

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：32613

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560930

研究課題名(和文) 一流体スプレーノズルを用いたアクリルアミド高分子両性電解質液噴霧法による空気浄化

研究課題名(英文) Air Purification by Atomizing Acrylamide Polyampholyte Solution Using One-fluid Spray Nozzles

研究代表者

並木 則和 (Namiki, Norikazu)

工学院大学・工学部・教授

研究者番号：40262555

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：ポリアクリルアミド両性電解質(APA)の水溶液を噴霧することで、様々な工場の排ガス中の低濃度(100ppm未満)の揮発性有機化合物(VOC)を処理する手法が注目されている。本研究では、圧縮空気を必要としない一流体ノズルを用いた高性能でコンパクトなVOC処理システムを開発するため、一流体ノズルの除去性能の向上を試みた。その結果、静電スプレー法または変調磁場法を適用することで性能が向上した。さらに、数値流体力学計算による噴霧液滴の解析と物質収支モデルを併用することで、液滴表面のAPAの被覆率()をパラメータとして、 $\theta = 0.18$ とすることで本装置のVOC除去性能の推定することが可能となった。

研究成果の概要(英文)：Attention has been focused on the method for abating VOCs (volatile organic compounds) at a low concentration (less than 100 ppm) in exhaust gas of factories by spraying acrylamide polyampholyte (APA) solution. The present study was aimed to develop a compact VOC treatment system using one-fluid spray nozzles without compressed air instead of two-fluid ones and establish the estimation of VOC abatement performance by atomized droplets using CFD simulation and mass balance model. Then, both methods, the electro spray method and the modulated electromagnetic field one, were applied to the one-fluid nozzle to catch up with the VOC removal rate of two-fluid nozzle. As a result, it was found that both methods enhanced the specific removal rate of toluene vapor for the one fluid nozzle. Also, we found that the specific removal rate obtained from the estimation method coincided with that from the experiments when the parameter relevant to surface coverage of APA on a droplet, θ was 0.18.

研究分野：微粒子工学

キーワード：高分子両性電解質 揮発性有機化合物 排ガス処理 液噴霧法 変調電磁場法 一流体スプレーノズル
静電スプレー法 離散液滴モデル(DDM)法

1. 研究開始当初の背景

現在、工場排ガス中の低濃度 (~100 ppm) の揮発性有機化合物 VOC の除去用に、ポリアクリルアミド両性電解質 (APAs: Acrylamide Polyampholytes) 水溶液噴霧による VOC 除去技術が注目されている。現在本手法を用いる場合には、液滴径の小さい二流体スプレーノズル (加圧空気と共に液体を噴霧するスプレーノズル) による噴霧が一般的であるが、圧縮空気を用いるため一定量以上の排ガス量を有する施設で適用可能である。一方、加圧された水のみを用いて噴霧する一流体ノズルは、圧縮空気を用いないためランニングコストが低くなり、装置のコンパクト化が期待される。しかし、液滴径が二流体ノズルに比べて大きいこと除去性能が低いことが予想される。

2. 研究の目的

本研究は、既存の装置で使用されている二流体ノズルの除去性能と比較しながら一流体ノズルの除去性能の向上を試みることで、一流体ノズルを用いた VOC 除去システムを構築することを目的とする。さらに、数値流体力学(CFD)ソフトウェアで求めた噴霧液滴濃度分布を用いて VOC 除去性能予測法を確立することを試みた。

3. 研究の方法

(1) VOC の除去実験

図1にホロコーン型一流体スプレーノズルを用いた場合の VOC 除去性能評価装置の概略図を示す。噴霧塔(内径 $\phi 250$ mm, 有効長さ 2080 mm)は、塔内に流入させた VOC 蒸気とスプレーノズルから噴霧される APA 水溶液(ノズパル GR-1S; エスポ化学, 10 ppm)の液滴を接触させるための装置である。スプレーノズルには、一流体ノズル(共立合金製作所; 1/4KSM0.3ACV)および内部混合型の二流体ノズル(共立合金製作所; KSMMD 075 \times 3-A10W045)を用いた。試験 VOC として疎水性の芳香族化合物であるトルエンを用いた。VOC 蒸気を含む試料空気のサンプリングでは、試料空気をガラスフィルタが装着されたシリンジを用いて同伴する液滴を除去した上で、サーマルガスサンブラ付きの GC-FID に導入して水または APA 溶液噴霧時の塔出口のトルエン濃度(それぞれ C_{in} および C_{out} に該当)を測定することにより、除去率 $R[-]$ を求めた。本研究では、スプレーノズルの種類および設定風量 Q [m^3/s] により、噴霧液量 m_w [kg/s] または入口トルエン濃度 C_{in} [mol/m^3] が常に同じにできないため、(1)式で求められる単位噴霧液量あたりの比除去速度 r_s [mol/kg] により評価を行った。

