

令和元年5月24日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K12618

研究課題名（和文）低温作動型高効率連続再生式PM2.5除去装置の開発に関する研究

研究課題名（英文）Study on development of high efficiency continuous regeneration type PM2.5 removal device operating at low temperature

研究代表者

山本 剛 (Yamamoto, Tsuyoshi)

九州大学・工学研究院・准教授

研究者番号：20321979

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,900,000円

研究成果の概要（和文）：PMは主に燃焼機関から排出される煤塵であり、近年の燃焼技術の向上により微小化しているが、小さいほど人体の奥深くに入り易く様々な疾患の原因物質とされている。しかし、現状技術の改善ではPM2.5を高効率捕集することは難しく、新たな手法の開発が必要である。申請者らは粒子間付着力を利用した流動層式PM除去装置を開発し、PM2.5の高効率捕集に成功した。またPMはベッド粒子表面に付着・堆積することから、PMの捕集と酸化処理を同時に行えば、装置は半永久的に使用可能となる。本研究では流動層の低温燃焼特性、酸化触媒の適用によりPMの酸化を促進し、低温で運用可能な高効率連続再生式PM2.5除去装置を開発する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在、PMの除去にはバグフィルタ、DPF、電気集塵機が用いられているが、現状技術の改善によりPM2.5を高効率捕集することは難しい。これに対し、本研究では粒子自身が持つファンデルワールス力等を利用してPM2.5を高効率捕集する点が独創的である。本装置は、流動媒体が自由に動きPM捕集に伴う圧力損失の上昇を抑制、簡単な装置構造により低コストで運用可能、装置の大型化・小型化が容易であらゆる燃焼機関に対応可能である。本研究成果が達成されれば、様々な燃焼機関へのPM除去装置の装着を促進し、PMの大幅な削減が達成可能であることから、人体への影響低減および地球環境負荷低減に対する貢献は非常に大きい。

研究成果の概要（英文）：PM is mainly soot emitted from combustion system, and it has been miniaturized with the improvement of combustion technology in recent years. As it is smaller, it can easily enter deeper into the human body and is considered as the causative agent of various diseases. However, it is difficult to collect PM2.5 with high efficiency by the improvement of the current technology, and it is necessary to develop a new concept device. We developed a fluidized bed type PM removal device using adhesion force and succeeded in 100% collection of PM2.5. PM is collected to adhere to and accumulate on the bed particle surface. If PM collection and oxidation treatment are performed simultaneously, the device can be used semipermanently. In this study, we develop a high efficiency continuous regeneration type PM2.5 removal device that can be operated at low temperature by using low temperature combustion characteristics of fluidized bed and PM oxidation promotion effect of the oxidation catalyst.

研究分野：環境学

キーワード：PM2.5 付着力 流動層 連続再生 酸化反応 相対速度 数値シミュレーション

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

PM は主に発電施設やディーゼル機関等の燃焼に伴い生成される微小径の煤塵であり、近年の燃焼技術の向上により粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以下の $\text{PM}_{2.5}$ が増えているが、PM の粒径が小さいほど気管支や肺の深部に達するため、 $\text{PM}_{2.5}$ が呼吸器系・循環器系疾患の原因物質とされている。現在、PM の除去にはバグフィルタ、DPF(Diesel Particulate Filter)、電気集塵機等が用いられているが、 $\text{PM}_{2.5}$ はバグフィルタや DPF の気孔よりも小さく気孔をすり抜け、電気集塵機では $\text{PM}_{2.5}$ が小さく帯電性能が悪くなるため、各種 PM 除去装置において $\text{PM}_{2.5}$ の捕集性能は低下する。したがって、従来法により $\text{PM}_{2.5}$ を高効率捕集するためには何らかの改善が必要となるが、今のところ有効な改善方法はないことから、新たな捕集機構を有した高効率 $\text{PM}_{2.5}$ 除去装置の開発が必要である。

