

化学工学の進歩 5

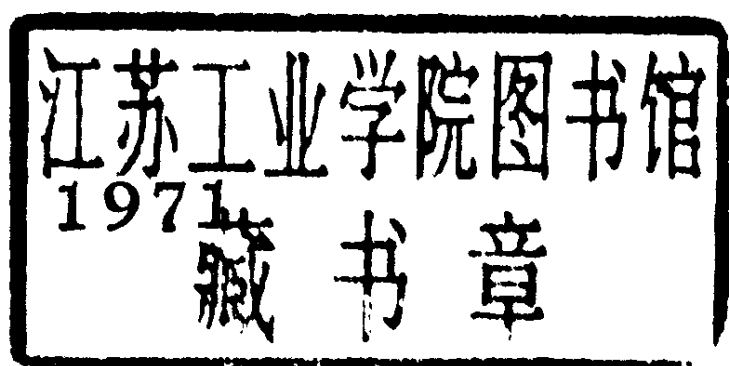
粉体装置工学

化学工学協会 編

化学工学の進歩 5

粉体装置工学

化学工学協会編



日刊工業新聞社

化学工学の進歩第5集 粉体装置工学

NDC 571

昭和46年9月29日 初版発行

定価 1800 円

© 編 者 社団法人 化学工学協会

発 行 者 白 井 十 四 雄

発 行 所 日 刊 工 業 新 聞 社

東京都千代田区九段北一丁目8番10号

(郵便番号 102)

電 話 東 京 (263) 2 3 1 1 (大代表)

振 替 口 座 東 京 1 8 6 0 7 6

印 刷 所 新 日 本 印 刷 株 式 会 社

製 本 所 三 和 製 本 所

落丁・乱丁本はお取替えいたします。

3058 - 306900 - 5719

序

東海支部における 第5回「化学工学の進歩」講習会のテーマに、“粉体装置工学”を取り上げ、そのテキストとして本書が刊行されることになった。

粉粒状の固体を取り扱うプロセスにおける諸問題をいろいろな面からながめて一つの工学とし、かりに粉体装置工学と名づけ、まとめたのが本書である。内容を大別すれば、Ⅰ．総論、Ⅱ．装置内の流動現象、Ⅲ．プロセス中の諸操作・諸現象とでもなるであろう。

これら分野の第一線で、ご活躍の方々からご執筆が得られたことは幸いであった。本書により読者は最近の動向をうかがい知ることができるであろう。

現場、研究所など粉体関係の技術者各位、ならびにそれを志す方々の座右において本書が一助となれば幸いである。

昭和 46 年 9 月

社団法人 化 学 工 学 協 会

目 次

1. 粉体化学装置総論

[白 井 隆]

・ 1.1 は じ め に	1
・ 1.2 固 定 層	2
1.3 移 動 層	4
・ 1.4 流 動 層	4
・ 1.5 回 転 容 器	7
1.6 気-液-固3相系の反応装置	7

2. 粉体の特性概論

[三 輪 茂 雄]

・ 2.1 は じ め に	11
・ 2.2 粒 子 密 度	15
2.2.1 液 浸 法	15
2.2.2 気体容積法	16
2.3 粒 度	18
・ 2.4 粒子の堆積特性	19
2.4.1 均一球の規則的配列	20
2.4.2 均一球のランダム配列	22
2.4.3 充てんの局所構造	23
2.4.4 1個の基準球に対する隣接球分布	24
・ 2.5 粉体層の静力学特性	25
2.5.1 三軸圧縮試験	26
2.5.2 直接せん断試験	27
2.5.3 Jenike の方法	28
・ 2.6 粉体の流動性	30

2.6.1 Carr の指数	30
2.6.2 オリフィスからの流動	31
2.6.3 機械的強制流動	31
2.6.4 振動流動	31
2.6.5 圧縮流動	39
2.6.6 流体に伴われた流動	44
2.7 湿粉体の特性	44
2.7.1 液体の存在状態	45
2.7.2 キャピラリティ	45
2.7.3 湿った粉体の動的挙動	46
2.7.4 粒子の表面特性	46
2.7.5 固化・付着	46

