

研究種目：基盤研究（C）  
 研究期間：2007～2009  
 課題番号：19560190  
 研究課題名（和文） 小型油焚き燃焼炉の潜熱回収に伴って生じる凝縮性二次粒子の抑制と凝縮水処理  
 研究課題名（英文） Reduction of secondary condensation particle formed in latent heat recovery process for small oil furnace and treatment of condensed water  
 研究代表者  
 古畑 朋彦（FURUHATA TOMOHIKO）  
 群馬大学・大学院工学研究科・准教授  
 研究者番号：80261585

研究成果の概要（和文）：小型噴霧燃焼バーナを設置した燃焼炉で灯油あるいはチオフェン(C<sub>4</sub>H<sub>4</sub>S)を添加した灯油を燃焼させた場合の煙道中における凝縮性二次粒子の生成挙動を調査した。また、煙道途中に潜熱回収を想定した水冷式熱交換器を設置し、排ガスを冷却した場合についても同様に調査を行った。その結果、煙道の上流から下流にかけて微粒子の数が増加していることが確認され、煙道内で凝縮性二次微粒子が生成していることが明らかとなった。熱交換器で生成する凝縮水のpHを測定したところ、純灯油の場合には4.0程度であったが、チオフェン添加灯油の場合には2.3から2.5となり、燃料中の硫黄分の影響でpHが低下することが確認された。

研究成果の概要（英文）：Spray combustions of kerosene or thiophene (C<sub>4</sub>H<sub>4</sub>S) added kerosene were carried out using a rectangular furnace with a spray burner, and behavior of secondary condensed particle in the stack was investigated. In addition, it was also investigated when a water-cooled heat exchanger was placed in the stack assuming that a latent heat recovery was introduced. As a result, it was found that the number of particles increased along the stack from the upstream to the downstream. This result showed that secondary condensation particles formed in the stack. pH of condensed water formed in the heat exchanger was measured. When pure kerosene used as fuel, the pH was about 4.0. However it was from 2.3 to 2.5 in the case of thiophene added kerosene combustion and it was clear that sulfur in fuel lowered the pH of condensed water.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2008年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2009年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：燃焼工学

科研費の分科・細目：機械工学・熱工学

キーワード：エネルギー効率化、排熱回収、潜熱回収、燃焼炉、煤塵、煙道内微粒子、凝縮水、噴霧燃焼

## 1. 研究開始当初の背景

京都議定書の発効に伴い、我が国は今まで以上に熱エネルギーの有効利用を進め、二酸化炭素の排出量を総量として削減することが求められている。そのため、化石燃料を用いる際には、これまで見落とされていた熱エネルギーも有効に利用するための技術開発が不可欠となっている。このような状況において、申請者らは燃焼炉から排出される排煙の熱エネルギーに着目した。燃焼炉から排出される燃焼排ガスについては、主に排ガス処理（脱硫、脱硝、除塵）のための温度制御がなされており、比較的高温のまま排出されている。この排ガスからさらに熱回収を行うことは、排ガス温度の低下による低温腐食や排ガス処理効率の低下といった問題を引き起こすことになり、ほとんど行われていないのが現状である。そこで本研究では、燃焼排ガスの有する熱エネルギーの徹底的な回収を行うことを目的として、従来廃棄されていた排ガスの顕熱だけでなく、排ガス中の水蒸気の有する潜熱までも回収することを可能とする燃焼システムを提案した。

