

# 過熱水蒸気による褐炭粒子の乾燥

桐山 毅

## 目次

### 第 1 章 序論

1.1 緒言	1
1.2 褐炭の特徴	7
1.3 褐炭の乾燥技術	
1.3.1 現行の乾燥プロセス	10
1.3.2 過熱水蒸気を用いた乾燥プロセス	13
1.3.3 過去に提案された褐炭単一粒子の乾燥モデル	16
1.4 本研究の目的	19
1.5 本論文の構成	19

### 第 2 章 褐炭単一粒子（直径 30 mm）の乾燥速度測定と数値計算モデルの開発

2.1 緒言	23
2.2 実験方法	
2.2.1 試料	23
2.2.2 実験装置	25
2.2.3 実験手順	28
2.2.4 収縮の評価方法	28
2.3 実験結果と考察	
2.3.1 乾燥過程における温度、重量および試料外観の変化	30
2.3.2 含水率および乾燥速度	35
2.3.3 初期水分、残留水分および収縮の評価	38
2.4 乾燥の数値計算モデルの開発	
2.4.1 物理モデル	41
2.4.2 粒子表面への入熱	45
2.4.3 粒子内部の熱移動	46
2.4.4 粒子内部の熱消費	46

2.4.5	結合水の熱力学的性質	48
2.4.6	凝縮期間において粒子表面上に生じる水滴	56
2.4.7	粒子内部の自由水の移動	56
2.4.8	収縮	58
2.5	計算結果と考察	
2.5.1	含水率, 乾燥速度および温度の変化	60
2.5.2	粒子内部における含水率および温度のプロファイル	64
2.5.3	乾燥特性曲線	66
2.6	小括	67
<b>第 3 章 褐炭単一粒子の乾燥速度における粒径の影響</b>		
3.1	緒言	70
3.2	実験方法	
3.2.1	試料	70
3.2.2	実験装置	73
3.2.3	実験手順	74
3.3	直径 10 - 2.5 mm の褐炭粒子を用いた実験の結果と考察	
3.3.1	温度, 重量および試料外観の変化	74
3.3.2	含水率および乾燥速度	86
3.3.3	蒸発速度への粒径の影響	89
3.4	数値計算モデルの修正	93
3.5	計算結果と考察	
3.5.1	含水率, 乾燥速度および温度の変化	98
3.5.2	乾燥特性曲線	107
3.6	小括	109

<b>第 4 章 粒径分布を有する褐炭粒子群の乾燥速度の予測</b>	
4.1 緒言	111
4.2 計算方法	
4.2.1 想定する粒径分布	111
4.2.2 粒子群の計算上の取り扱い	113
4.3 計算結果	
4.3.1 最大粒径 100 mm の褐炭粒子群の乾燥速度	116
4.3.2 最大粒径 50 mm の褐炭粒子群の乾燥速度	124
4.3.3 最大粒径 6 mm の褐炭粒子群の乾燥速度	129
4.4 小括	135
<b>第 5 章 総括</b>	139
謝辞	143
Appendix A 熱電対およびデータロガーの校正	144
Appendix B 計算に用いたパラメータの算出	148
Appendix C 水の蒸発に関する熱力学データ	151
Appendix D 第 3 章において作成した数値計算用のプログラムコード	154

# 第1章 序論

## 1.1 緒言

近年、中国やインドを中心として、世界的にエネルギー需要が急増している<sup>[1]</sup>。化石燃料の取引価格も上昇傾向にあるため、経済性の観点から、燃料の安価な調達と高効率利用による使用量の低減が求められている。また、地球温暖化対策の面から、CO<sub>2</sub> 排出量の低減も合わせて求められている。一方、エネルギーセキュリティの観点からは、自国産のエネルギーを用いるのが最善であるが、エネルギー資源がない場合には、リスク分散のため多様なエネルギー源をミックスすることが必要である。

現在、日本においては、福島原子力発電所事故により、電力供給における原子力発電の比率が低減しており、その代替を火力発電が担っている<sup>[1]</sup>。化石燃料のほとんどを輸入に頼る日本では<sup>[1]</sup>、火力発電の高効率化による燃料使用量の低減に取り組んできたが、さらなる高効率化とエネルギーセキュリティの向上が今後の課題である。

火力発電には、LNG、石油および石炭が燃料として用いられている。Fig. 1-1 に化石燃料（石油、LNG、一般炭）の発熱量あたりの年度平均輸入 CIF（Cost, Insurance and Freight: 運賃・保険料込み）価格を示す<sup>[1]</sup>。一般炭（Steam coal）とは、ボイラーやストーブに使われる燃料用の石炭を指し、製鉄用に用いられる加工用の石炭（原料炭: Coking coal）と区別される。各種発電方式の単位発電電力量当たりの CO<sub>2</sub> 排出量を Fig. 1-2 に示す<sup>[2]</sup>。LNG は単位発電電力量当たりの CO<sub>2</sub> 排出量が最も少なく、石油より安価である。ガスタービンと蒸気タービンを組み合わせたコンバインドサイクル発電方式によって効率を高められることから、主な燃料として使われている<sup>[1]</sup>。石油は最も単位発熱量当たりの価格が高いため、ピーク用として用いられているが、国内に備蓄があるため、短期間での調達量の変動へ対応できる。石炭は、他の化石燃料と比較し可採年数が長いこと、および生産地が偏っておらず、経済性と価格安定性に優れているといった特長がある<sup>[1,3,4]</sup>。しかし、発熱量あ

たりの CO<sub>2</sub> 排出量が最も多いため、地球温暖化対策の面から、より高効率な利用が求められている。

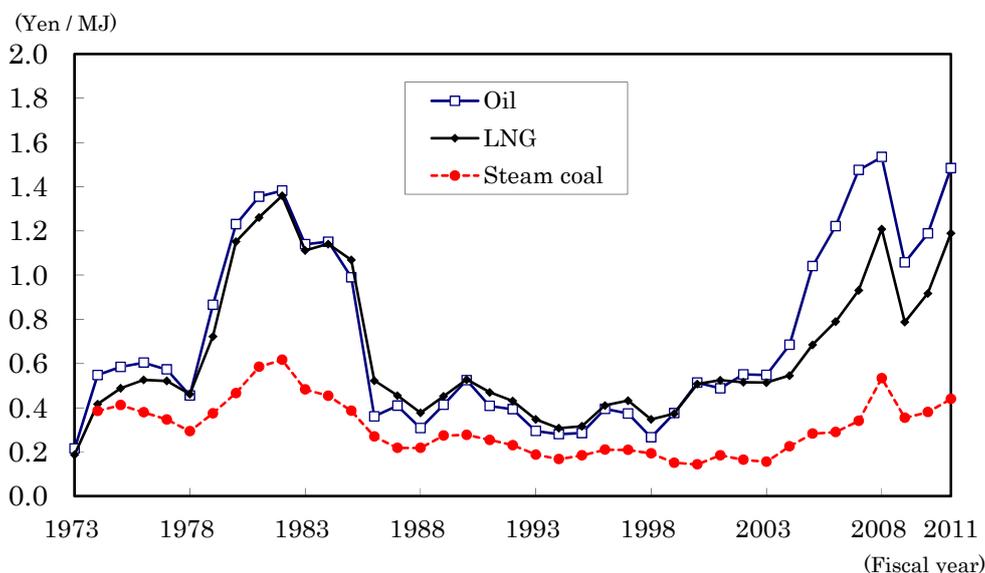


Fig. 1-1 Changes in CIF price per calorific value.

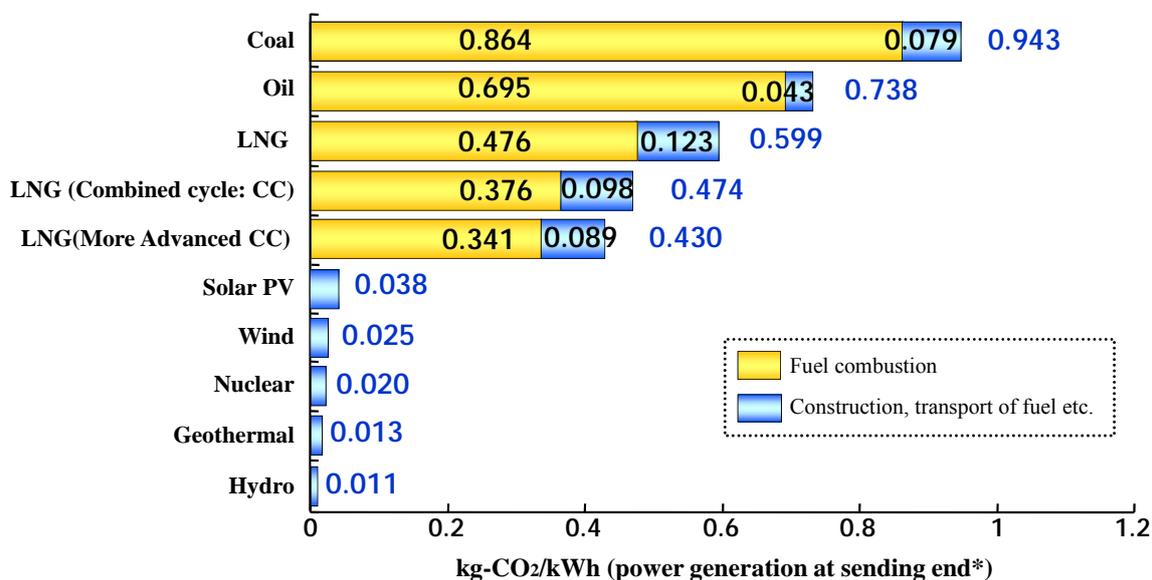


Fig. 1-2 Life cycle CO<sub>2</sub> emissions of power generation technologies.

\*Electricity transmitted from power stations.

世界全体の 2010 年の CO<sub>2</sub> 排出量 303 億 t のうち、日本の排出量は 11 億 t であり、全体の 4% 程度である<sup>[5]</sup>。分野別に見ると、石炭火力発電（熱供給を含む）が第 1 位となっており、その占める割合は約 3 割に上る<sup>[5]</sup>。したがって、国内での石炭火力発電を高効率化するとともに、国外の石炭火力発電の高効率化を図ることは、世界全体の CO<sub>2</sub> 排出量削減の重要な課題である。日本がこの分野の技術開発を進めることにより、世界全体の CO<sub>2</sub> 排出量削減を達成することが期待される。

世界エネルギー会議（WEC）が報告した、2008 年末時点の石炭の確認可採埋蔵量の分布を Fig. 1-3 に示す<sup>[6]</sup>。WEC によって使用された用語と定義は、以下の通りである。

- ・「資源量」（Resources）とは、その存在が既知もしくは採掘可能と推定される量である。確認（精測）（Proved (Measured)）、推定（概測）（Probable (Indicated)）、および予想（予測）（Possible (Inferred)）に分類される。
- ・「残存資源量」（Amount in Place）は、既知の炭田において現在あるいは今後のその地点の経済条件のもとで、既存の採掘技術を用いて採掘可能と推定される資源量のことである。
- ・「可採埋蔵量」（Proven Recoverable reserves）は、「残存資源量」のうち、現在あるいは今後の経済条件のもとで既存の採掘技術を用いて今後採掘可能な量である。

世界の石炭の確認可採埋蔵量は、8609 億 t であり、そのうち 4048 億 t (47%) が瀝青炭（無煙炭を含む）、2608 億 (30%) が亜瀝青炭、1954 億 (23%) が褐炭となっている。これらの石炭の分類を Table 1-1 に示し<sup>[7]</sup>、次項で説明する。

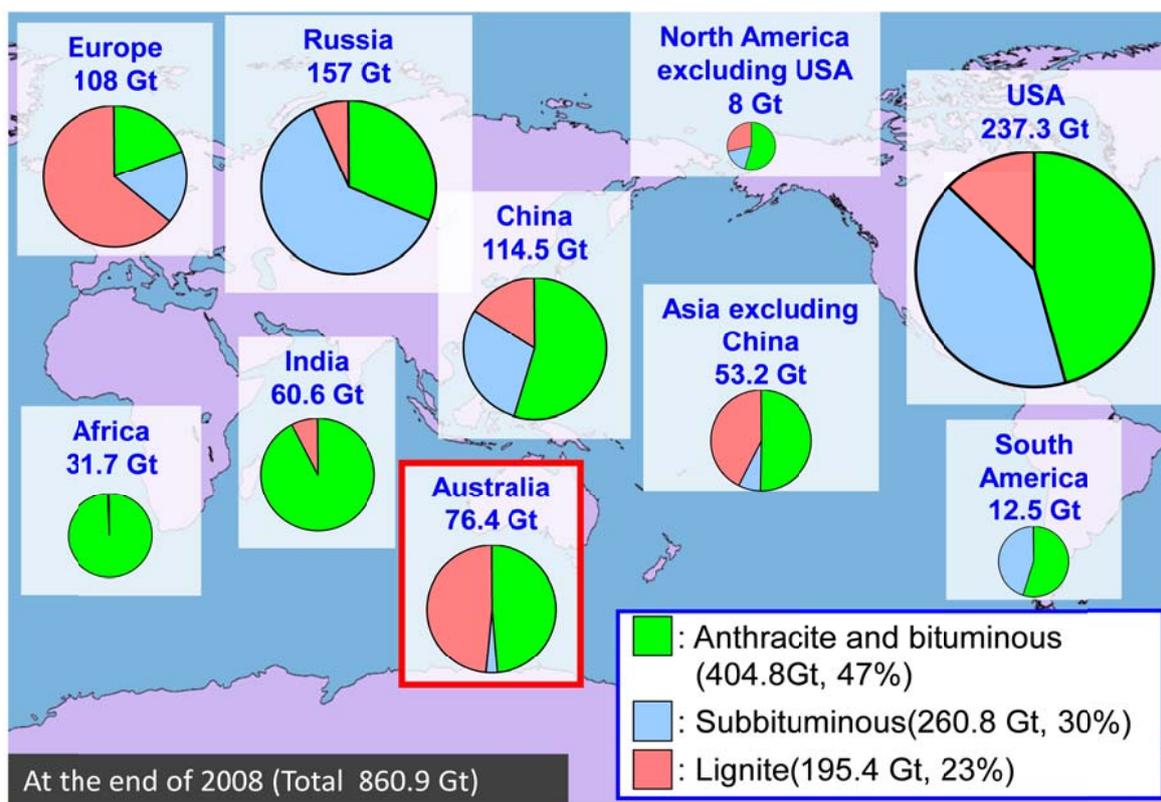


Fig. 1-3 Proven recoverable reserves of coal at the end of 2008.

Table 1-1 Classification of coal.

Classification		Gross calorific value* (MJ/kg)	Fuel ratio (Fixed carbon / Volatile matter)	Agglomerating character
Coal name	Class(JIS)			
Anthracite	A1	-	>4.0	non-agglomerating
	A2			
Bituminous coal	B1	≥ 35.16	>1.5	commonly agglomerating
	B2		<1.5	
	C	33.91 - 35.16	-	agglomerating
Subbituminous coal	D	32.65 - 33.91	-	weakly agglomerating
	E	30.56 - 32.65	-	non-agglomerating
Lignite	F1	29.47 - 30.56	-	non-agglomerating
	F2	24.28 - 29.47	-	

\*Corrected value assuming dry, mineral-matter-free basis

石炭のほとんどを海外からの輸入に頼っている日本では、世界の石炭の中でも、発熱量が大きく、かつ硫黄、灰分や水分の低い良質な石炭を輸入し、高効率利用を行ってきた。しかし、一大生産国であった中国が 2009 年から実質的な輸入国になるなど、良質な石炭の需要が増加している<sup>[8]</sup>。シェールガスの開発により、石炭の需要が一部代替されたものの<sup>[9]</sup>、中長期的には石炭の需要は増加していくと考えられる。このため、これまで利用していなかった褐炭や亜瀝青炭のような低品位炭も、輸入・産業利用ができるよう、産炭国と協調して高度利用技術の開発に努めていく必要がある。

本研究の対象とした褐炭について、国別の埋蔵量を Table. 1-2 に示す。全体で 1954 億 t の確認可採埋蔵量のうち、第 1 位がドイツ (406 億 t, 21%)、第 2 位がオーストラリア (372 億 t, 19%)、第 3 位が米国 (302 億 t, 15%) となっており、上位 3 か国で世界の褐炭資源の半分以上を占めている。

Table 1-2 Lignite resources by country at the end of 2008.

Country	Proved (Measured)		Probable (Indicated)		Possible (Inferred)	
	Amount in Place (Mt)	Recoverable Reserves (Mt)	Amount in Place (Mt)	Recoverable Reserves (Mt)	Amount in Place (Mt)	Recoverable Reserves (Mt)
Australia	44,300	37,200	61,200	55,100	112,300	101,100
Indonesia	5,816	1,105	3,721		6,588	-
Germany		40,600				
<b>North America</b>						
- Canada	13,941	2,236	33,005		53,765	
- Mexico		51				-
- USA	39,024	30,176			391,159	302,470
<b>East Europe</b>						
- Bosnia and Herzegovina		2,369				
- Bulgaria	5,639	2,174	930	1		
- Czech Republic	2,812	908	2,784		4,470	
- Hungary	1,562	1,208	1,717	960	2,503	2,208
- Poland	1,661	1,371	11,902			
- Romania	3,802	280	6,731	94	2,909	
- Russian Federation		10,450				
- Serbia	20,400	13,400				
- Slovakia		260				
- Slovenia		199				
- Ukraine		1,945				

## 1.2 褐炭の特徴

石炭は、陸上植物が十分生育した後、高度な分解を受ける前に地中に埋もれ、その後地熱や地圧を受けて生成したものとされている<sup>[3, 4, 10, 11]</sup>。石炭の生成する過程は石炭化作用と呼ばれ、木材から泥炭、褐炭、亜瀝青炭、瀝青炭、無煙炭といった形で進んでいく。この過程において、最初に脱水反応、その後、脱炭酸反応、脱メタン反応が進むと考えられている。厚さ 1 cm の良質な石炭をつくるためには、5 cm の泥炭が必要だと見積もられている<sup>[3, 12]</sup>。

Table 1-1 に JIS M1002 (炭量計算基準) の分類を示した。石炭は、発熱量(無水無灰補正基準)と燃料比(固定炭素重量を揮発分の重量で除したもの)および粘結性により、無煙炭、瀝青炭、亜瀝青炭、褐炭に分類されている<sup>[7]</sup>。褐炭は最も発熱量の低い石炭(24.28 - 30.56 MJ/kg)となっており、瀝青炭(> 33.91 MJ/kg)と比較すると 3 MJ/kg を超える発熱量の差が確認できる。これらの値は、灰分および水分を除いた純粋な石炭のみについて算出されたものであり、灰分および水分の比率が増えれば、実際の単位重量当たりの発熱量は低下する。また、実際に燃焼する際には、石炭が含む水分も同時に加熱されるため、水分が多く含まれる場合は蒸発潜熱が必要となり、単位重量当たりの発熱量はさらに低下する。Fig. 1-4 に、各国の褐炭の水分及び灰分の割合を示す<sup>[13]</sup>。地域によって、水分及び灰分量にばらつきが見られるが、今回着目したオーストラリア、ヴィクトリア州の褐炭は、水分が非常に多いものの、灰分は比較的少ないと言える。燃料となる純粋な石炭は水分及び灰分を除いた値となるため、図中の右上に行くほど、原炭中の燃料分が少なくなっている。

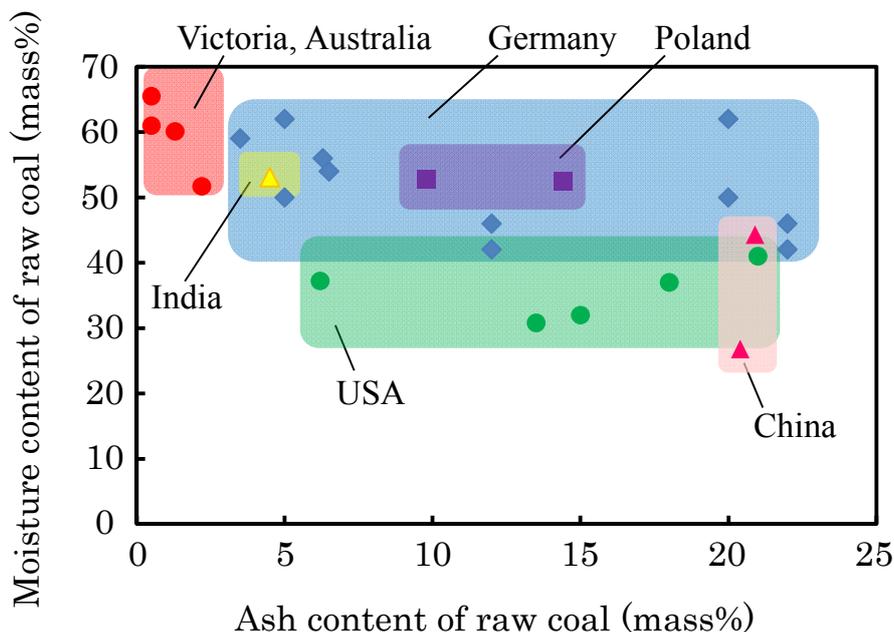


Fig. 1-4 Moisture and ash contents of lignite mined in the world.

オーストラリア、ヴィクトリア州の褐炭は、新生代（6600 万年前～）の第三紀（6600 万～160 万年前）に形成されたと考えられている<sup>[13]</sup>。世界の代表的な無煙炭および瀝青炭の炭田の多くが形成されたと考えられている、古生代（5.7 億～2.45 億年前）の石炭紀（3.6 億～2.86 億年前）と比較すると、かなり若い石炭だと言える<sup>[3, 10, 11]</sup>。このように、褐炭は若い石炭であるため、揮発分が多く乾燥後の燃焼性が良いこと、および地下浅所に埋没されており、露天掘りの炭鉱（Open-cut mine）が多くコストが安いことが長所として挙げられる。一方、短所は、水分量が多く輸送効率が悪くなること、乾燥後の粉化による自然発火の危険性である。これらの欠点があるために、原褐炭・乾燥褐炭ともにほとんど輸出されておらず、主に現地の発電所で乾燥せずに直焚きされている。しかし、水分の蒸発に潜熱が必要であり、燃料燃焼時の発熱量が低下し、発電所の熱効率が低下する。ロイヤン炭については、水分が 62.5mass%、灰分が 1.5mass%であり、残りの石炭分が 36mass%で、その発熱量が 27 MJ/kg と報告されている<sup>[13]</sup>。この場合、1 kg のロイヤン炭から得られる発熱量は 9.7 MJ となる。さらに、水分の顕熱（0.2 MJ/kg、30-

100°C の温度上昇を仮定) および潜熱 (1.4 MJ/kg) に必要な熱量 1.6 MJ を差し引くと<sup>[14]</sup>, 実際には 8.1 MJ の発熱量しか得られないことになる. 水分の蒸発のために石炭分の発熱量の 16% が失われてしまうため, 高効率な乾燥装置の開発が求められている.

Fig. 1-5 にオーストラリア, ヴィクトリア州のロイヤン炭鉱 (露天掘り) とロイヤン A 発電所の写真を示す. 炭鉱で採掘された褐炭はベルトコンベヤで運ばれ, 発電所で直焚きされている. この発電所の熱効率 (送電端) は 28% と低い値となっており, 改善への強い要望が出されている<sup>[15]</sup>.

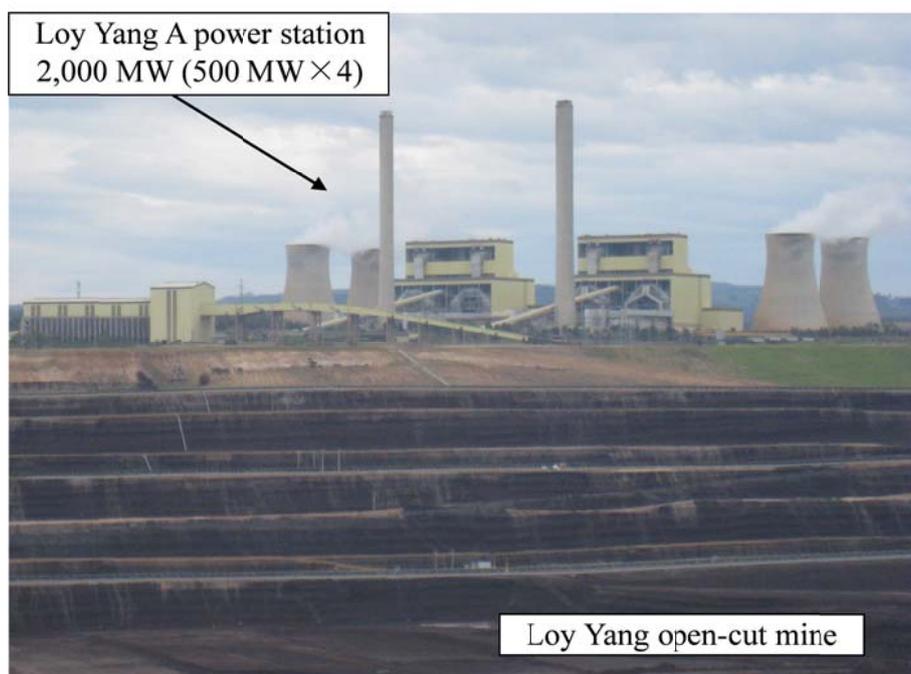


Fig. 1-5 Loy Yang open-cut mine and power station.

## 1.3 褐炭の乾燥技術

### 1.3.1 現行の乾燥プロセス

褐炭を商用的に利用するために、数種類の乾燥プロセスが開発されている<sup>[13, 16]</sup>。褐炭からの水分除去は、蒸発と非蒸発の2つの方法に大別できる。蒸発による水分除去には加熱が必要となる。しかし、褐炭は乾燥の過程で組織が非常に脆くなり、砕けて粉化する傾向があり、その結果比表面積が増大して自然発火しやすくなる。このため、最も効果的かつ経済的な方法である熱空気による直接乾燥が困難である。したがって、熱源と褐炭が直接接触しない間接加熱方式を用いるか、窒素、炭酸ガスもしくは水蒸気などの不活性ガスによる直接加熱方式を用いることになる。

開発が進められてきた主な乾燥方法を Fig. 1-6 に示す<sup>[17]</sup>。

蒸発を伴う乾燥方法のうち、直接加熱方式の代表的なものとして、フラッシュミル乾燥が挙げられる。現在、この乾燥プロセスは、在来型の褐炭焼き発電所で使用されている。原炭は、上方の石炭バンカーから、ボイラの燃焼ガス（酸素濃度 5% 未満の排ガス、約 1000°C）が流れている加熱ダクト内へと送りこまれる。加熱ガスダクト系統中に設置されたビーターホイールミルでは、褐炭を微粒化するとともに乾燥を行い、微粒化した乾燥炭がボイラへ送られて燃焼される。これまで、安価な方法として広く使われてきたが、水分の蒸発に伴う潜熱が燃焼時のロスとなることから、熱効率が低くなり、CO<sub>2</sub> が多く発生するという課題がある。Fig. 1-7 にポーランドのベルハトフ炭鉱と発電所の写真を示す。この発電所はヨーロッパの褐炭焼き発電所の中で最大の規模である。褐炭中の水が全て水蒸気としてボイラの煙突から排気されるため、発電所の上空で水蒸気が凝縮し、大きな雲ができています。

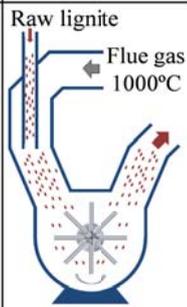
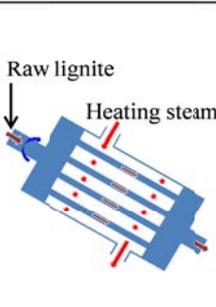
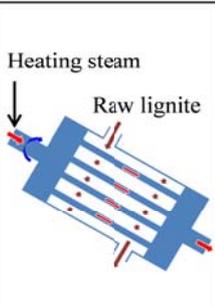
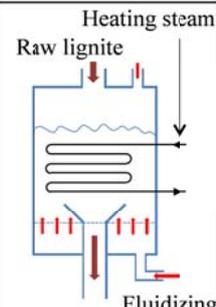
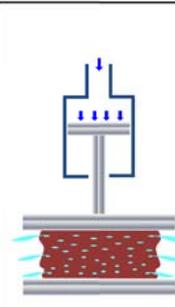
Drying Process	Evaporative				Non-evaporative
	Direct drying	Indirect drying			
Dryer	Flash mil Drying	Rotary coal-in-tube dryer	Rotary steam-in-Tube dryer	Steam fluidized bed dryer	Mechanical thermal expression
Scheme					

Fig. 1-6 Major drying processes of lignite.

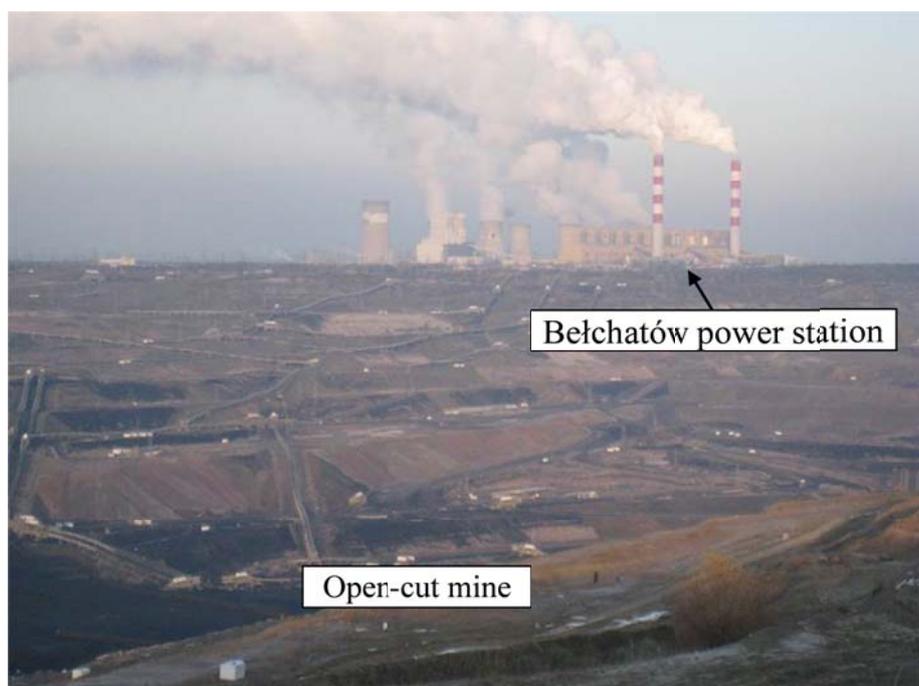


Fig. 1-7 Bełchatów power station and open-cut mine.

間接加熱方式では、管群の入った回転式ドラムで乾燥する方式が挙げられる (Fig. 1-6)。管内に褐炭を入れる方式と、水蒸気を入れる方式がある。加熱側媒体と褐炭が直接接触しないため、安全性の点では優れているが、熱交

換器を通しての加熱となるため、伝熱が律速となり熱伝達率をどこまで上げられるかが課題である。管内に褐炭を入れる方式は、粉炭を固めて作るブリケットの製造に用いられている<sup>[13]</sup>。ブリケットは、自然発火が起きないように、細孔を潰し、表面が固化されており、火力発電所の起動用の燃料やキャンプ用燃料として使用されている。Fig. 1-8 にブリケットの写真を示す。この乾燥プロセスでは、フラッシュミル乾燥と同様に、水分の蒸発に伴う潜熱が加熱時のロスとなることから、CO<sub>2</sub> が多く発生するという課題がある。



Fig. 1-8 Briquette made from Victorian lignite.

間接加熱方式のもう一つの乾燥プロセスとして、過熱水蒸気流動層が挙げられる。この方式では、水蒸気により褐炭粒子を流動させ、この流動層内に設置された加熱管から熱を供給する方式である。この方式では、水分の蒸発に伴う潜熱を回収する方式が考案されており、今後最も有望な乾燥プロセスだと考えられている<sup>[18]</sup>。次章で詳しく述べる。

蒸発を伴わない方式としては、機械熱的圧縮法（MTE）が挙げられる。褐炭を 150 - 220°C の高温でプレス（2 - 12 MPa）を行うものであり、水の蒸発潜熱がロスにならないため、熱効率の向上が見込まれる。技術的には可能性が示されているが、商用化の計画はない<sup>[13]</sup>。

上述した乾燥方法以外にも、種々の乾燥プロセスが提案されている。蒸発を伴う方式では、「天ぷら」の原理で、油中で褐炭の水分を蒸発させ、改質褐炭 (Upgraded Brown Coal: UBC) を得る方法があり、インドネシアにて 600 t/d の実証プラントが運転された<sup>[19]</sup>。また、太陽光による乾燥も試みられているが、商用化に至っていない<sup>[13]</sup>。マイクロ波による乾燥も試みられているが、火災による問題があり、現在行われていない<sup>[16]</sup>。

蒸発を伴わない脱水方法として、DME (ジメチルエーテル) を溶剤として用いる方法が提案されている<sup>[20]</sup>。この方法では、液化 DME に褐炭の水分を溶出させ、その後減圧することにより、DME のみを分離回収し、再利用する。

### 1.3.2 過熱水蒸気を用いた乾燥プロセス

過熱水蒸気は酸化剤としては弱いため、乾燥中の褐炭の自然発火を抑制することができる。また、そもそも褐炭の乾燥時に発生するのも水蒸気であるため、乾燥前後で雰囲気が変わらず、他のガスとの混合がない。さらに、流動層を用いることにより、大容量化に対応できる<sup>[17]</sup>。したがって、過熱水蒸気を用いた乾燥プロセスは、高効率で大容量の褐炭を乾燥する現実的な方法である。

これに加え、100°C 付近で相変化を起こすため、蒸発および凝縮の過程で潜熱を利用できれば、熱交換器をコンパクトに設計できる。しかし、安全かつコンパクトな熱交換器で褐炭を乾燥したとしても、蒸発した水分が水蒸気として系外に排出される限り、熱損失を伴う。この課題を解決するために、Fig. 1-9 に示す“自己熱再生乾燥方式”が考案されている<sup>[17,21]</sup>。この方法では、褐炭が乾燥する際に発生する水蒸気に加え、流動化のための水蒸気が流動層から排出されるが、これらの水蒸気を圧縮機で圧縮する。圧力の上昇に伴い、飽和温度も上昇するため、100°C を超える温度で凝縮が起こる。この水蒸気を、層内に設置された加熱管に導入し、熱交換により潜熱を回収する。

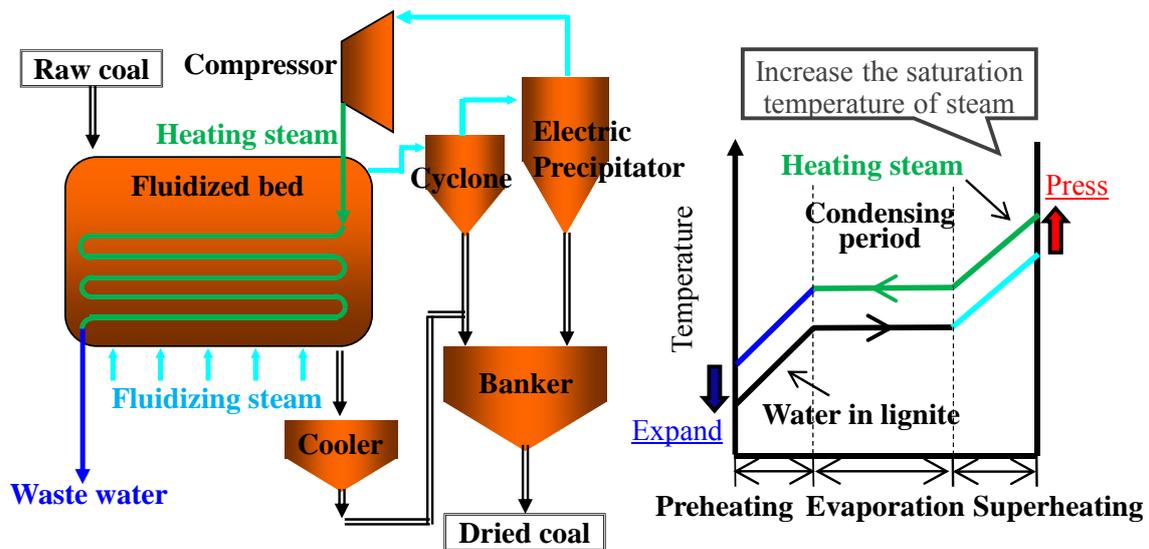


Fig. 1-9 Schematic configuration of a self-heat recuperation system with steam fluidized bed dryer.

オーストラリアは日本の石炭の最大の輸入国であり<sup>[1]</sup>，その石炭資源の約半分は褐炭である (Fig. 1-3)．その主な産地であるヴィクトリア州では，水分量が 60mass% 以上と極めて高い褐炭が産出される (Fig. 1-4)．高揮発分，低灰分，低灰融点，低硫黄分といった性質のため，燃焼性やガス化特性に優れており，安価に乾燥さえできれば，ガス化による高効率複合発電や燃料改質への適用が可能になると考えられている<sup>[13,17]</sup>．自己熱再生方式の過熱水蒸気流動層とガス化複合発電 (IGCC: Integrated coal Gasification Combined Cycle) を組み合わせた概略図を Fig. 1-10 に示す<sup>[17,21]</sup>．この組み合わせにより，発電所の熱効率を現状の 28% から 42% 程度まで，飛躍的に向上させることができると思われている<sup>[17,21]</sup>．

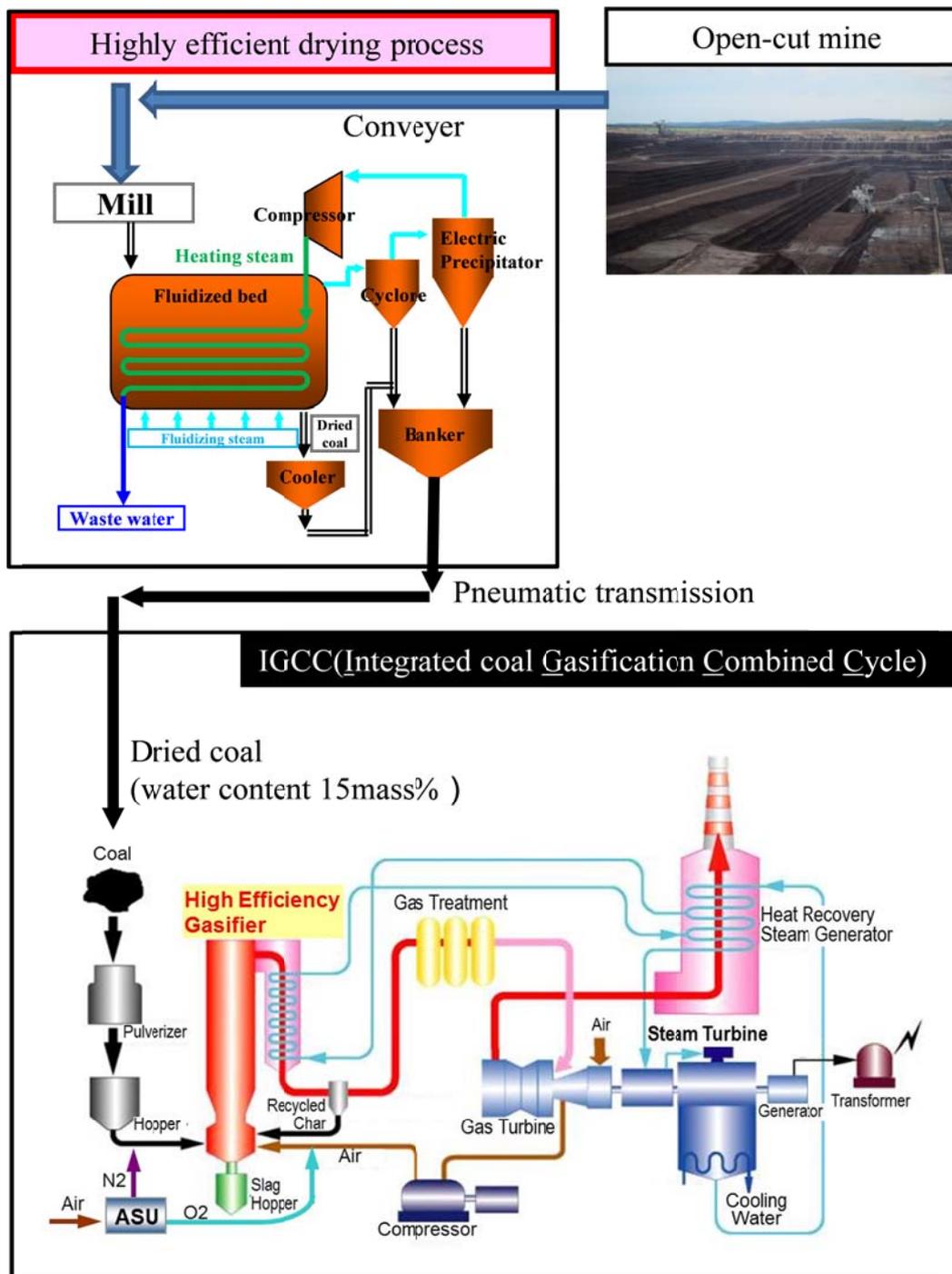


Fig. 1-10 Schematic system of lignite dryer and IGCC.

過熱水蒸気を用いた流動層は、主にドイツで技術開発が進められてきた<sup>[18, 22, 23]</sup>。この取り組みは WTA（排熱を利用した流動層乾燥，ドイツ語の ”Wirbelschicht-Trocknung mit interner Abwärmenutzung” の略称）と名付け

られている。これまでに 210 t/h の大型の試験機が建設され、運転データが得られている。この取り組みの中で、供給する褐炭の粒径を小さくすると、流動層内の熱伝達率が上がることが報告されており、コンパクト化（設備費の低減）を指向し、小粒径の褐炭が供給されている。このため、取り組みの初期は最大粒径 6 mm であったが、近年は 1 mm を目指している。粒径を小さくすると、流動化蒸気の流量も減らすことができるため、蒸気を送気するブロワの動力低減につながり、熱効率が向上すると報告されている。

オーストラリア、ヴィクトリア州においても、発電所の起動用燃料を作るため、45 t/h（原炭ベース）の過熱水蒸気を用いた流動層乾燥装置が建設され、運転された実績がある<sup>[24]</sup>。その後、割安な天然ガスが供給されるようになり、このパイロットプラントは停止されている<sup>[16]</sup>。

近年、ドイツにおいて、加圧した過熱水蒸気流動層の開発が行われており、10 t/h（原炭ベース）のパイロットプラントが建設されている<sup>[25]</sup>。

### 1.3.3 過去に提案された褐炭単一粒子の乾燥モデル

乾燥装置を開発するためには、褐炭の乾燥特性を知ることが必要である。また、粒径分布を有する褐炭粒子を装置内で乾燥する際に、シミュレーションによって反応を予測するためには、単一粒子の乾燥モデルが必要となる。

過去に提案された褐炭単一粒子の乾燥モデルを Table. 1-3 に示す。褐炭の空気乾燥については、Zhang と You が試験を行い、その結果に基づいた乾燥モデルを提案している<sup>[26]</sup>。しかし、過熱水蒸気乾燥については実験結果に基づいた乾燥モデルが提案されていない。Chen らは、褐炭単一粒子の乾燥モデルを提案しているが、セラミック球と水滴の実験結果に基づいたものであった<sup>[27]</sup>。また、Looi らは、加圧した過熱水蒸気による実験結果を報告したが、提案された乾燥モデルは褐炭内部における水分の移動を考慮していないため、モデルをもとに計算された乾燥速度は実験値と一致しなかった<sup>[28]</sup>。Looi らの実験方法では、褐炭粒子の温度計測と重量計測を別の粒子で行っていたため、温度と重量の関係について信頼性が低い。さらに、既往の

研究では、粒径 10 mm 以上の褐炭粒子についてのみ実験結果が報告されているが、実際の乾燥装置では、10 mm 未満の粒径を扱うことが考えられるため、小粒径における信頼性のある実験結果が必要である。Fig. 1-11 に Zhang と You に報告された実験結果と計算結果の一例を示す。また、Looi らが報告した実験結果の一例を Fig. 1-12 に示す。

Table. 1-3 Reported studies on drying models of single lignite particles.

	Zhang and You <sup>[26]</sup>	Chen et al. <sup>[27]</sup>	Looi et al. <sup>[28]</sup>
Drying fluid	Air	Superheated steam, air	Superheated steam
Velocity (m/s)	0.7, 1.5		1.4- 3.5
Temperature (°C)	100, 140		155- 197
Pressure (bar)	1		1.7- 8.4
Sample	Chinese lignite	-	Australian lignite, ceramic sphere
Particle diameter (mm)	20, 30		10- 14
Experimental values used to develop a numerical model	Experimental results	Experiments with water droplets and ceramic spheres	Experimental results (model unable to predict the drying rate.)

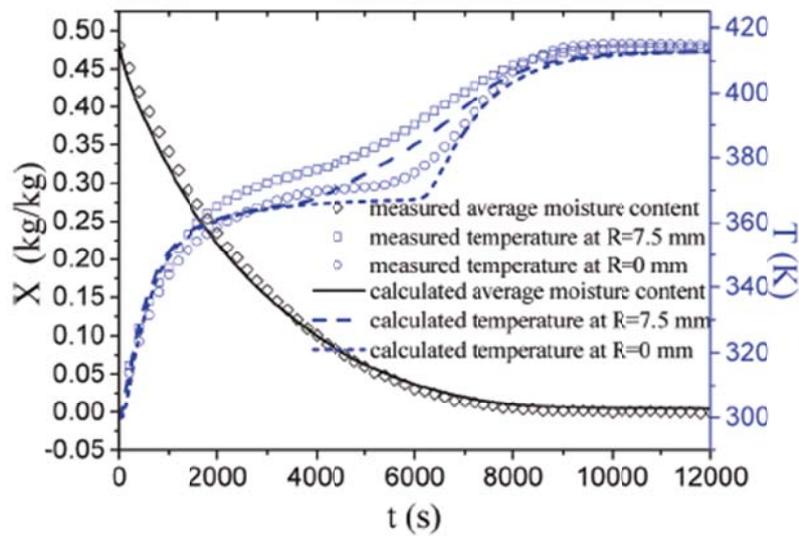


Fig. 1-11 Experimental and simulation results of drying a single lignite particle with hot air reported by Zhang and You<sup>[26]</sup>. (Sample: Huolinhe lignite, particle size: 30 mm, heating temperature: 140°C, air velocity: 1.5 m/s.)

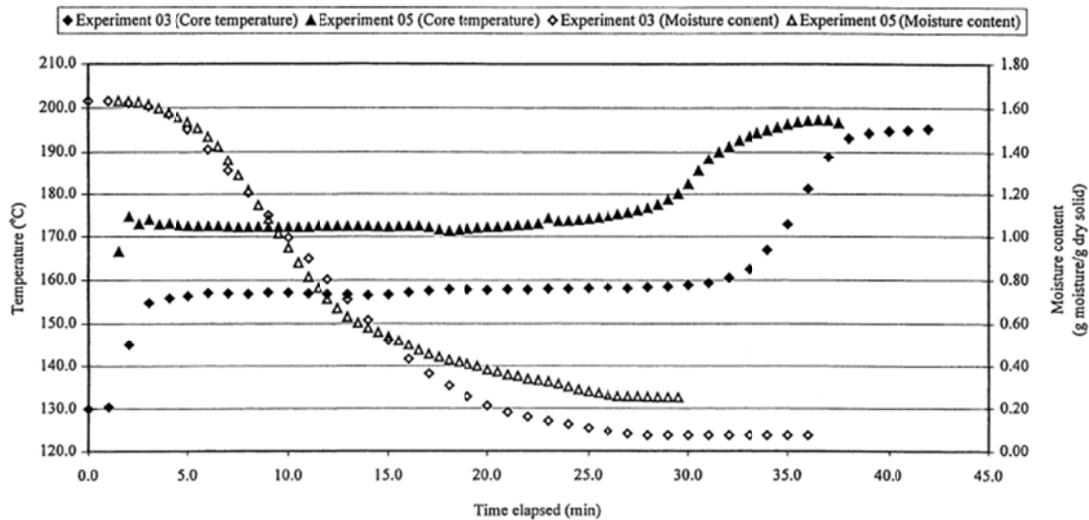


Fig. 1-12 Experimental results of drying single lignite particles with superheated steam under pressure reported by Looi et al.<sup>[28]</sup>. (Sample: Victorian lignite, particle size: 12 mm, heating temperature: 195, 197°C (Experiment 03, 05), steam velocity: 1.5, 1.4 m/s (Experiment 03, 05), steam pressure: 5.8, 8.4 bar (Experiment 03, 05).)

## 1.4 本研究の目的

本研究では、オーストラリア褐炭を対象とし、過熱水蒸気を用いた褐炭単一粒子の乾燥について、信頼性のある実験結果を得ることを第一の目的とした。球形に加工した褐炭粒子に対して過熱水蒸気乾燥試験を行い、褐炭表面と内部の温度変化、および重量変化を測定した。また、これまで報告されていない粒径 10 mm 未満の単一粒子の乾燥特性を調査した。

さらに、褐炭単一粒子の乾燥をシミュレートするための数値計算モデルを実験結果にもとづいて作成し、粒度分布を有する褐炭粒子群への応用も可能とすることを目指した。安価で高効率な乾燥装置の開発に、本研究の成果が寄与できると考えられる。

## 1.5 本論文の構成

以下に、本論文の構成を示す。

第2章では、粒径 30 mm の褐炭粒子について過熱水蒸気乾燥実験を行った手法および結果を示す。この実験結果に基づいて数値計算モデルの作成を行った。

第3章では、より粒径の小さい褐炭粒子（直径 10, 5, 2.5 mm）について実施した実験の結果を示し、前章の結果と併せて乾燥速度の粒径依存性を検討した。この粒径依存性を基に、第2章で作成した数値計算モデルを小さい粒子にも適用できるよう修正を行った。

第4章では、粒度分布を有する褐炭粒子の集団を仮定し、第3章で作成した数値計算モデルを用いて乾燥速度の計算を行い、単一粒子の乾燥速度と比較を行うとともに、乾燥時間を低減するための定量的な提案を行った。

第5章では、本研究の成果の総括を行う。

## 参考文献

- [1] 日本エネルギー経済研究所 計量分析ユニット: EDMC/エネルギー・経済統計要覧 2013, 財団法人 省エネルギーセンター (2013).
- [2] 今村栄一, 長野浩司: ”日本の発電技術のライフサイクル CO<sub>2</sub> 排出量評価－2009 年に得られたデータを用いた再推計－”, 電中研報告 Y09027 (2010).
- [3] 西山孝: 地球エネルギー論, オーム社 (2001).
- [4] 西山孝: 地球環境・資源エネルギー論, 丸善出版 (2011).
- [5] International Energy Agency: CO<sub>2</sub> Emissions from Fuel Combustion 2012 Highlights (2012).
- [6] A. W. Clarke and J. A. Trinnaman: 2010 Survey of Energy Resources, World Energy Council, United Kingdom (2010).
- [7] 日本工業標準調査会: JIS M1012, 炭量計算基準 (1978).
- [8] International Energy Agency: Energy Balances of non-OECD Countries 2011, (2011).
- [9] U. S. Energy Information Administration: Annual Energy Outlook 2013 (2013).
- [10] 佐々木昭, 石原舜三, 関陽太郎: 岩波講座地球科学 14, 岩波書店 (1979).
- [11] 山内敬明: 石炭の起源, 日本エネルギー学会誌 89 (2010) 1019-1024.
- [12] 相原安津夫: 石炭ものがたり, 青木書店 (1987).
- [13] R. A. Durie: The Science of Victorian Brown Coal, Sydney, Butterworth Heinemann (1991).
- [14] W. Wagner and A. Pruß: “The IAPWS Formulation 1995 for the Thermodynamic Properties of Ordinary Water Substance for General and Scientific Use”, J. Phys. Chem. Ref. Data 31 (2002) 387-535.

- [15] A. Chaffee: “オーストラリアにおける褐炭の有効利用技術”, 季報 エネルギー総合工学 Vol. 27, No. 4 (2005).
- [16] C-Z. Li: *Advances in the Science of Victorian Brown Coal*, UK, Elsevier (2004).
- [17] 金子祥三: “褐炭の有効利用と乾燥技術について”, 東京大学 第1回 低炭素社会技術フォーラム (2011).
- [18] S. V. Jangam, M. Karthikeyan and A. S. Mujumdar: “A Critical Assessment of Industrial Coal Drying Technologies: Role of Energy, Emissions, Risk and Sustainability”, *Drying Technology* 29 (2011) 395-407.
- [19] 木下繁, 山本誠一, 出口哲也, 重久卓夫: “600t/day プラントによる改質褐炭 (UBC) プロセスの実証”, 神戸製鋼技報 Vol. 60, No. 1 (2010) 71-75.
- [20] 神田英輝, 白井裕三, 日恵井佳子: ”液化 DME 脱水法による石炭脱水機構”, 電中研報告 M04012 (2005).
- [21] 橋本貴雄, 坂本康一, 山口啓樹, 大浦康二, 有馬謙一, 鈴木武志: “褐炭などの低品位炭を活用した IGCC の取組み”, 三菱重工技報 Vol.48 No.3 (2011) 25- 29.
- [22] J. Ewers, H J. Klutz, W. Renzenbrink, and G. Scheffknecht: “The Development of Pre- drying and BoA- Plus Technology”, *VGB Power Tech* 11/2003 (2003) 60-65.
- [23] H. J. Klutz, C. Moser, and D.Block: “WTA Fine Grain Drying- Module for Lignite-Fired Power Plants of the Future”, *VGB Power Tech* 11/2006 (2006) 2-6.
- [24] J. Schmalfeld and C. Twigger: “Erfahrungen mit dem Betrieb der Dampf-Wirbelschicht-Trocknungsanlage Loy Yang, Australien”, *VDI BERICHTE* 1280 (1996) 107-117.

- [25] O. Hoehne, S. Lechner, M. Schreber and H. J. Krautz: "Drying of lignite in a Pressurized Steam Fluidized Bed- Theory and Experiments", *Drying Technology* 28 (2010) 5-18.
- [26] K. Zhang and C. You: "Experimental and Numerical Investigation of Convective Drying of Single Coarse Lignite Particle", *Energy Fuels* 24 (2010) 6428-6436.
- [27] Z. Chen, W. Wu and P. K. Agarwal: "Steam-drying of coal. Part 1. Modeling the behavior of a single particle", *Fuel* 79 (2000) 961-973.
- [28] A. Y. Looi, K. Golonka and M. Rhodes: "Drying kinetics of single porous particles in superheated steam under pressure", *Chem. Eng.* 87 (2002) 329-338.

