No.13

February 1977

REPORTS OF

THE GOVERNMENT INDUSTRIAL DEVELOPMENT LABORATORY, HOKKAIDO

北海道工業開発試験所報告

第 13 号

昭和52年2月

工業技術院

北海道工業開発試験所

まえがき

近年，わが国の鉄鋼生産は急速な発展を遂げ，年間粗鋼生産高は１億トンとなり，この鉄鋼生産を維持するためには莫大な量の製鉄用コークスが必要である。しかし，国内原料炭は良質のものに恵まれておらず，かつ，労務者不足と採掘条件の悪化などから現状を維持するのが精一杯であり，その大部分は米国，ソ連，豪州やその他の地域から供給をうけている。また，エネルギー危機に端を発して以来，世界的な石炭見直しの機運を反映し，とりわけ強粘結炭の不足が目立ち，価格の大巾値上げが打ち出されている。かつ，各山元の供給力不足から，米国炭のスポット買いでかろうじて急場を凌いでいるのが実情であり，いまや完全に売り手市場となっている。

このような情勢に対処するため，これまでコークスに適さないと考えられていた一般炭を製鉄用コークスの原料として利用する必要がある。このことは他地域より量的に多く質的にすぐれた一般炭を産出する北海道において，石炭の需要拡大をはかるためにも重要である。

一方，現在使用されている製鉄用コークスは室炉で製造されており，長年の研究により技術的にすぐれた水準に達している反面，色々な問題が指摘されている。すなわち，すぐれたコークスを作るためには強粘結炭を使用しなければならないこと，コークス化に要する時間が長いこと，また公害問題や作業環境の悪さから労働力確保がむずかしくなってきている。

これら現行のコークス製造法の弱点を改善するために，近年，国の内外において精力的に開発が進められているコークス製造法は次の点に重点をおいている。

(1) 非粘結炭を含め，広汎な種類の石炭を活用する。
(2) コークス化時間の短縮が容易な形式のコークス炉。
(3) プロセス全体が連続化され，自動化が容易な方式。
(4) 製品の形状と大きさを一定とする。

これまで行われた主な研究として，公害資源研究所の移床式乾留炉[1)~4)]，石炭技術研究所の環状乾留炉による試験[5)]がある。前者は移動床を内設した横型乾留炉の移動床上で約700℃まで成形炭を乾留したのち，熟成室部分で約900℃まで乾留して成形コークスを得る方法である。

後者は二重円筒の間に成形炭を供給し，不活性高温ガスで乾留し，成形コークスは炉床の偏心回転によって連続的に排出する方法である。また，ドイツ炭鉱研究所(B.F)は竪型サンドコーカーで乾留して成形コークスを得るすぐれた製造技術[6)]を開発した。

当所では，昭和40年から42年までの３年間，非または弱粘結炭を流動法により乾留し，これを加熱成形することにより粘結剤を用いずに固体無煙燃料を製造する技術の開発[7)~9)]

に成功した。これにより蓄積した技術を基にして昭和45年度以降4ケ年計画で砂を媒体とする横型流動焼成炉を用いて加熱成形炭をコークス化する新しいプロセスについての研究を実施してきた。

本報告は中間試験の結果を中心とし，それに関連する基礎から応用化に至る研究をとりまとめたものである。なお，本研究は北海道開発庁の開発計画費による委託研究として実施したものである。

文　　献

1) 吉田他，燃協誌，**45**，575 (1966).，**46**，610 (1967).，**48**，738 (1969)
2) 豊田，熊井，山口，丸山，同誌，**49**，718 (1970)
3) 熊井，山口，丸山，豊田，同誌，**50**，655 (1971)
4) 山口，丸山，熊井，木村，同誌，**51**，660 (1972)
5) 石炭技研，**14**，2，1 (1974).，**15**，9，1 (1975).，**15**，10，1 (1975)
6) Werner Peters, Glückauf, **16**，742
7) 北開試無煙燃料製造グループ，燃協誌，**48**，54 (1969)
8) 西野，武田，同誌，**48**，226 (1969)
9) 河端，田崎，三井，同誌，**51**，712 (1972)

北海道工業開発試験所報告
第 13 号

製鉄用成形コークス製造に関する研究

目　　次

報　文

製鉄用成形コークス製造に関する研究－Ⅰ …… 1
－成形コークス製造に関する基礎研究－
西野浩，武田詔平，吉田雄次

製鉄用成形コークス製造に関する研究－Ⅱ …… 17
－横型媒体流動層に関する基礎的研究－
平間利昌，弓山翠，山口弘，*藤岡丈夫

製鉄用成形コークス製造に関する研究－Ⅲ …… 37
－横型連続式媒体流動焼成炉による操業試験－
弓山翠，武田詔平，平間利昌，西野浩，出口明，*藤岡丈夫，山口弘，吉田雄次

製鉄用成形コークス製造に関する研究－Ⅳ …… 47
－横型連続式媒体流動焼成炉の装置特性－
弓山翠，平間利昌，武田詔平，西野浩，山口弘，吉田雄次

Synopsis …… 54

※現在ブリジストン液化ガス㈱

製鉄用成形コークス製造に関する研究－Ⅰ

—成形コークス製造に関する基礎研究—

西野　浩・武田詔平・吉田雄次

Ⅰ-1　はじめに

成形コークス製造のための基礎資料をえるため，種々の観点から加熱成形炭のコークス化に関する研究を実施した。本報告では回分式の撹拌流動熱処理装置および焼成装置により，実験室規模で行ったもので，主として道内非粘結炭を配合した試料から作ったテストピースを用い熱処理条件，高温焼成条件を探索し，成形コークスの性状を検討した。さらに，成形炭がコークスに移行する領域における熱膨脹特性とガス発生速度との関連からコークス化過程を考察した。また，中間試験で使用した2種のブリケットについても管状電気炉により高温焼成実験を行い，成形コークスの温度分布測定，亀裂発生状態を観察した結果について報告する。

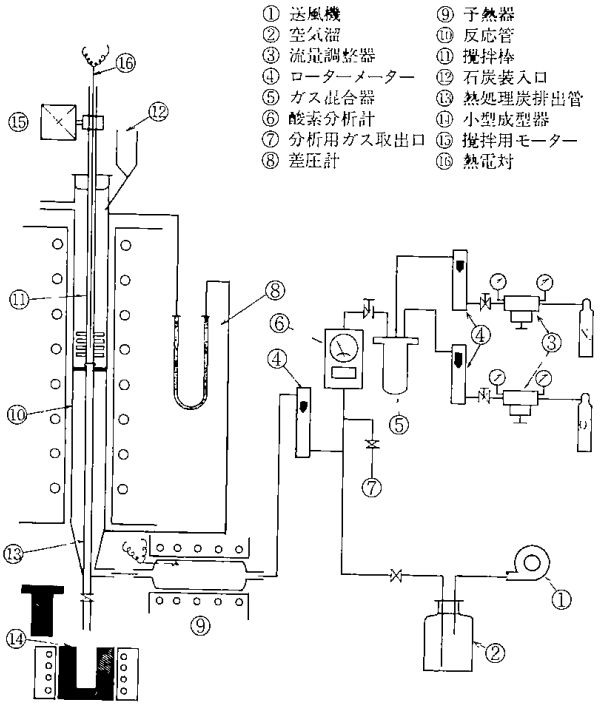
Ⅰ-2　テストピースによる基礎研究

Ⅰ-2-1　実験装置および高温焼成

実験装置を**図Ⅰ-2-1**に示す。反応管は径40mmの耐熱ガラス製であり，管の中心部に30r.p.m.で回転するステンレス鋼製の撹拌棒がとりつけてある。熱処理温度は撹拌棒中に熱電対を挿入して測定した。

試料35gを装入し，200℃に予熱した流動化ガスを1ℓ/minで送り，常温から所定の温度まで約22℃/minの昇温速度（100℃～所定の温度）で熱し，その温度に見掛け上0，5，10分保持し（以後は保持時間とする），熱処理炭を排出管を通じて金型中に排出させる。流動化ガスは窒素と酸素濃度0～5%に調整した混合ガスである。金型中に排出した熱処理炭をただちに手動式油圧プレスにより成形圧力750kg/cm²，成形時間10秒で加圧成形してテストピース（加熱成形炭）を作った。金型は内径20mmφ，高さ38mmの円筒状である。

テストピースの高温焼成は，精密高温炉（炉内寸法，75×45×105mm）を用い，試料をるつぼに入れ，窒素ガス雰囲気で1000℃まで種々の昇温速度で行った。



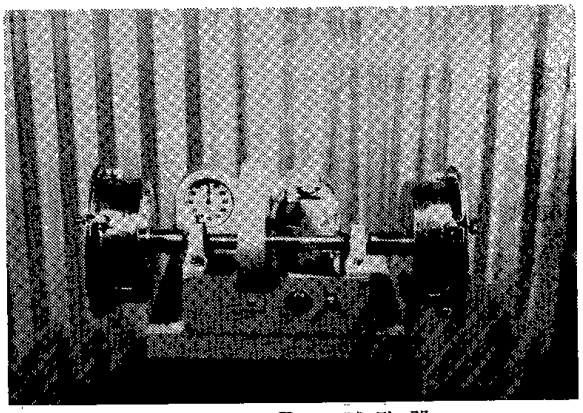
図Ⅰ-2-1　実験装置

Ⅰ-2-2　成形コークスの強度試験

成形コークス強度の測定については種々検討したが，実験室規模の装置ではJISドラム強度などを測定するだけの量を確保することは難しく，また，圧縮強度試験は得られる成形コークスの形状が焼成条件によって異なってくるため測定精度に難点がある。[1] また，成形コークスは室炉コークスなどに比べ摩耗性が弱いと言われており，耐摩耗性に重点をおいて行うこととした。それ故5～6gの成形コークスの強度を測定するのに適していると判断されたRoga法[2]を準用した。**写Ⅰ-2-1**に本装置の概観を示す。

この方法は石炭の粘結力を1gの石炭と5gの標準無煙炭の混合物を乾留して得られたるつぼコークスを円筒状ドラム（内径200mm，高さ70mm）で摩耗テストし判定する方法であるが，本試験では無煙炭の添加は行っていない。

実験の手順は乾留後のコークスの重さ（Q）を計り



写 I-2-1　Roga 試 験 器

1 mm篩で篩分けし篩上重量（a）を計る。この篩上コークスについて15分間（50r.p.m.）摩耗試験を行い，5分ごとの篩上重量（b,c,d）を計り，次式により算出する。

$$\text{Roga 指数} = \frac{\frac{1}{2}(a+b)+\frac{1}{2}(b+c)+\frac{1}{2}(c+d)}{3Q} \times 100$$

$$= \frac{\frac{1}{2}(a+d)+b+c}{3Q} \times 100$$

Roga 法について各種焼成条件下で得られた成形コークスの予備テストを行った結果，指数90以下で表面および亀裂にそっての摩耗が激しく，80以下では数個の小片に崩かいすることから，90以上を実験室的に条件範囲を絞る一つの基準とした。なお潰裂強度との対比はむずかしいが，指数95以上のものは強度的にすぐれており，最終的な目標値とすべきであると判断した。

I-2-3　試 料 炭

原料としては濠州産準強粘結炭の South Bulli 炭60％と夕張炭10％をベース炭とし，非粘結炭を30％配合した。非粘結炭としては太平洋炭，奔別炭および Kuznets O.S 炭を配合し，それぞれブレンドⅠ，ⅡおよびⅢと表示した。

表 I-2-1 に上述試料炭の諸性状について示した。なお試料炭は水封貯蔵したものを使用時に乾燥し，60～200メッシュの粒度範囲にそろえて使用した。

表 I-2-1　試　料　炭　性　状

SAMPLE [1]	Proximate Analysis				Ultimate Analysis		Gieseler Fluidity (d.d.p.m.)
	Mois.(%)	Ash(%)	V.M[2](%)	F.C(%)	C(%)	H(%)	
Haboro coal	12.1	5.6	39.6(48.1)	42.7	74.6	5.9	—
Taiheiyo coal	5.4	6.0	48.8(55.1)	39.8	77.3	6.7	0
Horonai coal	3.6	5.9	45.5(50.2)	45.0	80.7	6.6	—
Hombetsu coal	3.5	17.5	34.7(43.9)	44.3	81.0	6.2	1.8
Yubari coal	1.2	5.4	36.8(39.5)	56.6	85.8	6.2	27,500
Dixiana coal	1.8	4.2	31.3(33.3)	62.7	85.5	5.5	690
Wollondilly coal	1.9	9.8	25.5(28.8)	62.8	—	—	1.8
South Bulli coal	1.3	9.0	21.6(24.0)	68.1	88.0	5.1	139
Kuznets K-10 coal	1.9	9.4	18.9(21.3)	69.8	88.3	4.9	1.9
Kuznets O.S coal	1.4	8.5	12.3(13.7)	77.8	90.0	4.3	0
Blend-Ⅰ S.B. 60% T 30% Y 10%	2.4	8.6	30.7(34.6)	58.3	85.2	5.8	7.0
Blend-Ⅱ S.B. 60% Hom. 30% Y 10%	1.8	12.8	27.0(31.6)	58.4	85.9	5.5	31.0
Blend-Ⅲ S.B. 60% K-O.S 30% Y 10%	1.2	9.2	20.1(22.5)	69.5	88.3	5.0	70.0

1，60～200 mesh　　2（　）; dry, ash free basis

I-2-4　予 備 試 験

本実験を実施するに先だって，配合する非粘結炭の性状が熱間成形するテストピースの強度を大きく支配するため主として昇温速度による性状変化について検討した。

配合する非粘結炭として，羽幌炭，太平洋炭，奔別炭，幌内炭と無煙炭に近い高炭化度炭であるソ連のK-O.S炭を選び急速加熱できるように改良試作したオージベル膨脹性試験を行った。

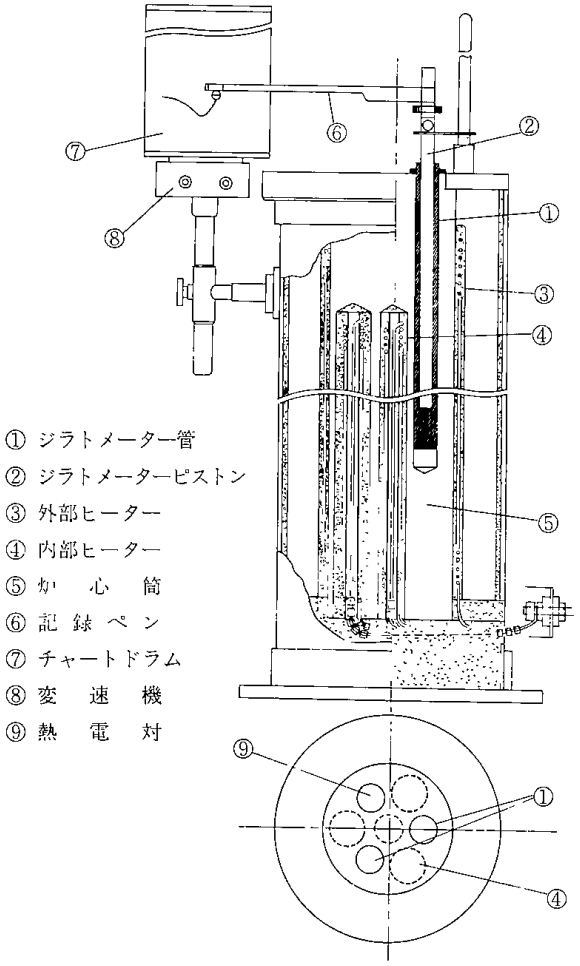
主な改良点は**図 I-2-2** に示したように従来の外部

ヒーターの容量を大きくすると同時に，ステンレスブロックからなる炉心筒⑤中の試料管孔と熱伝対孔との間に新たに4本のヒーターをうめこんだ。この改良により最高で毎分27℃の昇温が可能となった。試料の成形は従来行われていたハンマー法によらず，荷重1.2トン，加圧時間30秒で成形するプレス法を採用した。

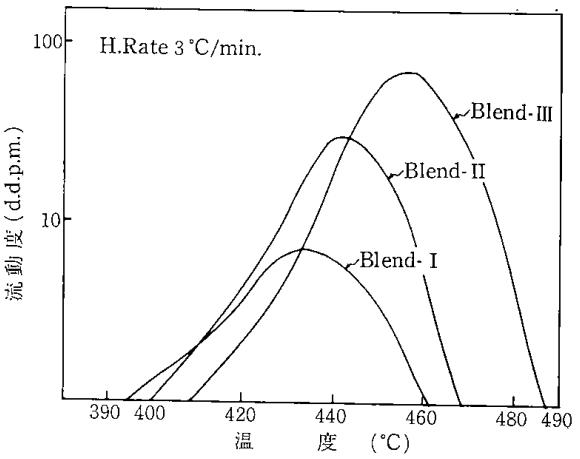
図Ⅰ-2-3 に測定結果を示した。標準昇温速度（3℃/min）で行った場合，測定に用いた試料はすべて軟化収縮するのみで膨脹を示さない炭種である。しかし，急速加熱（27℃/min）をした場合，羽幌炭，太平洋炭については大きな変化が認められないが，奔別炭，幌内炭，K-OS炭では負膨脹ではあるが膨脹性が現われた。

このことは，非粘結と言われている炭種でも急速加熱をすることにより，その微弱な粘結性が引き出され，成形性に対して有効に働くものと考えられる。

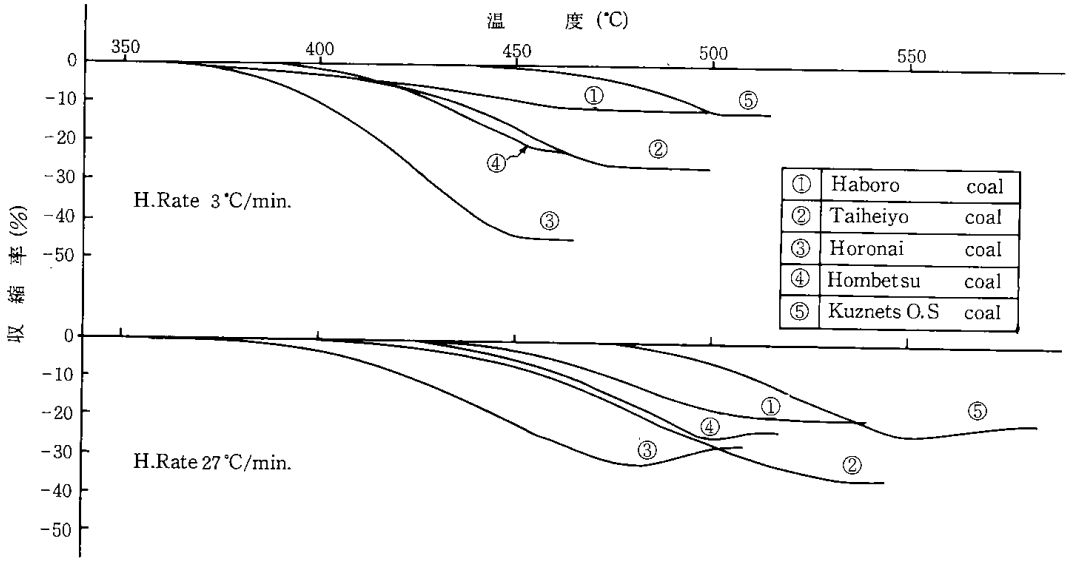
これらの炭種から，配合する試料として国内非粘結炭としては，太平洋炭，奔別炭を，国外炭ではK-OS炭を選んだ。**図Ⅰ-2-4** にこれらの配合試料のギスラー流動度曲線を示した。一般に50 d.d.p.m. 以上の配



図Ⅰ-2-2 膨 脹 性 試 験 機



図Ⅰ-2-4 配合炭のギスラー流動度曲線



図Ⅰ-2-3 非粘結炭のオーディベルト曲線

表 I-2-2　配合炭の Roga 指数

H.T.T.410℃ Test piece

	0 min	5 min	10 min
Blend-I	86.5	88.4	83.9
Blend-II	89.9	89.7	87.4
Blend-III	90.4	94.5	92.1

合炭でなければコークス化が良好に行われないと言われている。

Blend-I，II，IIIの試料についてテストピースを作り高温焼成した成形コークスの Roga 指数を表 I-2-2 に示した。表に示すように，急速加熱下で膨脹性を示した炭種を配合した方が指数は高くなっている。これらの結果から I-2 および I-3 で使用した試料は国内非粘結炭として粘結性の点で有利な奔別炭を配合した Blend-II を基準配合試料とした。

I-2-5　実験結果及び考察

i）　流動熱処理条件の検討

熱処理条件としては，熱処理温度400～480 ℃，保持時間0，5，10分とし，流動化ガス中の酸素濃度は成形コークスの品質を考慮して，酸素濃度5％以下の範囲で実験を行った。高温焼成条件は，常温から各熱処理条件と同温度までを，精密高温炉の最低昇温速度で加熱し，その温度から600 ℃(第一段)まで25℃/min で急速加熱し，600 ℃より1000 ℃(第二段)まで10℃/min の昇温速度で加熱した。高温焼成を600 ℃を境いに焼成速度を二段としたのは，後述の熱処理炭の熱収縮特性の結果から600 ℃近傍でその特性が変化するため，また，第一段を急速加熱したのは，当初，テストプラント実験で装入温度を600℃前後と考えていたためである。

図 I-2-5 に流動化ガス中の酸素濃度と成形コークスの Roga 指数の関係を410，420，430 ℃ で処理した結果について示した。図に示すように，各熱処理温度において酸素濃度が増加すると指数は減少しており，熱処理温度が低いほどその傾向が著るしい。

図 I-2-6 は前図の結果について保持時間を横軸にとり Roga 指数との関係について示したものである。図に示すように，窒素ガスのみ用いた場合，保持時間が長くても（10分）指数は低下しないが，酸素ガスの存在下では指数の低下を示した。全般的な傾向としては保持時間が短いほど指数の高い成形コークスが得られた。

図 I-2-7 は Blend-II を使用したときの流動層内が閉塞する限界を示したものである。層内粘着トラブルは熱処理温度と酸素濃度で決まり，流動化ガスとして窒素を用いた場合は420 ℃以上で層内閉塞を起こし流動可能な条件範囲が非常に狭い。

図に示すように，酸素濃度が高くなるほど操作範囲が広くなるが図 I-2-5 に示したように成形コークスの強度が低下するので熱処理時の流動化ガスの酸素濃度は１％ 程度が妥当と考えられる。

図 I-2-8 は横軸に熱処理温度をとり Roga 指数と

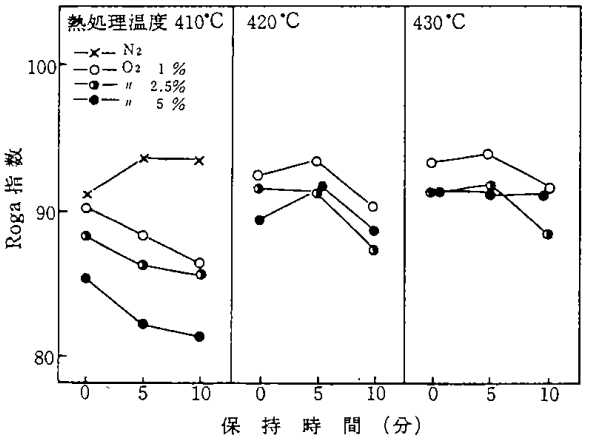


図 I-2-6　保持時間と Roga 指数の関係

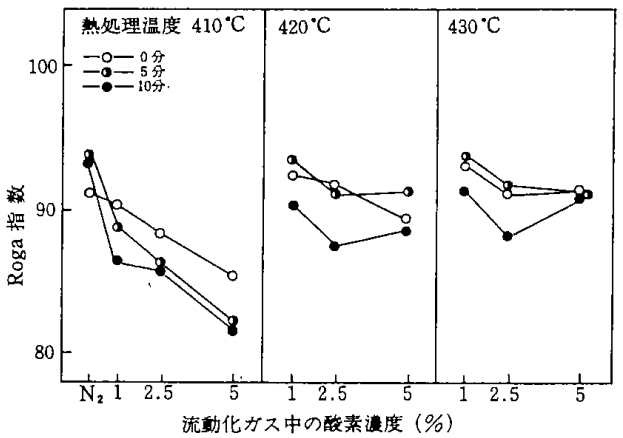


図 I-2-5　流動化ガスの影響

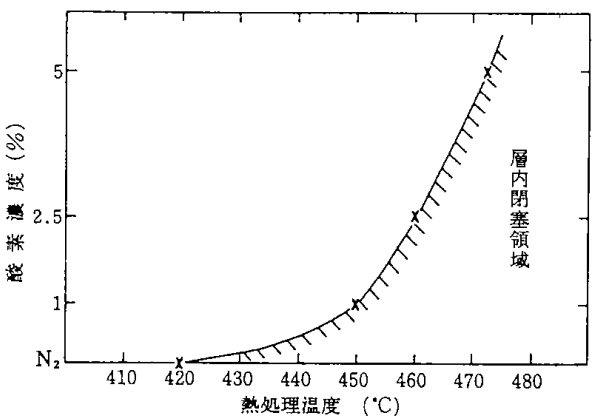


図 I-2-7　流動熱処理条件と層内閉塞境界

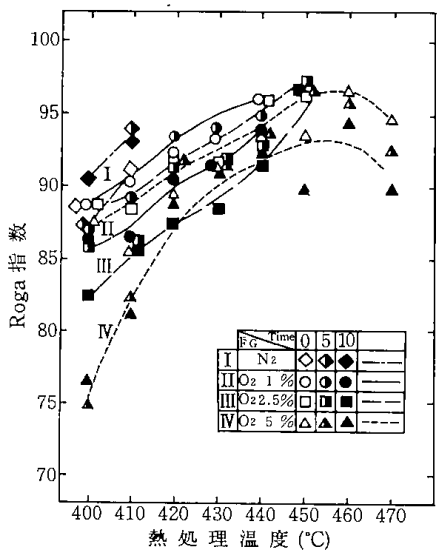


図 I−2−8　各種熱処理条件と Roga 指数の関係

の関係を整理したものである。

図に示すように，酸素濃度の如何にかかわらず高温度になるほど指数は増加する傾向がある。

酸素濃度1％の流動化ガスで熱処理した場合（図中丸印でプロットしたIIの範囲）に注目すると，410℃，0分から指数は90を越え，450℃で層内閉塞のため実験不能となるまでほぼ直線的に増加している。酸素濃度2.5％以上の範囲（III，IV）では実験可能な条件範囲は広がるが，更に高温にならないと指数の高い成形コークスは得られない。

以上の結果を総合し，Roga指数90以上を一つの基準として流動熱処理範囲を考えてみると，熱処理温度は410～440℃が妥当であり，保持時間は全般的に短い方が有利である。またコークス化性と粘着トラブルの両面を考え合わせると流動化ガス中の酸素濃度は1％が良質のコークスを作るために妥当と判断される。

したがって以後の実験では，酸素濃度1％とし410℃および430℃の熱処理条件で作ったテストピース（以後テストピースA，テストピースBとする）を対象として適正焼成条件とコークス化性について検討すべく実験を進めた。

この条件で作ったグリーン・テストピースの圧縮強度，Roga 指数，揮発分値，見掛け密度を**表 I−2−3** に示した。表に示すようにテストピースBはAに比べて圧縮強度，Roga 指数とも高い値を示している。

表 I−2−3　グリーンテストピース性状

	熱処理条件	保持時間（分）	圧縮強度（kg/cm²）	Roga 指数	見掛密度（g/cm³）	揮発分（%）
テストピースA	410℃ O_2 1%	0（A_0）	86 ～ 96	79.6～85.6	1.15～1.18	23.36(27.35)
		5（A_5）	61 ～ 78	70.1～77.0	1.14～1.17	22.02(25.60)
		10（A_{10}）	28 ～ 56	65.2～66.8	1.11～1.14	21.46(24.60)
テストピースB	430℃ O_2 1%	0（B_0）	95 ～ 112	89.6～91.0	1.19～1.22	21.5（25.7）
		5（B_5）	88 ～ 103	84.6～88.0	1.17～1.20	19.25(22.3)
		10（B_{10}）	49 ～ 58	72.2～76.4	1.13～1.15	18.1（20.9）

ii）　高温焼成条件

テストピースA およびB を使用して高温焼成し，Roga 指数を求め適正なヒートパターンについて検討した。

まず，初めにテストピースAを用いて高温焼成条件として最終焼成温度とRoga指数の関係について検討した結果を**図 I−2−9** に示す。図に示すように，高温度になるにしたがい Roga 指数は高くなり，1000℃まで指数が増加した。したがって，最終温度は 1000℃以上が望ましい。

図 I−2−10 は初めにコークス形成に重要な温度範囲である第二段焼成を7.5～30℃/min の昇温速度範囲で行い Roga 指数との関係を示した。使用した加熱成形炭はテストピースAおよびBであり，第一段焼成は25℃/min 一定とした。

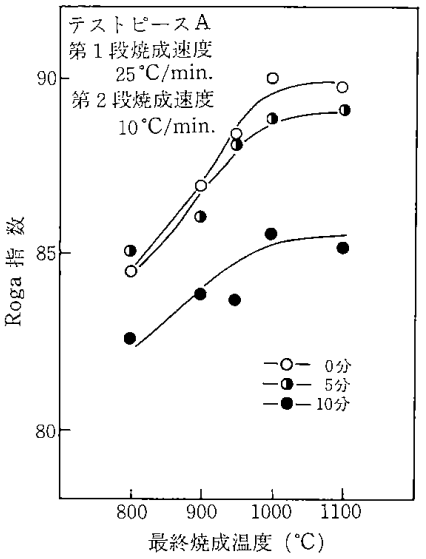


図 I−2−9　最終焼成温度と Roga 指数

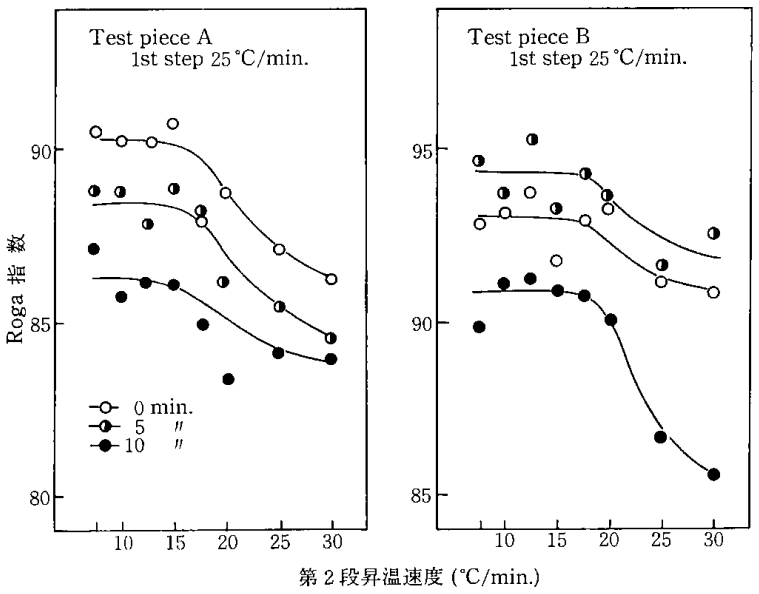


図 I-2-10 第II段昇温速度と Roga 指数

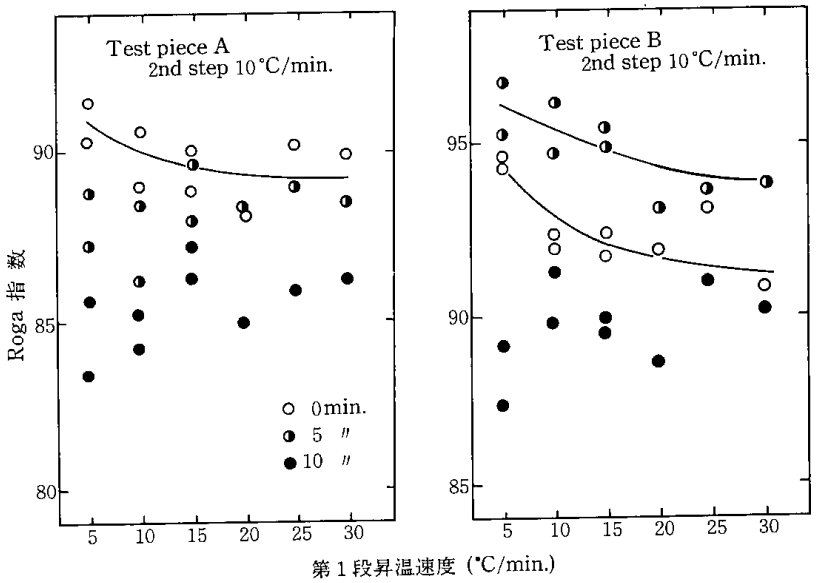


図 I-2-11 第 1 段昇温速度と Roga 指数

図から明らかなように，昇温速度を早くすると指数は低下する傾向にあり，テストピースAで15°C/min，テストピースBで17.5°C/min から指数の低下が著るしくなっている。したがって，第二段焼成の昇温速度は15°C/min 以下が適当と考えられる。

図 I-2-11 に第二段の昇温速度を10°C/min 一定とし，第一段焼成速度を 5 ～30°C/min の範囲で変化させ Roga 指数との関係を示した。

図に示すように，**図 I-2-10** の結果に比して，データのばらつきが多く，その傾向が顕著に現われなかった。特にテストピースAでは，A_0 のもので10°C/min からより低速の 5 °C/min にかけてわずか指数の上昇がみられるのみで全体的に傾向がつかみにくい。このことからさらに昇温速度を遅くしても，コークス強度の上昇は余り期待できない。

テストピースBでは，B_0 およびB_5 のものでは低速にするほど指数が増加する傾向を示し 5 °C/min で B_5 では指数95以上の強い成形コークスが得られた。一方，A_5，A_{10}，B_{10} のものはデータのばらつきが多いが昇温速度が速くなると多少増加する傾向が認められる。