## 2. 研究の目的

提案した燃焼システムの特徴は以下の通りである。

- ・排ガス中の水蒸気の潜熱を含めた熱エネルギーの二次回収を行う。
- ・飽和蒸気を含む低温排煙は、送風機からの空気により希釈し、煙突における水蒸気凝縮を防止する。
- ・送風機からの空気は煙突内に噴流として供給し、その吸引効果（アスピレータ効果）により燃焼器から排ガスを吸引する。
- ・燃焼炉内は上記の効果により負圧となるため、燃焼用空気用送風ファンは不要で自然吸引となる。
- ・潜熱回収型熱交換器における凝縮水は、硫酸、硝酸、金属イオン、ミネラル分等が含まれるが、イオン交換膜等を活用して可能な限り純水と高濃度凝縮水に分離する。また燃料起源のミネラル（重金属類）もイオン交換により回収する。
- ・高濃度凝縮水は火炎基部の還元炎中に導入し、硝酸分を還元処理する。
- ・高濃度凝縮水の燃焼炉内への導入は、水噴霧燃焼法と同じであり、低  $\text{NO}_x$  燃焼の効果がある。
- ・燃焼炉出口における  $\text{NO}_x$  濃度は、ガス温度に対応した平衡濃度になっていると考えられるが、平衡濃度以上の  $\text{NO}_x$  を燃焼炉に投入した場合には、投入した  $\text{NO}_x$  の還元が行われると予想される。

本システムでは潜熱回収に伴い燃焼ガス温度が従来より大きく低下する。従って、従来の燃焼システムでは問題とならなかった、燃焼ガス温度の低下に伴う凝縮性二次粒子の生成が大きな問題になる可能性が高いと考えられ、凝縮性二次粒子の生成と潜熱回収による煙道ガス温度低下の関係について新たに検討を加える必要がある。そこで本研究では、本システム実現の基礎として、試験燃焼炉出口に潜熱回収型熱交換器を設置し、以下の2項目について実験的に検討を加えることを目的とした。

①煙道内における煤塵性状の変化：試験燃焼炉で灯油やA重油を燃焼させた際の煙道内の煤塵性状を分析し、燃焼条件、煙道ガス温度、煙道ガス組成との関連を明らかにする。さらに凝縮性二次粒子の生成と煙道ガス温度のトレードオフ関係を求め、潜熱回収の限界を明らかにする。

②凝縮水の燃焼炉内導入による処理の可能性：熱交換器から  $\text{NO}_x$  を高濃度で溶存している凝縮水を回収する。凝縮水性状(pH, 金属成分)を分析するとともに、実際に凝縮水を火炎中に導入し、 $\text{NO}_x$  の生成量の変化を明らかにする。

## 3. 研究の方法

### (1) 試験燃焼炉および煙道

図1に試験燃焼炉を示す。

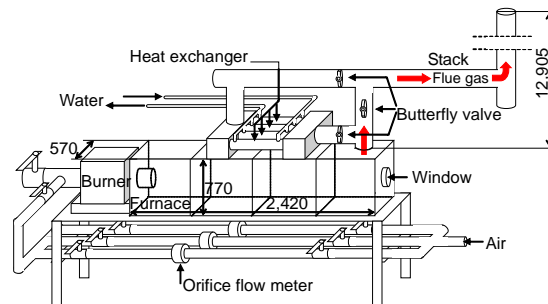


図1 試験燃焼炉

燃焼炉は幅 570mm×高さ 770mm×長さ 2420mm で、内壁に断熱ボードを貼り付けた構造である。バーナは加藤鉄工バーナ製作所製のオイルバーナ (GNP-10) である。燃焼炉出口は次に示す煙道に接続されているが、炉出口直後に潜熱回収を模擬するための水冷式熱交換器を設置し、煙道ガスを冷却できるようにした。バタフライバルブを切り替えることにより、煙道ガスを冷却する場合と冷却しない場合のどちらでも実験ができるようになっている。