2. 研究の目的

微小粒子の集合体として定義される粉体では、その力学的特性から粒子間が接近した状態にあるとき、粒子間に Van der Waals 力等の付着力が働き、粒径が小さいほど付着力が支配的になる。そこで申請者は、粒子間付着力を利用して PM を捕集するため PM 除去装置に流動層を適用した。その結果、PM 濃度 30 mg/m^3 (バス等の排ガス程度) の 180 分間連続供給実験において $\text{PM}_{2.5}$ の 100% 捕集に成功した。一方、PM は時間経過とともにベッド粒子表面に付着・堆積していくが、付着した PM を酸化処理してベッド粒子表面をクリーンな状態に保つことができれば、装置は半永久的に使用可能となる。一般に、すす等の PM を酸化処理するには 600°C 程度の熱を外部から加える必要があるが、これを 300°C 程度で行うことができれば排ガスの熱で処理可能となる。流動層は低温燃焼機関として知られていることから、 300°C において PM の捕集・酸化実験を行ったところ、ゆっくりではあるが PM の酸化が起こり PM の捕集効率が向上した。そこで本研究では、流動層の低温燃焼特性を活かすとともに酸化触媒を活用することで、PM を捕集しながら排熱により PM を酸化処理する高効率連続再生式 $\text{PM}_{2.5}$ 除去装置の開発を目指す。

3. 研究の方法

(1) 連続再生式 PM 除去に関する実験装置および方法

Figure 1 に流動層式 PM 除去装置の詳細図を、Table 1 に実験条件を示す。流動層式 PM 除去装置は内径 80.7 mm 、高さ 400 mm の円筒容器、分散板、bed 粒子部、フリーボード部から構成される。分散板は均一な流動を生成する目的で設置し、直径 0.3 mm の小孔を 2.1 mm のピッチで加工した開口率 1.6% 、厚さ 1 mm のステンレス板を用いる。bed 粒子は耐熱性に優れた密度 3700 kg/m^3 の球状焼結アルミナを使用し、その粒径の範囲は $0.3 - 0.5\text{ mm}$ 、平均粒径は 0.42 mm である。燃焼促進物質であるカリウムは含浸法により bed 粒子に担持する。本研究では、本法の連続再生式 PM 除去装置としての性能を調べるため、PM として工業的に生産された可燃物であるカーボンブラックを用い、ふるいにより粒径 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下、 $100 - 125\text{ }\mu\text{m}$ に分類したものを使用する。また、固定層状態における bed 粒子層高さは 100 mm 、空塔速度は 0.4 m/s とする。本研究では各粒径の粒子を含む空気を連続的に装置に供給し、実験装置出口における黒煙濃度を光透過式スモークメータ(MEXA-600S、堀場製作所)により測定し捕集率を算出する。なお、PM 投入濃度は $30 - 100\text{ mg/m}^3$ 、bed 粒子層温度は常温、 $250 - 400^\circ\text{C}$ 、実験時間は $180, 240$ 分として実験を行う。

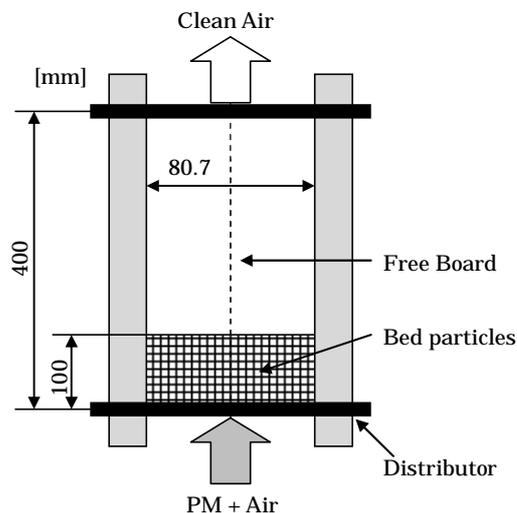


Figure 1 Schematic diagram of fluidized bed type PM removal device.