得られた成形コークスの外観は低速度のものほどふくれが少なく焼きしまっていたが Roga 指数の測定結果からは顕著な差となって現われなかった。

以上，高温焼成条件について，600°C を境に二段焼成を行ったテストピースの結果から，総合的に判断す

ると，適正な昇温速度の限界は，第一段で10℃/min，第二段で15℃/min であり，この速度以下の焼成条件を選択する必要がある。また，最終温度は1000℃以上が望ましい。なお，熱処理条件について再考すると，奔別級の非粘結炭を配合した場合，410℃処理では，温和な焼成を行っても強度の上昇が得られず，加熱焼成時に強度が高かった430℃処理のものが期待した強度が得られた。

Ⅰ-3　コークス化過程における基礎実験

従来から石炭の熱膨脹収縮特性はコークス強度を支配する一つの大きな因子として，古くはSoulĕ,[3] 最近では熊井等[4]によって研究が行われ，また分解生成ガスについては石炭，純物質等を対象とした報告は多い。[例えば5] しかし，熱処理炭および加熱成形炭を対象とし，しかも熱膨脹収縮特性とガス発生速度との関連からコークス化過程を考察した例はなく，本報告ではこれらの面について基礎的な検討を加えた。

Ⅰ-3-1　実験装置および方法

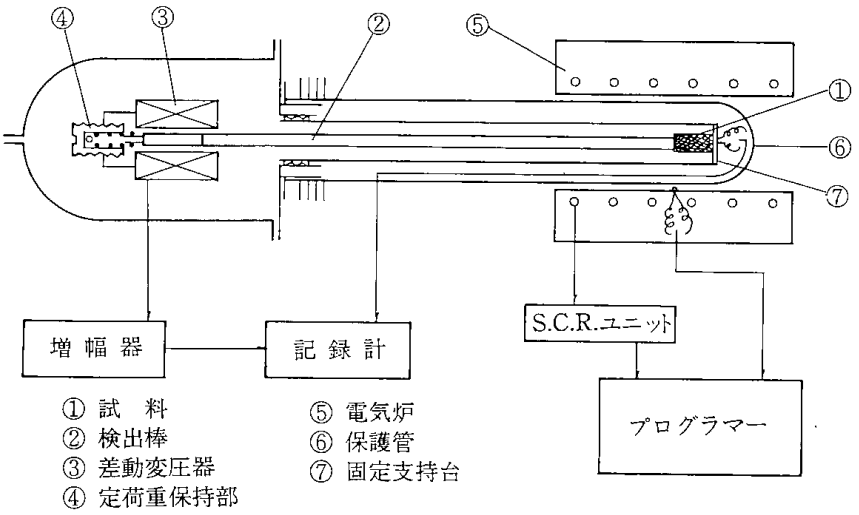
ⅰ）　熱膨脹収縮係数の測定

図Ⅰ-3-1 に使用した熱膨脹収縮測定装置（真空理工製）を示す。装置は横型で，伸縮量測定感度は最小1ミクロン，測定範囲は最大±10mmの変化まで測定することが可能である。伸縮変化量は検出棒によって伝えられ，差動変圧器により電気出力として取り出し記録計に自記される。

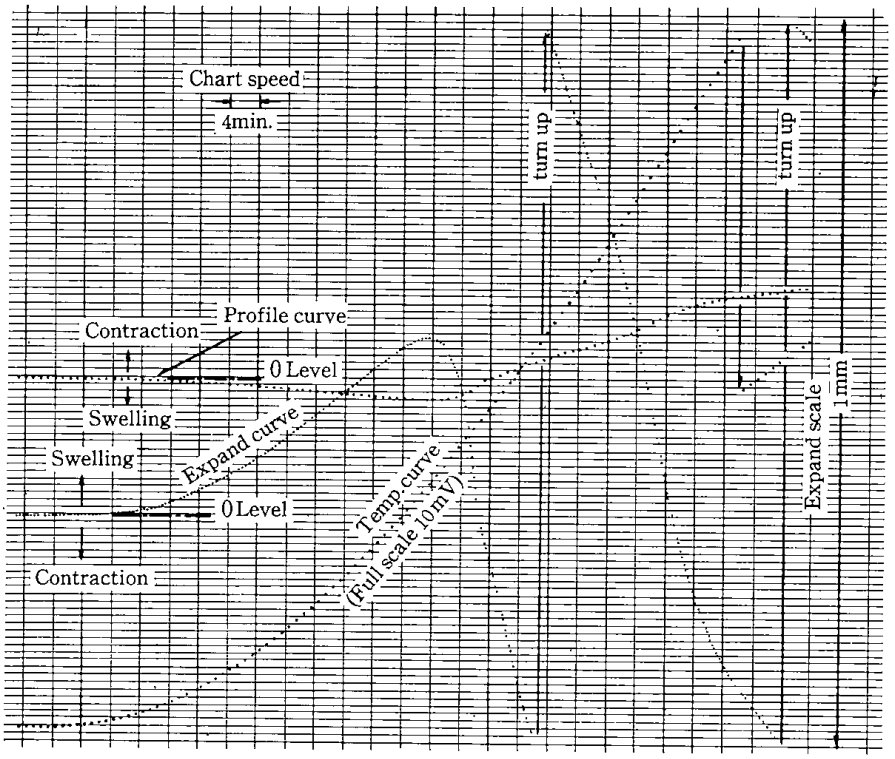
測定試料は熱処理炭を標準の試料作成用の成形器で径8mm，長さ10±0.2mmの円柱状に成形したものである。またテストピースおよびブリケット（小型）については，加熱成形時の圧縮方向を長さ方向にとり上述寸法に切り出したものを測定試料とした。

これら試料について窒素雰囲気下で1000℃まで連続的な伸縮量変化を測定した。

図Ⅰ-3-2 に実測した膨脹収縮曲線の一例を示した。チャート上の伸縮量はフルスケールで1mmであり，スケールアウトすると自動的に折返し記録される。この曲線から20℃ごとに熱膨脹収縮係数 $\alpha=\frac{1}{\ell}\cdot\frac{d\ell}{dt}$ を求めた。ℓ は試料の長さ，t は温度である。



図Ⅰ-3-1　熱膨脹収縮測定装置



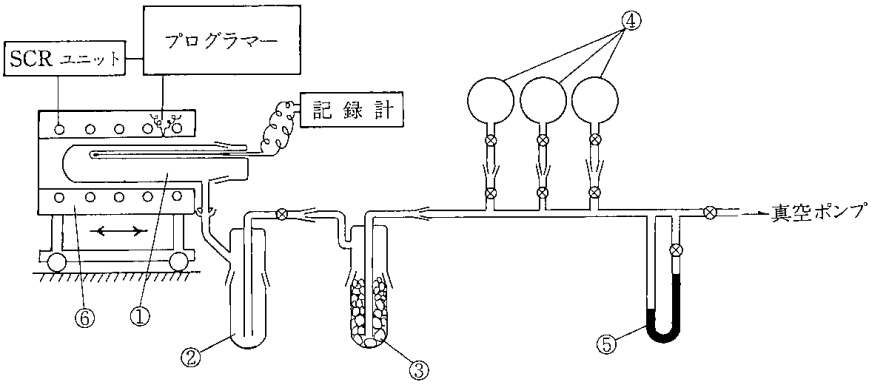
図Ⅰ-3-2　膨脹収縮曲線実測例

ii） 分解ガス量の測定

図I-3-3は試料を低圧下で熱分解し，発生したガスおよびタール量を測定した装置である。

石英製反応管に試料約5gを装入し，系内を真空にした後，1000℃まで10℃/minで加熱した。その過程で100℃ごとにガス採取を行い，連続的にガス発生量を測定した。ガス分析にはガスクロマトグラフを用いた。

水とタール量についてはガス量の測定とは別個に次の手順で行った。所定の温度に到達後ただちに炉を移動させて反応管を急冷し，100℃ごとに生成した水とタールはアイスバスで冷却したトラップおよび塩化カルシウム吸収管で捕集した。



① 石英反応管　④ ガス採取瓶
② トラップ　⑤ 水銀圧力計
③ $CaCl_2$ 管　⑥ 電 気 炉

図I-3-3 分解ガス採取装置

表I-3-1 熱 処 理 炭 性 状

Sample		H.T.T. * (Fluidizing gas O_2 1%)	Proximate Analysis			
			Mois (%)	Ash (%)	V.M. (%)	F.C. (%)
Taiheiyo	coal	410 °C	1.9	6.7	41.0(44.8)	50.4
Hombetsu	coal	410 °C	1.6	16.6	30.6(37.4)	51.2
Dixiana	coal	410 °C	1.5	3.4	27.1(28.6)	68.0
Wollondilly	coal	410 °C	1.8	9.6	21.5(24.2)	67.1
South Bulli	coal	410 °C	1.2	8.6	19.1(21.2)	71.1
		430 °C	1.0	8.8	18.2(20.2)	72.0
Kuznets K-10	coal	410 °C	1.8	7.1	17.1(18.7)	74.0
Kuznets O.S	coal	410 °C	1.2	7.6	11.9(13.0)	79.3
Blend - I		410 °C	2.5	8.4	24.8(27.8)	64.3
Blend - II		410 °C	1.2	10.8	22.9(26.1)	65.1
		430 °C	1.1	11.0	21.8(24.8)	66.1
Blend - III		410 °C	1.8	8.4	17.6(19.6)	72.2
Yubari	coal	410 °C, Fluidizing gas Air	2.1	4.6	29.2(31.3)	64.1

＊ 保持時間0分

I-3-2 試 料 炭

表I-3-1にここで使用した熱処理試料炭の工業分析値を示した。

また夕張炭は流動化ガス中の酸素濃度が1%の熱処理条件では層内閉塞を起こし実験不能となるため空気を使用して処理したものについて示した。

I-3-3 実験結果および考察

i） 熱膨脹収縮曲線

① 単 味 炭

図I-3-4に太平洋炭，奔別炭，サウスブライ炭，クズネツOS炭の熱処理炭（410℃，酸素濃度1%）について測定した結果を示した。以後に述べる膨脹収縮曲線は特別な場合を除きすべて10℃/minの昇温速度で測定した結果である。

太平洋炭，奔別炭では，約400℃より収縮を開始し，収縮係数は急激に大きくなり，470℃で太平洋炭は14

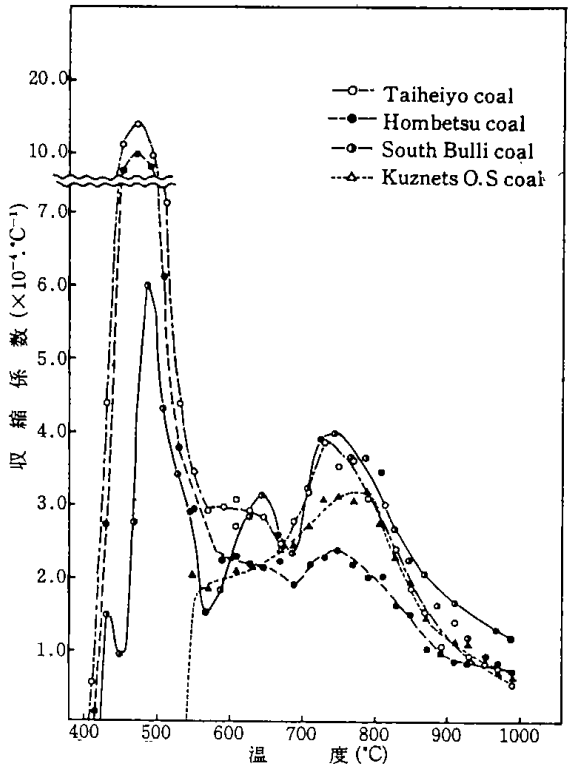


図 I-3-4 熱処理炭の収縮曲線

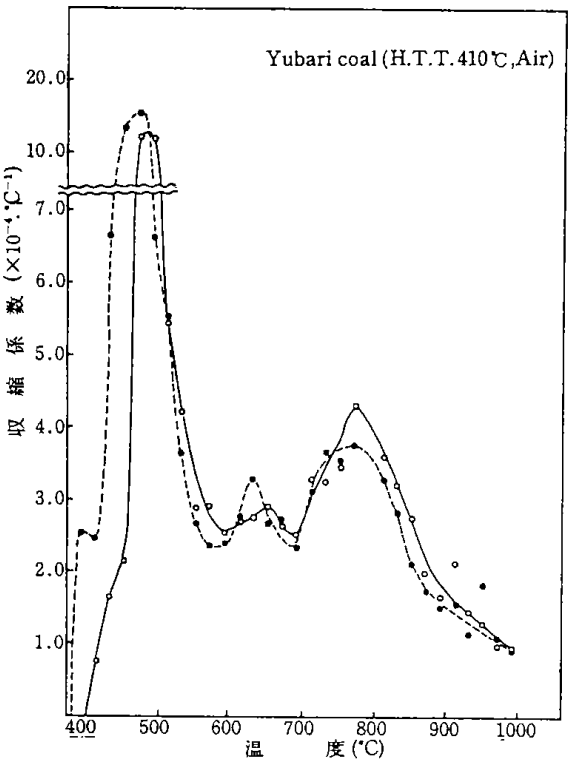


図 I-3-5 熱処理試料炭の収縮曲線

$\times 10^{-4}$，奔別炭は$10\times10^{-4}\,℃^{-1}$の極大値を示す。その後減少し670℃附近より再び収縮係数は大きくなり，730℃で極大値を示した後漸次減少する。以後の説明では470℃附近の極大点をピークⅠとし，730℃附近のそれをピークⅡとする。

サウスブライ炭では，490℃に$6\times10^{-4}\,℃^{-1}$のピークⅠを示し高揮発分炭に比較して低くなっているが，ピークⅡについてはあまり差がなく$4\times10^{-4}\,℃^{-1}$の値を示している。この炭種で特徴的なことは，ピークⅠとピークⅡの中間領域である650℃附近に特異なピークが現われたことである。このピークの最大収縮係数は$3\times10^{-4}\,℃^{-1}$程度でありピーク自体は小さいが，従来報告されていない新らしいピーク[6]である。以後の説明ではこれをピークⅢとする。

クズネツOS炭について特徴的なことは収縮開始温度が約490℃であり他の試料に比べてかなり高く，ピークⅡのみでピークⅠ，Ⅲに相当する極大点は認められなかった。

夕張炭の測定結果を図 I-3-5 に示す。熱処理条件が異なるため他の炭種と厳密に比較はできないがピークⅢは認められた。

各単味炭について測定した結果大まかに三つの型に分類できる。第一の型は太平洋炭および奔別炭にみられるようにピークⅠ，Ⅱと二つの極大点を形成するもの，第二の型はサウスブライ炭の例で示したがピークⅠ，Ⅱ，Ⅲと三つの極大点を形成する型である。この型には図示しなかったがウォーロンディリー炭およびディキシャナ炭も属する。第3の型はクズネツOS炭にみられるようにピークⅡのみ生ずる型である。クズネツK-10はこの型に属する。

② 配 合 炭

図 I-3-6 は Blend-Ⅰ，Ⅱ，Ⅲについて測定した結

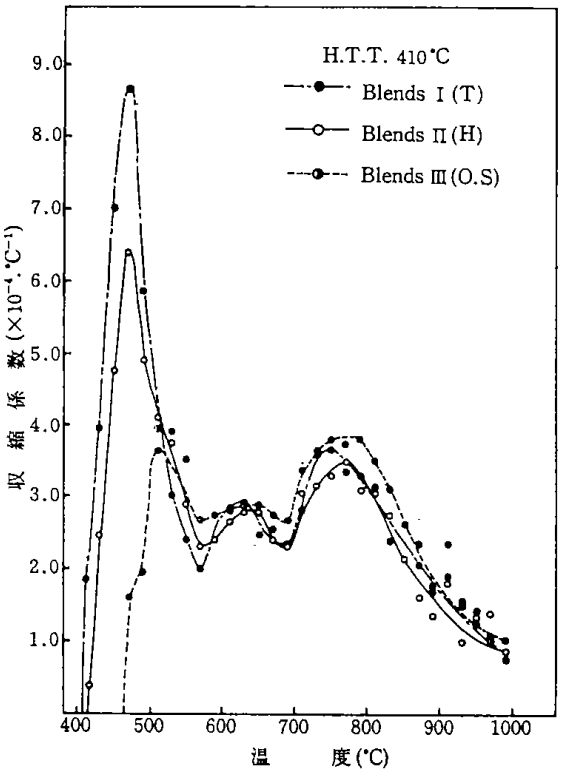


図 I-3-6 配合炭の収縮曲線

果であり，図に示すように収縮曲線には，三つのピークが現われた。ピークII，IIIについてはそれぞれの配合炭で大きな差はないが，ピークIの値は配合する非粘結炭の種類によって著るしく異なっており，非粘結炭のピークIの値と相関々係があり加成性が認められた。このことは熊井ら[4]によっても報告されている。

以上述べてきた単味炭，配合炭について収縮係数などを一括して**表I-3-2**に示した。この表からもピークIの収縮係数が炭種によって大きな差があることがわかる。

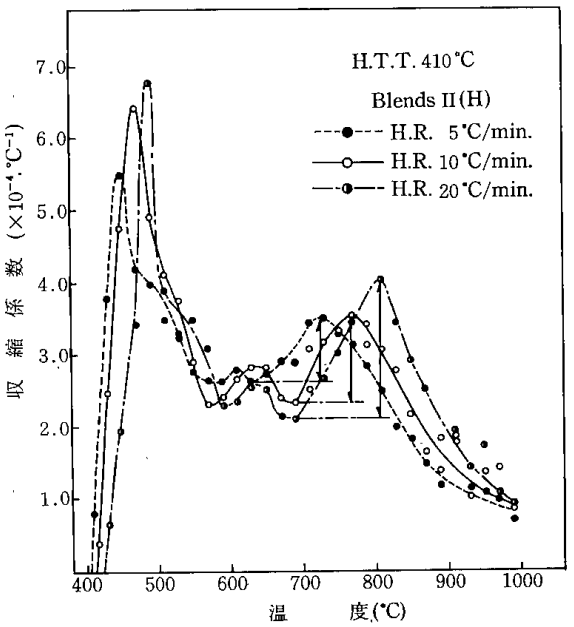
表I-2-2に示した3種の配合炭のRoga指数と前表を対比すると，ピークIの低いものが強度の高い成形コークスが得られている。このことは，収縮ピークIがないクズネツ炭を配合したBlends IIIは収縮曲線が平垣化しており，実炉では加熱速度が早められ処理時間の短縮が可能となることを示唆するものであり，この特性を利用して適当な炭種配合を行うべきである。

表I-3-2 熱処理炭の収縮係数

Sample HTT 410℃ Fluidizing gas O_2 1%	Volatile matter (d.a.f.) (%)	Temp.of initial Contraction(℃)	Total Contraction (%)	Peak I		Peak II		Peak III	
				Temp. of Peak (℃)	Coeff. of Contract. ($\times10^{-4}$℃$^{-1}$)	Temp. of Peak (℃)	Coeff. of Contract. ($\times10^{-4}$℃$^{-1}$)	Temp. of Peak (℃)	Coeff. of Contract. ($\times10^{-4}$℃$^{-1}$)
Taiheiyo coal	44.8	404	17.4	470	13.89	730	3.88	—	—
Hombetsu coal	37.4	415	12.1	470	10.01	750	2.41	—	—
Dixiana coal	28.6	422	18.1	470	27.42	770	3.69	650	3.14
Wollondilly coal	24.2	430	11.3	470	4.54	770	3.59	650	2.74
South Bulli coal	21.4	423	13.1	490	5.98	750	4.01	650	3.12
Kuznets K-10 coal	18.7	487	8.8	—	—	750	3.31	—	—
Kuznets O.S coal	13.0	543	7.4	—	—	790	3.20	—	—
Blend - I	28.5	406	14.6	470	8.69	750	3.66	630	2.91
Blend - II	26.1	415	13.4	470	6.41	770	3.51	640	2.81
Blend - III	19.6	464	11.4	510	3.64	770	3.79	650	2.87

③ 昇温速度による影響

図I-3-7はBlends IIを使用して昇温速度による収縮係数の変化を示したものである。昇温速度が速くなると相対的にピークの位置は高温側にずれており，ピークIについてはその極大値も高くなっている。またピークIIについては図に示したようにその極大値は昇温速度の増加とともに大きくなっている。



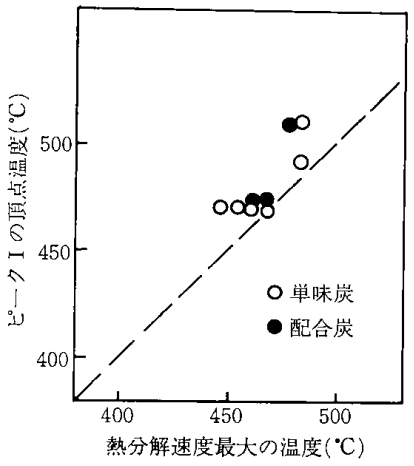
図I-3-7 昇温速度による収縮係数の変化

これらのことは加熱成形炭を焼成した時，焼成速度が速いほど亀裂が大きくなり強度低下をまねく結果とよく対応している。なお，理論的に固化直後の収縮がコークスの亀裂ひいてはコークスの強度に関連があることについては吉田の報告[7]があり，この収縮による応力が半成コークスの結合欠陥部へ集中し，その破断応力を越えると亀裂を生ずるものとしている。

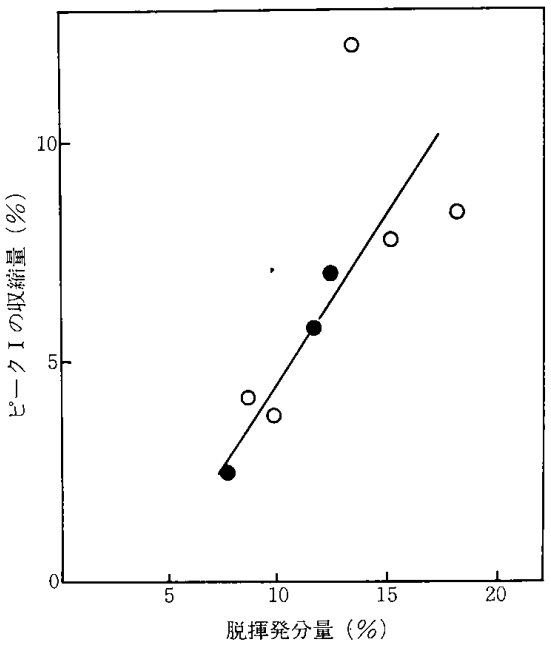
これをさけるためには，コークス化過程において応力の集中が生じないような昇温条件を選ぶべきである。

④ ピークIの熱天秤による考察

図I-3-8は縦軸にピークIの頂点温度を示し，横軸は熱重量分析による熱分解速度が最大になる温度である。白丸は単味炭，黒丸は配合炭について示した。試料として熱重量分析には粉状のものを，収縮係数測



図Ⅰ-3-8 ピークⅠの頂点温度と熱分解速度最大の温度との関係



図Ⅰ-3-9 ピークⅠにおける収縮量と脱揮発分量との関係

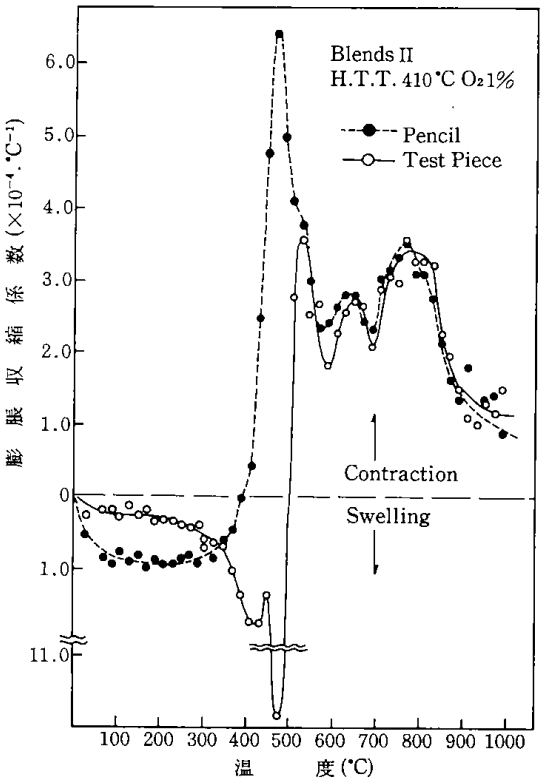
定には成形したもの（ペンシル）を使用したがかなり良い相関がある。

図Ⅰ-3-9 は縦軸にピークⅠに相当する温度領域の収縮量を示し，横軸にその領域での脱揮発分量を示した。

図に示すようにピークⅠの収縮量は脱揮発分量と比例関係にある。これらのことからピークⅠの領域ではタール，重炭化水素類などの低分子物の脱離により残炭が著るしい収縮を起こすものと考えられる。

⑤ テストピースより切り出した試料の膨脹収縮係数

図Ⅰ-3-10 は配合炭Ⅱを用いて加熱成形したテストピースから切り出した試料（白丸）と常法による円柱状試料（黒丸）とについて測定を行った結果である。



図Ⅰ-3-10 塊状切出し試料の膨脹収縮曲線

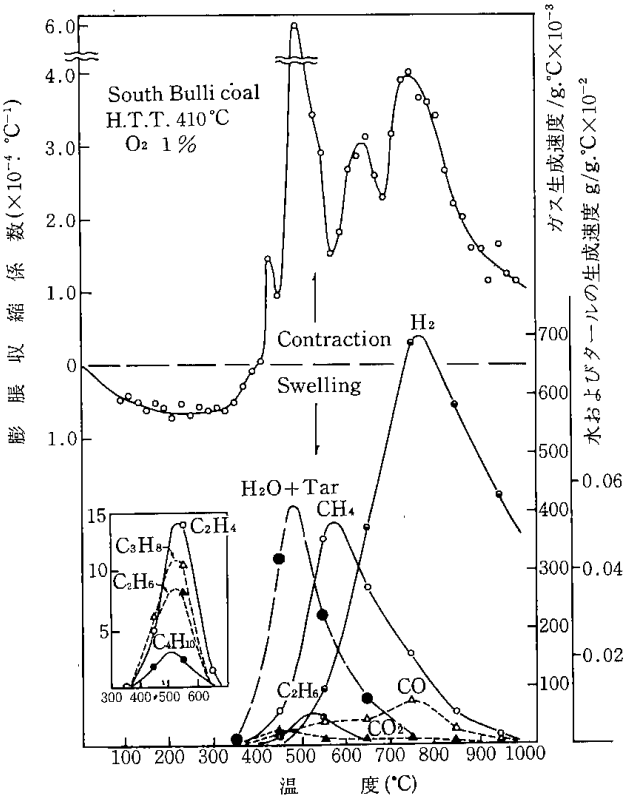
両者ともピークⅡ，ピークⅢについては同様の結果を示しているが，切り出し試料についてはピークⅠを形成する前に著るしい膨脹を示した後収縮している。この膨脹は，テストピースが熱間でかつ高圧下でち密に成形されているため，内部から水，タール類および分解ガスが脱離する時の通気抵抗により生ずるためと考えられる。それ故，成形炭の焼成では，この過程を徐熱することが望ましい。

以上，熱処理炭および加熱成形炭について種々の観点からコークス化過程について検討してきた。配合炭におけるピークⅠの加成性，昇温速度によるピークの収縮係数の変化，また，ピークⅠの収縮量が脱揮発分量と比例関係にあることなどから成形炭のコークス化の適正焼成条件を類推することができる。

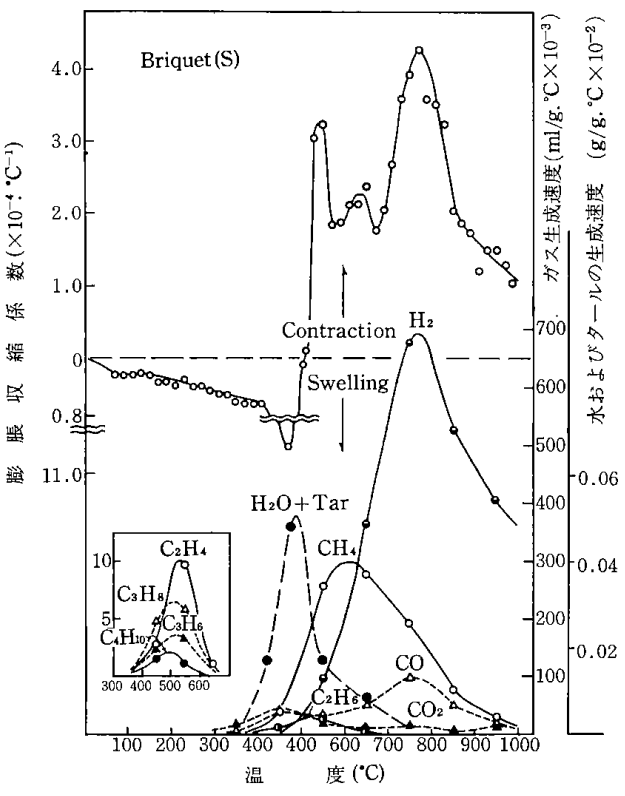
ⅱ） 分解ガスの発生速度

図Ⅰ-3-11 は，テストピースに使用した試料炭の中で配合割合の高いサウスブライ炭について，ガスおよびタールの発生速度を膨脹収縮係数と対比させて示した。

ピークⅠに相当する温度領域では，水およびタールが約490℃で，C_2 以上の炭化水素類が500～530 ℃で発生速度の極大値を示している。ピークⅡの領域では750℃で一酸化炭素，770℃で水素の極大値を示している。ピークⅢの領域では C_2 以上の炭化水素類の



図Ⅰ-3-11 サウスブライ熱処理炭の膨脹収縮曲線と分解ガス発生速度の対比



図Ⅰ-3-12 小型ブリケットの膨脹収縮曲線と分解ガス発生速度の対比

発生がほとんど終っているが，メタンガスは激しく発生しており600℃で極大値を示している。

おのおののピークについて分解ガス発生状況から定性的に考察すると，ピークⅠは，前述の熱重量分析の結果から推察したように，水，タールおよび重炭化水素類の低分子物の脱離によって生ずると考えることができる。

ピークⅡについては，従来から指摘されているように主として芳香族環の脱水素による縮合または環化反応による芳香族環の大分子化によって生ずるものと考えられる。

また，新たに認められたピークⅢはメタンガスの発生がいまだ激しい領域にあることから，主として脱メタン反応に関連があると推察されるが詳細にはさらに検討を加える必要がある。

図Ⅰ-3-12 はテストプラントで使用しているブリケット（小型）についてガス発生速度と膨脹収縮係数を対比して示した。

図に示すように，テストピースと同様にピークⅠに相当する領域で著るしい膨脹を示した後，三つの収縮ピースが認められる。各種のガス発生速度はサウスブライ炭とほぼ同様の傾向を示している。

これらのことから，ブリケットのコークス化過程を考察してみると，低温域（400～600℃）ではタールおよび炭化水素類の低分子物が内部より脱離するときの抵抗により始めは膨脹現象となって現われ，内部からの脱離が容易になった後は収縮過程に入り，半成コークスの単位体を形成する。さらに高温域（600℃以上）ではメタンについで水素，一酸化炭素を放出しながら単位体が結合し，コークス化が進んでいくものと考えられる。

Ⅰ-4 ブリケットの焼成試験

当所のテストプラントに使用している二種のブリケットを対象として，管状電気炉を用いて高温焼成実験を行った。

実験室的に各種条件下でドラム強度を測定できる量をコークス化することは困難であるため，成形炭1ヶを焼成した後亀裂発生状態を観察し，その良否の判定を行った。また，亀裂発生を左右する因子である装入温度と昇温速度の影響について，重点的に検討した。

Ⅰ-4-1 試料および実験方法

ブリケットは石炭技術研究所で製造したもので，その性状は**表Ⅰ-4-1** に示した。表中耐圧強度はインストロン圧縮装置で測定した値であり，試料はブリケットから直方体に切り出し，その高さは約14mmである。

表Ⅰ-4-1　成　形　炭　性　状

試料	工業分析値 水分(%)	灰分(%)	揮発分(%)	固定炭素(%)	見掛比重 (g/cm³)	耐圧強度 (kg/cm²)
成形炭（小）	1.5	10.0	19.3	69.2	1.16～1.20	181
成形炭（大）	1.3	8.3	17.1	73.3	1.15～1.18	148

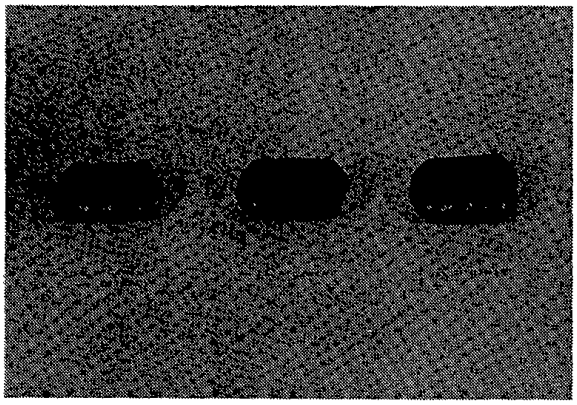
圧縮方向は成形時の圧縮方向と同じであるが，大型の原料ブリケットは小型に比較して強度的に弱い。

ブリケットの焼成方法は管状電気炉（80 φ × 1000 mm）にブリケット一個を炉中心に懸垂し窒素ガス雰囲気下で，種々の昇温速度で焼成した。同時にブリケットの表面および中心に熱電対を取りつけ焼成時における単一ブリケットの温度分布を測定した。

Ⅰ-4-2　実験結果および考察

ⅰ）　小型ブリケットの焼成試験結果

写Ⅰ-4-1 は室温から1000 ℃まで10, 15, 20 ℃/min の昇温速度で焼成した場合の成形コークスである。写真で明らかなように10 ℃/min では亀裂も少なく良