$$r_s = \frac{RC_{in}Q}{m_w} \quad (1)$$

次に、ホロコーン型の一流体ノズルの VOC 除去性能を向上させる方法として、静電スプレー(ES)法と変調電磁場(MEF)法を検討した。ES法は、数 kV の正または負の高電圧を下流のリング状電極とノズル間に印加して液滴を帯電さ

せることで、液滴の表面に正または負の電荷が誘導される。帯電した液滴は、クーロン反発力により液滴が分裂を起こして微細化を繰り返しながら空間に広がる。

一方、コイルを巻いた円管に高周波の交流電圧を印加する MEF 法では、管路を流れる水に含まれる凝集した高分子や凝集粒子が交流高周波の電磁コイルで形成された電磁場を通過すると、管断面の半径方向に高速で振動を繰り返すことにより、水溶液中の陰イオンがこれらのコロイド粒子に特異吸着してゼータ電位が低下し、静電反発力が大きくなることで高分子や粒子の凝集が緩和されることが予想される。なお、この現象を利用して配管のスケール付着防止に使用されている。

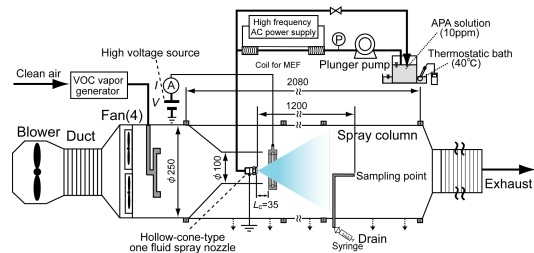


図1 一流体スプレーノズルを用いた APA 溶液噴霧によるトルエン除去のための装置

(2) 噴霧液滴濃度分布を考慮した物質移動速度の計算と比除去速度の算出

噴霧された液滴へのトルエン蒸気の物質移動速度を求めるために、CFD ソフトウェア (STREAM Ver.11; ソフトウェアクレイドル) の DDM (Discrete droplet model) 法³⁾を用いて、実験用風洞内での液滴の噴霧流動状態に関する非定常解析を行った。なお、ノズルの水量分布の実測値に近くなるように、ノズルの噴霧条件(噴霧角度および液滴径分布)を設定した。

4. 研究の成果

(1) VOC の除去実験の結果

ES 法を適用した場合の比除去速度 r_s の風速の変化を図2に示す。図より、一流体ノズルに ES 法を適用した場合、負電圧では最大 1.2 倍、正電圧では最大 1.6 倍 r_s が増加し、特に正電圧印加の方が比除去速度の増加の割合が大きかった。

次に、MEF 法を適用した場合の比除去速度 r_s の比較を図3に示す。一流体ノズルに MEF 法を適用した場合、一流体ノズルでは最大 2.0 倍 r_s が増加し、ES 法に比べて除去性能が向上した。しかし、二流体ノズルの性能には到達していないため、さらにコイルを巻く配管の本数を増やして同様の実験を行った。その結果を図中の記号” ”で示す。2本に増やしてコイルを通過する液の滞留時間を長くすることで、適用前と比べて最大 2.5 倍となり、4 m/s 以上の高風速では、二流体ノズルと同程度まで除去性能が向上した。