## 第2章 褐炭単一粒子（直径 30 mm）の乾燥速度測定と数値計算モデルの開発

### 2.1 緒言

本章では過熱水蒸気中の褐炭単一粒子の乾燥速度を測定するための装置を作製し、直径 30 mm の褐炭粒子の乾燥過程における重量および温度の変化を測定し、外観の様子を観察した。2.2 において実験方法を説明し、2.3 において結果及び考察を述べる。

さらに、実験から得られた知見をもとに褐炭の乾燥のモデル化を行った。モデル化の方法を 2.4 で説明し、計算によって再現される褐炭の乾燥挙動を 2.5 において実験結果と比較する。2.6 を本章の小括とする。

### 2.2 実験方法

#### 2.2.1 試料

試料には、オーストラリア、ヴィクトリア州産出のロイヤン炭を用いた。この褐炭の初期水分量は約 62mass% である。褐炭を球形の試料として使用するため、原炭の塊から専用工具を用い、直径 30 mm の球形に削り出した。Fig. 2-1 に球形試料の作製手順を示す。まず、原炭の塊からカッターを用いて粗い球形に整えた。その後、放電加工により正確な内径の穴が開けられた板状の専用工具を用い、その上で試料を回転させることで形状を整えた。最初は直径の大きな穴を利用し、段階的に径の小さい穴を用いて試料を成形し、最後に直径 30 mm の穴を用いて粒径 30 mm の球体を得た。実験で用いた各粒子の平均重量は 16.0 g であった。

試料表面の凹凸を観察するため、一つの球形粒子をカッターで切断し、紙やすりで処理したのち光学顕微鏡で観察した。Fig. 2-2 に示す断面写真では、へりの部分に最大で 50  $\mu\text{m}$  の凹凸が見られ、用いた球形粒子の直径は局所的に同程度の誤差を持っていると考えられる。

Fig. 2-3 に試料の写真と熱電対および吊糸の取付模式図を示す. 乾燥過程における球形試料の中心と中間点(表面と中心の間)の温度を測定するため, ドリルで試料に直径 0.3 mm の穴を開け, K 型熱電対 (クロメル, アルメルの各素線径 0.09 mm, 被覆付で 0.1 mm) を取り付けた. 試料表面に微量のシリコン樹脂を使用し, 熱電対の位置を固定した. 中心を外した位置に直径 0.5 mm のドリルで穴を開け, 吊り下げ用のポリエステル糸を貫通させた.

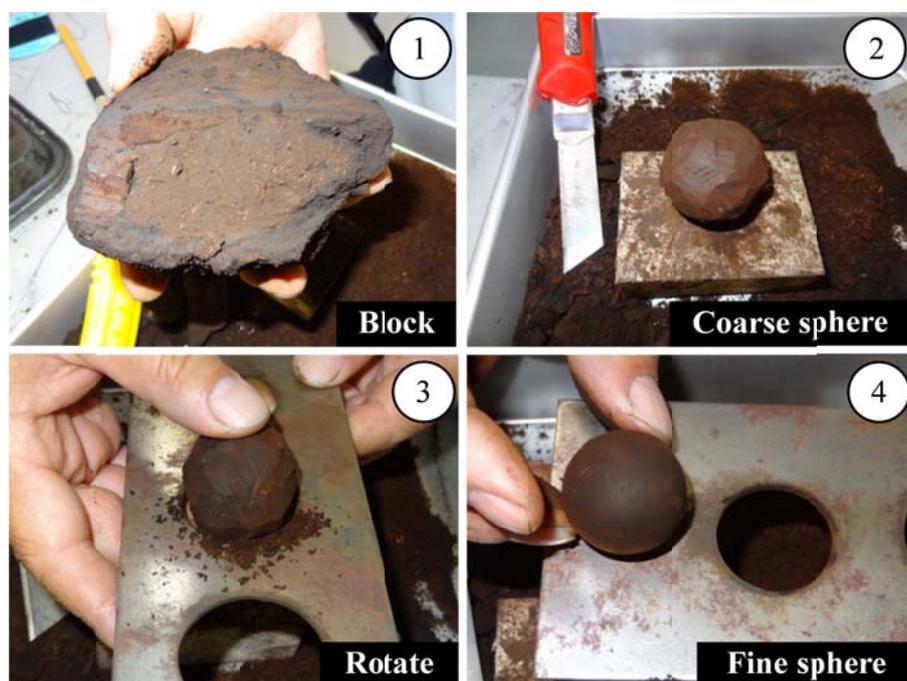


Fig. 2-1 Preparation of a spherical sample.

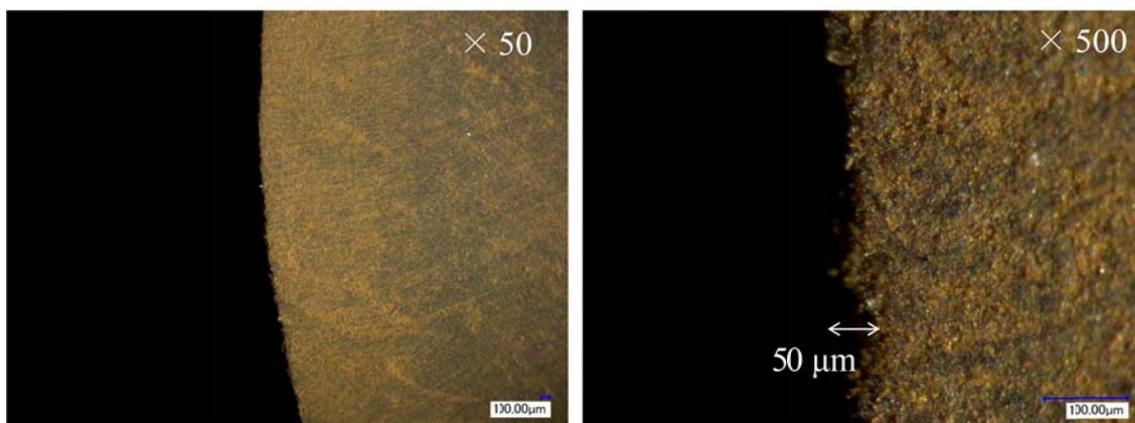


Fig. 2-2 Cross section of a spherical sample observed by optical microscope.

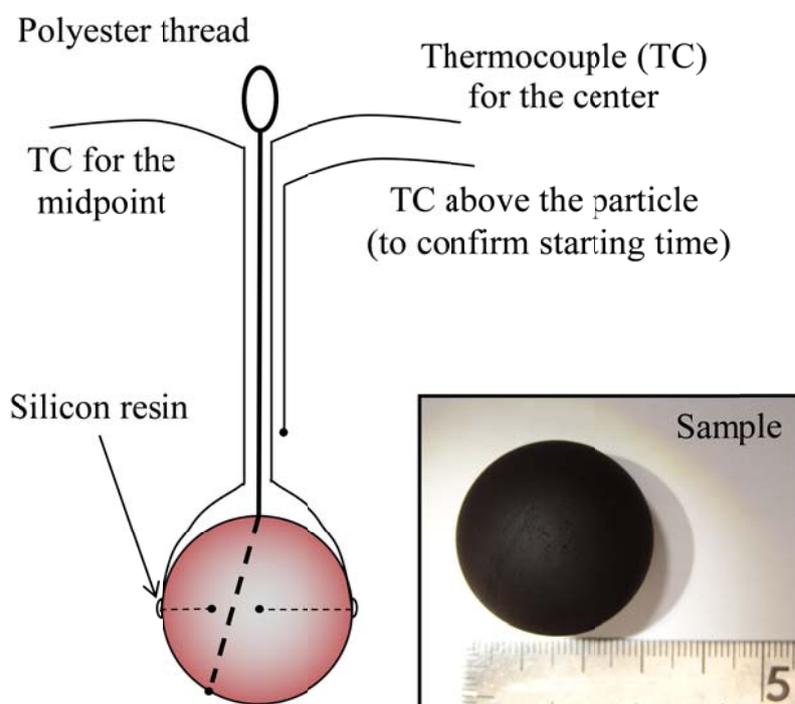


Fig. 2-3 Sample and its setting scheme.

### 2.2.2 実験装置

実験装置の模式図を Fig. 2-4 に示す. 試料の重量 ( $W$ ) は, 0.1 mg の分解能を持つ電子天秤 (HR-200, A & D Company) を用いて計測を行った. 試料は内径 133 mm, 高さ 152 mm のテストセクション中に設置した. テストセクションの温度は周辺に設置されたヒーターによって制御される. 純水は

脱気器 (DGU-20A3, Shimadzu) を通り, 給水ポンプ (LC-20AT, Shimadzu) から蒸発器に送られ, 水蒸気となる. その後, 過熱器で過熱され, テストセクション上部から導入される. テストセクション内の導入口に設置された整流板を通り, 底部から排気ファンで排出される. 水より分子量の大きい窒素および酸素を確実にテストセクションから排出するため, ダウンフローとした. テストセクション上部の吊り糸貫通部からリークする水蒸気は, 別の小型の排気ファンで排出した. テストセクションに空気が流入しないよう, 排気チャンバーの圧力を調整し, テストセクションに流入する過熱水蒸気の 5% 程度が常にリークするようにした. 電子天秤下部の吊ワイヤに沿って, アクリル管 (内径 30 mm, 長さ 300 mm) を取り付け, 電子天秤下部検出部の温度と流れを安定させるため,  $1.0 \text{ dm}^3/\text{min}$  (ANR,  $20^\circ\text{C}$ ,  $101325\text{Pa}$ ) の空気を送った. テストセクション下部に設置したテスト開始用管を上を動かすことにより, 試料をテストセクションの雰囲気から隔離することができる.

試料の温度 ( $T$ ) のうち, 中心 ( $T_{\text{center}}$ ) と中間点 ( $T_{\text{midpoint}}$ ) は上述の K 型熱電対を用いて測定した. 熱電対はデータロガー (TR-V550, Keyence) に接続され, パソコンに測定値を出力した. 熱電対およびデータロガーの測定値の校正方法を Appendix A に示す. 表面温度 ( $T_{\text{surface}}$ ) は, 検出波長域 8 - 12  $\mu\text{m}$ , 赤外ボロメータ型のサーモグラフィカメラ (R-300, NEC/Avio) を用いて測定した. サーモグラフィの光路及びテストセクションの内面は, 放射率を一定とするため, 放射率 0.94 の黒体塗料 (THI-1B, Tasco Japan) を塗布した. 覗き窓として, 厚さ 10  $\mu\text{m}$  のポリメチルペンテンフィルム (日本生活協同組合販売) を用いた. テストセクション外部からの赤外線反射を避けるため,  $10^\circ$  の傾きを付けて設置した. このフィルムの耐熱温度は  $180^\circ\text{C}$  であり, 8 - 12  $\mu\text{m}$  における平均透過率を測定したところ, 90% であった. 2.4 の実験結果に示されるように, 乾燥プロセスのある一定期間, 褐炭は  $100^\circ\text{C}$  に保持され, 最終的に過熱水蒸気の温度まで上昇した. サーモグラフィにて計測された値は, これらの二つの温度を基に, 試料の放射率とその周辺の温度が一定であると仮定し, 校正を行った.

試料の外観を観察するため、ビデオカメラ (HDR-CX170, Sony) を用いた。サーモグラフィの光路と水平方向で直角となる位置から、ガラス窓を通して観測した。

Fig. 2-4 の点線で示した内部を、ポリ塩化ビニルシートを用いて区画し、空気の流れによる重量の変動を防止した。また、静電気による重量のドリフトを防止するため、区画内部の相対湿度を 45% 以上に保持した。

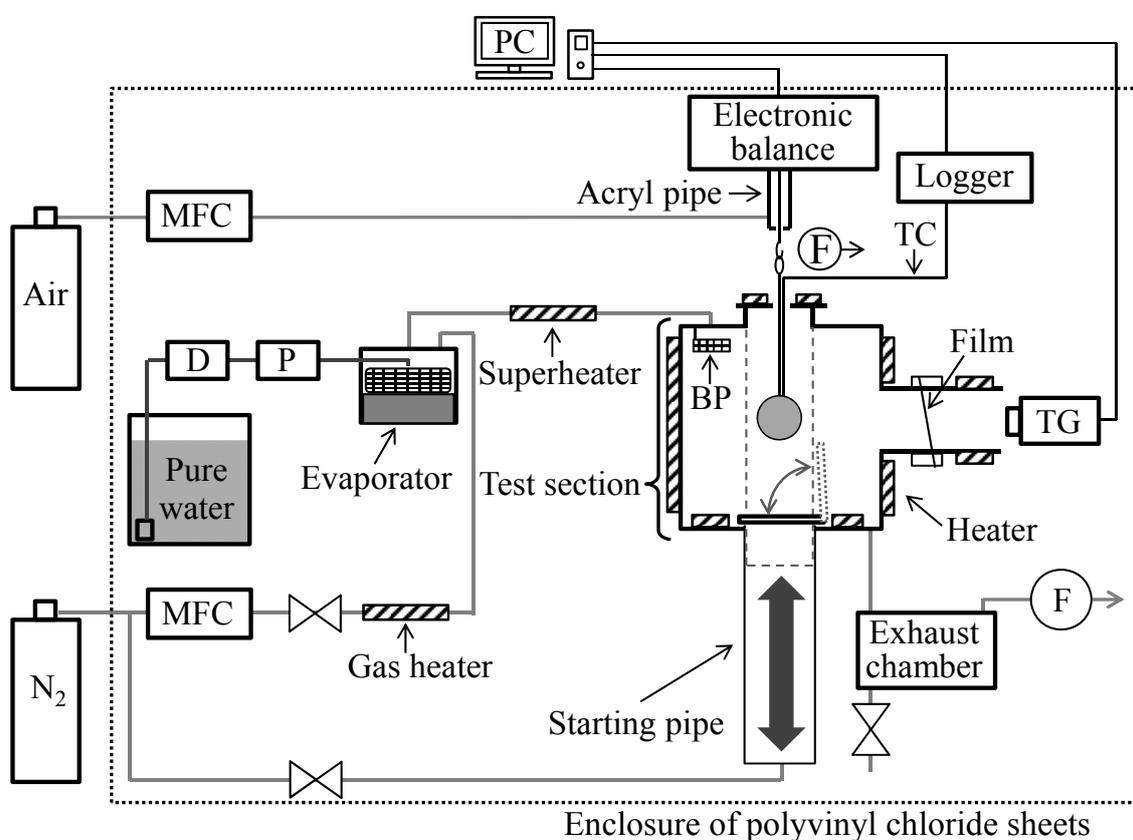


Fig. 2-4 Schematic configuration of experimental system.

MFC: Mass flow controller, D: Degasser, P: Feed pump, BP: Baffle plate, TC: Thermocouples, TG: Thermograph, F: Exhaust fan.

### 2.2.3 実験手順

ロイヤン炭の自然発火温度 (160 - 170°C)<sup>[1]</sup>を考慮し、試料は 170, 150, 130, 110°C で乾燥試験を行った (“テスト温度”と以後記載)。試料をテストセクションに設置する前に、テストセクションは窒素を流しながらテスト温度まで昇温される。昇温後、流体を窒素から過熱水蒸気に切り替える。蒸発器に供給される純水の量は 8 cm<sup>3</sup>/min であり、テストセクション断面積から計算すると、過熱水蒸気の平均流速は 0.02 m/s となる。この条件下でのレイノルズ数は約 20 であり、テストセクション内部の流れは層流となるため、精密な重量計測 (分解能 0.1 mg) が可能となる。テストセクションが安定した後、テスト開始用管が上げられ、管内の雰囲気进行测试セクションから隔離する。管内を窒素でパージし、試料が所定の位置に設置される。テスト開始用管が下げられると、試料は過熱水蒸気にさらされ、乾燥試験が開始される。試験の開始は、試料の上部に設置した熱電対 (Fig. 2-3) でも確認される。W および T は 1 秒ごとに記録された。ただし、テスト温度 110°C で行った試験については、初期の 1 時間以降は 5 秒ごとに記録を行った。乾燥の終了時間は、W の変化が 0.5 mg/min 以下になった時点とした。0.5 mg は、乾燥炭の重量に対して、0.01% 未満である。この後、流体を過熱水蒸気から窒素に切り替え、3 時間以上乾燥し、残留した水分を蒸発させた。窒素乾燥後の試料の重量を、褐炭中に含まれる乾燥炭の重量 ( $W_c$ ) と見なした (下付の“c”は coal を示す)。褐炭に含まれる合計の水分量 ( $W_w$ ) は、初期重量 ( $W_{ini}$ ) から  $W_c$  を差し引いて算出した (下付の“w”は water, “ini”は initial を示す)。試験は各テスト温度にて 3 回行われた。

### 2.2.4 収縮の評価方法

試料の収縮を評価するため、窒素乾燥後の試料の体積 ( $V$ ) を 3D スキャナ (VIVID9i, Konica Minolta) を用いて計測した。測定原理は、スリット状のレーザー光で対象をスキャン、反射光を CCD カメラで受光し、距離データを取得する三角測量光切断方式である (確度 0.1 mm)。Fig. 2-5 に 3D ス

カメラによる撮影状況を示す。球形の試料の形状を把握するため、試料の斜め上から撮影を行った。球の上半分、下半分それぞれについて、試料台に垂直な軸を中心に  $45^\circ$  回転させた映像（上 8 枚，下 8 枚）を撮影し，解析像の体積は，解析プログラムを用いて算出した。

補助実験のため，3 本の棒状試料を作製した。初期長さ ( $l_{ini}$ ) は  $36 - 50$  mm ，平均径は  $2.7 - 5.5$  mm であった。Fig. 2-6 に実寸大の試料の概略図を示す。別の電子天秤中に試料を置き，室温にて窒素を供給し乾燥した。所定の重量に到達するごとに，マイクロメータで長さを計測した。重量が減少しなくなった後，窒素  $105^\circ\text{C}$  で乾燥試験を行い，乾燥後の重量と長さを計測した。

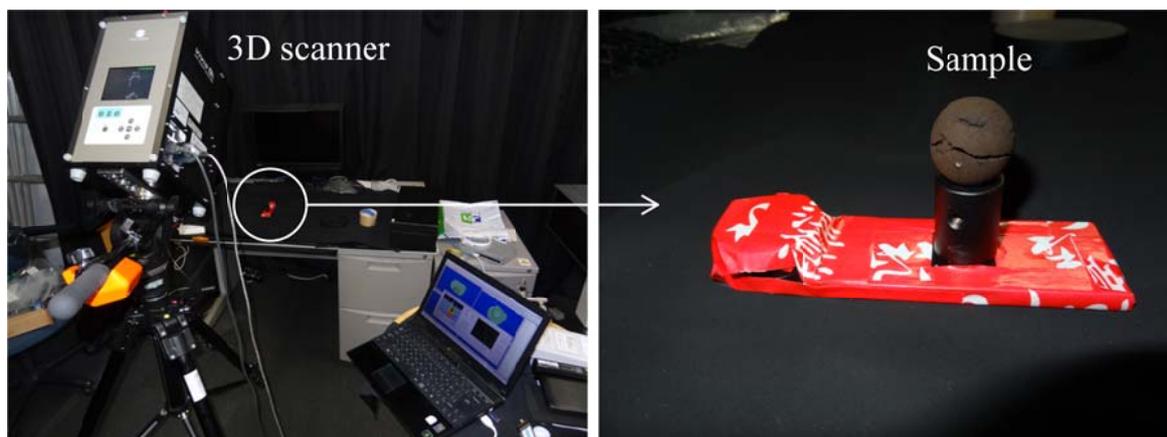


Fig. 2-5 3D scanner used in this study.

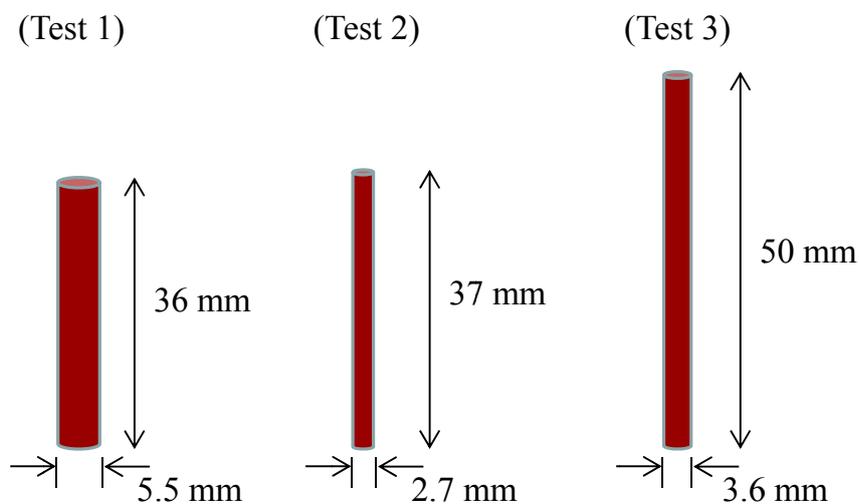


Fig. 2-6 Schematics of rod-shaped samples.

## 2.3 実験結果と考察

### 2.3.1 乾燥過程における温度、重量および試料外観の変化

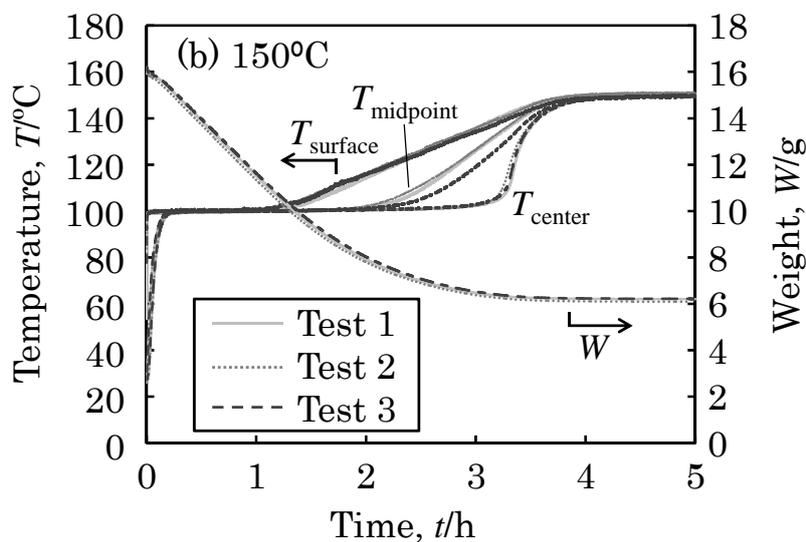
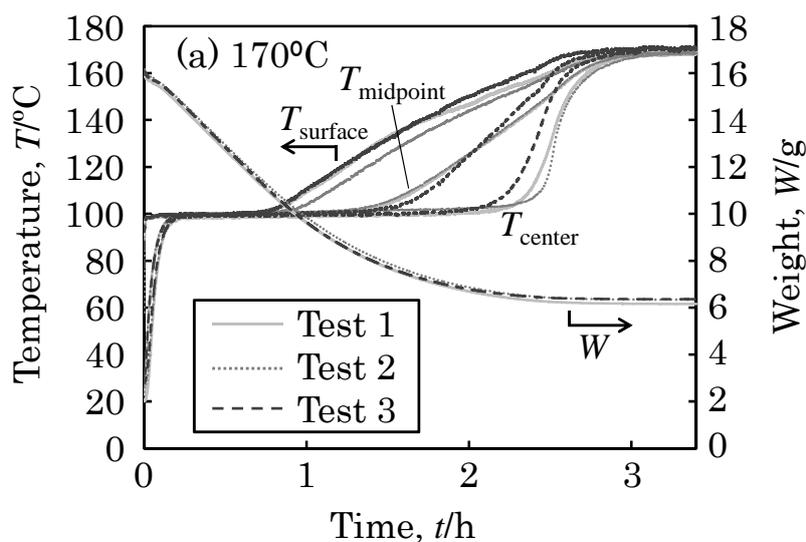
Fig. 2-7 に過熱水蒸気乾燥における試料の温度および重量変化を示す。また、ビデオカメラで撮影した試料外観を Fig. 2-8 に示す。Fig. 2-8 中の  $X$  は含水率を示しており、水分重量を乾燥炭重量で除した数値として定義する ( $X = W_w/W_c$ )。2.3.3 で後述するが、初期含水率の平均値は 1.63 であった。

試験開始後、褐炭粒子表面にて過熱水蒸気の滴状凝縮が起こり (Fig. 2-8)、試料温度が上昇した (Fig. 2-7)。Fig. 2-9 にテスト温度 170°C で行った試験初期の重量および温度の変化を示す。試験開始後、試料の重量は一時的に約 0.16 g 増加した。水の凝縮と滴下による重量の増加と急激な減少が、10 回以上繰り返し確認された。水滴の落下はビデオカメラでも観察された。試料重量が初期重量 (テスト 1 - 3 それぞれで 15.86, 16.03, 15.93 g) 以下となった時点でもこれらの増減が確認されており、褐炭粒子表面の水滴は、水蒸気の凝縮によるものだけではないことが推察される。したがって、水滴の一部は、温度上昇によって膨張した褐炭粒子中の水分が、粒子表面に染み出たものと考えられる。

試験開始後、温度は表面・中間点・中心の順に 100°C へ上昇したのち、一定期間、試料全体が 100°C となった。100°C に保持されている期間、重量は一定の速度で減少し、表面にクラックが発生した。その後、表面・中間点・中心の順に 100°C から上昇を開始し、順にテスト温度へ到達した。粒子表面が乾燥していくプロセスは、Fig. 2-8 においてクラックの発生および拡がりから確認できる。テスト温度が高いほど多くのクラックが見られた。乾燥プロセスはそれぞれのテスト温度 (170 - 110°C) にて、3, 4.5, 7.5, 21 h で完了した。乾燥の最終段階では試料の収縮が進み、一時的に拡がっていたクラックが閉じた (Fig. 2-8)。

試料温度の変化は全ての試験で同様の傾向を示したが、100°C からテスト温度に向けて温度上昇が開始する時間にはばらつきが見られた。一例として、

テスト温度 170°C の試験結果において、テスト 3 ではテスト 2 より 10 min (表面) および 12 min (中心) 早く温度上昇が開始している。この原因として、クラックの発生場所が試料によって異なっていたため、クラックと温度検出位置の相対的な位置関係が影響した可能性が考えられる。



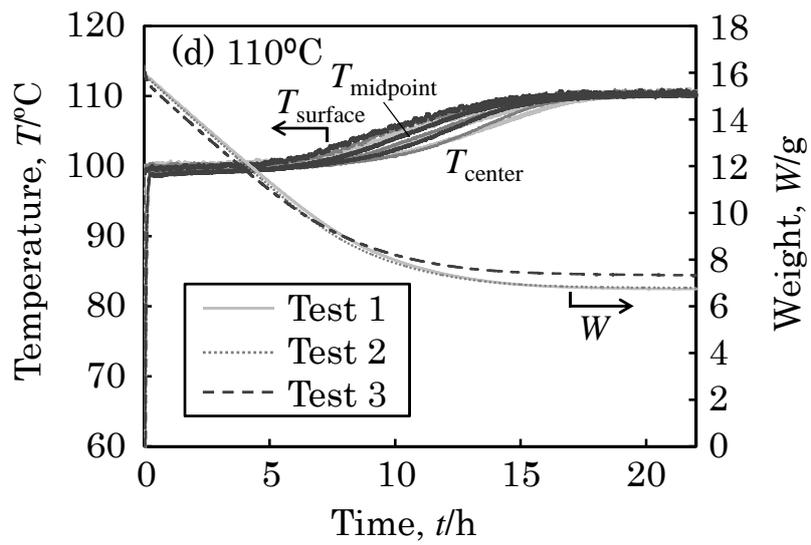
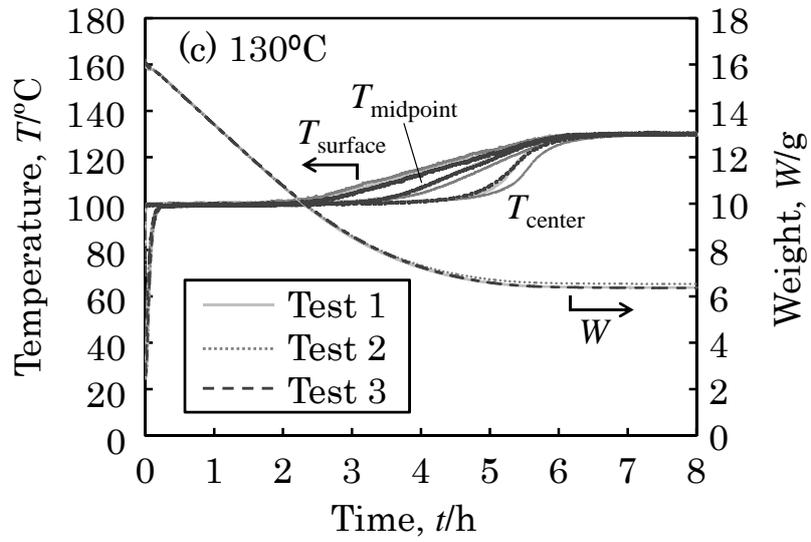
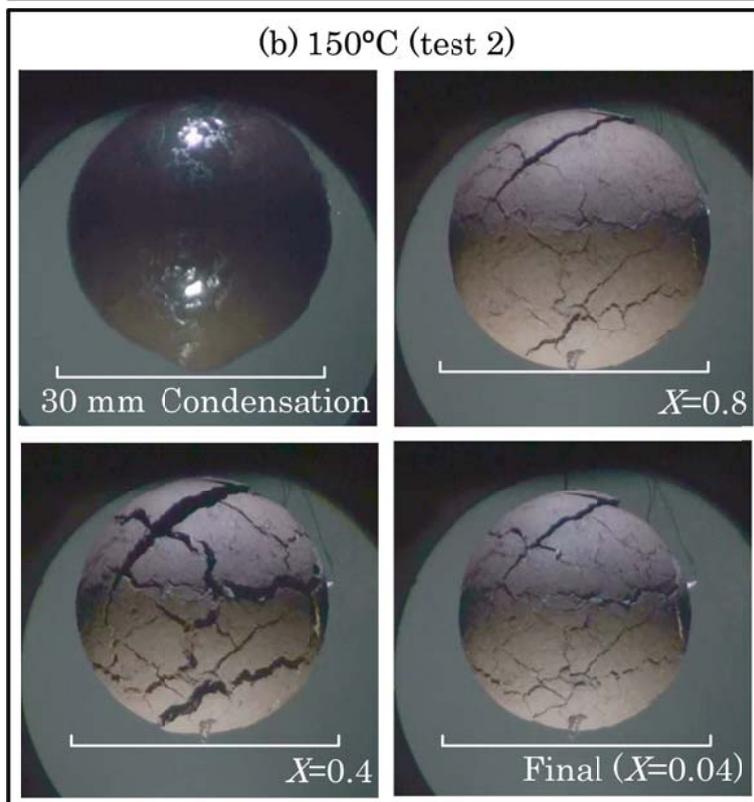
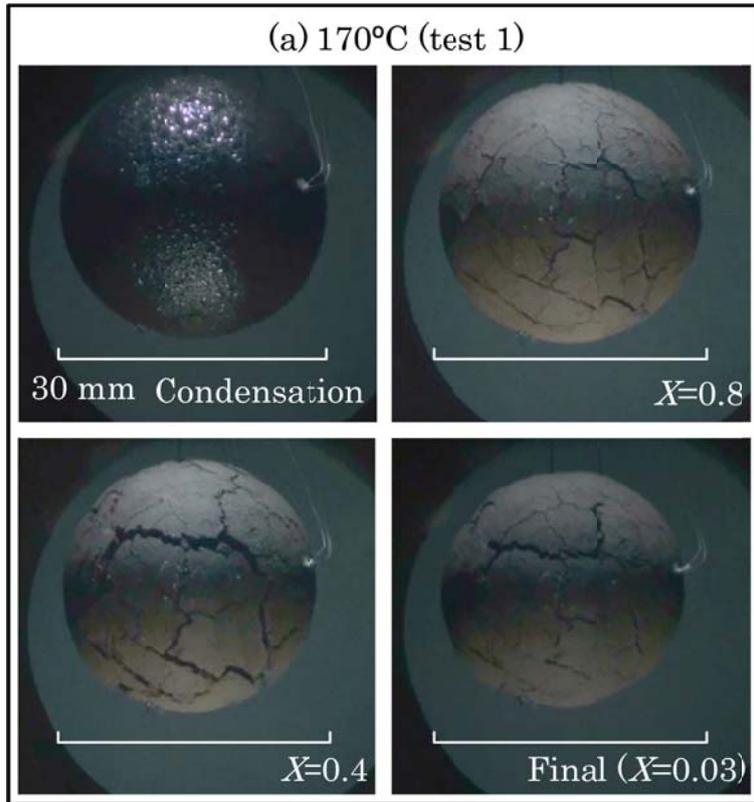


Fig. 2-7 Temperatures and weights at test temperatures of (a) 170, (b) 150, (c) 130, and (d) 110°C.



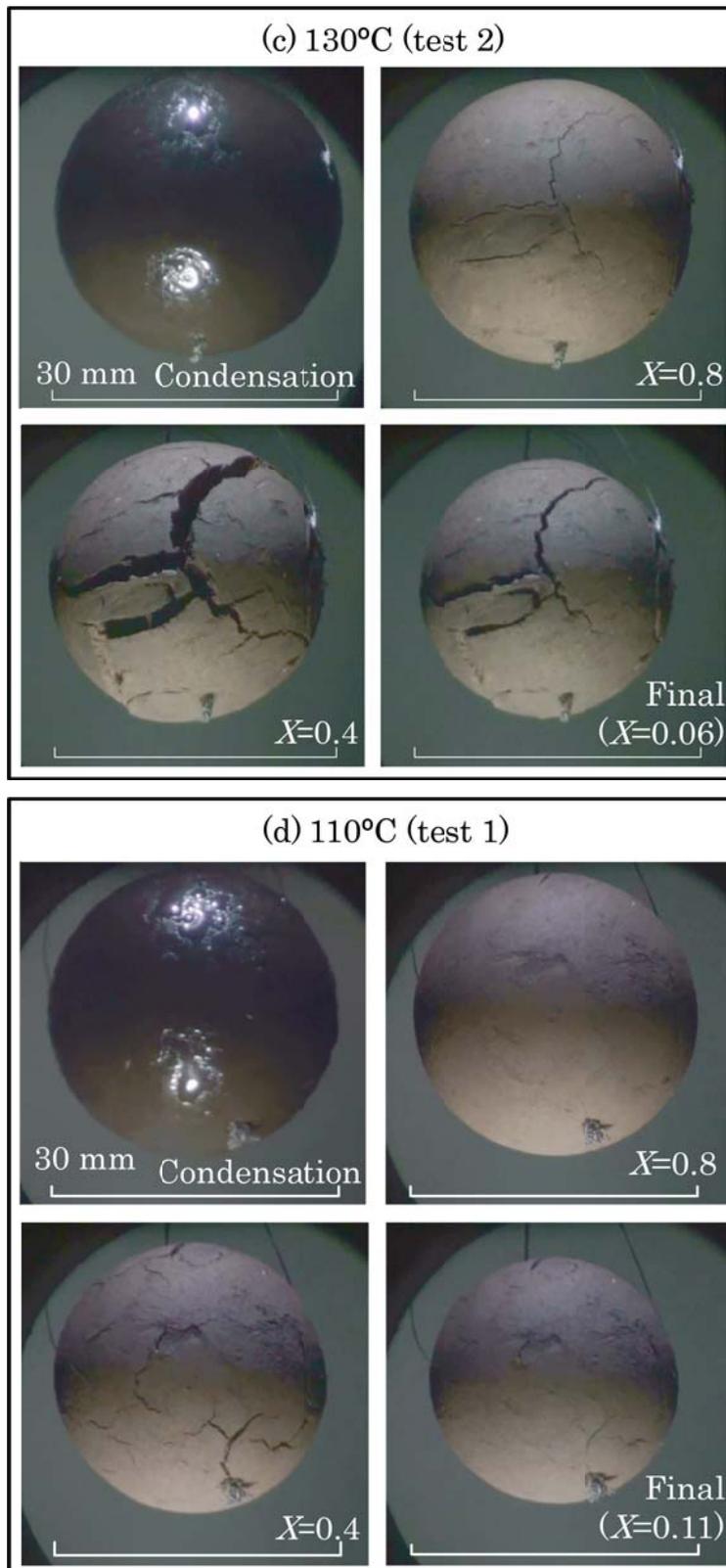


Fig. 2-8 Video images at test temperatures of (a) 170, (b) 150, (c) 130, and (d) 110°C.

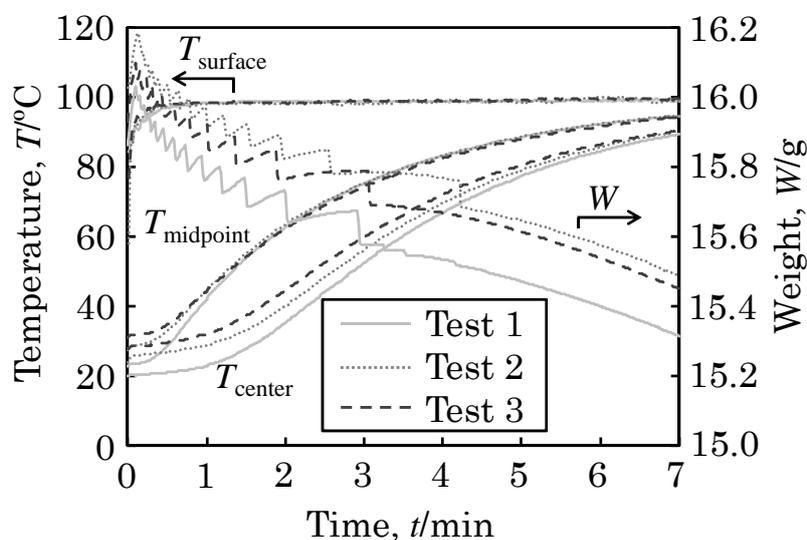
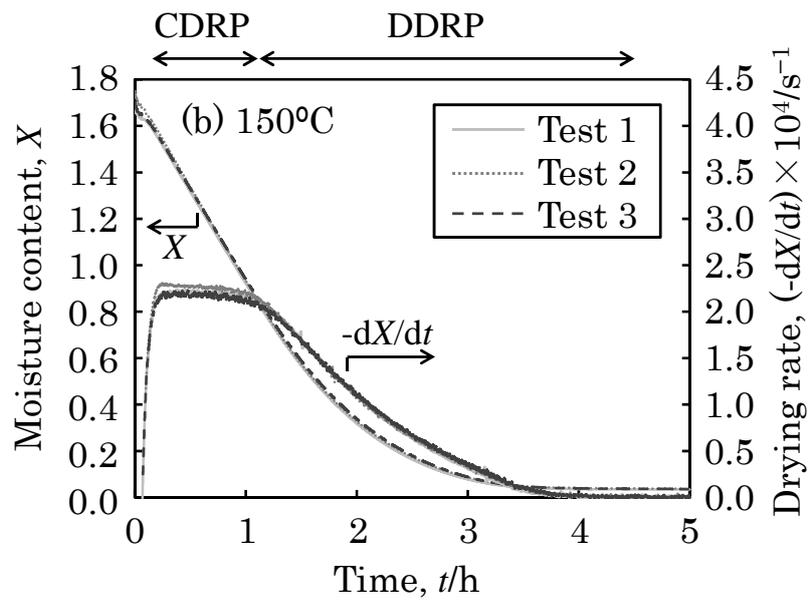
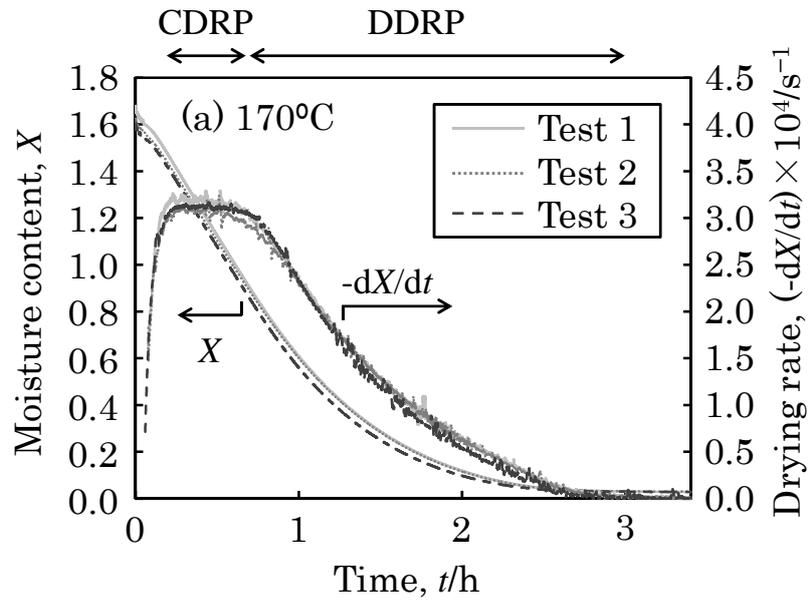


Fig. 2-9 Temperatures and weights during the initial period (170 °C).

### 2.3.2 含水率および乾燥速度

Fig. 2-10 に含水率 ( $X$ ) および乾燥速度 ( $-dX/dt$ ) の変化を示す. 乾燥速度はグラフを滑らかにするため, 60 秒間の移動平均値を記載した. 全ての試験において, 乾燥速度が一定となる恒率乾燥期間 (CDRP: Constant Drying Rate Period) と, その後速度が減じる減率乾燥期間 (DDRP: Decreasing Drying Rate Period) が見られた.

恒率乾燥期間中は試料全体の温度が 100°C になっていた. 試料表面の温度が 100°C であるため粒子外部からの熱伝達量が一定となり, 試料内部の温度も 100°C であるため, 熱が水分の蒸発のみに使われたと考えれば, この間に乾燥速度が一定となることは妥当だと考えられる. また, 表面の温度が 100°C に保たれていたことから, 褐炭粒子内部の自由水が表面へ移動していたと考えられる. 表面の自由水が完全に蒸発すると, 表面温度が 100°C から上昇するとともに, 乾燥速度は減少する. 含水率の低下とともに, 乾燥速度は減少を続け, 最終的に乾燥が終了する. 以上の実験結果は, 典型的な過熱水蒸気による乾燥特性を示している<sup>[2]</sup>.



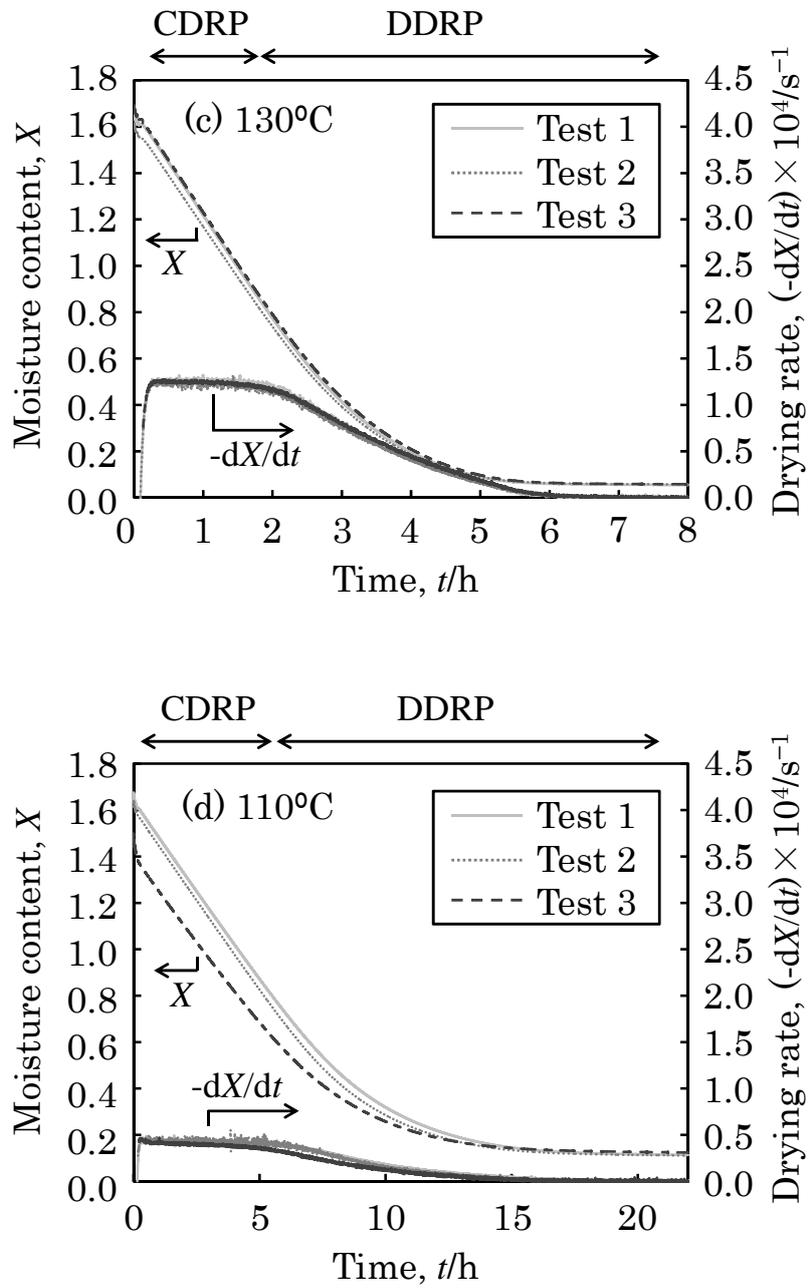


Fig. 2-10 Moisture contents and drying rates at test temperatures of (a) 170, (b) 150, (c) 130, and (d) 110°C.

### 2.3.3 初期水分、残留水分および収縮の評価

Fig. 2-11 に、上記試験に用いた試料の初期水分、残留水分 ( $W_w/(W_c+W_w)\times 100$ ) および窒素乾燥後の体積収縮率 ( $(1-V/V_{ini})\times 100$ ) を示す。初期水分の平均値は 61.9mass% (含水率 1.63) であった。ただし、テスト間で少しばらつきが見られた。テスト温度 110°C のテスト 3 (59.6mass%) では、テスト 1, 2 (62.2, 61.9mass%) と比較すると 2mass% 以上低い値となっており、これにより、重量 (Fig. 2-7 (d)) と含水率 (Fig. 2-10 (d)) の変化にばらつきが出たと考えられる。

残留水分の各テスト温度 (110 - 170°C) における平均値は、10.9, 5.4, 3.6, 2.9mass% であった。テスト温度が高いほど、残留水分は少なくなった。100°C を超えても蒸発しない残留水分は、褐炭中で石炭に吸着している結合水だと考えられる。

体積収縮率は、テスト温度が高いほど小さい値となった。試料外観の写真 (Fig. 2-8) で見られるように、テスト温度が高いほど多くのクラックが発生したため、均一な収縮が妨げられ、窒素乾燥後の褐炭中に空隙ができたと考えられる。

高温で乾燥するほど褐炭が不均一に収縮することは、3D 映像からも確認された。テスト温度 170°C と 110°C で乾燥した試料を 3D スキャナで撮影した映像を Fig. 2-12 に示す。それぞれの試料の映像は上半分 (8 枚)、下半分 (8 枚) の合計 16 枚を合成したものとなっており (2.2.4), Fig. 2-12 中では元の画像を区別するための色分けがされている。テスト温度 110°C の試料の映像では、大きなクラックが見られず、球形をしている。一方、170°C の試料では、完全に閉じなかったクラックが見られ、形状の歪みも確認できる。

棒状の試料を室温で乾燥し、測定した線収縮率と含水率の関係を Fig. 2-13 に示す。棒状試料の初期水分はテスト 1 - 3 でそれぞれ 62.1, 61.1, 62.3mass% であり、過熱水蒸気乾燥に用いた試料と近い値であることを確認した。線収縮率は、試料間のばらつきは小さく、同様の傾向を示した。105°C の窒素雰囲気乾燥後の平均値は、16% であった。体積収縮率に換算すると 41%

となり、この値はテスト温度 110°C で乾燥させた球形試料の値 (40%, Fig. 2-11) とほぼ一致した。クラックがほとんど発生しなかったテスト温度 110°C の試料では、棒状試料と同等の均一な収縮が行われたと考えられる。体積収縮率の値 41% から、蒸発した水の体積に対する体積減少分を算出すると 59% となり、同じヴィクトリア州産出のヤルーン炭の報告値 (約 60%) と一致した<sup>[3]</sup>。

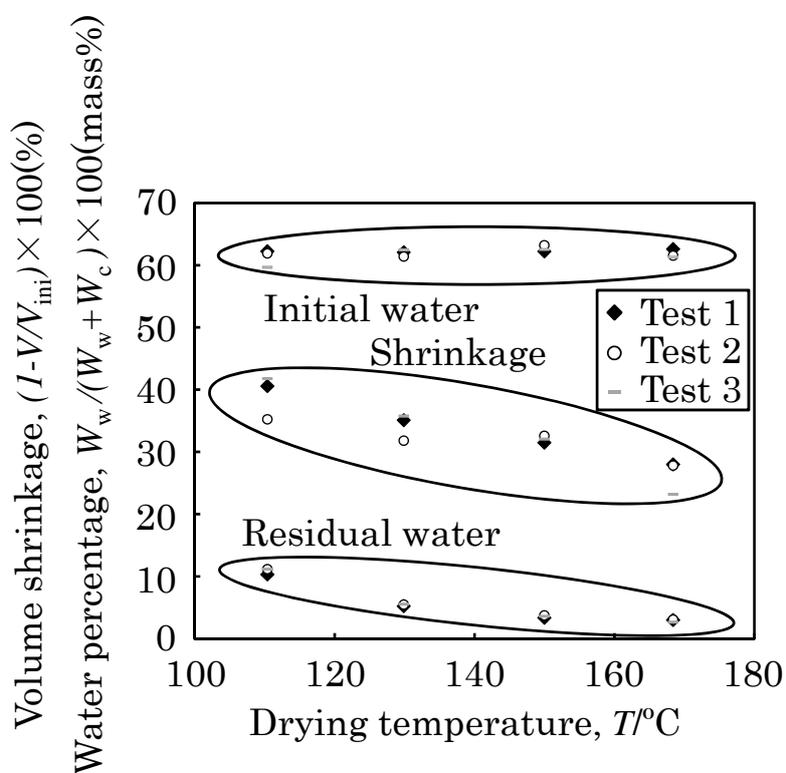


Fig. 2-11 Initial and residual water percentages and volume shrinkages.

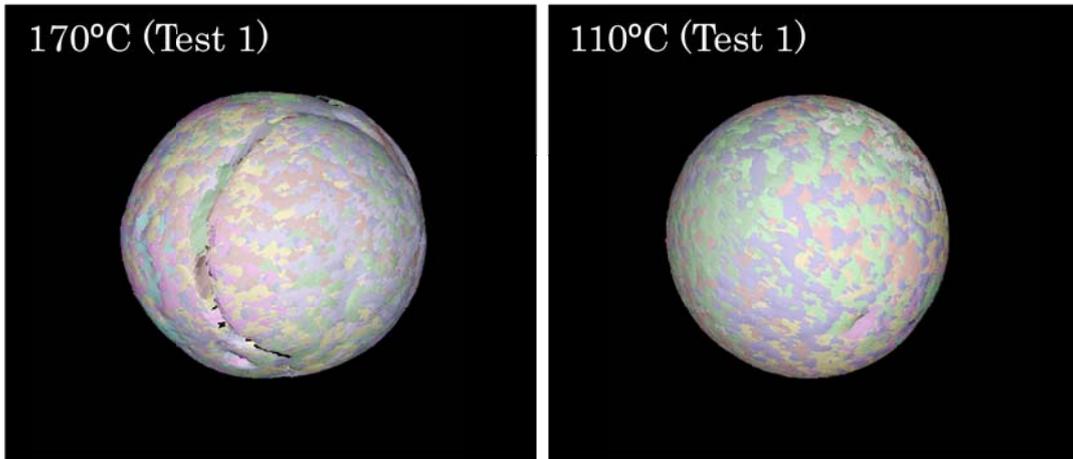


Fig. 2-12 Spherical samples observed by 3D scanner after drying at (a) 170 and (b) 110°C.

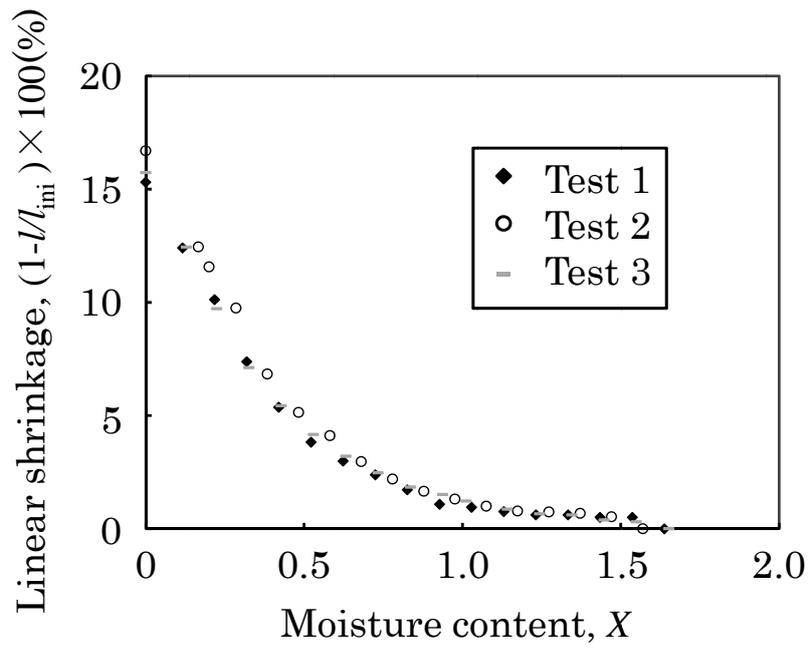


Fig. 2-13 Linear shrinkages measured with rod-shaped samples.

