

水蒸気蓄積量で評価した粒子付着性と流動化特性に関する研究

城野 祐生^{1*}, 中島 賢治¹, 松山 史憲¹, 藤永 嵩規¹, 田中 泰彦¹, 渡辺 哲也¹, 小野 文慈²

Study on Particle Adhesion and Fluidization Characteristics Evaluated by Amount of Water Vapor Accumulation

Yuuki Johno^{1*}, Kenji Nakashima¹, Fuminori Matsuyama¹, Takanori Fujinaga¹, Yasuhiko Tanaka¹, Tetsuya Watanabe¹ and Bunji Ono²

Received 29 September 2017; Accepted 15 December 2017

The fluidized bed has features such as uniform operation and excellent heat transfer characteristics. However, when the relative humidity of fluidizing gas is high, adhesion occurs on the particle surface. This study examines the influence of adhesion on fluidization, by adjusting the adhesion on the surface of particles by controlling the air relative humidity sent in the fluidized bed systematically. In addition, the amount of water vapor accumulation in the bed was calculated from the relative humidity changes of the gas in the fluidized bed to predict how much adhesion occur in the fluidized bed.

From experimental results, the amount of water vapor accumulation in the fluidized bed was varied depending on measurement conditions. At low relative humidity, the influence of adhesion is small, and at high relative humidity, influence of adhesion on fluidization becomes stronger, causing channeling. It was suggested that it is possible to evaluate the fluidity of powder by the amount of water vapor accumulation.

Keywords: Fluidized bed, Relative humidity, Amount of water vapor accumulation, Adhesion, Minimum fluidization velocity, Pressure loss.

1. 緒 言

流動層は粒子群が上昇する気体または液体の流れによって浮遊、流動化する状態の層である。粒子流体の良好な接触状態が得られ、層内を均一に操作できる、伝熱特性に優れるなどの特徴があり、触媒反応、吸着操作、粒子の乾燥・造粒、廃棄物の処理など、粉体工業のさまざまな分野で利用をされている[1]。流動層操作ではその特徴から良好な流動化状態が不可欠であるが、流動化流体がガスの場合でガス湿度が高い場合には、粒子表面に付着性を生じる[2,3]。この湿度に応じた付着性は流動化に影響をおよぼし、付着性が強い場合には流動化が不良となって目的の操作が行えなくなってしまう恐れがある[4,5]。このため、付着性と粉体の流動化特性の関係を明らかにすることは重要であるといえる。

ガス湿度による付着性と流動化特性の関係についての研究はこれまでも行われているが、流動化するガスの相対湿度に対して流動化特性をまとめたものがほとんどである[2]。ガス湿度における粒子の付着性は、低湿度においては水分子の表面吸着と吸着した水分子の分子間力によって生じ、高湿度では粒子間接触点における毛管凝縮で生じた凝縮液の液架橋力によって生じることが知られている[6,7]。つまり、ガス中の水分子が粒子表面にどれだけ吸着したかによって付着性が変わることになる。これまでの研究では相対湿度に対して測定しているため、その設定湿度において定常状態（吸着に関していうと平衡状態）となったところで測定を行っている場合がほとんどであるが、これらについては粒子表面への吸着量に対して流動化特性をまとめる方が合理的であると考えられる。また、流動層へ流すガスの流量や操作時間によっても付着の状態は変わるはずであるが、これらについても吸着量で整理することが可能であると考えられる。ただし、粒子表面への水分子の吸着量は微小であるため重量変化などで直接測定することは難しい。粒子表面からの脱着速度も高いため流動化操作を止めてサンプリングする間に状態が変わってしまうことになる。以上の理由から、流動化状態において吸着量を推定する方法が望ましいと考えられ、流動層での水蒸気の蓄積量に着目をす

¹ 佐世保工業高等専門学校
(〒 857-1193 佐世保市沖新町 1-1)
National Institute of Technology, Sasebo College
(1-1 Okishin-cho, Sasebo, Nagasaki, Japan)

² 佐賀大学文化教育学部/教育学部
(〒 840-8502 佐賀市本庄町 1)
Faculty of Education, Saga University
(1 Honjo-machi, Saga, Japan)

