

流動層工学における最近の進歩

森 滋 勝*

Recent Advance in Fluidization Technology

Shigekatsu MORI

最近の流動層“工学”の進歩を述べなければならないのだが、ここでは、最近の研究と技術開発について現在注目を集めているテーマを例として取り上げ、その成果と課題を紹介する。

鞭, 森, 堀尾による“流動層の反応工学”¹⁾が刊行されてから既に5年余りが経過した。本書の1・2節で、流動層の歴史を4期に分け、“第3期で流動化現象を覆っていた未知のベールはほぼ取り除かれ、粒子分散系の挙動の総合的解明に大きな一歩を踏み出したのが現在の第4期である。”と述べたが、その後、流動化粒子や操作条件の拡大にとまない、新しいベールに包まれたより一般的な粒子分散系の解明に向けてますます盛んに研究が行われている。この間に、特集記事^{2)~5)}や成書^{6)~8)}が刊行された。流動層に関する第4~6回の国際会議も開催され、それぞれのプロシーディング^{9)~11)}が刊行されている。さらに特筆されるのは、新しく循環流動層だけについての国際会議が既に2回開催された¹²⁾¹³⁾ことで、第3回が1990年10月に名古屋で開催されることになっている。

新しい研究の展開に大きな影響を与えたのは、この間もやはり流動層技術の新たな展開であった。

1980年代に入って1970年代の世界を巻き込んだエネルギー問題も石油価格の低下により一応鎮静化した。しかし、流動層燃焼技術の開発は研究費の削減などの逆風にもかかわらず大きな進展を見た。特に、新しい燃焼技術として登場した循環流動層燃焼装置(CFBC)は、中規模用ボイラーとしてヨーロッパにおいて大成功を納め、その後、米国やアジアにおいても主に産業用ボイラーとして急速に導入されている。このCFBCの成功により、循環流動層(CFB)に関する研究がいつせいに展開され、国際会議が開催されるまでになったのである。

一方、エネルギー問題に続いて主に我が国において起こったファインセラミックスをはじめとする新素材ブームは、流動層を使用した化学気相成長法(CVD)等の新しい反応器の開発やサブミクロン等の微細粒子の流動化

に関する研究の強い推進力となっている。

さらに、石油製品のいっそうの白物化に対応するため、より重質な油分が処理できる流動層接触分解プロセス(FCC)の開発や、高度な環境保全に対応できる下水汚泥の焼却、廃棄物や都市塵芥の燃焼とエネルギー利用プラントの開発等は、流動層に対してより高度で精密な設計と操作を要求し、詳細な基礎研究がますます重要になっている。

また、最近では石油化学製品の好調な需要に支えられて各種の新しい触媒反応器の大型化や建設が計画されており、一部では既に稼働しはじめているが、今後の動向は世界的な経済情勢の動向に大きくかかわっている。

鉄鋼分野では、既に読者の方々もよく御承知のように、溶融還元プロセスのための流動層を用いた鉄鉱石の予備還元炉の開発が推進されている。

ここでは、まず流動化現象に関する最近の研究として、循環流動層と微細粒子の流動化を取り上げその現状と課題を紹介する。次に、最近の流動層技術の展開の例として、FCCプロセス、燃焼プロセス、新素材製造技術を取り上げ、最近の展開を紹介する。

1. 最近の流動化研究

1.1 従来の知見

1960年代に問題となった気泡を中心とした流動化現象については、1970年代前半までにまさにそのベールを剥がれ、ほぼ解明されたと言える。その基本的な点を要約すると次のようになる。

固定層状態から層に流入する流体の速度をしだいに上昇させると層の圧損失(層に加えられる抗力)が増加し、粒子層の受ける重力と等しくなると、粒子は重力の束縛から解放されて浮遊状態(流動化状態)となる。

ここで、流体として液体を使用する場合には、流速をさらに上昇させると層は均一に膨張し層内の空間率を増加することによって圧損失が重力と釣り合う流動化状態を維持する。したがって、空間率がほぼ1に等しくなる

平成元年9月20日受付 (Received Sep. 20, 1989) (依頼解説)

* 名古屋工業大学機械工学科助教授 (Department of Mechanical Engineering, Nagoya Institute of Technology, Gokiso-cho Showa-ku Nagoya 466)

Key words : fluidized-bed ; circulating fluidized-bed ; fine-powder ; cracking ; combustion ; boiler ; new-material.