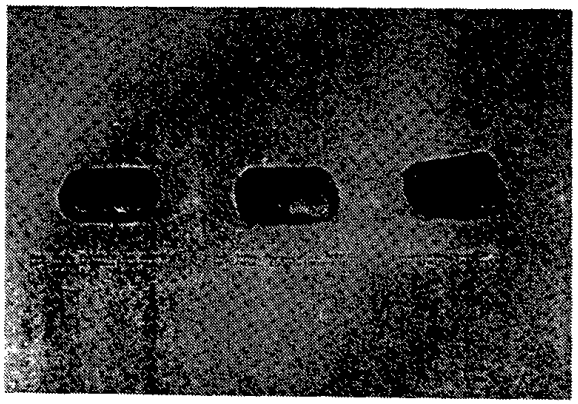
写Ⅰ-4-1　室温からの焼成結果（小型）

好な成形コークスが得られているが15℃/min 以上では昇温速度が速くなるにつれ亀裂が大きくなっている。

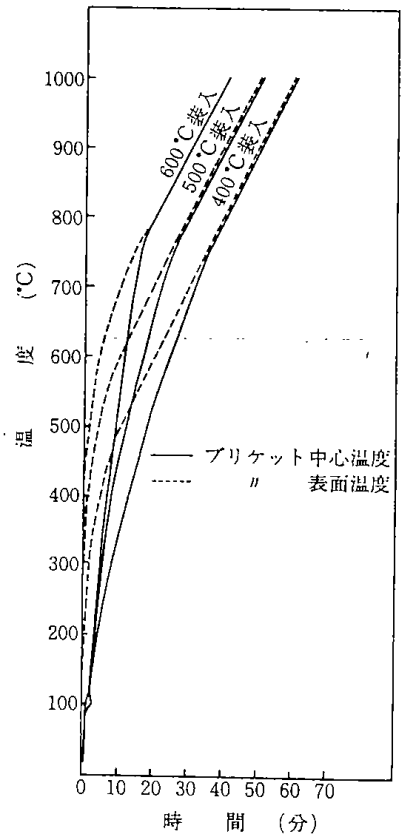
次に，一定炉温中にブリケットを装入し，以後1000 ℃まで炉温を10 ℃/min の加熱速度で焼成し，装入温度の影響を検討した。

写Ⅰ-4-2 は400，500，600 ℃ の炉温中に装入した場合であり，その加熱曲線は**図Ⅰ-4-1** に示した。図中破線は表面温度，実線は中心温度である。

写真で明らかなように400 ℃ 装入の場合は亀裂も少なく良好な成形コークスが得られているが，装入温度が500，600 ℃ になるに従い亀裂が大きくなっている。このことは加熱曲線から，高温で装入するほど表面と中心部の温度差が大きく，膨張収縮曲線（**図Ⅰ-3-12** 参照）と対比すると表面付近で収縮が進んでいるのに，中心部ではまだ著るしい膨張を示す温度領域に対応している。また，ブリケット中心の昇温速度をみると，400 ℃装入では約15 ℃/min であるのに対し，600 ℃ 装入では，約38℃/min にも達し，テストピースから



写Ⅰ-4-2　ショックヒーティング法による焼成結果（小型）



図Ⅰ-4-1　小型ブリケットの加熱曲線

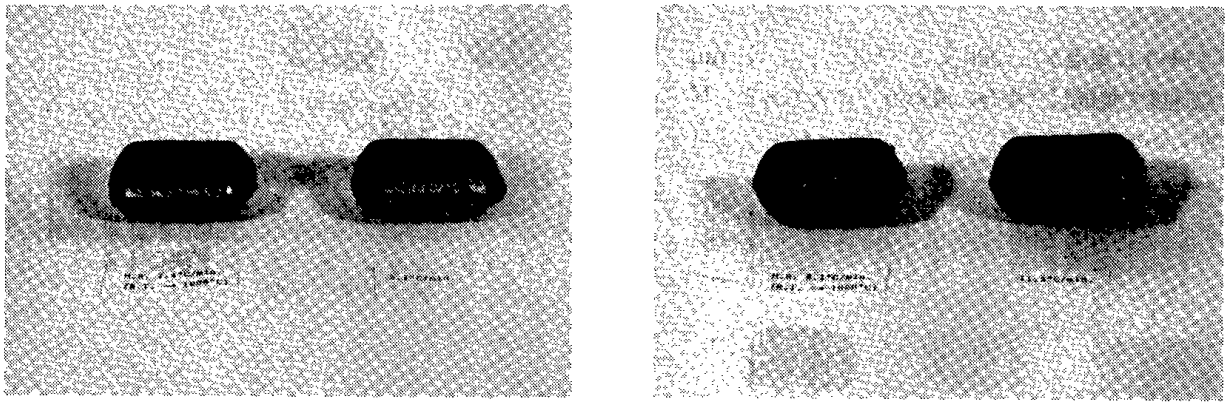
得られた適正昇温速度の限界をはるかに越えている。したがって小型ブリケットについては400℃の装入温度で10℃/min 以下の昇温速度が適正条件である。

ii） 大型ブリケットの焼成試験結果

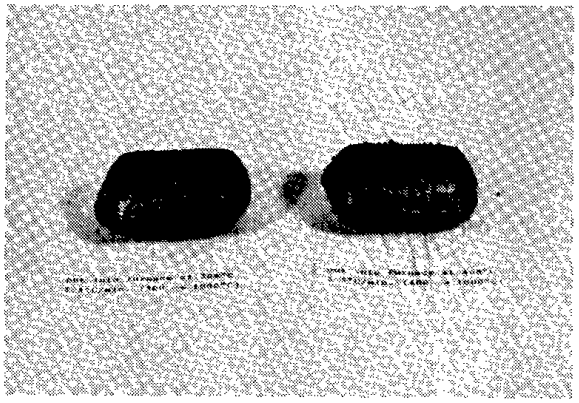
写Ⅰ-4-3 に室温から1000℃まで2.4～11.3℃/minの昇温速度で焼成した成形コークスを示す。写真にみられるように2.4℃/minになると亀裂はないが表面にガスが発生する際に生じたと思われる小さな孔があり，またカルメラ状のものが付着し，さらに急速に加熱するとこの状態は顕著になる。8.1℃/minになると横割れが生じ，11.3℃/minでは亀裂が多くかつ大きくなっている。

写Ⅰ-4-4は一定炉温中（300，400℃）にブリケットを装入し，1000℃まで約5℃/minで焼成した場合である。また，**写Ⅰ-4-5** は400℃で装入し，同温度にそれぞれ0，10，20分間保持した後，約5℃/minの昇温速度で焼成した場合の成形コークスである。

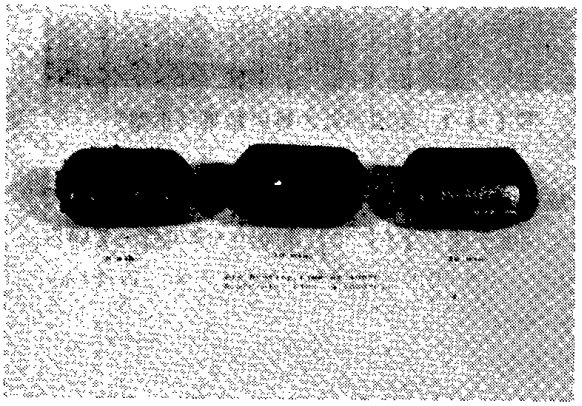
300℃装入では，亀裂もなく良好なものが得られたが，400℃ではわずかであるが亀裂が生じ始めている。このことはテストプラント実験で装入温度290℃以下でブリケットのこわれが少なくなる結果とも一致している。400℃装入で保持時間を長くすると亀裂はなく良いものがえられる。このことは装入温度が多少高くても，保持時間を長くすることにより，表面と中心の温度差が小さくなり，コークス品質に有利に働くものと考えられる。これらのことは実炉における熱間装入の有利さを証明している。すなわち加熱成形後直ちに装入する熱間装入では，成形炭の表面と中心の温度差



写Ⅰ-4-3 室温からの焼成結果（大型）



写Ⅰ-4-4 ショックヒーティング法による焼成結果（大型）



写Ⅰ-4-5 ショックヒーティング焼成による保持時間の影響（大型）

が小さいため，コークス強度の面からも，また熱経済的にも有利である。事実，熱間装入による強度は冷間装入に比べると約2倍[8]の強度を示すことが報告されている。

iii） 小型と大型ブリケットの比較

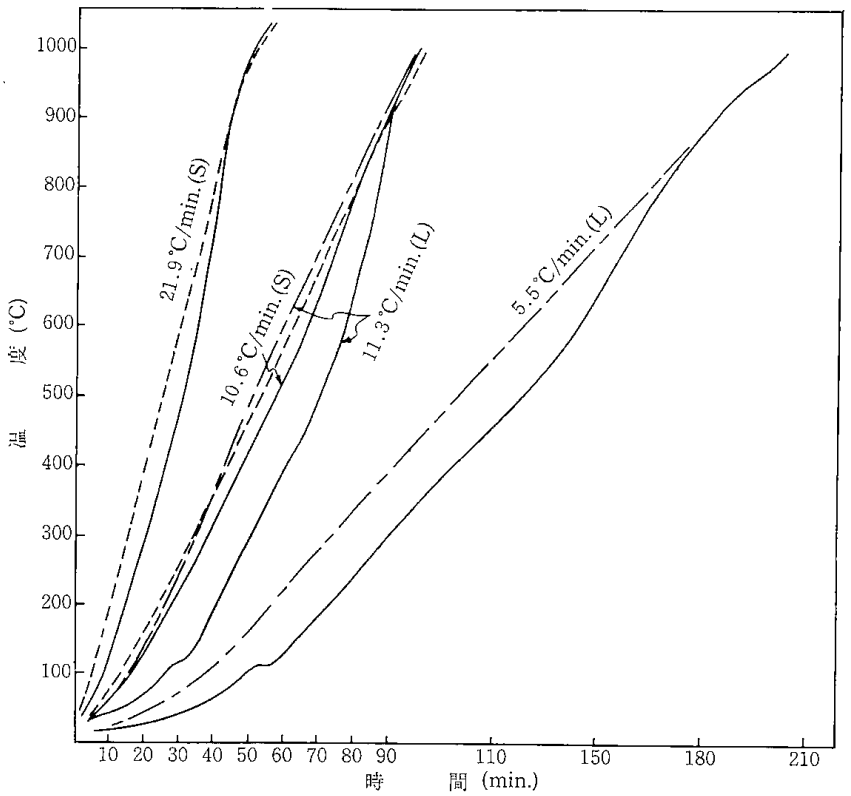
図Ⅰ-4-2 は小型と大型ブリケットについて室温から1000℃まで種々の昇温速度で焼成した場合の加熱曲線の一例である。小型に比べ大型ブリケットの表面と中心の温度差はかなり大きいことがわかる。

図Ⅰ-4-3 は小型と大型ブリケットのほぼ同じ昇温速度で焼成したときの表面温度に対するブリケット表面と中心との温度差（ΔT）およびブリケット中心温

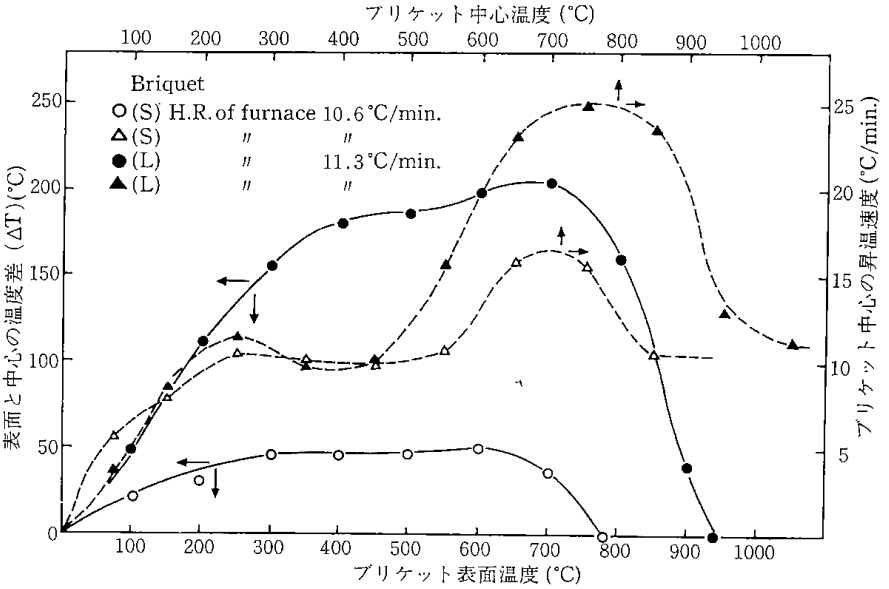
度とその温度での昇温速度との関係を示した。また，**表I-4-2**に種々の昇温速度に対して前図を大まかにまとめた値を比較のため示した。

図中，ΔTについてみると大型ブリケットは小型に比べ約4倍の温度差がある。また，ブリケット中心の昇温速度についてみると約500℃付近から急激に大きくなっており，テストピースを使用して検討した600℃以上の2段目の昇温速度が約15℃/min以上になると強度が低下してきたことと考え合せると，大型については適正加熱の限界を越えており，この焼成条件では不適当であることがわかる。このようにほぼ同一の焼成条件でも両者の中心部の昇温状態は著るしく異なっているが，**表I-4-2**に示したように大型ブリケットの場合5.2℃/minで焼成した場合，中心の昇温速度あるいは温度差ΔTが小型の10.6℃/minの場合に対応している。

これらのことから大型ブリケットは5～6℃/min以下の昇温速度で焼成する必要があり，事実写真で示したように5.5℃/min以下で焼成した場合亀裂も殆



図I-4-2 小型，大型ブリケットの加熱曲線



図I-4-3 小型と大型ブリケットの中心温度差とその昇温速度

表I-4-2 小型および大型ブリケットの焼成速度に対する比較

		Large briquets			Small briquets		
H.Rate of furnace (℃/min)		5.2	8.1	11.3	10.6	15	20
H.Rate of briquet's center (℃/min.)	400～600℃	5.5	9.0	13.3	10.5	17.4	21.0
	600℃～ΔT＝0	8.5	17.1	25.0	14.8	21.1	40.0
Max. ΔT (℃)		90	135	200	50	75	100

んどなく良好な成形コークスが得られている。

I-5 まとめ

以上，実験室的規模の装置を用いて実施してきた成形コークス製造についての基礎実験結果を述べてきたが，その要点を総括的に記すとつぎのとおりである。

1）テストピースによる実験から流動化法により非粘結炭を配合した試料を熱間成形する条件は層内温度410～440℃であり，保持時間は全般的に短い方が良好で，流動化ガス中の酸素濃度1%が適正と判断された。

2）加熱成形炭がコークスに移行する領域での熱膨脹収縮係数の測定を行い成形炭のコークス化過程を考察した。

膨脹収縮係数変化の特徴的なことは次のとおりである。

イ）炭種によっては約650℃付近に新しい収縮ピークを認めた。

ロ）収縮ピークI（470～500℃）およびピークII（750～800℃）は昇温速度が速くなると微分変化量は大きくなることが認められた。

ハ）ピークIについては炭種配合による加成性が認められたことから適正な炭種の選定および配合割合についての一つの指針となりえる。

ニ）成形炭から切り出した試料はピークIを形成する前に著るしい膨脹ピークを示した。

3）テストピースによる高温焼成実験から，最終焼成温度は1000℃以上が望ましく，焼成速度は600℃までは10℃/min以下，600～1000℃では15℃/min以下で行う必要がある。

4）工場実験で使用した2種類のブリケットについて電気炉による焼成実験を行った結果，小型ブリケットでは400℃装入で10℃/min以下，大型ブリケットでは300℃装入で5℃/min以下が適正であった。

〔謝辞〕

終りに本研究を進めるにあたりガス分析については北開試第2部第2課高橋富樹技官，圧縮強度の測定については第3部第3課窪田大技官，流動熱処理反応管の製作については笹森政敬氏の協力をいただいた。ここに併記して感謝の意を表する。

文献

1）西野，武田，燃協誌，**48**，226，(1969)
2）D.W.Van Krevelen.，"Coal" P17 (1961)
3）J.L.Soulē, Fuel, **34**, 68 (1955)
4）熊井ら，燃協誌，**50**，655 (1971)
5）大内，本田，同誌，**40**，845 (1961)., Fuel, **38**, 429 (1959)
6）西野，武田，吉田，日本化学会，夏季研究発表会，D-14 (1971)
7）吉田，コークスの研究，コークスシリーズ第5号 (1954～1955)
8）吉田ら，燃協誌，**46**，610，(1967)

製鉄用成形コークス製造に関する研究－II
—横型媒体流動層に関する基礎的研究—

平間利昌・弓山　翠・山口　弘・藤岡丈夫

II-1　はじめに

一般的に用いられている気—固系流動層内で流動化している粉粒体の粒径は，ほとんどの場合，数10μから2～3mm程度の範囲である。特殊な例として平均粒径が約8mmのセメントクリンカーを流動させたセメント焼成炉[1]および平均粒径が約5mmの鉄鉱石ペレットの流動還元炉[2]の運転結果などが報告されている。しかし，このように大粒径の粒子を直接流動化させる場合，流動化ガス速度が極めて大きくなり，さらに流動状態が不安定となるなど装置的に難点がある。一方，気—固反応装置としての流動層は，気—固間の接触や伝熱，物質移動などの点ですぐれているばかりでなく，装置の操作や連続化が比較的容易であることなど，利点も多い。

従って，このすぐれた特徴を利用しながら，通常の流動層では安定な流動化の困難な固形物（たとえば大粒径のもの，あるいは木材チップのような不規則な形状のものなど）を，流動化の容易な微粒子を流動化させた層内で処理しようとする試みもなされてきている。

石田ら[3]はu_{mf}が約5および18cm/secの硅砂を用いた攪拌流動層内で，平均径が9.1mmの鶏糞を焼却処理した結果を報告している。また著者ら[4]は平均径が約6mmの石炭ペレットを，カンラン岩粉を媒体とする流動層内で賦活する実験を行った。この結果によれば，カンラン岩粉単体のu_{mf}は17cm/secであり，石炭ペレット単体のu_{mf}は140cm/secであるが，たとえばカンラン岩粉と，石炭ペレットを2対1の重量比で混合させた場合，ガス速度が約40cm/secで層内粒子全体が流動化を開始した。すなわち，この条件では石炭ペレット単体に比較して1/3以下のガス速度で石炭ペレットの流動化が可能であり，カンラン岩粉は石炭ペレットの流動化および伝熱のための媒体として作用している。

著者らはこのような装置形式を媒体流動層と名ずけた。媒体流動層と類似した装置形式として充填流動層[例えば5]があるが，充填流動層は沈積したまま固定している充填物相互の空間を流動化粒子が流動するものであり，媒体流動層とは装置としての適用分野にも違いがある。媒体流動層は充填物（固形物）をも浮遊あるいは流動化させ，それによって充填物（固形物）の連続処理を可能とする点に特徴がある。

著者らはこのような媒体流動層形式を製鉄用成形コークス製造プロセスの成形炭焼成工程に適用した。対象とする成形炭は球径換算で数cmの大きさ[48]で見掛け比重は1.2程度であり，これを単独で流動化させることはほとんど不可能である。そこで粒子密度が比較的高く，耐熱性のすぐれた粒子（鋳物砂など）を媒体とする流動層内で成形炭を浮遊あるいは流動化しつつ，連続的に高温焼成することとした。その際，いわゆる1筒式の連続流動層では，高温炉内に成形炭を装入するためヒートショックを受け，ひび割れの原因となる。また滞留時間分布が拡がり，未焼成の成形炭が排出されることが予測されるので，流動層を横型とし，成形炭の供給口から排出口までの距離をできるだけ長くすることとした。

しかし，気—固系流動層中で実際に数cmもの大きさの固形物を浮遊流動化させた例[49,50]は少なく，媒体流動層の挙動や装置特性および流動層内に温度分布をもたせるような応用例に関する知見もほとんどない。part IIでは，成形炭の高温焼成装置の設計に関する基礎資料を得る目的で実施した媒体流動層の流動化および横型流動層，横型充填流動層ならびに横型媒体流動層における横方向の伝熱特性について検討した結果を報告する。

II-2　気—固系流動層内におかれた単一球に働く力[6]

II-2-1　緒　　言

Bicknellら[7]および吉留ら[8]は，それぞれ気—液系流動層および気泡塔の中に単一球を挿入し，単一球に働く抵抗力と操作条件との相関について検討している

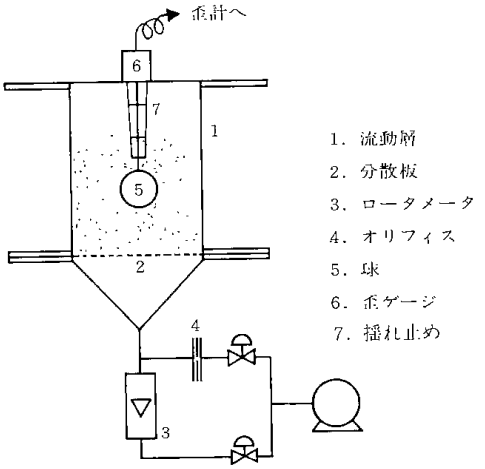
が，気一固系流動層での実験例は見当らない。

著者らは媒体流動層装置設計のための基礎データーを得ることを目的として，２種類の流動層を用い，層内に懸垂した球体に働く上向きの力を測定し，その力におよぼすガス流速，流動化粒子，球体の大きさ，球体の懸垂位置の影響などについて検討した。さらに球体を懸垂した場合と自由に浮遊させた場合の比較も行った。

II-2-2 実験装置および実験方法

図II-2-1に実験装置の概略を示す。使用した流動層は塔径D_Tが104mmおよび378mmの２種類，分散板は104mmϕ塔では沪布の上に正三角形配列で1mmϕの孔を明けた多孔板（開孔比約１%）を重ねたもの380mmϕ塔では正三角形配列で2mmϕの孔を明けた，多孔板（開孔比約１%）をそれぞれ用いた。流動化粒子の静止層高L_{mf}はいずれの場合も130mmとした。

実験は固定した歪ゲージに3mm鋼線で懸垂された球体を流動層中に挿入し，球体に働く上向きの力を歪計に記録することにより行った。記録時間は１～２分間とし，その間の平均値から上向きの力Fを求めた。



図II-2-1 実 験 装 置

懸垂した球体は37.5, 30.5, 23.8, 18.0, 15.3, 12.6 mmϕの６種類で，その挿入位置は104mmϕ塔では水平断面で常に層の中心位置とし，380mmϕ塔では半径方向位置（r/R_T）を変化させた。通常の場合，目皿から球体の中心までの高さL_Pを75mmとした。

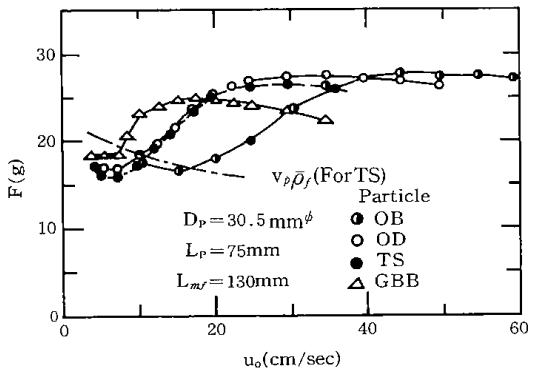
使用した流動化粒子の物性値を表II-2-1に示す。流動化開始速度における層内密度ρ_{mf}および，平均層内密度$\bar{\rho}_f$は層内重量と層高から求めた。

球体を固定しないで自由に浮遊させる実験では，37.5mmϕで比重が1.0から0.1きざみで2.0までの球体を使用した。

II-2-3 実験結果と考察

i) D_T＝104mmϕ塔内に球体を懸垂した場合

数種の流動化粒子を使用し，静止層高L_{mf}＝130mm，球体の直径D_P＝30.5mmϕ，目皿から球体の中心までの高さL_P＝75mmの条件下で測定した上向きの力Fとガス流速u_oの関係を**図II-2-2**に示す。ガス流速がu_{mf}でFはある値をとり，u_oの増加につれて一旦減少する。さらにu_oを増加させるとFも増加し，最大値に達したのち再び減少する。これは流動化粒子や懸垂球体の直径を変化させても同様の傾向を示した。一方，



図II-2-2 上向き力Fにおよぼすガス流速の影響

表II-2-1 流動化粒子の物性値

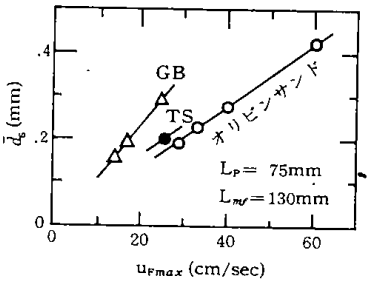
	d_s (mm)	$\bar{d}_s$ (mm)	ρ_s (g/cc)	ρ_{mf} (g/cc)	ϵ_{mf} (—)	u_{mf} (cm/sec)
オリビンサンドA (OA)	0.35～0.50	0.42	3.24	1.52	0.53	24
〃 B (OB)	0.25～0.30	0.27	3.24	1.52	0.53	10
〃 C (OC)	0.21～0.25	0.23	3.24	1.53	0.53	7.0
〃 D (OD)	0.18～0.21	0.19	3.24	1.52	0.53	5.0
ガラスビーズA (GBA)	0.25～0.35	0.29	2.50	1.50	0.40	6.8
〃 B (GBB)	0.18～0.21	0.19	2.50	1.47	0.41	3.4
〃 C (GBC)	0.15～0.18	0.16	2.50	1.46	0.42	2.6
豊浦砂 (TS)	0.13～0.30	0.20	2.65	1.42	0.46	3.6

流動化粒子の違いによる影響をみると，ガラスビーズにおけるFの値は，オリビンサンドや豊浦砂と比較して，u_{mf} 近傍において大きいが，最大値F_{max}は小さくなっている。この傾向は懸垂球体の直径D_pを変化させても同様であった。なお，図中の一点鎖線は，流動層をあたかも液体のように考えたとき球体に働く見掛けの浮力（$v_p \bar{\rho}_f$）の計算値を豊浦砂の場合について示してある。u_{mf}近傍でのFは（$v_p \bar{\rho}_f$）より小さくなっており，これは他の流動化粒子についても同様であった。

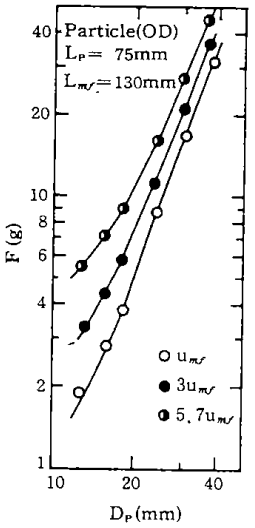
図II-2-3にはFの最大値におけるガス流速U_{Fmax}と流動化粒子の平均粒径$\bar{d}_s$の関係を示す。図に示すように同一種類の流動化粒子では，$\bar{d}_s$とu_{Fmax}はほぼ比例関係にある。しかし，$\bar{d}_s$が一定で比較すると，ガラスビーズ，豊浦砂，オリビンサンドの順でu_{Fmax}が小さくなっている。

図II-2-4にはガス流速u_0をパラメータとして，懸垂球体の直径D_pとFの関係を示す。図に示すように$u_0 = u_{mf}$のとき，FはD_pとほぼ直線関係にあり，その勾配は約3である。このことから，u_{mf}近傍では流動化粒子がほとんど運動しないため，層内での見掛けの浮力すなわち$v_p \times \bar{\rho}_f$（$=\frac{\pi}{6} D_p^3 \times \bar{\rho}_f$）がFの支配的な因子の一つとなっているものと考えられる。しかし，u_{mf}近傍では球体の上にいわゆるデッドスペースが形成される[9]と考えられるので，単純に$v_p \times \bar{\rho}_f$のみで論ずることはできない。これは図II-2-2において豊浦砂のu_{mf}近傍におけるFの値が（$v_p \times \bar{\rho}_f$）よりもかなり小さいことからも推察できる。すなわちu_{mf}近傍でのFの値は，見掛けの浮力による上向き力と球体上に形成するデットスペースによる下向き力との和と考えられ，定性的には同種類の流動化粒子によるデッドスペースの体積はD_p^3に比例する[9]ため$F \propto D_p^3$の関係が成立する。一方，流動化粒子が異なるとその安息角も異なり，その増加にともなってデッドスペースの体積も増加することが知られている[9]。図II-2-2においてρ_{mf}の小さなガラスビーズが，u_{mf}近傍で最も大きなFの値を示すのは安息角の差によるものと推察される。また，u_0が増加すると流動化粒子が激しく運動して球体に抗力を与え，その抗力はD_pの2乗に比例する。図II-2-4において，u_0の増加およびD_pの減少によって勾配がゆるやかになっているのは，Fに対する粒子の運動による抗力の影響が大きくなることを示していると考えられる。

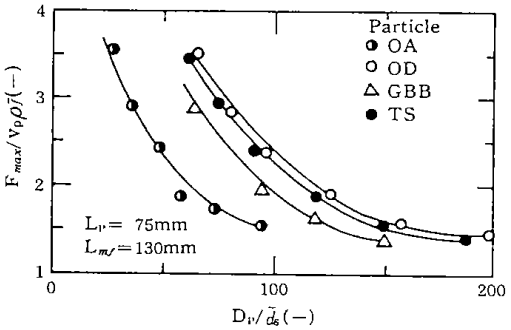
そこでD_pと$F_{max}/v_p \bar{\rho}_f$の関係を示したのが図II-2-5である。ここにF_{max}はFの最大値であり，$\bar{\rho}_f$はそのときの層内密度である。先に述べたようにF_{max}は主に見掛けの浮力と流動化粒子の運動による抗力の和であると考えれば，$F_{max}/v_p \bar{\rho}_f$の値が大きくなるほど，F_{max}に対する抗力の影響が大きいと考えることができる。この図から，D_pが小さくなると明らかに抗力の影響が大きくなっている。一方，D_pが大きくなると，$F_{max}/v_p \bar{\rho}_f$は次第に1に漸近し見掛けの浮力の影響が大きくなっている。また同じ$\bar{d}_s$に対しては，表面の滑らかなガラスビーズの方が粒子の抗力による影響が小さく，オリビンサンドおよび豊浦砂はほとんど



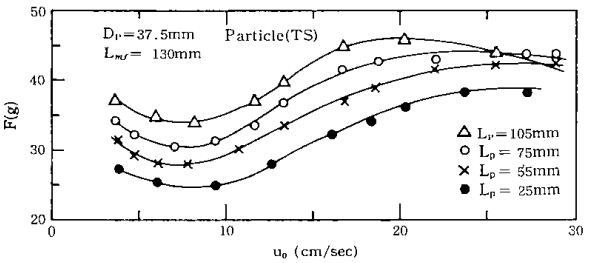
図II-2-3 $\bar{d}_s$とu_{Fmax}の関係



図II-2-4 FにおよぼすD_Pとu_0の影響



図II-2-5 $F_{max}/v_p \bar{\rho}_f$とD_P/d_sの関係



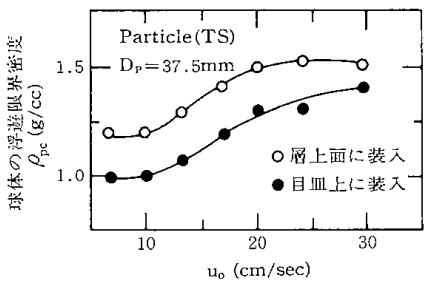
図II-2-6 F の垂直方向の分布

同等である。

図II-2-6には，目皿から球体の中心までの高さ L_P を変化させた場合のF の測定結果を示す。いずれも水平断面上では塔の中心位置で測定している。図に示すようにF は L_P の増加につれて大きくなっているが，u_0 を増加させると層上部でのF は急速に減少している。

ii) 単一球体を自由に浮遊流動化させた場合

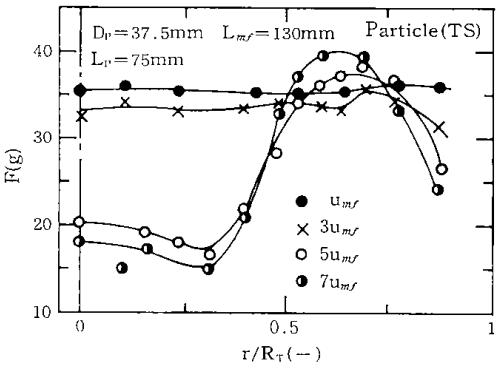
104mmφ塔内で豊浦砂を流動化させた層内に所定の密度に調整したD_P=37.5mmφの単一球体を，目皿直上および層上面に装入して約2分間放置し，その球体が層内で浮遊したまま運動を続けているか，あるいは目皿上に沈降して運動を停止しているかを判定した実験結果を**図II-2-7**に示す。それぞれの装入位置により，黒丸または白丸で示した密度以下の球体は層内を浮遊し，その密度をこえる球体は目皿上に沈降することを示す。この限界の密度から $F=v_p\rho_{pc}$ としてFを算出し，**図II-2-6**の結果と比較すると，u_{mf} 近傍を除けば，球体を目皿上に装入したときの値はL_P=25mmの値に，層上面の場合はL_P=75mmの値にそれぞれほぼ等しくなっている。一方，u_{mf} 近傍ではいずれも球体を固定しない場合の方が大きくなっている。これは球体上に形成されるデッドスペースが，球体の運動によって減少あるいは消失するためと考えられる。また目皿直上では層上部に比較してF が小さいことから，球体を安定に浮遊させるためには，目皿直上における浮遊条件を基準に考える必要がある。さらに目皿直上と層上面との球体の浮遊限界密度が異なっていることから，球体は比較的層上部のみで浮遊しているものと推察される。しかし，これらについては，さらにD_P，D_T などの影響も含めて考察する必要がある。



図II-2-7 単一球の浮遊限界密度

iii) D_T=380mmφ塔内に球体を懸垂した場合

これまで塔径がD_T=104mmの場合の実験結果について述べたが，この程度の流動層では気泡とそれに同伴する粒子が層の中心部を上昇し，壁近傍を下降する典型的なフローパターンが形成され，実験結果にはその影響が強く現われているものと考えられる。そこで塔径および塔内位置の影響を検討する目的で，D_T=378mmの塔を用い，半径方向の球体懸垂位置 r/R_T



図II-2-8 F の半径方向の分布
(D_T=378mm)