* Corresponding Author yjohno@sasebo.ac.jp

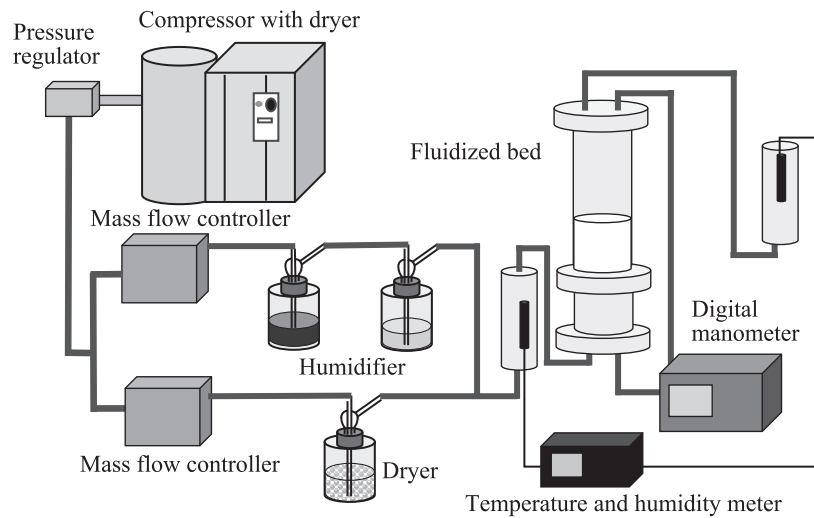


Fig. 1 Experimental apparatus

ることとした。

本研究では、Geldartの粉体分類[8]におけるA粒子を用いた固気流動層において、層内に送るガスの相対湿度を調整して粒子表面に付着性を生じさせ、流動層前後の相対湿度の変化から流動層内の水蒸気蓄積量を算出した。また、湿度と同時に流動化状態における圧力損失や層高などの流動化特性を測定し、水蒸気蓄積による粒子付着性と流動化特性の関係について調査を行ったので報告する。

2. 実験方法

2.1 実験装置

Fig. 1に本研究の実験装置全体図を示す。本研究では流動化ガスとして空気を用いた。加湿器へ流して得られる相対湿度 Rh 90%以上の加湿空気と、乾燥器へ流して得られる Rh 10%以下の乾燥空気を合わせることで Rh 10~90%の湿度の空気に調整できる。流動層へ送る流量は加湿器と乾燥器側の流量の和であり、流量全体に占める加湿器側空気と乾燥器側空気の流量割合を調整することで目的の流量および相対湿度の空気を流した。ドライヤ付きコンプレッサーからの空気を2台のマスフローコントローラー(KOFLOC 3660)にて加湿器側と乾燥器側へ流す。加湿器には加熱槽と水槽を用い、加熱した空気を水槽中でバブリングさせることにより空気湿度を高める。ただし、本実験で流すコンプレッサーからの空気は実験室室温と同じ25°C前後で一定としており、加湿する水槽を25°Cに保持したウォーターバス中に入れていたため、実際には加熱槽で温度をほとんど上げることなく目的の湿度に設定できた。つまりこの加湿器での温度変化はほとんどない。乾燥器には粒状のシリカゲル槽を用いた。加湿器と乾燥器からの空気を合わせて目的の湿度にした空気を流動層へ流す。この流動層の流入前と流出後に温度センサーおよび相対湿度センサーを取り付け、データロガー(GRAPHTEC GL220)を介してPCにて経時データを測定した。湿度センサーは電気容量式で

本実験の温度範囲における相対湿度計測精度は $\pm 3\%$ である。流動層装置には内径75 mm、高さ450 mmの亚克力製円筒装置を用い、底部の分散板には濾過抵抗の大きい濾紙を用いて流動化の偏りが生じないようにした。実験試料にはモデル粒子として平均粒径50 μm の真球形状に近い親水性ガラスビーズ(密度2500 kg/m^3)を用いた。流動層装置中で静止時の層高が100 mmとなる質量675 gに統一して装置へ投入した。圧力損失はデジタルマノメータ(YOKOGAWA MT210)で、粒子の層高は充填塔に取り付けたスケールにて測定した。実験前準備として、粒子は105°Cの乾燥機で1時間乾燥させ、その後デシケーター中で室温にした。装置は空塔にて設定湿度の空気を流して相対湿度計の値が一定となるのを確認し、装置上部より前述の乾燥させた粒子を投入してすぐに測定を開始した。

2.2 水蒸気蓄積量

水蒸気蓄積量は流動層装置前後の温度センサーおよび相対湿度センサーにて測定したデータから算出する。このセンサーで得られるデータは相対湿度であるため、飽和水蒸気圧を求める近似式であるTetensの式[9]および気体の状態方程式を用いて絶対湿度に換算する。このデータに流量を掛け合わせることで流動層への水蒸気の流入速度と流出速度が求まり、それらの収支から水蒸気蓄積速度を算出する。この水蒸気蓄積速度を時間積分することにより水蒸気蓄積量を求めた。