流速(単一粒子の終末速度)に達するまでは層を維持したままで流速を上昇させることができるが、それ以上の流速になると粒子が層から流失して流動層を維持できなくなる。

一方、流体として気体を使用する場合には、粒子層が均一にはほとんど膨張できない(膨張した状態は不安定である)ため、層の圧損失と重力とが釣り合った流動化開始速度からさらに流速を増加させると、図1に示したように余分なガスの大部分が気泡となって層内を吹き抜けることによって圧損失を一定に保つ。ガス流速が大きくなると層底部で発生する気泡も大きくなるが層内で激しく合体を繰り返して大きく成長しながら上昇する。したがって、空塔基準のガス流速が終末速度より大きくなっても流動化状態を保つことができる。

以上に述べた液系と気系の流動層の差異や気泡発生などの挙動は、粒子相と流体相に関する二相型の運動方程式によって記述することができ、この方程式を解くことにより説明できる。

1.2 高ガス流速下の流動化

さて、それでは終末速度を超えてどんどんガス流速を上昇させると流動層の状態はどのようになるのであろうか。ガスの主流は気泡となって層内を吹き抜けるため、粒子が粒子相内を流れるガスに同伴して層から飛び出すことはほとんどないが、層界面における気泡の破裂にともなって層外(フリーボード)へ吹き上げられる(スプラッシュされる)粒子の量とフリーボードから系外に飛び出す粒子量はともにガス流速の増大にともなって増加する。したがって、高ガス流速で流動化する場合には、層を維持するために飛び出した粒子量に見合う量の粒子を補給するか、あるいは飛び出した粒子をサイクロンなどで捕集して層内に循環させる必要がある。

FCC用触媒粒子のように粒子密度が 1 g/cm^3 以下と小さく平均粒径が $60\sim 70\text{ }\mu\text{m}$ 以下で、 $40\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子を20%程度含んだ粒子を流動化させると、気泡は数cm以上には成長せず、頻繁に分裂することが良く知られている¹⁴⁾。一方、粗粒子を用いるバブリング型流動層ボイラーなどでは数mにも達する気泡が観測されている。また、 $150\text{ }\mu\text{m}$ 前後の粒子や密度の大きい小粒子

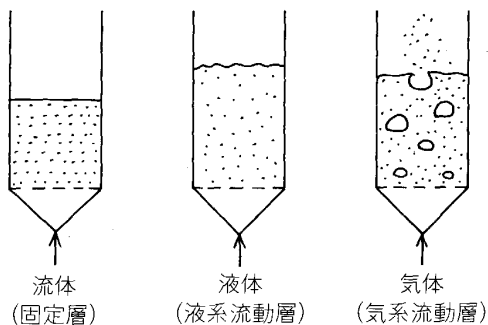


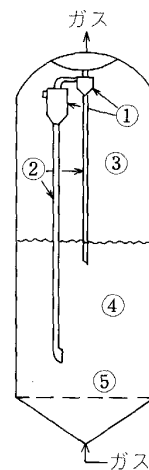
図1 液系および気系流動層

を流動化させると気泡やスラッグ(塔径が小さい場合には気泡が塔径より大きく成長してスラッグとなる)の発生頻度が流速と共に増大するが、ある流速で頻度は最大となり、それ以上にガス流速を増大させるとしだいに減少し、ついには明確な気泡が観測されない乱流流動化状態となる¹⁵⁾。乱流流動化へ移行する流速のレイノルズ数($Re \equiv \rho_f d_p u_o / \mu_f$)はアルキメデス数($Ar \equiv d_p^3 \rho_f (\rho_p - \rho_f) g / \mu_f^2$)のほぼ0.5乗に比例する¹⁵⁾¹⁶⁾が、同一ガス流速で流動化状態を比較すると粒子密度の影響を強く受け、密度が大きいほど大きい気泡やスラッグが発生する激しい流動化を経て乱流流動化状態に移行する。このように気泡やスラッグが崩壊して新しい流動化状態へ移行する理由などはほとんど解明されておらず今後の研究課題である。

乱流流動化状態になっても層内では不規則で大きな粒子濃度の変動が観測され、かなり明確な層界面がみられる。ガス流速がさらに増加すると、層の中心軸のまわりに粒子濃度が薄いコア部が形成されその中を粒子とガスが共に上昇し、壁付近では粒子濃度が高く粒子が下降する環状構造がしだいに発達し、層界面も不明確になってくる¹⁷⁾¹⁸⁾。このような流動化状態を高速流動化状態と呼ぶ場合が多い。高速流動化状態は粒子が凝集体(クラスター)となり、連続相となったガス中を流動化している状態であると説明されており¹⁵⁾¹⁹⁾クラスターの大きさなども測定されているが、これらの現象の大部分はまさに未知のベールに覆われているのが現状である。

1.3 循環流動層の流動化

単一粒子の終末速度よりはるかに大きいガス流速下で、乱流流動化状態かそれに近い流動化状態で流動層を操業することは目新しいことではなく、前述のFCC粒子に近い性状の触媒を使用した反応器の多くがこのような条件で運転されており、図2に示すように飛び出し粒子は反応器内に設置されたサイクロンで捕集されディブ



①サイクロン ②ディブレッグ
③フリーボード ④流動層 ⑤分散板
図2 自然循環型流動層

レグを通して層内へ戻されている。この場合には、粒子の飛び出し量はフリーボード部の構造が決まると、粒子の物性とガス流速だけの関数となり粒子の循環量を独立に変化させることはできない。また、層高もディプレッグやサイクロンからなる循環系内の粒子滞留量が小さいため粒子の投入量とガス流速だけで決まる。

一方、近年実用化が進められている循環流動層では、図3に示すように、外部サイクロンにより粒子を捕集してダウンカマーを通して流動層へ循環させる。また、粒子の循環量はニューマティクバルブによりガス流速とは独立に制御することができる。