Table 1 Experimental conditions

Superficial gas velocity, m/s	0.4
Bed height at quiescent, mm	100
Minimum fluidization velocity, m/s	0.26
Void fraction at quiescent, -	0.453
Bed particle	Alumina
Bed temperature,	$25 - 400$
Bed particle diameter, mm	$0.3 - 0.5$
Bed particle density, kg/m^3	3700
PM particle	Carbon black
PM diameter, μm	$< 20, 100 - 125$
PM density, kg/m^3	1900
PM concentration, mg/m^3	$30 - 100$
Combustion promoting substance	Potassium
Amount of supported K, g/kg	1.58
Experimental time, min	$180 - 240$

(2) PM 酸化反応速度式に関する実験装置および方法

PM の酸化反応速度を導出するための熱重量測定装置を Fig.2 に、実験条件を Table 2 に示す。

本装置は流動層内のガスとPM間の相対速度の影響を考慮するように設計されている。ガス流路内に一辺15mmの立方体、比重1.80の固形カーボンを電子天秤に吊るした状態で設置し、下部から予熱した空気を吹き付けることで酸化反応を起こす。酸化剤は試料下部から0.3-0.8 m/sで供給し、炭素材の温度が250-400 となるように制御する。固形カーボン試料は底面以外を金属容器で囲うことで酸化剤との接触を遮断し、酸化剤と直接衝突することで最も反応速度が高いと予想される試料底面部における酸化反応速度を求め、各条件における単位時間当たりの重量変化を測定して酸化反応速度を求め、Arrhenius型燃焼速度式を導出する。なお、重量測定は試料温度が安定した後を開始し、実験時間は360分とした。

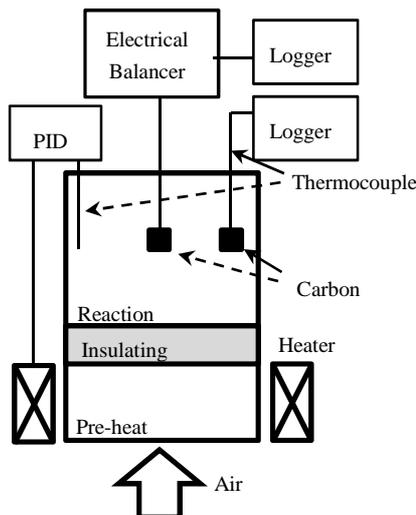


Figure 2 Schematic of thermogravimetry

Table 2 Experimental conditions

Activation energy E_a , kJ/mol	46.1
Pre-exponential factor A , kg/(s·m)	4.34×10^{-5}
Coefficient C_0	0.623
Coefficient C_1	0.00402
Exponent n	0.977
Exponent m	0.012

(3) 数値解析

解析対象は Fig. 1 に示す流動層式PM除去装置とし、軸対称場を仮定した2次元円筒座標系においてEuler-Euler法を適用した非定常解析を行う。PMの投入濃度は 100 mg/m^3 、空塔速度は 0.4 m/s とする。PMの付着は実験式から導出した式を用い、PMの燃焼反応は上述したArrhenius型の燃焼速度式を用いて評価する。式(1)に支配方程式を示す。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\alpha_i \rho_i \phi_i) + \frac{\partial}{\partial x}(\alpha_i \rho_i u_i \phi_i) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(\alpha_i r \rho_i v_i \phi_i) \\ = \frac{\partial}{\partial x} \left(\alpha_i \Gamma_{\phi_i} \frac{\partial \phi_i}{\partial x} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\alpha_i r \Gamma_{\phi_i} \frac{\partial \phi_i}{\partial r} \right) + \alpha_i S_{\phi_i} \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 $i=1, 2$ は気相、固相、 ϕ 、 Γ_{ϕ} 、 S_{ϕ} 、 α は変数、拡散係数、生成項、体積分率である。支配方程式は有限体積法により離散化し、圧力場と速度場のカップリングにはSIMPLE法を用いる。気相-固相間の運動量交換係数を表すDrag forceモデルはGidaspowモデルを用いる。