## 2.4 乾燥の数値計算モデルの開発

### 2.4.1 物理モデル

褐炭粒子の乾燥の数値計算モデルは、Fig. 2-14 に示した物理モデルに基づき、以下の仮定を用いて作成した。実験結果から、大気圧の過熱水蒸気雰囲気下では、100°C より高い温度で蒸発する水が褐炭粒子内部に存在することが確認された。本モデルでは、100°C で蒸発する水を“自由水”、100°C より高い温度で蒸発する水を“結合水”として定義する。まず、初期状態の褐炭は、乾燥炭、自由水および結合水から構成される (Fig. 2-14 (a))。実験結果より、初期水分は 62mass% (含水率 1.63) とした。ロイヤン炭の結合水の量は含水率 0.56 と報告されており<sup>[4, 5]</sup>、含水率範囲 1.63 - 0.56 を自由水とし、0.56 以下を結合水とした。初期状態における褐炭粒子中の乾燥炭、水、水蒸気の体積分率 ( $\phi_c$ ,  $\phi_w$ ,  $\phi_s$ ) は、それぞれ 0.3, 0.7, 0 とした。乾燥プロセスにおいて、自由水は 100°C で蒸発し、蒸発した空間は水蒸気に置き換わる (Fig. 2-14 (b))。また、自由水は内部から表面へ移動し、表面に自由水が存在する期間、恒率乾燥期間が継続する。表面の自由水が完全に蒸発した後、表面の温度が 100°C から上昇するとともに、結合水の蒸発が始まり、減率乾燥期間となる。

Fig. 2-15 に計算モデルを示す。褐炭粒子の等方性を仮定し、一次元モデルを用いた。直径 30 mm の球形粒子を 61 の同一中心の殻に分割した。それぞれの層の初期厚さは、表面と中心の層が 0.125 mm、それ以外の層が 0.25 mm とした。全 61 層に、表面層 (1) から中心層 (61) まで各層に番号を付けた。第  $n$  層の外半径は  $r_n$  で表される。各層内での重量と温度は均一とし、第  $n$  層の温度  $T_n$  は径方向の中点を代表位置とする。ただし、表面層 (第 1 層) と中心層 (第 61 層) では、それぞれ表面と中心を代表位置とする。第  $n$  層の代表位置から隣の層との距離を  $d_n$  とする。

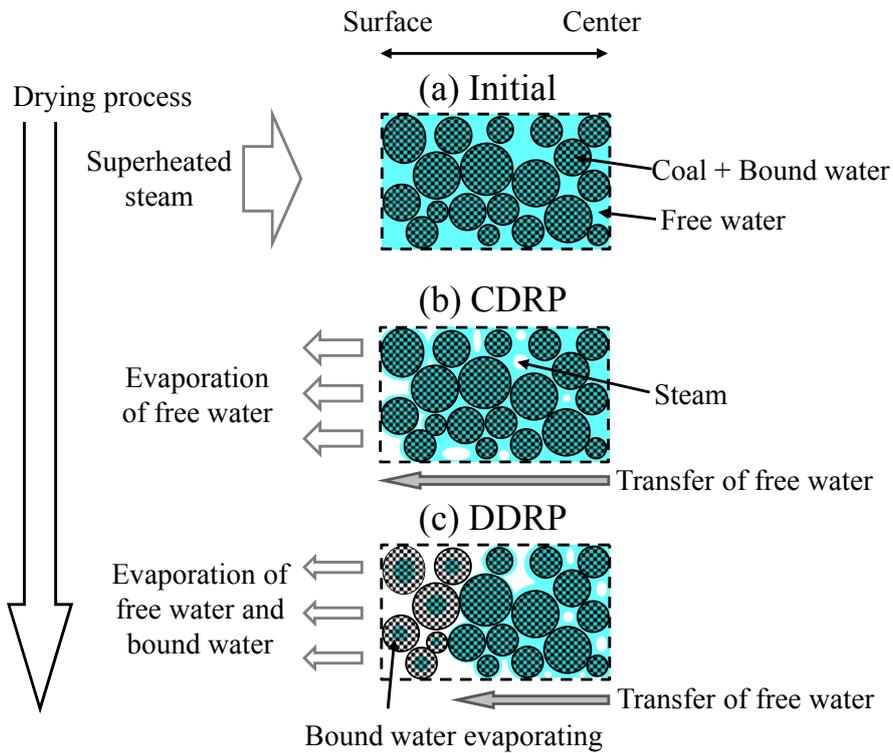


Fig. 2-14 Schematic illustration of drying process. (a) Initial state, (b) Constant drying rate period, and (c) Decreasing drying rate period.

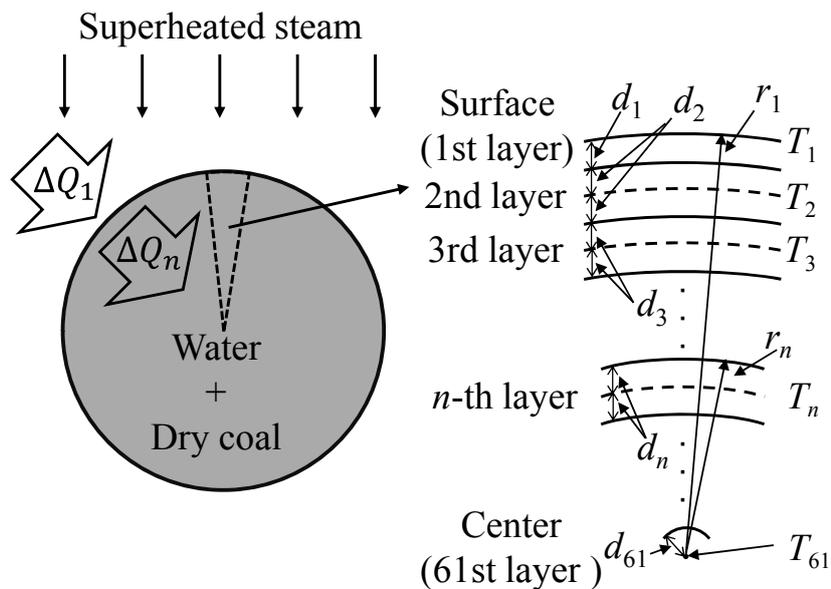


Fig. 2-15 Simulation model.

各層における熱の伝達と消費，水の蒸発と移動，および収縮は以降の章で説明する．計算に用いたパラメータを Table 2-1 に示す．Table 2-1 中のパラメータの算出方法は Appendix B に示す．

Table 2-1 Input parameters for simulation.

Parameter	Correlation/value( $T$ :Temperature( $^{\circ}\text{C}$ ))	Source(related chapter)	
<u>Properties of lignite (raw coal)</u>			
$X_{\text{ini}}$	Initial moisture content	1.63 kg-H <sub>2</sub> O/kg-dry coal	This study (2.4.1)
$\phi_{\text{c,ini}}$	Initial volume fraction of coal	0.30	This study (2.4.1)
$\phi_{\text{w,ini}}$	Initial volume fraction of water	0.70	This study (2.4.1)
$\phi_{\text{s,ini}}$	Initial volume fraction of steam	0	This study (2.4.1)
$T_{\text{n,ini}}$	Initial temperature	30 $^{\circ}\text{C}$	This study (2.4.2)
<u>Properties of coal (dry coal)</u>			
$\rho_{\text{c}}$	Density	1434 kg/m <sup>3</sup>	This study (2.4.7)
$C_{\text{c}}$	Specific heat	$1.28 \times 10^3 \text{ J}/(\text{kg}\cdot\text{K})$	This study (2.4.4)
$k_{\text{c}}$	Thermal conductivity	0.20 W/(m·K)	This study (2.4.3)
<u>Properties of water (free water and bound water)</u>			
$\rho_{\text{w}}$	Density	$5.12 \times 10^{-6} T^3 - 3.99 \times 10^{-3} T^2 - 7.95 \times 10^{-2} T + 1001 \text{ kg}/\text{m}^3$	10 (2.4.6)
$C_{\text{w}}$	Specific heat	$1.85 \times 10^{-5} T^3 + 6.80 \times 10^{-3} T^2 - 7.00 \times 10^{-1} T + 4198 \text{ J}/(\text{kg}\cdot\text{K})$	10 (2.4.4)
$k_{\text{w}}$	Thermal conductivity	$-8.71 \times 10^{-6} T^2 - 2.01 \times 10^{-3} T + 0.562 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ , for $T < 100$	16 (2.4.3)
		$-5.29 \times 10^{-6} T^2 - 1.44 \times 10^{-3} T + 0.586 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ , for $T > 100$	16 (2.4.3)
<u>Properties of steam</u>			
$k_{\text{a}}$	Thermal conductivity	$-1.16 \times 10^{-7} T_{\text{a}}^2 + 5.17 \times 10^{-5} T_{\text{a}} + 0.0184 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$	16 (2.4.2)
$k_{\text{s}}$	Thermal conductivity	$-1.16 \times 10^{-7} T^2 + 5.17 \times 10^{-5} T + 0.0184 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$	16 (2.4.3)
$\nu_{\text{s}}$	Kinetic viscosity	$-2.04 \times 10^{-10} T^2 + 8.21 \times 10^{-8} T + 1.06 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$	16 (2.4.3)
$\alpha_{\text{s}}$	Thermal diffusivity	$2.48 \times 10^{-10} T^2 + 8.47 \times 10^{-8} T + 9.77 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$	16 (2.4.3)
<u>Parameters for heat input</u>			
$h_{\text{cond}}$	Heat transfer coefficient by condensation	1040W/(m <sup>2</sup> ·K)	This study (2.4.2)
$e_{\text{r}}$	Relative emissivity	0.887	This study (2.4.2)
$\sigma$	Stefan-Boltzmann constant	$5.67 \times 10^{-8} \text{ W}/(\text{m}^2\cdot\text{K}^4)$	(2.4.2)
$Pr$	Prandtl number	$\nu_{\text{s}}/\alpha_{\text{s}}$	(2.4.2)
$Gr$	Grashof number	$9.81/(273.15 + T_{\text{a}}) \times (T_{\text{a}} - T_{\text{l}}) \times 8r_{\text{l}}^3/\nu_{\text{s}}^2$	(2.4.2)
$Ra$	Rayleigh number	$Gr \times Pr$	(2.4.2)
$C_{\text{T}}(Pr)$	Coefficient for calculating convective heat transfer	$3/4 \times \{Pr/(2.4 + 4.9\sqrt{Pr} + 5Pr)\}^{1/4}$	6(2.4.2)
$m$	Coefficient for calculating convective heat transfer	$1/4 + 1/(4 + 8.2Ra^{0.095})$	6(2.4.2)
$T_{\text{a}}$	Test temperature	170, 150, 130, 110 $^{\circ}\text{C}$	This study (2.4.2)
<u>Assumptions of drying process</u>			
$L$	Latent heat of free water	$2.256 \times 10^6 \text{ J}/\text{kg}$	9 (2.4.4)
$\Delta H_{\text{evap}}$	Enthalpy change of bound water evaporation	$2.932 \times 10^6 - 6.76 \times 10^5 \exp(-0.077(T - 100)) \text{ J}/\text{kg}$	9, 10 (2.4.4)
$X_{\text{eq}}$	Equilibrium moisture content	$7.06 \times 10^{-1}/(T - 98.6) + 6.23 \times 10^{-3}$ , for $100 \leq T \leq 110$ $-7.43 \times 10^{-7} T^3 + 3.49 \times 10^{-4} T^2 - 5.50 \times 10^{-2} T + 2.93$ , for $T > 110$	4, 5, This study (2.4.4)
$K$	Apparent transfer coefficient of free water	$3.0 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$	This study (2.4.7)
$l-l_{\text{ini}}$	Linear shrinkage	$-0.269(V_{\text{w}}/V_{\text{w,ini}})^3 + 0.655(V_{\text{w}}/V_{\text{w,ini}})^2 - 0.547 \times (V_{\text{w}}/V_{\text{w,ini}}) + 0.162$	This study (2.4.8)
<u>Simulation conditions</u>			
$\Delta t$	Time step	0.001 s	This study (2.4.2)

## 2.4.2 粒子表面への入熱

褐炭の初期温度は 30°C とした . 表面層 ( 第 1 層 ) の温度が 100°C 未満の時 , 第 1 層への入熱量 (  $\Delta Q_1$  ) は式 ( 2-1 ) で表される .

$$\Delta Q_1 = \Delta Q_{\text{cond}} = h_{\text{cond}} \cdot 4\pi r_1^2 (100 - T_1) \cdot \Delta t, \text{ for } T_1 < 100 \quad (2-1)$$

$h_{\text{cond}}$  は凝縮熱伝達率 ,  $r_1$  は粒子の外半径 (  $R$  ) と同等であり , 時間刻み  $\Delta t$  は 0.001 s とした .

表面層が 100°C に到達すると , 表面に凝縮した水と内部から染み出た水が蒸発してなくなるまで , 表面温度は 100°C で保持されることとした . このため ,  $\Delta Q_1$  は内部への熱移動量である  $\Delta Q_2$  ( 2.4.3 で定義 ) と等しくなる .

$$\Delta Q_1 = \Delta Q_2, \text{ for } T_1 = 100 \text{ and } M_{\text{surf}} > 0 \quad (2-2)$$

$M_{\text{surf}}$  は表面に凝縮および染み出た水の合計重量である ( 2.4.6 で定義 ) .

表面の水が蒸発すると , 表面層への熱伝達は対流と輻射により行われると仮定し , 式 ( 2-3 ) で表される .

$$\Delta Q_1 = \Delta Q_{\text{conv}} + \Delta Q_{\text{rad}}, \text{ for } T_1 \geq 100 \text{ and } M_{\text{surf}} = 0 \quad (2-3)$$

$$\Delta Q_{\text{conv}} = h_{\text{conv}} \cdot 4\pi r_1^2 (T_a - T_1) \cdot \Delta t \quad (2-4)$$

$$\Delta Q_{\text{rad}} = e_r \cdot \sigma \cdot 4\pi r_1^2 ((T_a + 273.15)^4 - (T_1 + 273.15)^4) \cdot \Delta t \quad (2-5)$$

$h_{\text{conv}}$  は対流熱伝達率 ,  $T_a$  は過熱水蒸気の温度 ( テスト温度 ) ,  $e_r$  はテストセクション内部と褐炭粒子表面の放射率を 0.94 で一定と仮定した際の相対放射率 ( 0.887 ) ,  $\sigma$  はステファン・ボルツマン定数である . テストセクション内での流速が小さく , レイノルズ数の値も小さかったため , 層流と自然対流を仮定し , 対流熱伝達率には以下の式を用いた<sup>[6]</sup> .

$$h_{\text{conv}} = Nu \frac{k_a}{2r_1} \quad (2-6)$$

$$Nu = 2 + 0.760 C_T (Pr) Ra^m \quad (2-7)$$

$Nu$  はヌッセルト数,  $k_a$  は過熱水蒸気の熱伝導率,  $Pr$  はプラントル数,  $C_T$  はプラントル数の関数,  $Ra$  はレイリー数,  $m$  はレイリー数の関数である (Table 2-1) .

### 2.4.3 粒子内部の熱移動

外側の層から第  $n$  層への入熱 ( $\Delta Q_n$ ) は式 (2-8) で表される .

$$\Delta Q_n = k_{n-1,n} / (d_{n-1} + d_n) \cdot 4\pi r_n^2 (T_{n-1} - T_n) \cdot \Delta t, \text{ for } 2 \leq n \leq 61 \quad (2-8)$$

$k_{n-1,n}$  は隣り合う層の間の熱伝導率であり, 式 (2-9) で表される .

$$k_{n-1,n} = (d_{n-1} + d_n) / \left( \frac{d_{n-1}}{k_{n-1}} + \frac{d_n}{k_n} \right), \text{ for } 2 \leq n \leq 61 \quad (2-9)$$

$$k_n = \varphi_w k_w + \varphi_c k_c + \varphi_s k_s \quad (2-10)$$

$$\varphi_w + \varphi_c + \varphi_s = 1 \quad (2-11)$$

$k_n$  は第  $n$  層の熱伝導率であり, 式 (2-10) を用いて, 水, 乾燥炭, 水蒸気の体積分率と熱伝導率から算出される . 中心 (第 61 層) からの熱移動は起こらない .

### 2.4.4 粒子内部の熱消費

第  $n$  層の入熱と出熱の差 ( $\Delta Q_n - \Delta Q_{n+1}$ ) は, その層で消費される熱を表し, 乾燥プロセスの状況に応じて温度の上昇と水の蒸発に使われる .

$$\Delta Q_n - \Delta Q_{n+1} = (C_c M_{c,n} + C_w (M_{w,n} - \Delta M_{\text{evap},n})) \Delta T_n + \Delta M_{\text{evap},n} \Delta H_{\text{evap}} \quad (2-12)$$

$C_c$  と  $C_w$  は乾燥炭および水の定圧比熱， $M_{c,n}$  と  $M_{w,n}$  は第  $n$  層の乾燥炭および水の重量である． $\Delta T_n$  は層の温度の上昇分， $\Delta M_{\text{evap},n}$  はその層から蒸発する水の重量， $\Delta H_{\text{evap}}$  は水が蒸発する際のエンタルピー変化である．

乾燥の初期では，層の温度は  $100^\circ\text{C}$  未満であり，熱は温度上昇にのみ使われる．このため， $\Delta M_{\text{evap},n}$  は  $0$  となり，式 (2-12) は式 (2-13) となる．

$$\Delta Q_n - \Delta Q_{n+1} = (C_c M_{c,n} + C_w M_{w,n}) \Delta T_n \quad (2-13)$$

層の温度が  $100^\circ\text{C}$  に到達すると，層の自由水が完全に蒸発するまで，熱は自由水の蒸発にのみ使われる．この期間， $\Delta T_n$  は  $0$  となり，式 (2-12) は式 (2-14) となる．

$$\Delta Q_n - \Delta Q_{n+1} = \Delta M_{\text{evap},n} L \quad (2-14)$$

$L$  は  $100^\circ\text{C}$  での自由水の蒸発潜熱である．

層の含水率  $X_n$  が  $0.56$  になると，自由水は完全に蒸発したと見なされる．このため， $0.56$  以下では，熱は結合水の蒸発と温度上昇の両方に使われる．結合水の  $\Delta H_{\text{evap}}$  については，2.4.5 で述べる．この期間， $X_n$  と  $T_n$  は Fig. 2-16 に示す平衡含水率曲線に従うと仮定し，ニュートン法を用いて  $\Delta T_n$  を算出した．図中の  $100^\circ\text{C}$  の含水率は，2.4.1 に記載したとおり， $0.56$  とした． $120^\circ\text{C}$  以下に示した点線は，ロイヤン炭について報告された値である<sup>[7]</sup>．本モデルでは， $100 - 110^\circ\text{C}$  の範囲を温度に反比例すると仮定し，曲線を結び， $110 - 170^\circ\text{C}$  の範囲は実験で得られた値 (Fig. 2-11) を用いて近似曲線を作成した．近似式は Table 2-1 に記載した．

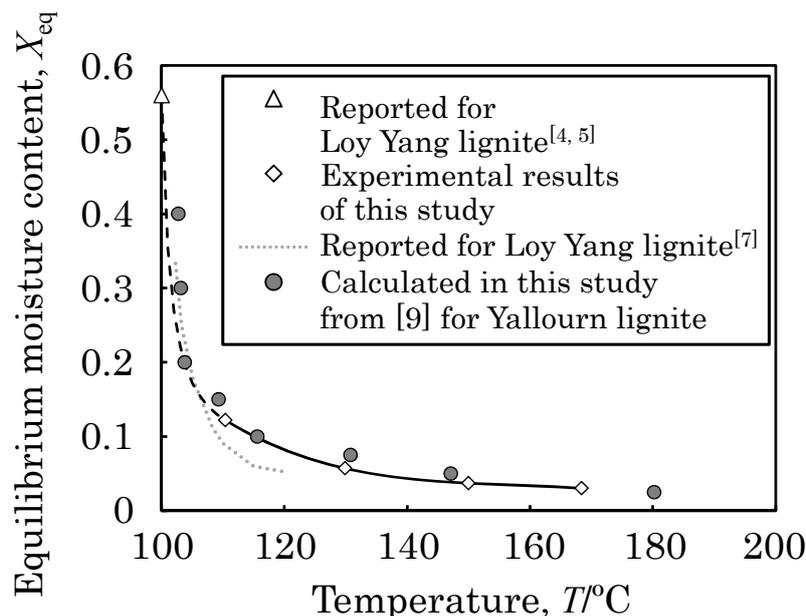


Fig. 2-16 Equilibrium moisture content curve.

#### 2.4.5 結合水の熱力学的性質

結合水は 100°C を超える温度で蒸発するため，蒸発のエンタルピー変化 ( $\Delta H_{\text{evap}}$ ) が自由水より大きいと考えられる．さらに，温度に依存して平衡含水率が連続的に変化することは，結合力の異なる様々な状態の水分子が褐炭中に存在することを意味し，温度の上昇にともない結合の弱い水分子から順次蒸発していくものと予想される．Fig. 2-17 に，文献中で想定された結合水の状態を示す<sup>[8]</sup>．小さな細孔に水分子が入っており，熱が加わると結合の弱い水分子が蒸発し，最後には石炭表面の酸素を含んだ官能基 (-COOH, -OH など) に，直接水素結合している水分子が残ると考えられる．細孔の形状や官能基の配置により，水分子との水素結合の強さが変化することが考えられる．

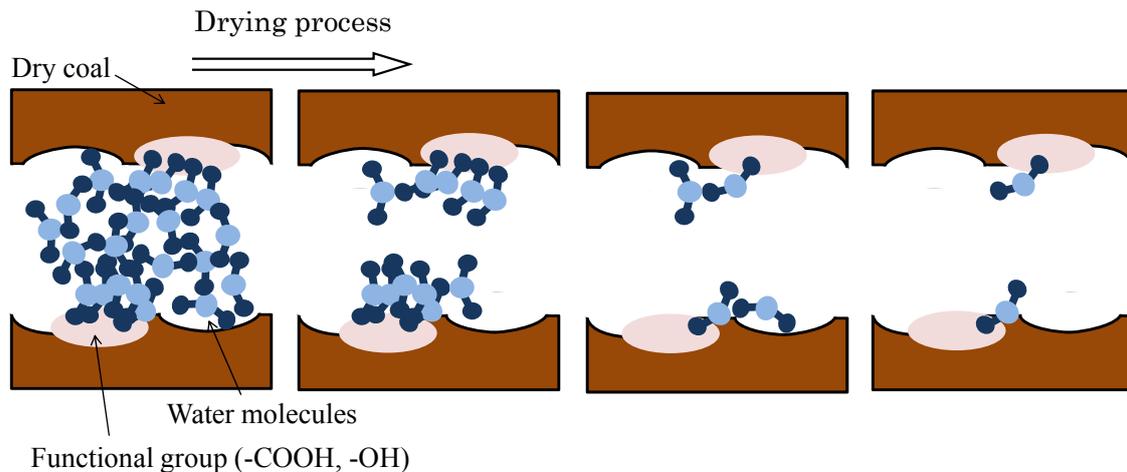


Fig. 2-17 Schematic illustration of water desorption in lignite<sup>[8]</sup>.

Allardice らは、ロイヤン炭と同じヴィクトリア州産出のヤルーン炭（初期含水率：2.0）について、30、40、49、60°C にて等温吸脱着曲線の測定を行った<sup>[9]</sup>。等温吸脱着曲線から得られた各含水率の蒸気圧力  $P$  の値を用い、 $\Delta H_{\text{evap}}$  が温度に依存しないと仮定し、Clausius-Clapeyron の式から導出された以下の関係式を用いて含水率と  $\Delta H_{\text{evap}}$  の関係を報告した（式中の  $R$  は気体定数）。

$$\log_{10} (P_2 / P_1) = -\Delta H_{\text{evap}} (1/(T_2 + 273.15) - 1/(T_1 + 273.15)) / 2.303 R$$

$\Delta H_{\text{evap}}$  は、初期含水率 2.0 から含水率 0.6 までは一定で、水の潜熱  $L$  と同程度の値となった。 $\Delta H_{\text{evap}}$  は、含水率 0.6 以下で上昇を開始し、含水率 0.025 では水の潜熱と比較し 35% 程度大きい値となった（Fig. 2-18）。Allardice らは、含水率 0.6 以下において含まれている水は結合水であると指摘している。さらに、算出された含水率 0.6 以下の  $\Delta H_{\text{evap}}$  を用い、自由水を基準としたエントロピー変化（ $\Delta S_b$ ）を、以下の関係式から算出している。

$$\Delta S_b = (\Delta H_{\text{evap}} - L) / T - R \ln(P / P_{\text{sat}}) \quad (P_{\text{sat}} : \text{飽和蒸気圧力})$$

$\Delta S_b$  は温度に依存せず、含水率 2.0 - 0.4 では 0 であり、含水率 0.4 から減少し始め、0.075 にて最も小さくなった（Fig. 2-18）。

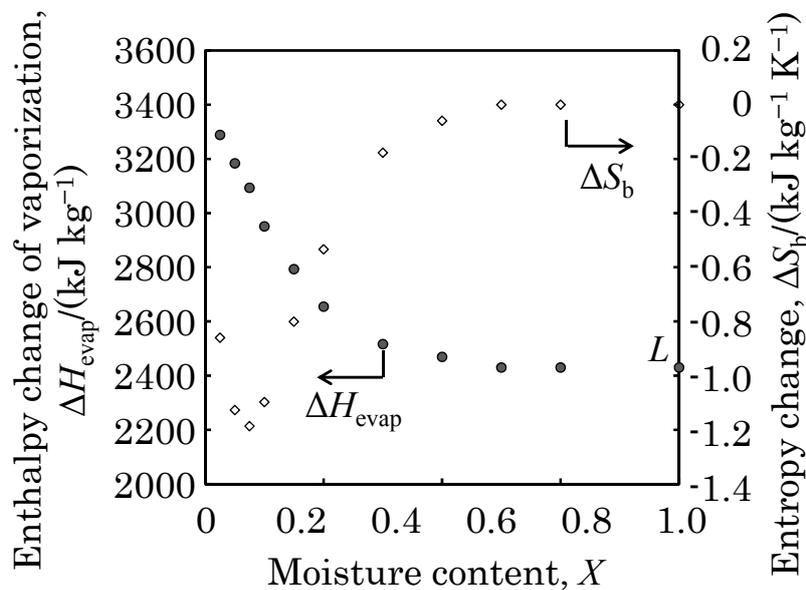


Fig. 2-18 Relationship between moisture content and enthalpy change of water vaporization. Entropy change reported for water in Yallourn lignite is also plotted with reference to free water.

本研究の測定結果では、各テスト温度において、大気圧の過熱水蒸気と平衡状態となる褐炭の含水率を得た。この状態では、褐炭中に残存する結合水のうち、最も弱く結合している（化学ポテンシャルの最も高い）結合水の蒸気圧が、大気圧と等しいと考えることができる。

Allardice らと同様の手法によってロイヤン炭についての  $\Delta H_{\text{evap}}$  と  $\Delta S_b$  を求めるためには、複数の圧力での平衡含水率が必要である。このため、Allardice らが報告したヤルーン炭に関する  $\Delta H_{\text{evap}}$  と  $\Delta S_b$  をロイヤン炭にも適用することが可能か、以下の考察により検証した。

100°C 以上における水の蒸発を考えるために、IAPWS (International Association for the Properties of Water and Steam)<sup>[10]</sup>が報告している液体の水（飽和水）および大気圧(0.101325 MPa)の水蒸気の比エンタルピー(  $\Delta H$  )および比エントロピー(  $\Delta S$  )を参照した。ここで  $\Delta H$  および  $\Delta S$  は、273.16 K, 611.655 Pa (水の3重点)における液相を基準の状態として定義された

値であり，これを温度に対してプロットしたものが Fig. 2-19, 20 中で Saturated water および Steam (1atm) と示された曲線である .なお ,100°C 以上において液体の水が蒸発する反応についての熱力学データは , Appendix C でまとめる .

液体の水が結合水となるエンタルピー変化を  $\Delta H_{\text{evap}} - L = \Delta H_b$  と定義し ,  $\Delta H_b$  および  $\Delta S_b$  は温度に依存しないと仮定した . Allardice らの報告値を用いて算出した結合水の比エンタルピーおよび比エントロピーを含水率ごとに Fig. 2-19, 20 に示す .  $\Delta H_b$  と  $\Delta S_b$  に温度依存性がないことを仮定したため , 結合水は液体の水の曲線と平行になっている . さらに , 三重点における水を基準とした , 飽和水 , 結合水および大気圧の水蒸気のギブスエネルギー (  $\Delta G = \Delta H - (T + 273.15) \Delta S$  ) を Fig. 2-21 に示す . 結合水の  $\Delta G$  が大気圧の水蒸気の  $\Delta G$  と等しくなったときに両者が平衡するため , Fig. 2-21 における交点が温度と平衡含水率の関係を示すと考えた . 同図では , 液体の水が 100°C で蒸発し , 含水率が低下していくとともに蒸発温度が高くなることがわかる . 含水率 0.025 では , 蒸発温度が 180°C となり , これ以下の含水率では , さらに温度を上げないと蒸発しないことが予想される .

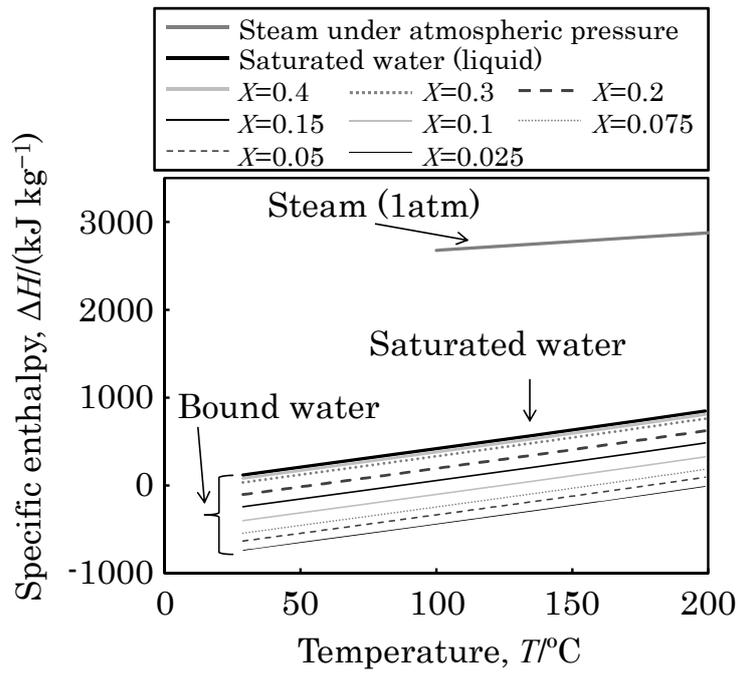


Fig. 2-19 Specific enthalpy of water and steam.

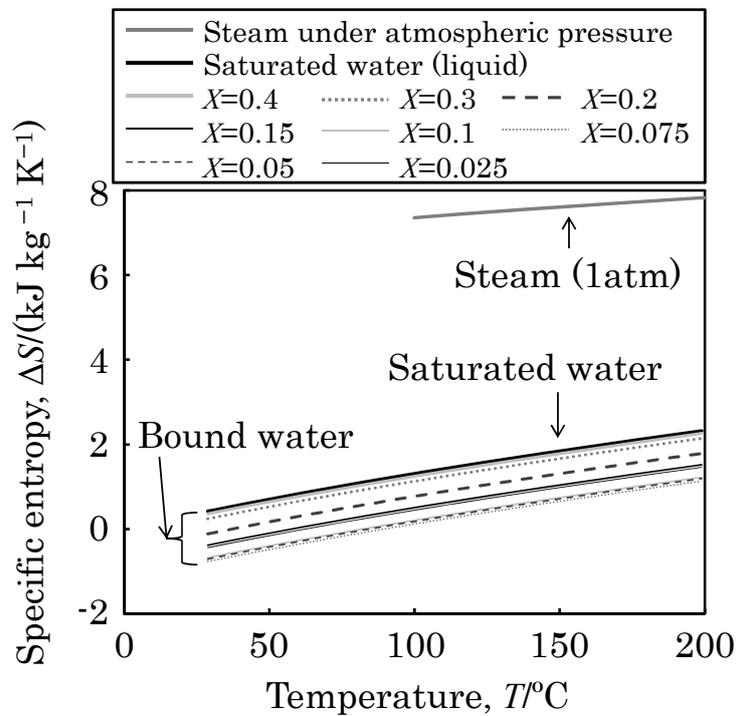


Fig. 2-20 Specific entropy of water and steam.

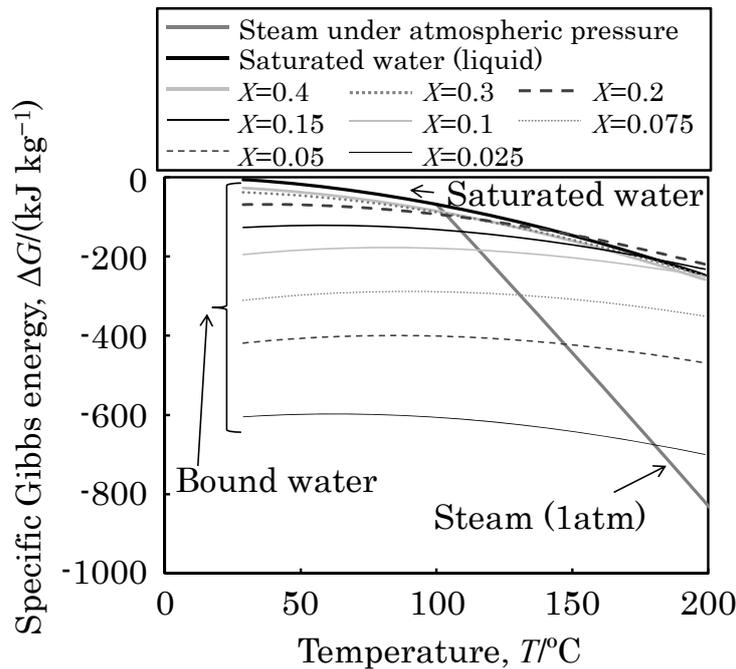


Fig. 2-21 Specific Gibbs energy of water and steam.

液体の水を基準とした結合水のギブスエネルギー ( $\Delta G_b$ ) と蒸気圧の関係式は  $\Delta G_b = \Delta H_b - (T + 273.15) \Delta S_b = -R(T + 273.15) \ln(P_b / P_{sat})$  で表される。水の飽和蒸気圧力 ( $P_{sat}$ )<sup>[10]</sup> および前述の  $\Delta H_b$  と  $\Delta S_b$  を用いて推定される結合水の平衡蒸気圧 ( $P_b$ ) を温度に対して示すと Fig. 2-22 となる。 $P_b$  が大気圧 (0.101325 MPa) となる温度に注目することで、平衡含水率と温度の関係が理解できる。

Allardice らにより報告されたヤルーン炭の情報をもとに推定した蒸発温度と含水率の関係を Fig. 2-16 に示す。本試験で得たロイヤン炭の平衡含水率の曲線と比較するとほぼ一致しており、これらの褐炭中に存在する結合水の結合状態・熱力学的安定性が類似していることが示唆される。したがって、本モデルではヤルーン炭について報告されている  $\Delta H_b$  および  $\Delta S_b$  の値を、そのままロイヤン炭中の結合水に利用した。

各含水率について蒸発温度における結合水の  $\Delta H_{evap}$  は、結合水が水蒸気 (大気圧) になる時のエンタルピー変化から得られる。蒸発温度と

$\Delta H_{\text{evap}}$  の関係を Fig. 2-23 に示す．本モデルでは，式(2-15)で表される近似式を用いた．この式は Fig. 2-23 中に点線でプロットした．

$$\Delta H_{\text{evap}} = 2.932 \times 10^6 - 6.76 \times 10^5 \times \exp(-0.077(T - 100)) \quad (2-15)$$

Fig. 2-16 の平衡含水率曲線と Fig. 2-23 の  $\Delta H_{\text{evap}}$  の近似曲線をもとに，各含水率での蒸発温度および  $\Delta H_{\text{evap}}$  を一つのグラフとして表したものが Fig. 2-24 である．乾燥が進み，自由水が蒸発して含水率 0.56 以下の結合水になると，蒸発温度と  $\Delta H_{\text{evap}}$  が上昇していることが確認できる．例えば，含水率 0.025 となる 180°C での  $\Delta H_{\text{evap}}$  は 100°C における水の潜熱と比較して 30% 程度増加する．

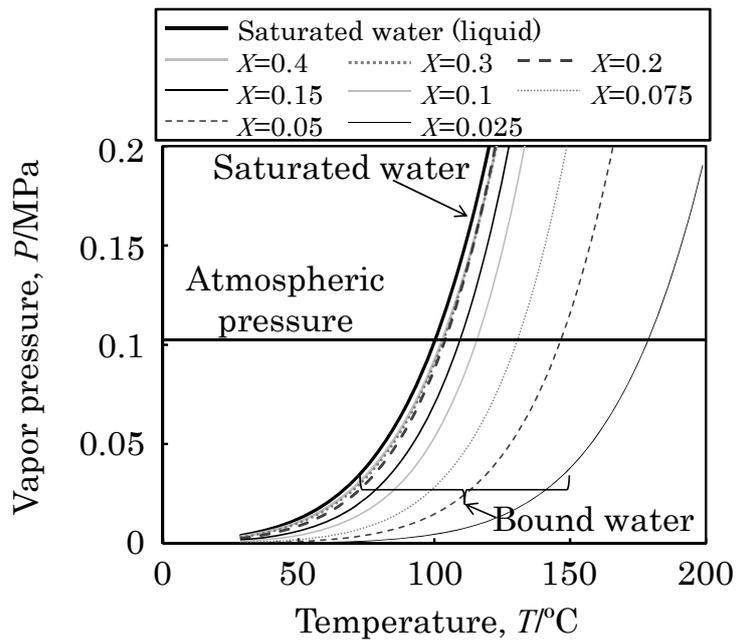


Fig. 2-22 Vapor pressure of liquid water and bound water.

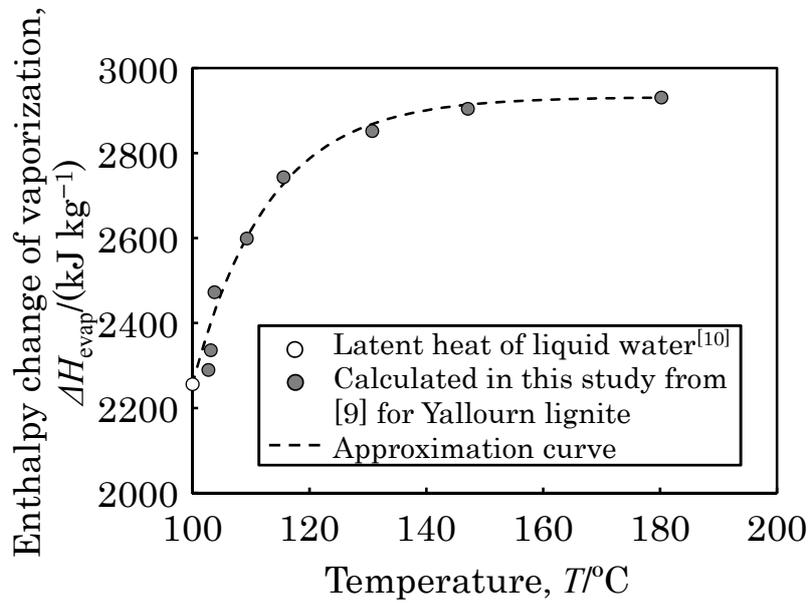


Fig. 2-23 Relationship between enthalpy change of water vaporization and evaporating temperature under atmospheric pressure.

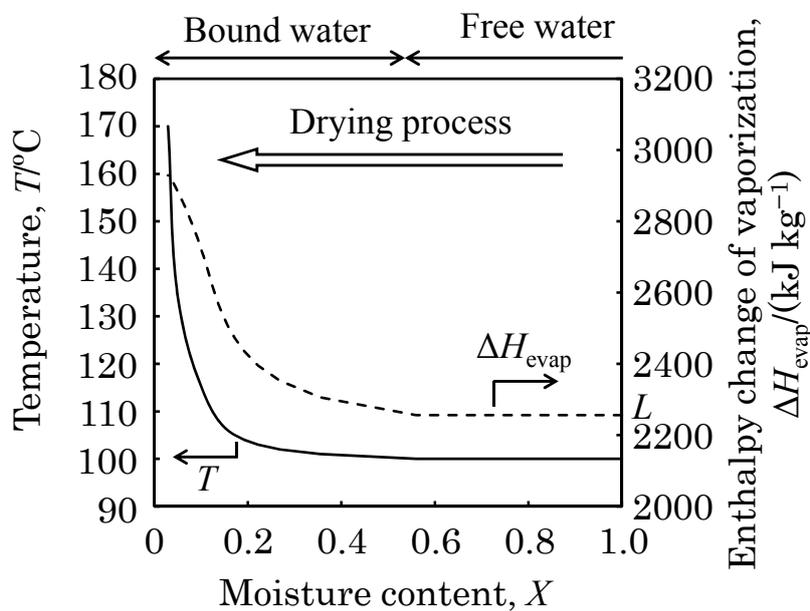


Fig. 2-24 Relationships between moisture content, enthalpy change of water vaporization and evaporating temperature under atmospheric pressure.

#### 2.4.6 凝縮期間において粒子表面上に生じる水滴

実験結果から、凝縮期間において、褐炭内部の水が膨張により表面に染み出すことが示唆されたため、水の密度( $\rho_w$ )を温度の関数とし、式(2-16)を用いた<sup>[10]</sup>。

$$\rho_w = 5.12 \times 10^{-6} T^3 - 3.99 \times 10^{-3} T^2 - 7.95 \times 10^{-2} T + 1001 \quad (2-16)$$

染み出した水は凝縮した水と合わせて表面に水滴を作るものとし、これら表面の水の重量( $M_{\text{surf}}$ )を式(2-17)で表す。

$$\Delta M_{\text{surf}} = (\Delta Q_1 - h_a \cdot 4\pi r_1^2 (T_a - 100) \cdot \Delta t) / L + \Delta M_{\text{ex}}, \text{ for } T_1 \leq 100 \quad (2-17)$$

$\Delta M_{\text{ex}}$  は染み出す水の重量であり、 $M_{\text{surf}}$  は初期状態で 0 である。実験では、試料重量が 0.16 g 増加した際に、初めの水滴の滴下が確認されている (Fig. 2-9)。この結果をもとに、0.16 g の水蒸気が凝縮した時点における  $M_{\text{surf}}$  の値を上限とし、その上限値を  $M_{\text{surf}}$  が超えた場合に 0.081 g の水滴が滴下すると仮定した。

#### 2.4.7 粒子内部の自由水の移動

褐炭中の自由水は、毛管圧力勾配、拡散および蒸気圧力勾配を駆動力として移動すると考えられ<sup>[11,12]</sup>、その中でも毛管圧力が最も重要だと思われる。種々の細孔径に入った自由水が、褐炭内部で中心から表面へ移動する模式図を Fig. 2-25 に示す。この図では、大きな細孔に入っている自由水が表面側の小さな細孔へ移動すると仮定し、その挙動を示している。

毛管圧力による自由水の移動は、近似的に Darcy の法則を用いて式(2-18)で表される<sup>[12]</sup>。

$$u = -\frac{p}{\mu_w}(\nabla Pc - \rho_w g) \quad (2-18)$$

$u$  は水の流速 (m/s),  $p$  は不飽和透水係数 ( $\text{m}^2$ ),  $\mu_w$  は水の粘性係数 ( $\text{Pa}\cdot\text{s}$ ),  $\nabla Pc$  は毛管圧力勾配 ( $\text{Pa}/\text{m}$ ),  $\rho_w$  は水の密度 ( $\text{m}^3/\text{s}$ ),  $g$  は重力加速度 ( $\text{m}/\text{s}^2$ ) である。しかし,  $K$  および  $\nabla Pc$  は多孔体の物質, 細孔径分布, 細孔の形状および含水率に依存するため, 定式化するのは難しい。このため, 容易に計測できる含水率の関数として, 水の移動を表す式が用いられる場合がある [13]。

$$\frac{\partial X}{\partial t} = -K \nabla^2 X \quad (2-19)$$

$K$  はみかけの移動係数 ( $\text{m}^2/\text{s}$ ) である。式 (2-18) をもとに, 本モデルでは式 (2-20) を用いた。

$$\begin{aligned} \Delta M_{\text{trans}, n} &= -K \cdot \rho_c \cdot 4\pi r_{n+1}^2 (X_n - X_{n+1}) / (d_n + d_{n+1}) \cdot \Delta t, \\ &\text{for } n \leq 60 \text{ and } X_{n+1} > 0.56 \end{aligned} \quad (2-20)$$

$\Delta M_{\text{trans}, n}$  は第  $n+1$  層から第  $n$  層へ移動する水の重量,  $\rho_c$  は乾燥炭の密度である。 $K$  は一定とし, 実験結果に合うよう  $3 \times 10^{-9}$  とした。

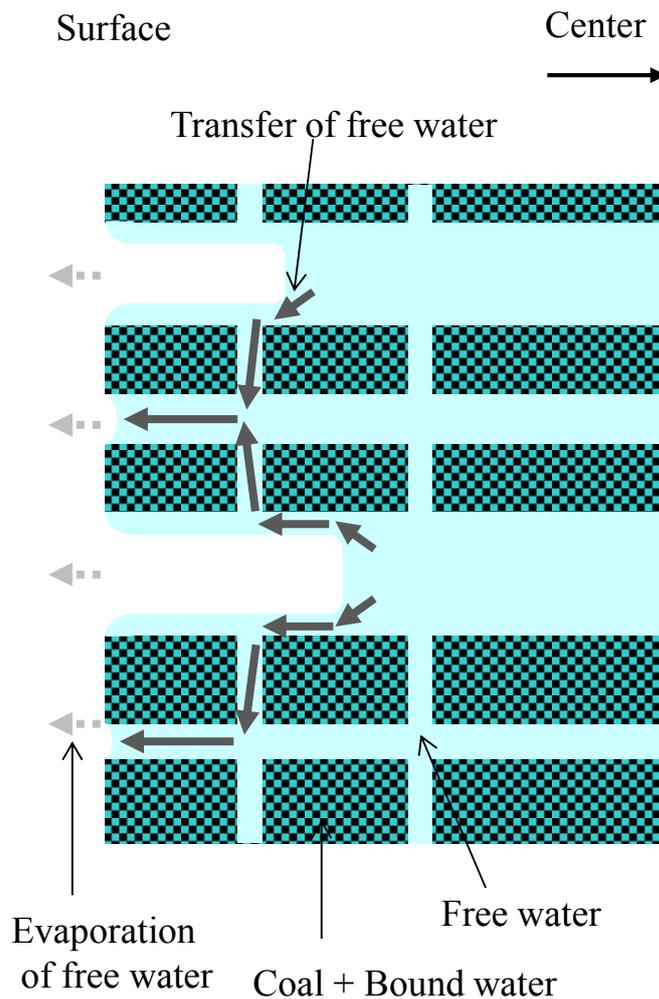


Fig. 2-25 Transfer of free water in lignite.

#### 2.4.8 収縮

本モデルでは、褐炭中の水が蒸発すると、その空間は水蒸気に置き換わるとした(2.4.1)。収縮による体積の変化を考慮するため、乾燥に伴い褐炭内部の水蒸気の体積が減少すると仮定した。棒状試料の線収縮率  $(1 - l/l_{ini}) \times 100$  ) と含水率の関係を Fig. 2-13 に示したが、水の温度上昇による膨張と染み出しを考慮すると、線収縮率を含水率の関数とすることは適当でないと考えられる。このため、Fig. 2-13 の含水率を水の体積に換算し、式(2-21)で表す。

$$1 - l/l_{ini} = -0.269 \left(\frac{V_w}{V_{w,ini}}\right)^3 + 0.655 \left(\frac{V_w}{V_{w,ini}}\right)^2 - 0.547 \left(\frac{V_w}{V_{w,ini}}\right) + 0.162 \quad (2-21)$$

この線収縮率を、各層の初期厚さに乗じて収縮を計算し、減少した体積を水蒸気の体積から差し引いた。テスト温度 110°C では、棒状試料と同様の収縮率となったが、テスト温度が高いほど収縮率が小さくなったため、係数を乗じ、Fig. 2-26 に示した曲線で計算を行った。

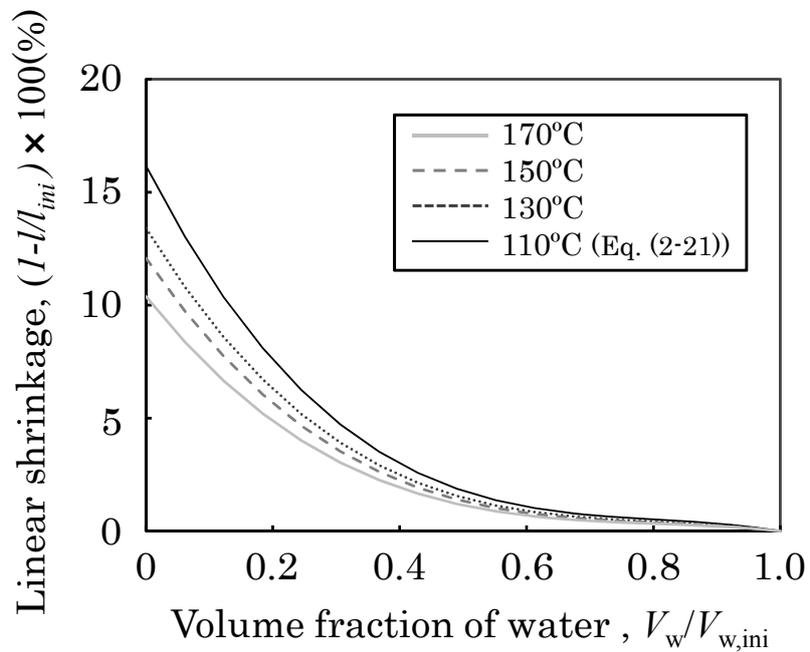


Fig. 2-26 Linear shrinkages of lignite used in simulation.

## 2.5 計算結果と考察

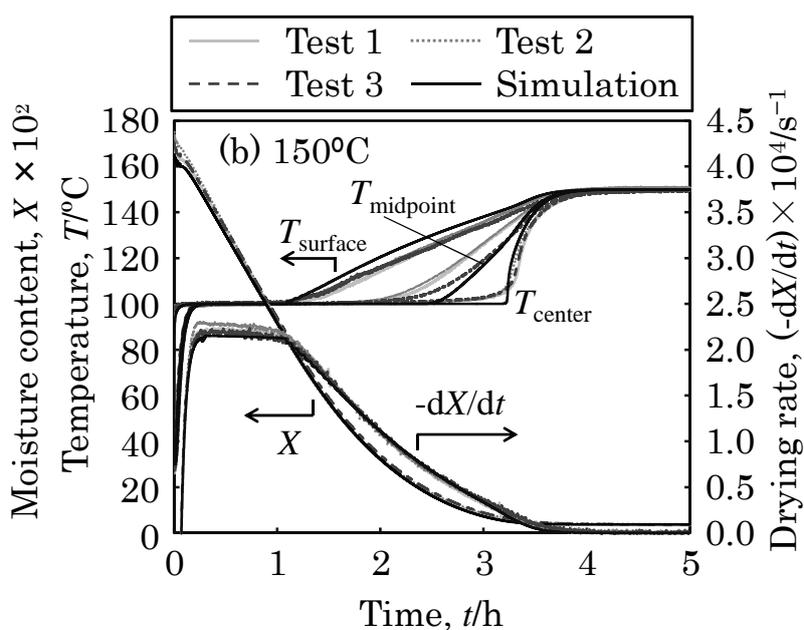
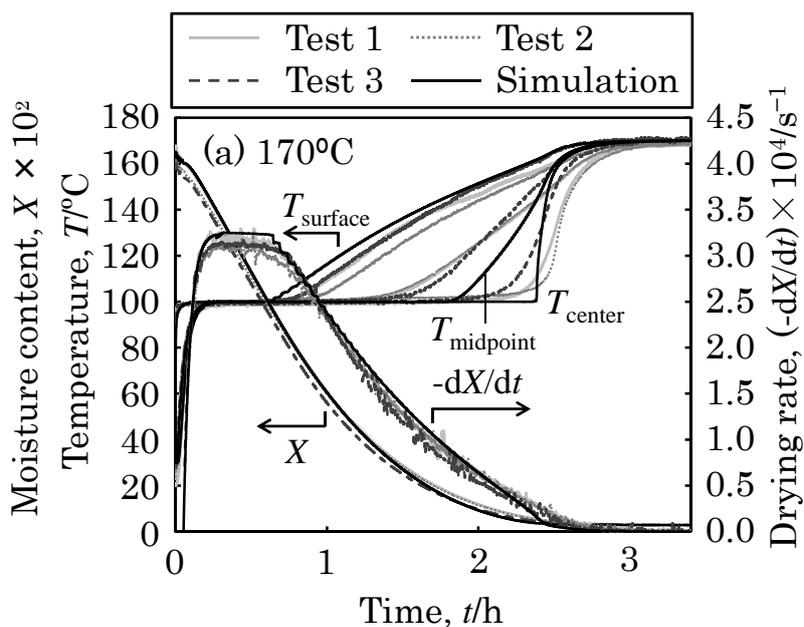
### 2.5.1 含水率，乾燥速度および温度の変化

含水率，乾燥速度および温度についての計算および実験結果を Fig. 2-27 に示す. テスト温度 170 - 130°C における含水率と乾燥速度の計算結果は，実験結果と良好に一致した. 一方，テスト温度 110°C では計算結果と実験結果の間に差異が見られた (Fig. 2-27 (d)). 恒率乾燥期間中の乾燥速度が両者で異なっていることから，計算モデルにおける褐炭表面への入熱を修正する必要があると考えられる. 前述のとおり，本計算モデルにおいて入熱は対流と輻射による式 (2-3) を用いた. ここで，輻射の項はそのままとし，実験結果の恒率乾燥期間の乾燥速度と一致するように，対流熱伝達率 (式 (2-4) 中の  $h_{\text{conv}}$ ) に 1.64 を乗じて再度計算を行った. 修正した対流熱伝達を用いた計算結果が Fig. 2-28 であり，含水率と乾燥速度が実験結果と合致した. 以上より，130°C 以上では自然対流のヌッセルト数の式 (2-7) の適用が可能だが，テスト温度が 100°C に近づくと熱伝達率に補正を施しての計算が有効と考えられる.

