

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月22日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011～2012

課題番号：23710093

研究課題名（和文） 粒子-粒子間付着力を利用した連続再生式 PM2.5 除去装置に関する研究

研究課題名（英文） A study of continuous regeneration PM2.5 removal device by utilizing an adhesion force between particles

研究代表者

山本 剛 (YAMAMOTO TSUYOSHI)

九州大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：20321979

研究成果の概要（和文）：本研究では、既存の方法とは異なる付着力を利用した高効率 PM 除去装置を開発するため、流動層を PM 除去装置に適用し、その PM 捕集特性について理論的・実験的に検討を行った。その結果、PM の流動抵抗以外の支配因子は、大きい粒径から小さい粒径になるに従い重力から付着力に変わり、その境界は PM 粒径 $8.95\ \mu\text{m}$ と $2.25\ \mu\text{m}$ の間にあることが示された。また、PM の支配因子が付着力である粒径 $2.25\ \mu\text{m}$ 以下の場合、PM は流動層式 PM 除去装置により効率的に捕集されることが示された。

研究成果の概要（英文）： Fluidized bed has been applied to PM removal device to remove PM2.5 effectively by the adhesion force. An experimental study has been carried out to investigate the effect of PM diameter for PM collection characteristics in fluidized bed type PM removal device. A numerical simulation has been performed to analyze the adhesion behavior of PM on the surface of bed particle in fluidized bed and to compare with the experimental data. The results show that the dominant factor of PM fluid (except for flow resistance) changes from gravity force to adhesion force between PM diameter $2.25\ \mu\text{m}$ and $8.95\ \mu\text{m}$ with a decreasing PM diameter. When PM diameter is less than $2.25\ \mu\text{m}$, PM is effectively collected by the adhesion force.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境技術

キーワード：PM、付着力、流動層

1. 研究開始当初の背景

粒子状物質 (Particulate Matter, PM) とは、様々な種類や性状、大きさを持つ固体や液体の粒の総称であり、人体や地球環境に悪影響を及ぼす環境汚染物質である。その発生源は火山噴煙、土壌粒子、海塩粒子などの自然起源、黄砂などの越境移流、発電施設、分散型動力源などの固定発生源や自動車、船舶、航空機などの移動発生源からなる人為起源と多岐にわたる。この中でも人為起源による排出が最も多く、化石燃料の燃焼に伴い生成・排出される微小径の煤塵が PM の主な構成成

分である。このような煤塵を主とした PM の粒径は、近年の燃焼技術の向上により、およそ $0.1\text{-}2.5\ \mu\text{m}$ と微小化しているが、PM の粒径が小さいほど大気中に留まり、呼吸時に気管を通り抜けて気管支や肺などの深部に達しやすい。そのため、微小径の PM は呼吸器系疾患、肺がん、循環器系疾患の原因物質とされている。このような背景から、微小径の PM ほど深刻な健康被害をもたらすとして、粒径 $2.5\ \mu\text{m}$ 以下の極めて微小な PM (PM2.5) に係る環境基準が設定されている。

現在、PM の除去に用いられている装置と

して、バグフィルター、電気集塵機、多孔体構造のDPF (Diesel Particulate Filter) などがある。しなしながら、PM_{2.5}はバグフィルターやDPFの気孔径よりも小さく、気孔をすり抜けることが指摘され、また、電気集塵機ではPMが小さいため、帯電性能が悪くなり集塵効率が低下している。したがって、従来手法によりPM_{2.5}を効率的に捕集するためには、何らかの改善策が必要となるが、今のところ有効な改善方法はなく、人類の健康の観点から新たなPM捕集法の開発が望まれている。

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、一般に、粒子-粒子間が接近した状態にあるとき、粒子間にVan der Waals力、静電気力、液架橋力などの付着力が働き、粒子径が小さいほどこれらの付着力が支配的になることが知られている。一方、流動層は気体を上向きに噴出させることにより、固体粒子を流体中に懸濁浮遊させた状態であるが、このときの固体粒子は流動抵抗、浮力、重力と粒子間に働く付着力に支配されながら運動している。この流動層をPM除去装置として適用すると、気体中のPMが固体粒子に付着・捕集される。そして、この付着力は粒径が小さいほど支配的になることから、流動層はPM_{2.5}に対して有効な捕集手段となり得る。