4. 研究成果

空塔速度 0.4 m/s 、PM粒径 $100-125 \mu\text{m}$ 、bed粒子層温度 400 において、bed粒子にカリウムを担持した場合としない場合のPM捕集効率をFig. 3に示す。また比較のため、常温の条件における実験結果を併せて示す。図より、粒子層温度を上昇させた場合、捕集効率が上昇している。これは、bed粒子表面上に付着したPMが燃焼し、新たにPMが付着できる場所が確保されたこと、PMの凝集体が形成されにくくなったことにより、bed粒子の捕集能力が維持されたためである。本実験はPM粒径 $100-125 \mu\text{m}$ 、PM投入濃度 100 mg/m^3 という非常に厳しい条件で実施しているため、PM付着速度 $>$ PM燃焼速度となっているが、トラック等の排ガス程度(30 mg/m^3)であれば、 400 以下でPM付着速度 $<$ PM燃焼速度となることが予想される。また、カリウムの有無により実験開始時はほとんど違いが見られないが、時間経過とともにカリウムを担持することで捕集効率が上昇し、180分では 84.0% から 85.4% に上昇している。これはカリウムの燃焼促進効果によりPMの燃焼が促進され、bed粒子上のPMが減少したためである。

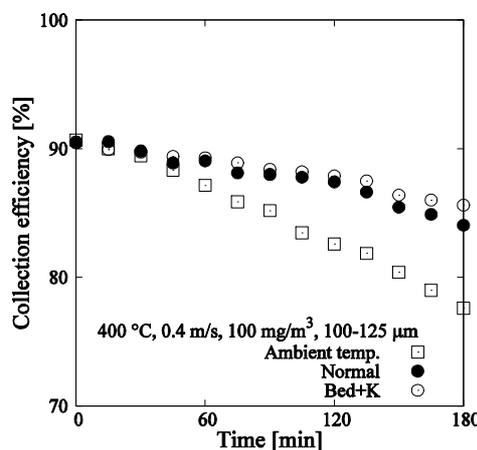


Figure 3 Effect of Kalium for PM collection efficiency.

以上の結果を基に、本法の連続再生式としての作動温度を確認するため、常温で 100 %の捕集効率を示した条件 (PM 粒径 20 μm 以下, PM 投入濃度 30 mg/m^3) において bed 粒子層温度を上昇させて実験を行った。Fig. 4 に実験開始前の bed 粒子の写真(a), bed 粒子層温度 400 の条件における実験終了後の bed 粒子の写真(b)を示す。また比較のため、常温の条件における実験終了後の bed 粒子の写真(c)を示す。なお PM 投入濃度 30 mg/m^3 という条件は、常温で 180 min を通して捕集効率が 100 %を維持した結果であり, bed 粒子層温度を 400 に上昇させても同様に 180 min を通して捕集効率が 100 %を維持している。PM が bed 粒子表面に付着すると Fig. 4 (c) のように表面が PM で覆われるため色が黒く変化する。Fig. 4 (b)の実験終了後の bed 粒子の色を観察すると, Fig. 4 (a)の開始前と比べて色の変化がほとんど見られない。これは付着速度と燃焼速度が釣り合っており, bed 粒子表面上の PM の量が一定に保たれたためであると考えられる。Fig. 4 (b)のような状態では 180 min 以上の時間実験を行った場合でも 100 %の捕集効率を維持し続けることが可能であると予測できる。



Fig. 4 Pictures of bed particle after experiments of PM collection.