3. 粉体の固定層

[国 井 大 蔵]

3.1 はじめに	49
3.2 粉粒体固定層における流れのモデル	50
3.3 粉粒体固定層における有効熱伝導度	52
3.3.1 静止流体を含む粉粒体層	52
3.3.2 湿った粉粒体層の有効熱伝導度	59
3.3.3 流れを伴う粉粒体固定層の流れと 直角方向の有効熱伝導度および有効拡散係数	60
3.3.4 流れと同方向の有効熱伝導度	61
3.4 固定層における粒子-流体間移動過程	63

4. 装置内の粒子の流動現象

[外 山 茂 樹]

4.1 はじめに	71
4.2 粉体の流動現象	72
4.3 流動性の尺度	73
4.3.1 離散系	73
4.3.2 セン断試験	74

4.3.3 複合的な表示	75
• 4.4 流動現象の記述	75
• 4.5 重力による自然流動	77
4.5.1 マスフローとファンネルフロー	77
4.5.2 粉体力学的取扱い	77
• 4.5.3 ディメンション解析	81
4.5.4 離散系	81
• 4.6 容器の運動に伴う流動	84
4.6.1 軌道モデル	84
• 4.6.2 粉体力学	86
4.6.3 離散系	88
4.7 粉体に作用する力による流動	88

5. 流動層の粉体工学

〔榎 巖・森 滋勝・加藤 隆〕

• 5.1 流動化条件	93
5.1.1 流動層の圧損失	93
• 5.1.2 流動化開始速度	95
• 5.2 流動化現象	97
5.2.1 流動層の空間率と層高	97
5.2.2 付着力の効果	99
• 5.2.3 流動層の粘度	101
• 5.3 粉体の挙動	102
5.3.1 層内粒子の運動	102
• 5.3.2 気泡周辺の粒子の運動	103
• 5.3.3 粒子の層外への飛び出し	106
• 5.4 気泡の挙動と流動層の動的挙動	107
5.4.1 気泡の挙動	107
• 5.4.2 層内圧力の変動と動的流動化の特性	111

6. 気流中の粒子の挙動

〔神保元二・山崎量平〕

• 6.1 はじめに	119
• 6.2 気流中で粒子がうける力	120
• 6.3 拡散現象	123
6.3.1 乱れの大きさと粒子の運動	123
6.3.2 粒子の拡散係数に関する理論的解析	124
• 6.3.3 粒子拡散係数の測定結果	126
6.4 沈着	128
6.4.1 重力沈降による沈着	128
6.4.2 微粒子とガスの拡散沈着（層流の場合）.....	128
6.4.3 層流境界層を通しての拡散	129
• 6.4.4 乱流境界層を通しての拡散	130
6.4.5 慣性を考慮した乱流からの沈着	131
6.4.6 分子拡散と慣性による沈着	132
• 6.5 反発現象	133
6.5.1 マグナス力を考慮に入れた反発モデル	134
• 6.5.2 不規則反発モデル	136
• 6.6 微粒子の凝集と分散	138
6.6.1 凝集体としての粒子	138
• 6.6.2 気流中粉体の物性測定法	141

7. 粉体の供給操作

〔青木隆一〕

7.1 はじめに	147
7.2 供給操作に関連する粉体の容器内における挙動.....	147
7.2.1 オリフィスあるいはホッパーからの流出速度	147
7.2.2 フローパターン	153
7.2.3 偏析・分離現象	154
7.2.4 粉体圧	156

7.2.5 閉塞現象	160
7.3 各種供給装置と供給機構	162
7.3.1 ロータリーフィーダー	163
7.3.2 テーブルフィーダー	166
7.3.3 たて型回転翼式フィーダー	167
7.3.4 ペルトフィーダー	167
7.3.5 チェーンフィーダー	168
7.3.6 スクリューフィーダー	170
7.3.7 振動フィーダー	171
7.3.8 流動化式フィーダー	172