図2に燃焼炉に続く煙道の概略および測

定位置を示す。

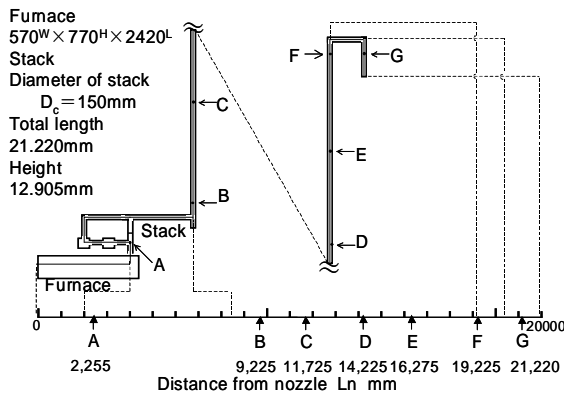


図2 煙道の概略と測定位置

横軸は燃焼炉のバーナ位置を0とした煙道の各地点までの距離を示している。煙道の内径 $D_c$ は150mmである。図2におけるAからGの位置において煙道内ガスをサンプリングし、煙道内ガスの成分分析、微粒子の構成成分分析および粒径分布計測を行なった。

(2) 燃料および燃焼条件

燃料には純灯油と、重質油中の硫黄分の影響を検討するために、硫黄分の質量分率が1000ppmとなるようにチオフェン( $C_4H_4S$ )を添加した灯油を用いた。燃料流量は1.41g/sとして、空気比 $\alpha$ が1.2, 1.5あるいは2.0となるように燃焼用空気量を設定した。

(3) 煙道ガスサンプリング方法

通常の煙道ガスサンプリングでは、煙道の各測定位置においてポンプで煙道ガスを吸引し、微粒子の凝集を抑制するために予め $N_2$ を充填したサンプリングバッグに導入することで捕集と同時に10倍に希釈した。

本研究では、捕集した微粒子の特性を把握するために煙道ガスの加熱希釈サンプリングを導入した。加熱希釈装置を図3に示す。

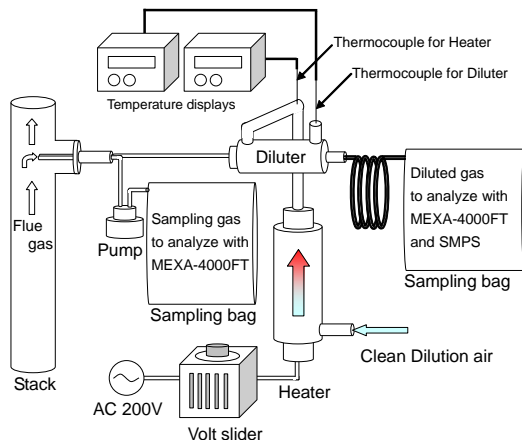


図3 加熱希釈装置

加熱希釈装置はエジェクタータイプの希

釈器と空気加熱装置を組み合わせたもので、加熱空気によりサンプリングガスを約10倍に希釈できる。

(4) サンプリングガス中の微粒子分析方法

サンプリングガス中に含まれる微粒子の粒径分布はScanning Mobility Particle Sizer (SMPS3034, TSI社製)を用いて分析した。微粒子の構成成分は炭素分(Dry-soot)、未燃炭化水素成分であると考えられる有機溶媒可溶成分のSOF (Soluble Organic Fraction)および硫酸塩であるSulfateに分類することができ、微粒子中のそれぞれの質量を燃焼式PM分析装置(MEXA-1370PM, 堀場製作所製)により測定した。

(5) 凝縮水の分析

熱交換器で凝縮した凝縮水については、pHメータでpHを測定した。また、ICP-MS (P-5000, 日立製作所製)を用いて凝縮水中の金属成分について分析を試みた。