循環流動層内の流動化現象に関しては、系統的なデータがきわめて不足している現状であるが、FCCのように密度の小さい粒子を環状構造が発達するまでのガス流速で流動化させると、粒子循環量の増加と共に層内の空間率は増大しフリーボード部のそれは減少して両者の差が縮小する。粒子の密度が大きくなると両者の空間率はともに大きくなり、粒子循環量やガス流速が変化してもあまり変化しなくなる²⁰⁾。また、粒子循環量を減少させると流動層が消失し、塔全体がフリーボード部の空間率に等しくなった希薄層へ移行する現象が観察される。さらに、循環量をどんどん増加させると層界面が上昇し塔頂部にまで達してしまう場合もある。

このような、層界面位置や希薄層への移行についても結論が出ている状況ではないが、最近の WEINSTEIN ら²¹⁾、YANG²²⁾ と筆者ら²⁰⁾ の研究結果に基づいて以下に解説してみる。

循環流動層は図3に模式的に示したように、主流動化部(ライザー)、サイクロン、サイクロン下部のダウンカマー、および、ニューマティクバルブとからなる。また、ダウンカマー部に流動層を設置し調節弁で循環流量を制御する形式も、主に実験用として多く採用されている。このように、循環流動層では流動層部と外部粒子循

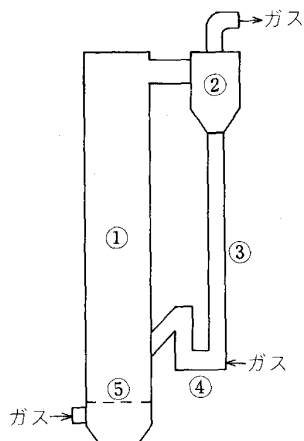
環系との間に圧力ループが形成されているのが特徴であり、流動層底部すなわちライザー底部の圧力は、ダウンカマー底部の圧力と弁の圧損失とによって規定される。一方、流動層とフリーボード部の平均空間率はガス流速と粒子循環量によって決まる。ここで、流動層内に滞留する粒子の受ける重力と、ライザーの底部と頂部との差圧とは釣り合っていない限り、流動層の高さはこの釣合いが満足されるように決まる。したがって、粒子の循環量を減少させるためにバルブ部の圧損失を大きくすると流動層底部の圧力が下がるので層高は減少し、ついには層の底部に達してライザー全体がフリーボード部となり希薄層へ移行する。また、ダウンカマーの粒子が流動化している場合にはダウンカマー底部の圧力はダウンカマー内の粒子層高に比例するため、他の操作条件を同一に保ちつつこの層高だけを変化させることによりライザー内の流動層高を独立に変化させることができる。

1.4 微細粒子の流動化

最近の流動化現象に関する研究のもう一つの焦点は、GELDART⁵⁸⁾の粒子分類で“C”粒子に分類されている20 μm 以下の微細粒子の流動化についてである。このような微細粒子は粒子間の付着力が大きく、流動層内にチャンネルが発生してガスが吹き抜けてしまうため、層全体を良好に流動化させることがきわめて困難であるとされてきた。しかし、近年ファインセラミックスをはじめとする新素材の開発や、食品や医薬品の製造などの分野において、サブミクロン粒子などの微細粒子の処理法を確立することがきわめて重要な課題となっており、これらの粒子を流動化状態で高度に処理する要望もきわめて大きい。

微細粒子の流動化に関しては、BROOKS ら²³⁾が繊維状のサブミクロン粒子が低流速下で気泡の発生をほとんど伴わない均一状態で流動化できることを示し、CHAOUKI ら²⁴⁾は、微細粒子を高い流速で流動化すると付着力により造粒された二次粒子が形成されこの粒子が流動化して流動層が得られると報告している。

近年、諸岡ら²⁵⁾はサブミクロン粒子を通常の流動層によって流動化させると、低ガス流速ではチャネリングにより圧損失が低下して流動層を形成できないが、流速を増加していくとしだいに層内の粒子が造粒し粒径の大きい二次粒子を生成するため、この粒子が流動化する流速にまで流速を上昇させれば圧損失が増大して層全体を容易に流動化させることができると指摘した。このように、微細粒子の層全体が流動化する最小流速は一次粒子から推算される流動化開始速度や終末速度よりはるかに大きい値となり、その値は粒子の性状によって大きく変化する。なお、諸岡らの使用した流動層は塔径が3.5 cmと小さいため比較的流速で容易に流動化することができるが、塔径が大きくなると圧損失の大きい多孔質



①流動層(ライザー) ②サイクロン
③ダウンカマー ④ニューマティクバルブ
⑤分散板

図3 強制循環型流動層

板などの均質な分散板を使用するとともに、ガス流速をかなり大きくする必要があり、このように、通常の流動層を使用して微細粒子を流動化するための操作条件は粒子の性状と装置の構造に依存するため定量的に推算する方法が全く無いのが現状である。