そこで本研究では、高効率のPM除去装置を開発するため、流動層をPM除去装置として適用し、理論的・実験的にPMの捕集特性について検討する。具体的には、粒径が既知のPMを用いて付着実験を行い、流動層式PM除去装置の粒径依存性を調べるとともに、その付着挙動をモデル化する。さらに、モデル化したPMの付着挙動を含めた流動層式PM除去装置の非定常解析を行い、PMの付着挙動について検討を行う。

3. 研究の方法

(1) 実験装置および方法

Fig.1に本実験で用いた流動層式PM除去装置の概略図を、Table 1に実験条件を示す。流動層式PM除去装置は、高さ400 mm、直径80.7 mmの円筒容器、分散板、ベッド粒子部、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1.60%、厚さ1 mmのステンレス板を用いる。ベッド粒子は、耐熱性に優れた密度3700 kg/m³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 mm、平均粒径は0.42 mmである。本研究では、流動層式PM除去装置の捕集特性を調べるため、粒径0.029 μm

のカーボンブラック (密度1900 kg/m³)、粒径0.20 μm, 0.50 μm, 2.25 μmのシリカ粒子 (密度2200 kg/m³)、粒径8.95 μm, 19.02 μmの球形グラファイト (密度2200 kg/m³)を使用し、それぞれ単一粒径の粒子のみを環境温度25°Cにおいて、30 - 100 mg/m³の濃度で装置内に投入して実験を行う。本実験では、静止状態におけるベッド粒子層の高さを100 mm、ガス流速 (流動層の温度、圧力におけるガス流量を総断面積で除した空塔基準速度)を0.4 m/sと固定する。なお、本装置の最小流動化速度は0.26 m/s、静止状態におけるベッド粒子層の空隙率は0.453である。PMの捕集効率は、空塔速度が0.4 m/sとなるように流量調整した空気と30 - 100 mg/m³に濃度調整された各PM粒子を流動層式PM除去装置に導入し、式(1)に示すように投入PM濃度と排出ガス中のPM濃度から求める。

PM捕集効率

$$= 1 - \text{PM出口濃度} / \text{PM投入濃度} \quad (1)$$

ここで、PM投入濃度は流動層内のベッド粒子がない、分散板のみの状態において、実験装置の出口で測定された排出ガス中のPM濃度を用いる。また黒煙濃度は、光透過式スモークメーター (堀場製作所製、MEXA-600s)により、粒子濃度は、サンプリングプローブにより排気管から排気ガスの一部を希釈管へ等速吸引し、ガラスファイバー製のフィルター (ADVANTEC製、φ47 mm、濾過径0.5 μm)により粒子を捕集後、吸引した排ガス量と捕集した粒子重量からその濃度を求める。なお、実験はPM粒子の供給開始時をスタート時間として、180分間継続的に行う。

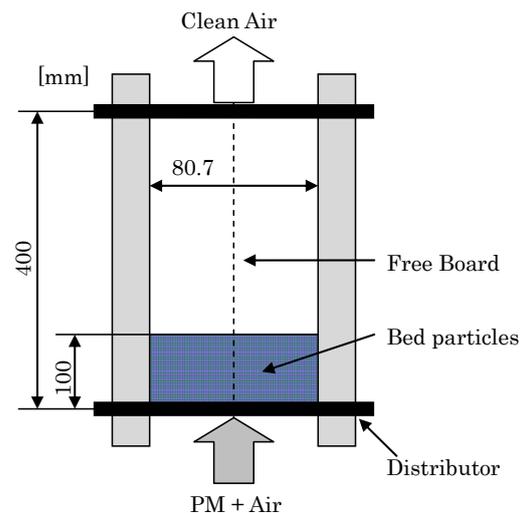


Figure 1 Schematic diagram of fluidized bed type PM removal device.