表面温度の計算結果は実験結果と良好に一致した. しかし，褐炭内部の温度 (中間点，中心) には違いが見られ，これらの温度が 100°C から上昇を開始する時間が実験結果よりも遅い. このような計算値と実測値の違いは，他の研究例でも見られる<sup>[14, 15]</sup>. この要因として，熱電対を伝った外部からの熱伝導による実験誤差が考えられる. また，本モデルでは考慮しなかった結合水の拡散による移動が影響したことも考えられる.

Fig. 2-29 に，テスト温度 170°C での試験初期における重量および温度の計算結果および実験結果を示す. 重量，温度の計算結果は，ともに実験結果と同様の傾向を示している. 2.4.6 に記載した，水蒸気が 0.16 g 凝縮した際の  $M_{\text{surf}}$  の上限値は 0.19 g となり，計算上では乾燥開始後 5 s で初めての滴下が起こり，合計 12 回滴下した. 実験では平均 13 回 (テスト 1, 2, 3 でそれぞれ 13, 15, 11 回) であり，水滴の落下について，現象を良好に模擬できて

いる. 1 滴の重量を 0.081 g として計算したため, 滴下量の合計は 0.97 g となり, これは初期水分の約 1 割 (含水率で 0.16) に相当する. 水滴の落下を考慮せずに計算を行えば, 含水率の時間変化にも影響を与え, 実験結果との差も大きくなる. したがって, 凝縮期間において褐炭表面に生じる水滴の落下を考慮することは, 計算上非常に重要と考えられる.



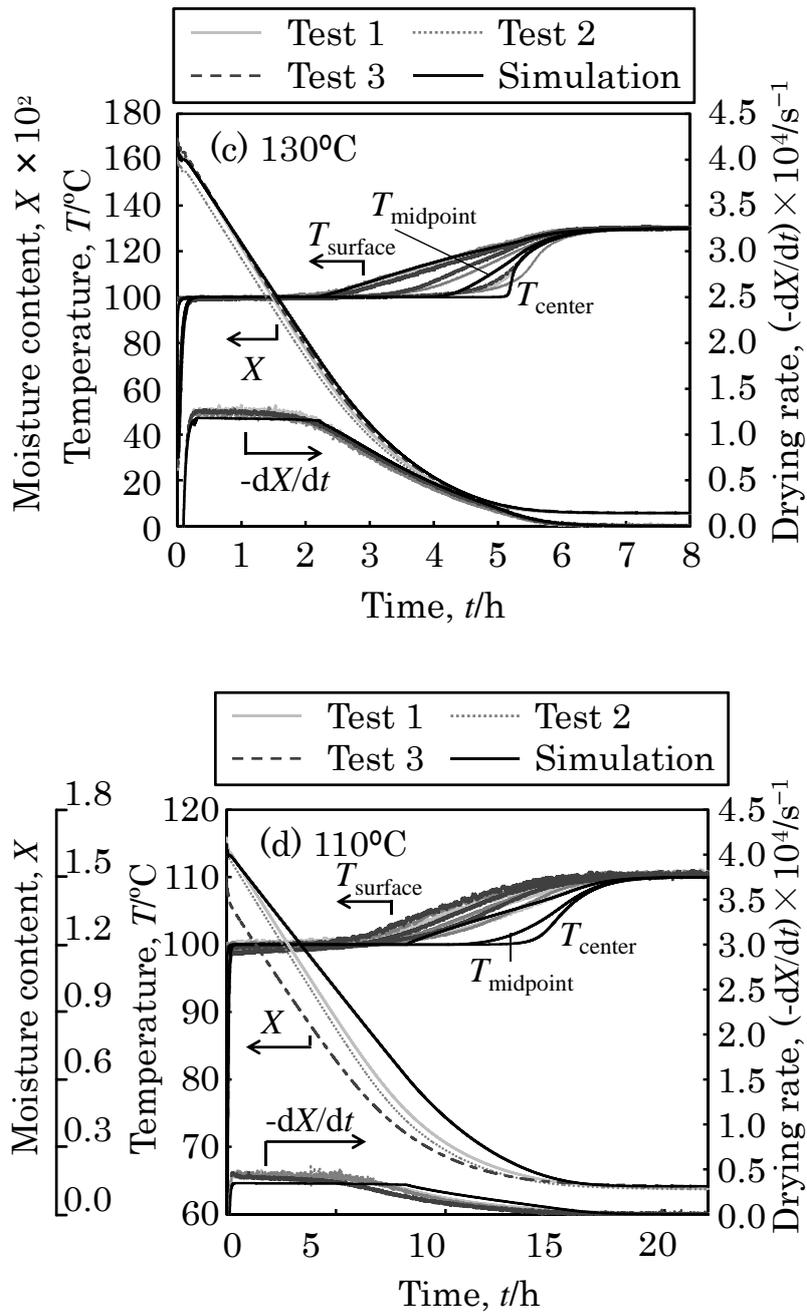


Fig. 2-27 Simulated moisture contents, drying rates, and temperatures compared to experimental results at test temperatures of (a) 170, (b) 150, (c) 130, and (d) 110°C.

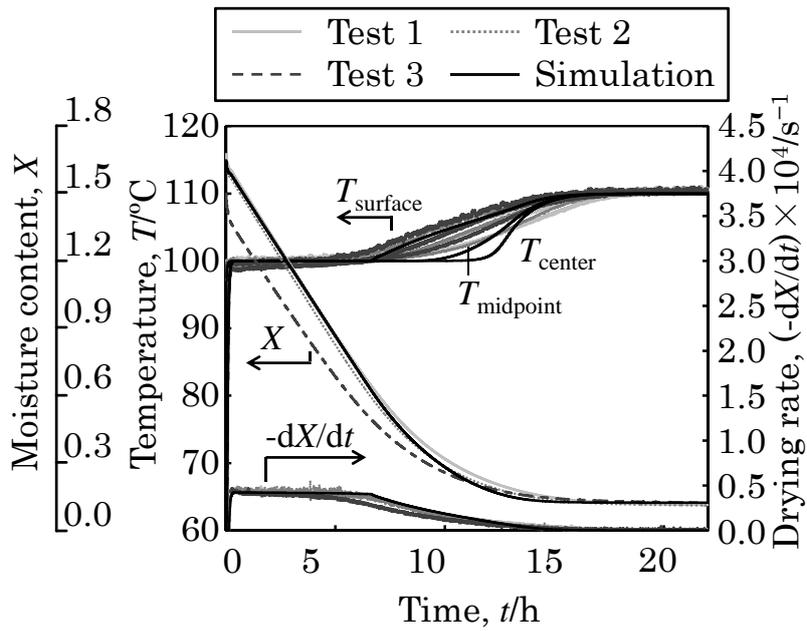


Fig. 2-28 Simulated results with corrected heat transfer coefficient at  $110^\circ\text{C}$  compared to experimental results.

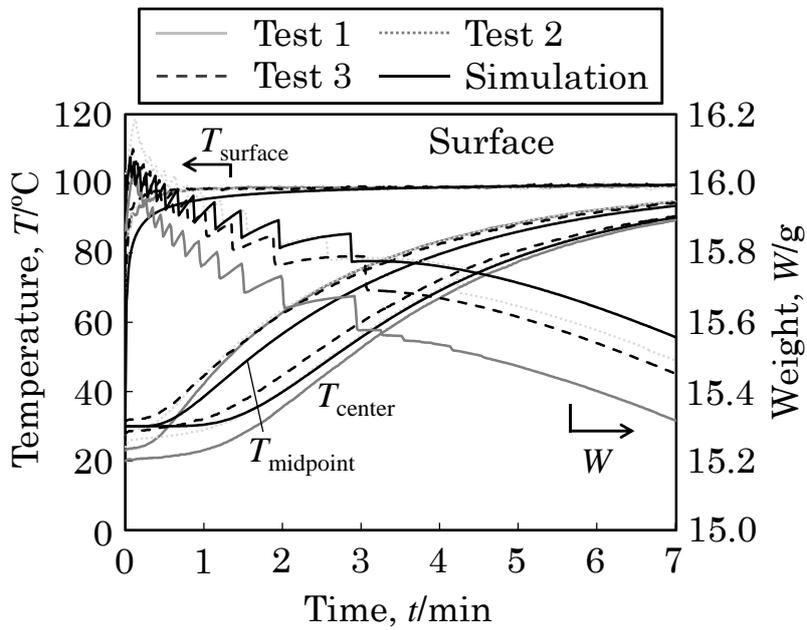


Fig. 2-29 Simulated temperatures and weight compared to experimental results at  $170^\circ\text{C}$  in the initial period.

### 2.5.2 粒子内部における含水率および温度のプロファイル

本モデルを用いて計算した、テスト温度 170°C における褐炭粒子内部の含水率と温度のプロファイルを Fig. 2-30, 31 に示す。初期状態では、粒子内の含水率は 1.63、温度は 30°C で一定である。Fig. 2-29 と同様に、0.05 h (3 min) では表面温度がほぼ 100°C となり、内部の温度が凝縮熱伝達により上昇している (Fig. 2-31)。0.5 h では、粒子全体の温度が 100°C となっている。含水率は、一番減少している表面においても 0.56 を超えており、自由水が粒子内の全域にわたって存在することを示している (Fig. 2-30)。このような状態において、恒率乾燥期間が継続する。1.0 h では、表面の含水率が 0.56 未満となっており、温度が 100°C を超えている。既に表面には自由水がなくなっており、減率乾燥期間に移行していることが確認できる。1.0, 1.5, 2.0 h では、含水率 0.56 を境界として、その勾配が急激に変化している。この境界より表面側では含水率が 0.56 以下となり結合水の蒸発が起こっている。一方、自由水が粒子中心側から境界に向かって移動し、境界において蒸発している。2.5 h では、粒子内の自由水は全て蒸発し、温度は全ての位置で 100°C を超えている。以上の考察により、Fig. 2-14 に示した物理モデルが、計算で模擬できていることを確認した。

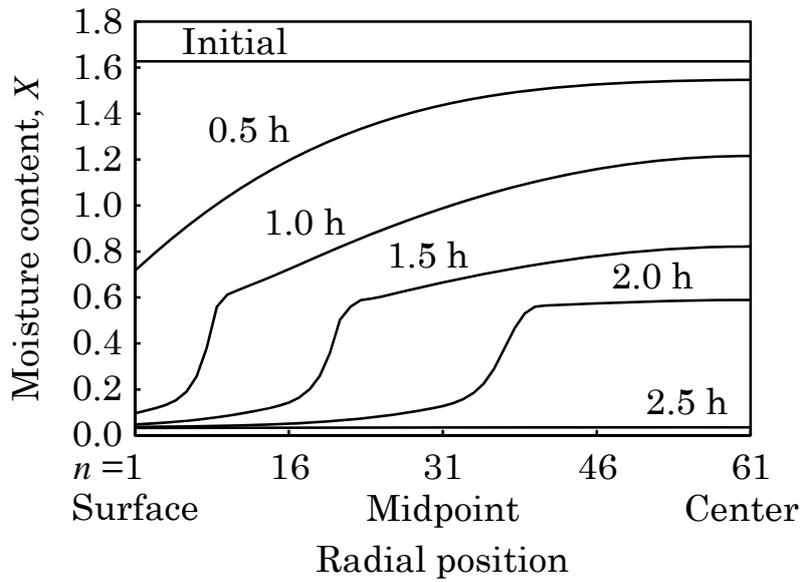


Fig. 2-30 Simulated profiles of moisture content in the lignite particle (170°C).

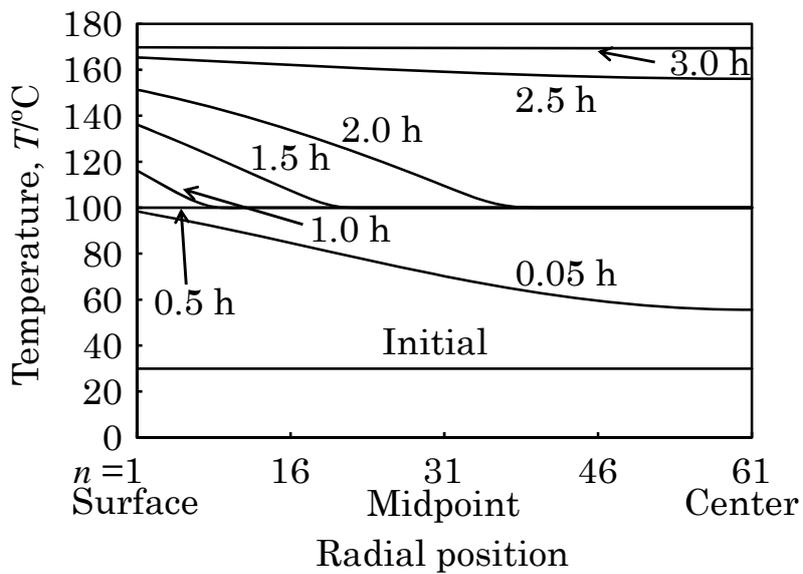


Fig. 2-31 Simulated profiles of temperature in the lignite particle (170°C).

### 2.5.3 乾燥特性曲線

モデル計算により得た乾燥特性曲線を Fig. 2-32 において実験結果と比較する. テスト温度 110°C については, 熱伝達率を補正した計算結果 (Fig. 2-28) を示す. 恒率乾燥期間における乾燥速度の計算結果は, テスト温度 110 - 170°C にて, それぞれ  $0.42, 1.18, 2.15, 3.24 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  となった. 恒率乾燥期間から減率乾燥期間へ移行する含水率 (限界含水率) は, テスト温度 110 - 170°C にて,  $0.62, 0.74, 0.87, 1.00$  となった.

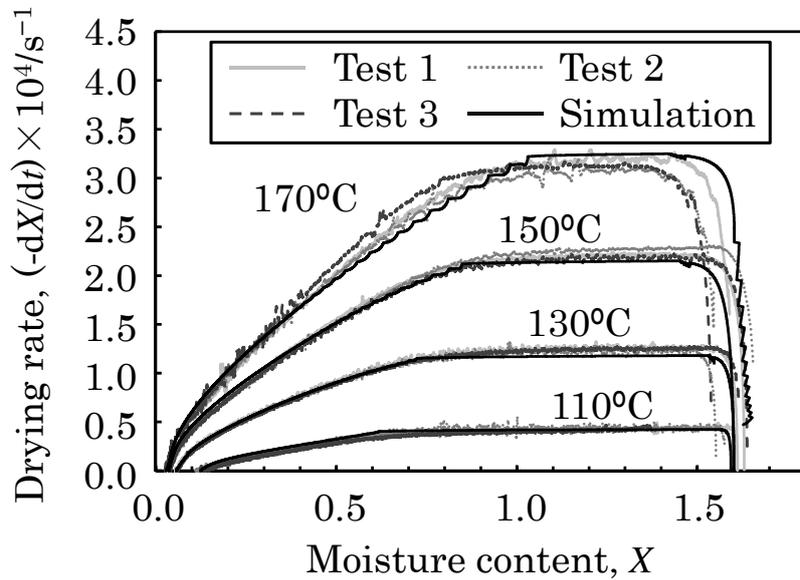


Fig. 2-32 Drying characteristic curves (experimental and simulation results).

## 2.6 小括

テスト温度 170 - 110°C において、直径 30 mm の球形の褐炭単一粒子の乾燥速度と温度を測定した。重量および温度の変化は、全ての試験において恒率乾燥期間と減率乾燥期間を示した。ビデオカメラと 3D スキャナーにより、クラックおよび体積収縮率のテスト温度依存性が確認された。過熱水蒸気乾燥は、テスト温度 170 - 110°C にて 3, 4.5, 7.5, 21 h で完了した。

実験結果をもとに、乾燥プロセスの数値計算モデルを作成した。本モデルでは、平衡含水率、結合水が蒸発する際のエンタルピー変化、凝縮期間における表面の水の挙動（内部からの染み出し、水蒸気の凝縮および滴下）、自由水の移動、および収縮を考慮した。本モデルにより、同程度の粒径の褐炭粒子について、170 - 110°C の範囲にて乾燥速度および乾燥完了時間の予測が可能となった。

## 参考文献

- [1] Y. Fei, A. Abd Aziz, S. Nasir, W. R. Jackson, M. Marshall, J. Hulston and A. L. Chaffee: “The spontaneous combustion behavior of some low rank coals and a range of dried products”, *Fuel* 88 (2009) 1650-1655.
- [2] R. Toei, M. Okazaki, M. Kimura and K. Kubota: “Drying Characteristics of a Porous Solid in Superheated Steam Drying”, *Chem. Eng. Japan* 30 (1966) 949-950.
- [3] D. G. Evans: “The brown –coal/water system: Part 4. Shrinkage on drying”, *Fuel* 52 (1973) 186-190.
- [4] D. J. Allardice, L. M. Clemow, G. Favas, W. R. Jackson, M. Marshall and R. Sakurovs: “The characterization of different forms of water in low rank coals and some hydrothermally dried products”, *Fuel* 82 (2003) 661-667.
- [5] Y. Fei, A. L. Chafee, M. Marshall and W. R. Jackson: “Lignite-water interactions studied by phase transition - differential scanning calorimetry”, *Fuel* 84 (2005) 1557-1562.
- [6] T. Fujii, T. Honda and M. Fujii: “A NUMERICAL ANALYSIS OF LAMINAR FREE CONVECTION AROUND AN ISOTHERMAL SPHERE: FINITE-DIFFERENCE SOLUTION OF THE FULL NAVIER-STOKES AND ENERGY EQUATIONS BETWEEN CENCENTRIC SPHERES”, *Num. Heat Trans.* 7 (1984) 103-111.
- [7] J. Schmalfeld and C. Twigger: “Erfahrungen mit dem Betrieb der Dampf-Wirbelschicht-Trocknungsanlage Loy Yang, Australien”, *VDI BERICHTE* 1280 (1996) 107-117.
- [8] D. Charrière and P. Behra: “Water sorption on coals”, *J. Colloid Interface Sci.* 344 (2010) 460-467.

- [9] D. J. Allardice and D. G. Evans: “The-brown coal/water system: Part 2. Water sorption isotherms on bed-moist Yallourn brown coal”, *Fuel* 50 (1971) 201-210.
- [10] W. Wagner and A. Pruß: “The IAPWS Formulation 1995 for the Thermodynamic Properties of Ordinary Water Substance for General and Scientific Use”, *J. Phys. Chem. Ref. Data* 31 (2002) 387-535.
- [11] R. B. Bird, W. E. Stewart and E. N. Lightfoot: “Other mechanisms for Mass Transport”, *Transport Phenomena, Second Edition*, John Wiley & Sons (2006) 764-804.
- [12] L. A. Richards: “CAPILLARY CONDUCTION OF LIQUIDS THROUGH POROUS MEDIUMS”, *J. Appl. Phys.* 1 (1931) 318-333.
- [13] W. Gardner and J. A. Widtsoe: “THE MOVEMENT OF SOIL MOISTURE”, *Soil Sci.* 11 (1921) 215-232.
- [14] K. Zhang and C. You: ”Experimental and Numerical Investigation of Convective Drying of Single Coarse Lignite Particle”, *Energy Fuels* 24 (2010) 6428-6436.
- [15] T. Inoue, H. Iyota, N. Nishimura and T. Nomura: “Effects of Dry-bulb and Wet-bulb Temperature on the Drying Time of Spherical Porous Material in High Temperature Gas Flow”, *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. B* 73 (2007) 1068-1076.
- [16] JSME Data Book: *Thermophysical Properties of Fluids*, The Japan Society of Mechanical Engineers (1983).

## 第3章 褐炭単一粒子の乾燥速度における粒径の影響

### 3.1 緒言

本章では、過熱水蒸気中における小粒径の褐炭粒子（直径 10, 5, 2.5 mm）の乾燥速度を測定し、その粒径依存性を調査した。測定は前章（2.2.2）に記載した装置を用いて行った。実験方法を 3.2 で示し、3.3 では直径 30 mm の粒子と比較しながら結果及び考察を説明する。3.4 では本章の実験結果をもとに、前章 2.4 で作成した乾燥の数値計算モデルを小さい褐炭粒子にも適用できるよう修正を行う。修正したモデルを用いた計算結果を実験結果と 3.5 で比較し、3.6 を本章の小括とする。

### 3.2 実験方法

#### 3.2.1 試料

試料には、粒径 30 mm と同様、オーストラリア、ヴィクトリア州産出のロイヤン炭を用いた。原炭の塊から専用工具を用い、直径 10, 5, 2.5 mm の球形試料を削り出した。実験で用いた各粒子の平均重量は、それぞれ 0.59, 0.073, 0.009 g であった。

前章では直径 30 mm の粒子を吊り下げるためにポリエステル糸を使用した（2.2.1）、粒径が小さくなると、過熱水蒸気の流れに影響され、試料の回転や振れ回りが起こる。試料の動きが重量の計測や熱伝達特性に影響を与えることを防ぐため、本章では剛性を持った吊り具に変更した。熱容量が小さい材質という観点からガラスを採用し、操作性の観点から直径 0.5 mm のガラス棒を使用した。

Fig. 3-1 に試料の写真と熱電対および吊具の取付模式図を示す（ $D$ ：初期粒径）。粒径 10 mm では、直径 0.2 mm のドリルで球形試料に穴を開け、中心と中間点に K 型熱電対（クロメル、アルメルの各素線径 0.05 mm、被覆付で 0.08 mm）を取り付けた（Fig. 3-1 (a)）。固定するため、試料表面

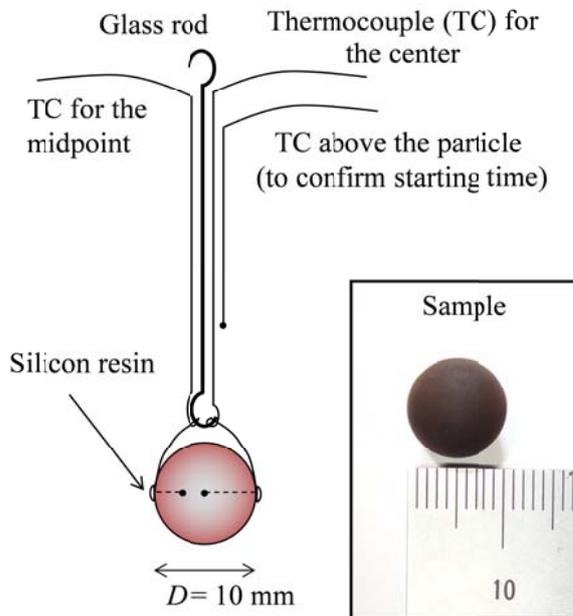
に微量のシリコン樹脂を使用した。粒径 30 mm では、ポリエステル糸を貫通させて吊り下げたが、粒子への加工を最小限に抑えるため、熱電対のみで吊り下げた。

粒子内部への熱伝導の影響を小さくするため、直径の小さい K 型熱電対の使用を検討した。まず、直径 0.01 mm の素線に被覆を施して用いることを試みたが、均一な被覆ができないことに加え、頻繁に断線が発生した。各素線径 0.02 mm（被覆付で 0.026 mm）、および各素線径 0.25 mm（被覆付で 0.5 mm）を用いた場合は、粒子に開けた穴の先端に設置するのが難しく、また、設置している際に断線が頻繁に発生した。各素線径 0.05 mm（被覆付で 0.08 mm）を用いた場合は問題なく設置できたため、本試験ではこの熱電対を使用した。前章で粒径 30 mm の試料に用いた熱電対は各素線径 0.09 mm（被覆付で 0.1 mm）であり、これよりは小径であるため熱伝導が軽減されると期待した。

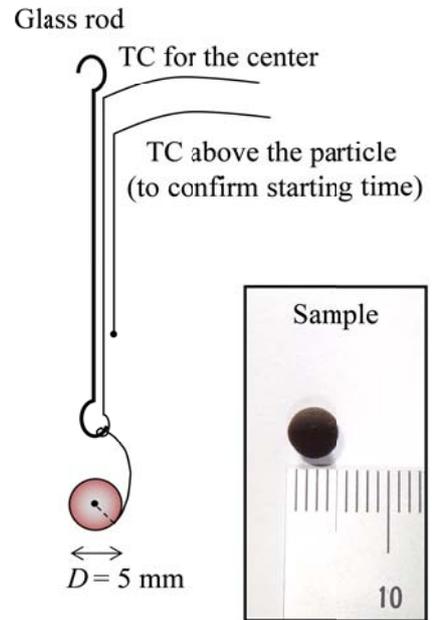
粒径 5 mm の試料は、直径 0.2 mm のドリルで球形試料の中心に穴を開け、粒径 10 mm の試料と同様の熱電対を取り付けた (Fig. 3-1 (b))。熱電対のみで試料を保持できたため、シリコン樹脂は用いなかった。

粒径 2.5 mm の試料は、1 個の重量が 0.009 g であり、最終的に窒素で乾燥した後には 0.0036 g 程度になることが予想された（初期水分 60mass% を想定）。重量を計測する電子天秤の分解能は 0.0001 g (0.1 mg) であるため、1 個のみの計測では十分な精度が得られないと判断し、1 回の試験に 4 個の試料を用いた (Fig. 3-1 (c))。試料には直径 0.1 mm のドリルで 1.0 mm の穴を開け、クロメル線（素線径 0.09 mm、被覆付で 0.1 mm）を取り付けた。吊り具のガラス棒（直径 0.5 mm）の下端に直径 0.6 mm のガラス棒を 4 本取り付け、それぞれの先に曲がったガラス管（外径 0.7 mm）を取り付けた。このガラス管に、試料に取り付けたクロメル線を差し込むことにより、試料を保持した。

(a) 10 mm



(b) 5 mm



(c) 2.5 mm

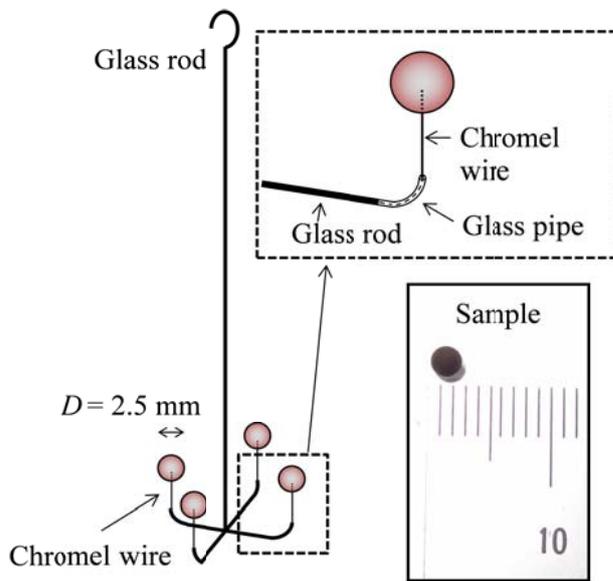


Fig. 3-1 Samples and their setting schemes. (a) 10, (b) 5, and (c) 2.5 mm in diameter.

### 3.2.2 実験装置

粒径 10 mm の試料を用いた場合の実験装置の模式図を Fig. 3-2 に示す。前章で使用した実験装置 (2.2.2) と大部分は同じであるが、吊り具をポリエステル糸からガラス棒に変更したのに伴い、ハロゲンランプ (75W) を設置してガラス棒の温度を 100°C 以上にした。これは、テストセクション上部の吊り具貫通部にて、ガラス棒に水蒸気が凝縮するのを防ぐためである。

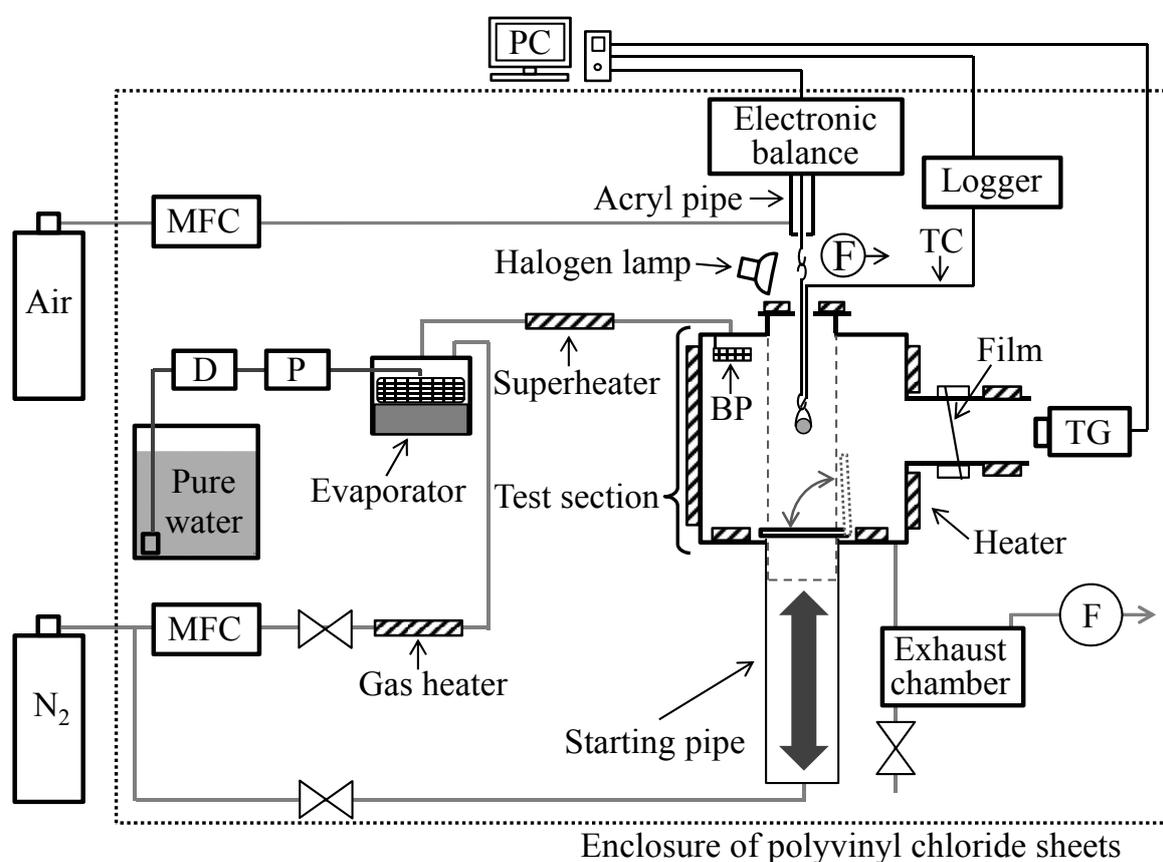


Fig. 3-2 Schematic configuration of experimental system.

MFC: Mass flow controller, D: Degasser, P: Feed pump, BP: Baffle plate, TC: Thermocouples, TG: Thermograph, F: Exhaust fan.

### 3.2.3 実験手順

前章 (2.2.3) と同様の手順で、試料は 170, 150, 130 および 110°C において各 3 回乾燥試験を行った。ただし、全ての試験で  $W$  および  $T$  は 1 秒ごとに記録し、 $W$  の変化が 0.1 mg/min 未満になった時点を乾燥の終了時間とした。

## 3.3 直径 10 - 2.5 mm の褐炭粒子を用いた実験の結果と考察

### 3.3.1 温度、重量および試料外観の変化

粒径 10, 5, 2.5 mm の試料の温度および重量変化を Fig. 3-3, 3-4, 3-5 に示す。また、ビデオカメラで撮影したテスト温度 170 および 110°C での試料外観を Fig. 3-6 に示す。

試験開始後、粒径 30 mm の試料と同様に、全ての粒径において褐炭粒子表面に過熱水蒸気の滴状凝縮が起こり (Fig. 3-6)、試料温度が上昇した (Fig. 3-3, 3-4, 3-5)。Fig. 3-7 に試験初期の重量および温度の変化を示す。

粒径 10 mm の試料では、表面、中間点、中心の順に、粒径 5 mm では表面、中心の順に温度が 100°C まで上昇した (Fig. 3-7 (a), (b))。直径 2.5 mm の試料では、表面温度が試験開始後すぐに一定になっており、この温度は 100°C だと考えられる。この試験初期期間においては、粒径 30 mm の試料では全てのテスト温度で 10 回以上の水滴の落下が確認されたのに対し、粒径 10 mm の試料ではテスト温度 110°C において 1 回のみビデオカメラで確認した。この滴下は重量の急激な減少としても表れている (Fig. 3-7 (a))。170, 150 および 130 °C においては、粒径 10 mm の試料からの水滴の滴下は確認されなかった。また、粒径 5 mm および 2.5 mm の試料を乾燥した際には、全ての試験温度で滴下が見られなかった。したがって、より粒径が大きく、よりテスト温度が低いほど、滴下の回数が増えると考えられる。

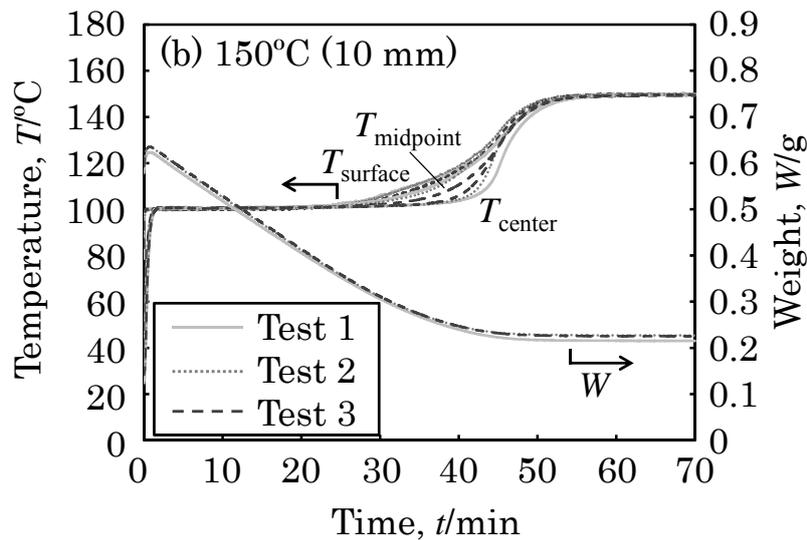
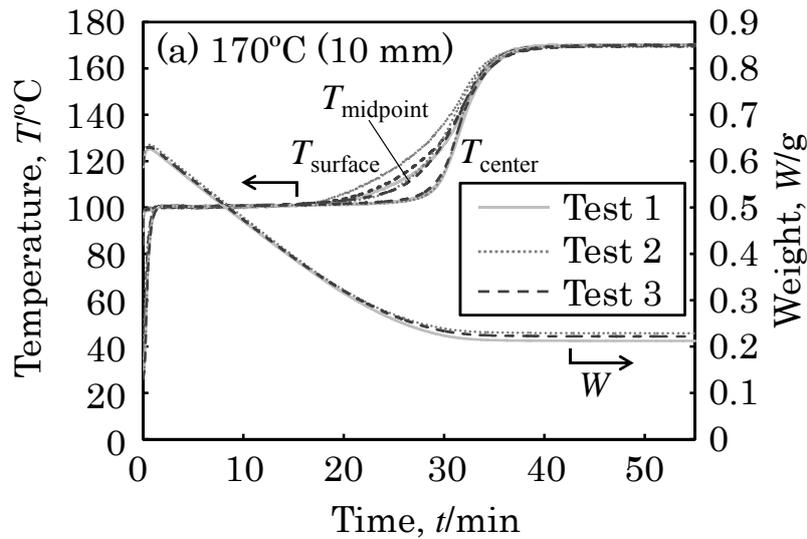
この理由について、以下のように考察できる。試験の初期においては、水蒸気の凝縮熱により、褐炭粒子の温度が上昇すると考えられる。褐炭粒子全

体の温度が 100°C まで上昇することから、初期温度が同じ場合には、粒子の表面に凝縮する水の重量は、粒子の体積に比例すると考えられる。また、粒子の体積を表面積で除した比率は、粒径に比例することから、単位表面積あたりに凝縮する水の重量も粒径に比例すると考えられる。このため、粒径 30 mm の場合と比較すると、小さい粒子では水滴の滴下が少なくなったと考えられる。また、Fig. 3-7 では、すべての粒径において、テスト温度が高いほど初期の重量の増加が小さくなっている。これは、粒子表面に水蒸気が凝縮するのと並行して水の蒸発が起こっていることから説明できる。水の蒸発は、対流と輻射の熱伝達により行われると考えられ、テスト温度が高いほど熱伝達量が大きくなるため、水の蒸発速度も速くなると考えられる。この温度依存性が試験初期の重量の変化に影響し、その結果として、粒径 10 mm においてはテスト温度 110°C のみで水滴が落下したと考えられる。

試験初期の温度の変化は、各粒径にてテスト温度に依存しなかった (Fig. 3-7)。この結果から、凝縮期間の褐炭粒子の内部温度は、100°C で一定となった表面から、熱伝導により上昇したと考えられる。

粒径 10 および 5 mm の試料において中心温度が 100°C に到達した後、粒径 2.5 mm については表面温度が 100°C に到達した約数秒後に、以下に示す典型的な過熱水蒸気乾燥の特性が見られた<sup>[1]</sup>。粒子全体の温度はある期間 100°C で一定となり、重量が一定の速度で減少する。その後、表面、中間点 (粒径 10 mm のみで確認)、中心 (粒径 10, 5 mm で確認) の順に 100°C から上昇を開始し、テスト温度に到達した。Fig. 3-6 に示す粒径 10 および 5 mm の試料外観から、テスト温度 170°C ではクラックの発生とその一時的な幅の広がりが見られるが、テスト温度 110°C ではほとんどクラックが見られなかった。テスト温度がクラックに与える影響の傾向については、粒径 30 mm の試験結果と同様である。また、粒径 2.5 mm では大きなクラックは見られなかった。このように、粒径が大きいほど、また、テスト温度が高いほど多くのクラックが発生することが確認された。乾燥の最終段階で、試料の収縮が進み、発生したクラックが閉じたことが確認された。過熱水蒸

気乾燥のプロセス終了にかかった時間は、テスト温度 170, 150, 130 および 110°C において、粒径 10 mm ではそれぞれ 50, 67, 110 および 300 min, 粒径 5 mm ではそれぞれ 17, 21, 37 および 95 min, 粒径 2.5 mm ではそれぞれ 5, 7, 11 および 35 min であった。



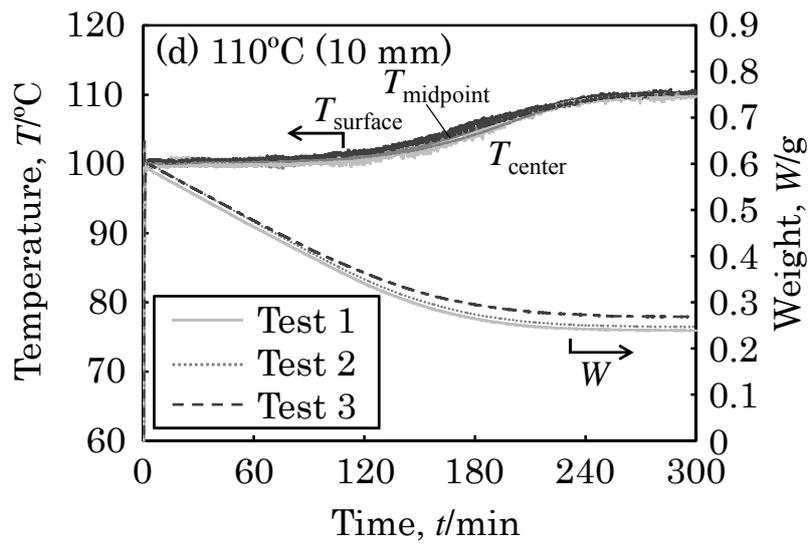
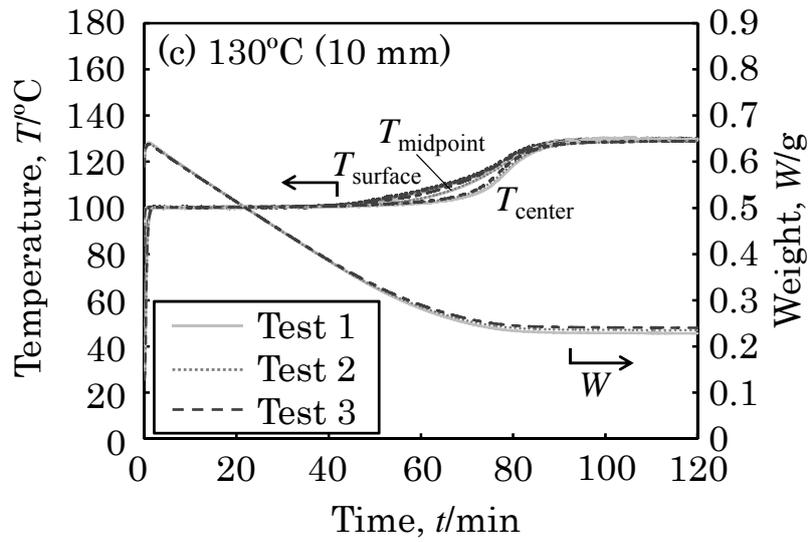
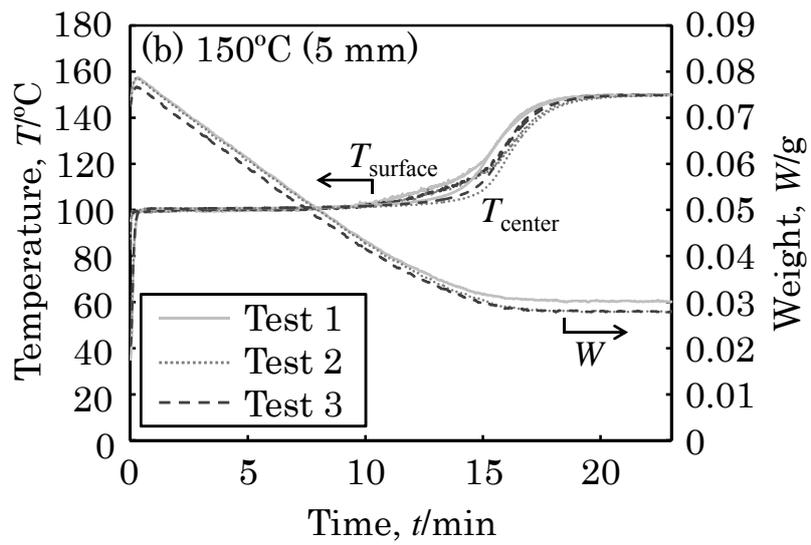
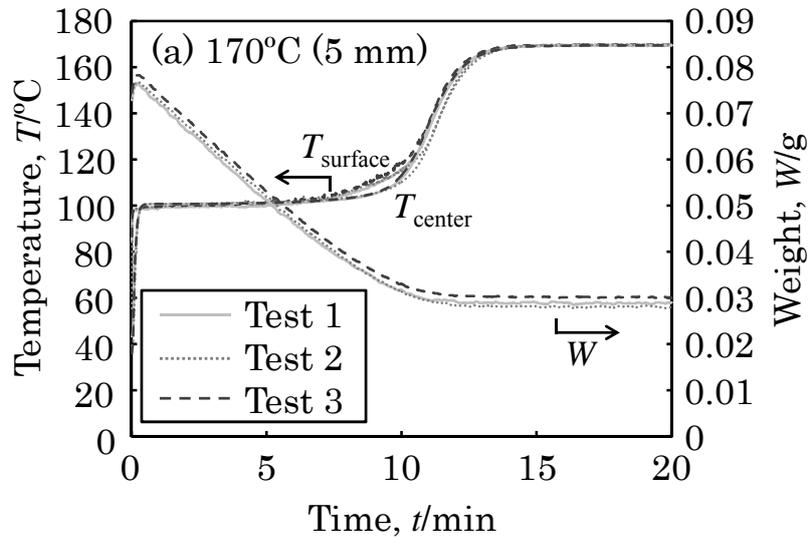


Fig. 3-3 Temperatures and weights of the samples 10 mm in diameter at test temperatures of (a) 170, (b) 150, (c) 130, and (d) 110°C.



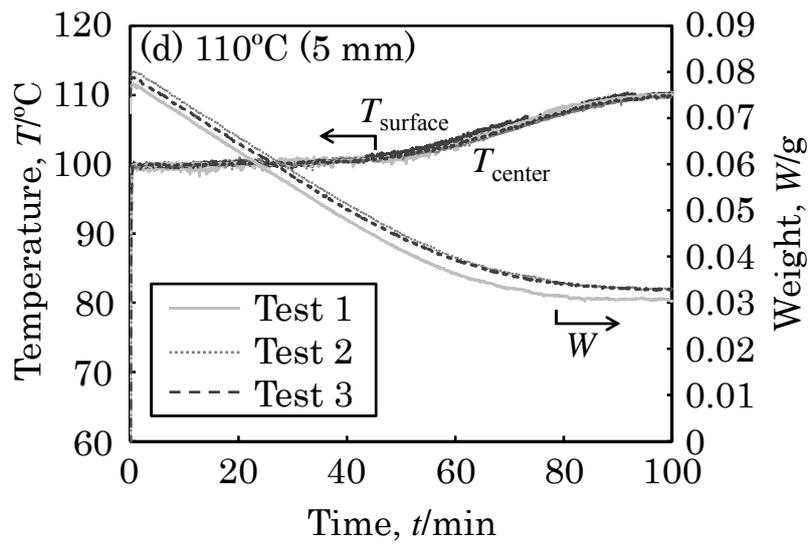
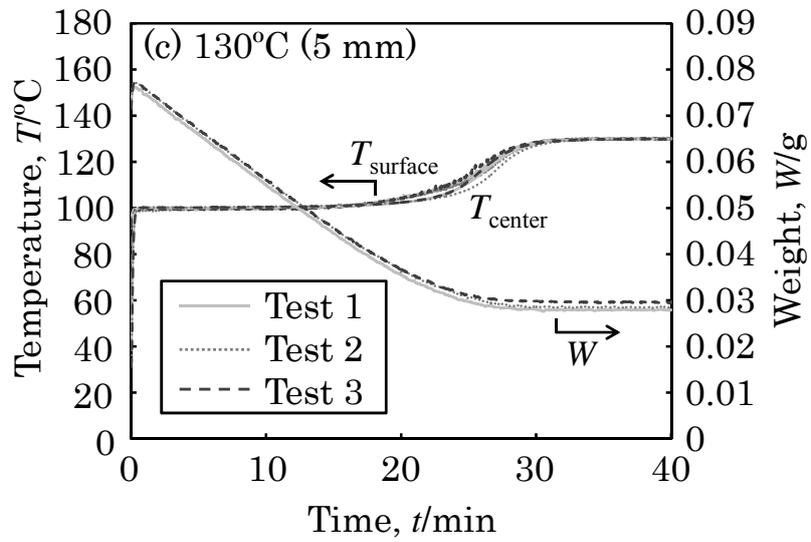
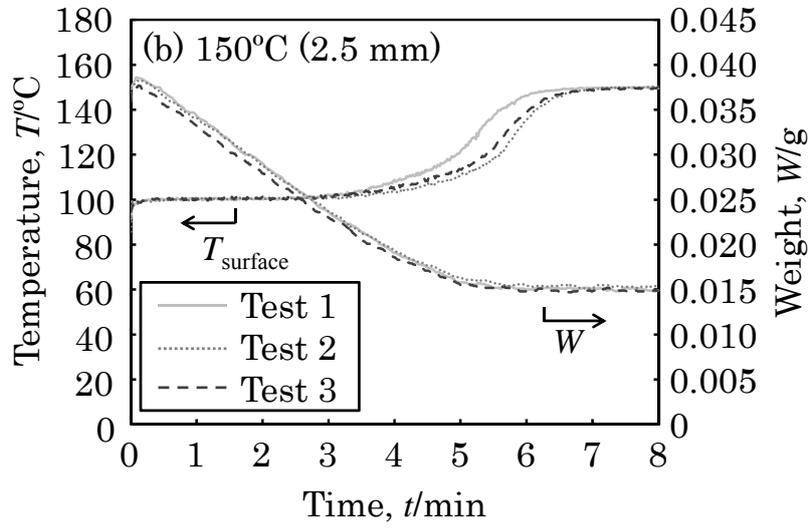
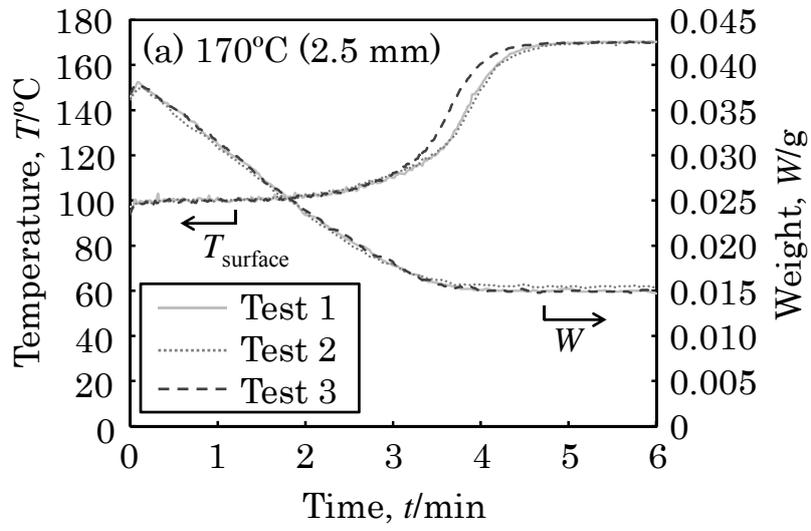


Fig. 3-4 Temperatures and weights of the samples 5 mm in diameter at test temperatures of (a) 170, (b) 150, (c) 130, and (d) 110°C.



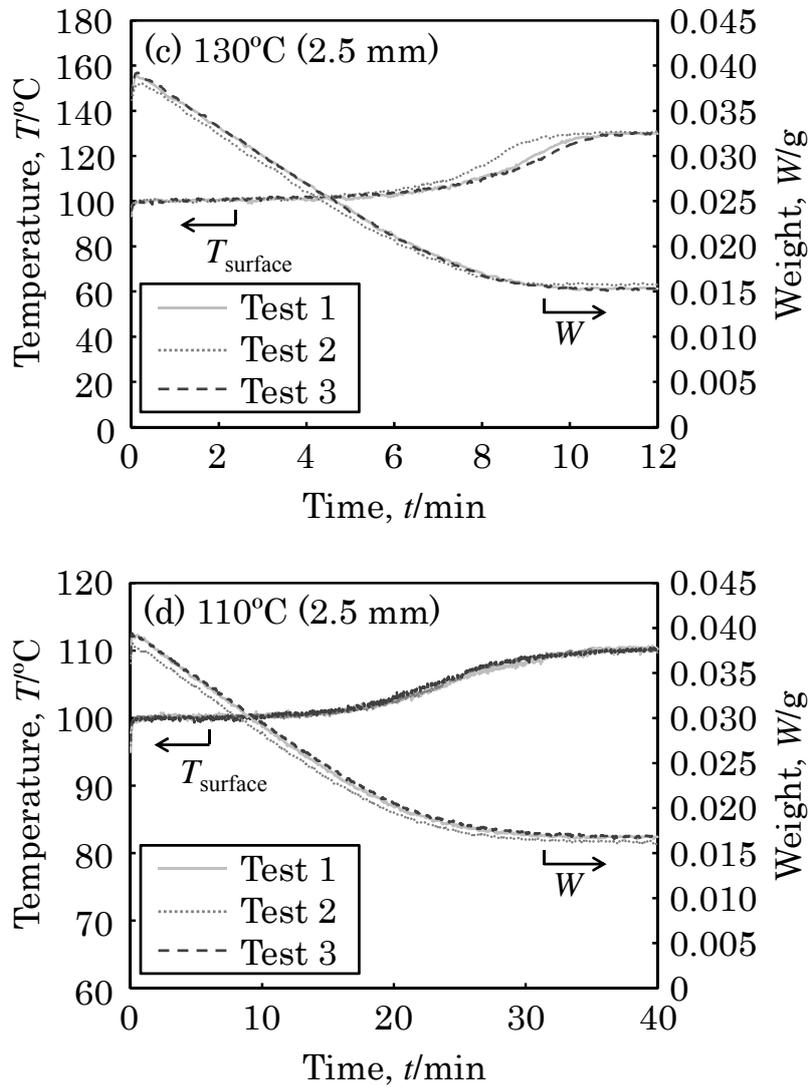
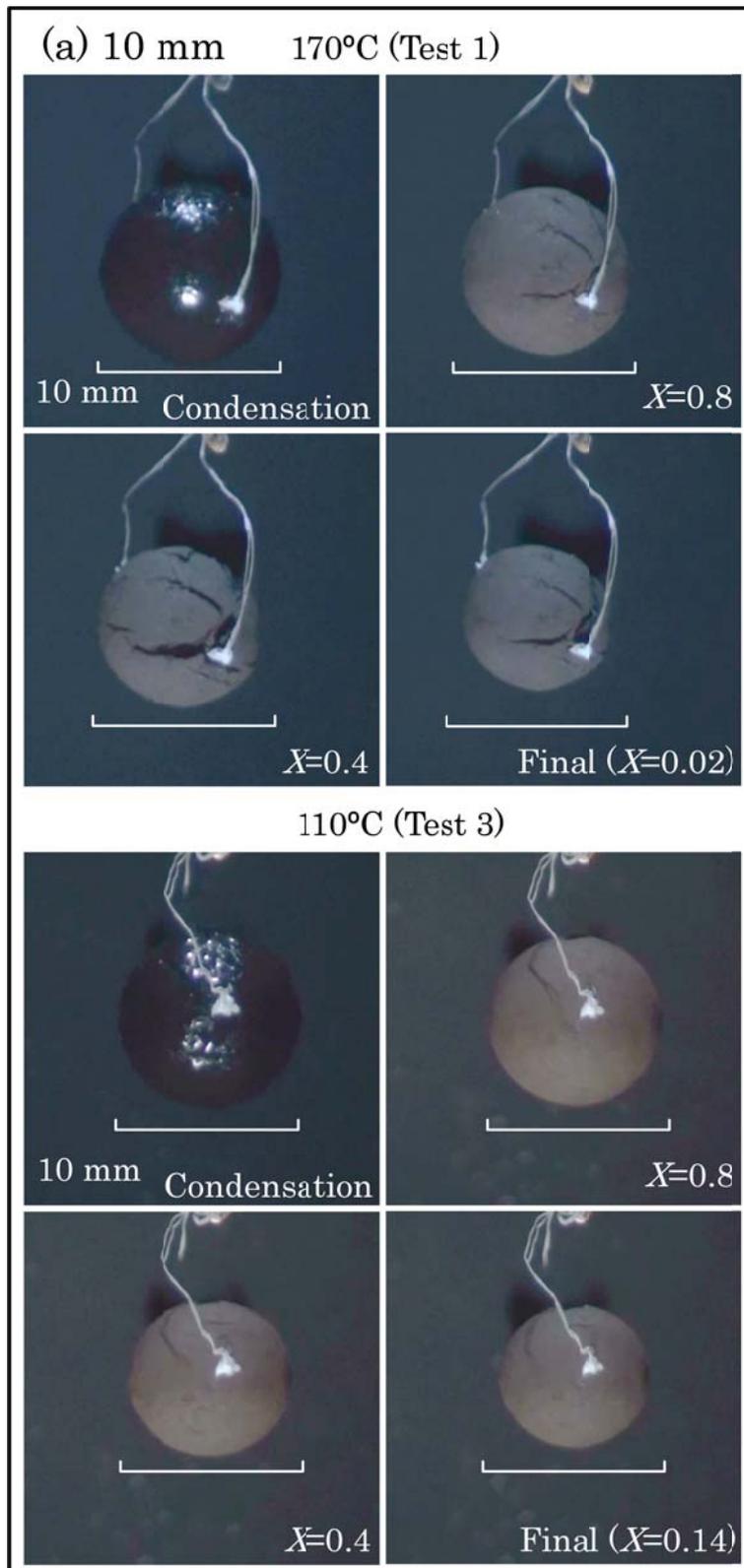
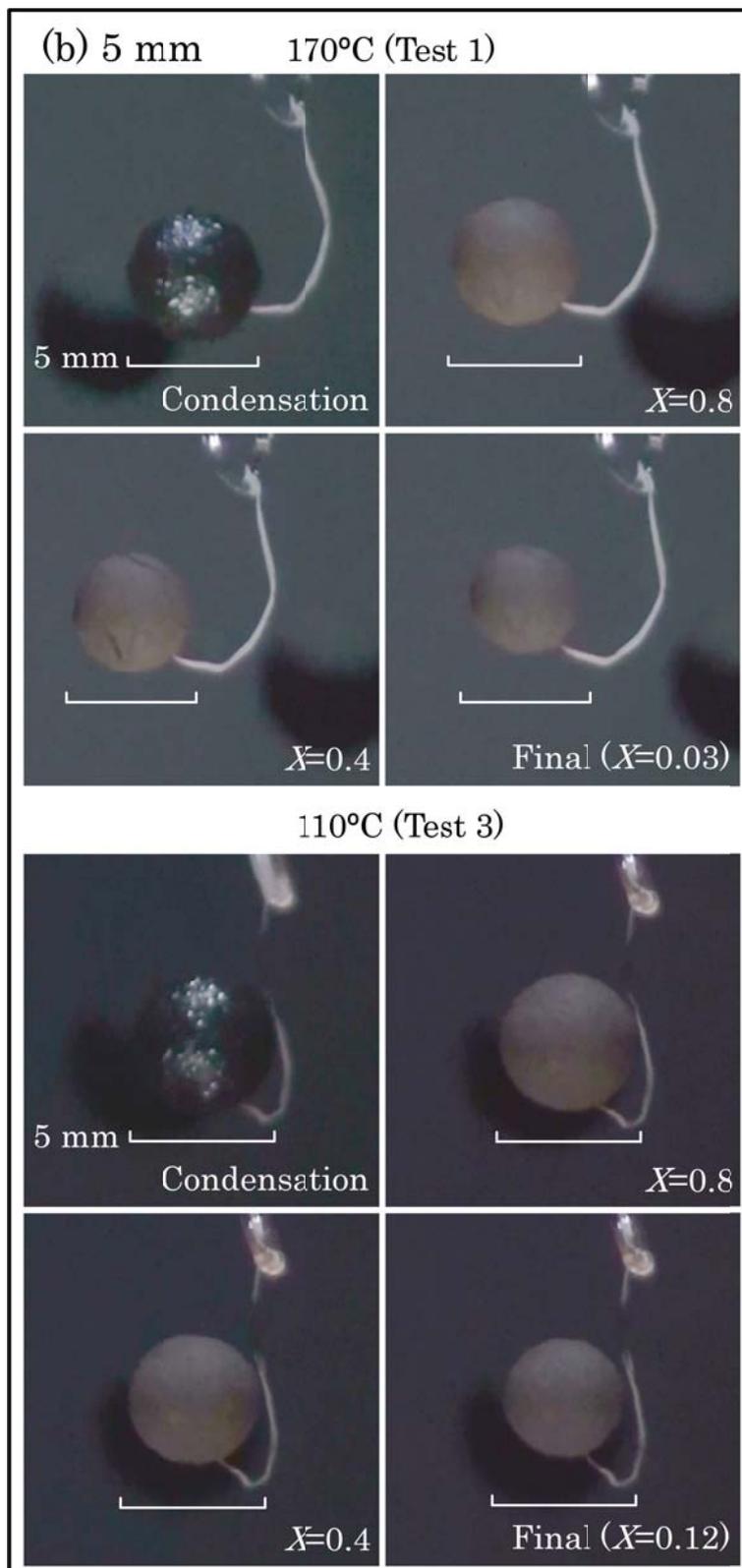


Fig. 3-5 Temperatures and weights of the samples 2.5 mm in diameter at test temperatures of (a) 170, (b) 150, (c) 130, and (d) 110°C.