微細粒子を良好に流動化させる方法として、加藤ら²⁶⁾が提案しているように粗い粒子を媒体として使用し、媒体粒子の流動層内に微細粒子を分散させる方法も単純で有力な手段であるが、この場合も、ガス流速をかなり大きくする必要があり粒子の飛び出し量が増えるので注意が必要である。

筆者ら²⁷⁾は、層全体にパーティクルフィーダーに利用されている振動と同様なツイスト振動を付加した流動層を使用して、数10 μm からサブミクロン粒子までの各種の微細粒子の大部分を4 cm/s以下の低いガス流速で良好に流動化できることを示した。ことに5~10 μm の粒子の層膨張はきわめて大きく気泡の発生がほとんど無い状態で流動化することができるが、層界面から多量の微細粒子が飛び出す。粒径をより細かくすると気泡が発生し層膨張も小さくなるが飛び出し粒子量は著しく減少する。この場合も流動化状態は粒子の性状にきわめて強く依存し、粒子によってそれぞれ最適な振動条件が存在する。

1.5 粒子のハンドリング

新しい流動層を実用化するにあたって層内粒子の流動化と共にきわめて重要なのが、粒子のハンドリングである。ベンチからパイロットプラント、パイロットから工業規模プラントへとスケールアップする際のトラブルの大部分と言っていいほど多くのトラブルが、層への粒子の供給と排出、粒子循環ライン、前及び後処理ラインなどの粒子ハンドリング系で引き起こされている。これは、この方面の系統的研究がきわめて立ち遅れているためである。最近、KNOWLTON²⁸⁾により、流動層における粒子ハンドリングに関する解説が出されたが、この解説を見てもこの分野の研究がいかに不十分かがわかると思う。この理由の一つにハンドリングラインの構造の多様性と大型装置による実験の困難さがあり、最近になってこの方面についてのデータも提出され始めているが^{29)~35)}、スケールアップ計算を系統的行うにはきわめて不十分である。したがって、実際のスケールアップに際しては流動層本体の設計に先立って実寸大に近いコールドモデルによる試験を十分に行ってデータを蓄積しておくことがプロセス開発を円滑に行うために必須の条件となっているのが現状である。

2. 最近の流動層技術の展開

流動層は近年ますます広範囲に應用され、新しい技術開発が精力的に推進されている。最近開発されている気系流動層プロセスの特色として、多様な應用分野、対象

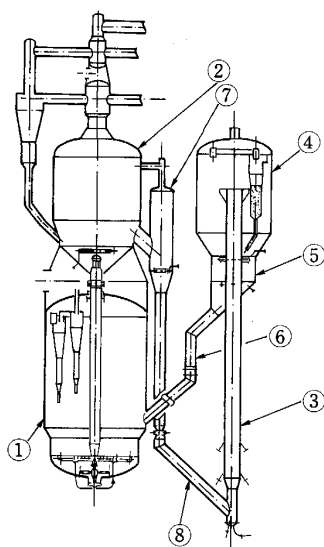
粒子の拡大、高流速化、厳しい操作条件範囲、高度な非定常操作、複合化などが挙げられる。應用分野としては、CVD等の新素材製造、粒子の表面処理、各種材料の熱処理、醗酵などがあり、新しい触媒反応器の開発等も進められている。非定常操作としては、各種の回分式操作と、FBCや発電用ガス化炉などの迅速な負荷変動性などが典型的である。

ここでは、近年実用化に向けての技術開発がめざましい進展を見せている、流動層接触分解プロセス(FCC)、流動層燃焼装置(FBC)、および、新素材製造装置を取り上げて紹介する。

2.1 流動層接触分解プロセス

FCCプロセスは1940年代前半に実用化され、流動層が広く触媒反応器として実用化される端緒となったことは良く知られている。従って、世界中で多数の装置が稼動しており、その実績から考えても今ごろなぜ新しく技術開発をしなければならないのか疑問に思う読者も多いと思われる。しかし、FCCプロセスの開発は決して1940年代に完了したのではなくその後も継続的に技術開発が進められてきたのである。このことは他の大部分のプロセスについても同様であり、たとえずっと以前に実用化されたプロセスでもそのままの型で操業されている例は少なく、常に改良や新しい形式の装置に更新されているのがむしろ一般的である。最近、プロセス開発に当たってパイロットスケール段階に到達したからベンチ試験や基礎研究が不用になったとか、実用化段階に達したらすべての技術開発が終了したと考える開発予算を大幅に削減したり、プロジェクトを終了してしまったり、あるいは他の形式のプラント開発を諦めてしまうなどの傾向がみられるが、このようなことが決して正しくはないことがこの例からも理解されると思う。

当初のFCCプロセスは天然白土を触媒として利用して軽油を分解するために開発されたが、その後重油から減圧残油へと、より重質な原料を分解できるプロセスが開発されてきた。この間、1960年代にゼオライト触媒が開発され、大部分のプロセスは分解がライザーで完結するライザークラッキングタイプとなった³⁶⁾³⁷⁾。1980年代に入って、重油の需要減と製品の白油化にともなって、重油の100パーセント分解、常圧から減圧残油までのより重質な油分の分解を目的として技術開発が進められている。図4には、出光興産(株)愛知製油所で1987年から稼動しているR2Rプロセス³⁷⁾³⁸⁾を示すが、このプロセスは2段の再生塔が異なる燃焼モードで運転されており、高温で高バナジウム濃度で運転しても失活が少ない触媒の再生が可能になっている。また、このプロセスでは再生塔排ガス中の硫黄と窒素酸化物を活性コークスを用いた乾式同時脱硫脱硝装置により除去している。