を変化させてF の分布を測定した結果を**図II-2-8**に示す。実験条件はL_{mf}=130mm, L_P=75mm, D_P=37.5mmφとし流動化粒子には豊浦砂を用いた。図に示すようにu_0がu_{mf}ないし3u_{mf} 程度では，粒子の動きも緩漫なため層の水平断面全体にわたってほぼ一様なF の分布が現われている。u_0の増加につれてF の分布が大きくなりr/R_Tがほぼ2/3の位置にFの極大点が現われる。またこの極大点はu_0の増加につれて少しづつ塔の中心側に移動している。この結果は，間接的に粒子のフローパターンを表わしており[10] Fの極大点付近では粒子の上昇流が主であり，塔壁部および塔の中心部付近では下降流が主体となっているものと考えられる。また，ほぼ定常的に粒子の上昇流が存在していると考えられるr/R_Tが約2/3の位置におけるu_0とFの関係は，104mmφ塔における結果と同様の傾向を示している。

II-2-4 結　論

流動層内に懸垂した単一球体に働く上向きの力F を測定し，次のことがわかった。

1) F はu_{mf} 近傍では懸垂球体の直径D_Pの3乗にほぼ比例し，ガス流速u_0が増加するにつれてしだいにD_Pの指数が2に近づく。このことから，u_{mf}近傍では見掛けの浮力とデッドスペースによる下向きの力が

Fの主な因子であり，u_0が増加すると流動化粒子の運動による抗力の影響が大きくなるものと推察される。

2)ガラスビーズのような比較的球形に近い流動化粒子は，オリビンサンドや豊浦砂に比較して，u_{mf}近傍でのFが大きく，見掛けの浮力（$v_p\bar{\rho}_f$）に近い値を示す。一方，u_0が大きくなると粒子の抗力の影響は，相対的にガラスビーズの方が小さくなる。

3)D_Pが小さいほどFに対して相対的に粒子の抗力の影響が大きくなる。一方，D_Pが大きくなるとFは相対的に見掛けの浮力に近い値を示す。

4)u_0を増加して層内粒子の運動が激しくなるにつれてFの層内分布も極めて大きくなる。

球体を自由に浮遊させた実験も行い，球体を懸垂した場合の結果と比較したが，これについてはさらに検討する必要がある。

〔謝辞〕

D_T=380mmϕの実験では当所富田稔氏，安達富雄氏の実験装置を使用させて頂きました。ここに記して謝意を表します。

II-3　媒体流動層の流動化について[11)]

II-3-1　緒　　言

II-2では流動層内に単一球体を装入し球体に働く力について検討した。しかし流動層内に多量の充塡物を浮遊させた媒体流動層では，単一球体の場合とは異なった層内挙動を示すものと考えられる。ここではこのような媒体流動層を形成することが可能な操作領域について検討し，さらに最少流動化速度，層内圧力損失，層膨脹など，媒体流動層の基本的な装置特性について充塡流動層[5,12,13)]や通常の流動層と比較しながら検討した結果について報告する。

II-3-2　実験装置と実験方法

流動層はアクリル製で塔径D_Tが122mmϕ,塔高1500mmである。分散板には開孔比1％の多孔板上に沪布を重ねたものを用いた。

使用した流動化粒子と充塡物の物性値を**表II-3-1**に示す。ピンポン球は内部に砂を充塡して比重を調整したものである。なお流動化ガスには空気を用いた。

実験は，まず流動化粒子を一定量（$L_{mf}/D_T \fallingdotseq 1$）充塡し，その上に出来るだけ規則正しい配列で充塡物を充塡する。その後一旦層内を流動化させて，充塡物の配列が安定になったのち所定の測定を行った。

なお，本節で使用する符号の詳細を**表II-3-2**にまとめて示す。

表II-3-1　流動化粒子と充塡物の物性値

		$\bar{d}_S$ or D_P ((mm)	ρ_S or ρ_P (g/cc)	ρ_{mf} (g/cc)	u_{mf} (cm/sec)	ϵ_{PP} (—)
ガラスビーズ	(GB1)	0.321	2.54	1.51	9.8	
〃	(GB2)	0.201	2.54	1.41	3.7	
〃	(GB3)	0.151	2.54	1.32	2.0	
豊浦砂	(TS)	0.200	2.75	1.38	4.0	
砂鉄	(IS)	0.210	4.54	2.05	5.4	
ピンポン球	(PS)	37.8	1.05 注)			0.50
ナイロン球	(NS1)	25.4	1.11			0.47
〃	(NS2)	19.1	1.11			0.44
〃	(NS3)	12.7	1.11			0.41
〃	(NS4)	9.6	1.11			0.40

注）他に1.45および2.30のものも使用した。

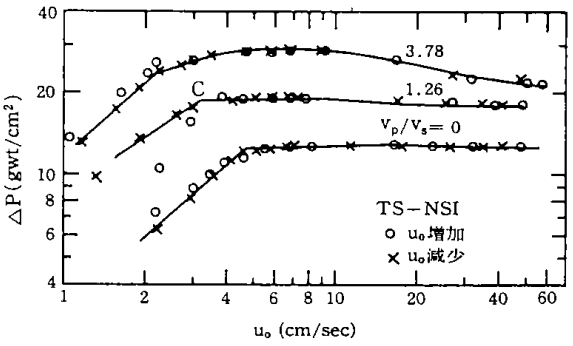
表II-3-2　使用符号の詳細

	T.S	GB1	GB2	GB3	I.S	
P.S	○ $\bar{○}$	◐	◑	◓	◒	$\bar{◒}$ $\underline{◒}$
NS1	△	▲	▲	▲	▲	
NS2	□	◧	◨	⬒	⬓	
NS3	▽	▼	▼	▼	▼	
NS4	×	⋉	⋊	⋉	⋊	

$\bar{○}$, $\bar{◒}$ ρ_P=1.45, $\underline{◒}$ ρ_P=2.3

II-3-3　最小流動化速度と層内圧力損失

媒体流動層における空塔ガス速度u_0と層内圧力損失$\triangle p$の関係を**図II-3-1**に示す。図中V_pおよびV_sはそのぞれ充塡物および流動化粒子の真の体積である。従って，$V_p/V_s=0$は通常の流動層である。また丸印はu_0



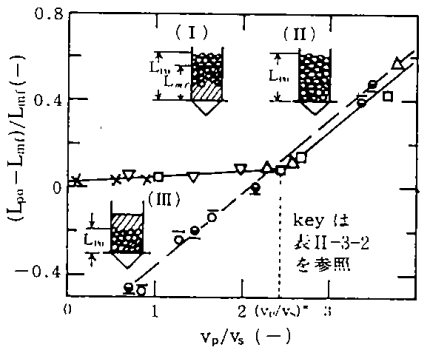
図II-3-1　層内圧力損失とガス流速の関係

を次第に増加させた場合であり，×印はu_0を減少させた場合である。図に示すように媒体流動層における△Pとu_0の関係は通常の流動層のような明確な変曲点が現われないので，この実験ではu_0を次第に減少させた場合の関係を基準として，図中C点を媒体流動層における最小流動化速度u'_{mf}とした。また，C点における層内圧力損失を基準の△P′とした。観察によれば，u_0がC点すなわちu'_{mf}を越えると充填物が層内で運動を始め，u'_{mf}以下では充填物は静止している。

II-3-4　実験結果と考察

i)　媒体流動層を形成する領域について

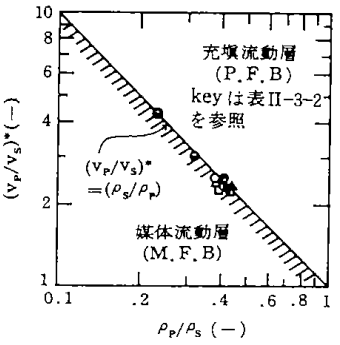
図II-3-2は充填物の量や密度を変化させ，媒体流動



図II-3-2　充填物の層内における挙動と充填物の密度および充填量の関係

層および充填流動層を形成する領域について検討した結果を示す。L_{Po}はu_{mf}のときの充填物の最高位の高さ，L_{mf}は流動化粒子の高さであり，$(L_{Po}-L_{mf})/L_{mf}$とV_P/V_Sとの関係を示している。縦軸が正の場合には図中(I)・(II)のように2通りのケースがあり，(I)は媒体流動層，(II)は充填流動層である。図に示すように豊浦砂を流動化粒子とし，ナイロン球を充填した場合の$(L_{Po}-L_{mf})/L_{mf}$とV_P/V_Sの関係には明確な変曲点が現われる。変曲点におけるV_P/V_Sの値，すなわち$(V_P/V_S)^*$を基準にして，V_P/V_Sが小さければ媒体流動層，大きければ充填流動層となる。また砂鉄を流動化粒子とし比重が2.3のピンポン球を充填した場合と豊浦砂に比重1.45のピンポン球を充填した場合，ピンポン球は多孔板上に沈降し縦軸が負になる(III)。

図II-3-3には$(V_P/V_S)^*$とρ_P/ρ_Sの関係を示す。ρ_P，ρ_Sはそれぞれ充填物および流動化粒子の密度である。



図II-3-3　媒体流動層と充填流動層の境界

図中に示した直線の下側は媒体流動層の領域，上側は充填流動層の領域である。

このことから

$$(V_p/V_s)^*=\rho_S/\rho_P \tag{1}$$

すなわち，媒体流動層の領域は

$$(V_p\rho_p)/(V_s\rho_s) = (w_P/w_S) < 1 \tag{2}$$

となる。ここにw_P，w_Sはそれぞれ充填物および流動化粒子の重量である。

ii)　層内圧力損失△P′

通常の流動層，媒体流動層，充填流動層[5]における層内圧力損失はそれぞれ次式で表わされる。

$$\triangle P = \frac{w_S}{A_T}(g/g_c) \tag{3}$$

$$\triangle P' = \frac{(w_S+w_P)}{A_T}(g/g_c) \tag{4}$$

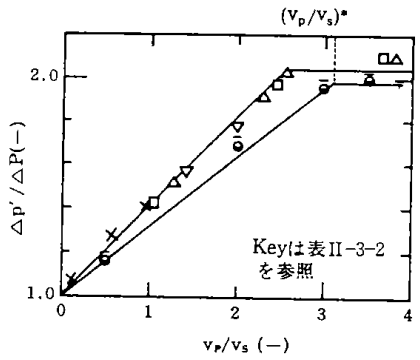
$$\triangle P_P = \frac{w_S}{A_T\times\epsilon_{PP}}(g/g_c) \tag{5}$$

ここにA_Tは塔の断面積，ε_{PP}は充填物を充填したときの層内空間率である。△p′および△p_Pを△pとの比で表わせば，

$$\triangle P'/\triangle P = 1+\frac{w_P}{w_S} = 1+\frac{V_p\rho_p}{V_s\rho_s} \tag{6}$$

$$\triangle P_P/\triangle P = \frac{1}{\epsilon_{PP}} \tag{7}$$

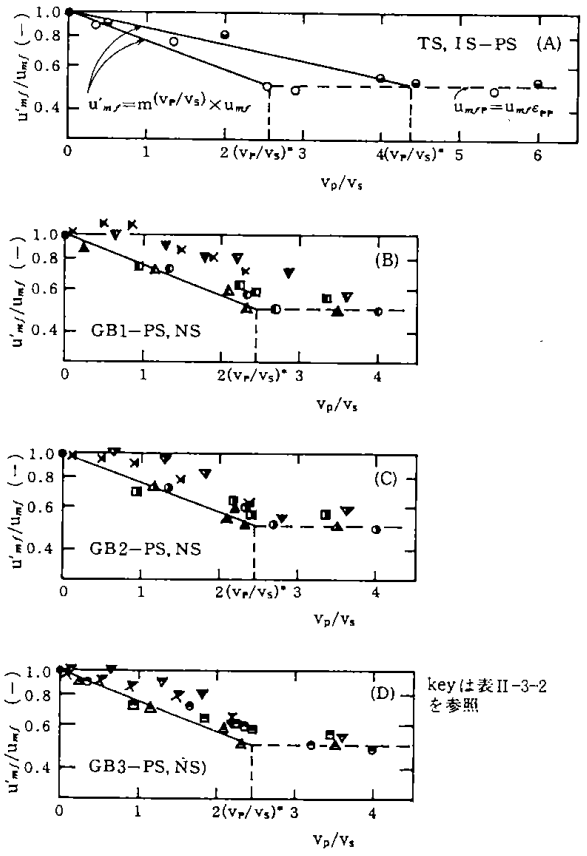
図II-3-4は媒体流動層における層内圧力損失を△P′/△PとV_p/V_sとの関係で示す。実線はそれぞれ理論線であり，$(V_p/V_s)^*$を越えると充填流動層となるため，(7)式にしたがって△P′/△Pは一定となる。図に示すように実測値と理論値はかなり良く一致している。



図II-3-4　媒体流動層の圧力損失

iii) 最小流動化ガス速度 u'_{mf}

u'_{mf} の測定結果の例を図II-3-5に示す。u_{mf} は通常の流動層における最小流動化ガス速度（空塔基準）である。図(A)は流動化粒子に豊浦砂および砂鉄(IS)充填物にピンポン球(PS)を用いた場合，(B)，(C)，(D)は流動化粒子にガラスビーズ(GB)を用い，その径 d_s と充填物の直径 D_P を変えた場合の関係である。図に示すように D_P が25.4mm以上では，u_{mf} は (V_p/V_s) の増加につれて減少し，$(V_p/V_s)^*$ を越えるの一定値となり，充填流動層の最小流動化ガス速度（$u_{mfP}=\bar{\varepsilon}_{pp}\times u_{mf}$）に一致する。図から D_P が25.4mm以上の場合の媒体流動層の領域における u'_{mf} は次式のように表わされる。



図II-3-5　媒体流動層の最小流動化速度

$$u'_{mf}/u_{mf}=m^{(V_P/V_S)} \qquad (8)$$

ただし，$0<(V_p/V_s)\leqq(V_p/V_s)^*$

ここで

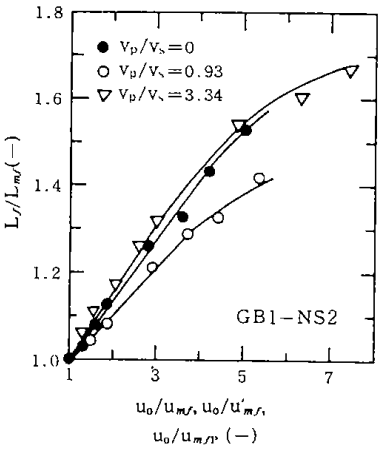
$$\log m=\log(1-\varepsilon_{pp})/(V_p/V_s)^* \qquad (9)$$

であり，mの値は，たとえばTS−PS系で0.76，IS−PS系で0.85，IS−NS 2系で0.88である。

図(A)〜(D)中の実線はいずれも式(8)，(9)にもとづく計算値であり，D_P が25.4mm以上の場合は実験式とよく一致している。しかし，19.1mmの場合は V_p/V_s が小さなところでこの式にほぼ一致するが，$(V_p/V_s)^*$ 近傍ではこの式より高い値を示した。また，12.7および9.6mmの場合には，(V_p/V_s) が小さなところでで u'_{mf}/u_{mf} がほぼ1に等しくなり，さらに (V_p/V_s) が増加させるとその値は減少するが，25.4 mm以上の場合より高い値を示した。またこの傾向は $\bar{d}_s$ が大きくなるほど顕著に現れた。これはII-2で述べたように，$D_p/\bar{d}_s$ の値が小さくなるほど流動化粒子の運動による抗力の影響が大きくなり，充填物と流動化粒子とがともに流動するため $u'_{mf}/u_{mf}\fallingdotseq 1$ となる領域が現われ，見掛け上，充填流動層のようになっても，その空間率 ε_{pp} に一致せず，より高い値を示すものと考えられる。

iv) 層　膨　脹

図II-3-6には L_f/L_{mf} と流動化ガス速度の関係を示す。L_f は流動化粒子の層高である。また，$V_p/V_s=0$ は流動層，3.34は充填流動層であり，0.98は媒体流動層である。図に示すように，u_0 の増加とともに L_f/L_{mf} もほぼ直線的に増加しているがその値は媒体流動層が一番小さく，通常の流動層と充填流動層[5,13]はほぼ同じである。また，定性的に媒体流動層における層膨脹は，D_P が小さいほど大きく，V_p/V_s が増加するにつれて一旦減少し，$(V_p/V_s)^*$ に近ずくにつれ増加する傾



図II-3-6　層　膨　脹

向がある。

II-3-5 結　論

流動層の中に充填物（$\rho_S<\bar{\rho}_f$）を装入し，流動化粒子とともに流動化させた媒体流動層の流動化に関する実験を行い，以下の結果を得た。

1）媒体流動層と充填流動層の境界は次式で表わされ，左辺が1以下で媒体流動層となる。

$$(\rho_P/\rho_S)/(V_P/V_S)^*=(w_P/w_S)^*=1$$

ただし$\rho_P<\bar{\rho}_f=\rho_S(1-\epsilon_f)$

2）媒体流動層の圧力損失 $\triangle p'$ は次式で表わされる。

$$\triangle P'=\triangle P(w_P/w_S+1)$$

3）媒体流動層の最小流動化速度u'_{mf} については$D_P=25.4mm\phi$ 以上で，次の実験式で表わされる。

$(0<(V_P/V_S)\leqq(V_P/V_S)^*)$　の範囲で

$$u'_{mf}=m^{(V_P/V_S)}u_{mf}$$

ただし，$\log m=\log(1-\varepsilon_{PP})/(V_P/V_S)^*$

4）媒体流動層の層膨脹は，相対的に流動層や充填流動層より小さい。

II-4 横型連続流動層における横方向の熱拡散率[14]

II-4-1 緒　言

流動層は粒子混合や伝熱が極めて良いことが特徴であるが，その反面，この利点が未反応粒子の排出や反応物を徐熱する場合の欠点ともなる。これを補うために流動層の多段化[たとえば15,16]傾斜型流動層[17,18,19]など幾つかの試みがなされており，乾燥操作では横型連続流動乾燥装置[20]が使用されている。

著者らは横型連続流動層に着目し，層内の横方向(粒子の流れ方向）の温度分布を一次元拡散モデルで近似することを試みた。さらにこのモデルに基づいて横方向の熱拡散率を測定し，横方向の熱拡散率におよぼす操作上の諸因子の影響について検討した。実験は輻射伝熱の影響が無視し得る100°C以下の温度で行った。

II-4-2 実験装置と実験方法

実験に用いた横型流動層は，アクリル製で横方向の長さX＝70cm，奥行B＝8cm，高さ50cmである。分散板には正三角形配列で1.5mmϕの孔をあけた多孔板（開孔比1%）を用いた。流動化粒子はバイブレーションフィーダーによって流動層へ定量的に供給され，層内を流動しながら横方向に移動し，溢流式で排出される。

溢流高さL_{of}は10，16，24cmについて行った。流動化ガス（空気）はあらかじめ一定の温度に予熱される。層内温度は目皿から7cmおよび14cmの高さで横方向にそれぞれ7本および4本の鉄コンスタンタン熱電対（0.6mmϕ）を，奥行方向で層の中心位置まで挿入して測定した。なお熱電対の表面を200メッシュの金網でおおった熱電対を使用して，流動化ガスの温度を測定し，層内温度t_fとの温度差をチェックした。

表II-4-1には使用した3種類の流動化粒子の物性値を示す。なお流動化ガスには空気を使用した。

実験は，はじめに流動ガスの流速u_0および入口温度

表II-4-1　流動化粒子の物性値

	$\bar{d}_s$ (mm)	ρ_s (g/cc)	u_{mf} (cm/sec)	ϵ_{mf} (−)	C_{Ps} (cal/g.℃)
豊浦砂(TS)	0.20	2.65	4.0	0.47	0.20
砂　鉄(IS)	0.19	4.45	4.5	0.46	0.18
ガラスビーズ(GB)	0.16	5.20	2.7	0.41	0.18

t_{gi}を設定して，回分式で層内温度が定常状態になるまで加熱し，その条件のもとでの放熱量を求めた。ついで流動化粒子を一定速度で供給して，層内温度が定常になった時の温度分布から横方向の熱拡散率α_{rf}を求めた。

α_{rf}は以下の仮定[18]に基づいて求めた。

① 層内におけるガス粒子間の熱交換は目皿直上で瞬間的に行われ，粒子の温度t_sとガス温度t_gは等しいものとする。

② 層の高さ方向および幅方向の温度分布は無視しうるものとする。

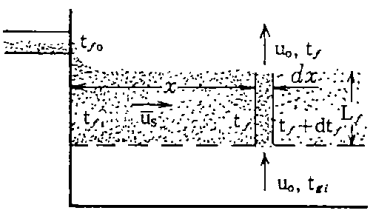
③ 粒子は横方向に平均線速度$\bar{u}_s$で流れるとする。

④ フランジ部での放熱量は無視できるほど小さく，放熱量Q_rは次式で表わされるものとする。

$$Q_r=2h_rL\int_{x=0}^{x=X}(t_f-t_o)\,dx \qquad (1)$$

ここでxは粒子の入口側からの横方向の距離，t_oは室温，h_rは放熱に関する壁境膜伝熱係数であり，回分式の実験値から求められる。

これらの仮定のもとに，定常状態における層内微小部分dxの熱収支をとれば次式となる。(図II-4-1参照)



図II-4-1　概　念　図

$$Bu_o\rho_g C_{Pg}(t_{gi}-t_f)dx - S'\bar{u}_s\rho_s C_{PS}(1-\varepsilon_f)dt_f + S'\alpha_{rf}\rho_s C_{PS}\times(1-\varepsilon_f)[(dt_f/dx)_{in} - (dt_f/dx)_{out}] - 2h_r L_f(t_f-t_o)dx = 0 \quad (2)$$

ここでα_{rf}は横方向の熱拡散率で，横方向の有効熱伝導度k_{er}との間に$k_{er}=\alpha_{rf}\rho_s(1-\varepsilon_f)C_{PS}$の関係がある。

(2)式を整理すると

$$\frac{at_{gi}+bt_0}{c}=\frac{a+b}{c}t_f+\bar{u}_s(dt_f/dx) - \alpha_{rf}(d^2t_f/dx^2) \quad (3)$$

ここで$a=u_o\rho_g C_{pg}$

$b=2L_f/B$

$c=L_f\rho_s C_{ps}(1-\varepsilon_f)$

である。(3)式を次の境界条件

$x=0$で$t_f=t_{fi}$，$\alpha_{rf}(dt_f/dx)=\bar{u}_s(t_{fi}-t_{fo})$

$x=\infty$で$(dt_f/dx)=0$

のもとで解くと

$$t_f=\frac{at_{gi}+bt_0}{a+b}+\frac{2\bar{u}_s(t_{fi}-t_{fo})}{\beta\exp(\beta x/2\alpha_{rf})} \quad (4)$$

となり，ここで

$$\beta=\sqrt{\bar{u}_s^2+4(a+b)/c}-\bar{u}_s \quad (5)$$

である。また同様に(3)式を次の境界条件

$x=0$で$t_f=t_{fi}$，$\alpha_{rf}(dt_f/dx)=\bar{u}_s(t_{fi}-t_{fo})$

$x=X$で$(dt_f/dx)=0$

のもとで解くと

$$t_f=\frac{at_{gi}+bt_0}{a+b}+\left[\frac{c\bar{u}_s(t_{fi}-t_f)\{\gamma_2 e^{(-2\beta' X+\gamma_1 x)}-\gamma_1 e^{(\gamma_2 x)}\}}{(a+b)\{1-e^{(-2\beta' x)}\}}\right] \quad (6)$$

となる。ここでβ'，γ_1，γ_2はそれぞれ次式である。

$$\beta'=\sqrt{(\bar{u}_s/\alpha_{rf})^2+4(a+b)/c\alpha_{rf}} \quad (7)$$

$$\gamma_1=(\bar{u}_s+\beta'\alpha_{rf})/2\alpha_{rf} \quad (8)$$

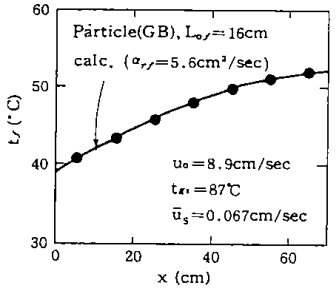
$$\gamma_2=(\bar{u}_s-\beta'\alpha_{rf})/2\alpha_{rf} \quad (9)$$

各実験条件のもとで実測されたt_fとxの関係と，α_{rf}を仮定して(4)式または(6)式に基づいて計算されたt_f～x曲線とを試行法によって一致させることによって，α_{rf}を求めることができる*。なお計算にあたって，流動層高L_fは溢流高さに等しいものと仮定した。

II-4-3 実験結果と考察

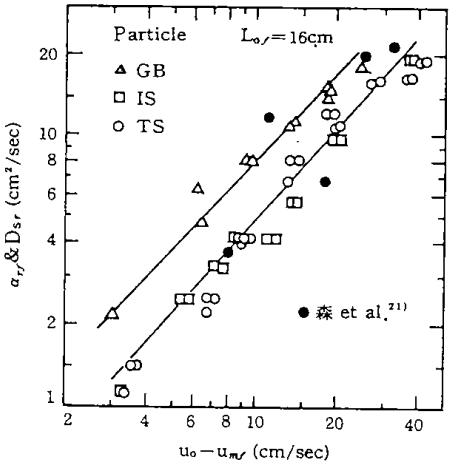
はじめに，モデルの妥当性を確かめるために，仮定①および②についての実験的な検討を行った。仮定①については，金網でおおわれた熱電対を用いて，層内温度測定位置の近傍および層上面近傍などで流動化ガス温度を測定し，各位置での層内温度t_fと比較したが，その差は±0.3°C以内であり有意な差は認められなかった。仮定②についても熱電対の挿入位置を移動させて確めたが，温度差は認められなかった。

図II-4-2にα_{rf}の計算結果の一例を示す。黒丸は実測温度，実線は(4)式に基づく計算値であり，この時の熱拡散率α_{rf}は5.6cm²/secである。図に示すように測定結果と計算結果はよく一致している。なお，(4)式と(6)式による計算結果を比較してみたが，本実験範囲では有意な差が現われなかった。そこで本実験は(4)式に基づいて解析することとした。



図II-4-2 実験結果の一例

図II-4-3には溢流高さを16cmとし，3種類の流動化粒子について測定したα_{rf}とガス流速の関係を示す。ここでu_oは層内の平均温度によって換算した値である。図に示すようにα_{rf}と(u_o-u_{mf})はほぼ比例関係にありu_{mf}およびε_{mf}については見掛けの物性が近似している豊浦砂と砂鉄のα_{rf}はほぼ同等である。u_{mf}とε_{mf}がともに小さく，形状係数のより大きなガラスビーズでは，他の流動化粒子と比較して同じガス流速に対するα_{rf}の値が大きい。なお，熱拡散率α_{rf}と横方向粒子



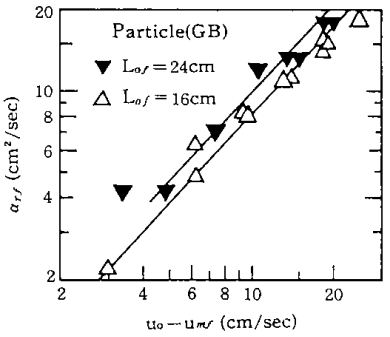
図II-4-3 α_{rf}の測定結果

* 本実験範囲では，(4)式と(6)式の計算結果には有意な差がみられなかった。

混合拡散係数[21]との関係およびそれらに対する流動化粒子の物性の影響などについてはII-5で考察する。

図II-4-4にはα_{rf}におよぼす溢流高さL_fの影響について示す。流動化粒子はガラスビーズである。α_{rf}はL_fの増加に伴って増加しているが，これはL_fの増加に伴う気泡の成長と密接に関連しているものと考えられる。

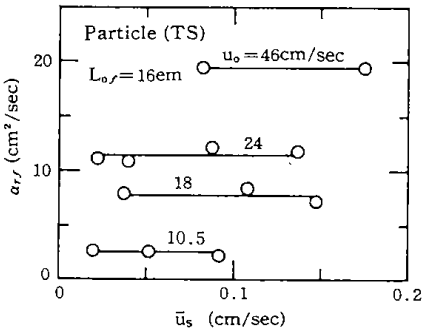
図II-4-5にはα_{rf}と流動化粒子の横方向の平均線速度$\bar{u}_s$との関係を示す。$\bar{u}_s$の実験範囲は1.2～10.5cm/minとかなり小さな値であるが，α_{rf}は$\bar{u}_s$に無関係である。これは$\bar{u}_s$に比べて，微視的な粒子の運動速度の



図II-4-4 α_{rf}と$\bar{u}_s$の関係

方がはるかに大きいことによるものと考えられる。この結果から，回分式流動層によるα_{rf}と連続式流動層によるα_{rf}とは差がないものと考えられる。

以上のようにα_{rf}は本実験範囲で，1～20cm²/sec程度である。一方，縦方向の粒子混合拡散係数[22～26]



図II-4-5 α_{rf}と$\bar{u}_s$の関係

は，たとえば$\bar{d}_s$が60μのFCC触媒を用いた吉田らの実験結果[22]（D_T=20 cm，L_{mf}=40 cm）によれば約60～300cm²/secである。D_{sz}が縦方向の熱拡散率α_{zf}と等しい[22,28,29,30]と仮定すれば，α_{rf}はα_{zf}の1/10以下であり，流動層を横型にすることによって層内横方向に温度分布を作りやすくなることがわかる。

II-4-4 結　論

横型連続流動層の横方向温度分布を一次元拡散モデルによって解析し，横方向の熱拡散率α_{rf}を測定した。その結果，以下のことがわかった。

1) 定性的にα_{rf}は，ガス流速（$u_o - u_{mf}$）とほぼ比例関係にあり，層高L_fの増加に伴ってα_{rf}も増加する。

2) α_{rf}は流動化粒子の横方向平均線速度$\bar{u}_s$に無関係であり，回分式と連続式ではα_{rf}に差がない。

3) α_{rf}は縦方向の熱拡散率α_{zf}の1/10以下であり，薄層型の横型流動層は流動化粒子の流れ方向に温度分布をもたせる上で有利な装置である。

II-5 流動層における横方向の粒子混合*[27]

II-5-1 緒　言

II-4では流動層内での横方向熱拡散率の測定結果について述べた。通常の場合，流動化粒子の密度は流動化ガスの約1,000倍を越えるため，流動層内での熱移動は流動化粒子の混合や接触による伝導などに負うところが極めて大きいと考えられる。白井ら[28]は流動層内に固定された単一球と流動層の間の熱移動を，便宜上流動化粒子によるものとガスによるものとに分離すると，その約9割が粒子によって行われていると報告し，Zieglerら[29]も同様の結果を報告している。また加藤ら[30]は充填流動層内では，縦方向の粒子混合拡散係数と熱拡散率がほぼ等しいことを報告している。従って流動層内での伝熱や流動化粒子の層内滞留時間分布を予測するためにも，流動化粒子の混合特性を把握することは重要である。

Brötz[31]は横方向の粒子混合が非定常の一次元拡散モデルで解析できることを示した。Gabor[32]および森ら[17]はBrötzと同様の方法で横方向の粒子混合拡散係数を測定した結果を報告している。しかし，いずれも実験範囲が狭く，系統的な整理は不十分な現状である。またKunii et al[33]は気泡モデルをもとにした推算式を提案しているが，実験的な確認が十分でない。

ここでは3種類の角型流動層と3種類の流動化粒子を使用し，流動化ガス流速と静止層高を操作因子として横方向の粒子混合拡散係数を測定するとともに，気泡径および気泡の上昇速度を測定して，横方向の粒子混合拡散係数と気泡の挙動との関連について実験的に検討した。また前節で述べた横方向の熱拡散率との相関についても検討した。

---

* 本研究は著者の1人が，昭和48年度科学技術庁国内留学生として，東京工業大学資源化学研究所，白井研究室で行ったものであり，同一題名で化学工学論文集，第1巻，第3号,272（1975）に既に報告したものである(報告者：平間利昌，石田愈，白井隆)。

II-5-2 実験装置と実験方法

i）流動層装置と使用粒子

実験に使用した流動層装置の概略を図II-5-1に示す。透明塩化ビニール板とガラス板で作られた流動層本体は，長さ40 cm，高さ60 cmで，奥行を 4.2，8，20 cmの3種類に変化させた。分散板には厚さ3mmの塩化ビニール板にピッチが15mmで径が1.5mmの孔をあけた多孔板（I）と，厚さ2mm，ピッチが7mm孔径0.5mmの多孔板（II）の2種類を使用した。流動化用の空気導入管には，空気の流入を瞬間的に停止するための電磁弁を取りつけた。

図II-5-2には，流動層の層表面での気泡の破裂に伴う横方向への粒子の飛散を抑制するために用いた表面混合抑制器を示してある。これは厚さ1mmの厚紙製で，水平断面は一辺が15mmの格子状である。

使用した3種類の粒子の物性値を表II-5-1に示す。平均粒子径$\bar{d}_s$は調和平均径で表し，ウェイク割合f_wは，Rowe et al.[34]の測定値から引用した。トレーサー粒子としては，それぞれの粒子を黒インクで着色し，あらかじめ非着色粒子とu_{mf}に差がないことを確かめてから使用した。

ii）実験方法

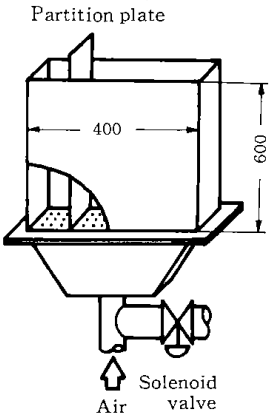
実験はBrötz[31]の方法によった。まず図II-5-1に示すように，所定の位置に仕切り板を設置して，片方にトレーサー粒子，他方に非着色粒子をそれぞれ充填し，一定の空気流速で層内を数分間以上，安定に流動化させる。急速に仕切り板を引き上げ，一定時間経過した後，電磁弁を開いて空気の流入を停止し，トレーサー粒子の横方向の濃度分布を測定する。その後，再び同一の空気流速で層内を流動化させて，気泡径と気泡の上昇速度を測定する。なお，トレーサー粒子を装置の左端に充填した実験と右端に充填した実験をほぼ交互に行い，横方向の粒子混合拡散係数の測定結果を比較して差異がなかったことによって，層内が均一に流動化していることを確かめた。

iii）気泡の測定装置と測定方法

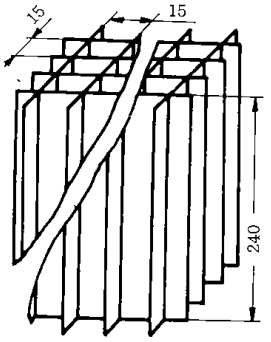
気泡の測定に用いた光学繊維式の検知端の詳細図を図II-5-3に示す。30mm離れている上下2対の検知端は，直径0.5mmの光学繊維4本で作られており，1対の検知端は光学繊維2本が3mm離れて向かい合っている。気泡が検知端を通過すると，豆電球からの光が光電子増倍管によって感知され，その信号はペン書きオッシログラフに記録される。