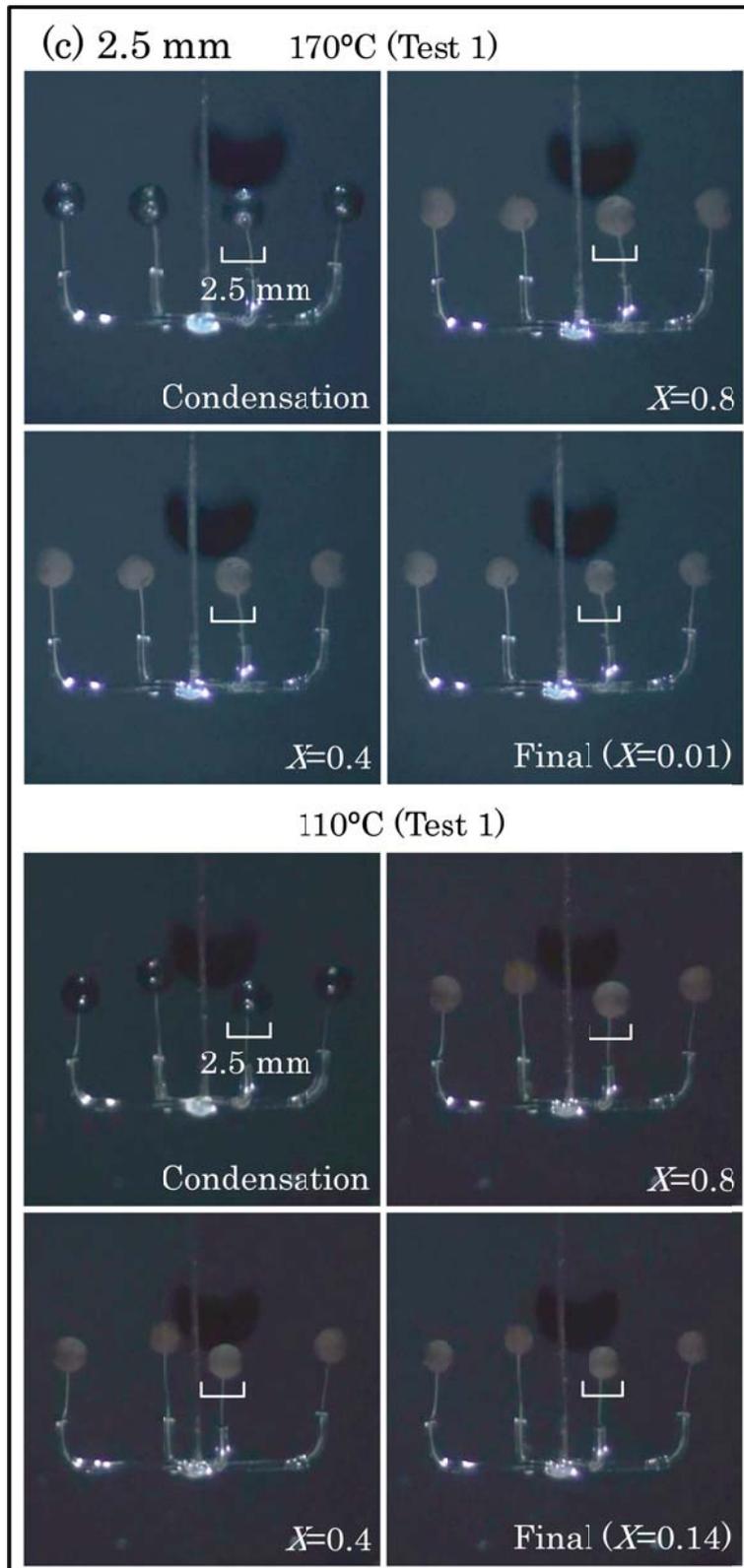
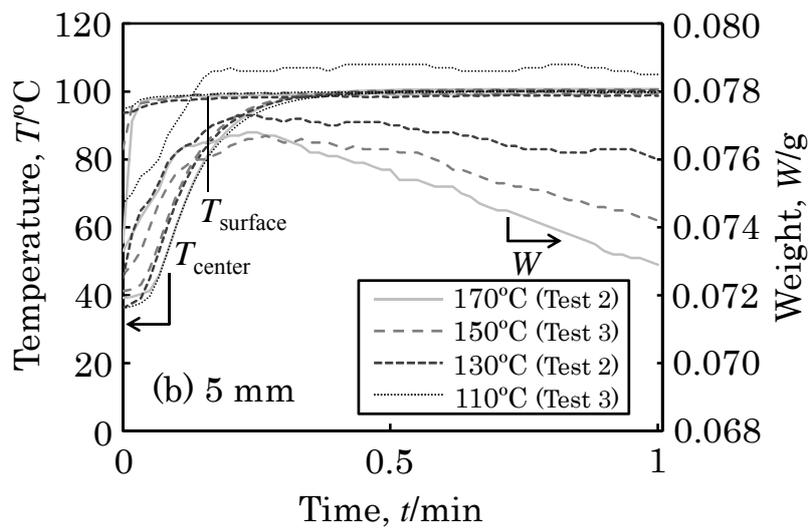
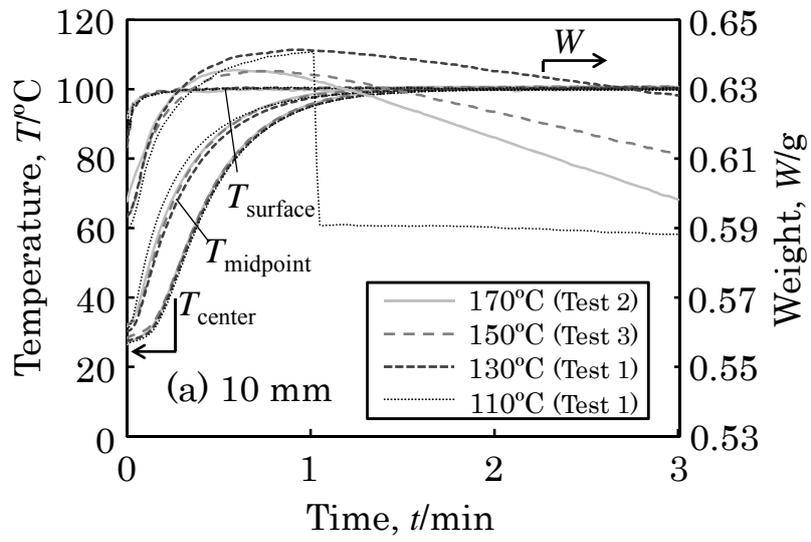


Fig. 3-6 Video images of the samples (a) 10, (b) 5, and (c) 2.5 mm in diameter at 170 and 110°C.



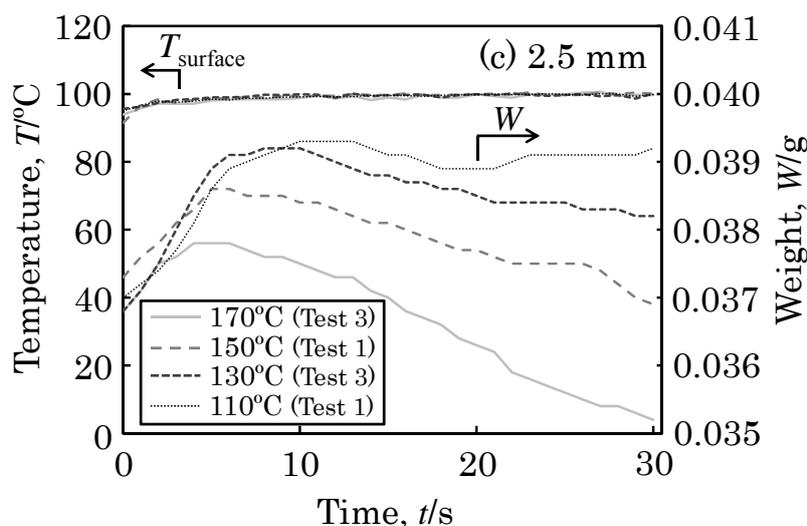


Fig. 3-7 Temperatures and weights of the samples (a) 10, (b) 5, and (c) 2.5 mm in diameter in the initial period.

### 3.3.2 含水率および乾燥速度

Fig. 3-8 に過熱水蒸気乾燥試験における各粒径の初期水分および残留水分を示す。粒径 10, 5, 2.5 mm の試料の初期水分は、それぞれ平均 63, 62, 60mass% であった。含水率に換算すると 1.71, 1.63, 1.47 となる。粒径 30 mm の試料の初期水分が 62mass% (含水率: 1.63) であったことから、粒径 5 mm 以上の試料については初期水分がほとんど同じであったと言える。粒径 2.5 mm の試料で初期水分が低い要因として、試験開始前に水分が一部蒸発したことが考えられる。乾燥試験において、テスト開始用管内に試料を設置してから、テスト開始用管を下げても試験を開始するまでの所要時間は十数秒であり、この間に試料は約 100°C の窒素雰囲気中に置かれている。他の粒径の試料でも同様にテスト試験開始前に水の蒸発が起こったと予想されるが、その影響は微量であったものと考えられる。

残留水分は、粒径に依存せず、テスト温度が高いほど少なくなった。これらの水は、石炭に吸着している結合水だと考えられる。前章で考察したとおり、試験終了時点においては結合水と過熱水蒸気が熱力学的な平衡状態にあるものとみなすことができる。したがって、各測定で用いた褐炭が化学的に

同等のものとみなせるならば、残留水分の量はテスト温度のみに依存して試料の粒径に依存しないことは理にかなっている。

Fig. 3-9 にテスト温度 170°C における含水率および乾燥速度の変化を示す。他のテスト温度の結果は、計算結果と合わせて 3.5.1 の Fig. 3-16, 3-17, 3-18 に示す。グラフを滑らかにするため、乾燥速度はテスト温度 170, 150, 130, 110°C において、それぞれ 20, 20, 30, 40 秒間の移動平均値を記載した。粒径 30 mm の試験結果と同様に、全ての試験において、乾燥速度が一定となる恒率乾燥期間 (CDRP: Constant Drying Rate Period) と、その後速度が減じる減率乾燥期間 (DDRP: Decreasing Drying Rate Period) が見られた。恒率乾燥期間中は試料全体の温度が 100°C になっており、粒子外部からの熱伝達量が一定となり、熱が水分の蒸発のみに使われたと考えられる。この間、表面には自由水が存在し、内部から表面へ供給されることにより、表面温度が 100°C に保たれていると考えられる。表面の自由水が蒸発によりなくなると、表面温度が 100°C から上昇し、減率乾燥期間へ移行すると考えられる。

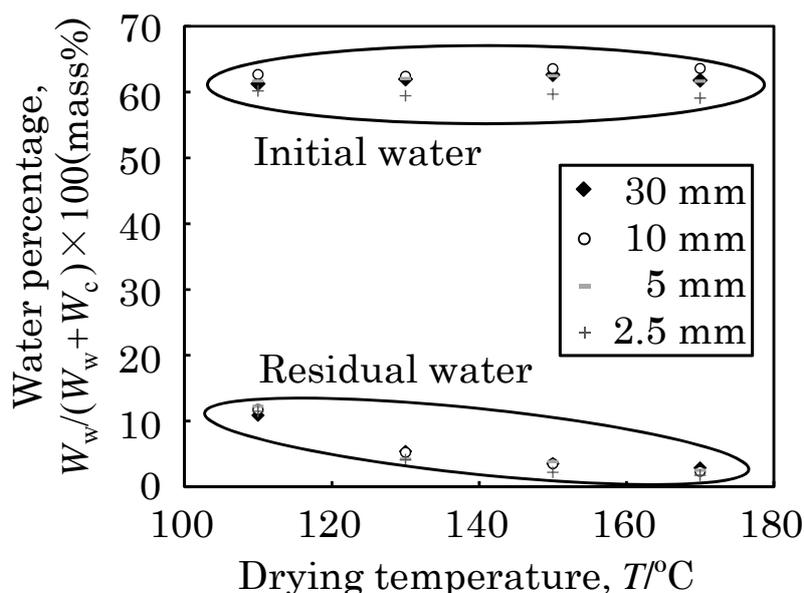
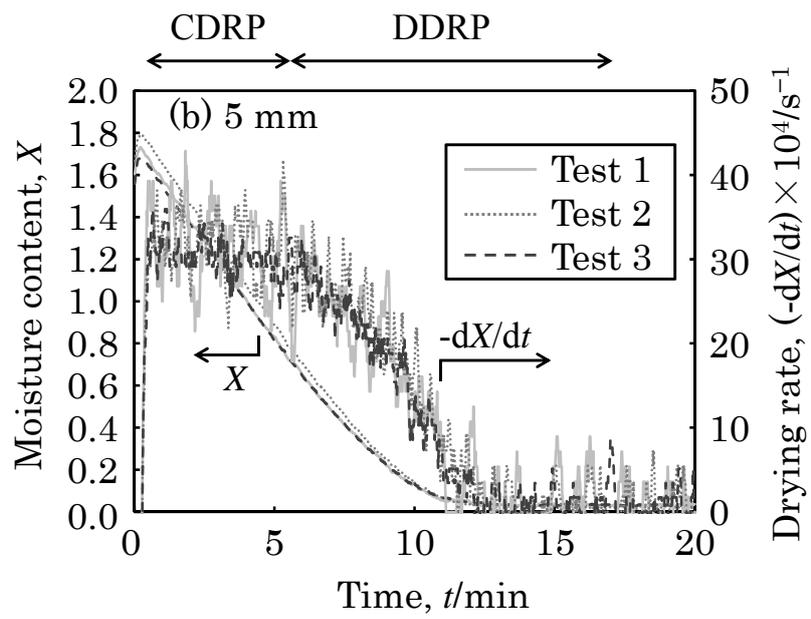
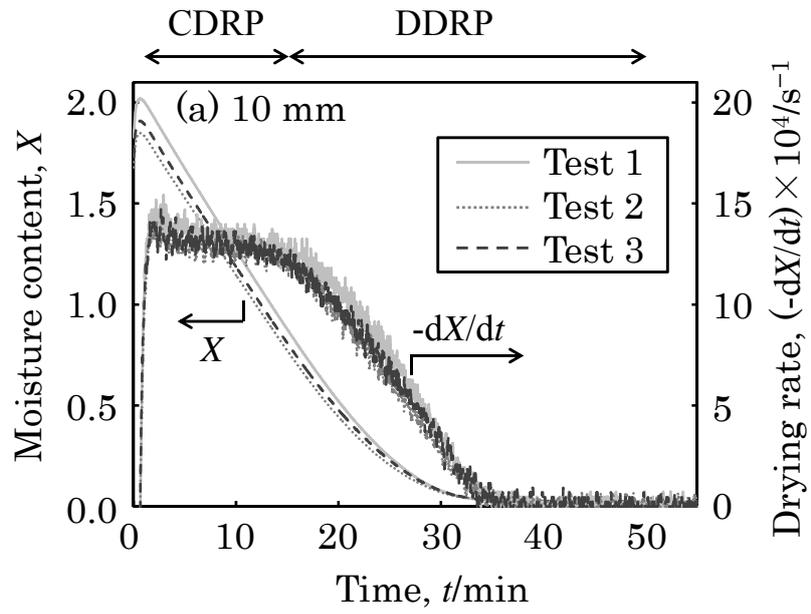


Fig. 3-8 Initial and residual water percentages.



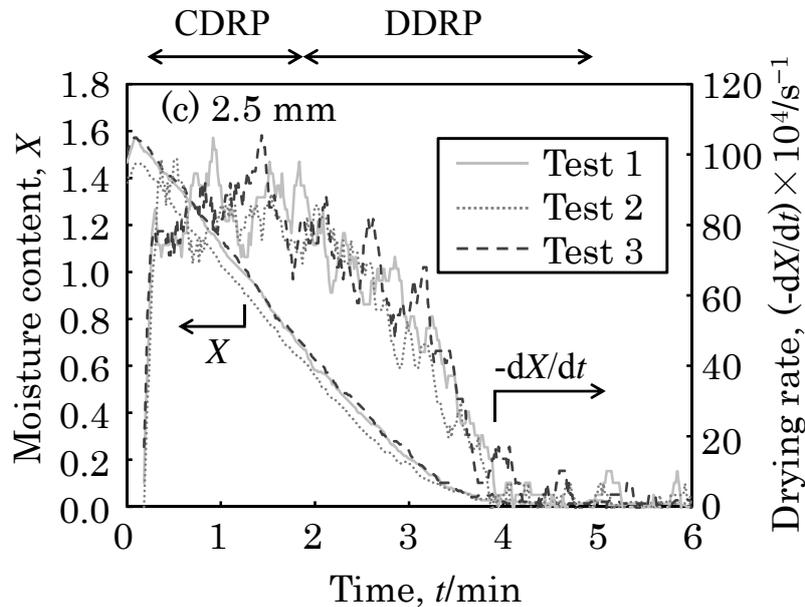


Fig. 3-9 Moisture contents and drying rates of the samples (a) 10, (b) 5, and (c) 2.5 mm in diameter at 170°C.

### 3.3.5 蒸発速度への粒径の影響

ここで、試料重量の減少速度を表面積で除した値を、水分の蒸発速度、 $v$  ( $\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ ) として定義する。算出する際に収縮の影響は考慮せず、初期表面積 ( $\pi D^2$ ) を用いた。恒率乾燥期間の蒸発速度 ( $v_{\text{CDRP}}$ ) は、含水率が 1.4 から 1.0 に変化するまでの期間における乾燥速度から算出した。Fig. 3-10 (a) に  $v_{\text{CDRP}}$  の計算結果を示す。各粒径において、 $v_{\text{CDRP}}$  はテスト温度と直線関係が見られた。また、これらの傾きを初期粒径の逆数 ( $D^{-1}$ ) に対してプロットすると、直線性が見られた (Fig. 3-11)。  $v_{\text{CDRP}}$  とテスト温度および褐炭粒子径の関係は近似的に式 (3-1) で表される。

$$v_{\text{CDRP}} = (3.56 / D + 831) \cdot (T_a - 100) / 10^5 \quad (3-1)$$

一方、乾燥プロセス全体の平均蒸発速度 ( $v_{\text{ave}}$ ) は、乾燥が完了するまでに蒸発した水分の総量 (測定前後における試料の重量減少量) と乾燥完了時

間から算出した。  $v_{\text{CDRP}}$  と同様に、  $v_{\text{ave}}$  とテスト温度との間に直線関係が確認された (Fig. 3-10 (b))。 また、これらの傾きは、  $v_{\text{CDRP}}$  と同様に初期粒径の逆数と直線性が見られた (Fig. 3-11)。 これらの関係から、  $v_{\text{ave}}$  はテスト温度と粒径を用いて近似式 (3-2) で表される。

$$v_{\text{ave}} = (2.37 / D + 358) \cdot (T_a - 100) / 10^5 \quad (3-2)$$

この式を用いると、乾燥完了までに必要な時間 ( $t_{\text{comp}}$  (s)) を以下のように予想することができる。 まず、乾燥完了までに蒸発する水の総重量を考えると、式 (3-3) の関係となる。

$$\pi D^2 v_{\text{ave}} t_{\text{comp}} = \frac{\pi D^3}{6} \cdot \varphi_{\text{c,ini}} \rho_{\text{c}} (X_{\text{ini}} - X_{\text{eq}}) \quad (3-3)$$

$\varphi_{\text{c,ini}}$  は褐炭中の乾燥炭の体積分率を示し、ロイヤン炭では 0.3 である。  $\rho_{\text{c}}$  は乾燥炭の密度であり、  $1434 \text{ kg/m}^3$  である。  $X_{\text{ini}}$  および  $X_{\text{eq}}$  は初期および過熱水蒸気乾燥完了時の含水率である。 簡易な計算のため、  $X_{\text{ini}} - X_{\text{eq}}$  を 1.6 と仮定すると、  $t_{\text{comp}}$  は式 (3-4) で表される。

$$t_{\text{comp}} = 1.15 D / v_{\text{ave}} \times 10^5 \quad (3-4)$$

この式により、実験と同様の流速 (0.02 m/s)、温度範囲 110 - 170°C の過熱水蒸気雰囲気において、粒径 2.5 - 30 mm の褐炭粒子の乾燥時間を簡易的に予測することができる。

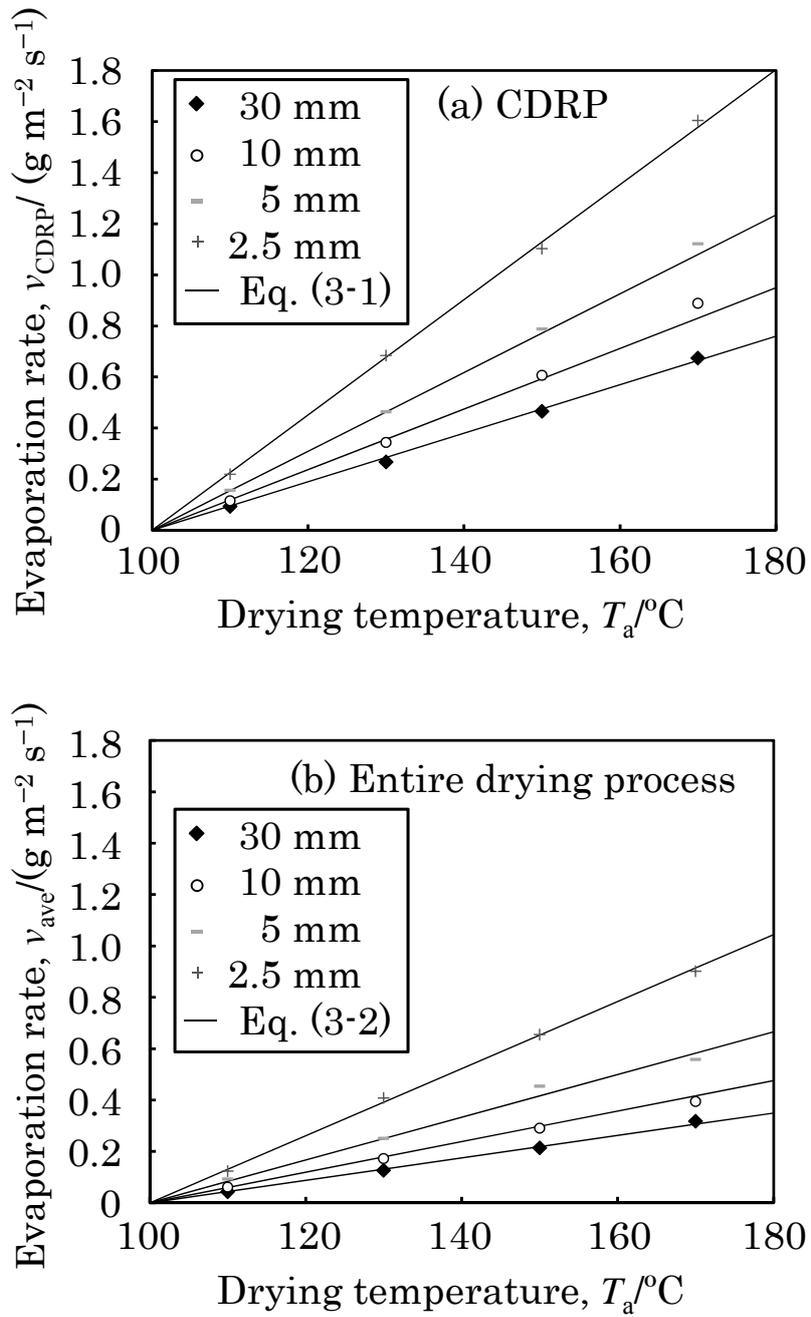


Fig. 3-10 Evaporation rates during (a) the constant drying rate period and (b) entire drying process.

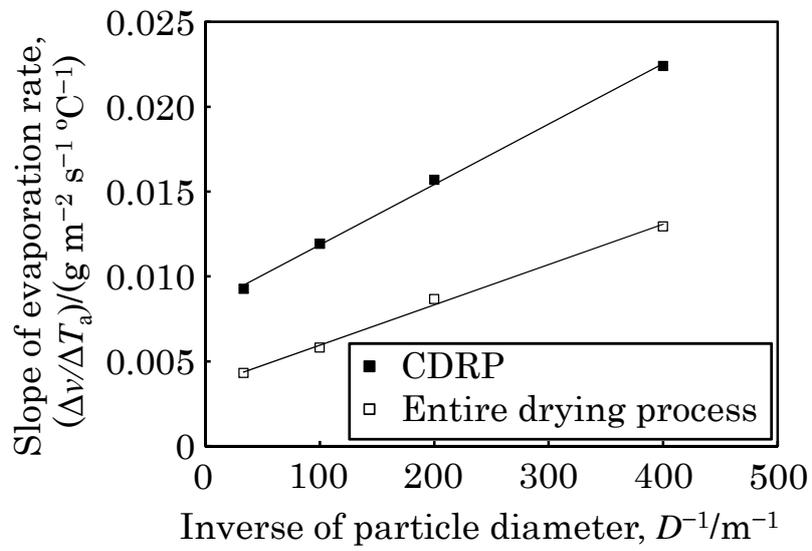


Fig. 3-11 Relationship between slope of evaporation rate in Fig. 3-10 and inverse of particle diameter.

### 3.4 数値計算モデルの修正

本章で測定した直径 10, 5, 2.5 mm の粒子の乾燥速度をもとに、前章 (2.4) で作成した数値計算モデルをより小さい粒子にも適用できるよう改善した。2.4 から変更したパラメータを Table 3-1 に示す。計算は、実験と同じテスト温度 170, 150, 130, 110°C にて行う。計算モデルの修正がどのように影響するかを確認するため、前章で計算を行なった粒径 30 mm, テスト温度 170°C についても修正後のモデルで再度計算を行った。

前章 (2.4) では、直径 30 mm の球形粒子を 61 の同一中心の殻に分割したが、分割数を 51 に変更した (Fig. 3-12)。

試料の初期温度は、粒径 10 mm の場合は粒径 30 mm と同様に 30°C とした。粒径 5 mm の試料の初期温度は実験結果をもとに 45°C とした。粒径 10 mm から 5 mm へ粒径が半分になると初期温度が 15°C 上昇することを想定したことをふまえ、粒径 2.5 mm の場合はさらに 15°C 高い 60°C と仮定した。

初期状態における褐炭粒子中の乾燥炭, 水および水蒸気の体積分率 ( $\phi_c$ ,  $\phi_w$ ,  $\phi_s$ ) は、それぞれ 0.3, 0.7, 0 と仮定する。温度が上昇すると水の膨張に伴って褐炭内部に含まれる水分の重量が減少するため、初期含水率が減少する。したがって、初期温度をそれぞれ 30, 45, 60°C と仮定した粒径 10, 5, 2.5 mm の初期含水率は 1.63, 1.62, 1.61 と想定する。

凝縮期間における粒子表面への入熱については、実験結果に合わせ、凝縮熱伝達率を 1040 から 5000 W/m<sup>2</sup>·K に変更した。凝縮期間以外は、前章では 2.2 において自然対流と輻射を仮定した式 (2-3, 2-4, 2-5) を用いたものの、粒径 30 mm, テスト温度 110°C における計算で補正を必要とした。本章においては、熱伝達率を、実験結果をもとに導いた褐炭粒径の関数へと変更する。恒率乾燥期間中は収縮の影響が無視できるとみなし、蒸発速度 ( $v_{\text{CDRP}}$ ) の実験式 (3-1) をもとに、熱伝達率 ( $h_a$ ) を式 (3-5) で表す。

$$h_a = v_{\text{CDRP}} L / (T_a - 100) = 0.0401 / r_1 + 18.7 \quad (3-5)$$

$L$  は 100°C での自由水の蒸発潜熱である．表面層への入熱 ( $\Delta Q_1$ ) は  $h_a$  を用いて式 (3-6) で表す．

$$\Delta Q_1 = h_a \cdot 4\pi r_1^2 (T_a - T_1) \cdot \Delta t, \text{ for } T_1 \geq 100 \text{ and } M_{\text{surf}} = 0 \quad (3-6)$$

実験結果から，乾燥初期において落下する水滴の重量および頻度にも褐炭粒径への依存性が見られた．Fig. 3-13 に示す簡易なモデルにより水滴落下について検討した．このモデルでは，粒子表面に薄い水の膜が形成され，粒子下部に水滴が付着した状態を考える．水滴はほぼ半球状とみなせると仮定し，その代表的な半径を  $r_{\text{wd}}$  とした．図中の  $\theta$  は，褐炭と水滴の半径から  $\sin \theta = r_{\text{wd}} / R_{\text{ini}}$  の関係となる．水の表面張力を  $\gamma$  と置くと，褐炭と水滴を結び付けている力は  $2\pi r_{\text{wd}} \gamma$  で表される．この力のうち，垂直成分を近似的に  $2\pi r_{\text{wd}} \gamma \times \cos \theta$  とする．一方，重力によって水滴が下向きに受ける力を  $4\pi r_{\text{wd}}^3 / 3 \times A \rho_{\text{wd}} g$  とする．ここで， $A$  は水滴の形状等を考慮して導入した補正係数， $\rho_{\text{wd}}$  は水滴の密度である．水の表面張力の垂直成分が，水滴に働く重力と釣り合う時，式 (3-7) が成り立ち，式 (3-8) が導出される．

$$2\pi r_{\text{wd}} \gamma \times \cos \theta = 4\pi r_{\text{wd}}^3 / 3 \times A \rho_{\text{wd}} g \quad (3-7)$$

$$\frac{r_{\text{wd}}^2}{\cos \theta} = \frac{3\gamma}{2A\rho_{\text{wd}} g} \quad (3-8)$$

さらに  $3\gamma / 2A\rho_{\text{wd}} g$  を一定と見なして  $E$  とし，を  $\cos \theta = \sqrt{1 - (r_{\text{wd}} / R_{\text{ini}})^2}$  の関係を用いると，式 (3-9) が得られる．

$$r_{\text{wd}} = \left( \frac{\sqrt{(E/R_{\text{ini}})^4 + 4E^2} - (E/R_{\text{ini}})^2}{2} \right)^{1/2} \quad (3-9)$$

粒径 10 mm ( $R_{\text{ini}} = 5 \times 10^{-3}$  m) のテスト温度 110°C において、0.05 g の水滴が滴下したことから、水滴の形状を半球と仮定すると、 $r_{\text{wd}} = 2.9 \times 10^{-3}$  m となる。また、 $E$  を求めると、 $1.05 \times 10^{-5}$  m<sup>2</sup> となった。この  $E$  の値を用い、粒径 30 mm について  $r_{\text{wd}}$  を求めると  $3.2 \times 10^{-3}$  m となる。この水滴の重量は 0.07 g となり、実験結果とほぼ一致した。以上から、式 (3-9) を液滴の最大径を求める式として計算に用いた。褐炭粒子の半径  $R_{\text{ini}}$  と水滴の半径  $r_{\text{wd}}$  の関係を Fig. 3-14 に示す。褐炭粒子の半径が小さくなると、水滴の半径は粒子の半径に近づき、褐炭粒子の半径が大きくなると、 $E^{1/2}$  ( $3.24 \times 10^{-3}$  m) に近づく傾向が確認できる。モデルに用いた薄い水の膜については、粒径 30 mm の計算結果を用いた。2.5 で述べたとおり、粒径 30 mm では、表面の水が 0.19 g になると、0.08 g の水滴が滴下した。滴下後の表面の水 0.11 g を水の膜と考え、膜の厚さ ( $d_{\text{surf}}$ ) を均一とすると、その厚さは  $4.1 \times 10^{-5}$  m となった。この値を、褐炭粒子が保有できる水の膜の最大厚さとし、上述した水滴と合わせた表面の水の重量を上限とし、それを超えた際に水滴が落下すると仮定した。

収縮については、粒径が小さいほど発生するクラックが少なくなったため、全ての計算に棒状試料の実験から得られた式 (2-21) を用いた。

計算に用いたプログラムコードを Appendix D に示す。

Table 3-1 Modified input parameters for simulation.

Parameter	Correlation/value( $T$ :Temperature( $^{\circ}$ C))	Source(related chapter)
<u>Properties of lignite (raw coal)</u>		
$T_{n,ini}$ Initial temperature	30, 45, 60 $^{\circ}$ C, for the samples 10, 5, 2.5 mm in diameter	This study (3.4)
$X_{ini}$ Initial moisture content	1.63, 1.62, 1.61 kg-H <sub>2</sub> O/kg-dry coal, for the samples 10, 5, 2.5 mm in diameter	This study (3.4)
<u>Parameters for heat input</u>		
$h_{cond}$ Heat transfer coefficient by condensation	5000W/(m <sup>2</sup> ·K)	This study (3.4)
<u>Assumptions of drying process</u>		
$r_{wd}$ Maximum radius of a water droplet on the surface	$\left(\frac{E}{R_{ini}}\right)^4 + 4E^2)^{1/2} - \left(\frac{E}{R_{ini}}\right)^2)^{1/2}$ , $E = 1.05 \times 10^{-5} \text{ m}^2$	This study (3.4)
$d_{surf}$ Maximum thickness of water film on the surface	$4.1 \times 10^{-5} \text{ m}$	This study (3.4)

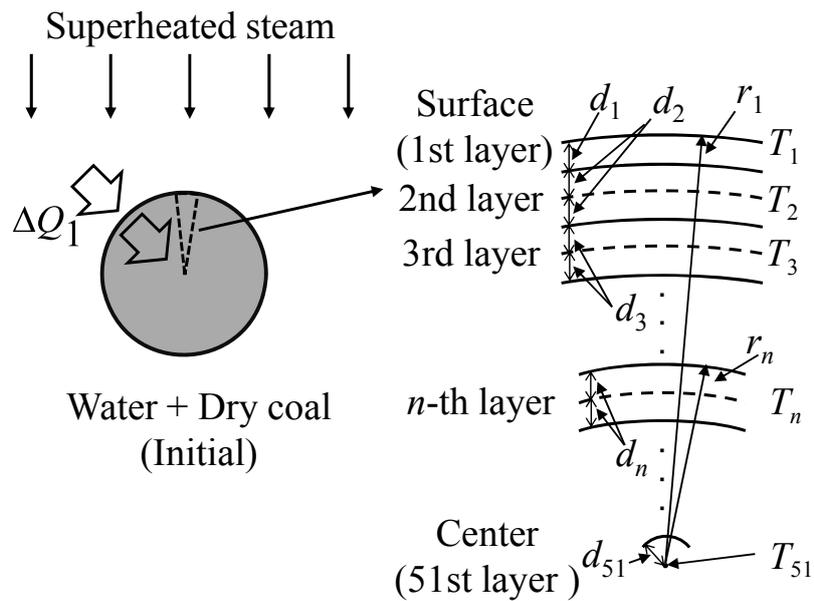


Fig. 3-12 Simulation model.

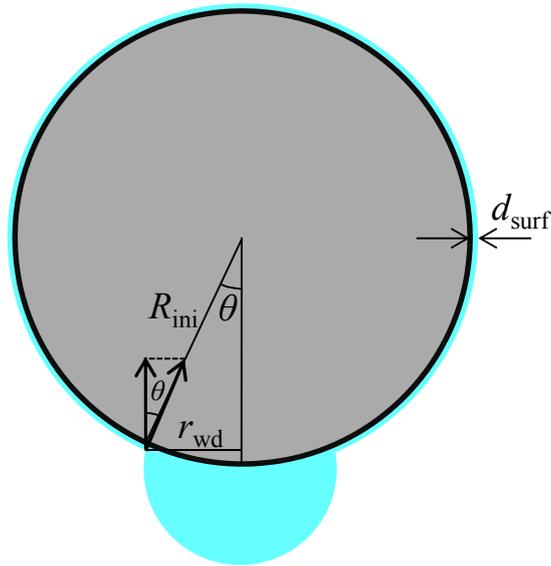


Fig. 3-13 Simple model for a water droplet attached to the surface of lignite particle.

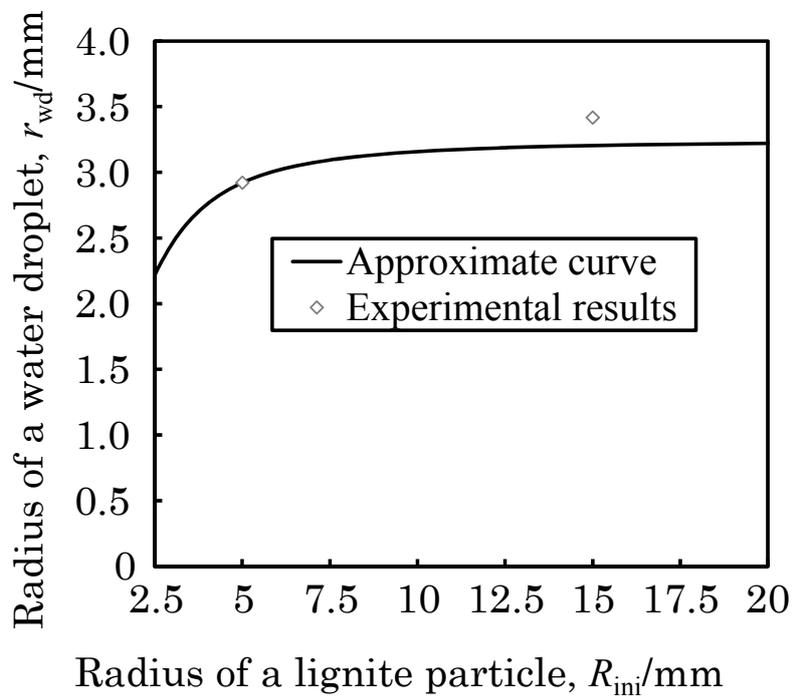


Fig. 3-14 Relationship between the radius of a lignite particle and that of a water droplet.

### 3.5 計算結果と考察

#### 3.5.1 含水率，乾燥速度および温度の変化

前項で施したモデルの修正が計算結果に与える影響を確認した。2.4 および 3.4 で記したそれぞれの計算方法によって求められた粒径 30 mm, テスト温度 170°C での含水率, 乾燥速度および温度の変化を Fig. 3-15 示す。異なる入熱の式を用いたことにより, 温度および乾燥速度に差が見られるものの, ほとんど同じ計算結果となっており, 含水率は一致している。2.4 にて, テスト温度 130°C 以上での線収縮率は, 3D スキャナの実験結果を基に補正を行ったが (Fig. 2-26), この補正を行わなくても乾燥速度に大きな影響は出なかった。これは, 収縮が急激に起こるのは乾燥の最終段階であるためと考えられる。また, 凝縮熱伝達率を変更し, 水滴の落下のモデルを用いたものの, 含水率の変化に大きな影響はなかった。以上より, 粒径 30 mm の粒子の乾燥速度を 3.4 に示した計算方法により算出しても, 2.5 に示した計算結果と同様の結果が得られることが確認できた。

粒径 10, 5, 2.5 mm の褐炭粒子の含水率, 乾燥速度および温度を計算した結果を, 実験結果とともに Fig. 3-16, 3-17, 3-18 に示す。含水率と乾燥速度は, 実験結果と良好に合致した。粒径 30 mm の計算では, テスト温度 110°C において入熱の式の補正が必要であったが, 実験値を基にした熱伝達率を用いたことにより, 補正なしでも全ての粒径について計算が可能となった。

表面温度の計算結果は実験結果と良好に一致した。しかし, 粒径 30 mm と同様に, 褐炭内部の計算温度(中間点, 中心)は, 実験結果より早く 100°C から温度が上昇した。前章の 2.5 でも指摘したとおり, 同様の不一致は他の研究例でも見られ<sup>[2, 3]</sup>, 要因としては熱電対を伝った外部からの熱伝導による実験誤差および本モデルで考慮しなかった結合水の拡散による移動が考えられる。

Fig. 3-19 に, 試験初期の重量および温度の計算結果を実験結果と比較す

る. 重量, 温度ともに実験結果と同様の傾向を示している. 粒径 10 mm , テスト温度 110°C では, 実験結果と同様に水滴が 1 回落下しており, 3.4 にて作成した水滴落下のモデル (Fig. 3-13) が妥当であったと言える.

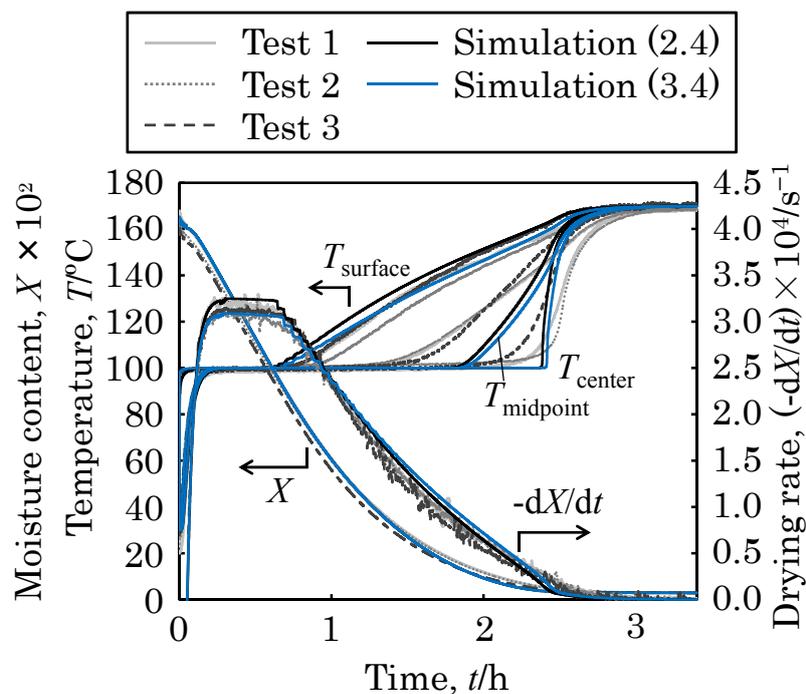
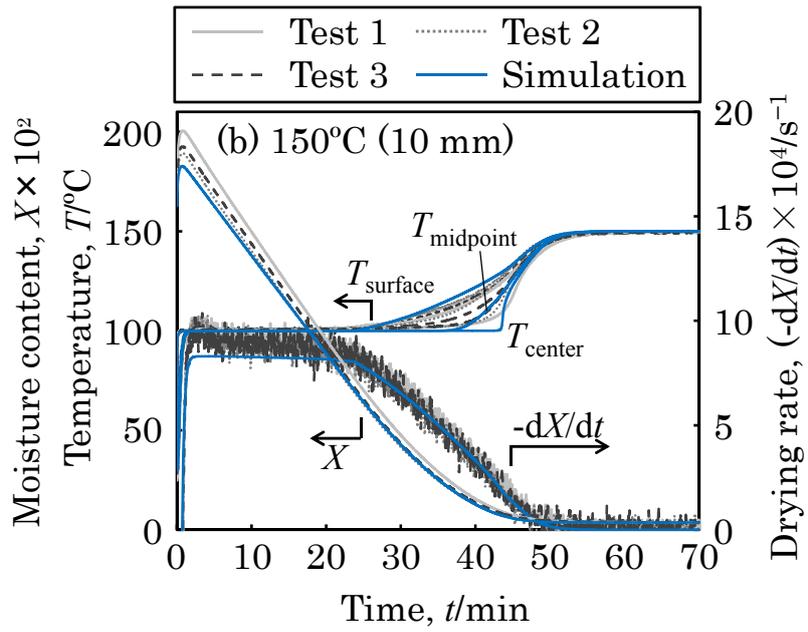
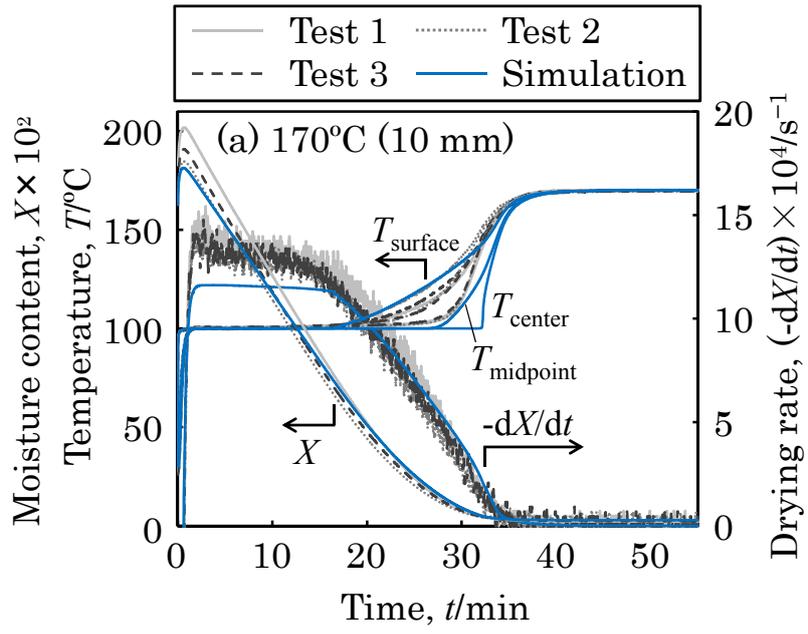


Fig. 3-15 Simulation results calculated by two methods described in 2.4 and 3.4 for the sample 30 mm in diameter at 170°C.



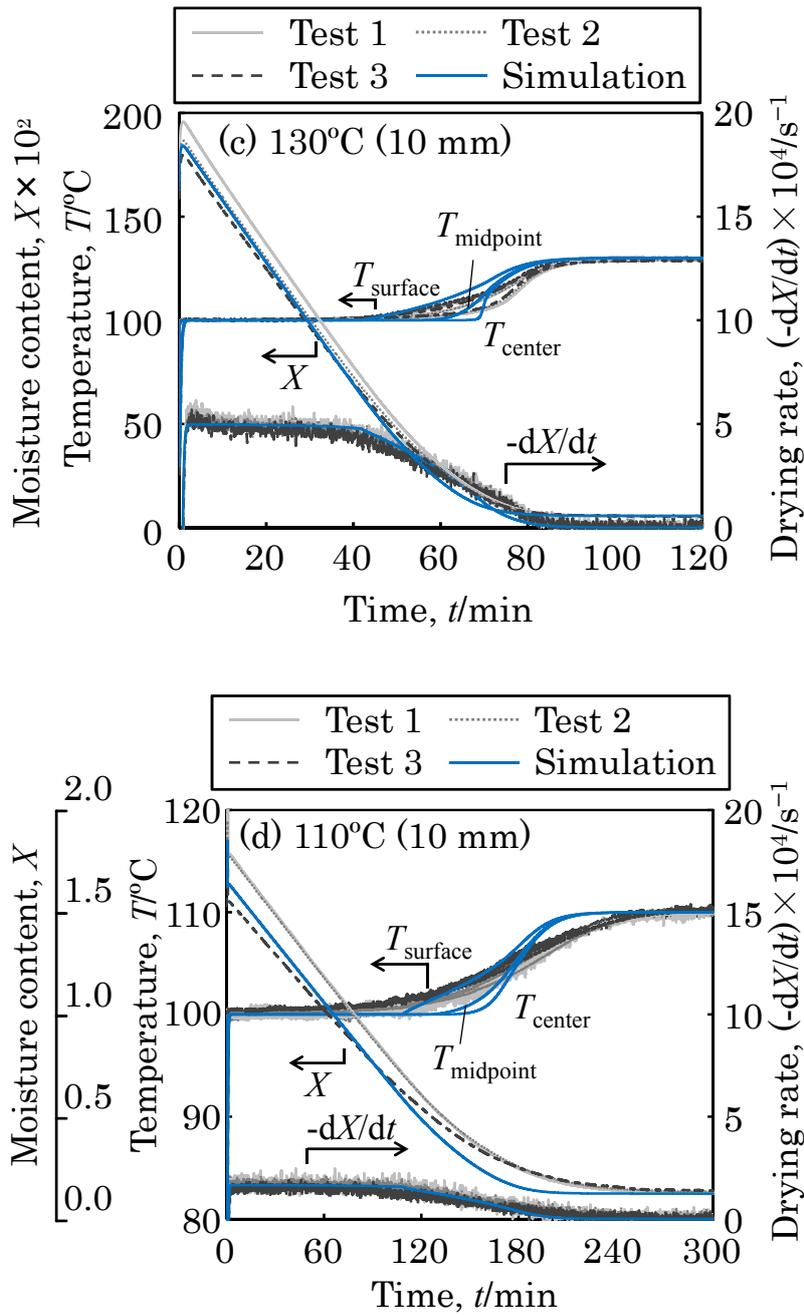
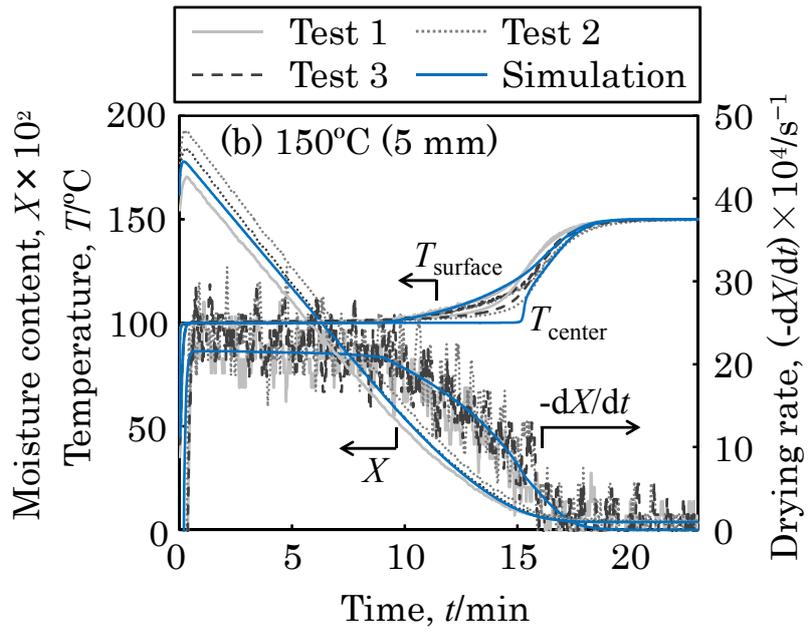
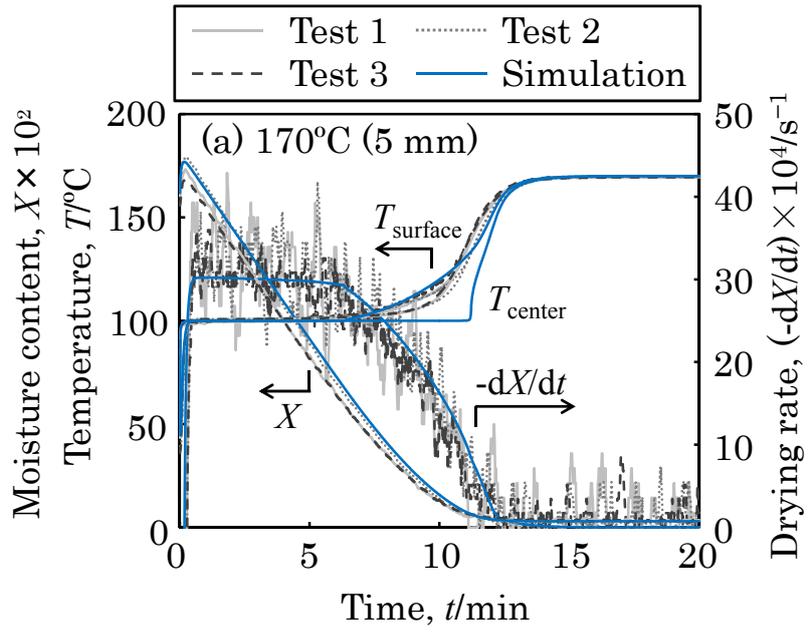


Fig. 3-16 Simulated moisture contents, drying rates and temperatures of the samples 10 mm in diameter at test temperatures of (a) 170, (b) 150, (c) 130 and (d) 110°C.