8. 粉体流量の計測と制御

[井伊谷鋼一・増田弘昭]

8.1 はじめに	177
8.2 検出端	177
8.2.1 質量流量検出方式	178
8.2.2 容積流量検出方式	185
8.3 操作端	187
8.3.1 連続供給式	188
8.3.2 半連続供給式	192
8.4 制御	194

9. 粉体の分離操作

[木村典夫]

9.1 はじめに	199
9.2 集じん装置の形式と選定指針	199
9.3 慣性集じん法	203
9.3.1 ルーバー集じん器	204
9.3.2 偏流沈降式集じん器	205
9.4 遠心集じん法	206
9.4.1 ファン内蔵うず流式集じん機	206

9.4.2 サイクロン集じん器	207
9.4.3 改良形サイクロン	219

10. 粉体による金属の摩耗現象

[橋 本 建 次]

10.1 摩 耗 の 分 類	225
10.1.1 金属の摩耗の一般的分類	225
10.1.2 さらつき摩耗の分類	226
10.1.3 試験方法の分類	229
10.2 粉体の性質と摩耗	231
10.2.1 かたさの影響	231
10.2.2 粒度、粒形の影響	232
10.3 金属の性質の影響	233
10.3.1 かたさの影響	233
10.3.2 変形性と剥離性	234
10.4 摩 耗 式	236
10.5 摩 耗 対 策	238
10.5.1 材質選定要素	238
10.5.2 ハードフェーシング	239
10.5.3 低応力の場合の非金属の利用	241
10.5.4 機械構造改善による低減策	241

1. 粉体化学装置総論

白 井 隆*

1.1 は じ め に

化学装置のなかで固体を扱った初期のころには、固体は塊状であることが多かった。近代工業の起源となった製鉄工業、石炭工業などの歴史をたどってみても、山から掘り出した鉄鉱石、石炭を適当な大きさのかたまりにして、溶鉱炉やコークス炉、ボイラーなどに装入するのが通例とされていたことは周知のとおりである。

山から掘り出した鉱石を適当な大きさのかたまりにまで碎くさいに、一部分はさらに小さい粒や粉になってしまうことはやむをえないことであり、この粒粉の取扱いにはまた別の処理が必要であるためやっかい視されることが多かった。いわゆる炭じんとして運搬、取扱いに面倒なばかりでなく、炭じん爆発の大災害をひき起こす原因となり、炉に入れば炉の通風抵抗を大きくし、飛散する炭じんは周囲を汚染する。微粉炭と称して 10mm 以上の粒を含むものを圧縮成形して豆炭として利用したのも、はじめは窮余の一策であったと思われる。

その後、技術の発達と資源の高度利用が進むにつれて各種の装置が多数開発されてきたが、原料資源が石油へ転換する世界的時流には抗し得ず、石炭に関しては微粉炭ボイラー、ウィンクラー・ガス発生炉などの歴史的な装置がしだいに姿を消してゆくのはさびしい限りである。

製鉄に関しては三百年來、高炉の全盛時代がつづいていて、ますます大型化を競いつつあるが、原料面については良質の塊鉱はしだいに少なくなってきていて、

* 東京工業大学資源化学研究所

現在自由諸国圏内で世界第2位を誇る日本では、粉粒状の鉱石を固めた焼結鉱が原料の半分以上を占めている現状である。これに関連して粉粒状の鉄鉱石も焼結せずにそのまま還元する流動層方式の研究も世界各地で行なわれている。