記録された線図から，垂直方向の気泡径d_bおよび気泡の上昇速度u_bを読みとる方法は小林ら[35]の方法によった。また一つの条件下での測定は，横方向の3個所で約1分間づつ行い，その間の個数平均値からd_bとu_bを決定した。

iv）トレーサー粒子濃度の測定法と横方向の粒子混合拡散係数D_{sr}の求め方



図II-5-1 実験装置

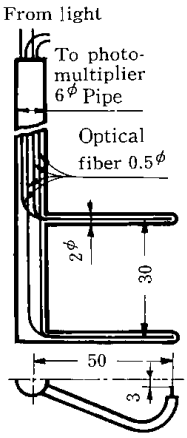


図II-5-2 表面混合抑制器の詳細図

表II-5-1 流動化粒子の物性値

Material	$\bar{d}_s$ 〔mm〕	ρ_{mf} 〔g/cc〕	ε_{mf} 〔−〕	u_{mf} 〔cm/sec〕	f_w^* 〔−〕
Glass bead (GBA)	0.460	1.50	0.40	15.0	0.38
Glass bead (GBB)	0.154	1.48	0.41	2.4	0.41
F.C.C. (FCC)	0.075	0.88	—	0.55	0.53

* Estimated based on the experimental data by Rowe et. al[34]



図II-5-3　気泡の測定装置

所定の時間混合させたあとの流動層内のトレーサー粒子濃度分布は，森ら[17]と同様に，光電池を用いた粉末混合度測定器（徳寿工作所製MIXEE）によって横方向5cm 間隔で測定した。その際，層内の高さ方向および奥行方向にもトレーサーの濃度分布が生じることを考慮して，一定の横方向位置で高さ方向に2～4個所，それぞれの高さで奥行方向に，3～6個所づつ測定し，それらの平均値をその横方向位置でのトレーサー粒子濃度とした。粉末混合度測定器の検知部で粒子群に接しているガラス板は6mm×10mmの大きさなので，一つの横方向位置での濃度測定には，およそ2,500～90,000個の粒子をサンプリングしていることに相当している。

流動層内での横方向の粒子混合に，拡散モデルが適用できると考えると，トレーサー粒子の濃度Cは時間θ，横方向位置xの関数として次式のように表される[32]。

$$\partial C/\partial\theta = D_{sr}\,(\partial^2 C/\partial x^2)$$

初期条件および境界条件は

$$\theta=0,\ 0\leqq x\leqq x,\ \text{で}\ C=1$$
$$\theta=0,\ x_1>x\leqq X\ \text{で}\ C=0$$
$$x=0,\ x=X\ \text{で}\ \partial C/\partial x=0$$

ここにXは装置の長さ，x_1は混合前のトレーサー粒子層の横方向の長さを表す。

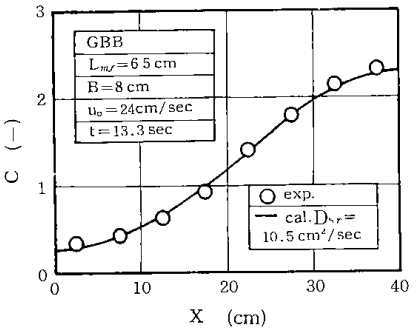
上式を解くと，

$$C=\frac{x_1}{X}+\frac{2}{\pi}\sum_{n=1}^{\infty}\frac{1}{n}\sin\left(\frac{n\pi x_1}{X}\right)\times\cos\left(\frac{n\pi x}{X}\right)\exp\left(-\frac{n^2\pi^2}{X^2}D_{sr}\theta\right)\qquad(1)$$

そこで，測定されたトレーサー粒子の横方向濃度分布曲線と式(1)からの計算との対応から，横方向の粒子混合拡散係数D_{sr}を決定した。その一例を**図II-5-4**に示す。測定されたトレーサー粒子の濃度分布曲線は，一般に層高が低いほどモデルとの対応が良好であった。

II-5-3　実験結果とその考察

横方向の粒子混合拡散係数D_{sr}の測定結果の一例を**図II-5-5**に示す。D_{sr}は空気流速（u_o-u_{mf}），静止層高L_{mf}および装置の奥行Bの増加とともに大きくなっている。**図II-5-5**にはL_{mf}=65cm，B=8cmの条

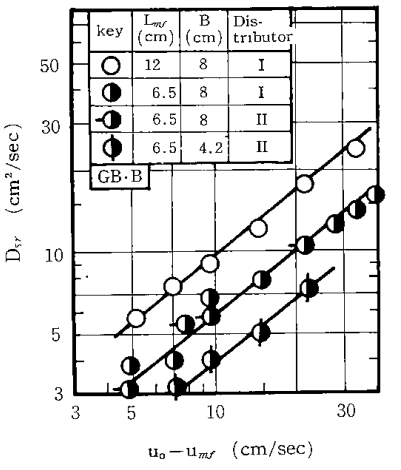


図II-5-4　トレーサー粒子の濃度分布の一例

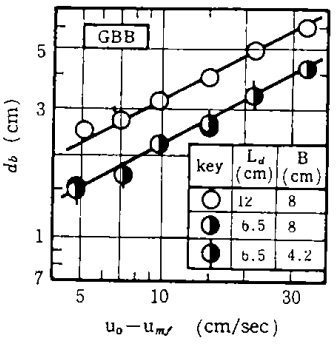
件で，多孔板（I）を使った結果と（II）を使った結果も対比して示してあるが，両者に有為差は見られない。そこで，以後の実験結果の整理にあたっては，多孔板の相違による影響はないものとした。

図II-5-6には垂直方向の気泡径d_bの測定結果の一例を示す。d_bはD_{sr}と同様に（u_o-u_{mf}）および分散板からの高さL_dの増加とともに大きくなっているが，Bによってはあまり影響を受けていない。

通常の流動層では，層表面で気泡が破裂したときに，

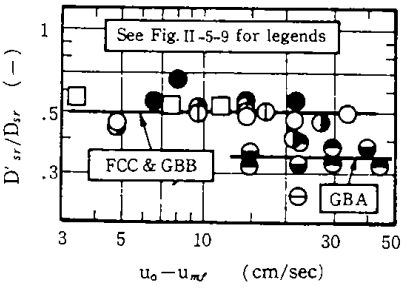


図II-5-5　D_{sr}におよぼすL_{mf}, B, (u_o-u_{mf})および分散板の影響



図II-5-6　気泡径の測定結果の一例

粒子群が波動したり飛散したりしながら横方向へ移動する現象が観察される。そこで層表面での粒子の混合状態を調べるために，図II-5-2に示した表面混合抑制器を，流動層表面で粒子群が振動したときに表面混合抑制器の下端が，露出しない深さまでおろして設置し，その場合の横方向の粒子混合拡散係数D'_{sr}を測定してみた。表面混合抑制器を設置すると，層表面での横方向の粒子混合が抑制されるので，D'_{sr}は主に層内部での粒子混合によるものと考えられる。図II-5-7 にはD'_{sr}の測定結果を，通常の流動層における測定結果D_{sr}との比で示してある。D'_{sr}/D_{sr}は(u_o-u_{mf})やL_{mf}にはほとんど関係なく，ガラスビースA粒子でほぼ0.35，ガラスビーズB粒子でほぼ0.5となっている。このことから，本実験範囲では層表面における横



図II-5-7　表面混合抑制器の設置によるDsrの抑制効果

方向の粒子混合が，かなり大きな割合を占めていることがわかる。

なお，表面混合抑制器を設置したときのu_bとd_bを測定し，それを通常の流動層における測定値と比較したが，高さ方向全域にわたって，表面混合抑制器の設置による影響は見られなかった。

図II-5-5-と図II-5-6を対比してみると，D_{sr}とd_bの両者が(u_o-u_{mf})およびL_{mf}に対してかなり類似した傾向を示していることから，D_{sr}とd_bの間には密接な関連があるものと思われる。

先に Kunii et al.[33] は，気泡が上昇するとクラウド内の粒子がウェイクに流入し，ウェイク内で完全混合する結果，気泡の半径に相当する距離だけ，粒子が横方向へ移動すると考え，気泡モデルから次の式を導いている。

$$D_{sr}=3/16\{\delta/(1-\delta)\}(u_{mf}/\varepsilon_{mf})d_{be} \quad (2)$$

ここにδは層内に占める気泡の体積割合，d_{be}は有効気泡径を表す。層膨脹の測定値からδを求め，また$L_f/2$の高さでの垂直方向気泡径の測定値をd_{be}と仮定して，式(2)から算出したD_{sr}の値は，本実験で実測されたD_{sr}よりも小さく，特にu_{mf}の小さい粒子ほど，その差が顕著であった。

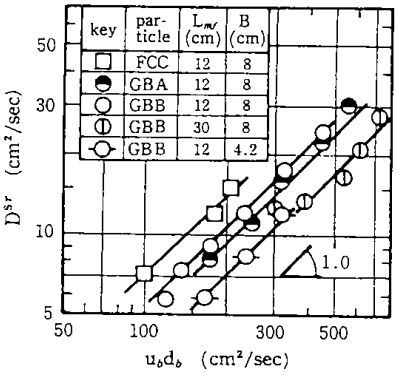
そこで，D_{sr}と気泡の関係を本実験結果に基づいて相関してみる。気泡の動きに起因する粒子の混合現象を，$\Delta\theta$時間ごとに粒子群が$\overline{\Delta X}$の距離を移動するランダムな運動をするものと考えると，D_{sr}は酔歩理論[33]より，

$$D_{sr}\propto(\overline{\Delta X})^2/\Delta\theta \quad (3)$$

$\overline{\Delta X}$がd_bに，$\Delta\theta$がd_b/u_bにそれぞれ比例すると考えれば，式(3)は次のように表わされる。

$$D_{sr}\propto u_b d_b \quad (4)$$

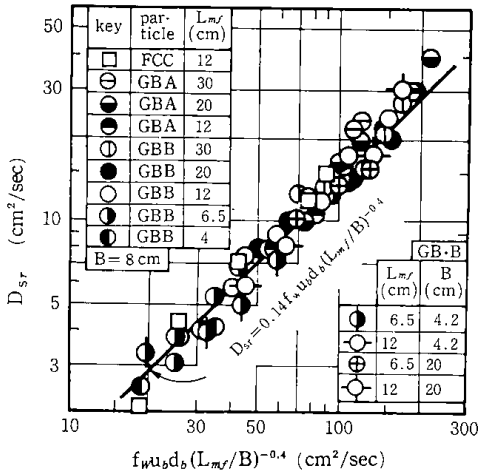
図II-5-8には，式(4)にならいD_{sr}とu_bd_bの関係を示してある。ここでu_bd_bは，図2-5-7に示したように層表面での混合速度が相対的に大きいことから，L_{mf}の高さでの値をとっている。図II-5-8より，D_{sr}とu_bd_bはほぼ比例関係にある。しかし同一の粒子で



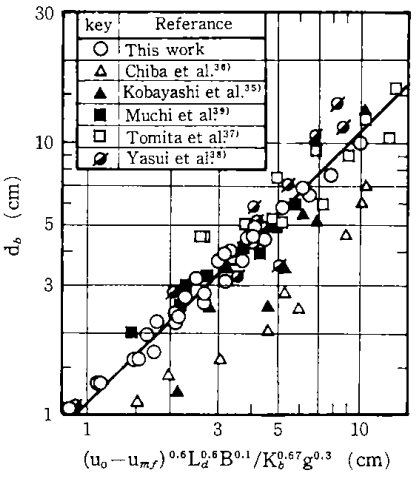
図II-5-8　D_{sr}とu_bd_bの関係

u_bd_bが一定の場合でも，L_{mf}あるいはBが変化するとD_{sr}は変化し，またu_bd_b，L_{mf}およびBが一定の場合でも，粒子によってD_{sr}は異なっている。

そこで粒子による影響をウェイクの体積とウェイクを含まない気泡体積との比f_Wで，また装置因子による影響をL_{mf}/Bの関数として表わし，図II-5-8の関係を整理しなおしたのが図II-5-9であり，D_{sr}は次の式で表わされる。



図II-5-9 D_{sr}と$f_w u_b d_b$ $(L_{mf}/B)^{-0.4}$の関係



図II-5-10 気泡径d_bの相関

$$D_{sr}=0.14f_W\ u_b d_b\ (L_{mf}/B)^{-0.4} \qquad (5)$$

図II-5-9に示すように，本実験結果は式(5)によって良好に相関されている。

しかしながら式(5)からD_{sr}を求めるためには，u_bとd_bの値が必要で，式(5)は実用的な式とはいえない。そこで本実験結果に基づいて，u_bおよびd_bを操作因子との関係から求め，D_{sr}を操作因子のみの関数として表わすことを試みる。

本実験から求めたu_bとd_bには次の関係式が適用できた。

$$u_b=K_b\ (gd_b)^{1/2} \qquad (6)$$

また本実験範囲では(u_o-u_{mf})，BおよびL_dが一定であれば，粒子が異なった場合でも$u_b d_b$がほとんど一定であった。そこで$u_b d_b$と(u_o-u_{mf})，BおよびL_dとの関係を求め，さらに(6)を適用することにより，d_bは次式のように表わされる。

$$d_b\propto (u_o-u_{mf})^{0.6}L_d^{0.6}B^{0.1}/K_b^{0.67}g^{0.3} \qquad (7)$$

図II-5-10には式(7)に基づいて，d_bに関する本実験結果と既往の結果[35~39]を点綴している。なおここで既往の結果のK_bは Chiba et al. の文献[36]から引用した。また円筒型の装置では，その直径D_TをBとして計算している。**図II-5-10**からd_bを次のように表わすことができる。

$$d_b=1.1\ (u_o-u_{mf})^{0.6}L_b^{0.6}B^{0.1}/K_b^{0.67}g^{0.3} \qquad (8)$$

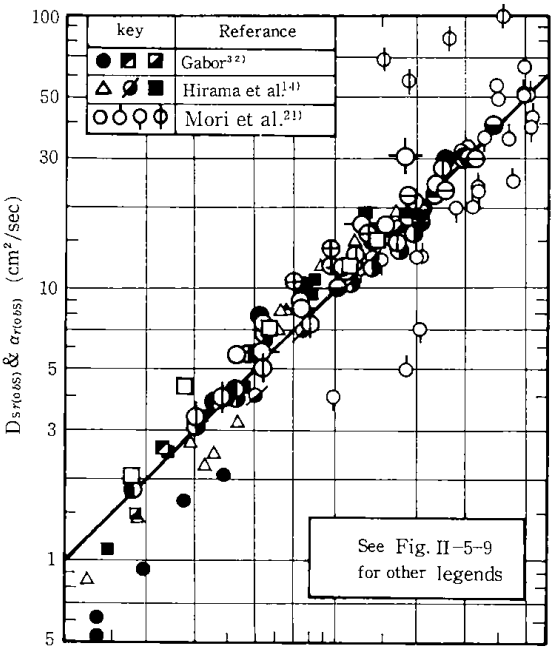
$L_b=L_{mf}$とし，式(6)，(8)の関係を式(5)に代入して整理すれば，D_{sr}は次のように表わされる。

$$D_{sr}=0.16g^{0.05}f_W L_{mf}^{0.5}\ B^{0.55}(u_o-u_{mf})^{0.9} \qquad (9)$$

式(9)を無次元項で整理すると，ペクレ数$[(u_o-u_{mf})B/D_{sr}]$およびフルード数$[(u_o-u_{mf})/(gB)^{1/2}]$から，次のように表わすことができる。

$$\frac{(u_o-u_{mf})B}{D_{sr}}=\frac{6.2}{f_W}\left\{\frac{(u_o-u_{mf})}{(gB)^{1/2}}\right\}^{0.1}\left(\frac{L_{mf}}{B}\right)^{-0.5}$$

図II-5-11は本実験結果と既往の結果を式(9)に基づいて点移したものである。Gabor[32]の$L_{mf}=1.8$cmの条件におけるD_{sr}（小黒丸）は，本実験結果より小さな値になっているが，L_{mf}が3.6cmおよび5.3cmで



図II-5-11 $D_{sr(obs)}$ (α_{robs}) と$D_{sr(cal)}$の比較

の結果は本実験結果とほぼ等しい。森ら[17]の結果のバラツキが大きいのは，使用したPVC粒子のε_{mf}が0.61と，かなり大きいことから流動化の挙動に特異性があるためと考えられる。

また図II-5-11にはII-4で述べた横方向の熱拡散率α_{rf}の測定結果もあわせて点綴している（△○■）。図に示すようにD_{sr}とα_{rf}は良く一致しており，このことから，流動層内での粒子混合拡散係数と熱拡散率には差がないものと推察される。

II-5-4 結　論

奥行の異なる3種類の角型流動層と3種類の流動化粒子を使って，横方向の粒子混合拡散係数D_{sr}と気泡径d_bおよび上昇速度u_bを測定し，気泡を考慮したD_{sr}の実験式(5)および操作因子のみで表わした実験式(9)を導いた。(9)式により既往のD_{sr}の測定結果もよく整理された。

またD_{sr}と横方向の熱拡散率α_{rf}には差がないことを実験的に確かめた。

II-6 横型連続式の充填流動層および媒体流動層における横方向の熱拡散率*[40,41]

II-6-1 緒　言

流動層内に充填物を充填することによって気泡の成長がさまたげられ[13,42]，流動化粒子の混合も抑制されることは良く知られている[51]。

回分式の充填流動層については縦方向の熱拡散率および充填物と層内，塔壁と層内との間の境膜伝熱係数を測定した加藤ら[30]の研究がある。さらにGabor[32,43,44]は横方向の粒子混合拡散係数と熱拡散率を測定し，それぞれの実験式を導びいているが，測定結果のバラツキが大きく，充填物も13mmϕ以下の小さなものが対象である。Ziegler et al[45]の結果も同様である。また媒体流動層については，流動化ガスの混合におよぼす浮遊充填物の影響について検討したGoikhman et al[46]の研究があるのみである。

ここでは横型連続式の充填流動層および媒体流動層の横方向の温度分布を一式元拡散モデルによって解析して横方向の熱拡散率を求め，充填流動層については充填物の直径や流動化粒子の物性の違いを含めた横方向の熱拡散率の実験式を導いた。媒体流動層については流動層および充填流動層での測定結果と対比させながら，浮遊充填物の量が横方向の熱拡散率におよぼす影響などについて検討した。

* この研究の一部は化学工学論文集に投稿中である。

II-6-2 実験装置と実験方法

実験装置は（II-4）で用いたものと同じである。実験はいずれも流動化粒子のみを連続供給して行った。横方向の熱拡散率α_{rp}およびα_{rm}の算出法は充填物が伝熱に寄与しないものと仮定してII-4で述べた方法で行った。

表II-6-1に充填物の物性値を示す。（I）～(III)は充填流動層に用いた充填物，(IV)～(VI)は媒体流動層に用いた浮遊充填物，（I）と(IV)のピンポン球は中に砂

表II-6-1　充填物の物性値

	D_P (mm)	ρ_P (g/cc)	ε_{PP} (−)
ピンポン球(I)	37.5	1.5	0.47
ガラス球(II)	24.8	2.5	0.43
ガラス球(III)	16.8	2.5	0.42
ピンポン球(IV)	37.5	1.05	0.47
ナイロン球(V)	25.4	1.11	0.43
成型炭(VI)	−	1.2	−

表II-6-2　流動化粒子の物性値

	$\bar{d}_s$ (mm)	ρ_s (g/cc)	u_{mf} (cm/sec)	C_{PS} (cal/g·℃)
豊浦砂(TS)	0.20	2.65	4.0	0.20
相馬砂A(SSA)	0.48	2.65	24	0.20
相馬砂B(SSB)	0.32	2.65	14	0.20
ガラスビーズA(GBA)	0.36	2.50	11	0.18
〃 B(GBB)	0.16	2.50	2.7	0.18
〃 C(GBC)	0.12	2.50	1.4	0.18
砂鉄(IS)	0.19	4.54	4.5	0.18

をつめて密度を調節したもの，(VI)はピロー型の成型炭でその大きさは17.5×35×43.5(mm)である。

また表II-6-2には流動化粒子の物性値を示す。

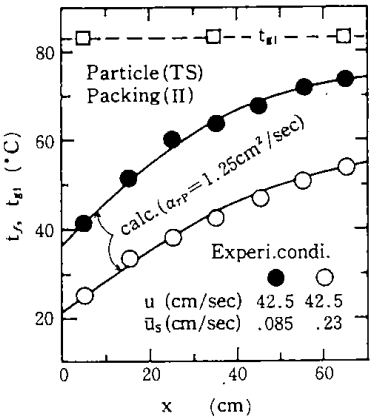
II-6-3 実験結果と考察

i）横型連続式の充填流動層

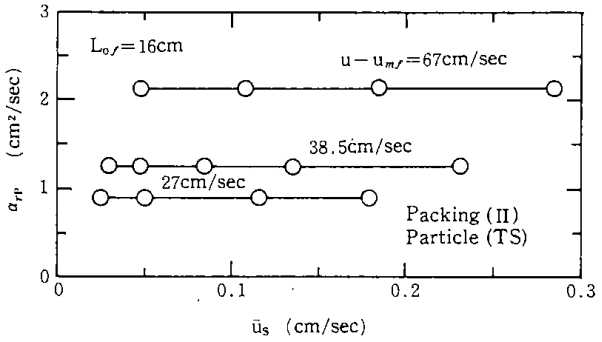
図II-6-1に実測温度分布（丸印）とそれに対応する計算結果（実線）の一例を示す。図に示すように実験結果は計算結果とよく一致している。

図II-6-2には，α_{rp}におよぼす流動化粒子の横方向の平均線速度$\bar{u}_s$の影響について示す。横型連続流動層と同様にα_{rp}は$\bar{u}_s$と無関係である。従って以後の実験結果の整理にあたっては$\bar{u}_s$の違いを無視して考えることとする。

図II-6-3には溢流高さL_{of}，充填物の直径D_Pおよ

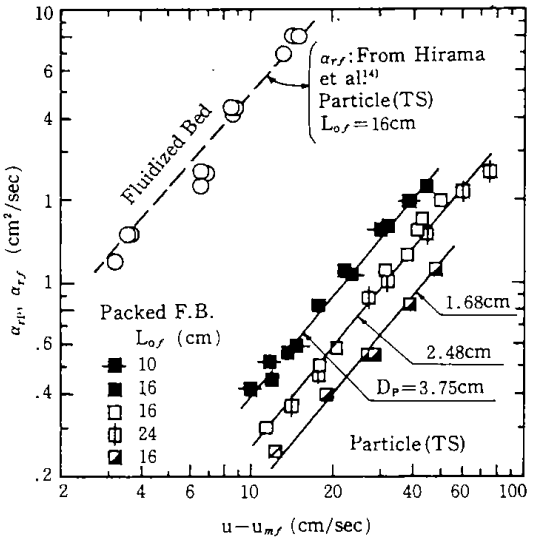


図II-6-1　実験結果と計算結果の比較

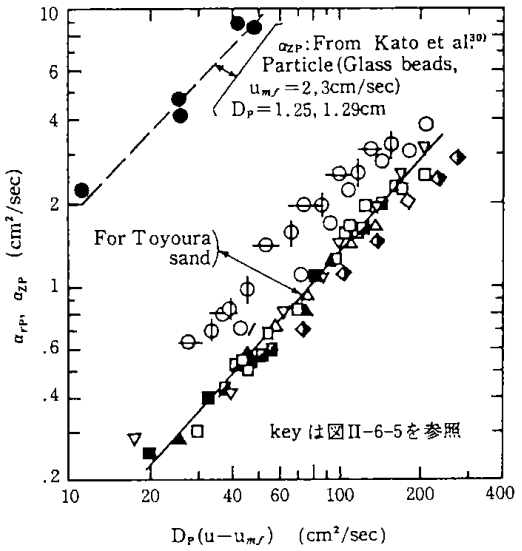


図II-6-2　α_{rP}におよぼすu_sの影響

びガス速度（u−u_{mf}）とα_{rP}との関係を示す。図に示すように充填流動層では流動層と異なって，α_{rP}がL_{of}によらず一定である。これはGabor[32]の結果とも一致しており，充填流動層内では充填物によって気泡の成長が抑制され[42]，流動化の挙動が高さ方向で変化しないことによるものと考えられる。またα_{rP}はD_Pおよび（u−u_{mf}）に対してほぼ比例関係にある。さらにα_{rP}



図II-6-3　α_{rP}におよぼす（u−u_{mf}），D_PおよびL_{of}の影響



図II-6-4　α_{rP}とD_P(u−u_{mf}）の関係

はII-4で述べた流動層におけるα_{rf}（黒丸）の1/10以下である。

図II-6-4では横軸をD_P(u−u_{mf})としてα_{rP}についての測定結果を整理している。ここでD_Pは充填物の直径，uおよびu_{mf}は充填物の空間率ε_Pと層内平均温度によって換算したガス速度および最少流動化速度である。図に示すようにα_{rP}は約0.2～4 cm²/secの範囲であり，加藤ら[30]が測定した縦方向の熱拡散率α_{zP}（黒丸）の約1/10になっている。またこの整理法によれば，同一の流動化粒子ではD_Pの違いにかかわらず，同一の直線で表わすことができるが，D_P(u−u_{mf})が一定でも流動化粒子が変わるとα_{rP}は異なる値をとっている。さらにGabor[32,44]はα_{rP}がD_P（u−u_{mf})/u_{mf}に，粒子混合拡散係数がD_P(u−u_{mf})/d_sにそれぞれ比例するとしているが，本結果はそのいずれの方法によっても一般化することができなかった。

そこでα_{rP}の一般的関係について以下のように考察してみた。本実験から求めたα_{rP}は粒子とガスの混合拡散ならびに伝導による伝熱，充填物間の伝導による伝熱の総和で与えられるが，先にも述べたように伝熱量の大部分は粒子の混合拡散によるものと考えられる[28,29,30]。それゆえα_{rP}も粒子の混合拡散係数に等しいものと仮定し，さらに充填流動層内での粒子の混合拡散機構は固定層内を流れるガスのそれ[47]と同様と考える。すなわち充填流動層での粒子の横方向への移動は気泡に伴って上昇する粒子，および下降する粒子の流れ方向が充填物により分散・偏流させられることによって起こると考えれば，α_{rP}は[33]

$$\alpha_{rP} \propto D_P u_{es} \qquad (1)$$

ここで$\bar{u}_{ls}$は粒子群の垂直方向のスカラー平均線速度

であり，次式で表わされる。

$$\bar{u}_{ls}=\frac{S_u\bar{\rho}_{fu}|\bar{u}_{su}|+S_d\bar{\rho}_{fd}|\bar{u}_s|}{S_f\bar{\rho}_f} \quad (2)$$

ここでS_u/S_f，S_d/S_fは充填物を除いた層の水平断面積に対する上昇相および下降層の断面積の比であり，u_{su}，u_{sd}はそれぞれの平均線速度，$\bar{\rho}_{fu}$，$\bar{\rho}_{fd}$はそれぞれの平均密度，$\bar{\rho}_f$は充填物を除いた層の平均密度である。また物質収支から次の式が成立する。

$$S_u\bar{\rho}_{fu}|\bar{u}_{su}| = S_b\bar{\rho}_{fd}|\bar{u}_{sd}| \quad (3)$$

よって(2)式は次のように整理される。

$$\bar{u}_{ls}=\frac{2S_u\bar{\rho}_{fu}\bar{u}_{su}}{S_f\bar{\rho}_f} \quad (4)$$

また気泡のホールドアップδは，高さ方向に一定であり，粒子の上昇速度は気泡の上昇速度に等しいと考えれば，

$$\bar{u}_{su}=u_b=(u-u_{mf})/\delta \quad (5)$$

気泡に同伴される粒子群（ウェイク）の気泡体積に対する割合をf_Wとし，ウェイク内の粒子密度をρ_{mf}とすれば，

$$\frac{S_u\bar{\rho}_{fu}}{S\bar{\rho}_f}=f_W\delta\left(\frac{\rho_{mf}}{\bar{\rho}_f}\right)$$

$$=f_W\delta\left(\frac{L_f}{L_{mf}}\right) \quad (6)$$

よって(4)，(5)，(6)式からu_{ls}は次のように表わされる。

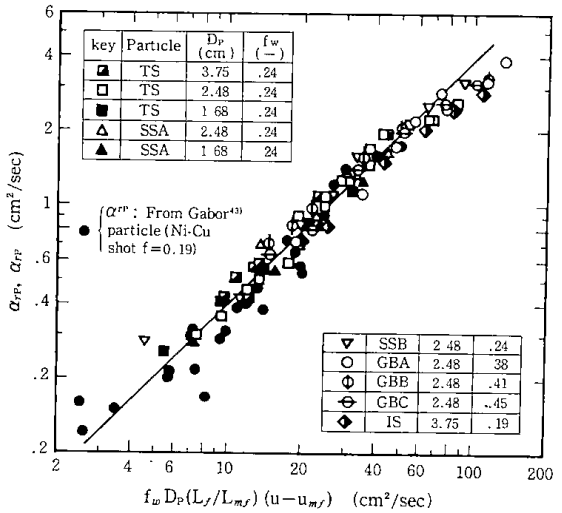
$$u_{ls}=2f_W(L_f/L_{mf})(u-u_{mf}) \quad (7)$$

(1)，(7)式からα_{rP}は次のようになる。

$$\alpha_{rP}\propto 2f_WD_P(L_f/L_{mf})(u-u_{mf}) \quad (8)$$

(8)式の形で**図II-6-4**の結果を整理したのが**図II-6-5**である。なおウェイク割合f_Wについては充填流動層での測定結果がないので，便宜上 Rowe et al.[34] の流動層による測定結果から求めた。充填流動層内での気泡やウェイクの挙動については，さらに検討しなければならないが，**図II-6-5**に見られるようにf_Wを導入することにより，流動化粒子の物性の違いを含めた本実験結果は，良好に整理されている。図から次の実験式が導かれる。

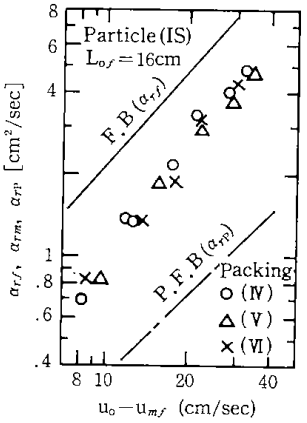
$$\alpha_{rP}=0.04f_WD_P(L_f/L_{mf})(u-u_{mf}) \quad (9)$$



図II-6-5 α_{rP}と$f_WD_P(L_f/L_{mf})\times(u-u_{mf})$の関係

ii) 横型連続式の媒体流動層

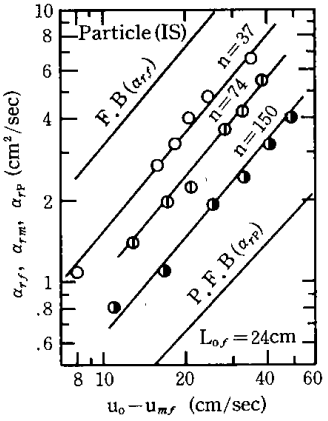
図II-6-6には砂鉄による連続流動層にピンポン球，成形炭，ナイロンボールなどを装入して浮遊させた媒体流動層における横方向の熱拡散率α_{rm}の測定決果の一例を示す。これは，それぞれの浮遊充填物をいずれも層表面が一層だけ覆われる量（垂直断面で最上面のみ）を充填したときの結果である。実線は流動層，一点鎖線はピンポン球(II)を充填物とした充填流動層における測定値を示す。このように浮遊充填物が層表面を覆っただけでもα_{rm}はα_{rf}のほぼ1/2になっており，これはII-5で述べた結果とも良く一致している。またこの傾向は充填物（浮遊充填物）の違いによってはあまり影響を受けていない。



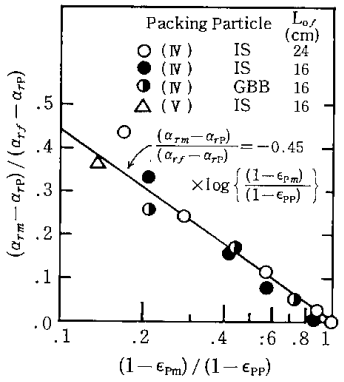
図II-6-6 α_{rm}の測定結果の一例

図II-6-7にはα_{rm}に及ぼす充填物の量の影響について示す。ここでu_oおよびu_{mf}はいずれも充填物の空間率ε_Pで換算した値である。媒体流動層では通常の場合，充填物が主に層表面を浮遊しているが，ここでは層全体に均一に分散しているものと仮定してα_{Pm}を算出した。図に示すようにα_{rm}はα_{rf}とα_{rP}の間にあり，充填物量の増加に伴って次第にα_{rP}に近づく。またガス流速に対してはα_{rf}，α_{rm}，α_{rP}のいずれもほぼ同一の勾配となっている。

そこでα_{rm}をα_{rf}，α_{rP}および充填物量との関係で整理したのが**図II-6-8**である。横軸が0は流動層，1は充填流動層である。縦軸は(u_o-u_{mf})の値を一定



図II-6-7 α_{rm}におよぼす充填物の充填量の影響



図II-6-8 $(\alpha_{rm}-\alpha_{rP})/(\alpha_{rf}-\alpha_{rP})$と$(1-\alpha_{Pm})/(1-\varepsilon_{PP})$の関係

