

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月 23日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760691

研究課題名（和文） 化学プラントから排出される中低温熱有効利用のための新規化学蓄熱プロセスの提案

研究課題名（英文） Proposal of a novel chemical heat storage process for effective utilization of waste heat with middle-low temperatures from chemical plants

研究代表者

中曾 浩一（KOICHI NAKASO）

九州大学・工学研究院・助教

研究者番号：40363379

研究成果の概要（和文）：

化学プラント等で大量に排出される低温排水および中温排ガスを利用して、高温蒸気生成させる新規化学蓄熱を検討した。本プロセスでは、吸着熱を利用して水蒸気を生成させる。その際、水と吸着材を直接熱交換させることで高効率化を図った。その結果、常圧下で蒸気生成・吸着材再生を繰り返し行い、本プロセスが実現可能であることを示した。80℃の水から4気圧までの飽和蒸気生成を確認した。理論計算で蒸気生成および吸着材再生での内部温度や反応の進行を予測できた。

研究成果の概要（英文）：

A novel chemical heat storage system is proposed to utilize waste heat from industrial chemical processes. In this system, steam can be effectively generated by adsorption heat using the direct heat exchange method. The cycle experiment which consisted of steam generation and regeneration of adsorbent was carried out under atmospheric pressure. As a result, steam could be generated for each cycle. The feasibility of this process was experimentally confirmed. Steam with high pressure up to 4 atm was generated from water at 80 degC. Numerical models for steam generation and regeneration were developed to study the effect of operating conditions on the process. Calculated results agreed with the experimental ones.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
総計	2,700,000	810,000	3,510,000

研究分野：

科研費の分科・細目：

キーワード：排熱有効利用，水蒸気生成，ゼオライト，ヒートポンプ，化学蓄熱，移動現象

1. 研究開始当初の背景

蓄熱技術は今日課題となっているエネルギー問題，温室効果ガス削減の観点から，省エネルギー，エネルギー有効利用のための基盤技術として位置づけられている。熱を蓄える原理から潜熱蓄熱，顕熱蓄熱，化学蓄熱など各種蓄熱法が提案されており，中でも化学

蓄熱は，化学反応や吸着現象を利用してエネルギーを貯蔵・放出するため，反応系の選択により低～高温までのプロセスまで用いられる。温室効果ガスの大部分は発電所や化学プラント，製鉄に代表される大規模なプロセスから発生する。このような大規模プロセスからは，100℃前後の低温排水や200℃程度の

中温排ガスも多量に発生しており、それらの持つ熱エネルギーは十分に回収されないまま環境中に廃熱として廃棄されている。したがって、蓄熱装置を大規模装置に適用して、中低温排熱を回収し、温度を高めて熱の質を向上させることができれば、さまざまな用途へ用いることができるため、地球環境問題に大きく貢献できると考えられる。

2. 研究目的

中低温排熱を回収して熱の質を高めて再利用する技術として、低温排水から高温蒸気を生成する化学蓄熱を検討した。従来の化学蓄熱は、図1aに示すように、熱交換器を装備した反応粒子充填層および蒸発・凝縮器から構成されるが、本研究では、図1bに示すように、反応器単体で反応から蒸気生成まですべて行うシンプルな装置を提案した。従来の充填層反応器で熱出力低下の原因となっている粒子層の低熱伝導性は、作動媒体（水、ガス）と反応粒子を直接接触させ熱交換する方法で改善を試みた。最終的には化学プラントへ適用することを前提とし、蓄熱工程としては、プロセス中の窒素ガスや温排ガスを利用した反応粒子再生を検討した。放熱工程としては、反応粒子と水との接触で発生する反応熱で蒸気を発生させた。反応系には、中低温域の廃熱回収に応用が検討されている酸化マグネシウム／水系およびゼオライト／水系の化学蓄熱を対象とした。

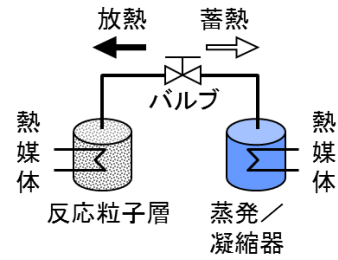
3. 研究方法

1) 基礎実験

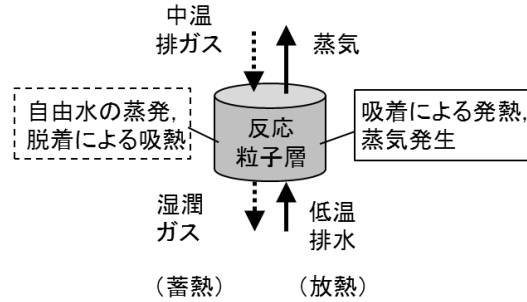
既往の研究例が極めて少ないため、数種類の吸着材および酸化マグネシウム粒子を用い、それらと水を接触させ、発熱量を測定するとともに、水に対する耐久性を調べた。その結果、13Xゼオライトが最も適することが分かった。この13Xゼオライトを用いた蒸気生成および吸着材再生試験を行った。