一方において、数ミリから十数ミリの大きさに成形した固体触媒を装置内に充てんし、このなかに気体を通して反応させる、いわゆる固定層形式の触媒反応装置は、近代化学工業の主役として、アンモニア合成、接触硫酸をはじめ多くの無機・有機化学工業に盛んに利用されている。反応温度の調節が比較的簡単で、触媒の寿命も長い場合には、固定層形式の反応装置でも十分であるが、温度調節が困難であったり、触媒の寿命が比較的短く短時間で再生賦活を必要とする反応の場合には、細かい粉粒状の触媒を用いる流動層形式が用いられるようになっていく。

また固体の脱水・熱分解、ばい焼、塩素化などの反応には、充てん移動層やロータリーキルン（回転炉）が用いられているが、そのなかの一部は場合によっては流動層形式あるいは気流搬送（輸送層と称することもある）形式の装置で処理していることもある。

以上は主として固-気系の化学装置についてであったが、気-液-固の3相が共存している、やや複雑な形式が灌液充てん塔、あるいはトリックリング・ベッド形式の化学装置として、排水処理や重質油の直接脱硫などに使用されるようになってきている。

これらの諸形式の化学装置については、後続の各章のなかでそれぞれの専門的な粉体工学の立場から詳しく解説されているので、なるべく重複を避けて総論的に問題点を概説することにした。

なお液体のなかで粉粒状固体を処理している浮遊選鉱、スラリー輸送、懸濁重合などの固-液系の取扱いについては本稿の目的から除外させて頂くことにする。

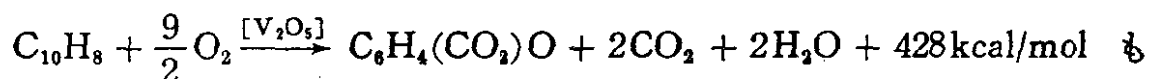
1.2 固 定 層

いまから十数年前に、それまで数段の危険を伴うステップを経て合成されてい

たアセトニトリルをアンモニアとアセチレンから一気に合成するという斯波教授のプロセスをスケールアップする森川教授のお手伝いをしたことがある。小型の石英反応管に数グラムの成形アルミナ触媒を充てんしておいて、周囲から電気炉で加熱して反応させる実験室規模ではとくに問題はなかったが、反応管の直径を数倍にしただけの段階で見事に失敗した経験がある。反応温度の調節が予定どおりには追従せず、触媒層中には炭素が析出して通気抵抗が急速に増大し、水銀マノメーターが数十秒で吹き飛んでしまう始末であった。

あとから考えれば、もっと慎重な別の方法もあったと思うが、発熱の大きい固定層形式の反応装置の温度調節がいかに困難であるかを痛感させられたしだいである。

ナフタリンやキシレンをいわゆる酸化触媒で空気酸化して無水フタル酸を作る反応



大きな発熱を伴う反応である。従来の固定層反応装置では原料ナフタリンに対して約 100 倍のモル数の空気で希釈して、触媒を充てんした 1in 程度の反応管を 3,000 本並列してその外側に熱媒体を通して温度調節を行なっている。

この 3,000 本の反応管にいかにして均等に反応ガスを流すかということも一つの問題であるが、反応管内の半径方向、管軸方向の温度分布をじょうずに調節しないと、未反応率がふえるか、あるいは全部が炭酸ガスと水蒸気になってしまっただけで収率ゼロにもなり兼ねない*。

最近では、固定層内の流速分布、流体混合、層内の熱伝導度、壁からの伝熱さらに粒子-流体間の伝熱や物質移動、粒子の内部拡散などの知識が集積されてきて、電子計算機の進歩、普及と相まって、層内の複雑な濃度分布と温度分布を具体的に設計することがかなりの精度まで可能になってきている⁶⁾。とくに、層内の有効熱伝導度に関する国井教授の貢献は大きい。

* 温度分布が一様で局部過熱のおそれのない流動層では、原料ナフタリンの濃度を高くしても爆発の危険が減少するので、最近では流動層形式の Sherwin-Williams-Badger 法もふえてきている。