3. 実験結果および考察

3.1 水蒸気蓄積量の算出

流動層装置前後の温度および相対湿度を60分間測定して水蒸気蓄積量を算出した。なお、以後の説明では湿度と表記している場合は相対湿度を表す。Fig. 2に Rh 80%で流した場合の湿度と温度の経時変化を示す。流動層装置に乾燥した粒子を投入してすぐに測定を開始しているため、流動層通過後は急激に湿度が低下し、その後時間とともに上昇していく。温度は流動層前後の差が

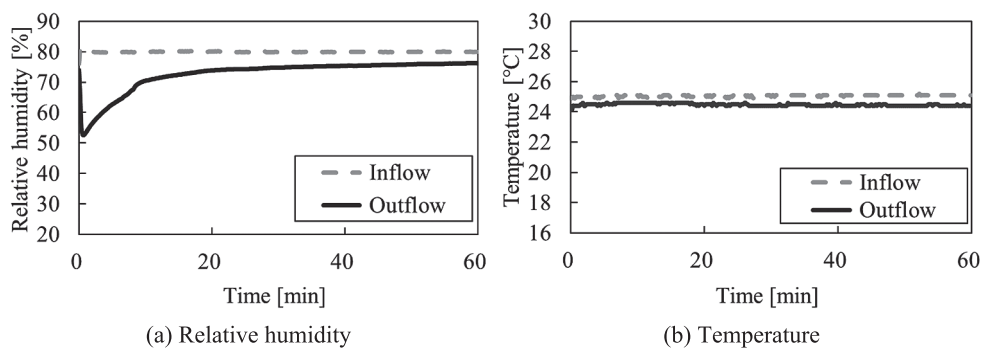


Fig. 2 Changes of the relative humidity and temperature with time lapse (Set relative humidity: 80%, Volume flow rate: 10 L/min)

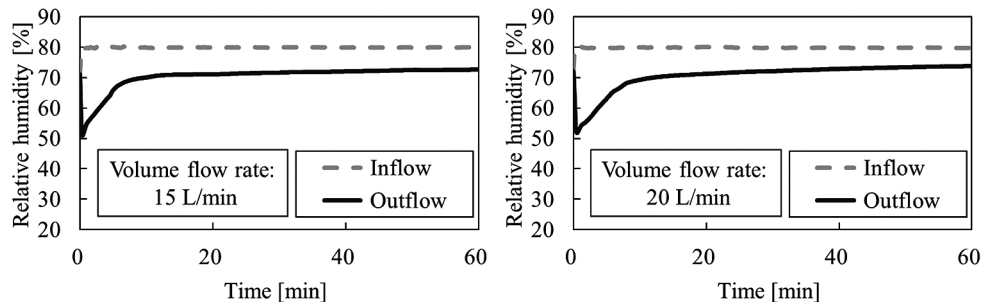


Fig. 3 Changes of the relative humidity with time lapse (Set relative humidity: 80%)

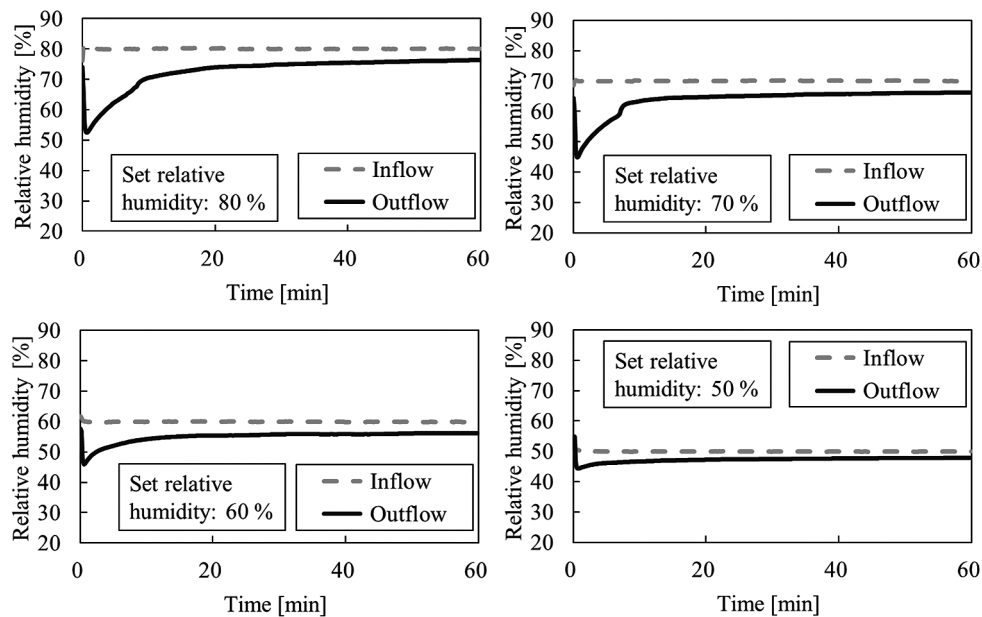


Fig. 4 Changes of the relative humidity with time lapse (Volume flow rate: 10 L/min)