4. 研究成果

(1) 研究の主な成果

①燃料に灯油を用い、煙道ガスを冷却しない場合

煙道の各測定位置においてサンプリングした煙道ガス中微粒子の粒径分布計測結果を図4に示す。

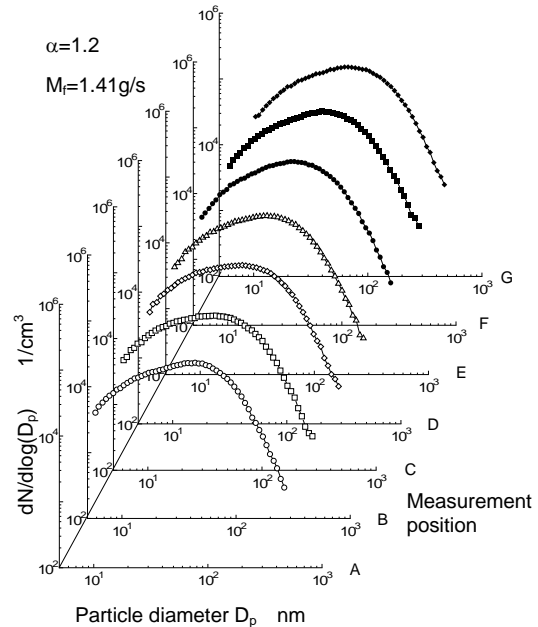


図4 煙道に沿った粒径分布計測結果

グラフは縦軸が粒子個数濃度、横軸が粒径を表している。この図から、微粒子の粒径分布形状は煙道上流から下流にかけて大きな変化がないことがわかる。

このデータを基に、煙道の各測定位置における総粒子数をプロットしたのが図5である。空気比 $\alpha$ が1.2, 2.0のどちらの場合でも煙道の上流から下流にかけて総粒子数が増加していることがわかった。これは、煙道内

で凝縮性二次微粒子が生成していることを示すものである。

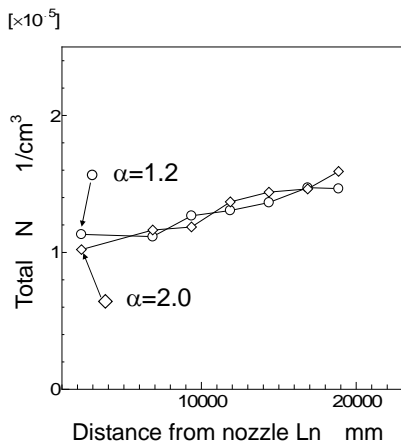


図5 煙道に沿った総粒子数の変化

微粒子の成分分析結果から、煙道の上流から下流にかけてSOF分が増加していることがわかった。従って、総粒子数の増加は主に煙道内の温度低下に伴う未燃炭化水素分の凝縮によるものと推定された。