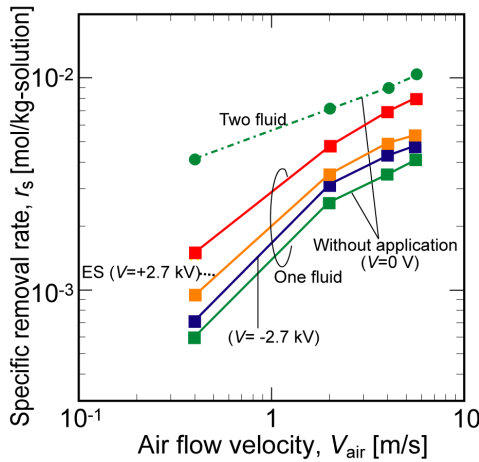


図 2 ES 法を一流体ノズルに適用した場合の風速による比除去速度の変化

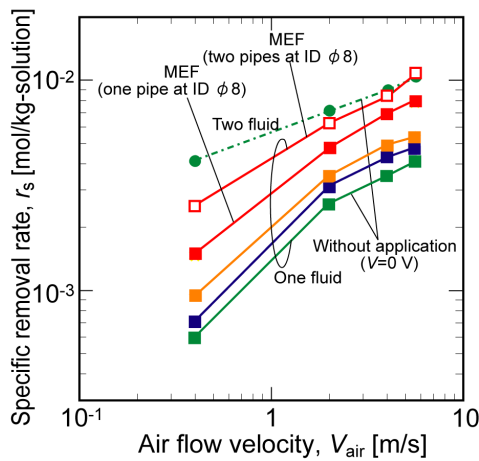


図 3 MEF 法を一流体ノズルに適用した場合の風速による比除去速度の変化

(2) 液滴径分布測定による考察

ES 法または MEF 法の適用により、一流体ノズルで噴霧された液滴の径に及ぼす影響を調べるために、液滴径を PDPA (Phase Doppler Particle Analyzer; TSI) で測定した。測定手順として、ノズル下流 20 mm の場所にリング状電極を固定し、さらに液滴供給用パイプに MEF の発生装置に接続されたコイルを巻き付けた。そして、液滴径測定点をノズル下流 300 mm の場所に固定し、PDPA の測定に用いるレーザーを照射した。

図 4 に ES 法および MEF 法を適用した場合の粒径分布を示す。図より、ES 法を適用した場合、正電圧印加の場合の方が印加しない場合に比べてザウター径 (D_{p32}) で 20 % 程度液滴径が小さくなり、微粒化が促進されていることがわかる。一方、MEF 法を適用した場合、適用しない場合に比べて逆に粒径が大きくなった。以上のことから、ES 法と MEF 法の予想される除去性能向上の機構を図 5 に示す。ES 法では、APA を含んだ液滴が微粒化されることで、APA が液滴表面に露出する割合が高くなることで除去性能が向上すると考えられる。一方、MEF 法では、APA の凝集状態が緩和され液滴径は大きくなるものの、

外表面に露出する APA の割合が多くなることで性能が向上すると考えられる。さらに、風速を上げて性能が向上する理由として、MEF 法により凝集状態が緩和された水滴中の APA は不安定であり、高風速域での気流の乱れにより液滴の分裂が起きているためと予想される。

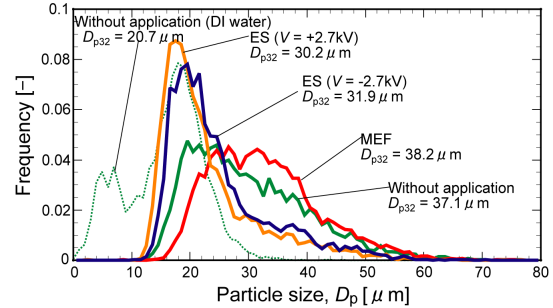


図 4 ES 法あるいは MEF 法を適用した場合の液滴径分布

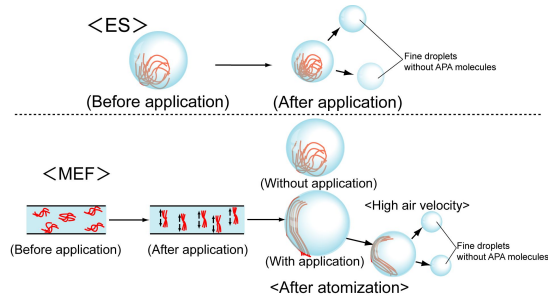


図 5 ES 法または MEF 法を適用した場合の VOC 除去性能向上の予想される機構

(3) 噴霧液滴濃度分布を考慮した物質移動速度の計算と比除去速度の算出の結果

図 6 に、 $V_{air} = 4 \text{ m/s}$ における噴霧液滴 (パーセル) の空間分布 ($t = 6 \text{ s}$) の例を示す。次に、図 7 に示す物質収支モデルを用いて、スプレーノズルからサンプリング地点 ($x = 1.2 \text{ m}$) までの各分割セル (Δx) 内の各パーセルのシャーウッド数 Sh_j を、CFD で求めた噴霧液滴の空間分布の計算結果を元に(2)式で示す Ranz & Marshall の式を用いて求めた。