実験装置概略を図2に示す。蒸気生成器には円筒状のステンレス容器を用い、吸着材ペレットを充填した。図中の赤色のラインで示した蒸気生成工程では、充填層底部もしくは上部から水を導入して蒸気を生成させた。その生成量は凝縮水として測定した。まず常圧下での蒸気生成で水の導入方法を検討し、次に高压（常圧以上の圧力）蒸気生成も検討した。このとき蒸気生成器の蒸気排出部にリリーフ弁（圧力調整弁）を設置し、所定の圧力を超えた場合に弁が開放され、蒸気を取り出せるようにした。

図2中の青色のラインで示した吸着材再生（乾燥および脱着）工程では、加熱した乾燥空気を導入した。ガス流量および温度など操作条件が再生工程に及ぼす影響を検討した。



(a) 従来の化学蓄熱



(b) 本研究で提案する新規化学蓄熱法

図1 排熱有効利用のための化学蓄熱法

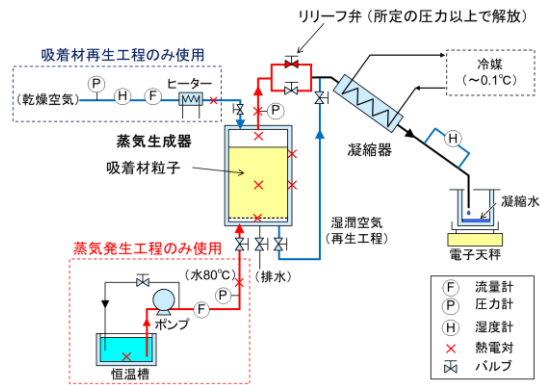


図2 実験装置概略（底部より水導入の場合）

2) 数値解析

蒸気生成および吸着材再生工程に及ぼす操作条件の影響を検討するため、充填層内で生じる熱物質移動現象および吸着脱着蒸発を考慮した数値解析モデルをそれぞれ作成し、妥当性を確認した。作成したモデルで操作条件が内部温度、反応の進行に及ぼす影響を検討した。

3) サイクル実験

システムの実現可能性を示すため、蒸気生成、吸着材再生をサイクル運転した。装置は図2と同様である。大気圧下で80°Cの温水を導入して1気圧の飽和蒸気の生成を試みた。再生には120°C、空塔速度0.64Nm/sの乾燥ガスを用いた。本研究では、吸着材再生時間を1200s、3600sの2種類で、それぞれ5-6サイクルで連続運転した。

4. 研究成果

(1) 基礎実験

蒸気生成試験結果を表1に示す。これより、水導入方向にかかわらず、水蒸気生成できた。このとき、充填層上部から導入する方が必要最小限の水導入量で水蒸気生成できるものの、均一に水を導入するためにノズルを設置するなどの方策が重要であることもわかった。

一方、充填層底部から水を導入した場合、充填層全体と水を接触させるために多量の水を導入しなければならないが、水平方向に均一に水導入できるように再現性の高い温度応答が得られた（一例を図3に示す）。底部から水を導入する場合は、液面が一様に上昇するため、高圧蒸気生成に適していると考えられる。このため高圧蒸気生成実験では、底部からの水導入で検討した。この結果、2気圧蒸気生成では0.065 kg/kg-zeolite、4気圧蒸気生成では0.031 kg/kg-zeoliteの蒸気がそれぞれ生成し、4気圧までの蒸気生成を確認した。圧力が高くなるにつれ沸点が上昇するため、熱損失の影響が大きくなることがわかった。さらなる高圧蒸気生成には熱損失の十分な対策が必要であることが示唆された。

再生工程では、乾燥ガスで自由水の蒸発および脱着できることを確認した。図4に充填層中心温度および吸着率経時変化の一例を示す。このとき、ガス流速および温度の増大により再生速度を増大させることができた。

(2) 数値解析

図3には、常圧下での蒸気生成工程について、充填層底部から80°Cの水を導入したときの充填層中心温度および上部温度の計算結果も合わせて示す。表2に解析条件および蒸気生成量の比較を示す。これより内部温度および生成蒸気量を妥当に推算することができた。また、上部温度は生成器上面での熱損失により低下したが、これを抑制できれば更なる高温蒸気が生成できることを示唆した。

表1 蒸気生成実験結果（常圧）

水導入方向	上部 (分散無)	上部 (分散有)	底部
導入水量 [kg/kg-zeolite]	0.31	0.34	1.16
生成蒸気量 [kg/kg-zeolite]	0.022	0.034	0.067
導入水量に対する生成蒸気量の割合[%]	7	9.8	5.7

表2 解析条件および計算と実験の比較

導入水流量 [L/min]	0.0268
初期温度 [°C]	83.3
導入水温度 [°C]	82.2
初期吸着量 [kg-w/kg-z]	0.011
生成蒸気量（実験） [g]	20.00
生成蒸気量（解析） [g]	20.38