②燃料に灯油を用い、煙道ガスを冷却した場合

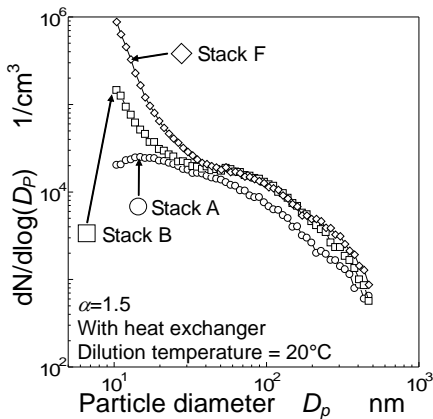


図6 希釈空気が常温(20°C)の場合の測定位置A, BおよびFにおける粒径分布

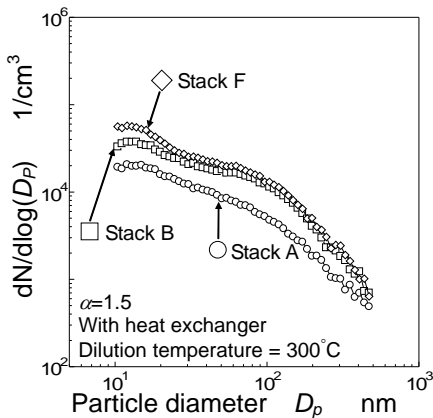


図7 希釈空気が300°Cの場合の測定位置A, BおよびFにおける粒径分布

図6は煙道ガスを熱交換器を通して冷却した場合において、図3の加熱希釈装置により常温(20°C)の空気で希釈しながら煙道ガスをサンプリングした場合の測定位置A, BおよびFにおける微粒子の粒径分布である。位置AとBにおける分布を比較すると、20nm以下の小粒径粒子が熱交換器を通過することにより増加していることがわかる。またその小粒径粒子は、煙道下流に行くに従い増加している。図7は希釈空気の温度を300°Cにした場合の結果である。図6で見られた小粒径粒子の増加が見られず、加熱希釈によりそれらの粒子が消失したことを示している。このことから、熱交換器で冷却することにより生成した小粒径粒子は、主に水蒸気が凝縮したものであると考えられる。注目すべきは、300°Cで加熱希釈した場合でも煙道の下流にかけて測定範囲の全ての粒径の粒子が増加している点である。これは煙道ガスを冷却することにより、より高沸点の未燃炭化水素や、固体炭素分などを含む粒子が生成したことを示していると推測される。

③燃料にチオフェン添加灯油を用いた場合

燃料に硫黄分としてチオフェンを添加した灯油を用いた場合に、測定位置Aにおいて図3の加熱希釈装置を用いて煙道ガスをサンプリングして求めた粒径分布を図8に示す。煙道ガスは熱交換器を通さず冷却していない。この図では、希釈空気の温度を常温(18°C), 150°Cおよび300°Cとした場合の結果を示している。

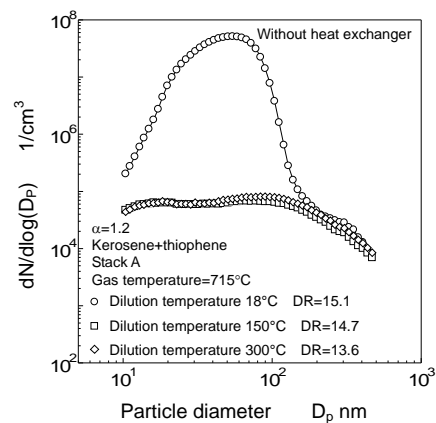


図8 チオフェン添加灯油を用いた場合の測定位置Aにおける粒径分布(煙道ガスの冷却無し)

常温での希釈による分布を図4の灯油の場合と比較すると、チオフェン添加灯油を用いた場合には、10nm-100nmの粒子が著しく増加しているが、これはチオフェンの添加により生成したことは明らかである。さらに、希釈温度が150°Cおよび300°Cの場合には、大きなピークが消失している。

図9に、加熱希釈した場合の微粒子構成

分を分析した結果を示す。

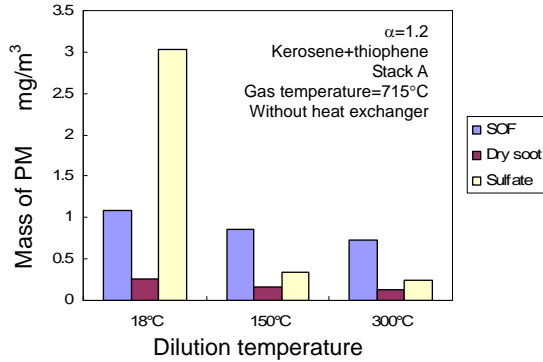


図9 加熱希釈した場合の微粒子構成成分

この図より、加熱希釈した場合には、Sulfate が著しく減少していることから、増加した粒子は主に硫酸ミストのような硫黄分を含む凝縮成分であると考えられる。

煙道ガスを熱交換器により冷却した場合の測定位置 A と B における微粒子の粒径分布を図 10 と図 11 に示す。

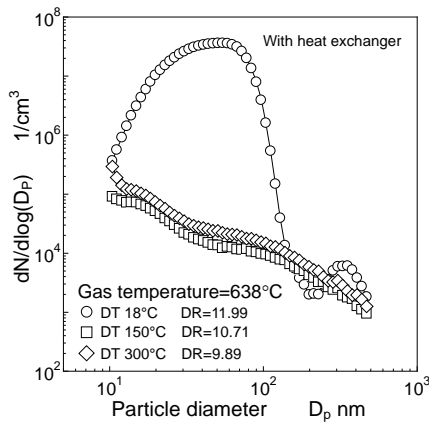


図 10 熱交換器を通し煙道ガスを冷却した場合の粒径分布 (測定位置 A, チオフェン添加灯油)