①第一触媒再生塔 ②第二触媒再生塔 ③ライザー
④触媒分離塔 ⑤ストリッパー ⑥スタンドパイプ
⑦再生触媒拔出し器 ⑧再生触媒スタンドパイプ

図 4 R2R 流動層接触分解装置

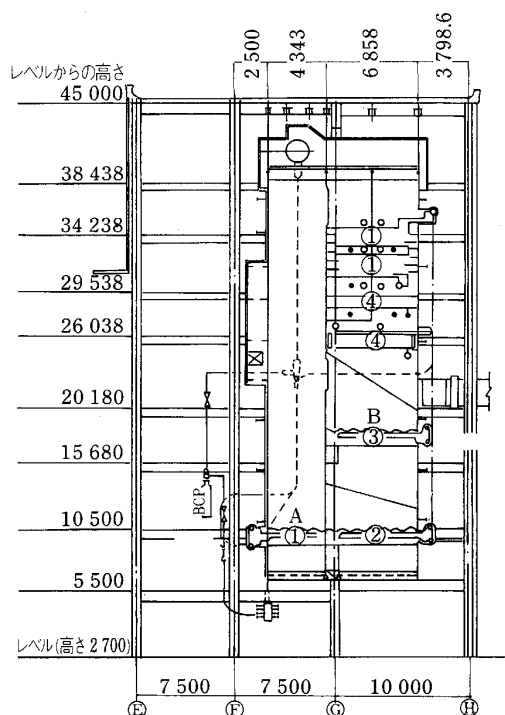
2.2 流動層燃焼装置

流動層燃焼装置は我が国において最も数多くのプラントが稼動している流動層プロセスである。

流動層燃焼装置の代表的なものが都市塵芥等の焼却炉であり、ことに近年、良好な燃焼特性のため排出される灰の量を限界まで減少させることができる、低空気比で運転し窒素酸化物の排出量が抑制できる、炉内に可動部がなく運転制御が容易であるなどの利点が認識され、中小炉を中心に稼動数が増加してきている。また最近は、塵芥の発熱量が高くなり余剰熱が発生するのでボイラータイプにして蒸気や電力の形で熱を回収するが多い。

下水汚泥の焼却炉も窒素酸化物の抑制のためにほとんどすべてが流動層タイプとなっている。

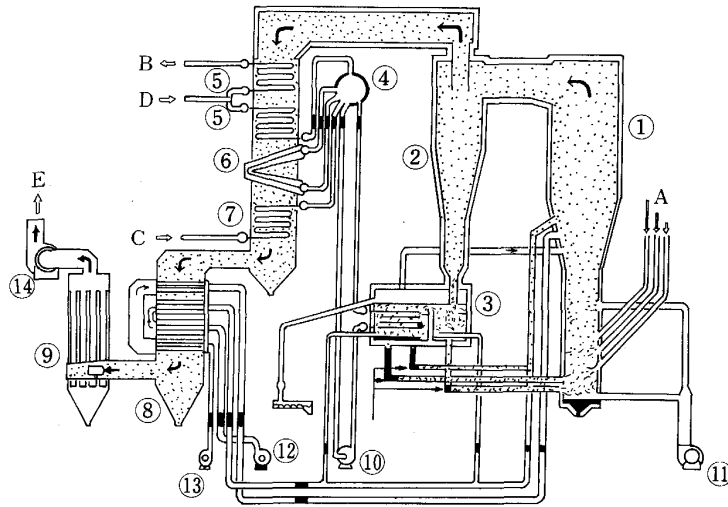
1970年代後半から我が国でも開発が始められた流動層ボイラーは、石炭だけでなく選炭スラッジやパルプ廃液などの劣質な燃料を利用する産業用の小規模ボイラーとしてすでに実用化され、発電用石炭ボイラーとしても開発が進み、電源開発(株)若松発電所の50MWe(160t/h)実証プラントが良好に稼動中であり(図4)、現在世界初の本格的発電プラントである350MWe商業プラントの建設に向けて設計段階に入っている³⁹⁾。このプラントは近い将来に予想される重油焚発電プラントのリプレースを考慮し竹原2号機の改造として行われるため、いかにコンパクトな設計にするかが最も重要な課題であり、図5に示した実証プラントの構造とはかなり異なった構造になっている⁵⁹⁾。これらのタイプのFBCはすべて気泡流動化の範囲で操業する気泡流動層型燃焼装置(BFB)である。石炭燃焼用BFBCでは流動化



A: 下段流動層 B: 上段流動層
①再熱及び過熱器 ②過熱器 ③蒸発器
④節炭器

図 5 50 MWe 実証試験流動層ボイラー本体 (単位 mm)