としたときの$(\alpha_{rm}-\alpha_{rP})/(\alpha_{rf}-\alpha_{rP})$で0の時は$\alpha_{rm}$が$\alpha_{rP}$に等しく，1の時は$\alpha_{rf}$に等しくなる。図に示すように本実験結果は充填物，流動化粒子，L_fなどの変化にかかわらず，ほぼ直線で表わされ，$(1-\varepsilon_{Pm})/(1-\varepsilon_{PP})$がほぼ0.15以上の範囲で次の実験式が得られた。

$$(\alpha_{rm}-\alpha_{rP})/(\alpha_{rf}-\alpha_{rP}) = -0.45\log\left[(1-\varepsilon_{Pm})/(1-\varepsilon_{PP})\right] \quad (10)$$

ただし，本実験と比較してρ_P/ρ_Sや$\bar{d}_S/D_P$などの値が大きく異なる場合にこの式が適用できるか否かについてはさらに検討する必要がある。

また本実験は浮遊充填物を連続装入せずに行なったものであるが，流動化粒子の運動速度は浮遊充填物に比べて極めて大きいので，浮遊充填物の運動による伝熱は無視し得るものと考えられる。従って浮遊充填物を連続供給した場合にも，この結果は適用できるものと考えられる。

II-6-4 結　論

流動化粒子のみを連続供給している充填流動層と媒体流動層における横方向の熱拡散率α_{rm}およびα_{rm}を測定し，充填流動層については球状充填物の場合の実験式(9)式を得た。一般にα_{rP}はα_{rf}の1/10程度である。媒体流動層では浮遊充填物が層表面のみを覆う量を充填しただけでα_{rm}が流動層のα_{rf}の約1/2となり，充填物量の増加に伴ってα_{rm}はさらに小さくなりα_{rP}に近づくことがわかった。これらの結果から，浮遊充填物の量が一定値以上の条件でα_{rm}に関する実験式(10)を得た。

従って，横型連続式媒体流動層は通常の横型連続式流動層に比較して，横方向に温度分布をもたせ易い装置である。

〔使　用　記　号〕

A_T	：層（塔）の水平断面積	(cm^2)
B	：奥行	(cm)
C	：トレーサー粒子の濃度	(—)
C_{Pg}	：流動化ガスの比熱	(cal/g·°C)
C_{PS}	：流動化粒子の比熱	(cal/g·°C)
D_P	：充填物の直径	(cm, mm)
D_T	：層（塔）の直径	(cm)
D_{Sr}	：横方向の粒子混合拡散係数	(cm^2/sec)
D'_{Sr}	：表面混合を抑制したときの横方向の粒子混合拡散係数	(cm^2/sec)
d_b	：垂直方向の気泡径	(cm)
d_{be}	：有効気泡径	(cm)
d_S	：流動化粒子の直径	(mm)
$\bar{d}_S$	：流動化粒子の平均直径	(mm)
F	：充填物に働く垂直方向の力	(g)
F_{max}	：Fの最大値	(g)
f	：ウェイク割合	(—)
f_W	：ウェイク割合（=f/(1−f)）	(—)
g	：重力の加速度	(cm/sec^2)
g_c	：換算係数	($g\cdot cm/gwt\cdot sec^2$)
h_r	：熱貫流率	($cal/cm^2\cdot sec\cdot °C$)
K_b	：気泡の上昇速度係数	(—)
k_{er}	：層内横方向の有効熱伝導度	(cal/cm·sec·°C)
L_d	：目皿からの高さ	(cm)
L_f	：流動層高	(cm)
L_{0f}	：溢流高さ	(cm)
L_{mf}	：u_{mf}のときの層高	(cm)
L_P	：目皿から充填物までの高さ	(cm)
L_{po}	：目皿から最高位の充填物までの高さ	(cm)

m	：定数	(−)
n	：充填物の数	(−)
Q_r	：放熱量	(cal/sec)
R_T	：層（塔）の半径	(cm)
r	：層（塔）の中心からの距離	(cm)
S′	：垂直方向の断面積	(cm^2)
t_f	：層内温度	(°C)
t_{gi}	：流動化ガスの入口温度	(℃)
t_0	：室　　温	(°C)
u	：充填物の空隔率で補正したガス速度	(℃) (cm/sec)
u_b	：気泡の上昇速度	(cm/sec)
u_{Fmax}	：F_{max}のときのガス速度	(cm/sec)
u_{mf}	：通常の流動層における最小流動化ガス速度（空塔基準）	(cm/sec)
u'_{mf}	：媒体流動層における最小流動化ガス速度（空塔基準）	(cm/sec)
u_{mfP}	：充填流動層における最小流動化ガス速度	(cm/sec)
u_o	：空塔ガス速度	(cm/sec)
$\bar{u}_S$	：粒子の横方向平均線速度	(cm/sec)
V_p	：充填物の真の体積	(cm^3)
V_s	：粒子の真の体積	(cm^3)
v_p	：充填物1個の体積	(cm^3)
w_p	：充填物の重量	(g)
w_s	：粒子の重量	(g)
X	：層の長さ	(cm)
x	：粒子入口からの横方向の距離	(cm)

α_{rf}	：通常の流動層における横方向の熱拡散率	(cm^2/sec)
α_{rm}	：媒体流動層における横方向の熱拡散率	(cm^2/sec)
α_{rP}	：充填流動層における横方向の熱拡散率	(cm^2/sec)
α_{rZ}	：通常の流動層における縦方向の熱拡散率	(cm^2/sec)
△P	：通常の流動層における層内圧力損失	(mmH_2O, gwt/cm^2)
△P′	：媒体流動層における層内圧力損失	(mmH_2O, gwt/cm^2)
$\triangle P_p$	：充填流動層における層内圧力損失	(mmH_2O, gwt/cm^2)
$\overline{\triangle X}$	：平均自由行路	(cm)
δ	：気泡の存在割合	(−)
ε_f	：層内空間率	(−)
ε_{mf}	：u_{mf}のときの空間率	(−)
ε_{Pm}	：媒体流動層における充填物の空間率	(−)
ε_{PP}	：充填流動層における充填物の空間率	(−)
θ	：時間	(sec)
$\bar{\rho}_f$	：層内平均密度	(g/cc)
ρ_g	：ガスの密度	(g/cc)
ρ_{mf}	：u_{mf}のときの層内密度	(g/cc)
ρ_P	：充填物の密度	(g/cc)
ρ_S	：粒子の密度	(g/cc)

〔引用文献〕

1）佐成俊清，門脇勗：第27回セメント製造技術シンポジウム要旨集，71（1970）

2）大野陽太郎，田島治，国井大蔵：化学工学，**38**，10（1974）

3）石田愈，白井隆：化学工学，**32**，459（1968）

4）平間利昌，山口弘，河端淳一，田崎米四郎：未発表

5）加藤邦夫，今福克明，服部一夫，久保田宏：化学工学 **30**，748（1966）

6）山口弘，平間利昌：化学工学協会第35年会要旨集第2分冊，165（1970）

7）J. A. Bicknell and K. L. Whitmore："Proceeding of the International Symposium of Fluidization"，31（1967）

8）吉留浩，白井隆：化学工学協会第33年会要旨集第2分冊，84（1968）

9）牧島信一，白井隆：化学工学協会第34年会要旨集第1分冊，177（1969）

10）牧島信一，白井隆：化学工学協会第36年会要旨集第2分冊，178（1971）

11）山口弘，弓山翠：化学工学協会第37年会要旨集第2分冊，134（1972）

12）J. D. Gabor, W. J. Mecham and A. A. Jonke：C. E. P. Symp. Series, **60**，96（1964）

13）J. P. Sutherland, G. Vassilatos, H. Kubota and G. L. Osberg：A. I. Ch. E. Journal，**9**，347（963）

14）平間利昌，山口弘，藤岡丈夫：化学工学協会第36年会要旨集第2分冊，190（1971）

15）桐栄良三：化学工学，**20**，551，695（1956）

16）F. S. White and E. L. Kinsalla：Mining Eng.，**4**，903（1952）

17）森芳郎，青木隆一：化学工学，**19**，16（1955）

18）杉山幸男，架谷昌信，新井紀男：化学工学，**33**，435（1969）

19）F. A. Zenz and D. F. Othmer："Fluidization and Fluid Particle Systems" Reinhold Pub. Co.，（1960）

20）桐栄良三：〝乾燥装置〟日刊工業新聞社（1966）

21）森芳郎，中村厚三：化学工学，**29**，868（1965）

22) K.Yoshida, D.Kunii and O.Levenspiel :Symp. on Fludization, Montreal (1968)
23) W.G.May : Chem.Eng.Progr.,**55**, 49 (1959)
24) R.Bart : Ph.D.thesis,M.I.T. (1950)
25) L.Massimilla, et al. : Ric. Sic., **27**, 1509(1957)
26) W.K.Lewis, E.R.Gilliland and H.Girouard : chem.Eng.Progr.Symp.Sereis, **58** (38), 87 (1962)
27) 平間利昌, 石田愈, 白井隆：化学工学論文集, **1**, 272 (1975)
28) 白井隆, 吉留浩, 庄司喜彦, 田中重之, 北條公三, 吉田俊二：化学工学, **20**, 880 (1965)
29) E.N.Ziegler and W.T.Brazelton :I.E.C.Fundamentals. **3**, 94(1964)
30) 加藤邦夫, 服部一男, 久保田宏：化学工学, **31**, 467 (1967)
31) W.Brotz : Chem.Ing.Tech, **28**, 165 (1956)
32) J.D.Gabor : A.I.Ch.E.Journal. **10**, 345(1964)
33) D.Kunii and O.Levenspiel : J.Chem.Eng. Japan, **2**, 122 (1969)
34) P.N.Rowe, and B.A.Partridge : Trans.Instn. Chem.Engrs.(London), **43**, T157(1965)
35) 小林晴夫, 荒井深, 千葉忠俊：化学工学, **29**, 858 (1965)
36) T.Chiba, K.Terashima and H.Kobayashi : J. Chem.Eng.Japan, **6**, 78(1973)
37) M.Tomita and T.Adachi:J.Chem.Eng.Japan **6**, 196 (1973)
38) G.Yasui and L.N.Johanson : A.I.Ch.E.Journal , **4**, 445 (1958)
39) 三輪輝之男, 森滋勝, 加藤隆, 鞭巌：化学工学, **35**, 770 (1971)
40) 平間利昌, 山口弘：化学工学協会第37年会要旨集第2分冊, 137 (1972)
41) 平間利昌, 弓山翠, 武田詔平, 西野浩, 山口弘, 吉田雄次：化学工学協会北海道大会要旨集, A−28 (1975)
42) 加藤邦夫, 今福克明, 久保田宏：化学工学, **31**, 967 (1967)
43) J.D.Gabor : A.I.Ch.E.Journal : **11**, 127 (1965)
44) J.D.Gabor, B.E.Stangeland and W.J.Mecham: A.I.Ch.E.Journal : **11**, 130 (1965)
45) E.N.Ziegler and W.T.Brazelton : I.E.C. Process Design and Development, **2**, 277(1963)
46) I.D.Goikhman, A.A.Oigenblik. L.S.Genin and L.A.Filippov : Inter.Chem.Eng., **9**, 239(1969)
47) T, Baron : Chem.Eng.Progr., **48**, 118(1952)
48) 井田四郎, ほか：燃料協会誌, **51**, 645(1972)
49) P.Ledent, et al. : Prerints for International Congress"Coke in Iron and SteeI Industry", A 7, Charleroi, Belgium, Sept.(1966)
50) P.F.Snowdon : BHP International Bulletin, April, 1 (1976)
51) 加藤邦夫：化学工学, **38**, 11 (1974)

製鉄用成形コークス製造に関する研究－III
—横型連続式媒体流動焼成炉による操業試験—

弓山　翠・武田詔平・平間利昌・西野　浩
出口　明・藤岡丈夫・山口　弘・吉田雄次

III-1　はじめに

I，IIで述べた基礎試験にもとづき，横型連続式媒体流動焼成炉を製作し，成形コークス製造試験を延べ2ヶ年間にわたり，装置を改造しながら実施した。その結果を報告する。

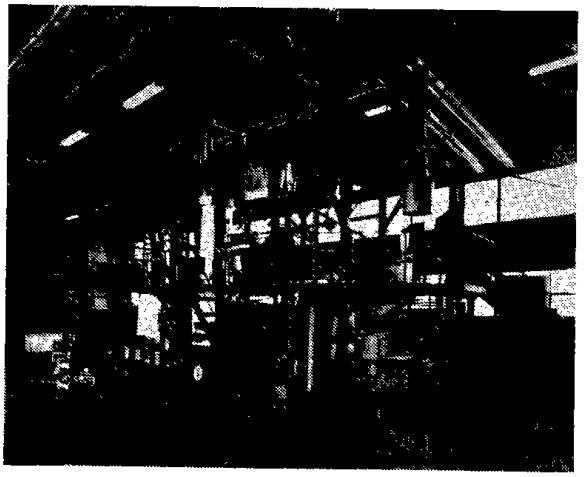
炉形式の選定については，従来のコークス炉が回分式で自動化には困難であることから，連続化も容易で伝熱持性も良好な流動層を考えた。しかし，通常の流動層では成形炭のような大粒径粒子を単独で流動させる事は不可能であるため，媒体流動層方式とし，さらに成形炭の焼成条件から横方向（成形炭の流れ方向）に温度分布を持たせる必要性があり横型とした。すなわち，この炉は流動化ガスにプロパン燃焼ガスを用い，媒体（流動化粒子）を流動加熱させて適正な温度分布を持たせた炉内に成形炭を装入して，流動化させながら焼成する方式である。

III-2　実験装置

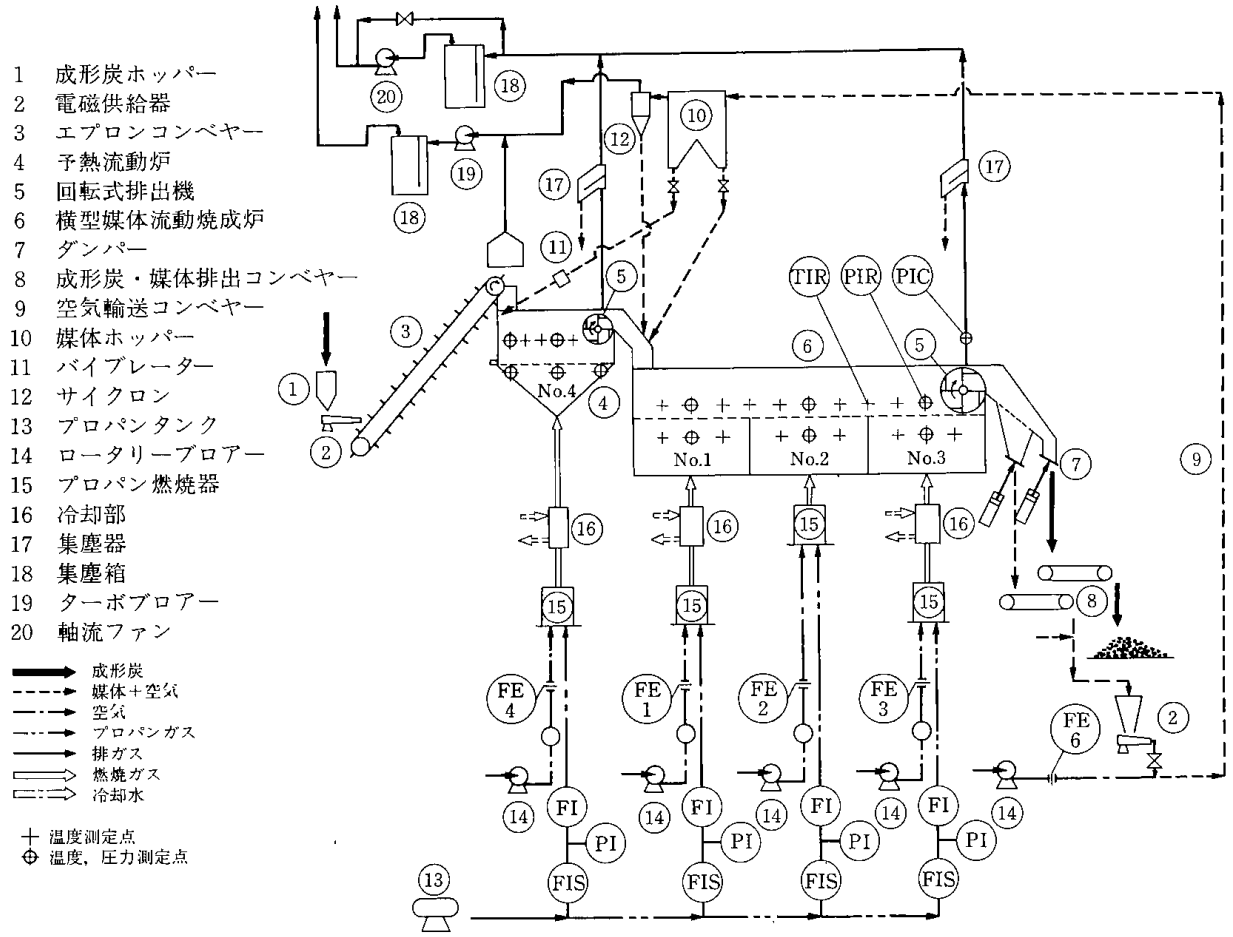
成形コークス製造装置を**写III-1**に示し，そのフローシートを**図III-1**に示す。成形炭はホッパー出口に設置された電磁供給器により供給量を調節され，エプロンコンベヤーで予熱炉へ装入される。予熱炉において成形炭はプロパン燃焼ガスで流動されている媒体（砂鉄またはジルコンサンド）と共に予備加熱され，回転式排出機により焼成炉へ装入され，所定のヒートパターンで高温焼成された後，回転式排出機をへて排出される。排出部には成形炭と媒体とを分離する有孔部と炉内ガス漏洩防止のため，圧縮空気により作動するダンパーとが設置され，成形コークスはこのダンパーの開閉で排出される。この際ダンパーはタイマーで作動する電磁弁により，設定した一定時間間隔で自動開閉が行われる。排出された成形コークスはコンベヤーで送られ，砂をかぶせて冷却した後計量される。

分離された媒体は電磁供給器によって装入量を調節し，空気輸送管で媒体ホッパーに送られ，輸送管に取付けられたバイブレーターにより予熱炉へ装入される。予熱炉からの媒体のフローは成形炭と同じ経路をへて排出される。

流動化ガスにはプロパン燃焼ガスを使用した。プロパン燃焼器にはイグニッションスパークによる自動着



写III-1　成形コークス製造装置



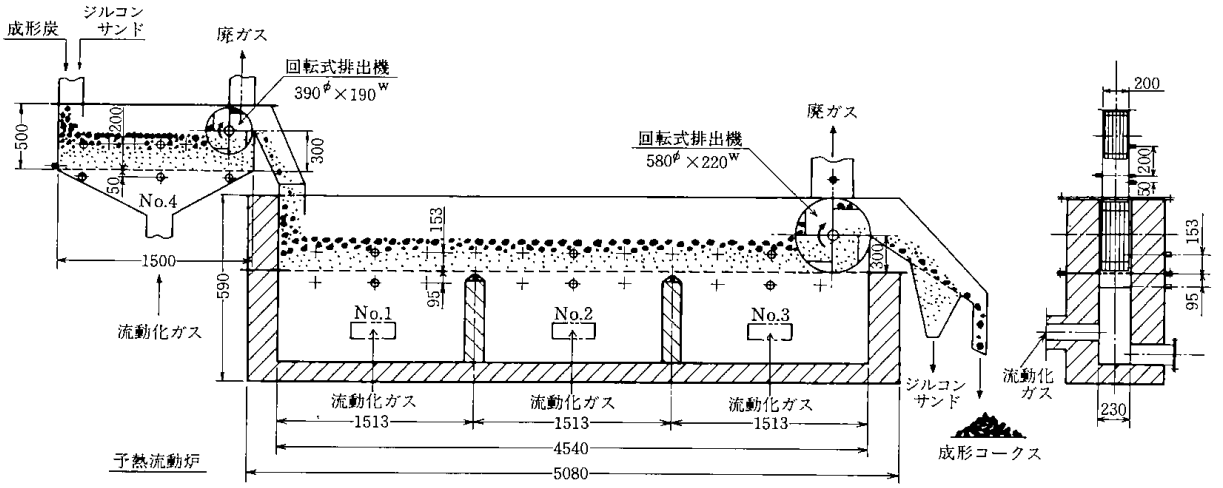
図Ⅲ-1 成形コークス製造装置フローシート

火装置と不意の消炎に対する安全機構が取付けられている。この際，酸素雰囲気下における成形炭の焼成はコークスに悪影響を与えるため，燃焼ガス中の残存酸素濃度を0.5%以下とした。なお燃焼ガス中に含まれている水蒸気量は約15%である。またNo. 1，No. 3炉の燃焼器と流動化ガス導入室との間には，ウォータージャケットが取付けられており，燃焼ガスの温度を調節出来るようになっている。燃焼ガスは炉内で媒体と成形炭を流動化させ，成形炭の高温焼成によって，発生した乾留ガスとともにブロアーで吸引され，同伴した粉塵を分離捕集した後，大気に放出される。排気管は予熱炉と焼成炉に各1系統づつ設置され，各々の系には同伴した粉塵を含む排ガスを衝突させて捕集する形式の集塵箱が2個設置されている。

予熱炉と焼成炉の詳細図を**図Ⅲ-2**に示す。予備流動炉は長さ1500mm，巾200mm，高さ500mm，溢流高さ300mmでSUS27製である。外壁は断熱材で保温され，炉内には直径390mm，巾190mmの回転式排出機が取付けられている。排出機は実験条件により成形炭の浮遊状態が悪化し，定常排出が出来ない時のため設けられたもので，2枚の円形側板間に10mmϕの棒鋼で円周上に成形炭が数個乗る大きさのポケットを設け，媒体は棒鋼間の間隙から焼成炉内へ溢流し，成形炭のみが排出するようになっている。その形状を**図Ⅲ-3**に示す。分散板にはSUS42製，3mmϕ孔，30mmピッチ，正三角配列で開孔比約1%の多孔板を用いた。

なお，予熱炉は初期の実験において成形炭を直接焼成炉へ装入していたため急熱によるひび割れが激しくその対策として設置したものである。このことにより装入時の急熱焼成の緩和，焼成温度を高める等の効果があった。また，成形炭の送入についてもバケットコンベヤー，ロータリーバルブで行っていたが，これらの送入機械による成形炭の壊れが激しいためエプロンコンベヤーに代えた。

焼成炉は長さ4540mm，巾230mm，高さ600mm，溢流高さ300mmの内寸法で，耐火レンガ，断熱レンガ積みで外側を鋼板で包み，炉内に予熱炉と同じ形の回転式排出機が取付けられている。初期の実験でこの排



横型媒体流動焼成炉

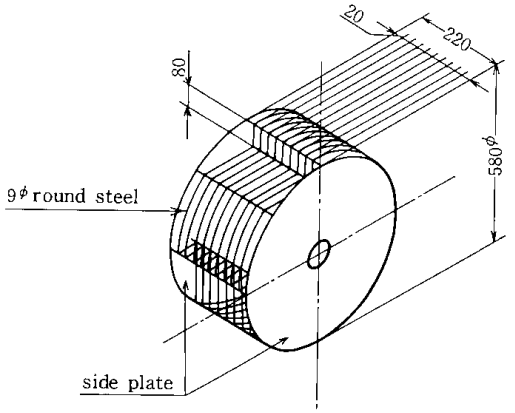
＋ 温度測定点

◈ 〃 ＋圧力測定点

予熱炉	3mmφ孔，ピッチ30mm，正三角形配列，開孔比1％
焼成炉	2mmφ孔，ピッチ20mm，正三角形配列，開孔比1％

分散板仕様

図Ⅲ-2 横型連続式媒体流動焼成炉詳細図



図Ⅲ-3 回転式排出機

出機は，実験終了後炉内に残った成形炭の燃焼熱により溶融，焼付きを起こし使用不能になった。その対策として終了時に炉内へ大量の媒体を投入し，炉内を高温の媒体と置換して炉温を下げ，さらに残存成形炭を少なくする事によりこの問題を解決する事が出来た。しかし，炉内を高温にすると回転部のきしみが激しくなり，焼成温度を高く出来ない原因の1つとなった。分散板はコバルト系合金（三菱金属製，UMCO－50）2mmφ孔，20mmピッチ，正三角形配列で開孔比約1％の多孔板を用いた。当初，SUS27および42製の分散板を使用したが，焼損，凹凸が激しく短期間で使用不能となった。UMCO－50に替えてからは焼損も起きず安定した実験が行えるようになった。この炉の流動化ガス導入室は3室からなり，各室毎に個別のプロパン燃焼器が取付けられている。

温度は，炉内16点（予熱炉6点，焼成炉10点），流動化ガス導入室12点（予熱炉3点，焼成炉9点）を測定した。圧力は炉内5点（予熱炉2点，焼成炉3点）流動化ガス導入室6点（予熱炉，焼成炉各3点）をU字管式マノメーターで測定した。そのうち流動化ガス導入室の圧力2点（予熱炉，焼成炉各1点）を差圧発振器により測定記録した。さらに，焼成炉出口の圧力も微差圧発振器で測定記録し，炉内圧を調節した。プロパンの流量は積算計，フローメーターで測定した。空気源には口径3″φのロータリーブロアーを各燃焼器毎に設置し，その流量はオリフィスで測定した。

Ⅲ-3 実験方法と実験条件

実験は先ずプロパン燃焼器に着火し，炎が安定してから炉内に燃焼ガスを送り込み，約6～8時間加熱後媒体，成形炭の装入を開始した。成形炭は適当な定量供給器が無かったことと，ホッパーへの装入時に壊れた成形炭を選別する必要があり，個数を数えながら装入した。媒体は当初5～10分毎に重量を測って装入し

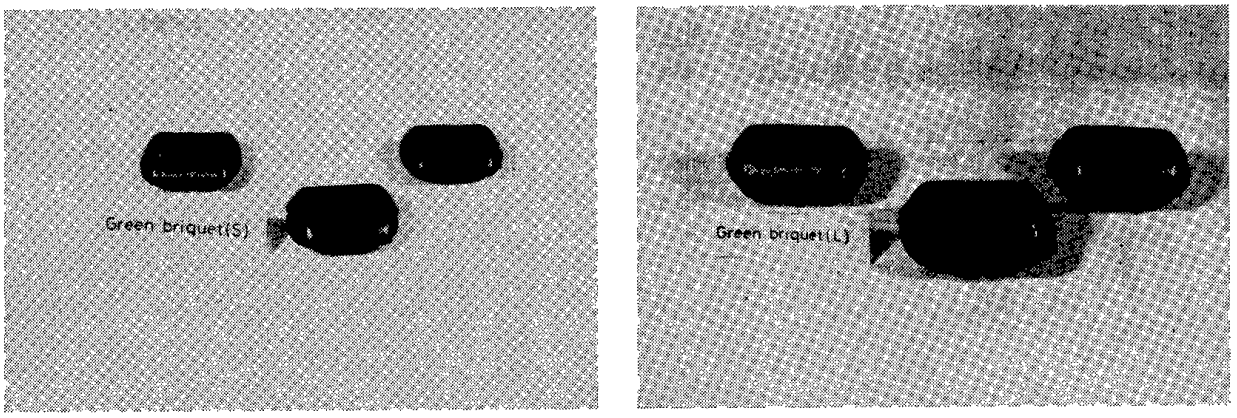
ていたが，その後電磁供給器と空気輸送管入口のバルブにより，送入量の良好な制御が出来たのでこの方法を用いた。

媒体と成形炭の　入を開始してから約6時間後，排出量と炉内温度が定常状態になってから，5～6時間本実験を行った。温度設定は，プロパン及び空気の流量調節により行った。焼成温度は基礎試験結果から，1000°C以上の温度が望ましいが，排出機や分散板の耐熱性等を考慮して900°Cとした。また燃焼ガス中の酸素濃度の制限から，プロパン，空気量の比が固定され，温度を上げるためにプロパンの流量を増加させると炉内の流速が高くなり，媒体の炉内滞在量が減少し，成形炭の浮遊状態が悪化する事からもこの温度以上では実験を行い得なかった。なお，炉内滞在量は層内圧損失によって測定した。成形炭の滞留時間はトレーサー成形炭を瞬間的に投入しその排出分布から求めた。

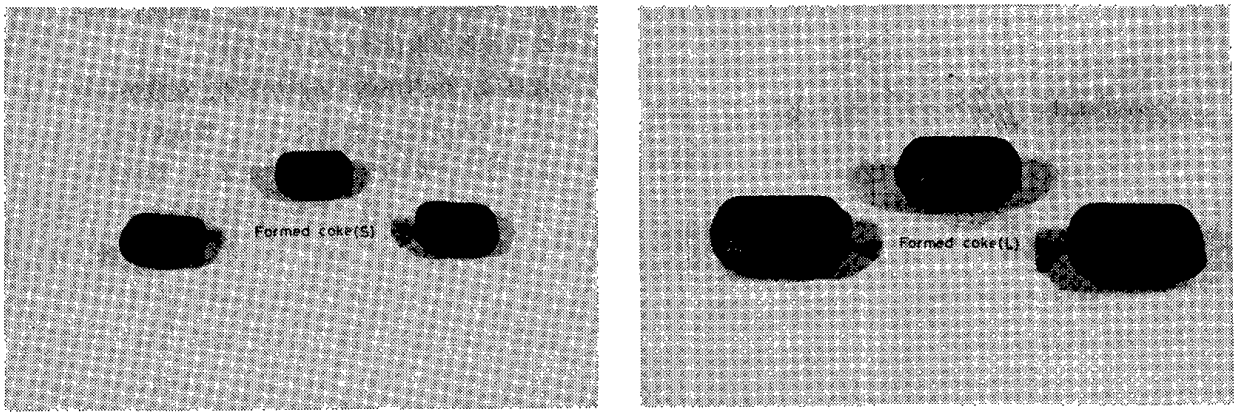
焼成された成形コークスは砂をかぶせて冷却した後，完全形，壊れた成形コークスに分別し，計量した。

実験終了後，炉が完全に冷却してから排出機，分散板，レンガの状態を点検した。

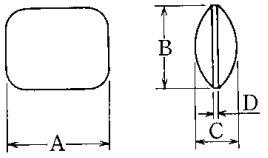
使用した成形炭を**写Ⅲ-2**，成形コークスを**写Ⅲ-3**に示し，その形状を**図Ⅲ-4**に示す。なお成形コークスの寸法は(S),(L)とも，A方向で5～9%，B方向で4～9%，C方向で3～9%，成形炭より小さくなった。



写Ⅲ-2　原　料　成　形　炭



写Ⅲ-3　成　形　コ　ー　ク　ス



	A	B	C	D	G_h (g) ☆
成形炭　(S)	44	35	18	1.5	20.9
成形炭　(L)	65	45	35	5	80.6

☆無水基準

図Ⅲ-4　成形炭の形状

表Ⅲ-1　成形炭の工業分析値と配合割合

工　業　分　析　値

	水　分	灰　分	揮発分	固定炭素
成形炭(S)	1.53	10.02	19.34	69.11
成形炭(L)	1.29	8.25	17.06	73.40

配　合　割　合

高揮発分弱粘結炭　(高流動性炭)	10～15%
中揮発分強粘結炭	30　%
低揮発分非粘結炭	55～60%

表Ⅲ-2　媒体(流動化粒子)の物性値

媒体		砂鉄	ジルコンサンド
密度(g/cm³)		4.5	5.8
最小流動化速度(cm/sec)		7.0	7.0
平均粒径(mm)		0.24	0.13
粒径分布	+48mesh	28	−
	65 ～ 48	53	12
	100 ～ 65	10	14
	170 ～ 100	9	63
	− 100	−	11
☆焼結温度 (°C)		1000	1300

☆電気炉(空気雰囲気下)による試験

工業分析値及び配合割合を**表Ⅲ-1**に示す。初期の実験では小粒径(S)の成形炭を用い,その後,高炉内の通気抵抗の面から大粒径の成形コークスが要望され，大粒径(L)の成形炭を中心に実験を進めた。両方の成形炭とも，石炭技術研究所のテストプラントで製造されたものである。

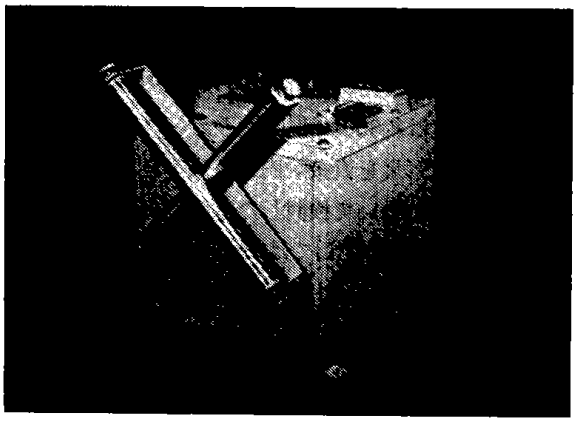
使用した媒体の物性を**表Ⅲ-2**に示す。媒体には1300～1400°C迄焼結せず，また成形炭を浮遊，流動させるために約3g/cm³以上の真密度が必要である。硅砂，蛇紋岩，クロマイトサンド，アルミナなどの使用を検討したが，硅砂，蛇紋岩は密度が小さく，クロマイトサンドは電気炉による加熱試験の結果1000°Cで部分的に焼結する，アルミナは高価である，などのためいずれも使用を断念した。砂鉄は高温下で焼結する危険性があるため，最終的には全ての条件を満たすジルコンサンドを使用した。

本実験で行った実験条件範囲は次の通りである。

成形炭供給速度	15～100kg/hr
媒体供給速度	50，100，180kg/hr
流動化ガス速度	7～11Ncm/sec
焼成温度	620～900°C
成形炭の平均滞留時間	60～170min