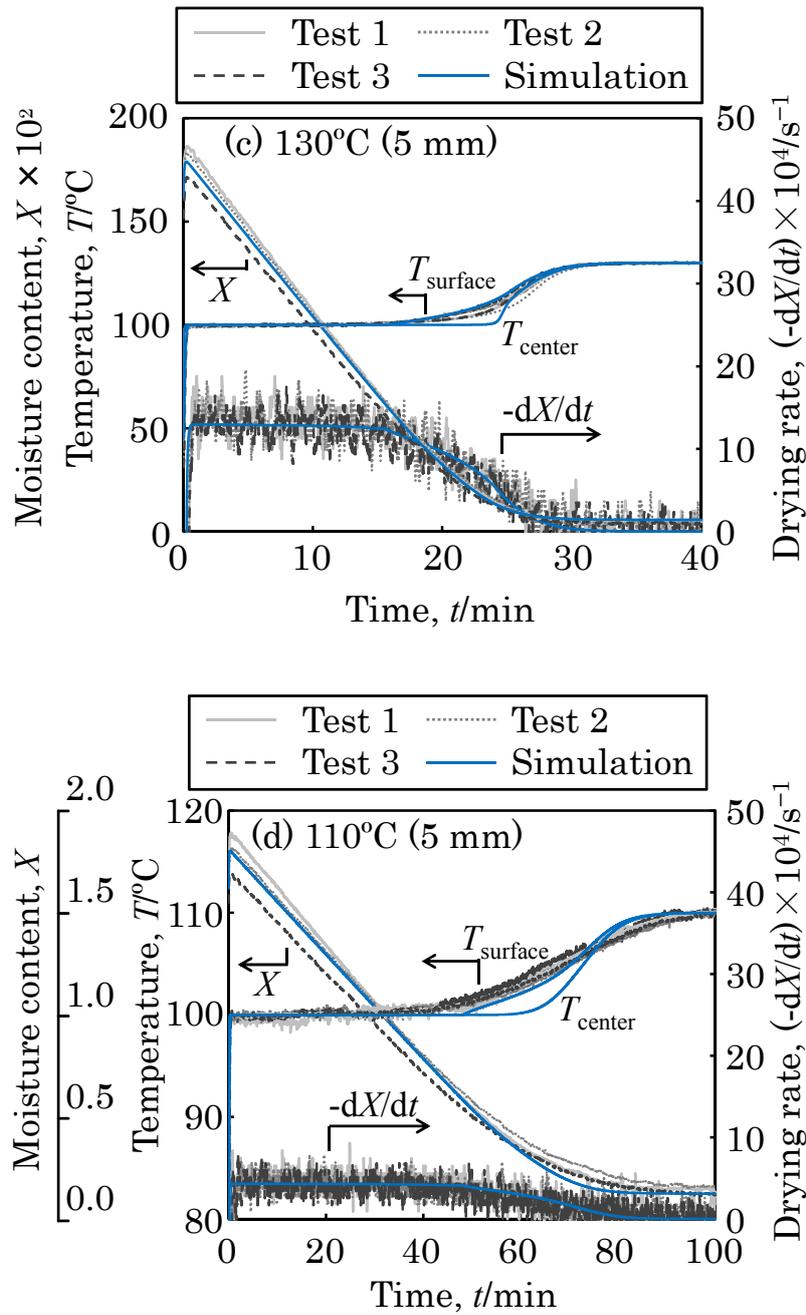
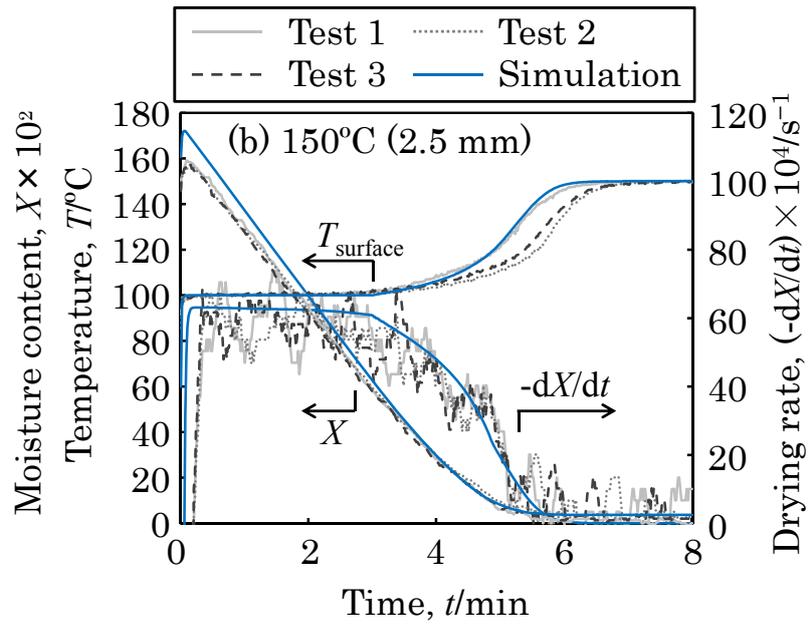
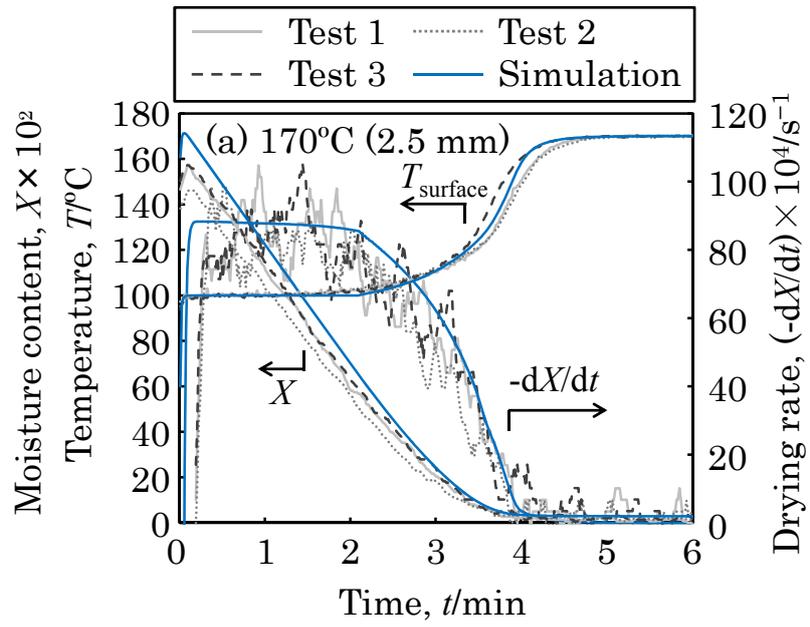


Fig. 3-17 Simulated moisture contents, drying rates and temperatures of the samples 5 mm in diameter at test temperatures of (a) 170, (b) 150, (c) 130 and (d) 110°C.



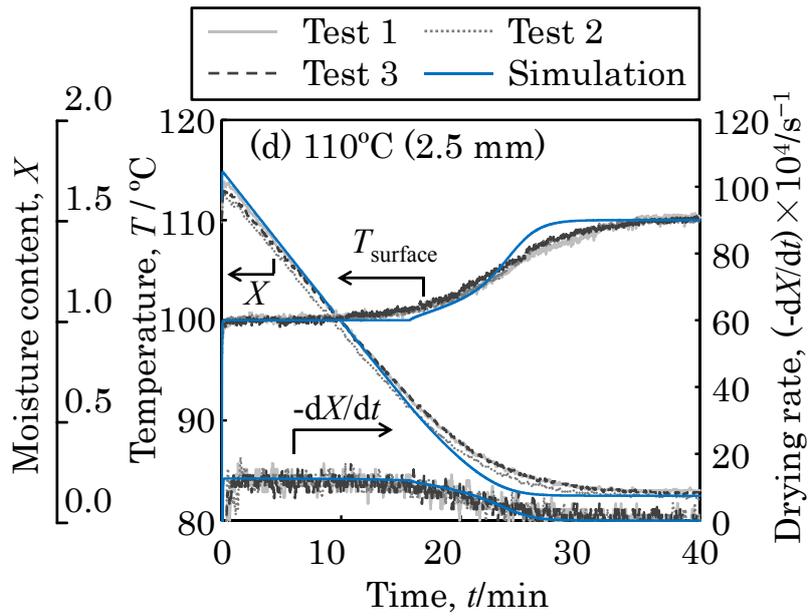
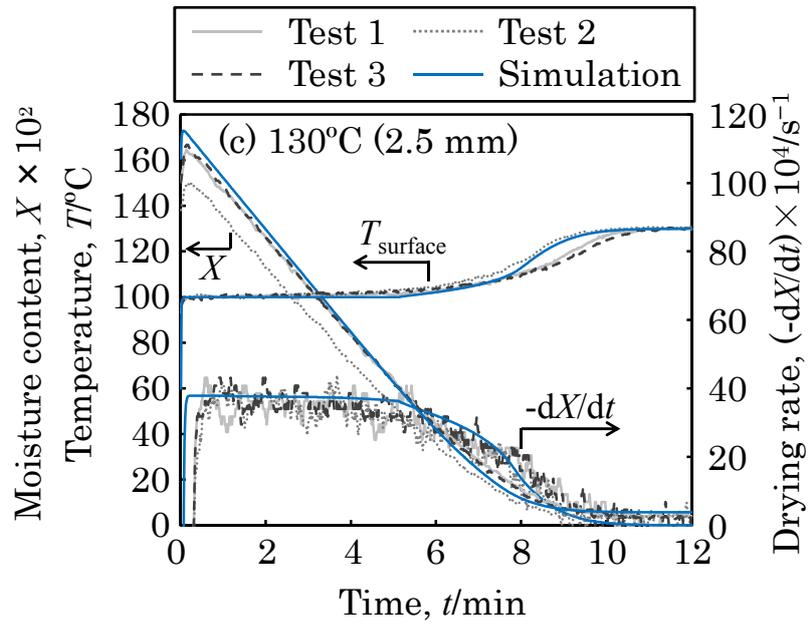
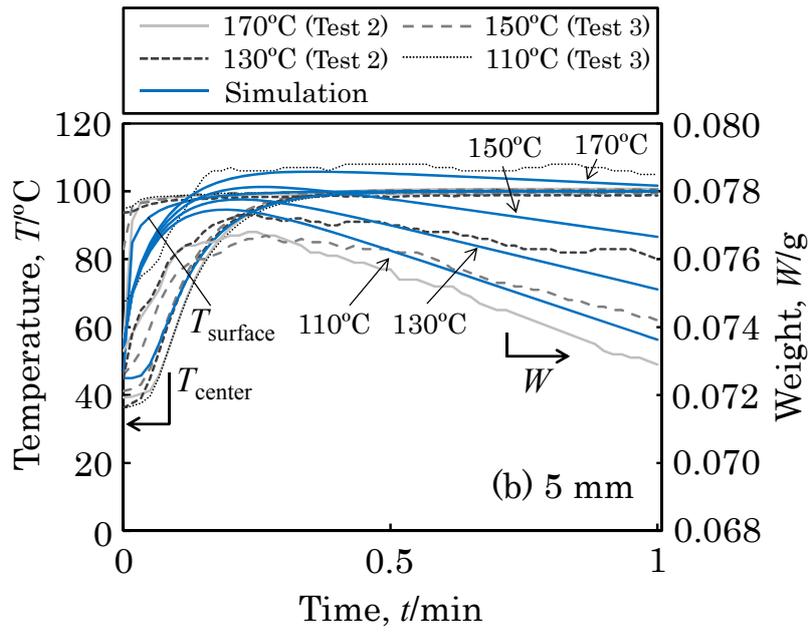
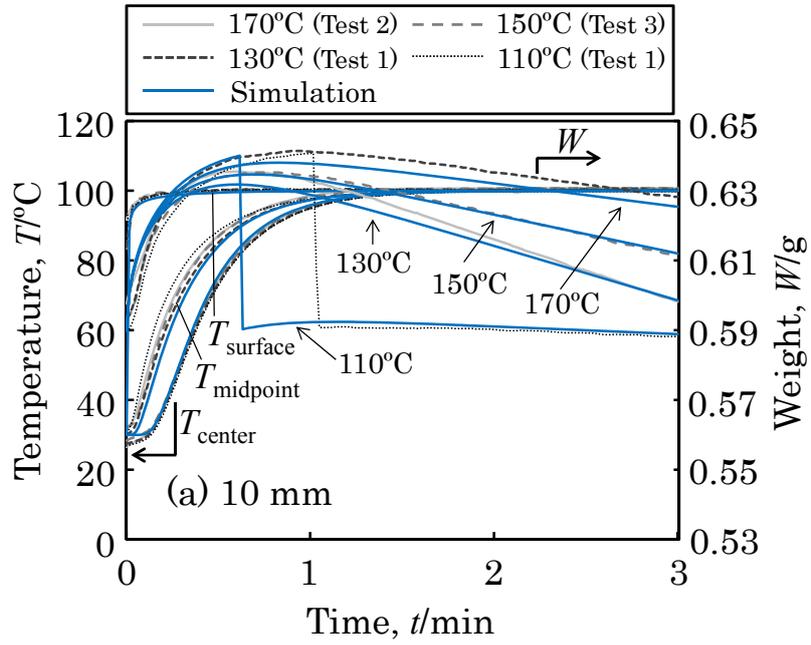


Fig. 3-18 Simulated moisture contents, drying rates and temperatures of the samples 2.5 mm in diameter at test temperatures of (a) 170, (b) 150, (c) 130 and (d) 110°C.



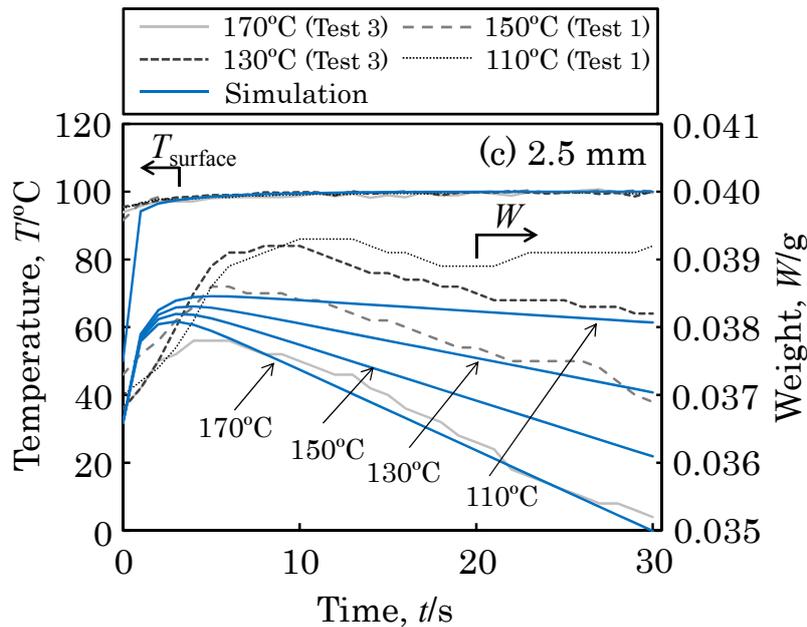
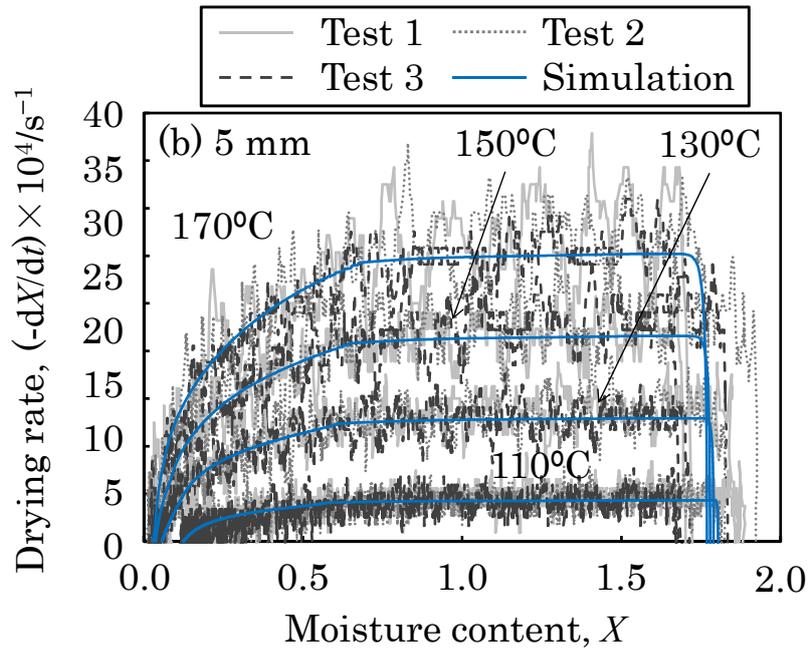
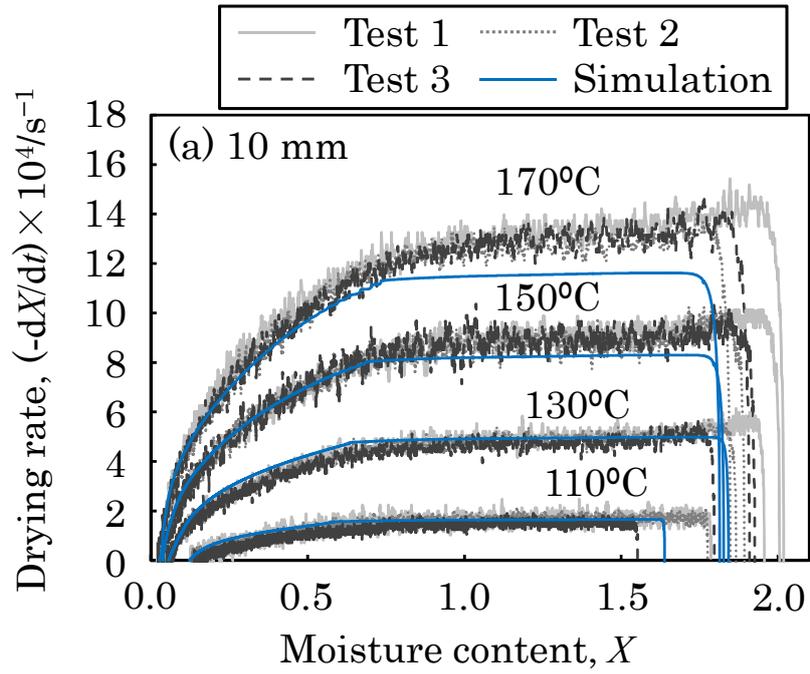


Fig. 3-19 Simulated temperatures and weights compared to experimental results in the initial period. (a) 10, (b) 5, and (c) 2.5 mm.

### 3.5.2 乾燥特性曲線

計算により求めた乾燥特性曲線を，実験の実験結果とともに Fig. 3-20 に示す．両者に良好な一致が見られた．恒率乾燥期間から減率乾燥期間へ移行する限界含水率は，テスト温度 110, 130, 150 および 170°C において，粒径 10 mm ではそれぞれ 0.59, 0.64, 0.70 および 0.75，粒径 5 mm ではそれぞれ 0.58, 0.61, 0.65 および 0.68，粒径 2.5 mm ではそれぞれ 0.57, 0.60, 0.62 および 0.65 となった．各粒径において，テスト温度が低いほど限界含水率が小さい．また，粒径が小さくなると限界含水率も小さくなり，自由水と結合水の境界として設定した含水率 0.56 に近づいた．



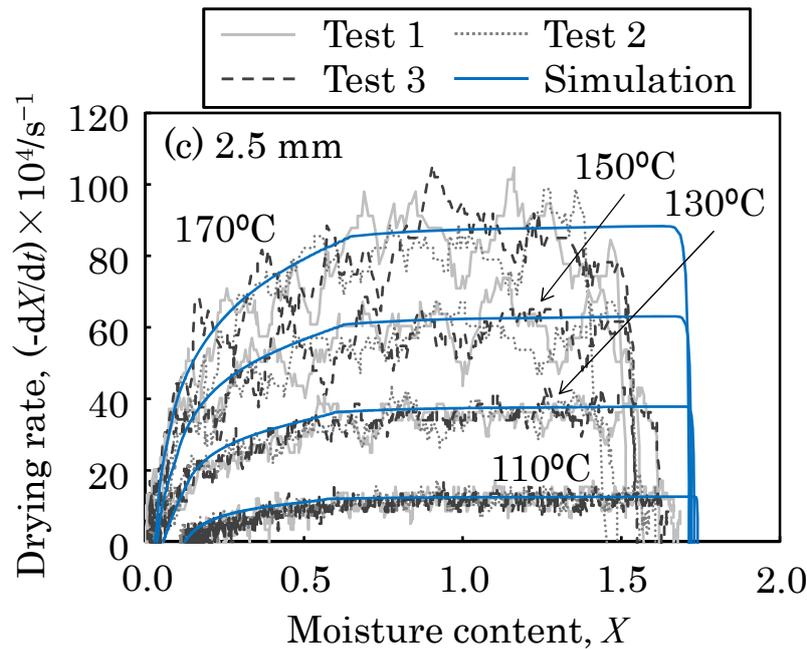


Fig. 3-20 Drying characteristic curves of samples (a) 10 , (b) 5 and (c) 2.5 mm in diameter (experimental and simulation results).

### 3.6 小括

直径 10, 5, 2.5 mm の球形の褐炭単一粒子を, 170, 150, 130, 110°C の過熱水蒸気中で乾燥し, 重量変化と温度を測定した. 重量および温度の変化は, 全ての試験において恒率乾燥期間と減率乾燥期間を示した. ビデオカメラの映像から, 発生するクラックの数は, 粒径およびテスト温度に依存することが確認された. 乾燥速度の粒径依存性について考察し, 粒径範囲 30 - 2.5 mm, テスト温度 170 - 110°C における乾燥速度および乾燥完了時間を簡易的に予測可能とした.

実験結果をもとに, 前章で作成した数値計算モデルを修正し, より粒径の小さい褐炭粒子にも適用可能とした. 本モデルでは, 熱伝達率と水滴の落下を再現するために実験値を基にしたパラメータを設定し, 粒径範囲 30 - 2.5 mm, テスト温度 170 - 110°C の範囲における乾燥挙動をシミュレーションすることに成功した.

## 参考文献

- [1] R. Toei, M. Okazaki, M. Kimura and K. Kubota: “Drying Characteristics of a Porous Solid in Superheated Steam Drying”, Chem. Eng. Japan 30 (1966) 949-950.
- [2] K. Zhang and C. You: ”Experimental and Numerical Investigation of Convective Drying of Single Coarse Lignite Particle”, Energy Fuels 24 (2010) 6428-6436.
- [3] T. Inoue, H. Iyota, N. Nishimura and T. Nomura: “Effects of Dry-bulb and Wet-bulb Temperature on the Drying Time of Spherical Porous Material in High Temperature Gas Flow”, Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. B 73 (2007) 1068-1076.

## 第4章 粒径分布を有する褐炭粒子群の乾燥速度の予測

### 4.1 緒言

本章では、前章で作成した単一粒子の数値計算モデルを用いて、粒径分布を持つ褐炭粒子群の過熱水蒸気中における乾燥速度を予測した。想定した3パターンの粒径分布について、重量割合を考慮して10点の代表粒径を選択し、単一粒子モデルを用いた乾燥速度の計算を行った。代表粒径の計算結果を合成することにより、褐炭粒子群全体の乾燥速度を予測した。計算方法を4.2に示し、計算結果を4.3で比較する。4.4を本章の小括とする。

### 4.2 計算方法

#### 4.2.1 想定する粒径分布

本章では、褐炭の粒径群が Rosin - Rammler 分布<sup>[1,2]</sup>に従うと仮定する。これは、Rosin, Rammler らが粉砕実験の統計的な研究 (P. Rosin and E. Rammler: J. Inst. Fuel, 7 (1933) 29) から導き出した式であり、石炭の粒径分布を表す際に広く利用されているものである<sup>[3-5]</sup>。このモデルにおいては、粒径  $D$  より大きな粒子の重量%を  $f(D)$  で表し、次式の関係とする。

$$f(D) = 100 \exp\left(-\left(\frac{D}{D_e}\right)^b\right) \quad (4-1)$$

$D_e$  は  $f(D)$  が 38.6% となる粒径である。また、 $b$  は定数である。

ドイツの流動層投入前 (最大粒径 ( $D_{\max}$ ) : 2 mm) の粒径分布の報告値<sup>[6]</sup>を Fig. 4-1 に示す。Rosin - Rammler 分布に従っており、式 (4-1) 中の  $b$  は 0.87 となっている。この値は 1 に近いので、本研究では計算を簡易にするために  $b=1$  として計算を行う。

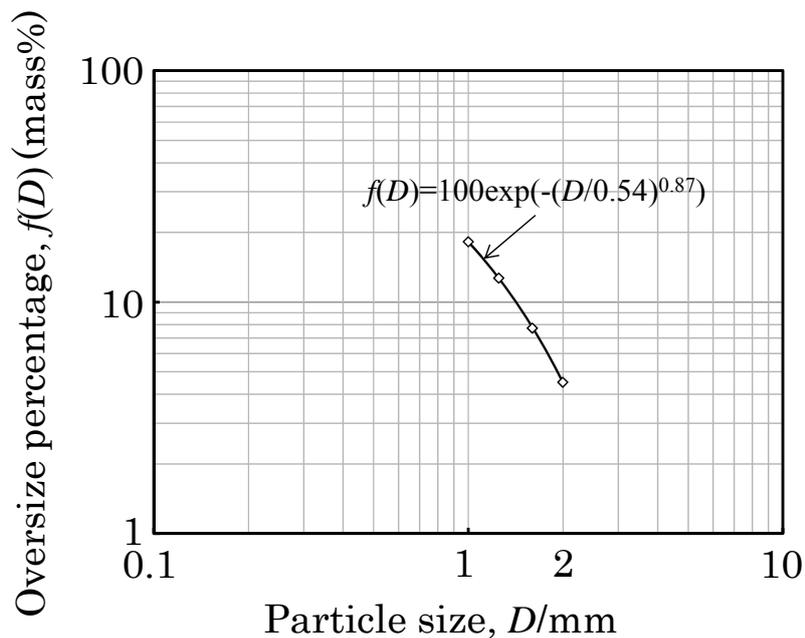


Fig. 4-1 Particle size distribution reported on raw lignite.

本章の計算では、粗めに破碎された褐炭粒子を想定し、粒径が 100, 50 および 6 mm のときに  $f(D)$  が 1 となるような 3 種類の粒径分布を設定した。つまり、褐炭群の 99mass% が 100, 50 もしくは 6 mm 以下におさまる分布であり、これらの粒径を実質上の最大粒径と見なすこととする。褐炭炭鉱から原炭バンカーに入る際に粉碎される褐炭の粒径として 100 mm が報告されており<sup>[6]</sup>、この粒径が発電所へ供給される最大のものとなる。粒径 50 mm は石炭火力発電所で用いられる一般的な大型ミルの入口最大粒径である<sup>[7]</sup>。粒径 6 mm はドイツの WTA の取り組みの中で、当初、蒸気流動層の入口最大粒径として用いられていた値である<sup>[6]</sup>。なお、オーストラリア、ヴィクトリア州で運転された蒸気流動層では、入口最大粒径は 4 mm であり<sup>[8]</sup>、現在の WTA の取り組みでは 2 mm となっており<sup>[6]</sup>、1.3.2 に述べたとおり、小粒径化による熱伝達率の向上が指向されている。

#### 4.2.2 粒子群の計算上の取り扱い

Fig. 4-2 に、最大粒径 100 mm の粒子群に対して行った数学的処理を模式的に示す。まず、粒子群の粒径分布を 10mass% ごとに区切って 10 個のサブグループに分けた。粒径の大きなサブグループから、番号を 1-10 とした。ただし、 $f(D)=0\%$  となるような粒径の上限は定義できず、 $f(D)=100\%$  となるような粒径の下限も定義することはできないため、粒径分布の両端 1mass% 分は計算から除外した。このため、 $f(D)$  が 1-10% の範囲 (サブグループ 1) と 90-99% の範囲 (サブグループ 10) では 9mass% の幅となる。それぞれのサブグループについて、 $f(D)$  が中間の値となる粒径を代表粒径とした。それぞれの代表粒径について、前章で開発した数値計算モデルを用いて乾燥をシミュレーションした。算出された含水率および乾燥速度から加重平均値を算出し、合計することにより粒子群全体の含水率および乾燥速度を得た。Table 4-1 に、サブグループごとの  $f(D)$  の値とそれに対する粒径を示す。

粒子群の乾燥速度の比較対象とするために、 $f(D)$  が 50mass% となる粒径 (以下  $D_{50}$  と記載する) についても計算を行った。 $D_{50}$  は一般的にメディアン径と呼ばれるもので、粉体の代表粒径を表す際に広く用いられる。褐炭群の計算結果を  $D_{50}$  の単一粒子と比較することで、粒径のばらつきが全体の乾燥速度に与える影響を明らかにする。

計算において、試料の初期温度は 30°C とし、凝縮期間に落下する水滴は系外に除去されるものとみなした。また、テスト温度は 170 および 110°C とした。粒径が小さい場合には計算が発散しないように時間刻みを一部変更する必要がある。粒径 2 mm 以上では前章同様  $10^{-3}$  s としたが、0.7-2 mm では  $10^{-4}$  s、0.3-0.7 mm では  $10^{-5}$  s、0.3 mm 未満では  $10^{-6}$  s とした。計算の出力は 1 s おきとした。

最大粒径 50 および 6 mm の褐炭粒子群についても同様に、Rosin-Rammler 式に従う粒度分布を 10 のサブグループに分割し、それぞ

れの代表粒径について計算を行った。

褐炭粒子への入熱の式には、単一粒子の実験から得られた式 (3-5) を用いた。ただし、最大粒径 6 mm の粒子群については、流動層中の熱伝達率の報告値を用いた計算も行い、伝熱管を内蔵する流動層中の乾燥を模擬した。流動層の温度は 110°C<sup>[8-11]</sup>、層内の過熱水蒸気温度が均一と仮定する。流動層内では、単一粒子より熱伝達率が低下することが報告されており<sup>[12]</sup>、簡易な式 (4-2) で表される  $Nu$  と式 (4-4) で表される熱伝達率を用いて乾燥速度・時間を算出した。

$$Nu = 0.03 Re^{1.3} \quad (4-2)$$

$$Re = 2r_1 \frac{v_f}{\nu_a} \quad (4-3)$$

$$h_a = Nu \frac{k_a}{2r_1} \quad (4-4)$$

$Re$  はレイノルズ数であり、 $r_1$  は粒子半径、 $v_f$  は流動化水蒸気の色度、 $\nu_a$  は水蒸気の色粘度 ( $2.21 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$  (110°C))、 $k_a$  は水蒸気の色伝導率 ( $2.55 \times 10^{-2} \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$  (110°C)) である。本計算では流動化蒸気の色度を 0.4 m/s とした<sup>[6]</sup>。

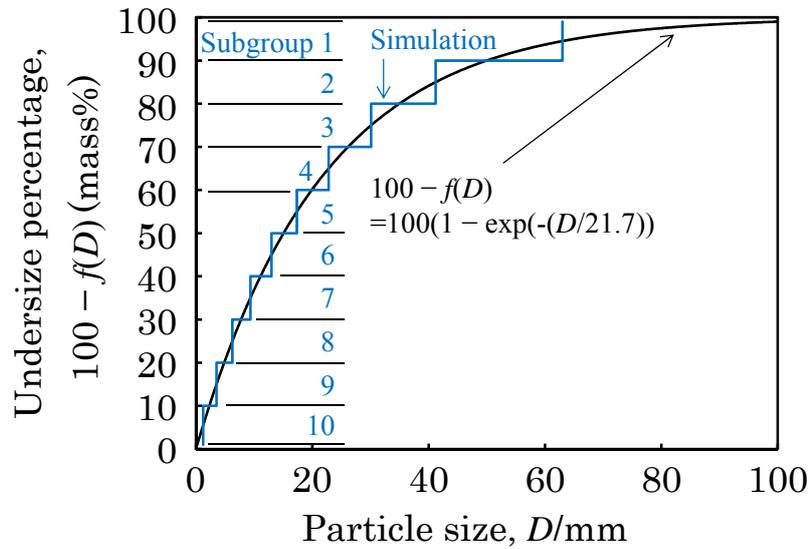


Fig. 4-2 Particle size distribution for simulation with maximum particle size of 100 mm.

Table. 4-1 Assigned groups of particle sizes and their representative values for simulation.

Subgroup number	$f(D)$		$D_{\max} = 100$ mm		$D_{\max} = 50$ mm		$D_{\max} = 6$ mm	
	boundary value (mass%)	representative value (mass%)	$D$ mm		$D$ mm		$D$ mm	
	1		100.00		50.00		6.00	
1	10	5.5	50.00	62.98	25.00	31.49	3.00	3.78
2	20	15	34.95	41.20	17.47	20.60	2.10	2.47
3	30	25	26.14	30.10	13.07	15.05	1.57	1.81
4	40	35	19.90	22.80	9.95	11.40	1.19	1.37
5	50	45	15.05	17.34	7.53	8.67	0.90	1.04
6	60	55	11.09	12.98	5.55	6.49	0.67	0.78
7	70	65	7.75	9.35	3.87	4.68	0.46	0.56
8	80	75	4.85	6.25	2.42	3.12	0.29	0.37
9	90	85	2.29	3.53	1.14	1.76	0.14	0.21
10	99	94.5	0.22	1.23	0.11	0.61	0.01	0.07

### 4.3 計算結果と考察

#### 4.3.1 最大粒径 100 mm の褐炭粒子群の乾燥速度

最大粒径 100 mm の粒子群については、 $D_{50}$  は 15.05 mm となる。この粒子群および  $D_{50}$  の単一粒子の乾燥過程における含水率と乾燥速度を Fig. 4-3 に示す。また、粒子群を構成する各サブグループの含水率変化を同図に記載する。図中の混雑を防ぐため、テスト温度 170°C における乾燥速度は粒子群については 10 min 以降、 $D_{50}$  については 1 min 以降の値のみを示す。同様に、テスト温度 110°C では粒子群については 30 min 以降、 $D_{50}$  については 2 min 以降のみを示す。初期の含水率と乾燥速度は別図 (Fig. 4-4) に示す。粒子群と  $D_{50}$  の乾燥特性曲線を Fig. 4-5 に示す。

粒径の大きいサブグループ 1 (粒径 62.98 mm,  $f(D)$ : 5.5%) が最も乾燥速度が小さく、他のサブグループと比較して含水率がゆるやかに減少している。 $D_{50}$  はサブグループ 5 (粒径 17.34 mm,  $f(D)$ : 45mass%) と 6 (12.98 mm,  $f(D)$ : 55mass%) の間の粒径であるため、それらの曲線の上に位置していることが確認できる。

乾燥初期における粒子群の乾燥速度は  $D_{50}$  と比較して大きく、含水率が早く減少している (Fig. 4-4)。また、水滴の落下が起こるため、乾燥速度のグラフにはスパイク状の急激な上昇として表れている。乾燥特性曲線においても、同様に水滴落下の影響が確認できる (Fig. 4-5)。粒子群の中で、滴下が起こるのは、粒径の大きいサブグループ 1 から 6 であり、合計して数十回以上の滴下が見られた。 $D_{50}$  の滴下はテスト温度 170°C では 2 回、110°C では 3 回となった (Fig. 4-4)、粒径 10 mm 未満のサブグループ 7 (9.35 mm,  $f(D)$ : 65mass%) では滴下が起きておらず、前章で得られた実験結果と同様になっており、現象を良好に再現できている。

この乾燥初期において、一番粒径の大きいサブグループ 1 からは、長い期間にわたり水滴の滴下が起こっている (テスト温度 170°C では 7.8 min, テスト温度 110°C では 29 min)。一回の水滴落下による含水率の減少は、

褐炭粒径が大きいほど小さくなる。前章にて記載したとおり (Fig. 3-14), 褐炭粒子が大きくなるにしたがい水滴の径は一定値へと近づくためと解釈できる。

$D_{50}$  の単一粒子の乾燥速度に注目すると、凝縮期間から恒率乾燥期間への移行が確認できる。一方、粒子群については、水滴の落下を含む凝縮期間、恒率乾燥期間、減率乾燥期間、乾燥終了といった乾燥プロセスが、粒径ごとに異なる時間で進行し、それらが合成されている。このため、単一粒子のような恒率乾燥期間は見られなかった (Fig. 4-3, 4-4, 4-5)。

サブグループごとの乾燥に着目すると、粒子群全体の乾燥速度への寄与について以下のように考察できる。テスト温度 170°C の計算結果においては、サブグループ 10 の恒率乾燥期間が継続している間 (1 min 以前)、粒子群全体の乾燥速度は  $30 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  付近まで上昇している。これは、より径の大きい粒子において温度上昇が進行し、乾燥速度が上昇しているためである。サブグループ 10 は 0.7 min に減率乾燥期間に移行し、1.8 min で乾燥が終了する。一方、サブグループ 9 は 4 min において恒率乾燥期間から減率乾燥期間に移行するため、粒子群の乾燥速度は  $10 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  をピークとして減少している。さらに、9 min においてサブグループ 8 が減率乾燥期間に移行し、乾燥速度が  $6 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  から  $4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  へ減少している (Fig. 4-3 (a))。

乾燥特性曲線 (Fig. 4-5 (a)) においても、各サブグループの乾燥速度変化によって粒子群全体の乾燥速度が段階的に減少していることが示されている。例えば、サブグループ 8 における恒率乾燥速度から減率乾燥速度への移行が、Fig. 4-5 (a) 中では含水率 1.1 からの乾燥速度の減少に対応する。また、含水率 1.5 および含水率 1.1 において、サブグループ 10 および 9 の乾燥がそれぞれ終了している。

テスト温度 110°C においても同様に、各サブグループの乾燥速度が合計されることにより、褐炭粒子群の乾燥速度が段階的に減少した。

実用的な乾燥プロセスにおける目標値として、ここでは水分 15mass% (含

水率:0.18)を想定する.この値はドイツのWTAの値(乾燥後 10 - 20mass%)の中間値である<sup>[6]</sup>. Fig. 4-3, 4-4 には, この値を示してある.

目標値となる含水率 0.18 に到達した時間は,  $D_{50}$  では, テスト温度 170°C において 43 min, テスト温度 110°C において 293 min となった. これに対し, 粒子群では, 170°C において 104 min, 110°C において 915 min かかり,  $D_{50}$  と比較すると, それぞれ 2.4 倍, 3.1 倍となった. テスト温度 170°C では, 粒子群が含水率 0.18 に到達した際にサブグループ 10 から 5 は平衡含水率 0.03 に到達しており, サブグループ 4 もほぼ平衡含水率付近まで到達している. この時点でサブグループ 3 から 1 の乾燥が進行中であり, このときサブグループ 1 の含水率は 0.91 となっている. 一方, テスト温度 110°C では, 粒子群の含水率が 0.18 に達した時点で, 既にサブグループ 3 も平衡含水率 0.12 にほぼ到達し, サブグループ 2 および 1 の乾燥が進行中である. このときサブグループ 1 の含水率は 0.57 である. 以上で明らかのように, 粒子群の乾燥時には粒径が小さいサブグループから順番に平衡含水率に到達する. 110 °C での乾燥時には 170°C よりも平衡含水率が高いため, 粒子群全体の含水率を目標値とするためには, 大きい粒子を低い含水率まで乾燥させる必要がある.

以上で示したとおり, 同じ代表粒径の褐炭群であっても, 粒径が広く分布している場合は, 大きい粒子の乾燥速度が遅いことが全体の乾燥速度に影響し, 全体の含水率が目標値に達するまでに時間がかかる. ここで, 粒子群を篩分けし, 粒径の大きいサブグループを取り除いた場合の乾燥を考える.

篩分けによって粒径の最も大きいサブグループ 1 を除いた場合 (A), サブグループ 1 および 2 を除いた場合 (B), さらにサブグループ 1 から 3 までを除いた場合 (C) の粒子群の含水率の変化を Fig. 4-6 に示す. テスト温度 170°C において, 篩分けされた粒子群 (A), (B), (C) の含水率 0.18 への到達時間は, それぞれ 75, 55, 42 min となった. 篩分けしなかった場合の到達時間 104 min と比較すると, それぞれ 3 割, 5 割および 6 割程度減

少した。一方，テスト温度 110°C では目標含水率への到達時間は (A) 631 min, (B) 463 min, (C) 350 min となり，篩分けしなかった場合の 915 min から 3 割，5 割および 6 割の減少が見られた。したがって，例えば粒径 26.14 mm 以上の粒子（サブグループ 1 から 3）を篩分けすれば，本モデルでの計算上は  $D_{50}$  の単一粒子と同様の乾燥時間で目標とする含水率に達する。実用プロセスにおいては，大きい粒子群を除外する方法として粉砕機後にスクリーンを設置して取り除き，再度粉砕機に投入することが考えられる。このように，分級し再粉砕する方法は一般的であり<sup>[9]</sup>，今回仮定した粒径分布に対して乾燥時間の短縮の観点から有効である。

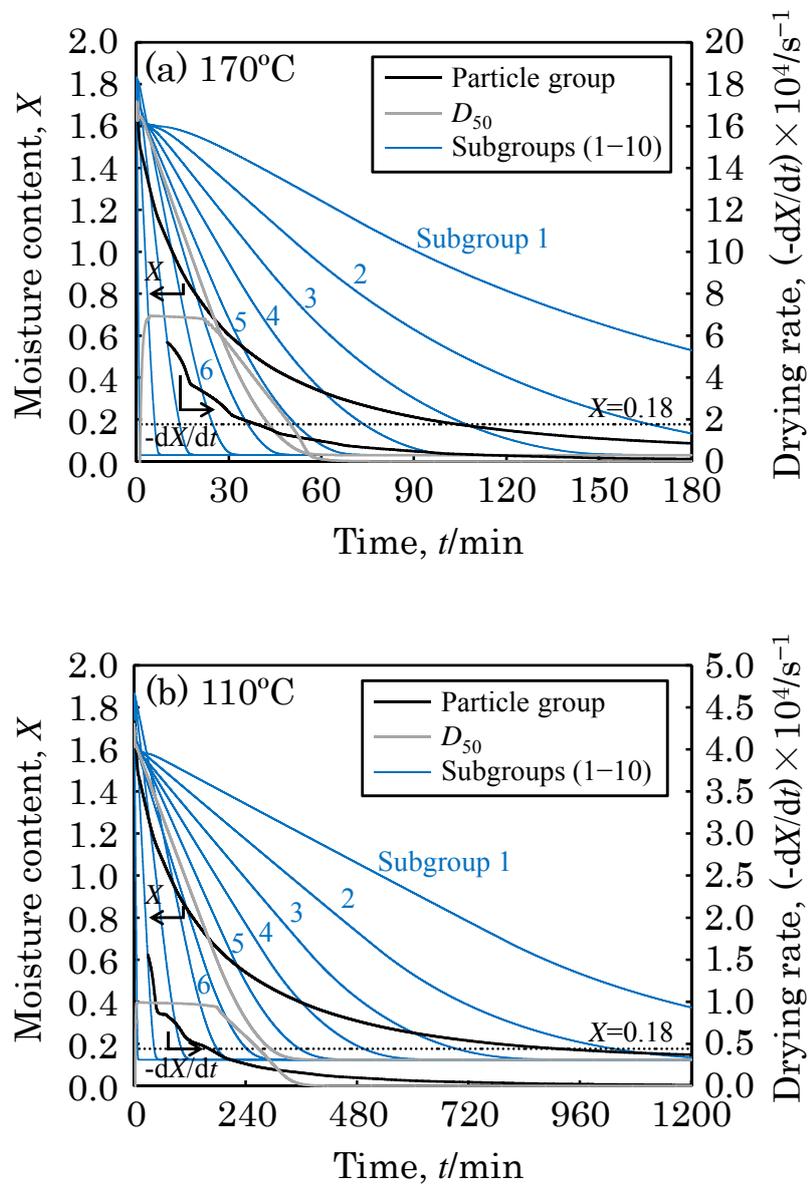


Fig. 4-3 Simulated moisture contents and drying rates of particles with maximum size of 100 mm at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

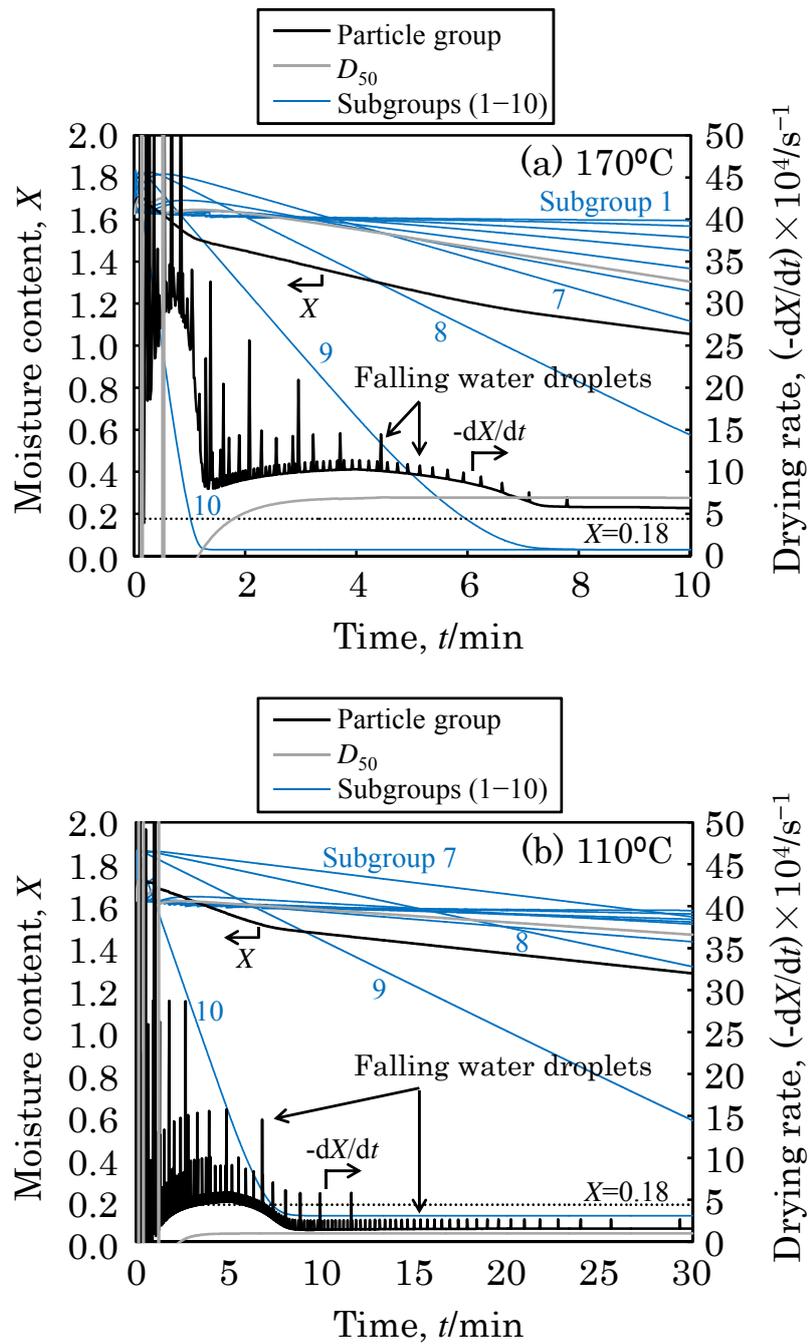


Fig. 4-4 Simulated moisture contents and drying rates of particles with maximum size of 100 mm during the initial period at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

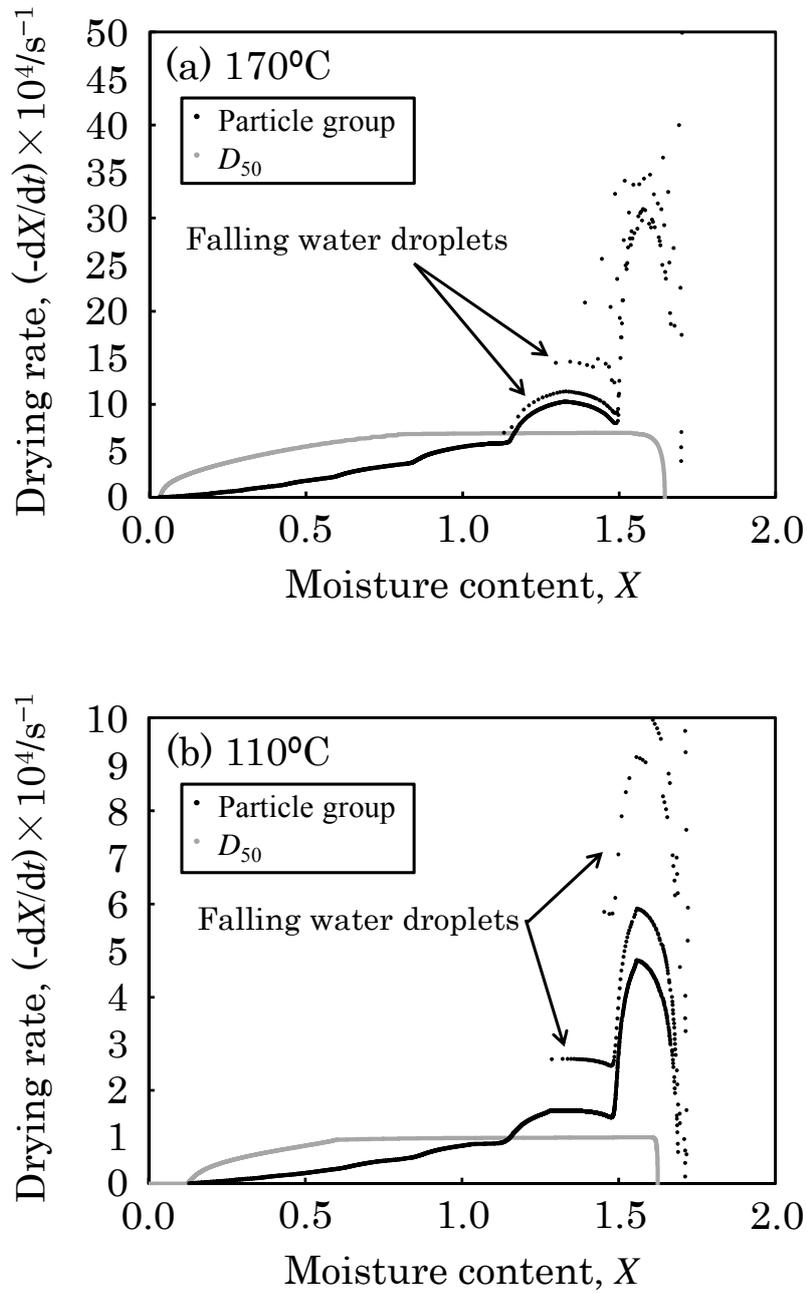


Fig. 4-5 Simulated drying characteristic curves of particles with maximum size of 100  $\mu$ m at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

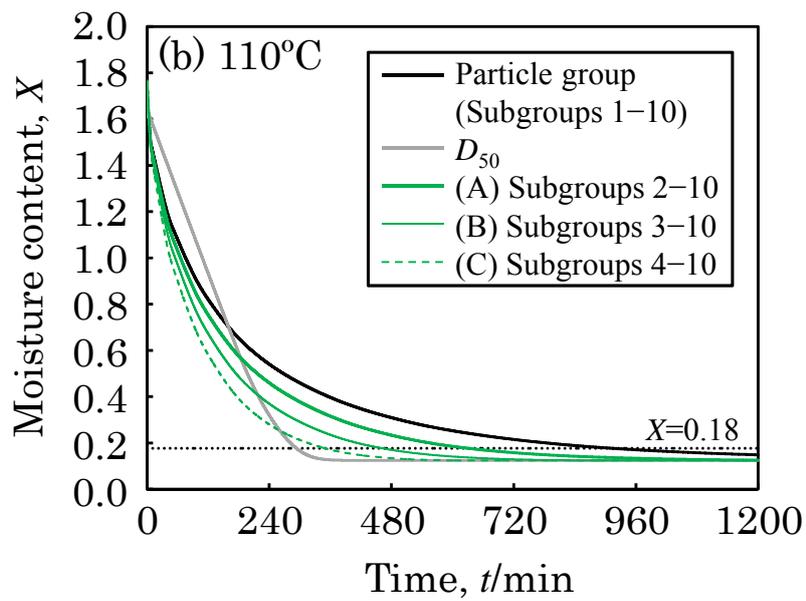
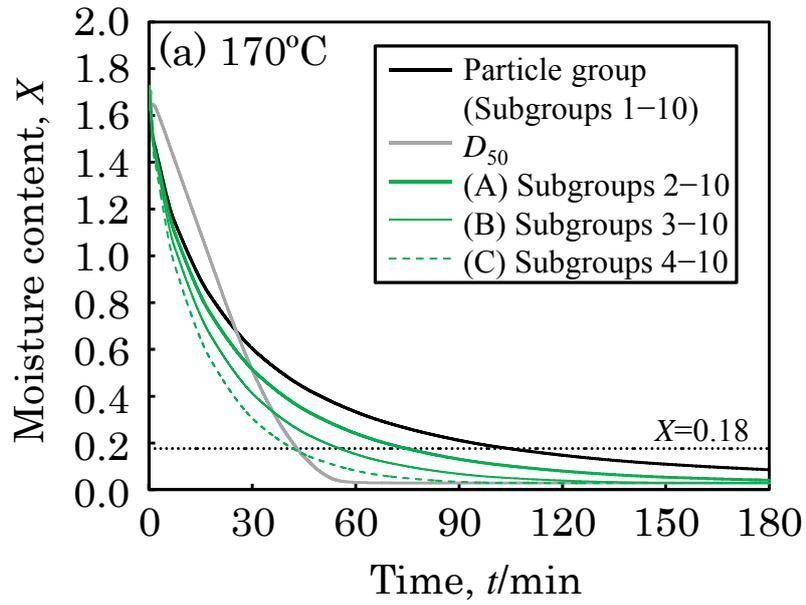


Fig. 4-6 Simulated sieving effects on moisture contents of particles with maximum size of 100 mm at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

#### 4.3.2 最大粒径 50 mm の褐炭粒子群の乾燥速度

最大粒径 50 mm の粒子群については、 $D_{50}$  は 7.53 mm となる。この粒子群および  $D_{50}$  の単一粒子の乾燥過程における含水率と乾燥速度を Fig. 4-7 に示す。また、粒子群を構成する各サブグループの含水率を同図に記載する。図中の混雑を防ぐため、テスト温度 170°C における乾燥速度は 4 min 以降、110°C では 7 min 以降の値のみを示す。初期の含水率と乾燥速度は別図 (Fig. 4-8) に示す。粒子群と  $D_{50}$  の乾燥特性曲線を Fig. 4-9 に示す。

含水率および乾燥速度は、最大粒径 100 mm の粒子群と同様に、各サブグループの減率乾燥期間に合わせて乾燥速度が段階的に減少した (Fig. 4-7, 4-8)。ただし、最大粒径が半分になったため、初期の水滴落下の回数は減少した。最大粒径 100 mm では水滴の落下はサブグループ 1 から 6 において発生したのに対し、本計算では粒径 10 mm 以上のサブグループ 1 (31.49 mm,  $f(D): 5.5\text{mass}\%$ ) から 4 (11.40 mm,  $f(D): 35\text{mass}\%$ ) のみで滴下が見られた。サブグループ 4 の滴下は 1 回であり、テスト温度 170°C では 0.4 min, テスト温度 110°C では 0.3 min に乾燥速度のスパイク状の急激な上昇として表れている。サブグループ 5 から 10, および  $D_{50}$  では滴下は起こらなかった。乾燥特性曲線においても滴下の回数の減少が確認できる (Fig. 4-9)。

乾燥の目標値となる含水率 0.18 に到達した時間は、 $D_{50}$  では、テスト温度 170°C において 18 min, テスト温度 110°C において 132 min となった。これに対し、粒子群では、170°C において 44 min, 110°C において 410 min かかり、 $D_{50}$  と比較すると、それぞれ 2.4 倍, 3.1 倍となった。

篩分けによって粒径の最も大きいサブグループ 1 を除いた場合 (A), サブグループ 1 および 2 を除いた場合 (B), さらにサブグループ 1 から 3 までを除いた場合 (C) の含水率の変化を Fig. 4-10 に示す。テスト温度 170°C において、篩分けされた粒子群 (A), (B), (C) の含水率 0.18 への到達時間は、32, 24, 18 min となった。篩分け前の 44 min と比較すると、それ

ぞれ 3 割, 5 割および 6 割程度減少した. テスト温度 110°C では, 279, 205, 159 min となり, 篩分け前の 410 min と比較すると, 170°C と同様に 3 割, 5 割および 6 割の減少が見られた. したがって, 例えば粒径 13.07 mm 以上の粒子 (サブグループ 1 から 3) を篩分けすれば, 本モデルでの計算上は  $D_{50}$  の単一粒子と同様の乾燥時間で目標となる含水率に達する.