1.3 移動層

固定層の下部から連続的に固体を抜き出している形式の移動層型の装置は、石灰窯、TCC(Thermofor Catalytic Cracking)、熔鉱炉⁶⁾などが代表的なものである。この場合、ガスの流通抵抗や壁との伝熱、粒子-流体間の伝熱・物質移動などは固定層の場合とほぼ同様であると考えられるが、粒子の移動や充てん状態が複雑でかならずしも一様でないことが問題である。近似的には一様な押出し流れであるとして取扱ってさしつかえない場合も多いが¹⁴⁾、壁際と層中心軸部分とでは粒子の流れに若干の差異があるなど、滞留時間分布はかならずしも同一ではなく、温度・濃度の分布や、製品の反応率に影響を及ぼしてくる。取り出す固体製品の品質のバラツキを小さくするために、内部に適宜にじゃま板などをつけて粒子を混合させるようにしている場合もある。

粒子の内部、装置の半径方向、軸方向の分布を考慮に入れた詳しい数学的解法も発表されているが⁷⁾、条件や数値を当てはめるにはいまだ検討を要する部分が多い。最近では熔鉱炉についてのプロセスシミュレーション、計算機制御はかなり進んできたようである。また、半径方向の分布は一様と仮定して、あとから補正係数で修正する方法や、粒子について殻状モデルが成立する場合に移動層全長にわたっての温度分布を求める図解法も発表されている¹⁾。

1.4 流動層

ウィンクラー・ガス発生炉(図 1.1 参照)も流動層装置の初期のものである。硫化鉱の流動ばい焼炉、石油の流動触媒式接触分解(FCC)装置や、SOHIO 法のアンモオキシデーションによるアクリルニトリル製造装置などは現在、日本でも広く使用されている流動層形式の装置の代表例である。もはや新しい形式とはいえないほど広く普及しているものであるが、装置内の現象が複雑で工学的な解析が困難であったため、固定層反応装置に比してスケールアップはいまだ一般に

むずかしいとされている。ガスと固体粒子との接触の度合いの定量化などに関して未解決の分野が多いからである。

最近では、流動層内の気泡や粒子の運動、ガスの交換、混合、などについての基礎資料がようやく集積されてきて、それらに基づいて反応率を予測する新しいモデルもいくつか提案されている。

