruijn and J. W. Theo : *Can. J. Chem. Eng.*, **70**, 910-915 (1992)
- Clafflin, J. K. and A. G. Fane : *AIChE, Symp. Ser.*, **80**, 17-23 (1984)
- Takeda, K. and H. Hattori : *Kagaku Kagaku Ronbunshu*, **1**, 149-154 (1975)
- Hattori, H. and K. Takeda : *J. Chem. Eng. Japan*, **11**, 125-129 (1978)
- Hattori, H., A. Kobayashi, I. Aiba and T. Koda : *J. Chem. Eng. Japan*, **17**, 102-103 (1984)
- Kim, S. J. : *Korean J. Chem. Eng.*, **7**, 74-80 (1990)
- Hattori, H. and T. Nagai : *J. Chem. Eng. Japan*, **29**, 484-487 (1996)
- Naruse, I., H. Matsuda and M. Hasatani : *Kagaku Kagaku Ronbunshu*, **15**, 105-112 (1989)
- Freire, J. T., L. A. P. Freitas and A. C. Pinhati : Exp. Heat Transfer, Fluid Mech. Thermodyn. 1993, Proc. World Conf., 3rd, 2, 1583-1587 (1993)
- Barrett, N., J. Clafflin, A. G. Fane and R. A. Mitchell : CHEMECA '83, 531-538 (1983)
- Clafflin, J. K. and A. G. Fane : Drying '84, 137-141 (1984)
- Stocker, R. K., J. H. Eng and L. A. Behie : *Can. J. Chem. Eng.*, **68**, 302-311 (1990)
- Eng, J. H., W. Y. Svrcek and L. A. Behie : *Ind. Eng. Chem., Res.*, **28**, 1778-1785 (1989)
- Buchanan, R. H. and B. Wilson : *Mech. & Chem. Eng. Trans.*, **1**, 117-124 (1965)
- Ishikura, T. and H. Okada : *Fukuoka Daigaku Kagaku Shuho*, **52**, 133-142 (1994)
- Ijichi, K., Y. Tanaka and K. Yoshida : *Kagaku Kagaku Ronbunshu*, **14**, 566-570 (1988)
- Ferreira, M. C. and J. T. Freire : *Can. J. Chem. Eng.*, **70**, 905-909 (1992)
- Hattori, H., K. Tanaka and K. Takeda : *J. Chem. Eng. Japan*, **14**, 462-466 (1981)
- Grbavcic, Z. B., D. V. Vukovic, S. D. Jovanovic, R. V. Garic, Dz. E. Hadzismajlovic, H. Littman and H. H. Morgan III : *Can. J. Chem. Eng.*, **70**, 895-904 (1992)
- Ijichi, K., Y. Tanaka, Y. Uemura, Y. Hatate and K. Yoshida : *Kagaku Kagaku Ronbunshu*, **16**, 924-930 (1990)
- Yang, W. C. and D. L. Keairns : *Can. J. Chem. Eng.*, **61**, 349-355 (1983)
- Clafflin, J. K. : CHEMECA '82 : Resour. Dev. Eighties, Aust. Chem. Eng. Conf., 10th, p. 115-120 (1982)
- Clafflin, J. K. and A. G. Fane : *Can. J. Chem. Eng.*, **61**, 356-363 (1983)
- Matthew, M. C., M. H. Morgan III and H. Littman : *Can. J. Chem. Eng.*, **66**, 908-918 (1988)
- Muir, J. R., F. Berruti and L. A. Behie : *Chem. Eng. Comm.*, **88**, 153-171 (1990)
- Khoe, G. K. and J. Van Brakel : *Can. J. Chem. Eng.*, **61**, 411-418 (1983)
- Naruse, I., H. Matsuda and M. Hasatani : *Kagaku Kagaku Ronbunshu*, **13**, 671 (1987)
- Ishikura, T., H. Nagashima and M. Ide : *Kagaku Kagaku Ronbunshu*, **22**, 615 (1996)
- Colley, M. I. : *Drying Technol.*, **11**, 355-368 (1993)
- Povrenovic, D. S., Z. B. Grbavcic, Dz. E. Hadzismajlovic, D. V. Vukovic and H. Littman : Drying '91, 7th Meeting, 343-351 (1991)
- Nemeth, J., E. Pallai and E. Aradi : *Can. J. Chem. Eng.*, **61**, 419-425 (1983)
- Ichikawa, H., H. Tokumitsu, K. Jono, T. Fukuda,

- Y. Osako and Y. Fukumori : *Chem. Pharm. Bull.*, **42**, 1308-1314 (1994)
- 41) Pugsley, T. S., B. J. Milne and F. Berruti : *Powder Technol.*, **88**, 123-131 (1996)
- 42) Hatate, Y., H. Mihara, K. Ijichi, T. Yoshimi, S. Arimizu, Y. Uemura and D. F. King : *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **22**, 1180-1184 (1996)
- 43) Hatate, Y., Y. Uemura, S. Tanaka, T. Tokumasu, Y. Tanaka, D. F. King and K. Ijichi : *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **20**, 758-765 (1994)
- 44) Uemura, Y., M. Miyauchi, S. Tanaka, K. Ijichi, Y. Tanaka, D. F. King and Y. Hatate : Prepr. Pap., Am. Chem. Soc., Div. Fuel Chem., **37**, 1972-1976 (1992)
- 45) Konduri, R. K., E. R. Altwicker and M. H. Morgan III : *Can. J. Chem. Eng.*, **73**, 744-754 (1995)
- 46) Stocker, R. K., J. H. Eng, W. Y. Svrcek and L. A. Behie : *AIChE J.*, **35**, 1617-1624 (1989)
- 47) Stocker, R. K. : Ph. D. Thesis, University of Calgary, Calgary, Alberta (1987)
- 48) Ryan, W. J. and U. A. Heinzle : *AMDEL Bull.*, **8**, 1-9 (1969)