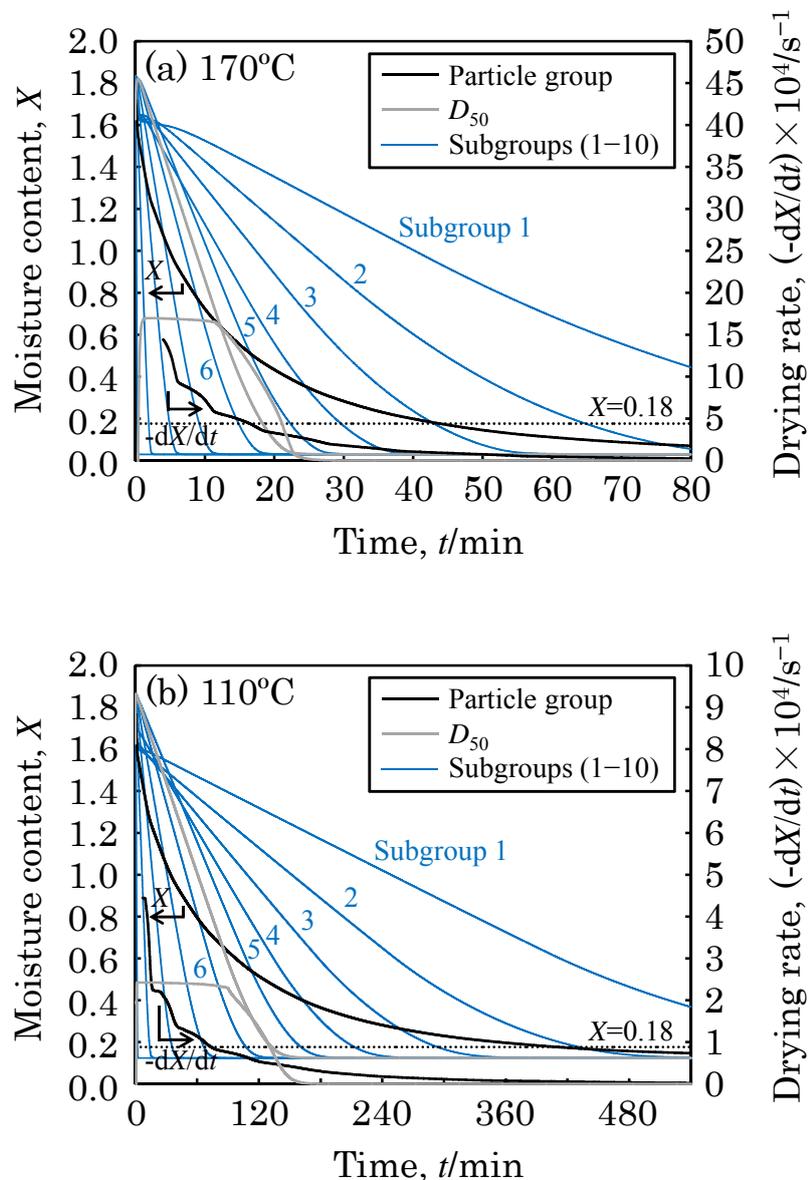


Fig. 4-7 Simulated moisture contents and drying rates of particles with maximum size of 50 mm at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

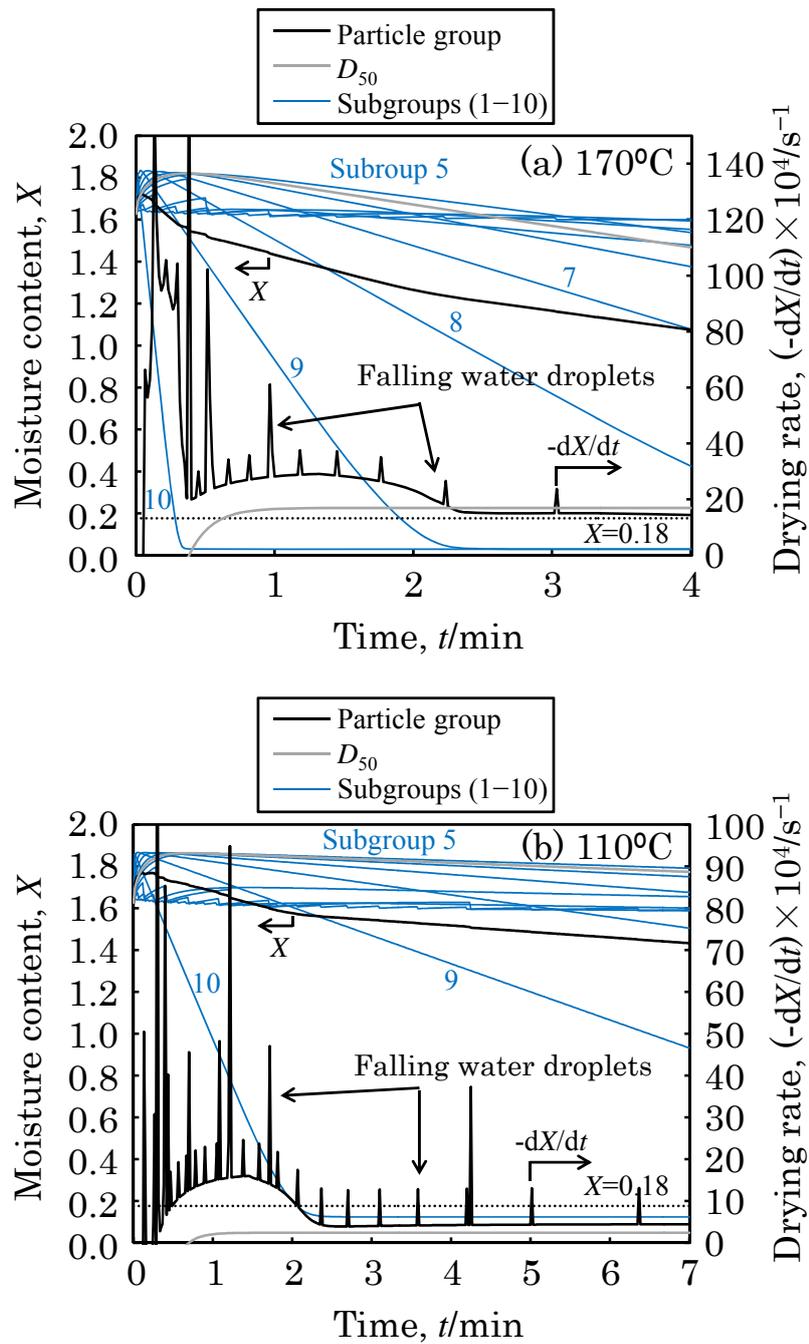


Fig. 4-8 Simulated moisture contents and drying rates of particles with maximum size of 50 mm during the initial period at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

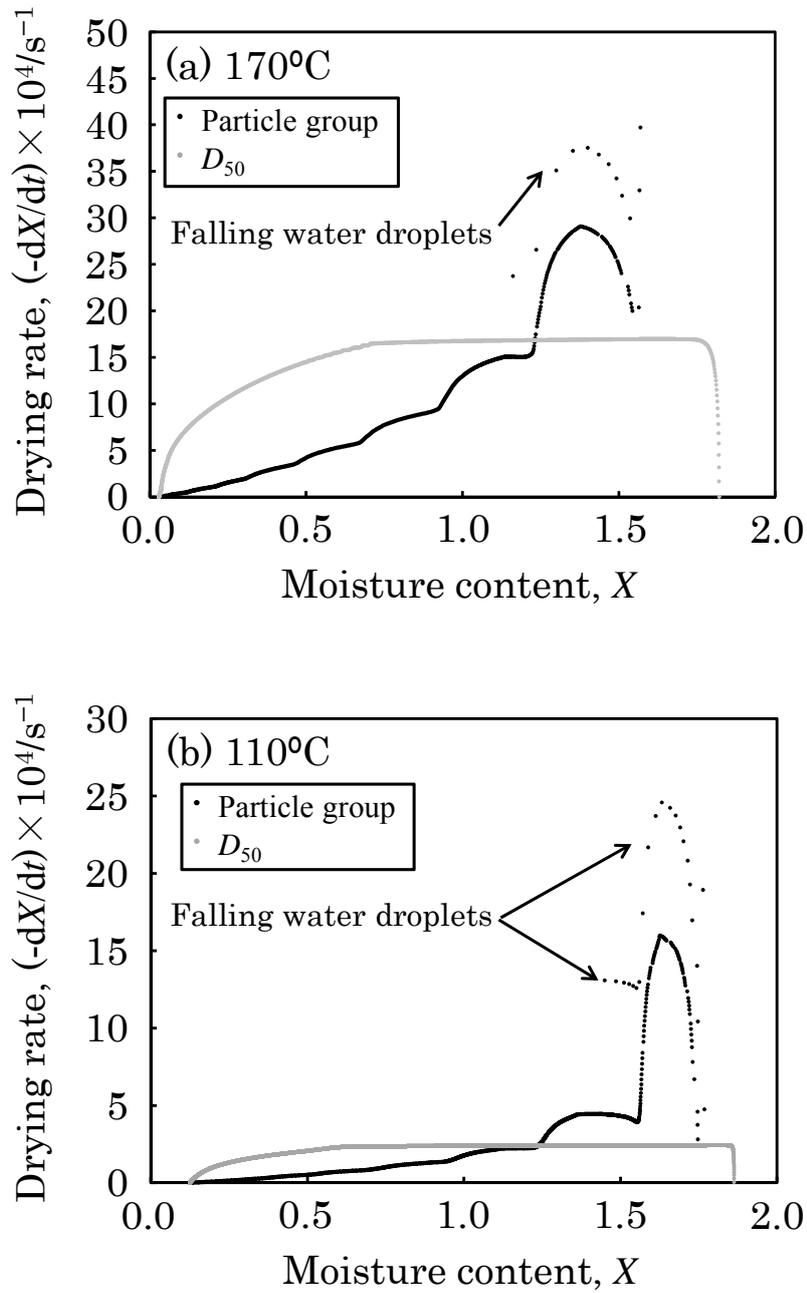


Fig. 4-9 Simulated Drying characteristic curves of particles with maximum size of 50 mm at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

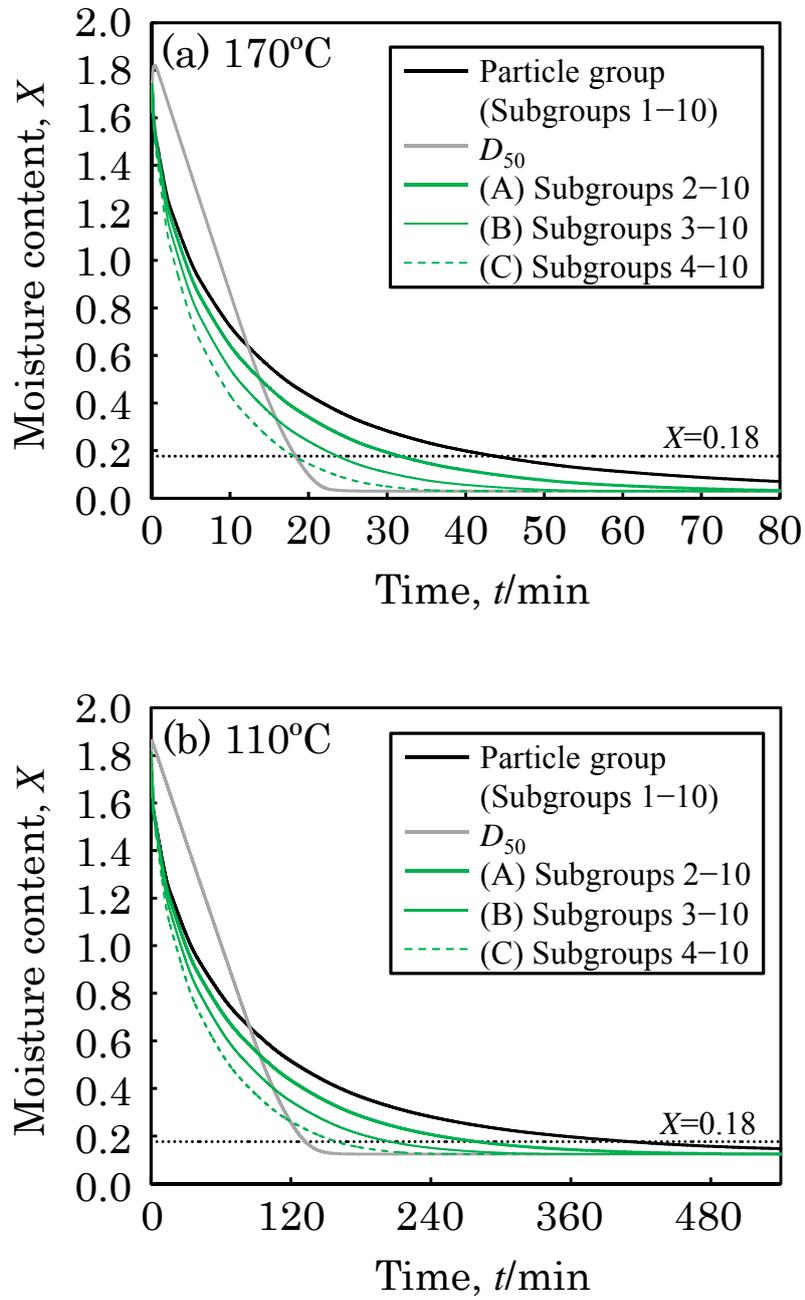


Fig. 4-10 Simulated sieving effects on moisture contents of particles with maximum size of 50 mm at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

### 4.3.3 最大粒径 6 mm の褐炭粒子群の乾燥速度

最大粒径 6 mm の粒子群については、 $D_{50}$  は 0.90 mm となる。この粒子群および  $D_{50}$  の単一粒子の乾燥過程における含水率と乾燥速度を Fig. 4-11 に示す。また、粒子群を構成する各サブグループの含水率を同図に記載する。粒子群と  $D_{50}$  の乾燥特性曲線を Fig. 4-12 に示す。

最大粒径 100 および 50 mm の場合と異なり、全てのサブグループにおいて水滴の落下は起こらなかった。このため、最大粒径 100 および 50 mm の場合と異なり、乾燥初期の凝縮期間において、全てのサブグループの含水率が上昇した (Fig. 4-11)。乾燥速度の時間変化は、水滴が落下しない点を除いては 4.3.2 および 4.3.3 と同様の傾向を示し、各サブグループの減率乾燥期間に合わせて乾燥速度が段階的に減少した (Fig. 4-11, 4-12)。なお、Fig. 4-12 の乾燥特性曲線について、含水率の高い範囲では点線で表示されているが、これは水滴落下を示すものではなく、計算値の出力が 1 s ごととなっているためである。テスト温度 170°C では、0.5 min (30 s) までにサブグループ 10 から 7 までの乾燥が終了し、サブグループ 6 もほぼ終了となっており、粒子群の含水率は 0.67 まで低下している。

乾燥の目標値となる含水率 0.18 に到達した時間は、 $D_{50}$  では、テスト温度 170°C において 0.58 min、テスト温度 110°C において 4.2 min となった。これに対し、粒子群では、170°C において 2.7 min、110°C において 30 min かかり、 $D_{50}$  と比較すると、それぞれ 4.6 倍、7.2 倍となった。

篩分けによって粒径の最も大きいサブグループ 1 を除いた場合 (A)、サブグループ 1 および 2 を除いた場合 (B)、さらにサブグループ 1 から 3 までを除いた場合 (C) の含水率の変化を Fig. 4-13 に示す。テスト温度 170°C において、篩分けされた粒子群 (A), (B), (C) の含水率 0.18 への到達時間は、1.7, 1.1, 0.7 min となった。篩分け前の 2.7 min と比較すると、それぞれ 4 割、7 割および 8 割程度減少した。テスト温度 110°C では、17, 10, 6.7 min となり、篩分け前の 30 min と比較すると、170°C と同様に 4 割、7 割および 8 割の減少が見られた。したがって、例えば粒径 1.57 mm 以上

の粒子(サブグループ 1 から 3)を篩分けすれば,本モデルでの計算上は  $D_{50}$  の単一粒子とほぼ同様の乾燥時間となる.

流動層中の熱伝達率を用いて計算した,粒子群および  $D_{50}$  の単一粒子の含水率と乾燥速度を Fig. 4-14 に示す. また,粒子群を構成する各サブグループの含水率を同図に記載する. 粒子群と  $D_{50}$  の乾燥特性曲線を Fig. 4-15 に示す.

単一粒子の計算結果と比較すると,乾燥時間の粒径依存性が小さくなった. 単一粒子の熱伝達率は,式 (3-5) より,粒径が小さくなるとともに大きくなる一方,流動層内の熱伝達率は,式 (4-2, 4-3, 4-4) より,粒径が小さくなるとともに小さくなる. このため,小さな粒径のサブグループの乾燥時間は流動層内の方が長くなった. 一番小さな粒径のサブグループ 10 が恒率乾燥期間の際,試験開始後,1.8 min までは粒子群も恒率乾燥期間となっており (Fig. 4-14),乾燥特性曲線でも確認できる (Fig. 4-15). その後,各サブグループの減率乾燥期間に合わせて乾燥速度が段階的に減少した. 乾燥の目標値となる含水率 0.18 に到達した時間は,  $D_{50}$  では 14 min, 粒子群では 27 min となった.

実際に最大粒径 6 mm の粒子群を過熱水蒸気流動層で乾燥する際,110 - 120°C の層内での滞留時間は 30 - 60 min が一般的だと報告されている<sup>[9-11]</sup>. 今回の計算結果では,110°C において目標含水率となるまでの時間が 27 min であり,報告値と近い値となっており,乾燥の所要時間としては妥当な値が算出されたと言える. また,単一粒子の熱伝達率を用いた計算結果 (乾燥所要時間: 30 min) においても,ほとんど変わらない値となった. 乾燥時間を左右する粒径の大きいサブグループ 1, 2 の平均の乾燥速度が,流動層の熱伝達率を用いた結果とほぼ同様であったためと考えられる.

篩分けによる含水率の変化を Fig. 4-16 に示す. 篩分けされた粒子群 (A), (B), (C) の目標含水率 0.18 への到達時間は,22, 18, 15 min となり,篩分け前の 27 min と比較すると,2 割, 3 割および 4 割の減少が見られた. 単一粒子の熱伝達率を用いた計算結果と比較すると,篩分けの効果は小さ

いが、粒径 1.57 mm 以上の粒子 (サブグループ 1 から 3) を篩分けすれば、本モデルでの計算上は  $D_{50}$  の単一粒子とほぼ同様の乾燥時間となる。流動層においても、大きな粒子を取り出す方法が提案されており<sup>[14]</sup>、それにより乾燥時間の低減を図ることができると考えられる。

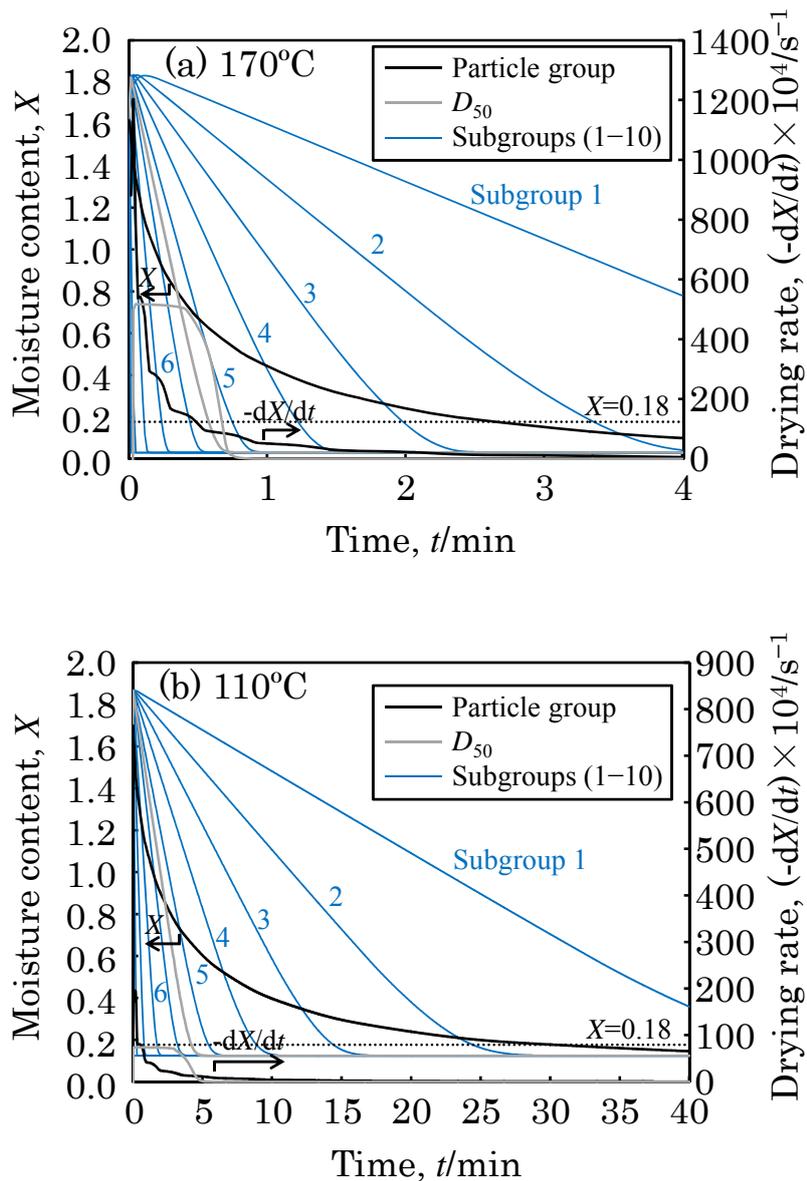


Fig. 4-11 Simulated moisture contents and drying rates of particles with maximum size of 6 mm at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

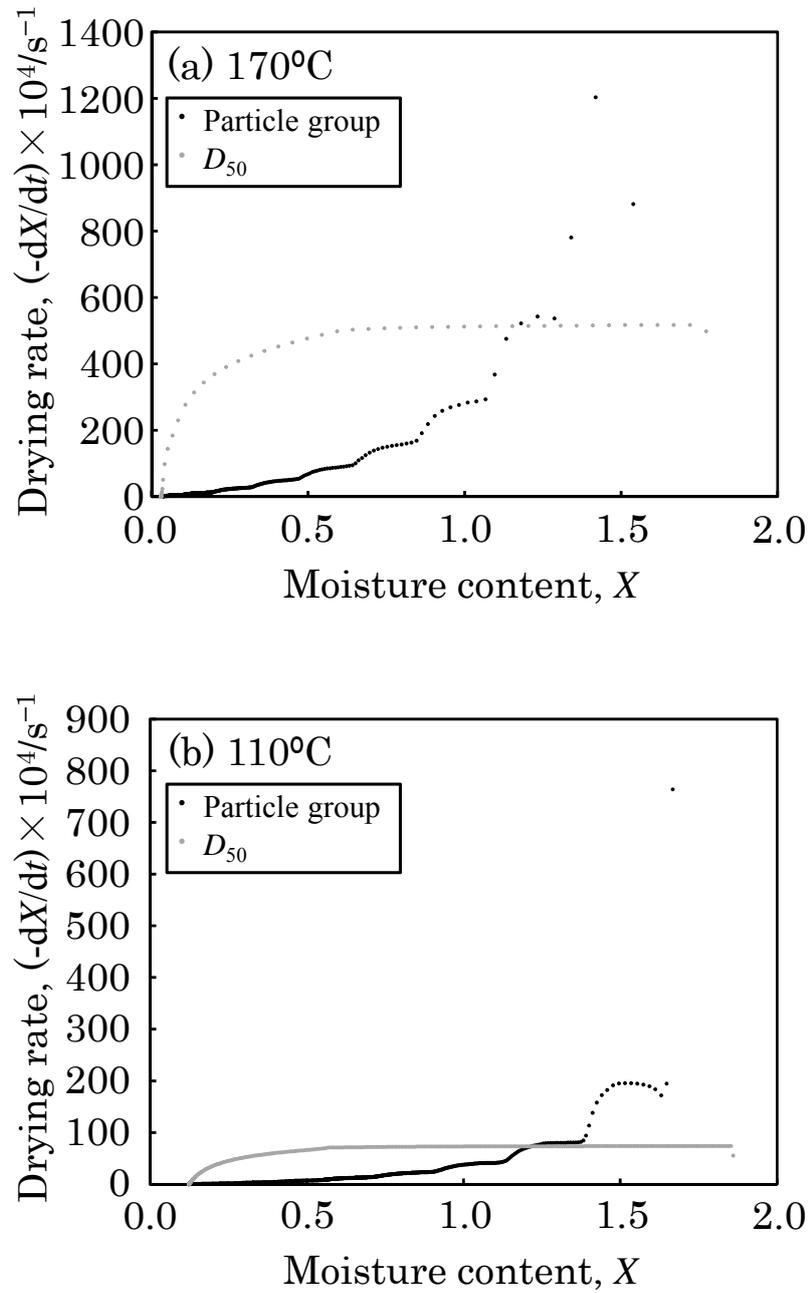


Fig. 4-12 Simulated drying characteristic curves of particles with maximum size of 6 mm at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

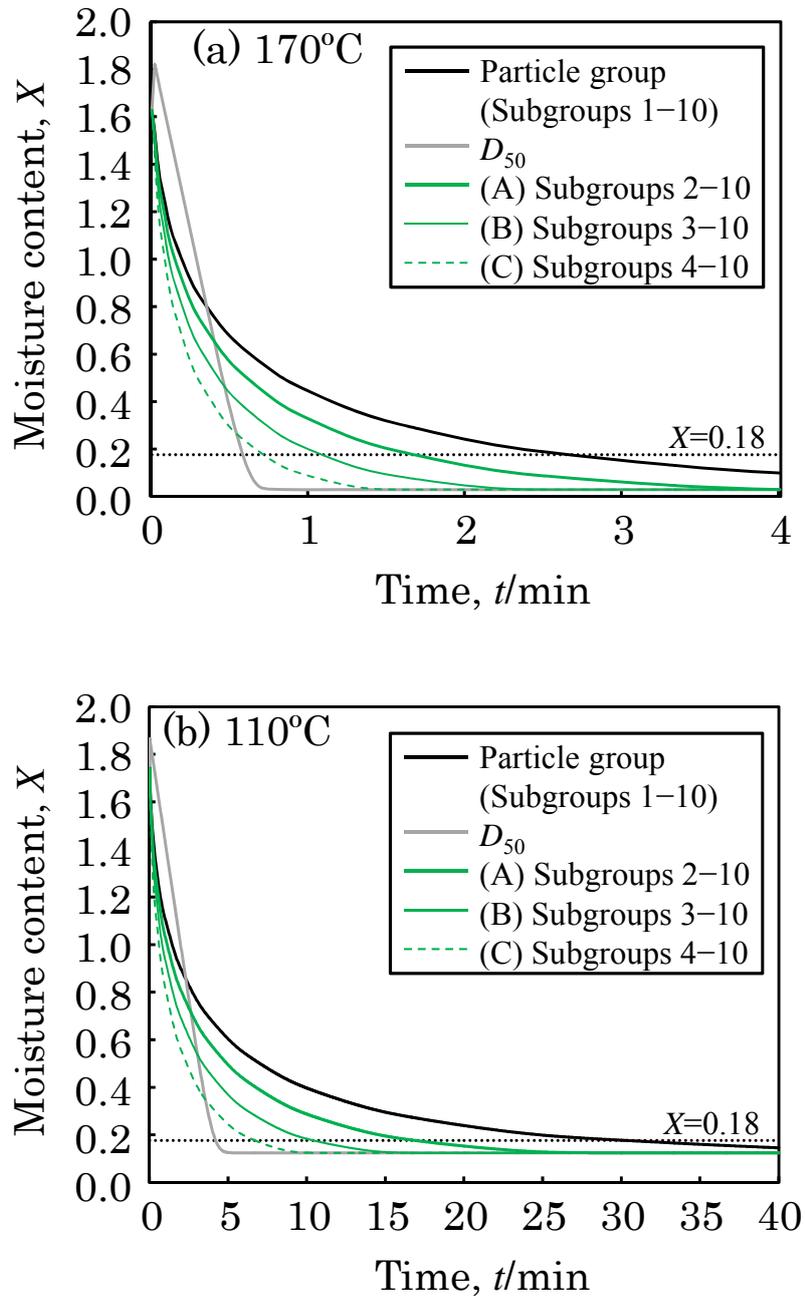


Fig. 4-13 Sieving effect on moisture contents of particles with maximum size of 6 mm at test temperatures of (a) 170 and (b) 110°C.

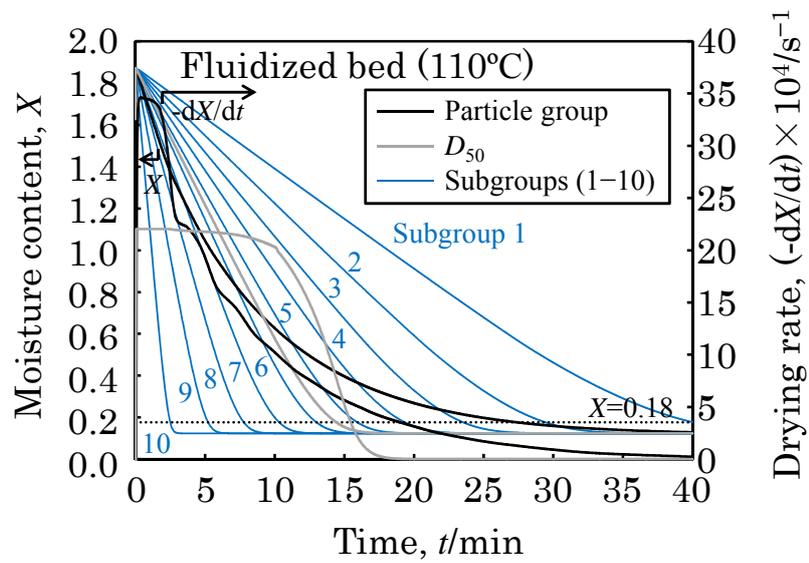


Fig. 4-14 Simulated moisture contents and drying rates of particles with maximum size of 6 mm by the heat transfer coefficients of fluidized bed at 110°C.

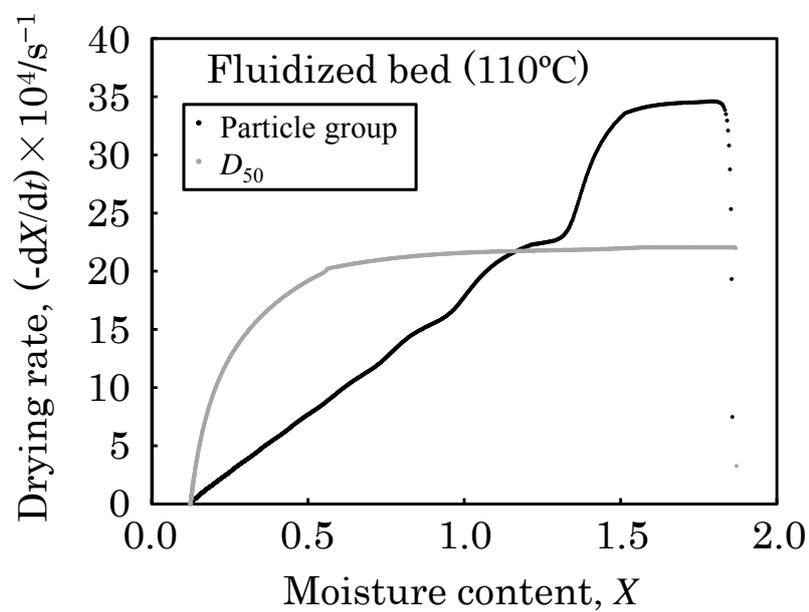


Fig. 4-15 Simulated drying characteristic curves of particles with maximum size of 6 mm by the heat transfer coefficients of fluidized bed at 110°C.

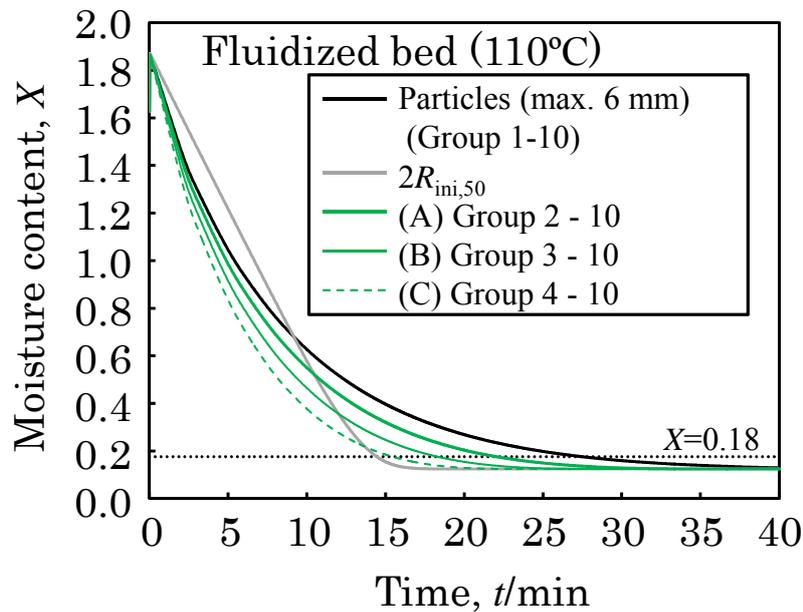


Fig. 4-16 Simulated sieving effects on moisture contents of particles with maximum size of 6 mm by the heat transfer coefficients of fluidized bed at 110°C.

#### 4.4 小括

最大粒径を 100, 50 および 6 mm として定義した仮想的な褐炭粒子群について、前章で作成した数値計算モデルを用いて 170 および 110°C における含水率変化および乾燥速度の計算を行った。褐炭粒子群の粒径は Rosin-Rammler 分布に従うものと仮定し、粒径ごとの重量割合をもとに決定した 10 点の代表径について乾燥速度の計算を行い、結果を加重平均することにより粒子群全体の含水率と乾燥速度を得た。入熱の式には、前章で得た単一粒子の熱伝達率を用いたが、最大粒径 6 mm については、110°C の流動層内の熱伝達率を用いた計算も行った。

径が小さい粒子ほど乾燥が速く進み、減率乾燥期間へと順次移行するため、単一粒子と異なり粒子群においては恒率乾燥期間が表れなかった。最大粒径 100 および 50 mm の粒子群では、初期に水滴の落下が発生した。

最大粒径 5 mm の粒子群においては、いずれの粒子にも水滴が滴下せず、表面に水蒸気が凝縮する乾燥初期においては含水率が増加した。

粒子群の含水率が乾燥の目標値に到達するまでの時間に注目すると、小さい粒子は短い時間で平衡含水率に達して乾燥が停止するため、粒径の大きなグループの乾燥速度が支配的になることが示された。とくに、テスト温度が低いほど平衡含水率が高いため、粒子群全体の含水率をじゅうぶん低くするためには大きな粒子の乾燥も進行する必要がある。目標含水率を 0.18 (水分 15mass%) とし、単一粒子の熱伝達率を用いた場合のテスト温度 170 および 110°C の乾燥時間は、最大粒径 100, 50 および 6 mm において、それぞれ 105, 44, 2.7 min (170°C), 915, 413, 30 min (110°C) となった。

最大粒径 6 mm の粒子群について、110°C の流動層の熱伝達率を用いた計算では、乾燥時間の粒径依存性が単一粒子の熱伝達率を用いた場合より小さくなり、初期に恒率乾燥期間が確認された。目標含水率を 0.18 (水分 15mass%) とした場合の乾燥時間は 27 min となり、実際の乾燥機で報告された滞留時間と近い値となった。具体的な乾燥機内での適切な熱伝達率が予測できれば、単一粒子の乾燥モデルと粒径分布から、乾燥時間の簡易的な予測が可能になると考えられる。

それぞれの粒子群について、篩分けによって粒径の大きなグループを除外した場合の乾燥を検討した。単一粒子の熱伝達率を用いた計算では、粒径の大きい方から重量割合で 3 割を除外することができれば、乾燥時間を 6 割から 8 割程度短縮することができ、メディアン径の単一粒子と同様の乾燥時間になることがわかった。実用上、粒径の大きな粒子をスクリーン等で除外することにより、乾燥時間の大幅な短縮につながると考えられる。流動層の熱伝達率を用いた計算においても、粒径の大きい方から重量割合で 3 割を除外することができれば、乾燥時間を 4 割程度短縮することができ、メディアン径の単一粒子と同様の乾燥時間になることがわかった。

## 参考文献

- [1] 藤田重文, 東畑平一郎: “化学工学Ⅱ”, 東京化学同人 (1972).
- [2] 上滝具貞: “粉粒体の空気輸送”, 日刊工業新聞社 (1974).
- [3] R. Yoshida, K. Ishida, T. Yoshida, S. Ueda, I. Sekiguchi, Y. Nakata, S. Yokoyama, T. Okutani, Y. Jomoto, and Y. Yoshida: “EFFECT OF COAL PARTICLE SIZE ON THE COAL HYDROGENATION REACTION – IN RELATION TO THE PLASTICITY OF COAL”, Fuel Process. Technol. 3 (1980) 1-5.
- [4] N. Y. Nsakala, R. H. Essenhigh, and P. L. Walker Jr: “Characteristics of chars produced from lignites by pyrolysis at 808C following rapid heating”, Fuel 57 (1978) 605-611.
- [5] A. W. Scaroni, P. L. Walker Jr, and R. H. Essenhigh: ”Kinetics of lignite pyrolysis in an entrained flow, isothermal furnace”, Fuel 60 (1981) 71-76.
- [6] H. J. Kluts, C. Moser, and D. Block: “WTA Fine Grain Drying- Module for Lignite-Fired Power Plants of the Future”, VGB Power Tech 11/2006 (2006) 2-6.
- [7] Private communication (M. Kinoshita in Mitsubishi Heavy Industries, LTD.).
- [8] J. Schmalfeld and C. Twigger: “Erfahrungen mit dem Betrieb der Dampf-Wirbelschicht-Trocknungsanlage Loy Yang, Australien”, VDI BERICHTE 1280 (1996) 107-117.
- [9] H. J. Weiss and C. J. Hamilton: “PROGRESS IN STEAM FLUIDIZED BED DRYING”, Engineering Foundation Conference on Fluidization, 7<sup>th</sup>, Brisbane (1992).
- [10] J. Schmalfeld and McKenzie: “A COMMERCIALY SUCCESSFUL COAL DRYING PLANT FOR THE POWER INDUSTRY”, Chemical Engineering in Australia, Vol. 18, No. 3 (1993) 10-14.

- [11] C. Hamilton: “Steam Fluidized Bed Drying of Coal”, Institute of Engineers, Coal Handling and Utilization Conference – Australia (1990).
- [12] D. Kunii and O. Levenspiel: “*Fluidization engineering*”, John Wiley & Sons (1969).
- [13] 日本粉体工業技術協会: “粉体分級技術マニュアル”, 広信社 (1990).
- [14] 三菱重工業株式会社: “流動層乾燥装置及び流動層乾燥設備”, 特開 2011-214817 (2011).

## 第5章 総括

本研究では、褐炭の乾燥プロセスの開発・改良に必要となる、過熱水蒸気中の褐炭粒子の乾燥速度について予測可能な数値計算モデルの開発を目指した。褐炭単一粒子の乾燥特性について信頼性のある実験結果を得るとともに、実験結果に基づいた数値計算モデルを作成した。さらに粒径分布を有する褐炭粒子群への応用も検討した。

第1章では、序論として他の化石燃料と比較した石炭の特徴についてまとめ、発電分野における石炭の有効性を述べた。また、石炭の分類と褐炭の特徴について確認し、水分の多く含まれる褐炭を乾燥する意義とこれまでに用いられた乾燥技術を調査した。乾燥技術の中で最も有望であったのは過熱水蒸気を用いた流動層乾燥であり、過熱水蒸気を用いた褐炭粒子の乾燥特性の把握およびその乾燥速度を予測可能とする数値計算モデルが必要であることを述べた。

第2章では、直径 30 mm の球形の褐炭単一粒子を対象として行なった乾燥試験と、これをもとに作成した数値計算モデルについてまとめた。

試験においては、過熱水蒸気中で褐炭の重量と温度変化を測定するための装置を作製した。170 - 110°C の過熱水蒸気中に行なった全ての試験において、恒率乾燥期間と減率乾燥期間が観察された。また、ビデオカメラと 3D スキャナーにより、乾燥に伴って発生するクラックおよび体積収縮率のテスト温度依存性を確認した。過熱水蒸気中における乾燥プロセスは、テスト温度 170, 150, 130 および 110°C にてそれぞれ 3, 4.5, 7.5 および 21 h で完了した。

実験結果をもとに、乾燥プロセスの数値計算モデルを作成した。本モデルでは、褐炭粒子内部における自由水の移動、平衡含水率、結合水が蒸発する際のエンタルピー変化、凝縮期間における表面の水の挙動（内部からの染み

出し、水蒸気の凝縮および滴下)、および粒子の収縮を考慮した。本モデルにより、同程度の粒径の褐炭粒子について、170 - 110°C の範囲にて乾燥速度および乾燥完了時間の予測が可能となった。

第3章では、乾燥速度における粒径の影響を確認するため、粒径の異なる褐炭単一粒子を対象として行なった乾燥試験と、これをもとに修正した数値計算モデルについてまとめた。

直径 10, 5, 2.5 mm の球形の褐炭単一粒子を、170, 150, 130, 110°C の過熱水蒸気中で乾燥し、乾燥速度と温度を測定した。重量および温度の変化は、第2章において直径 30 mm の粒子について得られた結果と同様に、全ての試験において恒率乾燥期間と減率乾燥期間を示した。ビデオカメラの映像から、発生するクラックの数は、粒径およびテスト温度に依存することが確認された。乾燥速度の粒径依存性について考察し、粒径範囲 30 - 2.5 mm, テスト温度 170 - 110°C における乾燥速度および乾燥完了時間を簡易的に予測可能とした。

実験結果をもとに、前章で作成した数値計算モデルを修正し、より粒径の小さい褐炭粒子にも適用可能とした。本モデルでは、熱伝達率と水滴の落下を再現するために実験値を基にしたパラメータを設定し、粒径範囲 30 - 2.5 mm, テスト温度 170 - 110°C の範囲における乾燥挙動をシミュレーションすることに成功した。

第4章では、前章で作成した数値計算モデルを用い、粒径分布を有する褐炭粒子群の乾燥速度を予測した。

最大粒径を 100, 50 および 6 mm として定義した仮想的な褐炭粒子群について、170°C および 110°C における含水率変化および乾燥速度の計算を行った。褐炭粒子群の粒径は Rosin-Rammler 分布に従うものと仮定し、粒径にしたがって重量割合の等しい 10 点の代表径について乾燥速度の計算を行い、結果を加重平均することにより粒子群全体の含水率と乾燥速度を得

た。入熱の式には、4章で得た単一粒子の熱伝達率を用いたが、最大粒径 6 mm については、110°C の流動層内の熱伝達率を用いた計算も行った。径が小さい粒子ほど乾燥が速く進み、減率乾燥期間へと順次移行するため、単一粒子と異なり粒子群においては恒率乾燥期間が表れなかった。最大粒径 100 および 50 mm の粒子群では、初期に水滴の落下が発生した。最大粒径 6 mm の粒子群においては、いずれの粒子にも水滴が落下せず、表面に水蒸気が凝縮する乾燥初期においては含水率が増加した。褐炭粒子群の含水率が乾燥の目標値に到達するまでの時間に注目すると、小さい粒子は短い時間で平衡含水率に達して乾燥が停止するため、粒径の大きなグループの乾燥速度が支配的になることが示された。とくに、テスト温度が低いほど平衡含水率が高いため、粒子群全体の含水率を十分に低くするためには大きな粒子の乾燥も進行する必要がある。目標含水率を 0.18 (水分 15mass%) とし、単一粒子の熱伝達率を用いた場合のテスト温度 170 および 110°C の乾燥時間は、最大粒径 100, 50 および 6 mm において、それぞれ 105, 44, 2.7 min (170°C), 915, 413, 30 min (110°C) となった。最大粒径 6 mm の粒子群について、110°C の流動層の熱伝達率を用いた計算では、乾燥時間の粒径依存性が単一粒子の熱伝達率を用いた場合より小さくなり、初期に恒率乾燥期間が確認された。目標含水率を 0.18 (水分 15mass%) とした場合の乾燥時間は 27 min となり、実際の乾燥機で報告された滞留時間と近い値となった。

それぞれの粒子群について、篩分けによって粒径の大きなグループを除外した場合の乾燥を検討した。単一粒子の熱伝達率を用いた計算では、粒径の大きい方から重量割合で 3 割を除外することができれば、乾燥時間を 6 割から 8 割短縮することができ、メディアン径の単一粒子と同様の乾燥時間になることがわかった。実用上、粒径の大きな粒子をスクリーン等で除外することにより、乾燥時間の大幅な短縮につながると考えられる。流動層の熱伝達率を用いた計算においても、粒径の大きい方から重量割合で 3 割を除外することができれば、乾燥時間を 4 割程度短縮することができ、メディアン径の単一粒子と同様の乾燥時間になることがわかった。

以上のように本研究では、過熱水蒸気を用いた褐炭粒子の乾燥挙動を実験により把握し、単一粒子の乾燥プロセスについて数値計算モデルを確立した。また、このモデルを用いて粒径分布を持つ褐炭粒子群の乾燥速度を予測し、乾燥時間の短縮について定量的な評価を行なった。この結果、詳細な調査が行われていなかった過熱水蒸気中における褐炭粒子の乾燥挙動について有用な知見を得た。本成果は実際の褐炭の乾燥方法の開発において、乾燥中の粒子群の挙動を予測する上でも一助となることが期待できる。

## 謝辞

本研究の遂行に関して、多大なるご指導、ご鞭撻を賜りました前田正史教授に心から感謝の意を表します。また、共同の指導教員としてご指導を頂きました森田一樹教授に厚く御礼申し上げます。

本論文の作成に当たり、適切なお助言およびご協力を頂きました岡部徹教授、松野泰也准教授、吉川健准教授に深く感謝いたします。

研究の場を与えて頂き、常に温かいご支援およびご助言を頂きました金子祥三特任教授、実験装置の改造から実験結果の解析に亘る研究全般にご支援およびご助言を頂きました橋本彰特任教授、本論文の内容について全面的にご指導を頂きました佐々木秀顕助教へ深く感謝申し上げます。

実験を遂行するにあたり、実験装置の構想および伝熱工学の知見についてご助言頂きました九州工業大学客員教授 徳田君代様、実験装置の設計・保守全般についてご助言およびご支援頂きました三菱重工業株式会社 小阪健一郎様、試料に用いた褐炭の手配や褐炭および乾燥に関する広範なお助言を頂きました三菱重工業株式会社 木下正昭様、有馬謙一様に厚く御礼申し上げます。

本研究を遂行するに当たり、様々な面でご協力を頂きました試作工場の皆様、前田研究室、金子研究室および橋本研究室の皆様に感謝いたします。

最後に、著者が研究を行うための基盤を支えてくれた家族に深く感謝の意を表します。

平成 25 年 9 月

桐山 毅

## Appendix A 熱電対およびデータロガーの校正

実験で使用する K 型熱電対（クロメル・アルメル）およびデータロガーは、あらかじめ製造者により検定が行われた熱電対を参照して校正を行った。Fig. A-1 に、直径 30 mm の試料を用いた実験における、温度計測用の機器の接続方法を示す。試料の温度計測に用いた熱電対は、中継点にて補償導線に接続される。補償導線はデータロガーに接続され、測定温度  $T_{PC}$  が PC へ出力される。試験中、検定済みの熱電対を用いて中継点の温度  $T_m$  を計測する。さらに、データロガーの温度測定用チャンネルのうち一つを短絡するように銅線で接続することにより、データロガーの接点の温度の表示値  $T_{log}$  を得た。これらの温度にもとづき、以下に示す熱電対とデータロガーの補正值を用いて PC の出力値を校正した。

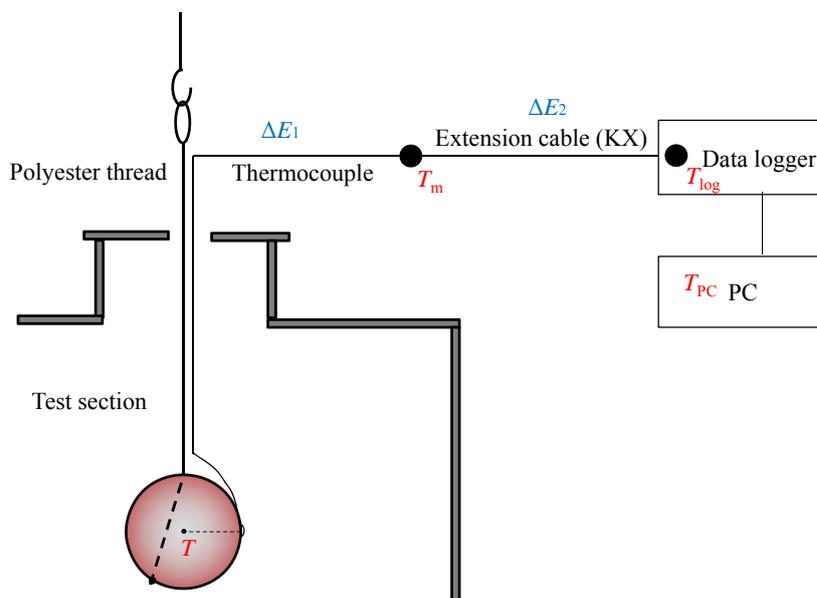


Fig. A-1 Schematic configuration of temperature measurement by thermocouple.