媒体として石灰石を利用し層内にスーパーヒーターチューブが挿入されている。また、炉内で石炭の燃焼と同時に乾式脱硫をおこなうが、国内の石灰石は炉内で粉化しやすいため必要以上に投入しなくてはならず、Ca/S比が大きくなる。また、通常の化学反応は高温ほど反応速度が大きくなるが、石灰石を900°C以上の高温で脱硫反応をさせると粒子の表面が緻密な石膏で被膜されてしまい反応速度が低下するため、流動層の運転範囲は750~900°Cに制限される。BFBCの特長として、発熱量の小さい燃料の利用と共に、炉内粒子による熱保持能力が大きいため一次停止と再起動が容易であることが挙げられるが、負荷変動を行うためには炉内を多数のセルに分割し、セル間の火移りを迅速にして良好な負荷変動特性を得る必要がある。前述のBFBC発電プラントでは流動層から飛び出した灰中の未燃分は、カーボンバーンアップセルでより高温で燃焼することにより燃焼効率の改善が計られている。また、このプラントでは後部に脱硝プラントが設けてあり二段燃焼による炉内脱硝にあまり重点がおかれていないが、二次空気比の調節や吹込み位置とノズル構造などの工夫によりできるだけ窒素酸化物の低減をはかる試みも多くなされている。このように、BFBCでは、非定常運転される流動層内において石炭の燃焼、水管による抜熱、石灰による脱硫、二段燃焼による窒素酸化物の抑制などを同時に制御する必



A: 石炭, 石灰石 B: 発生蒸気 C: 供給水
 D: スプレー水 E: 煙道ガス
 ① 燃焼炉 ② サイクロン ③ 外部熱交換器 ④ 蒸気ドラム
 ⑤ 過熱器 ⑥ 蒸発器 ⑦ 節炭器 ⑧ 空気予熱器
 ⑨ 集塵器 ⑩ 循環ポンプ ⑪ 第一次ファン ⑫ 第二次ファン
 ⑬ 熱交ファン ⑭ 誘引ファン

図 6 70 t/h 循環流動層ボイラー

要があり、従来の流動層にはなかった高度の技術開発が要求されている。

BFBC の最大の欠点は、炉内に吹き込んだ石炭粒子が水平方向に移動する速度が遅いため、石炭粒子を炉内へ供給する気流搬送管の本数がきわめて多くなる点である。この点を改良し、石灰石の利用率の向上とより高度な窒素酸化物の抑制を可能にするプロセスとして登場したのが循環型流動層ボイラー (CFBC) である。

CFBC は 1979 年にフィンランドに建設されて以来、欧米において主に中および小規模の産業用ボイラーとして急速に需要を拡大している。我が国では 1986 年に米国の Riley Stoker と提携した三井造船(株)がクラレ(株)に図 6 に示す CFBC の実用第 1 号機を建設した⁴⁰⁾。その後、いずれも欧米のメーカーと提携した、鉄鋼および重工メーカー各社が参入し、需要の拡大を計っている。CFBC の大きな利点はガス流速が 2~10 m/s と高いため、炉床断面積が小さく給炭管の本数がきわめて少ない点にあるが、大規模になるほど炉高が高くサイクロンが大きくなる。また、炉内には水管がなく粒子濃度の薄いフリーボード部とサイクロンの下流部にあるため、粒子による摩耗の心配がほとんど無い。サイクロンで補集された粒子はパイロフロー社のボイラーのようにそのまま層へ返す場合と、図 6 のように粒子の顕熱を回収する場合とがある。CFBC の課題としては、いかにして迅速な負荷追従性を得るかという点である。

現状でも、石炭炊きの FBC を産業用として導入した経済効果は十分に得られるが、さらに、FBC の特長を活かして所内などにある産業廃棄物などの未利用のエネルギー源を混焼し、石炭に代替する割合を少しでも増やすことができればその経済効果は更に大きくなる。

2.3 新素材製造技術

ファインセラミックスや複合材料などの新素材の開発が注目を集めているが、流動層を利用して新素材を製造する技術の開発も精力的に進められている。個々の製造

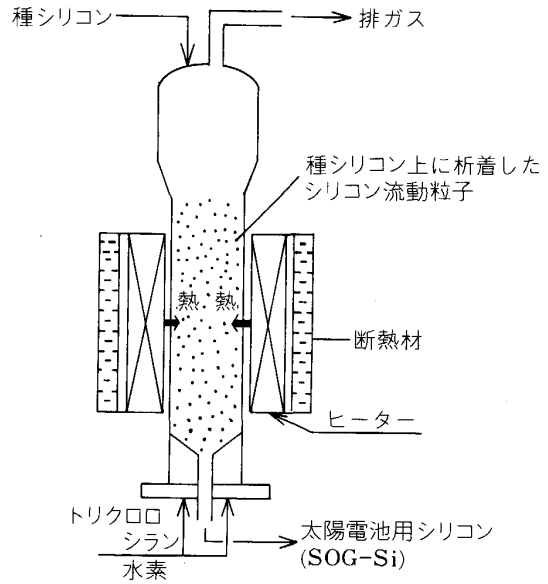


図 7 NEDO 法多結晶シリコン製造法⁵⁴⁾

技術については装置が小型であり公表されることもほとんど無いので、文献を挙げて示すことはできないが、CVD などによる粒子の表面コーティング等の粒子の処理にはかなり多くの流動層が利用されている。しかし、最近基礎研究も我が国を中心として進められておりその成果が報告され始めているのでここで紹介する。