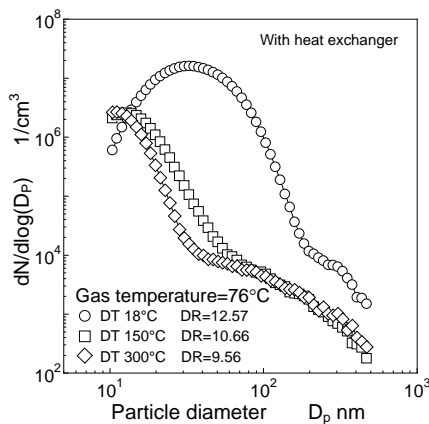


図 11 熱交換器を通し煙道ガスを冷却した場合の粒径分布 (測定位置 B, チオフェン添加灯油)

図 10 より、熱交換器を通過する前の測定位置 A では、常温希釈での分布に見られる 10nm-100nm のピークが加熱希釈により消失することは図 8 と同様であるが、図 11 の熱交換器を通過した後の測定位置 B では、加熱希釈をした場合 (150°C および 300°C) でも 40nm 以下の粒子は完全には消失せず、10nm 付近ではむしろ加熱希釈時の方が多くなっている。この時の微粒子構成成分の分析結果を図 12 と図 13 に示す。図 12 は測定位置 A、図 13 は測定位置 B における微粒子の構成成分である。

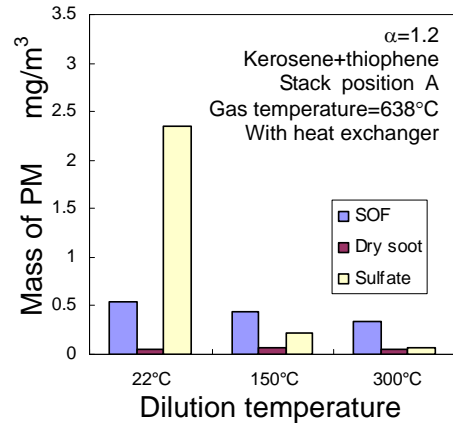


図 12 熱交換器を通し煙道ガスを冷却した場合の微粒子構成成分 (測定位置 A, チオフェン添加灯油)

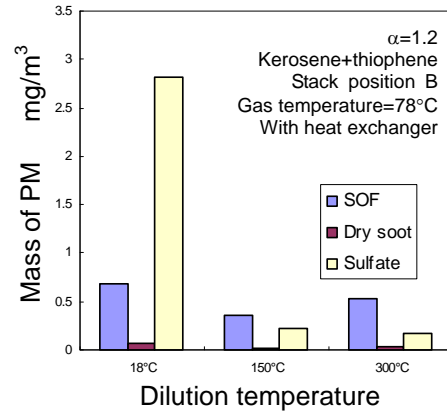


図 13 熱交換器を通し煙道ガスを冷却した場合の微粒子構成成分 (測定位置 B, チオフェン添加灯油)

図 12 と図 13 を比較すると、測定位置 B の方が、SOF および Sulfate が増加していることがわかる。このことから、煙道ガスを熱交換器で冷却することにより、300°C 以上の沸点を有する未燃炭化水素が凝縮し、さらに燃料中のチオフェンの効果により凝縮が促進されたのではないかと推察される。