石油類の接触分解を例にとってみても、シリカアルミナ系の触媒が発見されて、それまでの熱分解方式に代わる固定触媒層方式のフ

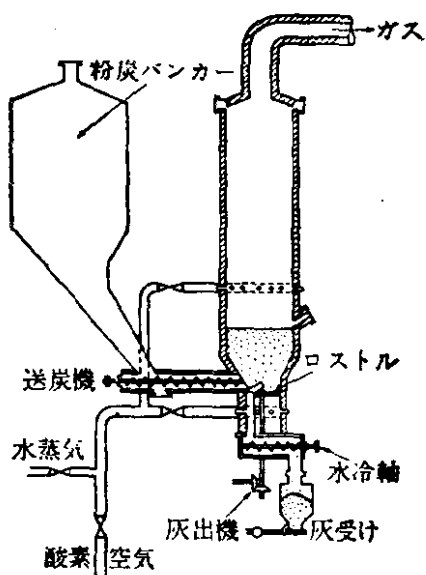


図 1.1 ウィンクラー式ガス発生炉

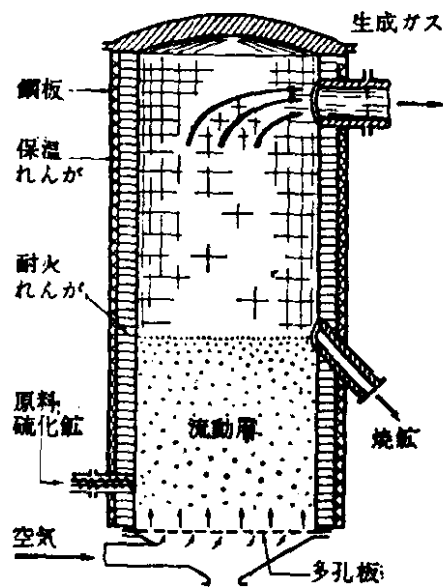


図 1.2 硫化鉱の流動ばい焼炉

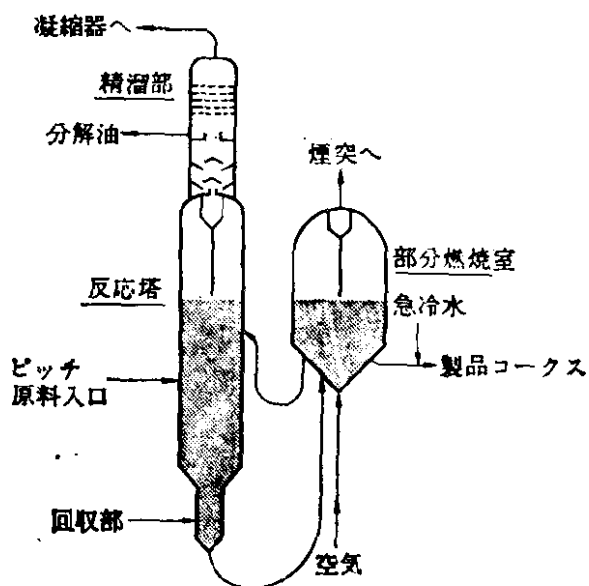


図 1.3 流動化コーキング法

ードリー・プロセスが始まり、分解反応、バージ、燃焼再生、バージを短時間で切替える操作の不便さを解決するために移動層方式 (TCC)、さらに流動層方式の FCC へと移行してきた。装置の処理能力を増加させるために、流動層内のガス流速もしだいにふやしていった。ついには触媒粒子の終末速度 u_t 以上に大きい流速の輸送層に近い方式が採用されるようになり、最初は外側に出していたサイクロン捕集器も装置内頂部へ内蔵されて、そこで捕集した触媒粒子を直接に流動層内へもどす形式になった。このような変遷の過程は、反応工学の一面の歴史

であると同時に粉粒体の取扱い方，粉体工学の歴史にもつながるものであろう。

粒子の粒径分布が層内の気泡や流動化の状態，ガスの接触割合，ひいては反応率にきわめて敏感に影響を及ぼすことは，流動層においてはきわめて重大な問題である。粒径分布が，ある程度，広い範囲にわたっている場合のほうが，流動層のガス反応率に好結果を与える例が多いといわれているが，最適な粒径分布を決定するのはもっぱら経験に頼っているのが現状で，今後さらに進んだ検討が望まれるところである。

粉粒体の激しい運動を利用している流動層では，とくに装置の内部や輸送管などにおける摩耗と粒子自体の損耗も實際上ゆるがせにできない大問題である。また，反応に伴う粒子の物性の変化，とくに微粉化して系外に逸散する固体粒子の量をできるだけ少なくするための考慮や，静電気の帯電による壁への付着や防爆対策，粒子の凝集・固化による流動化状態の阻害，などは今後に残されている粉体工学上の重要な問題点であろう。