0.5°C 以内でありほぼ一定である。Fig. 3 に流量に対する湿度の経時変化を示す。Fig. 2 の流量 10 L/min の結果もあわせて比較すると、20 分以後の湿度が一定となっている部分での前後の差に多少の違いがあるものの、初期時間の湿度の低下の状態やグラフの形状にはそれほど大きな違いはないといえる。Fig. 4 に設定湿度に対する流動層前後の湿度の経時変化を示す。設定湿度により初期時間の湿度低下の状態に違いがあり、設定湿度が高いほど初期時間における流動層通過後の湿度が大きく低下することを確認できる。Figs. 2~4 では 60 分経過後の流動層

前後の湿度は一致していない。流動層中での蓄積量の定常値を算出するには前後の温度・湿度センサーが一致するまで測定して算出するべきであるが、条件によっては一致するまでに長時間を要するため、本研究においては 60 分間（最小流動化速度を求めるための測定では 30 分間）の測定を実施し、蓄積量と流動化特性の関係で評価を行うことにした。

Fig. 5 に Figs. 2~4 の経時変化のデータから算出した水蒸気蓄積量の相対湿度に対する増加割合を示す。湿度が高いほど蓄積量は大きくなっており湿度が高くなるにつ

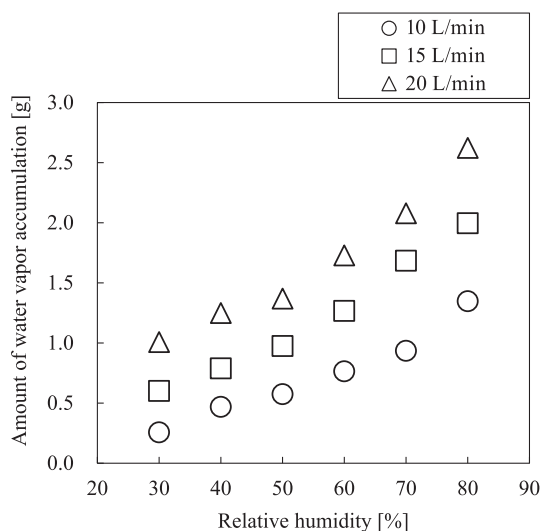


Fig. 5 Relationship between relative humidity and amount of water vapor accumulation in fluidized bed

れてグラフの勾配が大きくなっている。3つの流量で測定を行ったがいずれの流量でも同様に勾配が大きくなっていることを確認できる。また、流量が大きいかほど蓄積量が大きくなる関係にあることを確認できる。水分蓄積量が相対湿度に対して指数関数的な増加傾向を示す理由としては、ガスの相対湿度が異なることにより流動化状態が異なることが関係していると考えられる。低湿度下での気泡流動化支配の流動様式と高湿度下でのガスチャネル（吹き抜け）支配の流動様式では、粉体層に平衡的に蓄積できる水分量に影響を与えることが考えられる。本実験では中実のガラスビーズ粒子を用いているため、蓄積量については粒子の外表面積で規格化をすることが望ましいと考えられるが、本研究で用いている粒子は1種類であるため、規格化はせずに記述することとする。

3.2 最小流動化速度

水蒸気蓄積量に対する流動化特性として最小流動化速度を求めた。粉体充填層は底部からの流速により粒子が静止したままの固定層と粒子が層内を動き回る流動層になるが、これらの層の状態は層前後の圧力差、つまり粉体層の圧力損失を測定することにより明瞭となる。固定層では流速の増加に応じて圧力損失が大きくなり、ある流速を超えると圧力損失は大きくならず一定の値をとるようになる[10]。一定となるときの圧力損失はおおむね（粒子の荷重 W_{pg} ） / （床面積 A_t ）に等しい。この圧力損失が一定となりだす流速を最小流動化速度 u_{mf} といい、層を流動層として用いる場合の重要な設計パラメータとなる[11]。本研究では流速に対する圧力損失の値を測定する際の方法として加速操作を用いた。付着が作用しない場合は粒子の初期配置の影響を受けない減速操作で測定する方が適当であると考えられるが、本研究の条件下では加湿により強い付着性が作用するため、 Rh 70%以上の高湿度条件において減速の過程で部分流動化状態やチャネリングの形成などが生じ、データのバラつきが大きくなった。加速操作では粒子の初期配置の影響