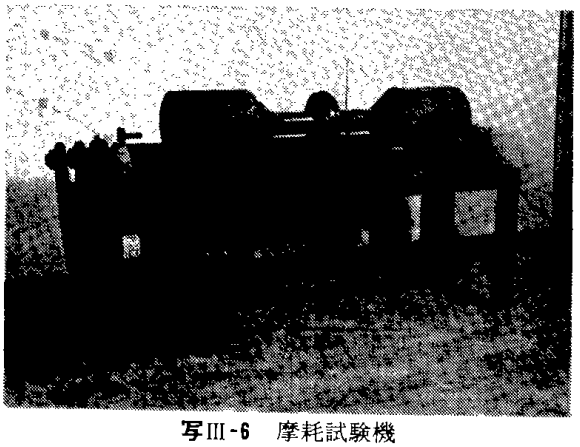
焼成した成形コークスはドラム強度(DI_{15})，マイクロ強度(MS)，摩耗強度(AS)試験機により，それぞれの強度を測定した。**写Ⅲ-4**はドラム試験機でJISに定めるドラムの1/3の長さである。これは実験室規模の装置で作った成形コークスを測定する必要もあり，試料量の面から短かくしたものである。試験方法は約500gの成形コークス(10ヶ程度)を試験機に入れ，15r.p.m.で30回転させた後取出し，15mm篩上重量の百分率を求めた。

写Ⅲ-4　ドラム強度試験機



写Ⅲ-5　マイクロ強度試験機

写Ⅲ-5にマイクロ強度試験機を示す。マイクロ強度はJISに定められていないがコークス基質の結合の強さを表わし，少量の試料で試験出来る方法として広く用いられている。試験方法は成形コークスを破砕して粒度5～8meshにした試料5gを5/16″φスチールボール12個とともに内径24mmφ，長さ300mmの鋼管に入れ，25r.p.m.で500回転させた後取出し，10mesh



写Ⅲ-6　摩耗試験機

篩上重量百分率を求めた。必要指数は65以上とされている。

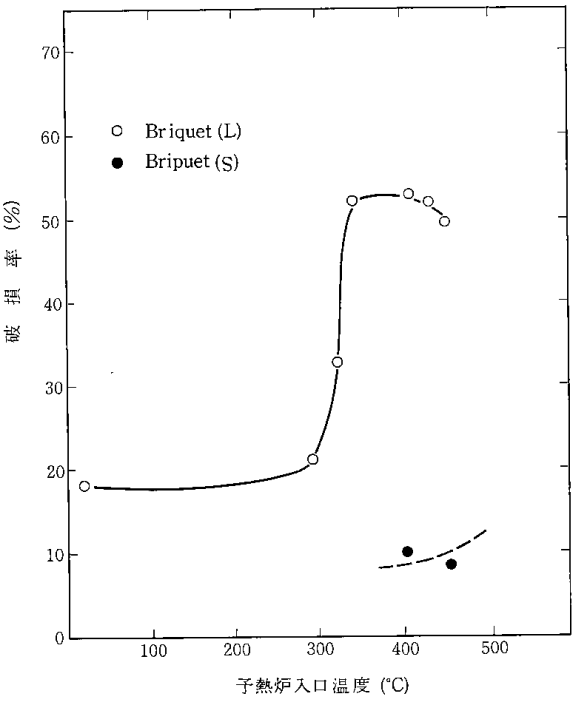
写III-6に摩耗強度試験機を示す。試験方法は成形コークス5個(小粒径の場合は30個)を15mmφ×15mmの磁性円柱60個とともに入れ，30r.p.m.で900回転させた後取出し10mm篩上重量百分率を求めた。必要指数は90以上とされている。

III-4 実験結果

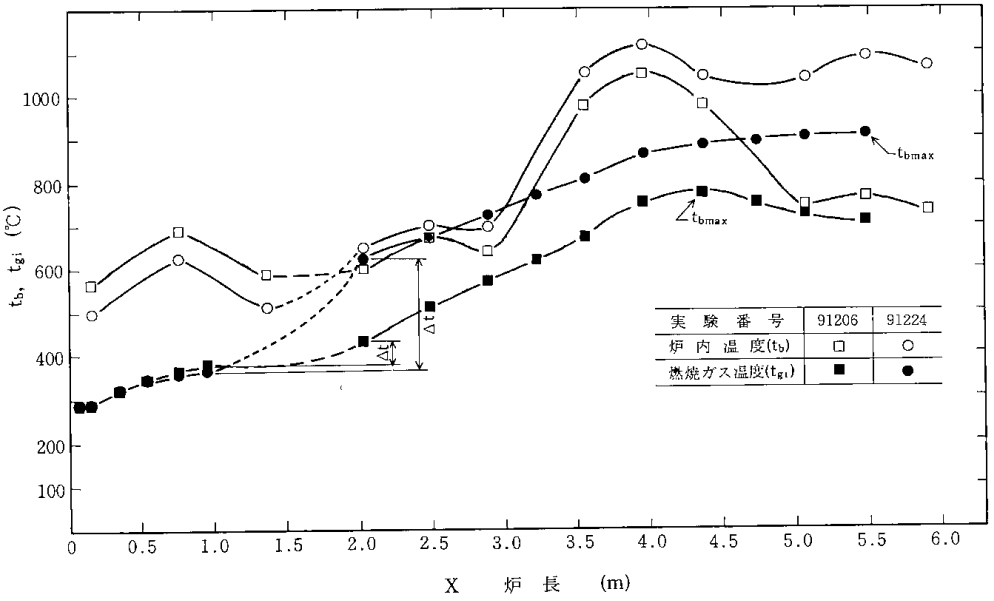
実験結果の代表例を**表III-3**に示す。表中，実験番号91004と91224はそれぞれ媒体と成形炭の供給速度が同じで，炉内最高温度が異なる例，91101と91206は成形炭の供給速度を大きくした例，91009と70721はいずれも小粒径(S)の成形炭を用いたもので，後者は予熱炉を設置していない例である。**図III-5**には予熱炉のみを用いた場合の装入温度の変化による成形炭の破損割合を示す。これは粉炭を加熱成形し，成形コークスを製造する一連のプロセスにおいて，成形機から焼成炉へ装入される成形炭の温度は約350°C程度と考えられるが，本実験では室温の成形炭を直接炉内へ装入するため，装入時の急熱の影響について検討したものである。図に示すように，大粒径成形炭(L)では290~300°Cで破損割合が急激に増加している。一方小粒径(S)の場合は450°Cでも10%と低い値を示している。この差異は成形炭自体の強度の差によるものと考えられる。この結果から大粒径成形炭(L)の予熱炉装入温度を290°Cとした。

定常状態における炉内温度分布の例を**図III-6**に示す。なお，図中Δtは予熱炉出口と焼成炉入口との温度差である。予熱炉を設置することにより，焼成炉入口における成形炭の急熱を緩和し焼成温度をより高くすることができた。

図III-7に成形コークスの残留揮発分と炉内滞留時間及び焼成温度(t_{bmax})との関係を示す。図中の残留揮発分は投入したトレーサー成形炭を排出時間毎に分析した値である。この図から成形コークスの残留揮発分を約1%にするためには焼成温度を900°C以上にする



図III-5 予熱炉装入温度による成形コークス破損率

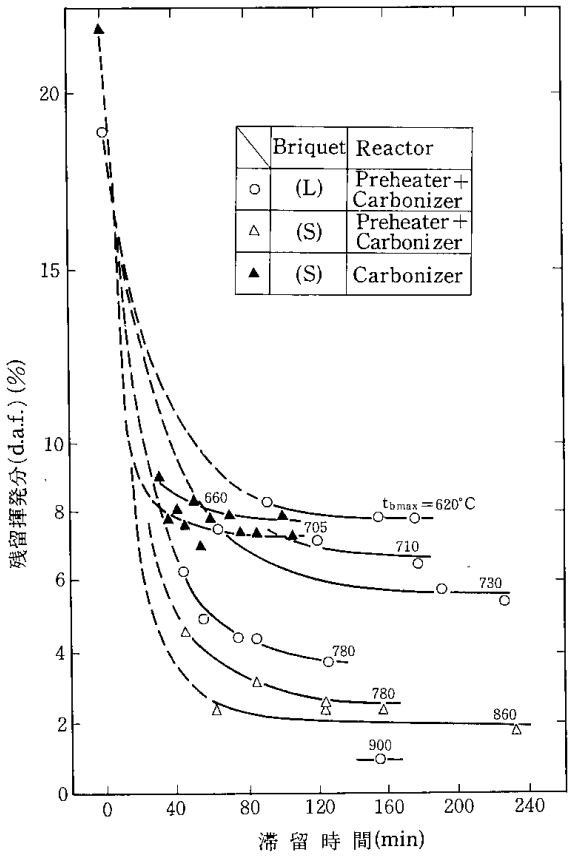


図III-6 炉内温度分布

表III-3 試　験　結　果

実験番号			91004				91224⑤				91101				91206				91009				70721			
炉番			No.4	No.1	No.2	No.3	No.4	No.1	No.2	No.3	No.4	No.1	No.2	No.3	No.4	No.1	No.2	No.3	No.4	No.1	No.2	No.3	No.4	No.1	No.2	No.3
プロパン量(Nm^3/hr)			2.3	2.8	3.5	3.5	2.2	3.3	4.0	3.9	2.3	3.3	4.1	4.1	2.9	3.3	3.7	4.2	2.8	3.3	4.3	4.4		4.4	4.4	4.3
空気量(Nm^3/hr)			106	90	117	117	94	102	128	124	106	102	127	126	116	102	121	129	125	102	142	144		128	127	128
流動化ガス速度①(Ncm/sec)			10.0	7.4	9.6	9.6	8.9	8.4	10.5	10.2	10.0	8.4	10.5	10.4	11.0	8.4	10.0	10.6	11.8	8.4	11.7	11.8		10.6	10.5	10.6
燃焼ガス温度①(°C)			543	670	993	660	540	672	1057	1052	587	640	1015	740	607	640	993	745	650	705	1065	800		690	1003	713
炉内温度①(°C)			327	577	717	665	335	670	845	900	328	563	755	720	345	505	728	720	441	670	857	680		462	675	680
炉内最高温度(°C)			355	730			365	900			360	780			380	770			460	860				705		
全圧力損失(mmAq)			605	450			610	420			630	440			600	410			570	360				487		
媒体／成形炭サイズ			ジルコンサンド／L				ジルコンサンド／L				ジルコンサンド／L				ジルコンサンド／L				ジルコンサンド／L				砂	鉄／S		
媒体供給速度(kg/hr)			50				50				50				50				50				156			
媒体排出速度(kg/hr)			—				—				—				—				—				136			
成形炭供給速度②(kg/hr)			14.5				14.5				48.4				96.8				15.1				36.8			
成形炭排出速度(kg/hr)			11.1				10.5				35.2				61.2				8.9				25.2			
収率(%)			76.2				72.5				72.8				63.2				59.6				68.5			
成形炭の平均滞留時間(min)			169				—				81				63				128				47			
成形炭重量②(g)			67.7				63.6				67.1				67.6				15.7				18.4			
成形炭破損率③(%)			48				85				70				77				32				—			
成形炭損耗率(%)			2.8				4.7				2.5				2.5				6.6				3.4			
温度差④(°C)			180				255				150				50				150				0			
ドラム強度 DI_{15}(−)			85				72				78				89				42				—			
摩耗強度(−)			90				88				89				90				89				—			
マイクロ強度(−)			50				65				50				52				62				—			
ガス分析値⑥ (%)(ドライベース)	炉内ガス	H_2	1.8	1.2	0.8	0.4	1.8	1.7	0.2	0.5	0.2	1.8	4.4	0.4	0.9	0.8	3.1	0.6	—	2.9	2.7	0.3		1.1	7.9	4.2
		CH_4	—	1.2	0.1	tr	—	1.6	tr	tr	—	3.8	0.5	tr	—	3.1	0.6	0.1	—	0.9	0.1	tr		0.7	2.7	0.1
		CO	2.9	0.5	0.2	0.2	3.2	0.5	0.2	0.5	0.3	0.5	1.3	0.3	1.6	0.5	1.0	0.4	—	0.7	1.2	0.6		1.4	2.2	0.9
		CO_2	12.5	12.1	14.1	14.3	12.0	13.9	13.5	13.8	13.4	13.7	14.3	13.6	12.9	13.1	13.2	14.9	—	13.8	14.9	14.0		13.6	13.0	13.6
		O_2	0.3	0.1	0.1	0.1	0.4	0.3	0.3	0.4	0.7	0.4	0.4	0.5	0.1	0.3	0.5	0.5	—	0.1	0.5	0.2		0.2	0.2	0.3
		N_2	82.5	84.8	84.7	84.9	82.7	82.0	85.7	84.8	85.3	79.8	79.0	84.8	84.5	82.0	81.6	83.6	—	81.6	80.7	85.0		82.5	74.0	80.9
	燃焼ガス	H_2	2.3	0.4	0.4	0.3	1.8	tr	tr	tr	0.8	0.1	—	—	1.0	tr	tr	—	0.7	0.2	—	—		1.9	2.2	3.0
		CH_4	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—		—	—	—
		CO	3.7	0.4	0.3	0.4	3.0	tr	—	—	1.4	0.1	—	—	1.7	—	—	—	1.1	0.2	—	—		2.2	2.9	3.7
		CO_2	12.2	14.1	14.0	14.0	11.9	14.1	14.0	13.9	12.9	14.0	14.0	13.7	12.9	14.2	13.9	13.9	13.5	14.2	13.9	13.4		12.5	11.6	11.0
		O_2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	tr	—	—	0.1	0.4	0.4	0.5	0.1	0.3	0.6	0.5	0.1	0.1	0.4	1.4		0.2	0.3	0.2
		N_2	81.7	85.0	85.2	85.2	83.1	85.6	85.6	85.5	84.7	85.4	85.6	85.8	83.1	85.6	85.6	85.5	84.5	85.2	85.7	85.2		83.1	83.0	81.9
工業分析値⑦(%)	水分(%)		2.52				1.16				2.38				1.66				4.98				3.35			
	灰分(%)		9.84				10.51				9.69				9.74				12.85				11.76			
	揮発分(%)		4.66				1.02				3.51				4.18				1.79				6.06			
	固定炭素(%)		82.98				87.31				84.42				84.44				80.38				78.83			

① 各炉番内の平均値　② 無水基準　③ 排出量基準　④ 予熱炉出口と焼成炉入口の値　⑤ No.3炉の冷却部を取除いて行った実験　⑥ CO_2はヘンペル式分析法，他はガスクロマトグラフィーを用いて分析した。　⑦ トレーサーに用いた成形コークスの平均値。

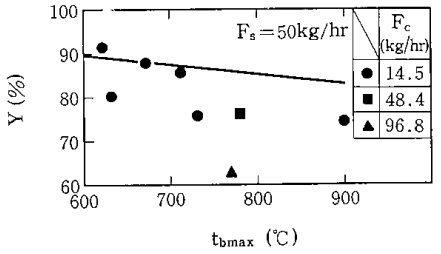


図Ⅲ-7 トレーサーに用いた成形コークスの残留揮発分

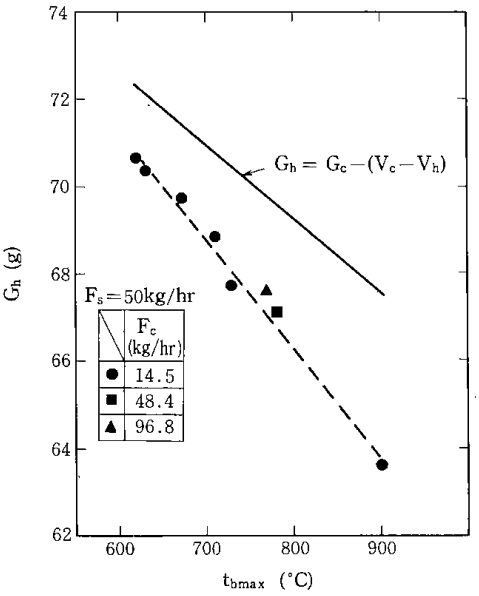
必要がある。各焼成温度において炉内滞留時間約 120 分以上で揮発分が一定になっていることがわかる。また，予熱炉を用いた場合と焼成炉のみの場合を比較すると，曲線の傾向から焼成炉のみの方が脱揮発速度が早くなっているが，これは急速加熱を受けているためである。

図Ⅲ-8にコークス収率と焼成温度との関係を示す。全体的に高温側になると収率は小さくなる傾向が認められる。バラツキが大きいのは焼成中に成形炭相互の衝突等により，破砕した小片が排出機の格子間隙より落下し，十分捕集できなかったことによるものである。なお，完全な形で排出された成形コークス(大粒径(L))の割合は室温試験で60～70%であり焼成試験では最高52%であった。

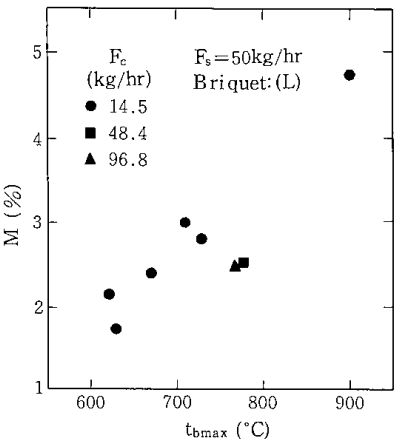
焼成温度と成形コークス１個あたりの重さ（無水基準）との関係を**図Ⅲ-9**に示す。この値は完全な形で排出された成形コークスの中から40～50個抜き出し，その平均重量である。実線は損耗がないものと仮定して，原料成形炭から**図Ⅲ-7**にもとずいた脱揮発分量（重量換算）を差し引いたものである。測定値（点線）との差異は損耗量を示し，焼成温度が高くなるほど，差が大きくなっている。



図Ⅲ-8 成形コークス収率



図Ⅲ-9 成形コークス１ヶ当りの重量



図Ⅲ-10 成形コークスの損耗率

図Ⅲ-10に焼成温度と損耗率との関係を示す。成形炭の損耗は，成形炭相互あるいは媒体との接触による摩耗や，水性ガス反応によって生ずると考えられる。これらに起因する消失量を総合して損耗量とし，原料成形炭の重さに対する割合を損耗率とした。その計算式を次に示す。

$$M = \{(G_c - G_h) - (V_c - V_h)\} / G_c$$

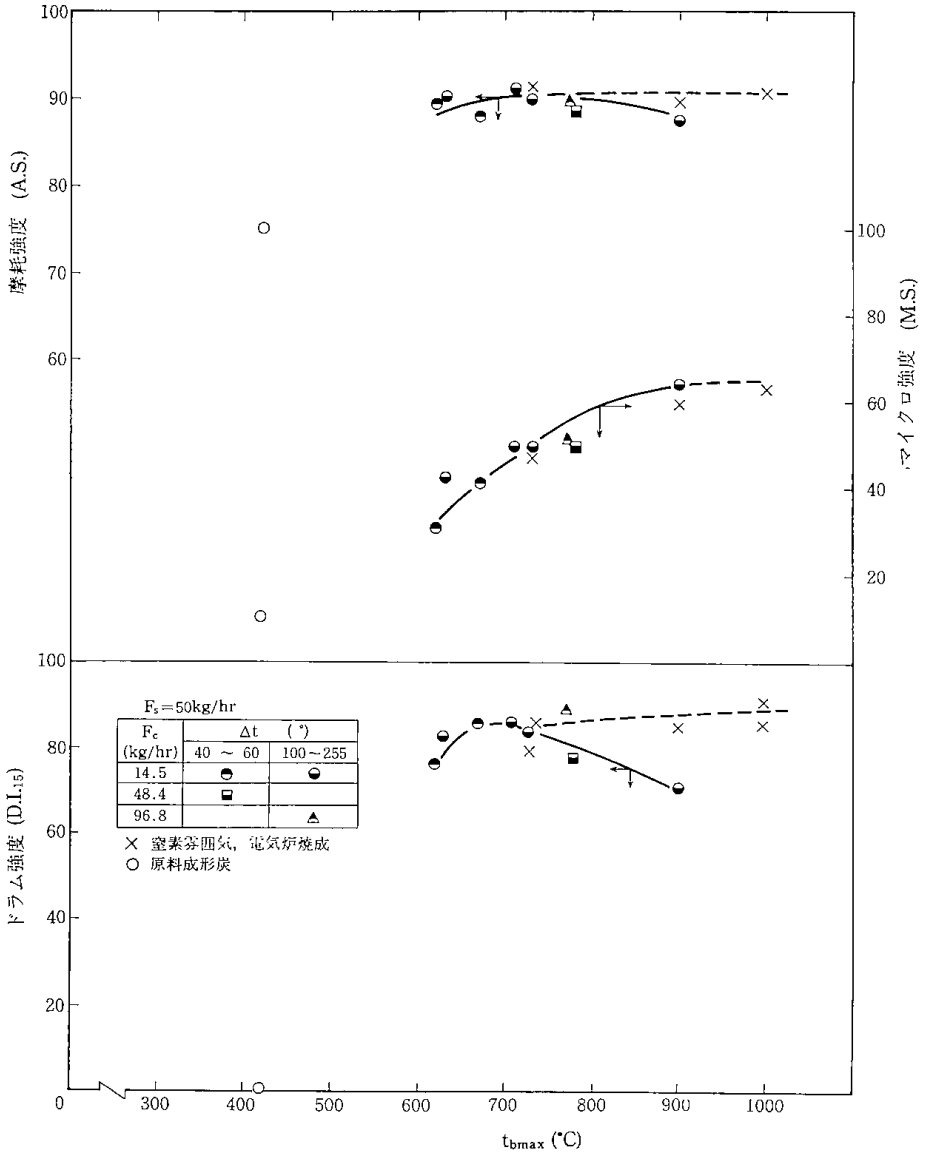
ここで，Mは損耗率，G_c，G_hは原料成形炭，成形コークスの重量，V_c，V_hは成形炭，成形コークスの揮発分の重量である。

なお摩耗については室温試験後の成形炭の表面から光沢を失っていることからもうかがえる。図に示すように焼成温度が高くなるほど損耗率も高くなる傾向を示した。これは炉温を高めるには前述したように流動化ガス流速も大きくなり，炉内の流動が激しくなって，成形炭相互および成形炭と媒体との接触も激しくなること，さらに水性ガス反応も促進されるためによるものと考えられる。

図Ⅲ-11に焼成温度に対するDI_{15}，MS，AS，値を示す。DI_{15}は予熱炉出口と焼成炉入口との温度差Δtが小さい（40～60°C）場合には，焼成温度が高くなるほど増加し，Δtが大きい（100～255℃）場合には700℃近傍で最大値87を示した後低下する傾向を示した。環状電気炉を用い窒素雰囲気下で焼成した成形コークスでは1000°Cで90を示した。これらのことからこの炉における焼成では温度を高くするほどΔtは大きくなるため，成形炭は急速加熱を受け，亀裂の発生が多くなってDI値を低下させるものと推定される。

MSはΔtに関係なく，温度とともに増加し900℃で65に達した。また，電気炉で焼成した場合も同様な傾向を示した。

ASについては600°C以上でΔtに関係なく90前後の値を示した。



図Ⅲ-11 成形コークス強度

III-5 まとめ

1）横型媒体流動焼成炉により成形炭を連続的に焼成する試験を行った。その実験範囲は次の通りである。

成形炭供給速度	15～100 kg/hr
媒体供給速度	50, 100, 180 kg/hr
流動化ガス速度	7～11 Ncm/Sec
焼成温度	620～900°C
成形炭滞留時間	60～170 min

2）室温の成形炭を炉に直接装入する場合，急熱されるため装入温度に限界があり，大粒径成形炭(L)では約290°Cであった。

3）各焼成温度において炉内滞留時間約120分以上で残留揮発分は一定となり，900°Cで残留揮発分は約1%であった。

4）完全な形で排出される成形コークス（大粒径(L)）の割合は室温の流れ試験で60～70%であり焼成試験では最高52%であった。

5）成形コークスの損耗率は焼成温度が高くなるほど高い傾向を示し，大粒径成形炭(L)では900°Cで約5%であった。

6）コークス強度

(i) DI_{15}は予熱炉出口と焼成炉入口温度差の影響を強く受け，温度差が小さい（40～60°C）場合には，焼成温度が高くなるほど増加し，大きい（110～255°C）場合には700°C近傍で最大値87を示した後低下する傾向を示した。

(ii) MS，ASは温度差に関係なく焼成温度とともに増加し前者は65に達し，後者は600°C以上で90前後であった。

このように，媒体流動層方式で成形炭を連続的に処理することが可能であった。また，炉内滞留時間が120分程度で脱揮発が完了した。

しかし，排出機や分散板の耐熱性および炉内ガス速度の制限などから900°C以上では焼成出来なかったため，ドラム強度は十分でなかった。このことは，装置材質の改良，熱砂供給法等により改善し得るものと考えられる。

成形炭の損耗や急熱によるヒビ割れについては流動化ガスの選択，熱間装入法等を考慮する必要がある。なお、この方式で焼成する場合の原料成形炭の強度についても検討を要する。

〔記　号〕

F_c	：成形炭供給速度	(kg/hr)	t_{gi}	：燃焼ガス温度	(°C)
F_s	：媒体(流動化粒子)供給速度	(kg/hr)	Δt	：予熱炉出口と焼成炉入口との温度差	(°C)
G_c	：成形炭の重量	(g)	V_c	：成形炭の揮発分の重量	(g)
G_h	：成形コークスの重量	(g)	V_h	：成形コークスの揮発分の重量	(g)
M	：成形コークスの損耗率	(%)	X	：炉長	(m)
t_b	：炉内温度	(°C)	Y	：成形コークス収率	(%)
t_{bmax}	：焼成温度（炉内最高温度）	(°C)			

製鉄用成形コークス製造に関する研究—Ⅳ

—横型連続式媒体流動焼成炉の装置特性*1)—

弓山　翠・平間利昌・武田詔平
西野　浩・山口　弘・吉田雄次

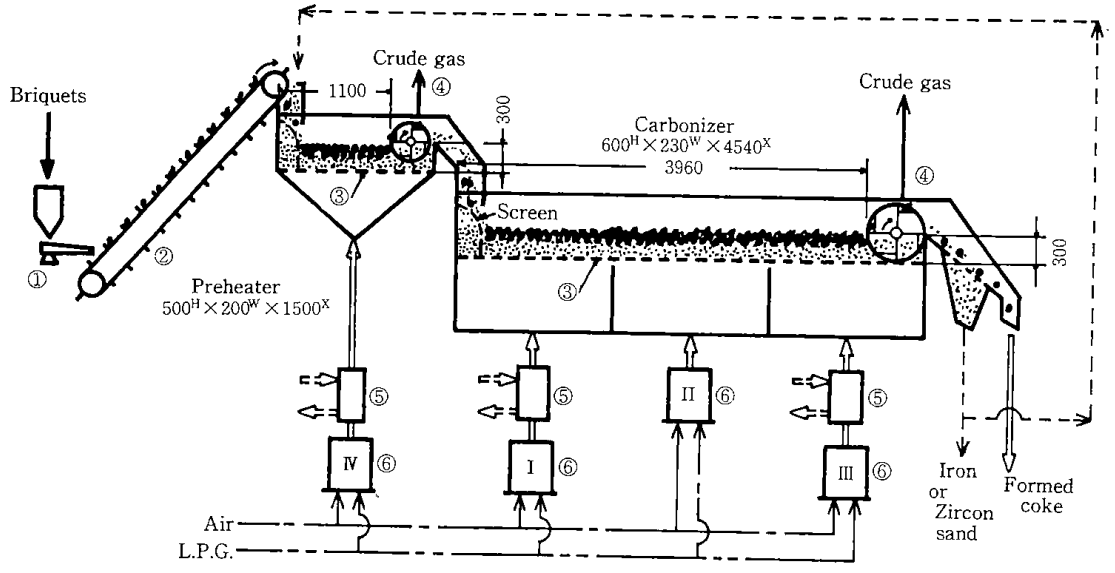
Ⅳ-1　はじめに

これまで述べてきたように，本横型媒体流動焼成炉は，成形炭を流動層中で浮遊させながら連続焼成しようとするものであり，同時に，成形炭の流れ方向に適当な温度分布を作って，成形炭供給部での急熱によるひび割れを避け，さらに成形炭の層内滞留時間分布を狭くして，焼成むらを少なくすることをねらいとしている。

ここでは，このような横型連続式媒体流動焼成炉の装置特性について，Ⅲで述べたコークス焼成炉を用いて行った実験結果を報告する。まず，室温における実験では，層内における成形炭の挙動を観察し，さらに成形炭の層内滞留時間分布を測定して，層内平均滞留時間および成形炭のペクレ数を算出し，それらにおよぼす操作因子の影響を検討した。ついで，成形炭の焼成試験では層内横方向の温度分布を測定し，その結果から算出した横方向の有効熱拡散率とⅡで述べた基礎試験結果とを比較検討した。さらに装置の操作上でのトラブルや問題点についても2,3報告する。

Ⅳ-2　実験装置と方法

実験に使用した装置は既にⅢで述べたものであるが，流動層の部分のみの詳細図を図Ⅳ-1に示す。室温実験の場合の流動化ガスには空気を使用した。また使用した流動化粒子と成形炭はⅢで述べたものと同様である。



①Vibration feeder　④Rotary discharger {(400φ×200W−3r.p.m.)in preheater (580φ×220W−3r.p.m.)in carbonizer}
②Apron conveyor　⑤Water jacket
③Perforated plate　⑥Combustion chamber

図Ⅳ-1　実験装置の概略

* 本報告は化学工学論文集，2，501（1976）に掲載された。

Ⅳ-2-1 成形炭の平均滞留時間と滞留時間分布

実験はパルス応答法で行った。すなわち，層内が定常状態になったのち，2mmφの石膏を埋め込んだ所定の数（成形炭(S)で100個，(L)で40個）のトレーサー成形炭を瞬間的に投入し，一定の時間間隔でその間の排出個数を数えた。この結果から，成形炭の平均滞留時間$\bar{\theta}_c$と分散$\sigma^2_{\theta_c}$を算出し，拡散モデルに基づくClosed-Closed系の場合の関係式[2]

$$\sigma^2_{\theta_c}/\bar{\theta}^2_c = (\bar{u}_c X_e/D_c)^{-2}\ \{(\bar{u}_c X_e/D_c) - 1 + \exp(-\bar{u}_c X_e/D_c)\} \quad (1)$$

により，ペクレ数$(\bar{u}_c X_e/D_c)$を求めた。ここでD_cは成形炭の横方向の混合拡散係数，$\bar{u}_c$は成形炭の横方向平均線速度である。なおこの実験の際，層内に供給された成形炭が逆流して，層の端面近傍に長時間滞留するのを防ぐため**図Ⅳ-1**に示すような金網を層内に設置した。X_eはこの金網から成形炭排出機までの距離である。

Ⅳ-2-2 層内横方向の熱拡散率α_r

成形炭と流動化粒子，または流動化粒子のみを連続供給し，定常状態における層内横方向の温度分布を測定した。成形炭と流動化粒子の両者を連続供給した場合について，①成形炭と流動化粒子は横方向に平均線速度$\bar{u}_b$で流れるものとする，②層内の任意の位置で，成形炭，流動化粒子および流動化ガスの温度は等しく，また層内の高さ方向および巾方向にも温度分布がないものとする，③横方向への熱の移動は，成形炭と流動化粒子の流れおよび混合拡散によるものとする，と仮定すれば，微小部分の熱収支式は次のように表わされる。

$$W u_o \rho_g C_{pg}(t_{gi}-t_o) - S\bar{u}_b\bar{\rho}_b C_{pb}(dt_b/dx) + S\alpha_r\bar{\rho}_b C_{pb}(d^2t_b/dx^2) - 2UL_f(t_b-t_o) = 0 \quad (2)$$

ここでUは壁からの放熱に関する総括伝熱係数であり，流動化粒子のみを装置に装入して，層内温度が定常状態になるまで流動加熱し，その結果から次式によって求めた。

$$U = \{W u_o \rho_g C_{pg}(t_{gi}-t_o)\}/2L_f(t_b-t_o) \quad (3)$$

また本実験では，成形炭と流動化粒子の横方向平均線速度が必ずしも一致しないので，u_b，$\bar{\rho}_b$，C_{pb}として次のような各平均値を使用した。

$$\left.\begin{aligned} \bar{u}_b &= X(\bar{F}_c+\bar{F}_s)/(M_c+M_s) \\ \bar{\rho}_b &= (M_c+M_s)/SX \\ C_{pb} &= (\bar{F}_c C_{pc}+\bar{F}_s C_{ps})/(\bar{F}_c+\bar{F}_s) \end{aligned}\right\} \quad (4)$$

ここで$\bar{F}_c$，$\bar{F}_s$はそれぞれ成形炭と流動化粒子についての，供給速度と排出速度の平均値，M_c，M_sは同じく両者の層内滞在量である。またC_{pc}は成形炭の分解熱をも含めた総括比熱であり，杉山らの結果[3]から推算した。流動化粒子のみを連続供給した場合には式(4)の$\bar{F}_c$，M_c，C_{pc}はいずれも零となる。

以上の式に基づいてα_rを算出するにあたり，本実験では流動化ガスの入口温度t_{gi}などが位置によって変化するので，式(3)の解析解は得られない。そこで次のような手順でRunge-Kutta-Gill法による数値計算を行いα_rを求めた。まず式(2)の境界条件を次のようにとる。

$$\left.\begin{aligned} &(t_b)_{x=-0} = t_{so} \\ &(t_b)_{x=+0} = t_{bi} \\ &(dt_b/dx)_{x=+0} = \bar{u}_b(t_{bi}-t_{so})/\alpha_r \\ &(t_b)_{x=xe} = t_{be} \end{aligned}\right\} \quad (5)$$