Table 1 Experimental conditions

Environmental temperature, °C	25
Superficial gas velocity, m/s	0.4
Bed height at quiescent, cm	10
Minimum fluidization velocity, m/s	0.26
Void fraction at quiescent, -	0.453
Bed particle	Alumina
Bed particle diameter, mm	0.3 - 0.5
Bed particle density, kg/m ³	3700
PM diameter, μm	
carbon black	0.029
silica	0.20, 0.50, 2.25
spherical graphite	8.95, 19.02
PM density, kg/m ³	
carbon black	1900
silica	2200
spherical graphite	2200
PM concentration, mg/m ³	30 - 100
Experimental time, min	180

(2) 数値解析

解析対象は Fig.1 に示す流動層実験装置、解析条件は Table 1 に示す実験条件とし、二次元円筒座標系において軸対称場を仮定して解析を行う。本解析では、流動層の気相、固相ともに連続体と仮定して Eulerian - Eulerian 2 流体モデルを適用し、流動層式 PM 除去装置の二次元非定常解析を行う。

解くべき支配方程式は、以下のようになる。

気相における連続の式：

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_g \rho_g) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\varepsilon_g \rho_g u_{gi}) = 0 \quad (2)$$

固相における連続の式：

$$\frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\varepsilon_s \rho_s u_{si}) = 0 \quad (3)$$

気相における運動量保存式：

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_g \rho_g u_{gi}) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\varepsilon_g \rho_g u_{gj} u_{gi}) \\ = -\varepsilon_g \frac{\partial P_g}{\partial x_i} + \frac{\partial \tau_{gij}}{\partial x_j} - I_{gsi} + f_{gi} \\ + \varepsilon_g \rho_g g_i \end{aligned} \quad (4)$$

固相における運動量保存式：

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\varepsilon_s \rho_s u_{si}) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\varepsilon_s \rho_s u_{sj} u_{si}) \\ = -\varepsilon_s \frac{\partial P_g}{\partial x_i} + \frac{\partial \tau_{sij}}{\partial x_j} + I_{gsi} \\ + \varepsilon_s \rho_s g_i \end{aligned} \quad (5)$$

ここで、 ε は各相の体積分率、 ρ は各相の密度、 u は各相の速度、 P_g は圧力、 g は重力を表す。式(5)における気相-固相間の相関相互作用力 I_{gsi} は、気相-固相間の交換係数 β と気相-固相間の相対速度から次式のように表される。

$$I_{gsi} = \beta_{gs}(u_{gi} - u_{si}) \quad (6)$$

ここで、気相-固相間の交換係数 β には Gidaspow のモデルを適用し、 $\varepsilon_g \geq 0.8$ の場合は Wen and Yu の式(7)を、 $\varepsilon_g < 0.8$ の場合は Ergun の式(8)を用いる。

$$\beta_{gs} = \frac{3}{4} C_D \frac{\rho_g \varepsilon_g \varepsilon_s |u_{gi} - u_{si}|}{d_p} \varepsilon_g^{-2.65} \quad (7)$$

($\varepsilon_g \geq 0.8$)

$$\beta_{gs} = \frac{150 \varepsilon_s (1 - \varepsilon_g) \mu_g}{\varepsilon_g d_p^2} + \frac{1.75 \rho_g \varepsilon_s |u_{gi} - u_{si}|}{d_p} \quad (8)$$

($\varepsilon_g < 0.8$)

式(7)における抵抗係数 C_D は式(9)および(10)で表される。また、 Re_p は式(11)で定義される粒子レイノルズ数である。

$$C_D = \frac{24}{Re_p} (1 + 0.15 Re_p^{0.687}) \quad (9)$$

($Re_p < 1000$)

$$C_D = \frac{24}{Re_p} (1 + 0.15 Re_p^{0.687}) \quad (10)$$

($Re_p < 1000$)

$$Re_p = \frac{\rho_g \varepsilon_g |u_{gi} - u_{si}| d_p}{\mu_g} \quad (11)$$

式(5)における固相の応力ひずみ τ_{sij} は式(12)で表される。

$$\tau_{sij} = \left(-P_s + \eta \mu_b \frac{\partial u_{si}}{\partial x_i} \right) \delta_{ij} + 2 \mu_s S_{sij} \quad (12)$$

ここで

$$S_{sij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_{si}}{\partial x_j} + \frac{\partial u_{sj}}{\partial x_i} \right) - \frac{1}{3} \frac{\partial u_{si}}{\partial x_i} \quad (13)$$

固相の圧力は式(14)で表される。

$$P_s = \varepsilon_s \rho_s \theta_s (1 + 4 \eta \varepsilon_s g_0) \quad (14)$$