はあるが、今回採用した逆流法を用いることにより、固定層で一定の付着状態を作り出すことができると考え、最小流動化速度を求めるための測定に加速操作を採用することにした。具体的には次のような手順で測定を実施した。まず、固定層の状態では流量 20 L/min で 30 分間流して水蒸気を蓄積させる。この際、流量 20 L/min でそのまま流すと流動化して実験初期の粒子の堆積状態が変わってしまう恐れがあるため、Fig. 1 に示す流動層装置への流入と流出のチューブを付け替えて逆流にて流動層へ流した。30 分流した後すみやかにチューブを付け替えてマスフローコントローラーで流量を連続的に上昇させていきながら圧力損失の測定を行った。以上の操作は目的の湿度を保持して行っており、流量を連続的に上昇させつつ圧力損失を測定する際は、あらかじめ目的の相対湿度となる加湿器、乾燥器両側の流量を測定して調べておき、その事前に調べた流量にて変化させつつ圧力損失を測定した。Fig. 6 に流速に対する圧力損失の関係を示す。測定は各湿度 3 回ずつ行ったが、ここでは 1 例ずつを比較して示した。低湿度の Rh 40%, 50% では流速 0.0034 m/s あたりでデータの勾配が変化していることが分かる。0~0.0034 m/s では圧力損失は一定の勾配で大きくなっており前述のとおり固定層であるといえ、0.0034 m/s を超えるとほぼ一定値となっており、 $W_{pg}/A_t = 1.49$ kPa 程度であることから流動層であることが確認できる。 Rh 60%以上では一定の勾配で大きくなる流速範囲が低湿度の場合と異なるものの、ある流速を超えると圧力損失は急激に低下し、 Rh 40%, 50% の場合と同程度の値となる。この圧力損失の勾配が変化したときの流速を最小流動化速度 u_{mf} と定めた。Fig. 7 に 30 分間の水蒸気蓄積量に対する最小流動化速度 u_{mf} を示す。ここでの水蒸気蓄積量は逆流法で流した 30 分間の蓄積量とした。その後の流量を連続的に上昇させつつ圧力損失を測定する間にも蓄積するため測定時の水蒸気蓄積量を算出することが妥当であると考えられるが、流量変化に対する湿度計の応答時間から生じる誤差が予想されたため、なるべく短時間に流量を上昇させて測定を実施し、この間の蓄積量は含めないこととした。蓄積量は各湿度で 3 回測定を行った結果を示している。水蒸気蓄積量が 1.5 g 以下では u_{mf} は一定であり付着性の影響はないといえる。1.5 g 以上では水蒸気蓄積量の増加に伴い u_{mf} は上昇しておりばらつきが生じている。これは蓄積量の増加が付着性に影響しており、粒子の堆積の状態が実験ごとに変わるため付着の状態にばらつきが生じているからであると考えられる。付着の状態によりばらつきはあるものの、全体の傾向としては一定の勾配で上昇する結果となった。

3.3 圧力損失の経時変化

一定の条件下で圧力損失 ΔP と相対湿度の経時変化を測定した。Fig. 8 に流量 10 および 20 L/min で流動化させた場合の ΔP の経時変化を示す。流量 10 L/min は Rh 70% において流動化に必要なガス速度のおよそ 6 倍に相当する。 Rh 60%以下では ΔP はほぼ一定であり付着性の影響は判断できない。 Rh 70%以上の高湿度では急激に ΔP が