上記と同様の条件において、カリウムを担持した bed 粒子を用いた連続再生式の実験を行った。Fig. 5 に実験開始前の bed 粒子の写真(a), bed 粒子層温度 350 の条件における実験終了後の bed 粒子の写真(b)を示す。また比較のため、常温の条件における実験終了後の bed 粒子の写真(c)を示す。なお, Fig. 4 と比較すると実験前の bed 粒子が少し灰色になっているが, これはカリウムを焼結したためである。図より, PM が bed 粒子表面に付着すると Fig. 5 (c)のように表面が PM で覆われるため色が黒く変化する。Fig. 5 (b)の実験終了後の bed 粒子の色を観察すると, Fig. 5 (a)の開始前と比べて色の変化がほとんど見られない。これは付着速度と燃焼速度がおおよそ釣り合い, bed 粒子表面上の PM の量が一定に保たれたためであると考えられる。Fig. 5 (b)のような状態では 180 min 以上の時間実験を行った場合でも 100 %の捕集効率を維持し続けることが可能であると予測できる。



Fig. 5 Pictures of bed particle with K after experiments of PM collection.

次に, PM 酸化反応速度式を算出する。Figure 6 に相対速度に対する燃焼速度の一例として, 400 における実験結果を示す。相対速度の上昇と共に反応速度が増加し, その勾配は温度が高いほど大きくなった。一般に, 炭素の酸化反応速度は表面の温度と酸素濃度に依存する。酸素は反応により消費され, その消費量は反応速度に比例することから, 消費量が供給量よりも多いと反応速度が低下する。したがって, 高い反応速度を得るためには, 相対速度を上昇させて, より多くの酸素を炭素表面に供給する必要がある。カーボンの酸化反応を $\text{C} + \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2$ と仮定すると, 比表面積, 表面の酸素濃度を考慮したアレニウス式で表される。定常状態において反応速度が酸素の供給速度と釣り合うことを考慮して整理すると, 物質移動係数(シャーウッド数)とアレニウス式から表すことができる。実験結果を基に多重回帰分析を実施し, 数式が最適化されるように各係数をフィッティングすることで, シャーウッド数やアレニウス式の各パラメーターを求めた。その結果, シャーウッド数および反応速度式はそれぞれ式(2)および(3)で表される。

$$Sh = 0.623 + 0.00402 Re^{0.977} Sc^{0.012} \quad (2)$$

$$Rs = \frac{C_b M_c}{\frac{1}{\frac{D}{L Sh} + 4.34 \times 10^{-5} \cdot S \cdot \exp\left(\frac{-46100}{RT}\right)}} \quad (3)$$

ここで、 C_b および M_c はバルクガス中の酸素濃度およびカーボンのモル質量である。得られた数式を数値解析に組み込んで解析を実施し、実験結果との比較を行った。Figure 7 に 400 における捕集効率の解析結果と実験結果を示す。また比較のため、常温の条件における解析結果を併せて示す。PM の酸化反応が起こることで bed 粒子上の PM が減少するため、温度上昇に伴って捕集効率が上昇するが、数値解析結果はこのことを再現している。解析結果は捕集効率を過小評価する傾向にあるが、180 分における実験結果との誤差は 1.4% であることから、解析結果は実験結果と良好に一致していると言え、酸化反応速度式の妥当性が確認された。

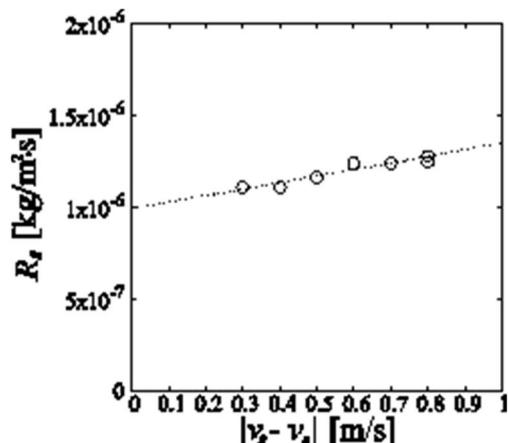


Figure 6 Effect of relative velocity on carbon combustion for temperatures of 400 .

