

称号及び氏名 博士（工学） 仲村 英也

学位授与の日付 平成 20 年 3 月 31 日

1. 論文名 Fundamental Particle Fluidization Mechanism
in High Centrifugal Force Field
(高遠心力場における粒子流動化メカニズムに
関する基礎的研究)

論文審査委員 主査 綿野 哲
副査 足立 元明
副査 塚田 隆夫
副査 岩崎 智宏

論文要旨

気体と粒子状の固体との接触を伴う操作は、多くの工業プロセスにおいて欠くことのできない重要な操作の一つである。代表的な気固接触プロセスとしては、固定層、移動層、流動層などがあり、なかでも、粒子に作用する重力を流体抗力で打ち消し、粒子を気体中に懸濁させた状態で操作する流動層は、良好な気固接触、温度均一性および粒子混合特性を利用して、現在まで様々な分野において多用されている。しかしながら、従来の流動層を高ガス速度下で操作した場合、気泡の吹き抜けおよび粒子の飛び出しが顕著に起こるため、良好な気固接触状態の維持が困難となる。さらに、粒子径が 20 μm 以下の微粒子(Geldart のグループ C 粒子)を取り扱う場合、粒子間付着力が重力および流体抗力に比べて極めて大きいため、単一粒子としての均一な流動化が困難となる。そのため、これらの問題点を解決しうる革新的な流動化技術の開発および確立に関して、強い要望が寄せられている。

流動層における微粒子の流動化状態を改善するために、粒子に作用する外力を操作することは極めて有効な手法である。これまで、振動場・磁場・音響場・遠心力場といった様々な外力場において粒子を流動化させる手法が提案されている。なかでも高遠心力場は、他の外力場に比べて粒子に作用する外力が極めて大きいことから、粒子の流動化状態を大幅に改善し、従来の流動層の課題を克服しうる外力場として注目されており、様々な技術展開が期待されている。高遠心力場を利用した流動化技術を確立するためには、その粒子流動化メカニズムの把握が極めて重要である。しかしながら、これまで高遠心力場における流動化メカニズムは解明されておらず、高遠心力場を利用した流動層プロセスも開発されていないのが現状である。

本研究では以上の背景のもと、高遠心力場における粒子の流動化メカニズムを明らかとすることを目的としている。特に、気固流動層の設計・制御において重要な因子である粒子相および気泡相の諸特性について解析を行った。本論文はその研究成果をまとめたものであり、以下に示す

5章から成り立っている。

第 I 章では、本研究の背景および本研究と関連の深い既往の研究について概観し、本研究の目的と本論文の構成を示した。

第 II 章では、高遠心力場における粒子流動化挙動の数値解析を行った。

第 II 章第 1 節では、高遠心力場において粒子を流動化させる装置である回転式流動層を考案し、その中で粒子流動化挙動を、粒子離散要素法(Discrete Element Method: DEM)および数値流体力学(Computational Fluid Dynamics: CFD)を組み合わせた粒子運動モデル(DEM-CFD カップリングモデル)を用いてモデル化した。数値計算により粒子流動化挙動を可視化した結果、気泡の発生・成長・破裂といった周期的な流動化挙動をシミュレートすることができた。また、この挙動は、高速度ビデオカメラを用いて可視化した実験結果と良好に一致した。さらに、提案した粒子運動モデルを用いて推算された最小流動化開始速度および粒子流動化時の圧力損失は、実測値と良好に一致した。特に、局所的な重力の影響を考慮した本モデルは、既往の圧力損失の推算式と比較して、粒子流動化時の圧力損失を高い精度で推算することが可能であった。以上のことから、提案した粒子運動モデルの妥当性および有用性が示された。

第 II 章第 2 節では、前節で提案した粒子運動モデルを用いて、回転式流動層における粒子混合特性を解析した。ここでは特に、半径方向の粒子混合速度に着目し、種々の運転条件と半径方向の粒子混合速度との関係について検討した。その結果、流動化ガス速度、粉体層高、容器径および遠心加速度が半径方向の粒子混合速度に及ぼす影響を明らかにした。また、粒子混合速度は層内で発生した気泡径によって関係付けられたことから、回転式流動層における粒子混合は、気泡の運動によって引き起こされていることを示した。さらに、運転条件と半径方向の粒子混合速度との関係を次元解析により整理した結果、粒子の混合速度は、粒子 Rossby 数、気泡 Froude 数および無次元粉体層高の 3 つの無次元数によって関係付けられることを示した。これにより、任意の運転条件における粒子の混合速度を予測することが可能となった。

第 III 章では、高遠心力場における気泡特性の解析を行った。

第 III 章第 1 節では、気泡の成長に着目し、近接する 2 個の気泡が順次合一・成長すると仮定した段階的気泡合一モデルに基づいて、回転式流動層における気泡成長モデルを提案した。このとき、遠心加速度および空塔ガス速度と最小流動化ガス速度の差で定義される過剰ガス速度を、ガス分散板からの半径方向の距離の関数として取り扱い、さらに、ガス分散板からの半径方向距離の増加に伴い気泡体積流量は増加すると仮定した。提案した気泡成長モデルによって推算された気泡径は、実験により測定された気泡径と良好な一致を示したことから、本モデルの妥当性を確認した。さらに、遠心加速度が気泡成長メカニズムに及ぼす影響について検討したところ、遠心加速度の増加に伴い、初期生成気泡径は減少し気泡成長速度は著しく増加することを明らかとした。