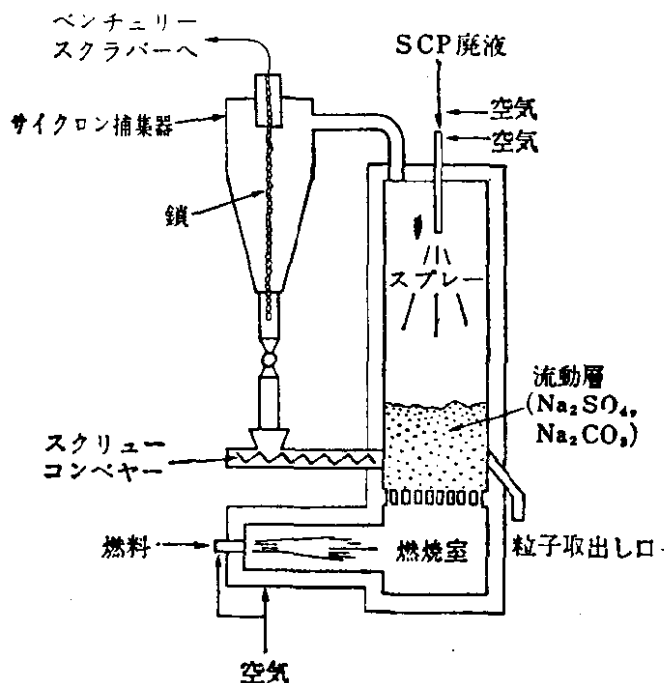


図 1.4 パルプ廃液の回収処理
(コーブランド・プロセス)

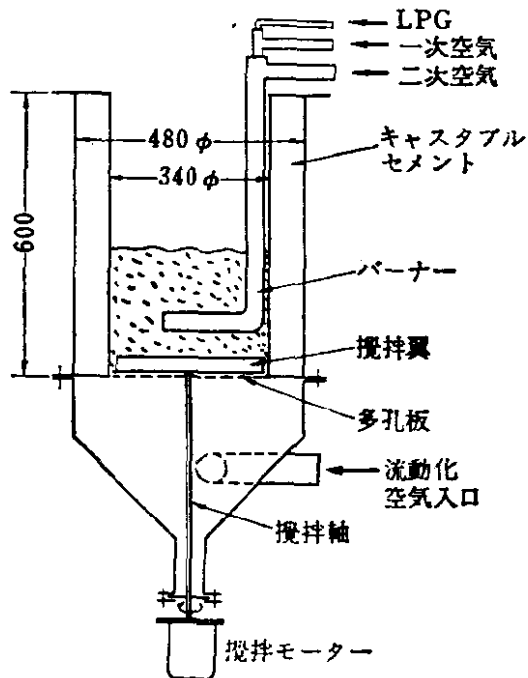


図 1.5 鶏糞焼却実験用流動層

1.5 回 転 容 器

回転円筒型の反応装置の代表例としては、周知のセメント焼成用のロータリーキルンがあげられるが、この形式の装置は他にも焼成炉、乾燥、混合、粉碎などの目的にも広く使用されている。水平もしくは水平に近い円筒状容器を回転させている場合の装置内の粒子保持量（ホールドアップ）や滞留時間の分布、所要動力などについては、回転乾燥器に関連させた篠原の紹介¹²⁾、移動層と並列して解説した外山の文献^{14-B)}以降はあまり見当たらない。

装置内における粒子の運動はかなり複雑であるうえに、焼成や分解反応に伴って粒子の物性が大幅に変化して、付着・凝集性が強くなるなどますます複雑になってくることが実際には多い。

実装置については多数の測定結果が発表されているので、同一試料については処理量さえ与えられれば装置設計が可能な例も多いが、表面からの深さ方向まで考慮しなければならないような厳密な精度が必要な解析法は、時間的にも変動しているや複雑な温度分布や濃度分布があるため、かなり困難である。

1.6 気-液-固 3 相系の反応装置

灌液充てん塔は、ガス吸収のための装置としては非常に古くから使用されていて有名であるが、廃水処理の一つの方法として、散布床 (trickling bed) としても従来使われている。石ころなどの充てん物の表面に菌や藻類を繁殖させて、その作用によって廃水を浄化する方式のものである。

これらを、気-液-固の 3 相の固定層と考えれば、3 相が共存する移動層、あるいはさらに進んで流動層に相当するような気-液-固処理装置というものも考えることができよう。

いまから約 20 年前に軽石、シリカゲルを担体とするアセチレン銅系の触媒層に、アセチレンとホルマリンを気液並流で下向きに流して、レッベ反応の一種で