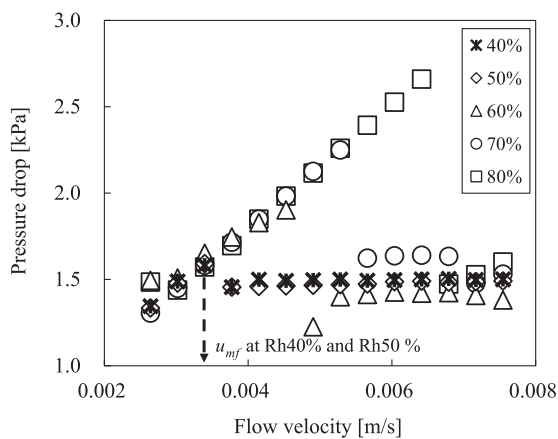


Fig. 6 Relationship between flow velocity and pressure drop

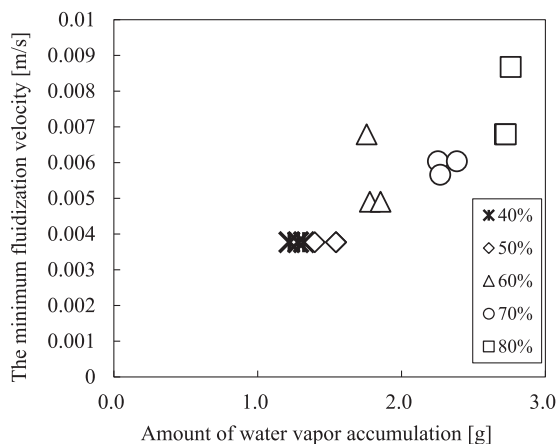


Fig. 7 Relationship between amount of water vapor accumulation and the minimum fluidization velocity

低下してその後一定の値となっている。これは付着による層内のチャネリングの形成が関係していると予想される。粒子表面への水蒸気の蓄積に応じた付着性によって層内に非流動部が形成されるとともにガスの吹き抜け部であるチャネリングの形成が進み、それに応じて ΔP が低下したものと考えられる。低下した後一定の値をとっているのは層内全体の流動化が停止したことを表している。流量 20 L/min では Rh 70% は最後まで流動化は停止

しなかったが ΔP は変動しており、付着性が強く作用しながら流動化していることが分かる。完全流動化停止は Rh 80%以上で生じており、流量を上げることにより高湿度での流動化が可能であるといえる。当初の狙いでは、これらの経時変化について ΔP に影響が生じた時間までの水蒸気蓄積量とその際の ΔP の値で整理することを考えていたが、結果に示すとおり ΔP に影響がでる時間の判断は困難であり、これらについては層の状態によって値が変わるため ΔP の値自体には再現性がない[12]。そのため、以後の結果については全体的な傾向を評価することとし、60分間の経時変化の平均値で評価を行うこととした。

3.4 平均圧力損失

Fig. 8 に示した 60 分間の圧力損失の経時変化のデータより平均圧力損失を算出し、60 分間の水蒸気蓄積量に対する平均圧力損失の関係を求めた。Fig. 9 は設定湿度と流量 10, 15, 20 L/min で測定した結果をまとめて示しており、設定湿度をマークで表示し、Rh 50%以上のデータはグラフ上部の凡例のように流量を中途りの濃淡で表示している。図中の『Fluidization stop』と表記している 4 つデータは 60 分間の途中で流動化が完全に停止してしまったデータを表している。また、図中の破線は流動化状態の圧力損失の計算値である $W_p g/A_t = 1.49$ kPa を示している。水蒸気蓄積量が 1.0 g および 1.5 g 程度において流量 10 L/min の場合は平均圧力損失が低い値を示しており測定途中で流動化が停止している。同等の水蒸気蓄積量では流量が小さい場合に流動化が停止するといえる。また、Rh 70%において 3 つの流量で測定した結果 (●マークの黒、グレー、白) を比較すると、Rh 70%では流量 10 L/min のみ流動化が停止していることが分かる。Fig. 5 で示したとおり同じ湿度において流量が増加すると流量に応じて水蒸気蓄積量が増加する、つまり付着性が強くなるはずであるが、流量の増加は層内の流動化作用も増大することになる。水蒸気蓄積による付着性の増加よりも、流量の増加による流動化作用の増加の方が大きくなることにより、相対的に付着の影響が小さくなったと考えられる。過去の研究においても、流量が大きくなると付着性の影響は小さくなるということが知られており、