第 III 章第 2 節では、回転式流動層における気泡速度を解析した。個々の気泡について、半径方向および周方向の速度成分を測定し、半径方向の気泡速度成分は従来の流動層における気泡上昇速度式と同様の相関式を用いることで、また、周方向の気泡速度成分はガス分散板の周速度と比例関係にあると仮定した相関式を用いることで、それぞれの実験データを整理した。さらに、各相関式中の係数を半径方向および周方向気泡速度係数としてそれぞれ算出した。その結果、それぞれの気泡速度係数は、運転条件によらずほぼ一定であった。このことから、高遠心力場では、気泡に作用する浮力が気泡間の相互作用力と比べて著しく大きいことが示された。さらに、得られた気泡速度係数を用いて、運転条件のみから気泡速度を推定可能である実験式を提案した。

第 IV 章では、高遠心力場を利用した微粒子流動化プロセスの開発を試みた。

第 IV 章第 1 節では、数値シミュレーションを活用した回転式流動層の設計手法を提案した。適用例として、流動層湿式コーティングプロセスを取り上げ、第 II 章第 1 節において提案した粒子運動モデルを用いて、核粒子の膜剤被覆量と運転条件との関係をシミュレートした。得られたシミュレーション結果は実験結果と良好に一致したことから、本手法の妥当性が確認された。また、遠心加速度の増加に伴い、膜剤噴霧領域を出入りする粒子の循環周期が短縮されることから、

膜剤被覆量の均一性が向上することを明らかにした。以上より、提案した数値シミュレーションモデルは、回転式流動層の設計指針を決定する上で極めて有用な手法であることが示された。

第 IV 章第 2 節では、前節で得られた知見を基に新規な回転式流動層コーティングプロセスを開発し、微粒子コーティングへの適用を試みた。モデル粒子として、Geldart のグループ C 粒子に分類される平均径が $15 \mu\text{m}$ のコーンスターチ粒子を用い、流動化させたコーンスターチ粒子にヒドロキシプロピルセルロース水溶液を噴霧することで粒子表面のコーティングを行った。その結果、微粒子同士が凝集することなく、個々の粒子表面を均一にコーティングすることに成功した。これより、従来の流動層コーティングプロセスにおいて単一粒子コーティングが可能な最小粒子径が、10 分の 1 以下に低減されたことから、開発した回転式流動層コーティングプロセスを用いることで、単一粒子コーティングが可能な粒子径の範囲を大幅に拡大できることを示した。

第 IV 章第 3 節では、開発した回転式流動層を用いて、1 次粒子径が 12 nm および 13 nm の SiO_2 および Al_2O_3 ナノ粒子の流動化実験を行い、ナノ粒子流動化プロセスとしての回転式流動層の性能を評価した。粉体層圧力損失、粉体層の膨張挙動、粒子混合特性および粒子飛び出し特性について検討したところ、回転式流動層において SiO_2 および Al_2O_3 ナノ粒子は数十 μm の凝集体を形成しながら流動化するものの、遠心加速度の増加に伴いその凝集体径は著しく減少することが明らかとなった。また、高遠心力場における凝集体径は、他の外力場におけるそれと比較して、著しく小さくなることを示した。さらに、高遠心加速度領域で運転することにより、粒子の系外への飛び出し量を著しく低減可能であることから、回転式流動層のナノ粒子流動化プロセスとしての高い有用性を示した。

第 V 章では、本論文の各章の研究によって得られた成果を結論としてまとめた。

審査結果の要旨

本論文は、微粒子の流動化技術を確立することを目的として、高遠心力場における粒子流動化メカニズムについて研究したものであり、以下の成果を得ている。

- 1) 高遠心力場を利用した粒子流動化装置（回転式流動層）を考案し、その中での粒子流動化挙動を、粒子離散要素法および数値流体力学を組み合わせた粒子運動モデルを用いて解析した。また、数値計算により粒子流動化挙動を可視化した結果、気泡の発生・成長・破裂といった周期的な流動化挙動を明らかにすることができた。さらに、この挙動は、高速度ビデオカメラを用いて可視化した実験結果と良好に一致したことから、提案した粒子運動モデルの妥当性および有用性を確認した。
- 2) 回転式流動層における種々の運転条件とそれらに対応する半径方向の粒子混合速度との関係を明らかにした。また、粒子混合速度を層内で発生した気泡径によって関係付けた。さらに、運転条件と半径方向の粒子混合速度との関係を次元解析した結果、粒子の混合速度は、粒子 Rossby 数、気泡 Froude 数および無次元粉体層高の 3 つの無次元数によって表現できることを示した。
- 3) 高遠心力場における気泡成長メカニズムの解析を目的として、近接する 2 個の気泡が順次合一・成長すると仮定した段階的気泡合一モデルを提案した。提案したモデルにより推算され

た気泡径は、実験結果と良好な一致を示した。さらに、遠心加速度が気泡成長メカニズムに及ぼす影響を定量的に明らかにした。

- 4) 高遠心力場を利用した微粒子流動化プロセスを開発し、流動層湿式コーティングプロセスおよびナノ粒子流動化プロセスへの適用を試み、その有効性を確認した。

以上の成果は、微粒子の流動化技術を確立する上で重要な知見を与えるとともに、遠心力場における粒子流動化に関する有益な情報を提供したものであり、化学工学分野の学術的・産業的な発展に貢献するところ大である。また、申請者が独立して研究を行うに十分な能力と学識を有することを証したものである。