$$Sh_j = 2 + 0.6Sc^{1/3}Re_j^{1/2} \quad (2)$$

ここで、 Sc はシュミット数、 Re_j は各パーセルの相対速度基準のレイノルズ数である。図 8 に、風速による各セル内の平均シャーウッド数 \bar{Sh} の変化を示す。図より、ノズル直下での \bar{Sh} が大きく、その後減少してから 6 セル目 ($x = 0.72 \text{ m}$) 付近で最大値を示す。この理由として、噴出直後は液滴の噴出速度により相対速度 $|\vec{v}_r| (= \vec{v} - \vec{V})$ が大きくなり、その後流体抗力により $|\vec{v}_r|$ は低下する。さらに、その後は液滴の重力沈降により $|\vec{v}_r|$ が上昇した後、沈降速度の大きい粗大液滴の壁面沈着により減少するためと考えられる。

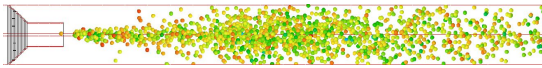


図 6 計算で求められた噴霧塔内のパーセル(仮想液滴群)の空間分布 ($V_{\text{air}} = 4 \text{ m/s}$, $t = 6 \text{ s}$)

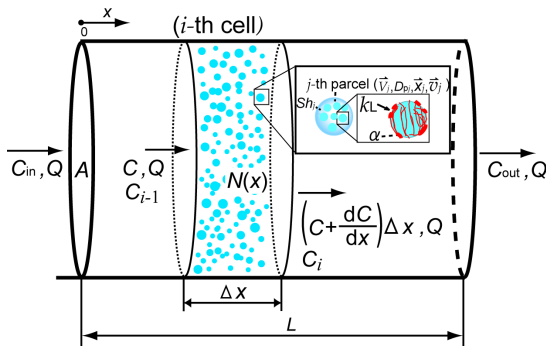


図 7 噴霧塔内の各セルでのトルエンの物質収支のモデル

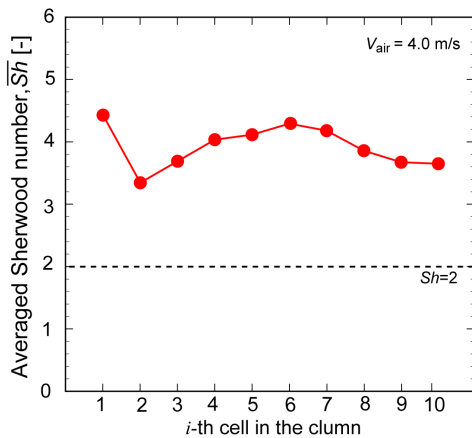


図 8 セルによる平均シャーウッド数の変化 ($V_{\text{air}} = 4 \text{ m/s}$)

(2) 次に, (3)式で示す微分方程式を差分法により解くことで, 風洞内のトルエン濃度を求めた。

$$-Q \frac{dC}{dx} = \pi \alpha D_{AB} A C \overline{Sh}(x) \overline{D_p}(x) N(x) \quad (3)$$

ここで, D_{AB} はトルエン蒸気の拡散係数, N は液滴の個数濃度 [m^{-3}], A は風洞の断面積 [m^2] である。なお, 本計算を行う際の仮定として, トルエン蒸気が液滴表面に露出した APA 分子(表面被覆率 α)に直接吸着するものとする。

図 9 に, α をパラメータとして V_{air} に対する比除去速度を求めた結果を示す。図より, $\alpha = 0.18$ 前後で実験値とほぼ一致していることがわかる。 α を唯一のパラメータとすることで, APA 含有噴霧液滴による VOC 除去性能を推定することができた。

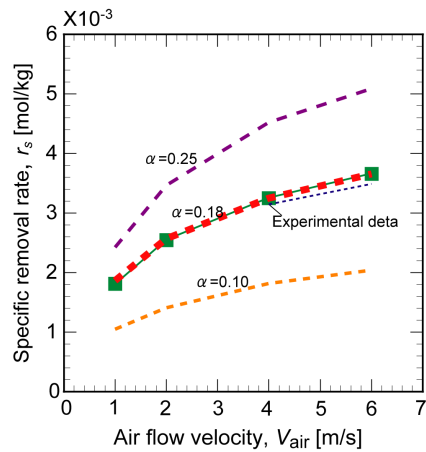


図 9 異なる表面被覆率による比除去速度の計算値と実測値の比較

<引用文献>

梅木千真, 吉川 昇, 谷口尚司, 田路和幸: “交流電磁場処理による炭酸カルシウム粒子のゼータ電位変化と配管のスケール防止への適用”, 用水と廃水, Vol. 49, No. 9, (2007) 768-773