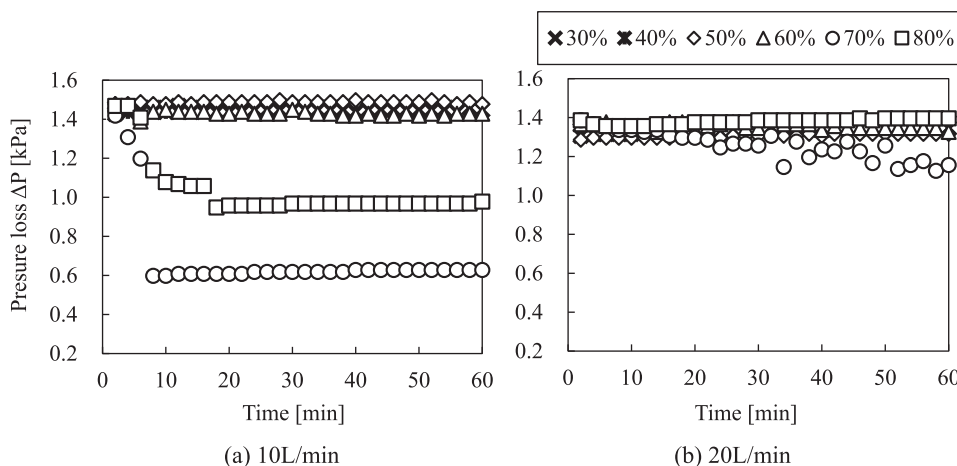


Fig. 8 Change of pressure loss with time lapse

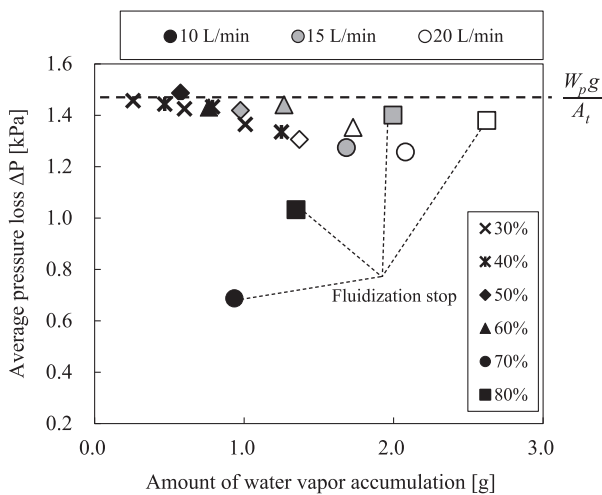


Fig. 9 Relationship between amount of water vapor accumulation and average pressure loss in fluidized bed

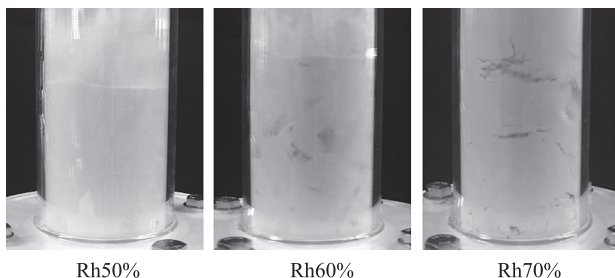


Fig. 10 Visualization of fluidized bed

本研究結果もそれらに順じた結果となっている[13,14]。

水蒸気蓄積量が 0.5~2.0 g の流動化状態のデータに着目すると、水蒸気蓄積量の増加に伴い平均圧力損失が減少する傾向にあることが分かる。これは付着性によって気泡の状態、流動化の状態が変化したことが関係していると考えられる。Fig. 10 に示す可視化測定により水蒸気蓄積量が増加することで壁面近傍の気泡の状態に違いを確認できる。付着により吹き抜けに近い状態を形成して圧力損失が減少すると考えられ、この状態が断続的に生じることにより圧力損失の経時データは変動し、平均圧力損失は低下したものと考えられる。

3.5 平均層高

平均圧力損失と同様に、流動化状態において 2 分おきに 60 分間層高の経時変化の測定を行い、60 分間の平均層高を算出した。60 分間の水蒸気蓄積量に対する平均層高の関係を Fig. 11 に示す。途中で流動化が停止したものを除き、最後まで流動化状態であった場合のデータのみプロットしている。いずれの流量においても水蒸気蓄積量の増加により急激に勾配が変化して上昇していることが分かる。付着により粒子間の空隙が大きくなり全体の層高が上昇したためと考えられる。急激に勾配が上昇したところで付着の影響が出ていると判断すると、この結果では流量が 10 L/min の場合において水蒸気蓄積量が

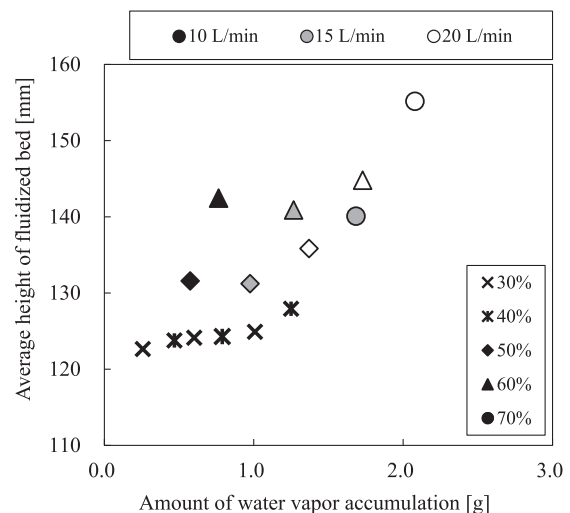


Fig. 11 Relationship between amount of water vapor accumulation and average height in fluidized bed