諸岡ら⁴¹⁾⁴⁵⁾は、前述のサブミクロン粒子の流動化についての彼らの知見に基づいて、CVD により窒化珪素に窒化チタンをコーティングするプロセスを検討している。加藤ら²⁶⁾⁴²⁾も、前述した、彼らの媒体流動層によるサブミクロン粒子の流動化の知見に基づいて、カーボンと炭化珪素混合粒子からの脱炭プロセスの開発を行っている。筆者ら⁴⁶⁾も、前述の振動流動層を利用した微粒子の処理技術の実用化例を報告している。堀尾ら⁴³⁾⁴⁷⁾は、サブミクロン粒子の製造法として、マイクロコンテナ粒子の流動層による製法を提案している。さ

らに、彼ら⁴⁸⁾は、プラズマ噴流流動層による造粒も試みている。福森ら⁴⁹⁾も、流動層でマイクロカプセルを製造し、操作条件が製品特性に与える影響を検討している。杉森ら⁵⁰⁾は、医薬品の流動層造粒における造粒機構について検討を加えている。鹿毛ら⁵¹⁾や大迫ら⁵²⁾は粒子表面への微粒子のコーティング試験の結果を報告している。

小島ら⁴⁴⁾⁵³⁾や本宮ら⁵⁴⁾は多結晶シリコンの製造について、堀田ら⁵⁵⁾は流動層を用いた窒化反応によりセラミックス原料を製造する方法について報告している。図7には新しい多結晶シリコンの製造法として開発中のNEDO法⁵⁴⁾を示す。

このように流動層を使用した新素材の製造技術にたいする研究はその緒についたばかりであり、前述の微細粒子の流動化機構に関する基礎研究と並行して今後粘り強く進めていく必要があると思われる。

3. おわりに

以上、最近の流動層研究と技術開発について、現在注目を集めているテーマを取り上げて解説した。なお、溶融還元プロセスにおける鉄鉱石の流動層による予備還元についてはここでは取り上げなかったが、この点については浜田⁵⁶⁾⁵⁷⁾による優れた解説があるので、参照していただきたい。