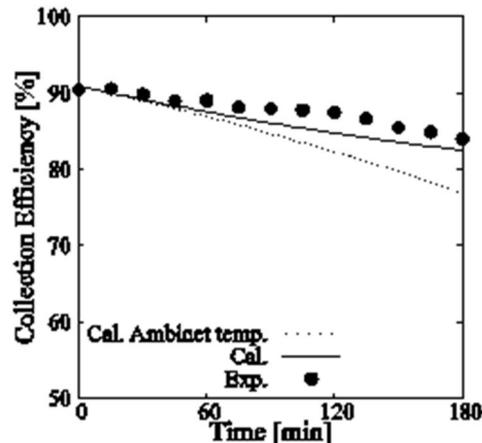


Figure 7 Time histories of collection efficiency for bed temperature of 400 .

<引用文献>

T. Frising, D. Thomas, P. Contal, D. Bemer, D. Leclerc “Influence of filter fibre size distribution on filter efficiency calculations,” Institution of Chemical Engineering, 81, 1179-1184, 2003

S. Ylatalo, E. Kauppinen, J. Joutsensaari, J. Jokiniemi, J. Hautanen “Dependence of electrostatic precipitator penetration function on the pulverized coal combustion conditions,” J. Aerosol. Sci., 1, S587-S588, 1993

T. Yamamoto, K. Hori, J. Tatebayashi, “An experimental investigation of the PM adhesion characteristics in a fluidized bed type PM removal device,” Powder Technology, 289, 31-36, 2016

T. Yamamoto, T. Tsuboi, J. Tatebayashi, “A numerical simulation of PM adhesion characteristics in a fluidized bed type PM removal device by a finite volume Eulerian-Eulerian method,” Powder Technology, 288, 26-34, 2016

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

T. Yamamoto, K. Yokoo, A. Kusu, J. Tatebayashi, “Highly efficient particulate matter removal by a fluidized-bed-type device operated in continuous regeneration mode,” Powder Technology, 323, 86-94, 2018

〔学会発表〕(計 7 件)

T. Yamamoto, A. Kusu, H. Matsune, M. Kishida, J. Tatebayashi, "Promotion of PM oxidation reaction by potassium catalysis in continuous regeneration type PM removal device", 29th International Symposium on Transport Phenomena, October, 2018, Honolulu, USA.

山本剛, 横尾健人, 楠昂高, 松根英樹, 岸田昌浩, 館林恂, “カリウムによる PM 燃焼促進と粒子間付着力を利用した連続再生式 PM 除去装置の低温化,” 第 55 回日本伝熱シンポジウム, 2018

T. Yamamoto, K. Yokoo, A. Kusu, J. Tatebayashi, "Effect of bed temperature on fluidized bed type PM removal device", 10th World Congress of Chemical Engineering, T7.2.055, October, 2017, Barcelona, Spain.

山本剛, 横尾健人, 楠昂高, 松根英樹, 岸田昌浩, 館林恂, “ミネラル分を用いた連続再生式 PM2.5 除去装置の作動温度の低減,” 化学工学会第 49 回秋季大会, 2017

山本剛, 横尾健人, 楠昂高, 館林恂, “粒子間付着力を利用した高効率連続再生式 PM2.5

除去装置の開発，” 第 54 回日本伝熱シンポジウム，2017

T. Yamamoto, A. Kusu, J. Tatebayashi, "Effect of Mineral Addition in Continuously Regenerating Type PM Removal Device Using Fluidized Bed", 27th International Symposium on Transport Phenomena, September, 2016, Honolulu, USA.

山本剛，楠昂高，館林恂，“流動層を用いた低温作動型高効率連続再生式 PM 除去装置の開発，” 化学工学会第 48 回秋季大会，2016

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

出願年：

国内外の別：

取得状況 (計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://hyoka.ofc.kyushu-u.ac.jp/search/details/K002269/index.html>

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号 (8 桁)：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。