0.5 g 程度で付着の影響がでてきているといえる。最小流動化速度や平均圧力損失と比較すると、最小流動化速度は 1.8 g 程度、平均圧力損失は 1.0 g 程度で影響が出ていると判断できるため、平均層高はほかの特性よりも低い蓄積量で付着の影響が出ているといえる。

平均圧力損失の結果で述べたとおり流量が大きくなると付着性の影響は小さくなるが、この平均層高の結果では水蒸気蓄積量が多い領域で層高が急激に上昇しており、付着の影響がなくなるのであればこのような急激な上昇をせずに緩やかな勾配になるはずである。この点については、水蒸気蓄積量が多い領域において、水蒸気蓄積による強い付着性により壁面近くに非流動部が形成され、流動層内側の流動部よりも高い層高で測定された恐れがあると考えられる。これらについては層高の測定方法も含め更なる検討が必要になる。

4. 結 言

本研究の結果より次の結論が得られた。相対湿度や流量に応じて流動層内の水蒸気蓄積量が増加し、水蒸気蓄積量に応じた付着性の影響を確認できた。水蒸気蓄積量に対する流動化特性を求めたところ、最小流動化速度と層高は蓄積量に対して変化が明瞭に現れた。同程度の水蒸気蓄積量では流量が小さいと流動化が停止した。また、流速が高く流動化が激しい場合には付着の影響は小さく、流速が低く流動化が穏やかな場合は相対的に付着性が流動化へおよぼす影響が強く現れることが確認された。本研究結果より、本論文で述べた手法でガス中の水分による流動性低下の程度について水蒸気蓄積量の観点から評価することが可能であると考えられる。本論文は同一時間での蓄積量に対する特性を評価したものであるが、水蒸気蓄積の進行の程度に対する流動化特性の関係を評価するには時間をパラメーターとして調査する必要があると考えられる。

Nomenclature

Rh : Relative humidity	[%]	A_t : Bottom area of fluidized bed	[m ²]
W_p : Total particle mass	[kg]	u_{mf} : Minimum fluidization velocity	[m/s]
g : Gravitational acceleration	[m/s ²]	ΔP : Pressure loss in fluidized bed	[kPa]

References

- [1] Association of Powder Process Industry & Engineering, Japan, edited by M. Horio, S. Mori, Fluidization Handbook (1999) pp. 1–27.
- [2] T. Takahashi, S. Kaseno, J. Fukui, The effects of fluidizing gas humidity on gas-solid stirred fluidized bed operation, The Society of Chemical Engineers, Japan 15 (1989) 781–786.
- [3] M. Fuji, M. Takahashi, Surface properties of particle and adhesion force between particles, Annual Report of the Ceramics Research Laboratory Nagoya Institute of Technology, Vol. 2 (2002) pp. 9–16.
- [4] Y. Johno, K. Nakashima, F. Matsuyama, T. Shigematsu, N. Furukawa, Study on fluidization characteristics of adhesive powder in fluidized bed, 8th ICMF (2013) p. 284.
- [5] K. Ogata, K. Ouchi, Evaluation of flowability of cohesive powder using test of powder discharge by air flow, J. Soc. Powder Technol., Japan 54 (2017) 460–469.
- [6] G. Tardos, D. Mazzone, R. Pfeffer, Destabilization of fluidized beds due to agglomeration part I: Theoretical model, Canadian J. Chem. Eng. 63 (1985) 377–383.
- [7] G. Tardos, D. Mazzone, R. Pfeffer, Destabilization of fluidized beds due to agglomeration part II: Experimental verification, Canadian J. Chem. Eng. 63 (1985) 384–389.
- [8] D. Geldart, Types of gas fluidization, Powder Technol. 7 (1973) 285–292.
- [9] Official site of chronological scientific tables, NINS, National Astronomical Observatory of Japan, Maruzen Publishing Co., Ltd. (2017).
- [10] D. Kunii, O. Levenspiel, Fluidization Engineering, 2nd ed., Butterworth-Heinemann, MA, USA (1991).
- [11] C. Y. Wen, Y. H. Yu, Mechanics of fluidization, Chem. Eng. Prog. Symp. Series 62 (1966) 100–111.
- [12] D. Geldart, N. Harnby A. C. Wong, Fluidization of cohesive powders, Powder Technol. 37 (1984) 25–37.
- [13] J. Chaouki, C. Chavarie, D. Klavana, G. Pajonk, Effect of interparticle forces on the hydrodynamic behaviour of fluidized aerogels, Powder Technol. 43 (1985) 117–125.
- [14] S. Morooka, K. Kusakabe, A. Kobata, Y. Kato, Fluidization state of ultrafine powders, J. Chem. Eng. Jpn. 21 (1988) 41–46.