A. Shahryari, and M. Pakshir: “Influence of a Modulated Electromagnetic Field on Fouling in a Double-pipe Heat Exchanger,” Journal of Materials Processing Technology, Vol. 203 (2008) 289-395

高木正英: “燃料噴霧の数値シミュレーションモデル”, 日本マリンエンジニアリング学会誌, Vol. 44, No. 3 (2009) 49-54

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)

並木 則和, 高木 剛, 鍵 直樹, 守田辰夫, 小林 俊弼, スプレーノズルを用いたポリアクリルアミド両性電解質溶液噴霧による揮発性有機化合物の除去, 化学工学論文集, 40 巻, 2014, 306-312

DOI: 10.1252/kakoronbunshu.35.608

(学会発表) (計 8 件)

山田哲也, 並木則和, 鍵 直樹, 守田辰夫, 小林俊弼, APA 溶液噴霧法による揮発性有機化合物の除去性能評価と溶液物性の影響, 第 32 回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究発表大会, 日本空気清浄協会, 早稲田大学(東京), 2015.4.22

並木則和, 高木 剛, 鍵 直樹, 守田辰夫, 小林俊弼, 一流体スプレーノズルを用いたポリアクリルアミド両性電解質液噴霧による揮発性有機化合物の除去, 第 46 回化学工学会秋季大会, 化学工学会, 九州大学(福岡), 2014.9.17

山田哲也, 高木 剛, 高井真奈人, 徳永健, 並木則和, 鍵 直樹, 守田辰夫, 小林俊弼, 一流体スプレーノズルを用いたポリ

クリルアミド両性電解質溶液噴霧による揮発性有機化合物の除去性能の向上, 第 31 回エアロゾル科学・技術研究討論会, 日本エアロゾル学会, 筑波大学(つくば), 2014.8.6
並木則和, 高木 剛, 高井真奈人, 鍵 直樹, 守田辰夫, 小林俊弼, ポリアクリルアミド両性電解質液噴霧による排ガス中揮発性有機化合物の除去, 第 31 回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究発表大会, 日本空気清浄協会, 早稲田大学(東京), 2014.5.21

高木 剛, 並木則和, 徳永 健, 鍵 直樹, 守田辰夫, 久保 彰, 小林俊弼, 一流体スプレーノズルを用いたポリアクリルアミド高分子両性電解質液噴霧による揮発性有機化合物の除去, 化学工学会第 45 回秋季大会, 化学工学会, 岡山大学(岡山), 2013.9.16

高木 剛, 川島尚也, 徳永 健, 並木則和, 鍵 直樹, 守田辰夫, 大久保隆司, 真鍋充房, 小林俊弼, 一流体スプレーノズルを用いた APA 溶液噴霧による揮発性有機化合物の除去性能の向上, 第 30 回エアロゾル科学・技術討論会, 日本エアロゾル学会, 京都大学(京都)2013.8.29

高木 剛, 並木則和, 徳永 健, 鍵 直樹, 守田辰夫, 久保 彰, 大久保隆司, 真鍋充房, 小林俊弼, ポリアクリルアミド高分子両性電解質溶液噴霧による排ガス中揮発性有機化合物の除去特性, 第 30 回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究発表大会, 日本空気清浄協会, 早稲田大学(東京)2013.4.24

高木 剛, 押久保 悠, 徳永 健, 並木則和, 鍵 直樹, 守田辰夫, 大久保隆司, 真鍋充房, 小林俊弼, ポリアクリルアミド高分子両性電解質溶液噴霧による排ガス中揮発性有機化合物の除去特性, 第 29 回エアロゾル科学・技術討論会, 日本エアロゾル学会, 北九州国際会議場(北九州)2012.8.28

6. 研究組織

(1)研究代表者

並木 則和 (NAMIKI, Norikazu)

工学院大学・工学部・教授

研究者番号: 40262555

(2)研究分担者

鍵 直樹 (KAGI, Naoki)

東京工業大学・大学院情報理工学研究科・准教授

研究者番号: 20345383

徳永 健 (TOKUNGA, Ken)

工学院大学・基礎・教養教育部門・准教授

研究者番号: 30467873

(3)連携研究者

(4)研究協力者