#### ④熱交換器で生成する凝縮水の性状

燃料に純灯油を使用した場合の凝縮水の pH は約 4.0 であり、酸性を呈した。これは燃

焼ガス中の窒素酸化物やCO<sub>2</sub>が凝縮水中に溶解したためであると考えられる。またこの時の凝縮水についてICP-MSを用いて金属成分の分析を行った。その結果、バナジウム、クロム、銅および亜鉛がいずれも数十～数百ppbのオーダーで検出された。亜鉛は亜鉛引きの煙道が、クロムと銅はステンレス製の熱交換器や凝縮水受けにつけられた真鍮製バルブが起源であると推察された。また、バナジウムは燃焼時の空気比の増加に伴い濃度が減少したことから、燃料が起源ではないかと推察された。

燃料にチオフェンを添加した灯油を用いた場合は、pHが2.3から2.5程度となり、硫黄分の影響(SO<sub>2</sub>の溶解など)により凝縮水のpHが低下することが確認された。

⑤得られた成果の国内外における位置づけとインパクト

従来燃焼炉から排出される微粒子については、燃焼炉出口あるいは煙道出口での排出量が検討されてきたが、燃焼炉から排出された微粒子の煙道内での変化については、これまで国内外ともにほとんど着目されておらず検討されてもいない。従って煙道内で凝縮性二次微粒子が生成することを明らかにしたことや、燃料中硫黄分の影響でナノ粒子の排出量が増加することを示したことのインパクトは大であり、今後一層規制が厳しくなる可能性がある微粒子(煤塵)の排出量規制に対処するための重要な情報である。

また、燃焼排ガスからの潜熱回収はエネルギー有効利用によるCO<sub>2</sub>排出量削減の観点から、省エネルギー技術の一つの柱となりうる。本研究において潜熱回収に伴う煙道ガスの急冷により、水蒸気の凝縮により生成する微粒子や硫酸ミストのような容易に揮発する成分以外にも、高沸点炭化水素などが起源となる容易には揮発しない成分からなる微粒子が生成されることを新たに示したことは、潜熱回収を組み込んだ燃焼機器の開発にあたり、微粒子排出量の削減を図る上で有益な新しい知見を提供したと言える。

⑥今後の展望

(1)煙道内に空気を積極的に導入し、微粒子の凝縮を防ぐなど、煙道内雰囲気制御による凝縮性二次微粒子の生成抑制技術に関しては今後検討していきたい。

(2)潜熱回収に伴う凝縮水の処理(凝縮水の炉内噴霧など)については、凝縮水中の金属成分の微粒子への移行などの放出挙動も含め検討していく必要がある。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

①山本克臣, 中路智晴, 古畑朋彦, 新井雅隆, 液体燃料用燃焼炉の煙道内における微粒子挙動に関する研究, 日本機械学会論文集(B編), 査読有, 74巻, 739号, 2008, pp. 692-698

[学会発表] (計3件)

①Y. Wu, K. Yamamoto, T. Furuhashi and M. Arai, Effect of Sulfur Content in Liquid Fuel on Particles in a Flue Gas Exhausted from Spray Combustion Furnace, The 13th Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems-Asia, 2009.10.16, Picturesque Hotel (Wuxi, P.R.China)

②山本克臣, 古畑朋彦, 新井雅隆, 液体燃料中の硫黄分が小型燃焼炉排ガス中微粒子に及ぼす影響, 第46回燃焼シンポジウム, 2008.12.3, 京都テルサ(京都)

③T. Furuhashi, T. Nakaji and M. Arai, Behavior of Particulate Matters in a Flue Gas Stream from Spray Combustion Furnace, 6th Asia-Pacific Conference on Combustion, 2007.5.22, 名古屋国際会議場(名古屋)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

古畑 朋彦 (FURUHATA TOMOHIKO)  
群馬大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 80261585

### (2) 研究分担者

新井 雅隆 (ARAI MASATAKA)  
群馬大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 80112176