固相の粘性係数は式(15)で表される。

$$\begin{aligned} \mu_s = \left(\frac{2+\alpha}{3} \right) \left[\frac{\mu_s^*}{g_0 \eta (2-\eta)} \left(1 + \frac{8}{5} \eta \varepsilon_s g_0 \right) \right. \\ \left. \times \left(1 + \frac{8}{5} \eta (3\eta - 2) \varepsilon_s g_0 \right) + \frac{3}{5} \eta \mu_b \right] \end{aligned} \quad (15)$$

ここで、 μ_s^* および μ_b は式(16)および(17)であり、式(16)中の μ' は式(18)となる。

$$\mu_s^* = \frac{\varepsilon_s \rho_s g_0 \theta_s \mu'}{\varepsilon_s \rho_s g_0 \theta_s + \left(\frac{2\beta\mu'}{\varepsilon_s \rho_s} \right)} \quad (16)$$

$$\mu_b = \frac{256}{5\pi} \mu' \varepsilon_s^2 g_0 \quad (17)$$

$$\mu' = \frac{5}{96} \rho_s d_s \sqrt{\pi \theta_s} \quad (18)$$

また、 g_0 は動径分布関数、 θ_s はグラニューラー温度である。固相におけるグラニューラー温度は、粒子のランダム運動に伴う運動エネルギーに比例し、その輸送方程式は運動理論から得られ、式(19)で表される。

$$\begin{aligned} & \frac{3}{2} \varepsilon_s \rho_s \left[\frac{\partial \theta_s}{\partial t} + u_{sj} \frac{\partial \theta_s}{\partial x_j} \right] \\ &= \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\kappa_s \frac{\partial \theta_s}{\partial x_i} \right) + \tau_{sij} \frac{\partial u_{si}}{\partial x_j} + \Pi_s \\ & - \varepsilon_s \rho_s J_s \end{aligned} \quad (19)$$

ここで、グラニューラーのエネルギー拡散係数 κ_s は式(20)となり、式(20)における κ_s^* は式(21)、式(21)における κ は式(22)となる。

$$\begin{aligned} \kappa_s = \left(\frac{\kappa_s^*}{g_0} \right) & \left[\left(1 + \frac{12}{5} \eta \varepsilon_s g_0 \right) \right. \\ & \times \left(1 + \frac{12}{5} \eta^2 (4\eta - 3) \varepsilon_s g_0 \right) \\ & + \frac{64}{25\pi} (41 - 33\eta) \\ & \left. \times \eta^2 (\varepsilon_s g_0)^2 \right] \end{aligned} \quad (20)$$

$$\kappa_s^* = \frac{\varepsilon_s \rho_s g_0 \theta_s \kappa}{\varepsilon_s \rho_s g_0 \theta_s + \left(\frac{6\beta\kappa}{5\varepsilon_s \rho_s} \right)} \quad (21)$$

$$\kappa = \frac{75\rho_s d_s \sqrt{\pi \theta_s}}{48\eta(41 - 33\eta)} \quad (22)$$

エネルギーの衝突損失 J_s は式(23)となり、式(23)における η は式(24)となる。

$$J_s = \frac{48}{\sqrt{\pi}} \eta (1 - \eta) \frac{\varepsilon_s g_0}{d_s} \theta_s^{3/2} \quad (23)$$

$$\eta = \frac{1 + e}{2} \quad (24)$$

気相－固相間のエネルギー交換は式(25)で表される。

$$\Pi_s = -3\beta\theta_s + \frac{81\varepsilon_s \mu_g^2 |u_g - u_s|^2}{g_0 d_s^3 \rho_s \sqrt{\pi \theta_s}} \quad (25)$$