文 献

- 1) 鞭 巖, 森 滋勝, 堀尾正靑: 流動層の反応工学 (1984) [培風館]
- 2) 化学工学, **49** (1985), p. 322
- 3) 化学装置 (1986) **6**, p. 27
- 4) ケミカルエンジニアリング (1988) **10**, p. 23
- 5) 混相流, **2** (1988), p. 256
- 6) Fluidization 2nd ed., ed. by J. F. DAVIDSON, R. CLIFT and D. HARRISON (1985) [Academic Press]
- 7) Gas Fluidization Technology, ed. by D. GELDART (1986) [Wiley]
- 8) 流動層反応装置 (化学工学協会産業部門委員会) (1987) [化学工業社]
- 9) Fluidization 4, ed. by D. KUNII and R. TOEI (1984) [Engineering Foundation]
- 10) Fluidization 5, ed. by K. OSTERGAARD and A. SORENSEN (1986) [Engineering Foundation]
- 11) Fluidization 6, ed. by J. R. GRACE, L. W. SHEMILT and M. A. BERGOUNOU (1989) [Engineering Foundation]
- 12) Circulating Fluidized Bed Technology, ed. by P. BASU (1986) [Pergamon Press]
- 13) Circulating Fluidized Bed Technology 2, ed. by P. BASU and J. F. LARGE (1988) [Pergamon Press]
- 14) M. HORIO and A. NONAKA: AIChE J., **33** (1987), p. 1865
- 15) 堀尾正靑: 粉体工学雑誌, **23** (1986), p. 80
- 16) 橋本 修, 春田武男, 望月健二, 松谷 渉, 森 滋勝, 平岡節郎, 山田幾穂, 小島 孝, 辻 欣哉: 化学工学論文集, **14** (1988), p. 309
- 17) M. HORIO, K. MORISITA, O. TACHIBANA and N. MURATA: Circulating Fluidized Bed Technology 2, ed. by P. BASU and J. F. LARGE (1988), p. 147 [Pergamon Press]
- 18) M. J. RHODES, P. LAUSSMANN, F. VILLAIN and D. GELDART: 同上, p. 155
- 19) M. HORIO, M. NISIMURA and H. ISHII: Proc. 3rd SCEJ Symp. on Circulating Fluidized Bed (Soc. Chem. Eng. Jpn.) (1989), p. 54
- 20) S. MORI, Y. YAN, T. HARUTA, Y. YAMAGUCHI and I. YAMADA: 同上, p. 29
- 21) M. G. SCHNITZLEIN and H. WEINSTEIN: Circulating Fluidized Bed Technology 2, ed. by P. BASU and J. F. LARGE (1988), p. 285 [Pergamon Press]
- 22) W. C. YANG: 同上, p. 181
- 23) E. F. BROOKS and T. J. FITZGERALD: Fluidization 5, ed. by K. OSTERGAARD and A. SORENSEN (1986), p. 217 [Engineering Foundation]
- 24) J. C. CHAOUKI, C. CHAVARIE, D. KLVANA and G. PAJONK: Powder Technol., **43** (1985), p. 117
- 25) S. MOROOKA, K. KUSAKABE, A. KOBATA and Y. KATO: J. Chem. Eng. Jpn., **21** (1988), p. 41
- 26) 加藤邦夫, 宝田恭之, 越沼 敦, 金沢五海, 杉原只吉: 化学工学シンポジウム 20 (化学工学協会編) (1988), p. 110
- 27) 森 滋勝, 春田武男, 山本晃稔, 山田幾穂, 水田栄一: 化学工学論文集, **15** (1989), p. 992
- 28) T. M. KOWLTON: Gas Fluidization Technology, ed. by D. GELDART (1986), p. 341 [Wiley]
- 29) J. R. BERNARD, C. S. TEO and L. S. LEUNG: Fluidization 5, ed. by K. OSTERGAARD and A. SORENSEN (1986), p. 273 [Engineering Foundation]
- 30) J. R. BERNARD, A. CATROS, H. S. COTTIN and R. MARGRITA: Fluidization 6, ed. by J. R. GRACE, L. W. SHEMILT and M. A. BERGOUNOU (1989), p. 129
- 31) D. F. KING, R. M. FORDE, P. W. LEANEY, E. M. MARKAR and F. A. ZENZ: 同上, p. 145
- 32) T. C. BRISTOW and T. SHINGLES: 同上, p. 161
- 33) M. OZAWA and T. SAKAGUCHI: Proc. SCEJ Symp. on Circulating Fluidized Bed (Soc. Chem. Eng. Jpn.) (1989), p. 75
- 34) Y. TOMOYASU and M. ISHIZAWA: Fluidization 88, ed. by M. KWAWK and D. KUNII (1988), p. 28 [Science Press]
- 35) P. J. JONES and L. S. LEUNG: Fluidization 2nd ed., ed. by J. F. DAVIDSON, R. CLIFT and D. HARRISON (1985), p. 293 [Academic Press]
- 36) 岩井龍太郎: 化学工学, **49** (1988), p. 886
- 37) 新村和利: 第 49 回研究談話会前刷集 (化学工学協会東海支部) (1988), p. 26
- 38) P. A. GALTIER, R. J. PONTIER and T. E. PATUREAUX: Fluidization 6, ed. by J. R. GRACE, L. W. SHEMILT and M. A. BERGOUNOU (1989), p. 17 [Engineering Foundation]
- 39) 中林恭之: 混相流, **2** (1988), p. 307
- 40) 児島康夫, 三井達夫: 混相流, **2** (1988), p. 292
- 41) S. MOROOKA, K. KUSAKABE and A. KOBATA: Fluidization 6, ed. by J. R. GRACE, L. W. SHEMILT and M. A. BERGOUNOU (1989), p. 319 [Engineering Foundation]
- 42) K. KAOTO, T. TAKARADA, A. KOSHIMURA, I. KANAZAWA and T. SUGIHARA: 同上, p. 351
- 43) M. HORIO, M. TSUKADA and J. NAITO: 同上, p. 335
- 44) T. KOJIMA, O. MORISAWA, H. HIRAHARA, K. IWATA and T. FURUSAWA: 同上, p. 327
- 45) 小畑敦生, 全 宋学, 草壁克己, 諸岡成治, 北条純一: 化学工学シンポジウム 20 (化学工学協会編) (1988), p. 77
- 46) 水谷栄一, 森 滋勝, 山田幾穂: 同上, p. 93
- 47) 塚田まゆみ, 堀尾正靑: 同上, p. 119
- 48) 堀尾正靑, 花岡玲緒, 塚田まゆみ: 同上, p. 35
- 49) 福森義信, 市川秀喜, 山岡由美子, 竹内由和, 福田友昭, 大道義文: 同上, p. 26

-
- 50) 杉森健一, 森 章一, 川嶋嘉明: 同上, p. 20
51) 鹿毛浩之, 桐山知典, 高橋 達, 松野義三: 同上, p. 1
52) 大迫義文, 福森義信: 同上, p. 42
53) 小島紀徳: 同上, p. 51
54) 本宮達彦, 高見沢稔: 同上, p. 69
55) 堀田憲康, 木村勇雄: 同上, p. 101
- 56) T. HAMADA: Proc. 3rd SCEJ Symp. on Circulating Fluidized Bed (Soc. Chem. Eng. Jpn.) (1989), p. 3
57) 浜田尚夫: 第 15 回鉄鋼工学セミナー製鉄コーステキスト (日本鉄鋼協会編) (1989), p. 30
58) D. GELDART: Powder Technol, 7 (1973), p. 285
59) 岩永 亮: 化工 55 年会講演要旨集 (1990), p. 55
-