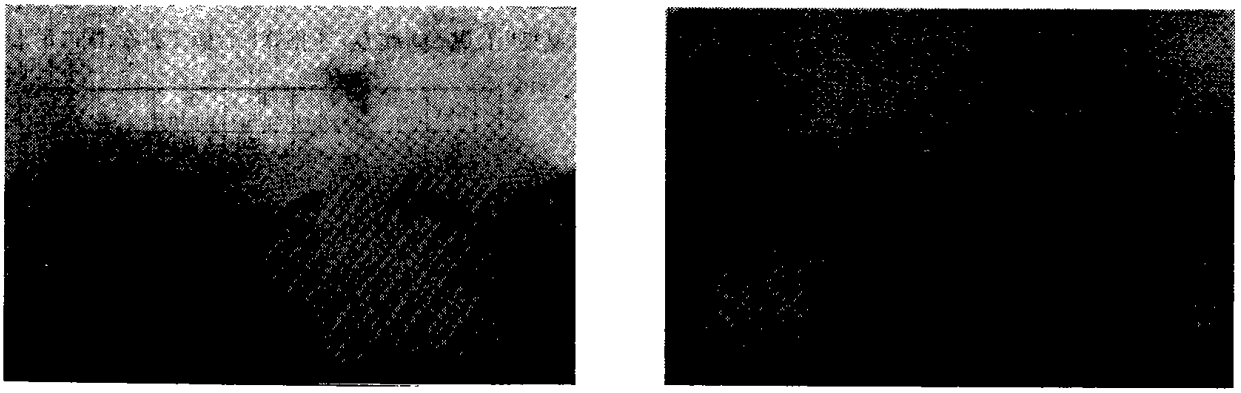
ここでX_eは，成形炭の供給口から数値計算の最終点までの距離である。実測値からの外挿によってt_{bi}を求め，任意のα_rのもとでt_{so}を変化させながら，t_{be}の実測値と計算値が一致するまで計算を繰り返し，両者が一致したときの層内温度分布の計算値を実測値と比較する。α_rを変化させながら，このような計算を繰り返し，層内温度分布の計算値と実測値が最も良く一致するα_rを求めた。

なお，焼成炉による実験では，**図Ⅳ-6**に見られるようにt_{gi}の分布が大きいため，u_oにも分布が生じ，その結果α_rも位置によって変化するものと考えられるが，ここではα_rは層内全長について一定であると仮定して計算した。また本実験に使用した成形炭は，その粒径が大きいため，特に焼成過程では成形炭の表面と中心部での温度差が大きくなる[3]（Ⅰ-4参照）が，ここではその温度差がないものと仮定して計算した。

Ⅳ-3 実験結果と考察

Ⅳ-3-1 成形炭の挙動の観察

装置内における成形炭の挙動の観察は，層上面から行った。実装置と同一形状のアクリル製流動層を用いジルコンサンドを流動させた層内で，成形炭(S)を浮遊させたときの写真を**図Ⅳ-2**に示す。成形炭の層内滞在量が比較的少ない場合は，(a)に示すように激しく運動している流動化粒子の層表面付近で，成形炭は波動的に運動し，気泡の上昇によって凸状になった層表面に沿って滑るように移動する。また成形炭の層内滞在量が多くなると，(b)に示すように成形炭は層上部に数層かさなり，あたかも層上部は充填流動層，層下部は流動層のような状態になる。そして成形炭個々の運動は制約されて，層状のまま運動しているように



(a) 成形炭の層内滞在量が少ない場合　　(b) 成形炭の層内滞在量が多い場合

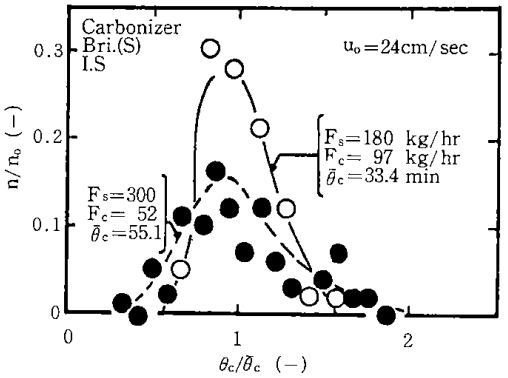
図Ⅳ-2　層内における成形炭の挙動

観察された。

本実験に使用した成形炭と流動化粒子の密度差はかなり大きいため，成形炭は層上部に層をなして浮遊しており，このような挙動については，流動化ガス速度や層内温度が違っても大きな変化が認められなかった。

Ⅳ-3-2　成形炭の平均滞留時間と滞留時間分布

焼成炉を使って定温で行った実験結果の一例を図Ⅳ-3に示す。n/n_o はトレーサー成形炭の全数に対する単位時間毎の排出数の割合である。図に示すように，



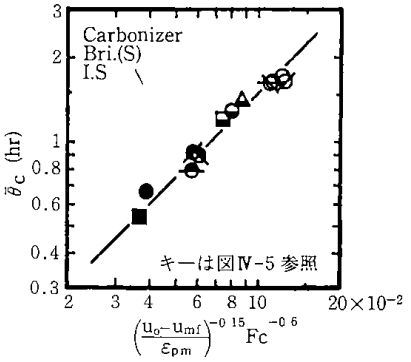
図Ⅳ-3　成形炭の滞留時間分布の測定例

u_o が一定であれば成形炭の供給速度 F_c が大きくなるほど平均滞留時間 $\bar{\theta}_c$ が少なくなり，また滞留時間分布が狭くなっている。

図Ⅳ-4は焼成炉を使った室温における実験結果から平均滞温時間 $\bar{\theta}_c$ と流動化ガス速度 $(u_o-u_{mf})/\varepsilon_{pm}$ および成形炭の供給速度 F_c との関係をまとめたものである。ε_{pm} は気泡を除いた層体積に占める成形炭を除いた空間の割合（充填物の空間率）である。この結果は次式で表わされる。

$$\bar{\theta}_c = 15\ \{(u_o-u_{mf})/\varepsilon_{pm}\}^{-0.15} F_c^{-0.6} \qquad (6)$$

このように本実験では，$\bar{\theta}_c$ に対する流動化粒子の供給



図Ⅳ-4　成形炭の平均滞留時間 $\bar{\theta}_c$ と $(u_o-u_{mf})/\varepsilon_{pm}$，$F_c$ との関係

度 F_s の直接的な影響が認められなかった。また $\bar{\theta}_c$ とと流動化粒子の平均滞留時間の間には相関が認められなかった。さらに操作条件が同一であれば，成形炭，(L)と(S)の間では $\bar{\theta}_c$ の差が認められなかった。

図Ⅳ-5は成形炭のペクレ数 $(\bar{u}_c X_e/D_c)$ と $(u_o-u_{mf})/\varepsilon_{pm}$，$F_c$，$F_s$ の関係を整理したものであり，実験式は次式で表わされる。

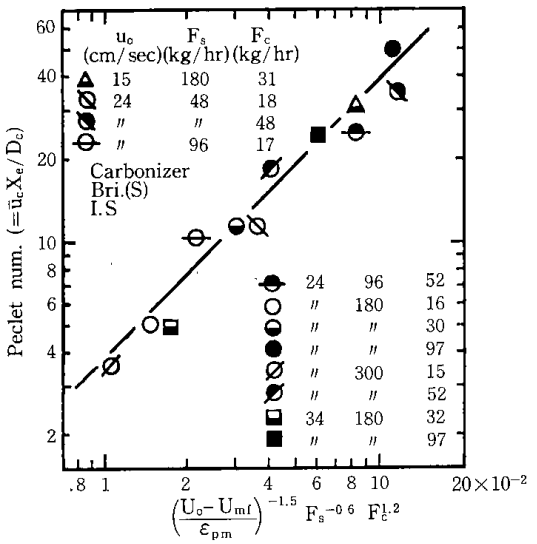
$$(\bar{u}_c X_e/D_c) = 3.7\times10^2\{(u_o-u_{mf})^{-1.5} F_c^{1.2} F_s^{-0.6}\} \qquad (7)$$

式(6)，(7)において，$\bar{\theta}_c$ は〔hr〕，u_o および u_{mf} は〔cm/sec〕，F_c および F_s は〔kg/hr〕である。本実験範囲で得られた焼成炉における成形炭のペクレ数は3～50の範囲であり，操作条件を適切に選ぶことによって，成形炭の滞留時間分布をかなり狭くできることがわかる。また成形炭が大きいほどペクレ数は大きくなる傾向が見られた。

なお $\bar{\theta}_c$ とペクレ数の測定は焼成試験においても行ったが，層内でトレーサー成形炭が一部破損することなどにより，定量的な検討はできなかった。

Ⅳ-3-3　層内横方向の温度分布と有効熱拡散率 α_r

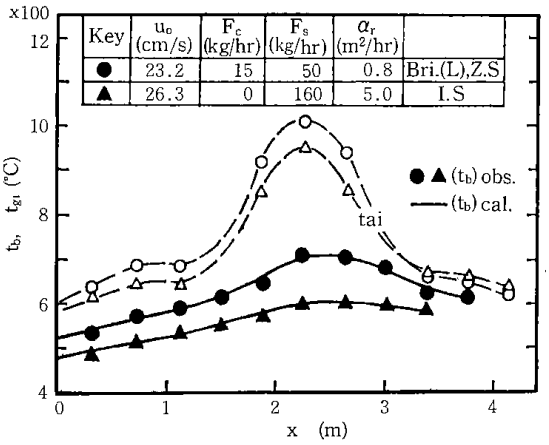
実験結果の一例を**図Ⅳ-6**に示す。成形炭と流動化粒



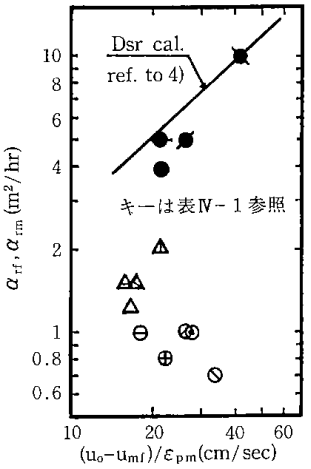
図Ⅳ−5 成形炭のペクレ数と$(u_o-u_{mf})/\varepsilon_{pm}$，$F_c$，$F_s$との関係

子を連続供給した場合（連続式媒体流動層）を丸印で流動化粒子のみの場合（連続流動層）を三角印で示す。両者の実験条件は異なるが，成形炭を装入することによって，層内横方向の温度分布は大きくなっている。またα_rをそれぞれ0.8および5 m²/hrとしたときの層内温度分布の計算結果（実線）は測定値と良く一致している。

このようにして求めたα_rの測定結果を**図Ⅳ−7**に，実験条件を**表Ⅳ−1**にまとめて示す。u_oおよびu_{mf}はいずれも層内平均温度における値である。図中の黒丸は連続流動層の場合の結果（α_{rf}）であり，実線は流動層における横方向の粒子混合拡散係数（D_{sr}）に関する既往の結果[4]に基づいてD_{sr}を推算した値である。図に示よ



図Ⅳ−6 層内温度分布の一例



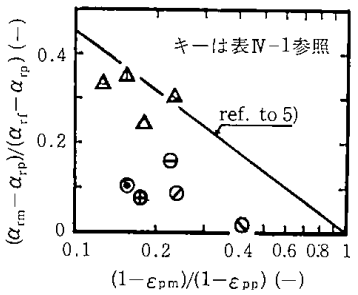
図Ⅳ−7 α_rの測定結果

表Ⅳ−1 実　験　条　件

Apparatus	Particle	Briquet	F_c (kg/hr)	F_s (kg/hr)	$\bar{t}_b$ (℃)	Key
Carbonizer	I.S	—	—	200	780	●
Carbonizer	I.S	—	—	140	635	◕
Carbonizer	I.S	—	—	180	580	●
Carbonizer	I.S	—	—	160	565	◕
Carbonizer	I.S	(S)	37	156	585	⊙
Carbonizer	Z.S	(L)	15	50	635	⊕
Carbnoizer	Z.S	(L)	14.5	50	555	⊖
Carbonizer	Z.S	(L)	14.5	50	655	⊘
Carbonizer	Z.S	(L)	48.4	50	680	⊘
Pre-heater	Z.S	(L)	14.5	50	390	◬
Pre-heater	Z.S	(L)	14.5	50	325	△
Pre-heater	Z.S	(L)	14.5	50	330	◬
Pre-heater	Z.S	(L)	48.4	50	330	◬

ように両者はほぼ一致している。媒体流動層におけるα_{rm}については，予熱炉の結果を三角で，焼成炉の結果を丸で示している。同じガス流速で比較するとα_{rm}はα_{rf}の½～⅙程であり，また予熱炉のα_{rm}は焼成炉のそれよりも大きくなっている。

しかしながら，IIでも述べたようにα_{rm}は浮遊充填物（成形炭）の層内滞在量によって影響を受ける[5]のでα_{rm}をε_{pm}との関係で整理したのが**図Ⅳ-8**である。ここでε_{pp}は成型炭を充填物とした充填流動層の空間率である。またα_{rp}は充填流動層の有効熱拡散率であり，ここでは水平断面が8×70 cmのアクリル製流動層に，球



図Ⅳ-8 α_{rm}におよぼす充填物の空間率の影響

状充填物を充填した横型連続式の充填流動層における測定結果[6]に基づき，成形炭と同一体積の球体が充填されたものと仮定して推算した値を用いた。また実線は，同じアクリル製の装置を用いて，α_{rm}におよぼす浮遊充填物の層内滞在量の影響について検討した結果[5]である（IIのII-6を参照）。予熱炉の結果（三角）は基礎試験結果に近い値を示している。一方，焼成炉の結果はこれらに比べてα_{rm}がかなり少さい。この主な原因としては，成形炭が焼成炉の供給口付近で急激に加熱させるために，熱分解（吸熱反応）が急速に進行して，供給口付近の見掛けの層内温度が低くなり，その結果見掛けのα_{rm}が少さくなるものと考えられる。従って焼成炉におけるα_{rm}の測定結果は，成形炭の分解熱の温度履歴による変化などを含めた総括的な値と考えるべきであろう。これに対して，この実験で使用した成形炭は420℃程度で流動加熱された微粉炭を成形したものなので，t_bが420℃以下で操作される予熱炉では分解熱の影響を無視し得るものと考えられる。

Ⅳ-3-4 装置の操作上でのトラブルと問題点

多孔板の材質がSUS 32の場合は損焼が激しかったことをPart IIIで述べたが，UMCO 50のものに取り換えてから，流動化ガスの最高温度が1,000～1,200℃程度，層内の最高温度650～850℃程度，通算加熱時間が約300時間で中央の溶接部に亀裂を生じた。しかし歪みはほとんどないため，溶接部の再溶接によって十分に再使用できた。いずれにしても高温使用部分での溶接はできるだけ避けることが望ましい。

本実験では，層内温度の制御をu_oの増減によって行ったが，u_oを変化させると層内の温度分布も変化するため，人為的に正確な温度制御を行うことが困難であった。

これまで述べた結果からもわかるように，成形炭の層内滞在量は平均滞留時間や滞留時間分布および層内の熱伝達に大きく影響をおよぼす。従って成形炭の排出方式や排出機の選定は，本装置設計にとって極めて重要な因子である。本実験の当初は，成形炭を流動化粒子に同伴させる溢流排出方式を予定していた。しかし成形炭を溢流方式で安定に排出するためには，流動化粒子を成形炭の数倍以上の速度で供給する必要があり，これは熱的にも動力的にも不経済であると考え，機械的な排出方式を採用した。

また本装置で成形炭を定常的に排出するためにはu_o，F_cなどに一定の限界があるものと考えられる。たとえば焼成炉でu_o=34 cm/sec, F_c=97 kg/hr, $\bar{F}_s$=50kg/hrの実験では，成形炭の層内滞在量が徐々に増加する傾向が見られた。

Ⅳ-4 ま と め

製鉄用成形コークスの製造を目的とし，成形炭の排出機を備えた横型連続式の媒体流動焼成炉の装置特性について検討した。室温における流動実験により，成形炭の層内における挙動を観察し，成形炭の平均滞留時間と滞留時間分布を測定した。さらに高温焼成試験では層内横方向の温度分布を測定した。これらの結果から，成形炭のペクレ数と層内横方向の有効熱拡散率を算出した。

本装置形式では，成形炭は層上部に層をなして浮遊し連続処理が可能であった。成形炭のペクレ数は3～50であった。また成形炭を層内に浮遊させることによって，層内横方向の温度分布が拡がり，有効熱拡散率も通常の流動層の½以下であった。さらに成形炭の平均滞留時間，ペクレ数および有効熱拡散率におよぼす操作因子の影響ならびに装置の操作上の問題点についても考察を加えた。

〔謝辞〕

実験結果の解析にあたり，当所富田稔氏の助言を得ました。また，IIIおよびⅣの実験では西川泰則氏の協力を得ました。ここに記して感謝致します。

〔使用記号〕

C_p	: 比熱	(kcal/kg.℃)
C_{pc}	: 成形炭の総括比熱	(kcal/kg.℃)
D_c	: 成形炭の横方向混合拡散係数	(m^2/hr)
D_{sr}	: 流動化粒子の横方向混合拡散係数	(m^2/hr)
F	: 供給速度	(kg/hr)
L_f	: 流動層高（溢流高さ）	(m)
M	: 層内滞在量	(kg)
n_o	: トレーサー成形炭の全数	(−)
S	: 層の垂直断面積	(m^2)
$\bar{t}_b$	: 層内平均温度	(℃)
t_{gi}	: 流動化ガスの入口温度	(℃)
t_o	: 室温	(℃)
U	: 総括伝数係数	(kcal/m^2.hr.℃)
$\bar{u}_c$	: 成形炭の横方向平均線速度	(m/hr)
u_{mf}	: 最小流動化速度	(m/hr, cm/sec)
u_o	: 空塔ガス速度	(m/hr, cm/sec)
W	: 巾	(m)
X_e	: 成形炭の流れに有効な長さ	(m)
x	: 成形炭入口からの長さ	(m)
α_r	: 横方向の有効熱拡散率	(m^2/hr)
ε_p	: 充填物の空間率	(−)
$\sigma^2_{\theta_c}$	: 分散	(hr^2)
$\bar{\theta}_c$	: 成形炭の平均滞留時間	(hr)
ρ	: 密度	(kg/m^3, g/cc)

添字

b	: 層	
c	: 成形炭	
f	: 流動層	
g	: 流動化ガス	
m	: 媒体流動層	
p	: 充填流動層	
s	: 流動化粒子	

〔引用文献〕

1)平間利昌，弓山翠，武田詔平，西野浩，出口明，藤岡丈夫，山口弘，吉田雄次：化学工学論文集，**2**，(5), 501 (1976)

2) O. Levenspiel : Chemical Reaction Engineering, John Wiley and Sons. Inc., P.242 (1962)

3)杉山幸男，長坂克己，架谷昌信，福原朋信，高橋佳治：化学工学，**30**，(2), 165(1966)

4)平間利昌，石田愈，白井隆：化学工学論文集，**1**，(3), 272(1975)

5)平間利昌，弓山翠，武田詔平，西野浩，山口弘，吉田雄次：化学工学協会北海道大会要旨集，A−28，室蘭 (1975)

6)平間利昌，山口弘：化学工学協会第37年会要旨集，E−302，名古屋(1972)

〔謝 辞〕

本研究は，北海道開発庁の開発計画費によって行われた。御尽力頂きました関係各位，および本研究推進のために，特に設置された特別研究推進委員会の方々（付表）に厚くお礼申し上げます。

また，多量の試料炭を提供いただいた石炭技術研究所の御協力に対して，厚く謝意を表します。

さらに，本研究の中で実験プラントの製作・改修・計装および運転の面で種々御協力頂いた当所加藤清氏，三浦健一氏，西川泰則氏に対し，深く感謝致します。

付 表

特別研究推進委員会（製鉄用成形コークス委員会）委員名簿

相田健二	住友石炭鉱業(株)北海道技術研究所
雨宮登三	丸善石油(株)中央研究所
伊藤二郎	北海道開発庁
遠藤一夫	北海道大学
小幡八郎	工業技術院
加藤康夫	九州大学
川名善男	公害資源研究所
国井大蔵	東京大学
久芳正義	新日本製鉄(株)室蘭製鉄研究所
白井隆	東京工業大学
武谷愿	北海道大学
長井弘	北海道立工業試験場
淵一郎	北海道炭礦汽船(株)夕張化成工業所
山村禮二郎	石炭技術研究所

敬称略，五十音順。　　所属は昭和45年現在による。

Research on the Manufacture of Metallurgical Formed Coke

Synopsis

In order to maintain crude steel production amounting to 100 million tons or thereabouts per year in Japan, we are compelled to rely on a tremendous amount of imported material coal from abroad since we are lacking in high quality indigenous coking coal. Since the energy crisis, a world wide revolution of coal policies have been made, and as a result the lack of supply of imported coking coal has become apparent. In an attempt to cope with this situation, a strong necessity for using indegenous non-coking coal hitherto considered as useless for steel production coke has arisen.

For this purpose, at our institute from the beginning using previously obtained knowledge of smokless fuel technic as a base, a new coking process involving a horizontal fluidized bed in which briquets are suspended in a flow of sand to produce coke has been developed and a 4 year plan starting in 1970 has been executed.

In the present paper the results of experiments using a pilot plant will be discussed, this and related research from basic to applied have been incorporated. In Part I and Part II, the carbonization of briquets and basic results using a horizontal type fludized bed are reported. In Part III and Part IV, the results of tests using a horizontal fluidized sand bed carbonizer and the characteristics of the apparatus thereof are reported.

Part I

HIROSHI NISHINO, SHOHEI TAKEDA, YUJI YOSHIDA

The results of experiments using laboratory scale apparatus were discribed. Heat treated coal and test pieces were used to investigate the high temperature carbonization conditions and the course of coking. Futher, cabonizing experiments on two types of briquet were carried out and we have obtained data indicating that under appropriate conditions high grade formed coke can manufactured.
The pertinent points are as follow;

(1) From test piece experiments as the conditions for hot briquetting, the heat treatment temperature prior to briquetting should be from 410℃ to 440℃ and the oxygen content in fluidizing gas should be about 1%.

(2) It was shown that carbonization temperature of 1,000℃ are desirable and the temperature rise up to 600℃ should be regulated to 10℃/min, while for temperature fom 600℃ to 1,000℃ it is desirable to carbonize briquet 15℃/min.

(3) From the experiments in which briquets were carbonized in an electric furnace, the heating rate should be under 10℃/min for charging at 400℃ in the case of small briquets. And for large briquets at 300℃ charging the rate should be under 5℃/min.

(4) The thermal swelling and contraction coefficient and the respective evolution rate of various gases were measured and from these connection appropriate carbonization conditions were investigated together with basic data related to the course of coke formation.

Part II

TOSHIMASA HIRAMA, MIDORI YUMIYAMA, HIROSHI YAMAGUCHI, TAKEO FUJIOKA

Besed on experimental results obtained from a laboratory scale apparatus, the characteristics of the fluidized bed with suspended packings and horizontal continuous fluidized bed were reported.

(1) The virtical force (F) acting on a single sphere which was hung in a fluidized bed was measured by a strain gauge. At low gas veloctity (near incipient fluidization), F was mainly determined by the apparent buoyancy and downward force arising from stagnant solids on the sphere. And with the increase

gas velocity, it was shown that this was gradually influenced by the drag force of moving solids. Further, the effect of the type of solids, the influences of the diameter of the sphere and location of the suspended sphere were investigated.

(2) The characteristics of the fluidized bed with suspended packings were investigated by changing the diameter and density of the packings. It was found that the boundary of the packed fluidized bed (P.F.B.) and suspended packing fluidized bed (M.F.B.) could be expressed by the following equation:

$$w_p/w_s=1$$

where w_p and w_s are the weight of suspended packings and fluidized solids, respectively. In M.F.B., the left hand side in the preceding equation must be less than unity and the density of the packing should be less than the mean density of the bed. The pressure drop of M.F.B. ($\Delta P'$) was accounted for by the following equation:

$$\Delta P'=\Delta P(w_p/w_s+1)$$

where ΔP is the pressure drop of a conventional fluidized bed (F.B.).
Further, the minimum fluidized velocity and bed expansion of M.F.B. were also investingated.

(3) The lateral solid mixing in F.B. was investigated using rectangular beds. Regarding the lateral dispersion coefficient of solids (D_{sr}) the following empirical equation was obtained:

$$D_{sr}=0.16g^{.05}f_w L_{mf}^{.5} B^{.55}(u_o-u_{mf})^{.9}$$

where g, f_w, L_{mf}, B, u_o and u_{mf} are acceleration due to gravity, wake fraction, static bed height, bed width, superficial gas velocity and minimum fluidized velocity, respectively.

(4) The effective lateral thermal diffusivities α_{rf}, α_{rp} and α_{rm} were measured in F.B., P.F.B. and M.F.B., respectively. As a result it was shown that α_{rf} was nearly equal to D_{sr} and it was noted α_{rp} could be expressed by the following equation:

$$\alpha_{rp}=0.04f_w D_p(L_f/L_{mf})(u-u_{mf})$$

where u, D_p and L_f are gas velocity corrected for fixed packing voidage, the diameter of packing and bed height, respectively. α_{rm} decreased with the increase of the volume of the suspended packing and approached α_{rp}. And the relationship of α_{rm}, α_{rp} and α_{rf} could be expressed by the following equation:

$$(\alpha_{rm}-\alpha_{rp})/(\alpha_{rf}-\alpha_{rp})=-0.45\log(1-\varepsilon_{pm})/(1-\varepsilon_{pp})$$

where ε_{pm} and ε_{pp} are the voidage of packing in M.F.B. and P.F.B., respectively.

Part III

MIDORI YUMIYAMA, SHOHEI TAKEDA,
TOSHIMASA HIRAMA, HIROSHI NISHINO,
AKIRA DEGUCHI, TAKEO FUJIOKA,
HIROSHI YAMAGUCHI, YUJI YOSHIDA

Manufacturing test of metallurgical formed coke were carried out using a pilot plant of horizontal continuous fluidized sand bed carbonizer. In the horizontal fluidized bed given temperature distribution were set and the formed cokes were continuously made by allowing the briquets to flow through the fluidized bed.

The plant consist of a pre-heater (length 150, width 20, height 50 cm) and a carbonizer (length 454, width 23, height 60 cm), both types were equipped with a rotary discharger to ensure a constant discharge of briquets.

Two type briquets (large size; length 65, width 45, thickness 40 mm. small size; length 44, width 35, thickness 20 mm) were used and they were pillow shape. Further, the briquets were charged into the pre-heater at room temperature. The experimental conditions were as follows;

Feed rate of briquets: 50~100kg/h
Feed rate of fluidizing sand: 50~180kg/h
Fluidizing gas velocity: 7~11cm/sec(N.T.P.)
Carbonizing temperature: under 900℃
Mean residence time of briquets: 60~170 min.

As mentioned in Part I while 1,000℃ or thereabouts is the appropriate carbonizing temperature of the briquets, in the present plant owing to the inherent limitations of the carbonizer (heat resistance of the discharger and the perforated plate and so on), the experiments were not carried out at temperature above 900℃. However it was ascertained that a continuous carbonization of briquets was possible and

the following results were obtained.

1) The residual volatile matter of the formed coke having residence time over 120 minutes became constant values and it was approximately 1% at a carbonnizing temperature of 900℃.

2) The weight percentage of discharged formed coke retaining a perfect shape againist the fed in weight of briquets was 52% in the carbonizing test and in the flow test at room temperature, the value was 60~70%.

3) A tendency for a weight loss of formed coke in this fluidized sand bed carbonizer increased with the increase in carbonizing temperature and in the case of large size briquets at 900℃, the weight loss was approximately 5%.

4) Regarding the strength of formed coke, the $D.I_{15}$ value increased with the increasing temperature when the temperature difference between the pre-heater outlet and carbonizer inlet was small (40~60℃). And when the temperature difference was large (110~255℃) in the vicinity of 700℃, maximum value of 87 were shown followed by a decreasing trend. Both the micro strength and abrasion strength regardless of this temperature difference, increased with the carbonizing temperature and a value of 65 was shown at 900℃ in the former, a value of 90 or thereabouts at 600℃ or over was shown in the latter.

Part Ⅳ

MIDORI YUMIYAMA, TOSHIMASA HIRAMA,
SHOHEI TAKEDA, HIROSHI NISHINO,
HIROSHI YAMAGUCHI, YUJI YOSHIDA

The characteristics of the horizontal continuous type fluidized sand bed carbonizer were experimentally investigated using preceding plant in Part Ⅲ. In this carbonizer, briquets were suspended in fluidized sand and allowed to continuously flow through the bed.

The mean residence time and residence time distribution of briquets were measured by the impulse response method during flow characteristics test at room temperature. Furthr, the temperature distribution of the bed was measured in the carbonizing test of briquets. From these results, the Peclet number of briquets and the lateral effective thermal diffusivity (α_{rm}) of the bed were calulated.

The Peclet number of briquets in carbonizer was within the range of 3~50. Further, by suspending the briquets in the fluidized bed, it was found that the temperature distribution in a lateral direction expanded, and α_{rm} was under 1/2 of that of conventional fluidized bed.

Therefore with special regard to this plant by selecting appropriate operational conditions, the residence time distribution may be increasingly narrowed, and it was shown that the temperature difference in a lateral direction of the fluidized bed was readily obtainable.

In addition, the effect of operational conditions on the mean residence time of the briquets, Peclet number and α_{rm} together with problematic points and other difficulties in this plant were discussed.

あ と が き

当所が北海道開発庁の開発計画費によって本研究を開始したのは1970年（昭和45年）4月である。著者らの一人が資源技術試験所（現，工業技術院公害資源研究所）において熱間成形の研究を実験室で小規模に始めたのは1960年であって（資源技術試験所年報　昭和35年度参照），考えてみると奇しくも当所が工業技術院傘下の最初の地方試験所として創立された年に当る。資源技術試験所において上記の基礎研究をもとに，熱間成形法とこれに続く成形炭のコークス化プロセスを加えて新しい製鉄用コークス製造技術を特別研究として開始したのは4年後の1964年であった。実験室でのピストン成形機による圧縮時間を次第に短くして圧縮時間と成形炭強度とのグラフをとり，これを圧縮時間0秒までエクスタポレートした結果，ロールプレスによる瞬間的成形でも大丈夫のはずと見込みをつけてロールプレスを設置したにもかかわらず，最初の数ヶ月間は何度やっても，どこをどう直しても，流動加熱炉から出てきた粉炭がロールプレスに入ったあとサラサラと粉状で出てくるので，さすがに青くなったのを今でも昨日のことのように思い出す。

幸いにして硬い成形炭が出来るようになり，日本鉱業会の大会行事の一つに資源技術試験所見学会で組み込まれた機会に最初の公開実験を行った。このとき，竪型乾留炉で道内炭の塊炭を低温乾留して無煙燃料を製造する技術の開発を北海道開発庁の予算でやっていた当所の人が見学者の中にいて，〝これは無煙燃料になりませんか〟と聞かれ，〝ウチは成形コークスにするのに一番いい熱間成形条件を選んでいるので，この成形炭は無煙とは言えませんが，スモーク・レスには間違いありません。コークスとしての硬さはいらない，無煙にすればいいというのであれば，もう少し条件を変えた方がいいと思います。ただしウチ（資源試）ではそこまでやる余裕はありませんが〟というような返事をした。それがその後の当所の熱間成形による無煙燃料製造技術の元となったわけで，この方も北海道開発庁の予算によって行われたという奇しき因縁がある。

話を製鉄用成形コークスに戻すと，当所がこの特別研究を開始した1970年は，コークス用原料炭の逼迫が急をつげ，たとえば「エネルギー」誌では5月号で〝緊急エネルギー源・原料炭のすべて〟という特集が組まれた年であった。このとき，技術面での対応策の執筆を依頼され，〝新コークス製造法で局面打開へ—現製造法では粘結力を補う膨潤炭の活用を〟という標題で一文を筆した（吉田雄次，エネルギー，vol.3，No.5，P.55～61）。〝粘結力を補う膨潤炭〟については，その後当所の兄弟試験所である九州工業技術試験所がタールの代りにアスファルトを溶媒とする成形用バインダーの製造技術の開発を始めて着々と成果をあげつつあるのは周知のとおりである。

近年，装入炭に一般炭を混じ，バインダーを加えて成形し，この成形炭を装入炭にまぜてコークス炉に装入することによって，外観の上でも強度の上でも通常の製鉄用コークス

と変らないものを製造する方法が新日本製鉄（株）の長年の技術開発の努力の結果完成され，各所で実用化されつつあることは誠に喜ばしく，技術の開発と実用化に努力された方々に深い敬意を表する。と同時に原料炭問題の技術的解決に責任を感じていた著者らとしては，一先づ肩の荷が少し軽くなったということで感謝の意を表したい。

しかし，一言いわせていただけば，このプロセスは成形のメリットを最大限活かしたものとはいいがたい。成形コークスの本来の利点は，1）塊の大きさと形状とを使用に適した一定のものにできること，2）原料石炭を適宜に配合することによって使用に適した一定の性状を持たせることができること，3）原料石炭の選択範囲を大幅に広げることができ，非粘結炭を使用または混用することができること，4）製造方式の連続化，高度の自動化が可能なこと，5）建設費，作業費を低減できること，などである。

この点，上記の成形炭配合法は（2）と（3）を除けば成形コークス法の本来の利点が活かされていないし，成形というコスト上のデメリットをカバーすることさえ達せられていない。

そういう点で，本報告は横型媒体流動層という新方式の炉によって成形物を連続的かつ自動的に焼成することが可能であることを証明したこと，理想的結果は得られなかったにせよこの方式の炉の特性を明らかにして，その最適設計と条件とを推定できたことで，一つの進歩を示したものと自負する。コークス揮発分が高いのは焼成温度に装置材料上の制約があったためであるが，この点は材料，特に耐熱鋼の今後の進歩に期待したい。また，熱間成形炭は石垣構造であるためにアブレージョンに弱いという欠点は，成形炭の焼成技術を主眼とした本研究ではほとんど手をつけずに終ったが，改善は可能であって，いずれ解決もされるであろう。

終りに本研究の実施に当って終始温かい激励と御鞭撻とをいただいた関係各位に深い感謝の意を表します。

吉　田　雄　次

北海道工業開発試験所報告

第 13 号

昭和52年 2 月27日　印刷
昭和52年 2 月28日　発行

発　行　所　工業技術院北海道工業開発試験所
札幌市豊平区東月寒41— 2
電　話　札幌 (851) 0 1 5 1
印　刷　人　岸　　孝　　一
印　刷　所　株式会社　正　文　舎　印　刷　所
札幌市白石区菊水 2 条 1 丁目
電　話　札幌 (811) 7 1 5 1～3