以上のモデルにより、流動層の固気二相流解析を行うが、PMの付着モデルについては、

後述するように実験結果より導く。

4. 研究成果

(1) 実験

Fig.2 に、投入 PM 濃度 100 mg/m^3 における各粒径の捕集効率をまとめた結果を示す。図より、いずれの粒径においても捕集効率は時間経過とともに低下しているが、これらの傾向は明らかに 2 つに分類することができる。1 つは粒径 $2.25 \mu\text{m}$ 以下の場合であり、このときの捕集効率は、 100 mg/m^3 という非常に高濃度であるにも関わらず、180 分後においても 90 % 以上の効率を維持していた。なお、粒径 $2.25 \mu\text{m}$ 以下の場合においては、粒径が小さいほど捕集効率が低下しているが、これは粒径が小さいほど数密度が増加していることが原因である。もう 1 つは粒径 $8.95 \mu\text{m}$ 以上の場合であり、このときの捕集効率は 180 分後において、およそ 60 % 程度であった。流動層内において、PM は流動抵抗、重力、付着力などを受けるが、粒径 $2.25 \mu\text{m}$ 以下の場合、PM は主に流動抵抗、付着力に支配されながら流動し、粒径 $8.95 \mu\text{m}$ 以上の場合、PM は主に流動抵抗、重力に支配されながら流動していると考えられる。このことから、PM の流動抵抗以外の支配因子が付着力から重力に変わる境界が $2.25 \mu\text{m}$ と $8.95 \mu\text{m}$ の間に存在することが示唆された。流動層式 PM 除去装置は、PM の流動が流動抵抗および付着力で支配されている $2.25 \mu\text{m}$ 以下の場合、PM がベッド粒子に付着しやすく、また流動抵抗よりも付着力のほうが強いいためベッド粒子から PM が剥離しにくい。その結果として、効率的に粒径 $2.25 \mu\text{m}$ 以下の PM を捕集することが可能である。一方、PM の流動が流動抵抗および重力で支配されている $8.95 \mu\text{m}$ 以上の場合、PM がベッド粒子に付着しにくく、かつ付着したとしても流動抵抗が大きいためベッド粒子から PM が剥離しやすく、粒径 $8.95 \mu\text{m}$ 以上の捕集効率は低下する。

上述の通り、流動層式 PM 除去装置の捕集効率は時間の経過とともに減少するが、これは PM が流動層のベッド粒子に付着し、その堆積量が増えることで、付着した PM が剥離しやすくなったためと考えられる。そこで、ベッド粒子上に堆積した PM の量と捕集効率の関係性を導き出す。Fig.3 に粒径 $8.95 \mu\text{m}$ の場合における単位ベッド粒子体積あたりの PM 堆積量 $depo \text{ g/m}^3$ と捕集効率 eff の関係を示す。この結果より、粒径 $8.95 \mu\text{m}$ の場合における PM の堆積量と捕集効率の関係を求めると式(26)となる。

$$\begin{aligned} eff = 3903.52 \times depo^2 - 75.312 \times depo \\ + 0.955232 \end{aligned} \quad (26)$$

求めた式(26)は、ベッド粒子に付着する PM

の堆積量の増加にとともに、ベッド粒子の付着許容能力が低下することを示す関係式であり、これにより捕集効率の低下挙動が予測可能となる。

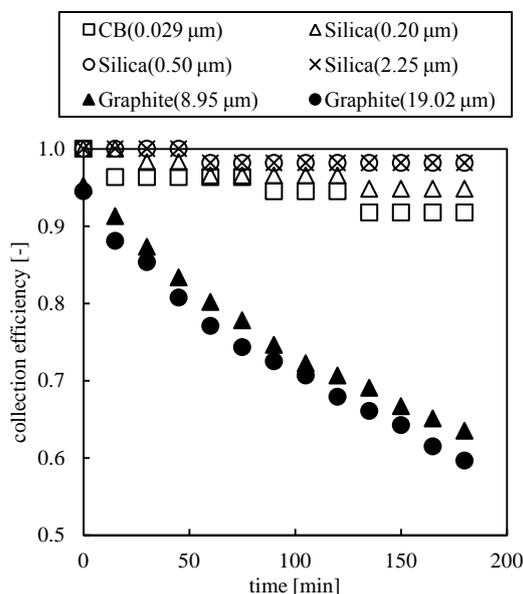


Figure 2 Time changes of PM collection efficiency.