熱電対の検定方法を Fig. A-2 に示す。プロセス機器株式会社により検定が行われた熱電対（シース付の直径 1.0 mm）を参照用として使用した。直径 50 mm の円筒の銅の中心に直径 7 mm の穴を開け、参照用熱電対と、検

定対象となる熱電対を差し込んだ。円筒の銅を周囲のヒータで加熱し、検出部の温度  $T$  を 20 - 180°C の範囲の一定の温度に静定し、参照用熱電対の起電力  $\Delta E_r$  から  $T$  を推定するとともに、検定対象の熱電対の起電力  $\Delta E_i$  を測定した。測定された  $\Delta E_i$  から、JIS に定められた規準熱起電力と比較し<sup>[1]</sup>、温度の偏差を算出した。なお、熱電対と銅線の接続部は、純水から作った氷水に浸漬することで冷接点とした。K 型熱電対の起電力は今回計測を行った 20 - 180°C の範囲では直線性を示すとされ、0.1°C あたり 4  $\mu$ V となる<sup>[1]</sup>。起電力測定に用いたデジタル電圧計（7461A Digital Multimeter, ADCMT）の分解能は 0.1  $\mu$ V である。

参照用熱電対を用いて推定した測定部の温度と、検定を行う熱電対の測定値との差を Fig. A-3 に示す。図中、TC 1 - 10 は粒径 30 mm の試料の計測に用いた素線径 0.09 mm（被覆付 0.1 mm）、TC 11 - 14 は粒径 10 および 5 mm の試料に用いた素線径 0.05 mm（被覆付 0.08 mm）、TC 15 - 18 はシース付の熱電対であり、TC 15 はテストセクション内部、TC 16 は上述した熱電対の中継点、TC 17, 18 は Appendix B で説明する SUS 球の温度測定に用いた熱電対である。TC 1 - 10 と TC 11 - 14 は図中での温度依存性が類似しており、それぞれ同一ロットから製作されたためと考えられる。

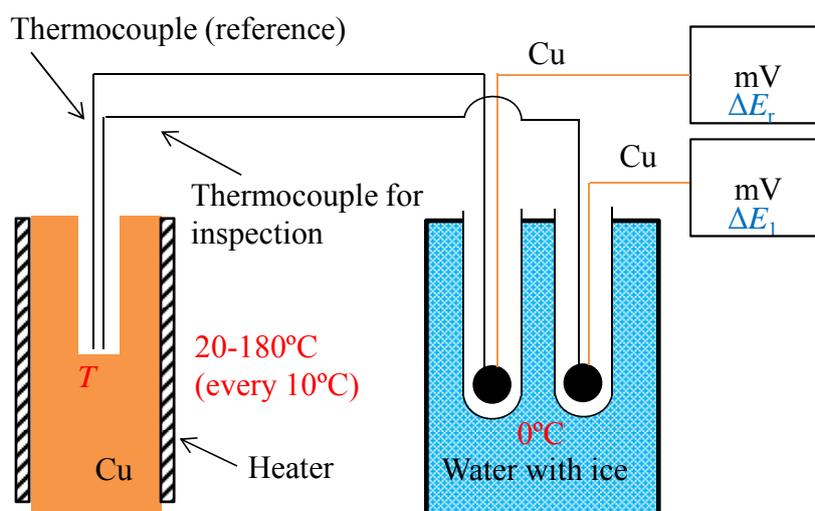


Fig. A-2 Schematic diagram of thermocouple inspection.

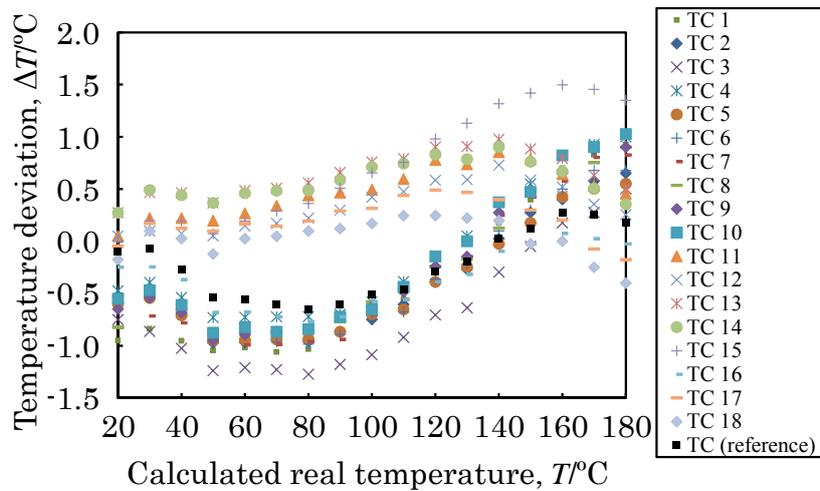


Fig. A-3 Temperature deviation from calculated real temperature measured for thermocouples. (TC 1 – 10: used for the samples 30 mm in diameter, TC 11 – 14: used for the samples 10 and 5 mm in diameter, TC 15 – 18: thermocouples with sheath used for experiments.)

Fig. A-1 中で補償導線に使用される KX (クロメル・アルメル) には, 中継点の温度  $T_m$  とデータロガー端子温度  $T_{Log}$  の差により起電力が発生する. Fig. A-2 に示した方法で補償導線の熱起電力を計測したところ, 検出部の温度が 28 – 38°C の範囲にあるとき, 測定値のずれは +0.2°C で安定していた. これは, 補償導線の両端がそれぞれ 28 - 38°C の範囲にある場合は, 補償導線で生じる起電力が測定温度に与える影響は 0.1°C 未満となることを示している. このため, 補償導線による温度の測定誤差は無視できるものとした.

データロガーの検定を行った系統図を Fig. A-4 に示す. 検定後の TC 17 と参照用熱電対の検出部を円柱の銅の穴に設置した. TC 17 の冷接点は純水から作った氷水の中に設置し, 銅線で電圧計に接続して起電力を計測した. 参照用熱電対の冷接点は直接データロガーに接続した. TC 17 の起電力から, 検出部の温度を推定し, 20 – 180°C の範囲で 10°C ごとに静定させ, PC に出力される温度を確認した. 出力される温度から, 参照用熱電対による温度偏差を差し引き, データロガーのみの温度偏差として算出した結果を Fig.

A-5 に示す.

温度検出部が 20–180°C の範囲において、熱電対と電圧計で測定した温度に対してデータロガーの表示温度は平均して 0.1°C 低かった. このため、データロガーで出力された温度は 0.1°C 加えることにより補正を行った.

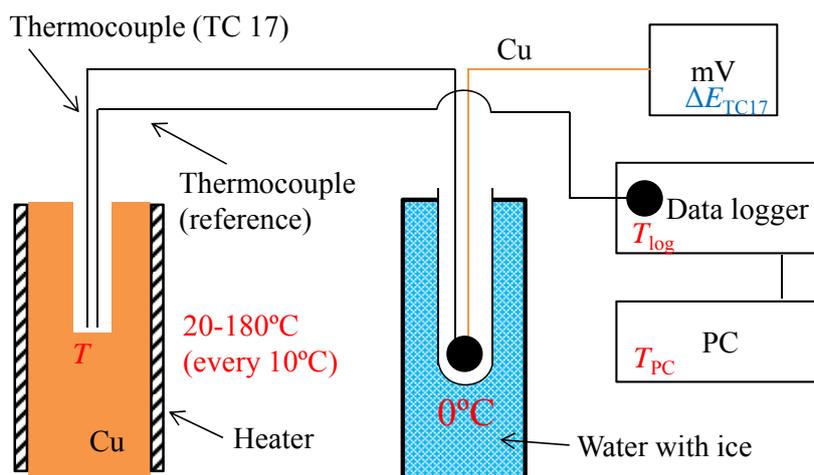


Fig. A-4 Schematic diagram of data-logger inspection.

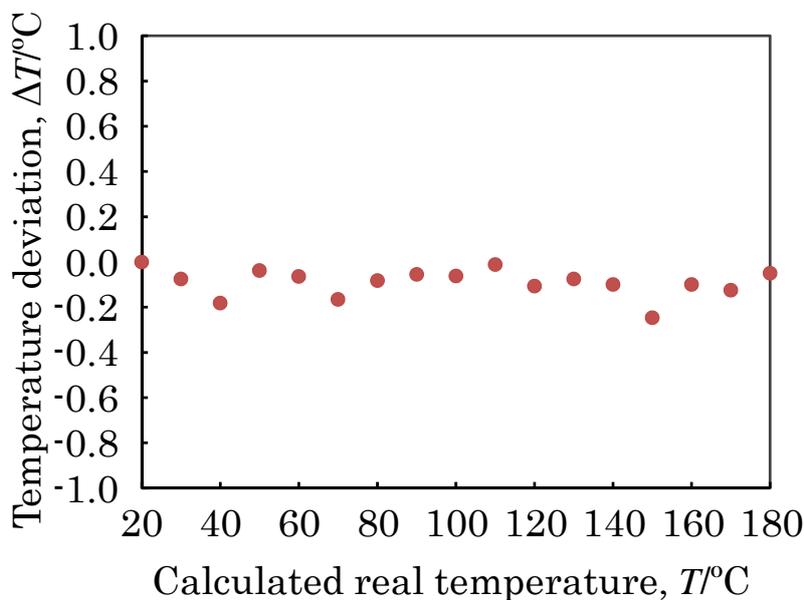


Fig. A-5 Temperature deviation from calculated real temperature measured for data logger.

## Appendix B 計算に用いたパラメータの算出

### 褐炭内の熱伝導率

褐炭の熱伝導率を以下の方法で推定した。乾燥試験と同様に直径 30 mm の球形粒子に熱電対を取り付け (Fig. 2-3), 80°C の温水に入れて内部の温度の変化を確認した。また, この温水中の熱伝達率を推定するため, SUS304 の直径 30.16 mm の球を用いて同様の試験を行った。SUS 球には直径 0.5mm のドリルで中心と  $R/2$  に穴を開け, 直径 0.3 mm のシース付の熱電対 (Appendix A の TC 17, 18) を取り付けた。Appendix D に記載したプログラムと同様の手法で SUS 球について計算を行った。この際, SUS の密度は実測により  $7900 \text{ kg/m}^3$  とした。報告値<sup>[2,3]</sup>をもとに比熱は  $480 \text{ J/kg}\cdot\text{K}$  とし, 熱伝導率は温度  $T$  の関数 ( $1.76 \times 10^{-2}T + 14.7 \text{ (W/m}\cdot\text{K)}$ ) とした。熱伝達率を  $1620 \text{ W/m}^2\cdot\text{K}$  と仮定して計算した結果は, Fig. B-1 に示すように実験結果とよく一致した。この熱伝達率を用いて, 褐炭粒子中の温度変化を計算すると, 乾燥炭の熱伝導率を  $0.20 \text{ W/m}\cdot\text{K}$  と仮定した際に実験結果とよく一致した (Fig. B-2)。

### 凝縮による熱伝達

テストセクション内部の凝縮による熱伝達率を推定するため, 上述した SUS 球に黒体塗料を塗布し, 乾燥試験と同様の手順でテストセクション内部に設置し, 試験を行った。塗布した黒体塗料の厚さは  $0.05 \text{ mm}$  であった。黒体塗料の熱拡散率を推定するため, 80°C の温水に入れ, 内部の温度上昇を測定した。黒体塗料の熱拡散率を  $4.3 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$  と仮定して計算した結果は, Fig. B-3 に示すように実験結果とよく一致した。この熱拡散率を用いて, 凝縮期間における SUS 球内部の温度変化を計算すると, 凝縮による熱伝達率を  $1040 \text{ W/m}^2\cdot\text{K}$  と仮定した際に実験結果とよく一致した (Fig. B-4)。

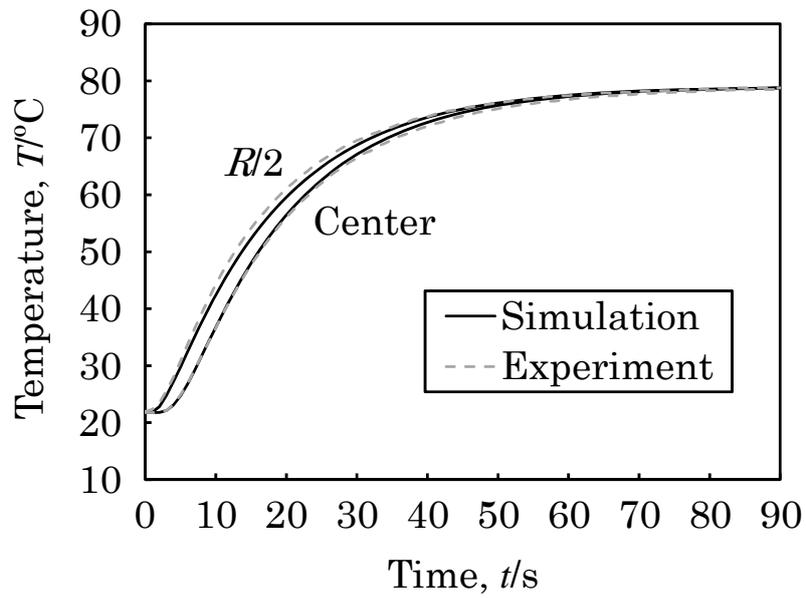


Fig. B-1 Experimental and simulated temperatures of a SUS sphere 30.16 mm in diameter in hot water.

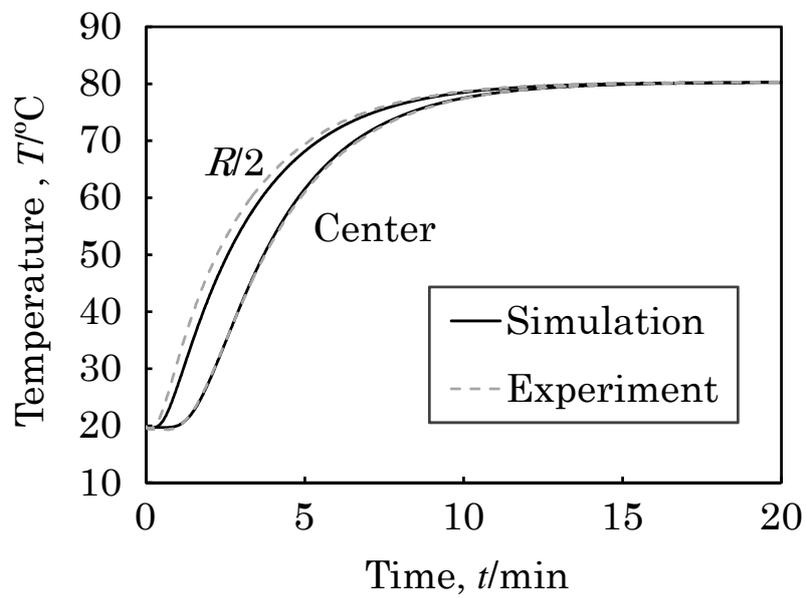


Fig. B-2 Experimental and simulated temperatures of a lignite particle 30 mm in diameter in hot water.

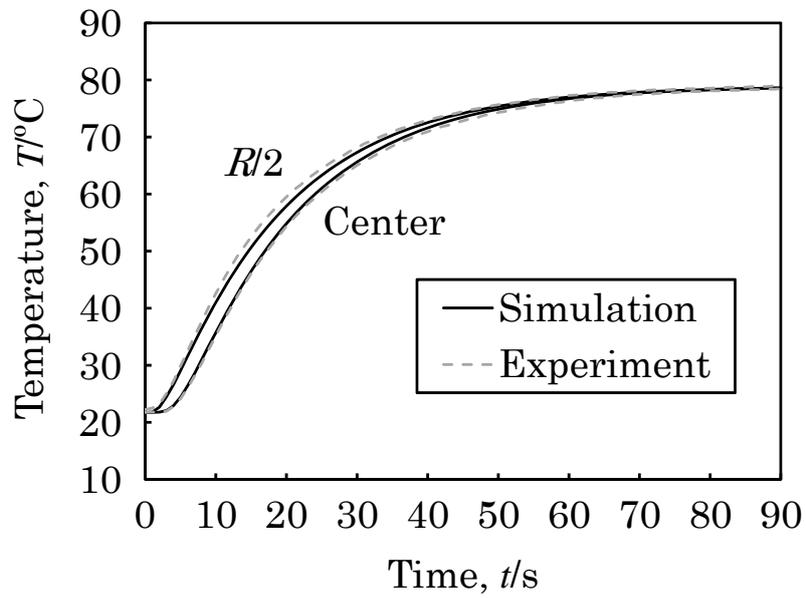


Fig. B-3 Experimental and simulated temperatures of a SUS sphere with black body spray in hot water.

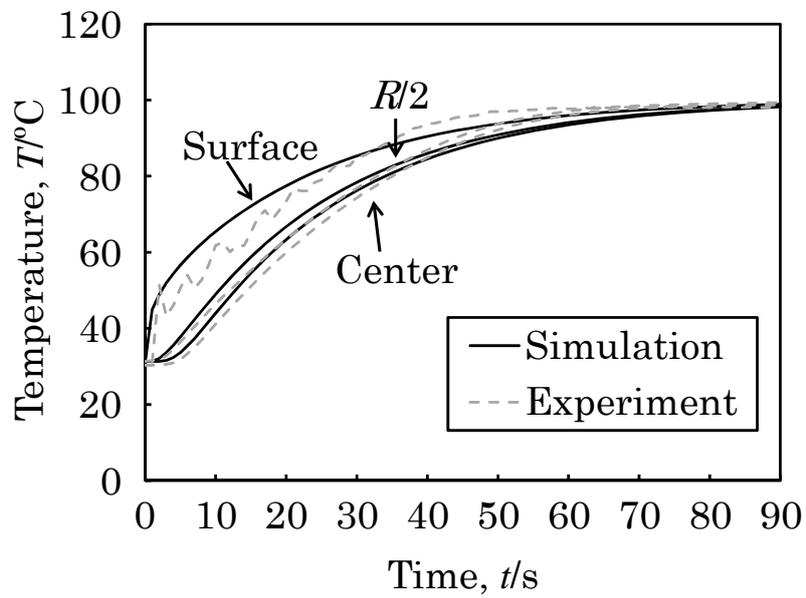


Fig. B-4 Experimental and simulated temperatures of a SUS sphere with black body paint in the test section.

## Appendix C 水の蒸発に関する熱力学データ

褐炭中からの水の蒸発を熱力学的に考察するために、液体の水が水蒸気になる反応のギブス自由エネルギー変化について、関連する熱力学データを本項でまとめる。なお、本項においては、温度  $T$  の単位をケルビンで表す。

本研究で扱うのは、373 K 以上における過熱水蒸気であり、気圧は 1 気圧である。0.1MPa における液体の水の定圧比熱  $c_{p,l}$  と水蒸気の定圧比熱  $c_{p,g}$  の報告値<sup>[4, 5]</sup>を Fig. C-1 に示す。JANAF および IAPWS の報告値はほとんど一致しており、IAPWS に記載された値を最も信頼性の高いデータと考えた。なお、JANAF 中において、373 K 以上の液体の水の物性値は、10 MPa の値等から推計したものである。373 K における水の蒸発潜熱を  $L$  とすると、373K 以上での蒸発に伴うエンタルピー変化は以下の式で表される。

$$\Delta H_{\text{evap}}(T) = L + \int_{373}^T (C_{p,g} - C_{p,l}) dT$$

Fig. C-1 中で  $c_{p,l}$  は  $c_{p,g}$  より大きいため、 $C_{p,g} - C_{p,l}$  はマイナスになり、蒸発に伴うエンタルピー変化は温度の上昇とともに減少する。この傾向は Fig. 2-19 において同様に確認できる。また、373 K での蒸発に伴うエントロピー変化を  $\Delta S_{373}$  とすると、373 K 以上での蒸発に伴うエントロピー変化は以下の式で表される。

$$\Delta S_{\text{evap}}(T) = \Delta S_{373} + \int_{373}^T \frac{(C_{p,g} - C_{p,l})}{T} dT$$

373 K におけるにおける平衡より  $L - 373\Delta S_{373} = 0$  である。 $C_{p,g} - C_{p,l}$  はマイナスになるため、蒸発に伴うエントロピー変化は温度の上昇とともに減少する。この傾向は Fig. 2-20 において同様に確認できる。蒸発に伴うギブス自由エネルギー変化は以下の式で表される。

$$\Delta G_{\text{evap}}(T) = \Delta H_{\text{evap}}(T) - T\Delta S_{\text{evap}}(T) = \int_{373}^T (C_{p,g} - C_{p,l}) dT - (T - 373) \frac{L}{373} - T \int_{373}^T \frac{(C_{p,g} - C_{p,l})}{T} dT$$

$C_{p,g} - C_{p,l}$  を一定値  $-40 \text{ J/K}\cdot\text{mol}$  と仮定し、 $L$  に沸点における水の蒸発熱

40.6 kJ/mol を代入すると、以下の式となる。

$$\Delta G_{\text{evap}}(T) = -0.15(T - 373) + 0.04T \ln \frac{T}{373}$$

上式により算出される  $\Delta G_{\text{evap}}(T)$  をグラフにしたものが Fig. C-2 である。

本研究の第 2 章 (Fig. 2-21) では IAPWS 中で各温度に対して記載された比エンタルピーおよび比エントロピーの値をそのまま使用したが、定圧比熱の差を一定と仮定した近似式を用いた場合でも、近い値のギブス自由エネルギー変化が得られ、これにより計算の簡易化も可能である。

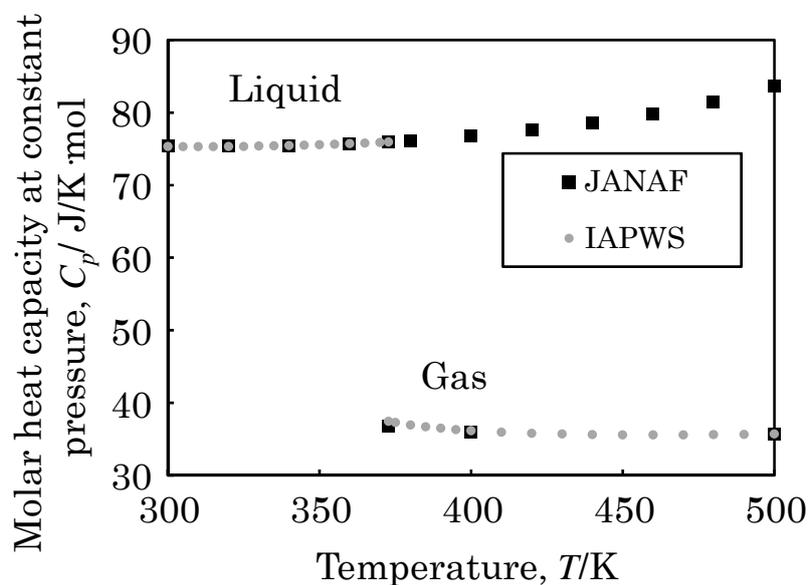


Fig. C-1 Molar heat capacity at constant pressure of liquid water and steam at 0.1 MPa.

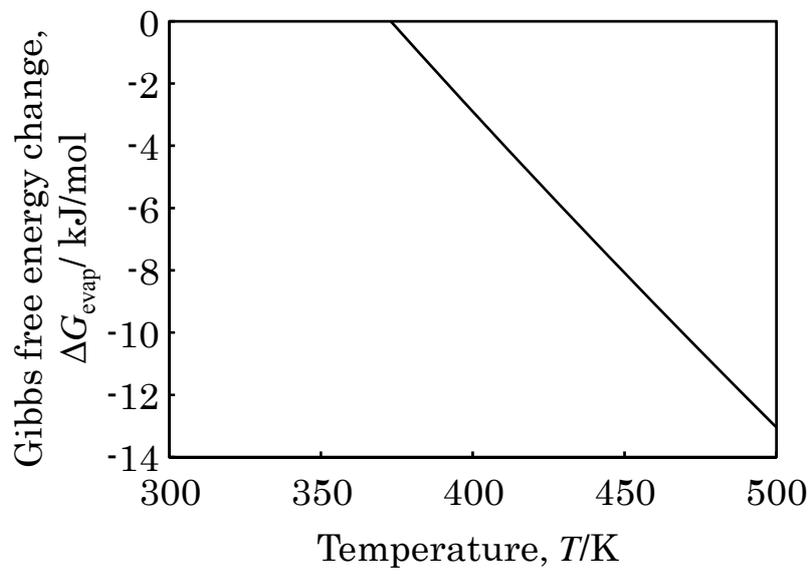


Fig. C-2 Calculated Gibbs free energy change in evaporation of water at 0.1 MPa.

## Appendix D 第3章において作成した数値計算用のプログラムコード

第3章において作成した数値計算用のプログラムは、Fortran 95 を用いて作成した。プログラムコードを以下に示す。

```
program main
  implicit none
  integer :: ndp,nts,i,ii,j,k,mm,nn,nnn
  double precision :: dp,sw,c,tc,hcond,have,tini,th,tmc,tms,wp,wn,wt,wt0,mc,drate,mcl,dif
  double precision :: a1,a2,a3,b,b1,b2,b3,cc,lheat !parameters for Newton method calculation
  double precision :: visf,swf,kivisf,cf,pcf,tdf,vexp !parameters related to steam
  double precision :: d(52),ds(52),dr(52),drs(52),h(52),hs(52),hsi(52),v(52),vs(52),evap(5,52),c2(52)
  double precision :: bc(25,52),s(10),time

  data dp /2.5d0/ !particle diameter(DBC) dp(mm)
  data sw /1434.1d0/ !specific weight(DBC) sw(kg/m3)
  data c /1284.1d0/ !specific heat(DBC) c(J/kg/K)
  data tc /0.200d0/ !thermal conductivity(DBC) tc(W/m/K)
  data hcond/5000.0d0/ !condensating heat transfer coefficient W/m2/K
  data dif /3.0d-9/ !water diffusion coefficient m2/s
  data tini /30.0d0/ !initial temperature tini(deg.)
  data th /110.0d0/ !heating temperature th(deg.)
  data tmc /40d0/ !calculation total time tmc(min.)
  data tms /0.001d0/ !time step interval tms(sec.)
  data ndp /50/ !elements of particle ndp(elements)
  data nn /1000/ !time step output number(every 1 s)

  nts =tmc*60.0/tms+2

!clearing
do i=1,ndp+2
  d(i) =0.0
  ds(i) =0.0
  dr(i) =0.0
  drs(i)=0.0
  h(i) =0.0
  hs(i) =0.0
  v(i) =0.0
  vs(i) =0.0
  c2(i)=0.0
end do

do i=1,ndp+1
  dr(i) =dp/1000.0/ndp !BC diameter step(m)
  drs(i) =dr(i)
end do

d(1)=dp/1000.0
ds(1)=d(1)

do i=2,ndp+1
  d(i) =dp/1000-dr(i)*(i-1.5) !BC outer diameter(m)
  ds(i) =d(i)
end do

do i=1,ndp+1
  h(i) =3.1415926*d(i)**2.0 !BC outer surface area(m2)
  hs(i) =h(i)
end do
```

```

do i=1,ndp
  hsi(i)=h(i+1)
end do

do i=1,ndp
  v(i) =3.1415926/6.0*(d(i)**3.0-d(i+1)**3.0) !BC shell volume(m3)
  vs(i) =v(i)
end do

v(ndp+1)=3.1415926/6.0*d(ndp+1)**3.0 !BC (center) shell volume(m3)
vs(ndp+1)=v(ndp+1)

time =0 !time elapsed(s)
have =0

do mm=1,10
  s(mm)=0.0
end do

do i=1,ndp+2
  do j=1,5
    evap(j,i)=0.0
  end do
end do

do i=1,ndp
  do j=1,25
    bc(j,i)=0.0
  end do
end do

!initial condition

visf =0.000000000179d0*th**2d0+0.0000000337554d0*th+0.0000087196522d0 !fluid viscosity
swf =-0.00000001366d0*th**3d0+0.00000956219d0*th**2d0-0.0032284413d0*th+0.83847751838d0 !fluid specific weight
kivisf =0.000000000204d0*th**2d0+0.000000082111d0*th+0.000010571130d0 !fluid kinetic
viscosity
cf =-0.0000002703d0*th**3d0+0.0001343924d0*th**2d0-0.0226148523d0*th+3.266296372d0 !fluid specific heat
tcf =0.000000116071d0*th**2+0.000051659821d0*th+0.018429826719d0 !fluid thermal
conductivity
tdf =0.000000000248d0*th**2+0.000000084749d0*th+0.000009765248d0 !fluid thermal
diffusivity
vexp =1/(th+273.15d0) !volume
expansion coefficient

drate =0.0d0
mcl =0.62d0/0.38d0

call fh(100.0d0,b)
b1=b

do i=1,ndp+2
  bc( 1,i)=0.0 !heat input J
  bc( 2,i)=0.0 !heat output J
  bc( 3,i)=tini !temperature deg.
  bc( 4,i)=0 !input-output deg.
  bc( 5,i)=tc !DBC thermal conductivity W/m2/K
  bc( 6,i)=0.0 !water thermal conductivity W/m2/K
  bc( 7,i)=0.0 !Steam thermal conductivity W/m2/K
  bc( 8,i)=0.0 !Total thermal conductivity
  bc( 9,i)=0.299 !DBC initial Volume ratio
  bc(10,i)=0.701 !water initial volume ratio
  bc(11,i)=0.0 !Steam initial volume ratio
  bc(12,i)=0.62 !Moisture weight ratio

```

```

bc(17,i)=0.000005120999d0*bc(3,i)**3-0.003986079116d0*bc(3,i)**2 &
-0.079498876768d0*bc(3,i)+1001.19887869005d0 !water specific weight kg/m3
bc(14,i)=v(i)*bc(9,i)*sw !DBC weight
bc(15,i)=v(i)*bc(10,i)*bc(17,i) !water weight
bc(13,i)=bc(14,i)+bc(15,i) !weight
bc(18,i)=0.0 !water swelling transfer weight
bc(19,i)=0.0 !water diffusion input weight
bc(20,i)=0.0 !water diffusion output weight
bc(21,i)=0.0 !water(input-output)
bc(22,i)=1.0 !shrinkage parameter
bc(23,i)=0.299 !DBC volume ratio(shrinkaged)
bc(24,i)=0.701 !water volume ratio(shrinkaged)
bc(25,i)=0.0 !steam volume ratio(shrinkaged)
end do

wt0 =sum(bc(13,:))

do i=1,ndp+1
bc(16,i)=bc(15,i)/bc(14,i) !Moisture content
end do

do i=1, ndp+1
c2(i)=(0.000000018484d0*bc(3,i)**3d0+0.000006795754d0*bc(3,i)**2d0 &
-0.000699714325d0*bc(3,i)+4.197863327693d0)*1.0d3 !water specific heat
end do

s(7) = ((d(1)/2+4.1d-5)**3-(d(1)/2d0)**3)*4/3*3.1415926d0*958.367d0 !Critical weight of water film on surface
s(8) = (((0.105d0/(d(1)/2d0*100))**4+4*(0.105d0**2))*0.5d0)-(0.105d0/(d(1)/2d0*100)**2)/2d0**0.5d0
!Critical diameter of water droplet(cm)
s(9) = s(8)**3d0*958.367d0*0.5d0*1.0d-6*4/3*3.1415926d0 !Critical weight of water droplet
s(10)=s(7)+s(9)

!calculation

do k=1,nts !do1

!evaporated steam calculation
do i=1,ndp+1
evap(2,i)=0.0000002703d0*bc(3,i)**3d0+0.0001343924d0*bc(3,i)**2d0-0.0226148523d0*bc(3,i)+3.266296372d0 !steam
specific heat
ii=ndp+2-i
evap(3,ii)=evap(1,ii+1)+evap(3,ii+1)
end do

!water specific heat calculation
do i=1, ndp+1
c2(i)=(0.000000018484d0*bc(3,i)**3d0+0.000006795754d0*bc(3,i)**2d0 &
-0.000699714325d0*bc(3,i)+4.197863327693d0)*1.0d3 !water specific heat
end do

!shrinkage calculation
if(s(3)<=0 .and. time>0) then
do i=1,ndp+1
bc(22,i)=(0.2692*(bc(10,i)/0.701)**3 - 0.6547*(bc(10,i)/0.701)**2 + 0.5468*(bc(10,i)/0.701)+ 0.8387) !30mm 110 59%

drs(i)=dr(i)*bc(22,i)
hs(i)=h(i)*bc(22,i)**2
hsi(i)=h(i+1)*bc(22,i)**2
vs(i)=v(i)*bc(22,i)**3
bc(23,i)=bc(9,i)/(bc(22,i)**3)
bc(24,i)=bc(10,i)/(bc(22,i)**3)
bc(25,i)=1-bc(23,i)-bc(24,i)
end do

ds(ndp+1)=drs(ndp+1)/2

```

```

do i=2,ndp
  ii=ndp+2-i
  ds(ii)=drs(ii)+ds(ii+1)
end do
ds(1)=drs(1)/2+ds(2)
end if

if(s(3)>0) then
  ds(1)=(d(1)**3.0d0+s(3)*6d0/3.1415926d0/958560d0)**(1d0/3d0) !outer radius of surface water
endif

  have =0.080257d0/ds(1)+18.74d0 !heat transfer coefficient

do i=1,ndp+1
  bc(13,i)=bc(14,i)+bc(15,i)
  bc(16,i)=bc(15,i)/bc(14,i)
end do

  wt =sum(bc(13,:))+s(3)
  mc =(sum(bc(15,:))+s(3))/sum(bc(14,:))
  drate =(mcl-mc)/tms

time=(k-1)*tms

  mcl =mc

!thermal conductivity
do i=1,ndp+1
  if(bc(3,i)<=100.0d0) then
    bc(6,i)=-0.000008709636d0*bc(3,i)**2d0+0.002005675838d0*bc(3,i)+0.562224811227d0 !water
  else
    bc(6,i)=-0.000005291667d0*bc(3,i)**2d0+0.001441126786d0*bc(3,i)+0.586492651176d0 !water
  end if
end do

do i=1,ndp+1
  bc(7,i)=0.000000116071d0**bc(3,i)**2d0+0.000051659821d0*bc(3,i)+0.018429826719d0 !steam
end do

do i=1,ndp+1
  bc(8,i)=bc(5,i)*bc(23,i)+bc(6,i)*bc(24,i)+bc(7,i)*bc(25,i)
end do

!output
if(tmc<=150d0 .and. mod(k-1,nn)==0) then
  write(*,*) wt*1000d0,bc(3,1),bc(3,26),bc(3,51),mc,drate
else
  if(tmc<=300d0 .and. tmc>150d0 .and. mod(k-1,nn)==0 .and. time>9000) then
    write(*,*) wt*1000d0,bc(3,1),bc(3,26),bc(3,51),mc,drate
  else
    if(tmc<=450d0 .and. tmc>300d0 .and. mod(k-1,nn)==0 .and. time>18000) then
      write(*,*) wt*1000d0,bc(3,1),bc(3,26),bc(3,51),mc,drate
    else
      if(tmc<=600d0 .and. tmc>450d0 .and. mod(k-1,nn)==0 .and. time>27000) then
        write(*,*) wt*1000d0,bc(3,1),bc(3,26),bc(3,51),mc,drate
      else
        if(tmc<=750d0 .and. tmc>600d0 .and. mod(k-1,nn)==0 .and. time>36000) then
          write(*,*) wt*1000d0,bc(3,1),bc(3,26),bc(3,51),mc,drate
        else
          if(tmc<=900d0 .and. tmc>750d0 .and. mod(k-1,nn)==0 .and. time>45000) then
            write(*,*) wt*1000d0,bc(3,1),bc(3,26),bc(3,51),mc,drate
          else
            if(tmc<=1050d0 .and. tmc>900d0 .and. mod(k-1,nn)==0 .and. time>54000) then

```



end do

!condensation period

```
if(bc(3,1)<99.99) then !if1
  wp   =(100.0-bc(3,1))*h(1)*hcond*tms
  wn   =(th-100.0)*3.1415926d0*ds(1)**2d0*have*tms

  if(time==0.0 .or. s(3)>0) then !if1-1
    bc(1,1)=wp
    bc(1,ndp+2)=0.0      !heat input(i=ndp+1) =0, no heat output from center

  do i=2,ndp+1
    bc(1,i)=1/(dr(i-1)/4/bc(8,i-1)+dr(i)/4/bc(8,i))*h(i)*(bc(3,i-1)-bc(3,i))*tms !input equation
  end do

  do i=1,ndp+1
    bc(2,i)=bc(1,i+1) !output(i)=input(i+1)
  end do

  do i=1,ndp+1
    bc(4,i)=bc(1,i)-bc(2,i)
  end do

  do i=1,ndp+1
    bc(3,i)=bc(4,i)/(bc(14,i)*c+bc(15,i)*c2(i))+bc(3,i)
  end do

  do i=1,ndp+1
    bc(17,i)=0.000005120999d0*bc(3,i)**3-0.003986079116d0*bc(3,i)**2 &
      -0.079498876768d0*bc(3,i)+1001.19887869005d0 !water specific weight kg/m3
    bc(18,i)=bc(15,i)-bc(17,i)*v(i)*bc(10,i)
    bc(15,i)=bc(17,i)*v(i)*bc(10,i)
    bc(16,i)=bc(15,i)/bc(14,i)
  end do

  s(1) =wp/2256.0d3
  s(2) =wn/2256.0d3
  s(4) =sum(bc(18,:))
  s(3) =s(3)+s(1)-s(2)+s(4)
  s(5) =s(5)+s(4)
  s(6) =s(6)+s(1)

  if(s(3)>s(10)) then
    s(3) =s(3)-s(9)
  end if

end if !if1-1

if(s(3)<=0) then !if1-2
  s(3)=0.0
  bc(1,1)=wp
  bc(1,ndp+2)=0.0      !heat input(i=ndp+1) =0, no heat output from center

!water transfer calculation
bc(19,ndp+1)=0.0

do i=1,ndp !do trans1

  if(bc(16,i+1)>b1) then
    bc(19,i)=dif*(bc(16,i+1)-bc(16,i))*hs(i+1)/(drs(i)/4+drs(i+1)/4)*sw*tms !water input
  end if

  if(bc(16,i+1)<=b1 .and. bc(16,i+1)>0) then
    bc(19,i)=0.0
```

```

end if

if(bc(16,i+1)<=0) then
bc(19,i)=0
end if
end do      !do trans1

bc(20,1)=0.0 !do trans2
do i=2,ndp+1
bc(20,i)=bc(19,i-1) !water output(i)=water input(i-1)
end do      !do trans2

do i=1,ndp+1 !do trans3
bc(21,i)=bc(19,i)-bc(20,i)
bc(15,i)=bc(15,i)+bc(21,i)
end do      !do trans3

do i=1,ndp !do trans4

if(bc(3,i)>100.0) then

if(bc(21,i)*2256d3<bc(4,i)) then
bc(15,i)=bc(15,i)-bc(21,i)
bc(4,i)=bc(4,i)-2256d3*bc(21,i)
evap(1,i)=bc(21,i)

else
bc(15,i)=bc(15,i)-bc(21,i)
bc(15,i+1)=bc(15,i+1)+bc(21,i)
bc(21,i+1)=bc(21,i+1)+bc(21,i)
bc(21,i)=bc(4,i)/2256d3
bc(15,i)=bc(15,i)
bc(15,i+1)=bc(15,i+1)-bc(21,i)
bc(21,i+1)=bc(21,i+1)-bc(21,i)
bc(4,i)=0.0
evap(1,i)=bc(21,i)

end if
end if
end do !do dif4
!water transfer calculation end

do i=2,ndp+1
bc(1,i)=1/(dr(i-1)/4/bc(8,i-1)+dr(i)/4/bc(8,i))*h(i)*(bc(3,i-1)-bc(3,i))*tms !input equation
end do

do i=1,ndp+1
bc(2,i)=bc(1,i+1) !output(i)=input(i+1)
end do

do i=1,ndp+1
bc(4,i)=bc(1,i)-bc(2,i)
end do

do i=1,ndp+1
bc(3,i)=bc(4,i)/(bc(14,i)*c+bc(15,i)*c2(i))+bc(3,i)
end do

do i=2,ndp+1
bc(17,i)=0.000005120999d0*bc(3,i)**3-0.003986079116d0*bc(3,i)**2 &
-0.079498876768d0*bc(3,i)+1001.19887869005d0 !water specific weight kg/m3
if(bc(15,i)>bc(17,i)*v(i)*bc(10,i)) then
bc(18,i)=bc(15,i)-bc(17,i)*v(i)*bc(10,i)
bc(15,i)=bc(17,i)*v(i)*bc(10,i)

```

```

    bc(16,i)=bc(15,i)/bc(14,i)
  end if
end do

bc(15,1)=bc(15,1)+sum(bc(18,:))+wp/2256d3-wn/2256d3
bc(16,1)=bc(15,1)/bc(14,1)

do i=1,ndp+1
  bc(17,i)=0.000005120999d0*bc(3,i)**3-0.003986079116d0*bc(3,i)**2 &
    -0.079498876768d0*bc(3,i)+1001.19887869005d0 !water specific weight kg/m3
  bc(10,i)=bc(15,i)/bc(17,i)/v(i)
  bc(11,i)=0.701-bc(10,i)
end do

  end if !if1-2
end if !if1

!surface evaporating period
if(bc(3,1)>=99.99 .and. s(3)>0.0) then !if2
  wp =0.0d0
  wn =(th-100.0)*3.1415926*ds(1)**2*have*tms

  bc(3,1)=100.0

  bc(1,ndp+2)=0.0 !heat input(i=ndp+1) =0, no heat output from center

do i=2,ndp+1
  bc(1,i)=1/(dr(i-1)/4/bc(8,i-1)+dr(i)/4/bc(8,i))*h(i)*(bc(3,i-1)-bc(3,i))*tms !heat input equation
end do

do i=1,ndp+1
  bc(2,i)=bc(1,i+1) !output(i)=input(i+1)
end do
  bc(1,1)=bc(2,1)
do i=1,ndp+1
  bc(4,i)=bc(1,i)-bc(2,i)
end do

do i=2,ndp+1
  bc(3,i)=bc(4,i)/(bc(14,i)*c+bc(15,i)*c2(i))+bc(3,i)
end do

  s(2) =(wn-(bc(2,1)))/2256.0d3
  s(3) =s(3)-s(2)
end if !if2

!drying period1(center<100degC)

if(s(3)<=0.0 .and. time>0.0 .and. bc(3,1)>99.99 .and. bc(3,ndp+1)<=99.99) then !if3

  if(bc(16,1)>b1) then
    bc(3,1)=100.0
  end if

  wp =0.0
  wn =(th-bc(3,1))*3.1415926*ds(1)**2*have*tms

  bc(1,1)=wn

  bc(1,ndp+2)=0.0 !heat input(i=ndp+1) =0, no heat output from center

do i=2,ndp+1
  bc(1,i)=1/(drs(i-1)/4/bc(8,i-1)+drs(i)/4/bc(8,i))*hs(i)*(bc(3,i-1)-bc(3,i))*tms !heat input equation
end do

```

```

do i=1,ndp+1
  bc(2,i)=bc(1,i+1) !output(i)=input(i+1)
end do

  bc(4,1)=bc(1,1)-bc(2,1)-(bc(3,1)-bc(3,2))*evap(3,1)*evap(2,1)
do i=2,ndp+1
  bc(4,i)=bc(1,i)-bc(2,i)-(bc(3,i)-bc(3,i+1))*evap(3,i)*evap(2,i)
end do

!water transfer calculation
bc(19,ndp+1)=0.0

do i=1,ndp !do trans1

  if(bc(16,i+1)>b1) then
bc(19,i)=dif*(bc(16,i+1)-bc(16,i))*hs(i+1)/(drs(i)/4+drs(i+1)/4)*sw*tms !water input
  end if

  if(bc(16,i+1)<=b1 .and. bc(16,i+1)>0) then
bc(19,i)=0.0
  end if

  if(bc(16,i+1)<=0) then
bc(19,i)=0
  end if
end do !do trans1

bc(20,1)=0.0 !do trans2
do i=2,ndp+1
bc(20,i)=bc(19,i-1) !water output(i)=water input(i-1)
end do !do trans2

do i=1,ndp+1 !do trans3
bc(21,i)=bc(19,i)-bc(20,i)
bc(15,i)=bc(15,i)+bc(21,i)
end do !do trans3

do i=1,ndp !do trans4

  if(bc(3,i)>100.0) then

    if(bc(21,i)*2256d3<bc(4,i)) then
      bc(15,i)=bc(15,i)-bc(21,i)
      bc(4,i)=bc(4,i)-2256d3*bc(21,i)
      evap(1,i)=bc(21,i)
    else
      bc(15,i)=bc(15,i)-bc(21,i)
      bc(15,i+1)=bc(15,i+1)+bc(21,i)
      bc(21,i+1)=bc(21,i+1)+bc(21,i)
      bc(21,i)=bc(4,i)/2256d3
      bc(15,i)=bc(15,i)
      bc(15,i+1)=bc(15,i+1)-bc(21,i)
      bc(21,i+1)=bc(21,i+1)-bc(21,i)
      bc(4,i)=0.0
      evap(1,i)=bc(21,i)
    end if
  end if
end do !do trans4
!water diffusion calculation end

do i=1,ndp+1 !do3-1

```

```

if(bc(3,i)<=99.99) then !if3-1
  bc(3,i)=bc(4,i)/(bc(14,i)*c+bc(15,i)*c2(i))+bc(3,i)

  bc(17,i)=0.000005120999d0*bc(3,i)**3-0.003986079116d0*bc(3,i)**2 &
    -0.079498876768d0*bc(3,i)+1001.19887869005d0 !water specific weight kg/m3
  bc(10,i)=bc(15,i)/bc(17,i)/v(i)
  bc(11,i)=0.701-bc(10,i)
end if !if3-1

if(bc(3,i)>99.99) then !if3-2
  if(bc(16,i)>b1) then !equilibrium moisture content condition if3-2-1
    bc(3,i) = 100.0
    evap(1,i)=bc(4,i)/2256d3
    bc(15,i) = -evap(1,i)+bc(15,i) !heat is only used for evaporation.
    bc(16,i) =bc(15,i)/bc(14,i)

    bc(17,i)=0.000005120999d0*bc(3,i)**3-0.003986079116d0*bc(3,i)**2 &
      -0.079498876768d0*bc(3,i)+1001.19887869005d0 !water specific weight kg/m3
    bc(10,i)=bc(15,i)/bc(17,i)/v(i)
    bc(11,i)=0.70-bc(10,i)

  end if !if3-2-1

  if(bc(16,i)<=b1) then !if3-2-2
    a1=bc(3,i)
    call fh(a1,b)
    b2=b
    nnn=1

1 continue
    nnn=nnn+1
    call fh(a1,b)
    b3=b
    call dfh(a1,cc)

    lheat= (2932d0-676d0*exp(-0.077d0*(a1-100.0d0)))*1.0d3

    a2=a1-(bc(4,i)-(b2-b3)*bc(14,i)*lheat-(a1-bc(3,i))*(bc(14,i)*c+bc(14,i)*(b2+b3)/2*c2(i))) &
      /(cc*bc(14,i)*lheat-(bc(14,i)*c+bc(14,i)*(b2+b3)/2*c2(i)))

    a3=abs(a2-a1)
    a1=a2

    if(a3<1.0d-14 .or. nnn>15) then
      goto 2
    else
      goto 1
    end if

2 continue
    bc(3,i)=a2
    evap(1,i) =bc(15,i)-bc(14,i)*b3
    bc(15,i)=bc(14,i)*b3
    bc(16,i) =bc(15,i)/bc(14,i)

    bc(17,i)=0.000005120999d0*bc(3,i)**3-0.003986079116d0*bc(3,i)**2 &
      -0.079498876768d0*bc(3,i)+1001.19887869005d0 !water specific weight kg/m3
    bc(10,i)=bc(15,i)/bc(17,i)/v(i)
    bc(11,i)=0.701-bc(10,i)

  end if !if3-2-2
end if !if3-2
end do !do3-1
end if !if3

```

```

!drying period2(center>=100degC)
if(s(3)<=0.0 .and. time>0.0 .and. bc(3,ndp+1)>99.99) then !if4

    s(3) =0.0
    wp   =0.0
    wn   =(th-bc(3,1))*3.1415926d0*ds(1)**2d0*have*tms

    bc(1,1)=wn

    bc(1,ndp+2)=0.0      !heat input(i=ndp+1) =0, no heat output from center

do i=2,ndp+1
    bc(1,i)=1/(drs(i-1)/4/bc(8,i-1)+drs(i)/4/bc(8,i))*hs(i)*(bc(3,i-1)-bc(3,i))*tms  !heat input equation
end do

do i=1,ndp+1
    bc(2,i)=bc(1,i+1)    !output(i)=input(i+1)
end do

    bc(4,1)=bc(1,1)-bc(2,1)-(bc(3,1)-bc(3,2))*evap(3,1)*evap(2,1)
do i=2,ndp+1
    bc(4,i)=bc(1,i)-bc(2,i)-(bc(3,i)-bc(3,i+1))*evap(3,i)*evap(2,i) !&
end do

!water transfer calculation
bc(19,ndp+1)=0.0

do i=1,ndp !do dif1

    if(bc(16,i+1)>b1) then
bc(19,i)=dif*(bc(16,i+1)-bc(16,i))*hs(i+1)/(drs(i)/4+drs(i+1)/4)*sw*tms !water input
    end if

    if(bc(16,i+1)<=b1 .and. bc(16,i+1)>0) then
bc(19,i)=0.0
    end if

    if(bc(16,i+1)<=0) then
bc(19,i)=0
    end if
end do    !do trans1

bc(20,1)=0.0 !do trans2
do i=2,ndp+1
bc(20,i)=bc(19,i-1) !water output(i)=water input(i-1)
end do    !do trans2

do i=1,ndp+1 !do trans3
bc(21,i)=bc(19,i)-bc(20,i)
bc(15,i)=bc(15,i)+bc(21,i)
end do    !do trans3

do i=1,ndp !do trans4

if(bc(3,i)>100.0) then

if(bc(21,i)*2256d3<bc(4,i)) then
    bc(15,i)=bc(15,i)-bc(21,i)
    bc(4,i)=bc(4,i)-2256d3*bc(21,i)
    evap(1,i)=bc(21,i)
else
    bc(15,i)=bc(15,i)+bc(21,i)
    bc(15,i+1)=bc(15,i+1)+bc(21,i)

```

```

bc(21,i+1)=bc(21,i+1)+bc(21,i)
bc(21,i)=bc(4,i)/2256d3
bc(15,i)=bc(15,i)
bc(15,i+1)=bc(15,i+1)-bc(21,i)
bc(21,i+1)=bc(21,i+1)-bc(21,i)
bc( 4,i)=0.0
evap(1,i)=bc(21,i)

end if
end if
end do !do trans4
!water transfer calculation end

do i=1,ndp+1 !do4-1

if(bc(16,i)>b1) then !lif4-1
bc(3,i) = 100.0
evap(1,i)=evap(1,i)+bc(4,i)/2256d3
bc(15,i) = -bc(4,i)/2256d3+bc(15,i) !heat is only used for evaporation.

bc(17,i)=0.000005120999d0*bc(3,i)**3-0.003986079116d0*bc(3,i)**2 &
-0.079498876768d0*bc(3,i)+1001.19887869005d0 !water specific weight kg/m3
bc(10,i)=bc(15,i)/bc(17,i)/v(i)
bc(11,i)=0.701-bc(10,i)
end if !lif4-1

if(bc(16,i)<=b1) then !lif4-2

a1=bc(3,i)
call fh(a1,b)
b2=b
nnn=1

3 continue
nnn=nnn+1
call fh(a1,b)
b3=b
call dfh(a1,cc)

lheat= (2932d0-676d0*exp(-0.077d0*(a1-100.0d0)))*1.0d3

a2=a1-(bc(4,i)-(b2-b3)*bc(14,i)*lheat-(a1-bc(3,i))*(bc(14,i)*c+bc(14,i)*(b2+b3)/2*c2(i))) &
/(cc*bc(14,i)*lheat-(bc(14,i)*c+bc(14,i)*(b2+b3)/2*c2(i)))
a3=abs(a2-a1)
a1=a2

if(a3<1.0d-14 .or. nnn>15) then
goto 4
else
goto 3
end if

4 continue
bc(3,i)=a2
evap(1,i)=evap(1,i)+bc(15,i)-bc(14,i)*b3
bc(15,i)=bc(14,i)*b3
bc(16,i) =bc(15,i)/bc(14,i)

bc(17,i)=0.000005120999d0*bc(3,i)**3-0.003986079116d0*bc(3,i)**2 &
-0.079498876768d0*bc(3,i)+1001.19887869005d0 !water specific weight kg/m3
bc(10,i)=bc(15,i)/bc(17,i)/v(i)
bc(11,i)=0.701-bc(10,i)

end if !lif4-2

```

```

        end do !do4-1
    end if !if4
end do !do1
stop

contains
subroutine fh(a,b) !function of equilibrium moisture content
    implicit none
    double precision :: a,b

    if(a>=100.0d0 .and. a<=110.4d0) then
        b = 0.706429959423987d0/(a-98.5806470210088d0)+0.0622873310020046d0
    else
        b = -0.0000007428d0*a**3d0+0.0003489793d0*a**2d0-0.0549514027d0*a+2.9347670871d0
    end if

    return
end subroutine fh

subroutine dfh(a,cc) !differential function of equilibrium moisture content
    implicit none
    double precision :: a,cc

    if(a>=100.0d0 .and. a<=110.4d0) then
        cc = -0.706429959423987d0/((a-98.5806470210088d0)**2d0)
    else
        cc = -0.0000022284d0*a**2d0+0.0006979586d0*a-0.0549514027d0
    end if

    return
end subroutine dfh

end program main

```

## 参考文献

- [1] 日本工業標準調査会: JIS C1602, 熱電対 (1995)
- [2] Y. S. Touloukian, E. H. Buyco: “Specific heat: metallic elements and alloys”, Thermophysical properties of matter vol.4 (1970)
- [3] Y. S. Touloukian, R. W. Powell, C. Y. Ho, and P. G. Klemens: “Thermal conductivity: Metallic elements and alloys”, Thermophysical properties of matter vol.1 (1970)
- [4] M. W. Chase et al.: “JANAF thermochemical tables 3<sup>rd</sup> edition”, Journal of physical and chemical reference data ; v. 14, suppl. no. 1, 1985 (1986)
- [5] W. Wagner and A. Pruß: “The IAPWS Formulation 1995 for the Thermodynamic Properties of Ordinary Water Substance for General and Scientific Use”, J. Phys. Chem. Ref. Data 31 (2002) 387-535