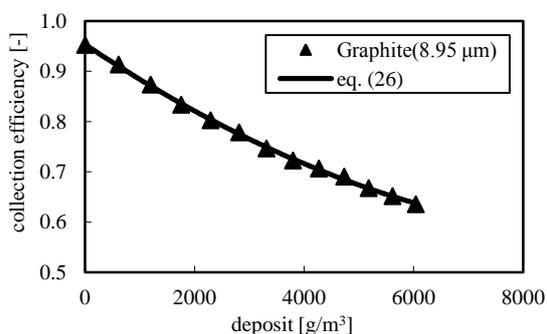


Figure 3 Effect of PM deposit amount on bed particles for collection efficiency

(2) 数値解析

流動層式 PM 除去装置の数値解析を行うにあたり、Eulerian-Eulerian 2 流体モデルに PM 付着モデルを組み込む必要があるが、現状として Eulerian-Eulerian 2 流体モデルに適した付着モデルは見当たらないことから、新しい PM 付着モデルを構築する必要がある。実験において PM の付着挙動を観察すると、ベッド粒子層の混合の影響もあるが、PM はベッド粒子層全体に付着していく様子が観測された。そこで、流動層に投入された PM は解析対象全域のベッド粒子層で捕集すると仮定し、単位ベッド粒子表面積あたりの付着許容能力 *ability* として式(27)を定義する。

ability [g/(m² · s)]

$$= \frac{\text{PM 投入量 [g/s]}}{\text{全ベッド粒子の表面積 [m}^2\text{]}} \quad (27)$$

式(27)を解析モデルに組み込むと、投入された PM はベッド粒子と接触することにより、徐々にベッド粒子に付着していき、ベッド粒子層全体で捕集される。また一方で、PM が気泡内にある場合は、ベッド粒子と接触しないため、PM はベッド粒子には付着しない。本解析モデルでは、PM の付着速度 *ad* として、式(27)に式(26)を掛けた式(28)を定義する。

ad [g/(m² · s)]

$$= \text{ability} \times \text{eff} \quad (28)$$

式(28)を本解析モデルに適用することにより、気泡の影響およびベッド粒子層への PM の堆積量を考慮した PM 付着モデルとなる。なお、本研究で扱う PM のストークス数は 1 より十分小さいため、PM の流動は気相の流動に追従するとみなせることから、気相中の PM は気相の 1 成分として、ベッド粒子に付着後の PM は固相の 1 成分として扱う。

Fig.4 に PM 粒径 8.95 μm の場合における PM 捕集効率の実験結果と解析結果の比較を示す。PM 粒径 8.95 μm の場合において、図より解析結果は実験結果と良好に一致している。以上の結果より、本研究で構築した流動層式 PM 除去装置における付着モデルの妥当性が示された。

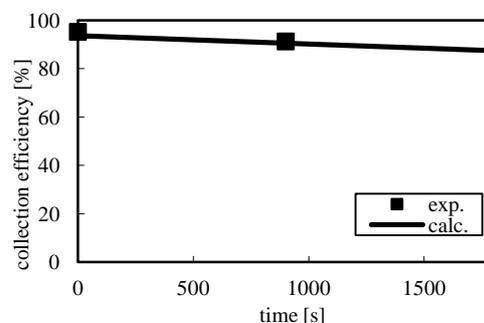


Figure 4 Comparison between experimental data and model prediction

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 山本剛、堀健太、中曾浩一、山本高久、舘林恂、流動層式 PM 除去装置における PM の捕集特性、化学工学論文集、査読有、第 39 巻、第 1 号、2013、60-66

DOI: 10.1252/kakoronbunshu.39.60

[学会発表] (計 3 件)

① 山本剛、堀健太、館林恂、流動層式 PM 除去装置における PM 捕集特性の粒径依存性に関する検討、化学工学会第 43 回秋季大会、2011 年 9 月、名古屋

② Tsuyoshi Yamamoto, Kenta Hori, Takahisa Yamamoto, June Tatebayashi, Effect of PM diameter on collection characteristics in fluidized bed type PM2.5 removal device, 23rd International Symposium on Transport Phenomena, 19-22 November, 2012, Auckland, New Zealand

③ 山本剛、宮脇利彰、山本高久、館林恂、流動層式 PM 除去装置を対象とした 250-400°C の低温領域における PM の燃焼挙動、第 50 回燃焼シンポジウム、2012 年 12 月、名古屋

[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：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山本 剛 (YAMAMOTO TSUYOSHI)
九州大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号：20321979

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者 ()

研究者番号：