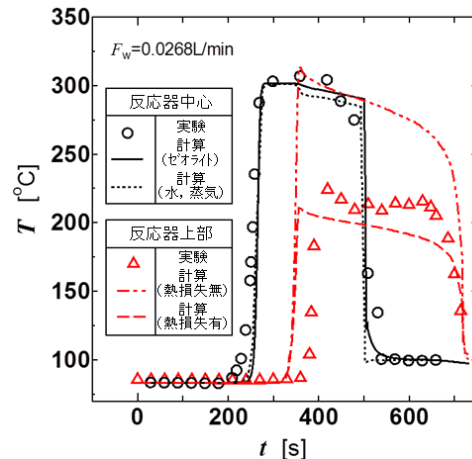
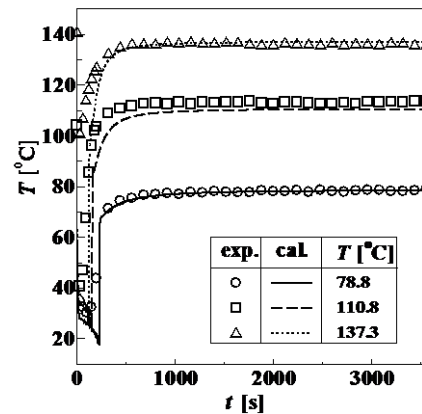
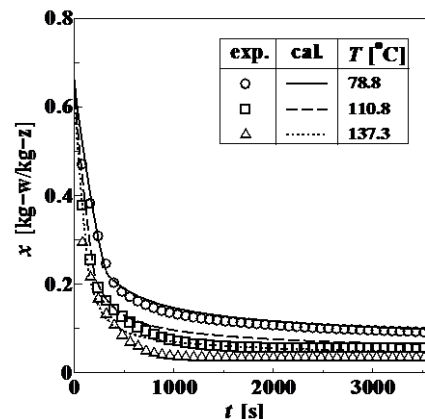


図3 常圧下の蒸気生成工程での充填層中心部および上部温度の経時変化。



(a) 中心温度経時変化



(b) 吸着率の経時変化

図4 再生工程実験結果と解析結果の比較の一例（導入ガス温度の影響）

本解析モデルを用いて、蒸気生成量に及ぼす水導入温度および生成器初期温度の影響を図5に示す。これより、水導入温度よりも、生成器内初期温度を高くする方が生成蒸気量の増加に有効であることが示唆された。

図4のラインに再生工程の解析結果を示す。解析モデルで反応器内温度、空気出口温度の経時変化をほぼ予測することができた。これらのモデルを利用して各工程における内部温度応答や反応進行の予測が可能となった。

(3) サイクル試験

蒸気生成および吸着材再生工程を繰り返し行うサイクル実験を行った。層内部温度の経時変化を図6に示す。図に示すように、再現性の良いサイクル運転を確認した。また、再生時間1200sおよび3600sでの蒸気生成量は、1サイクルあたりそれぞれ、 2.2×10^{-5} および 2.4×10^{-5} kg-steam/(kg-zeolite·s)であった。いずれの再生時間でも最大200℃の過熱蒸気を生成でき、蒸気生成を実証できた。再生工程の時間が短いほど1サイクルあたりの生成蒸気量は減少するが、単位時間あたりの生成蒸気量は増加することが示唆された。

(4) まとめと今後の展開

以上の検討より、本研究で提案した化学蓄熱プロセスは、乾燥温ガスによる蓄熱および温水による蒸気生成（放熱）のサイクル操作が実証できた。各工程も数値解析により予測ができるため、今後はスケールアップや多搭方式での連続生成など、より実用的な検討へと展開していく予定である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計4件)

1. Erfina Oktariani, Atsushi Noda, Kazuya Nakashima, Keisuke Tahara, Xue Bing, Koichi Nakaso, Jun Fukai, Potential of a direct contact adsorption heat pump system for generating steam from waste water, International Journal of Energy Research, 査読有, 2011, DOI: 10.1002/er.1855
2. 中曾 浩一, Erfina Oktariani, 野田 敦嗣, 板谷 義紀, 中川 二彦, 深井 潤, 低温排熱有効活用のための水蒸気回生ヒートポンプシステムの開発-基本概念と省エネルギー効果の予測-, エネルギー・資源学会論文誌, 査読有, Vol. 32, No. 5, pp.9-16.
3. Erfina Oktariani, Keisuke Tahara, Kazuya Nakashima, Atsushi Noda, Bing Xue, Agung Tri Wijayanta, Koichi Nakaso, Jun Fukai, Experimental

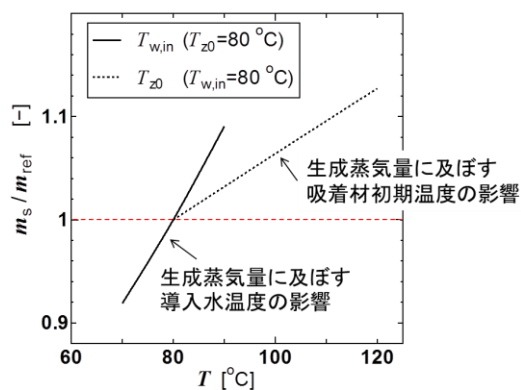


図5 生成蒸気量に及ぼす導入水温度および初期温度の影響

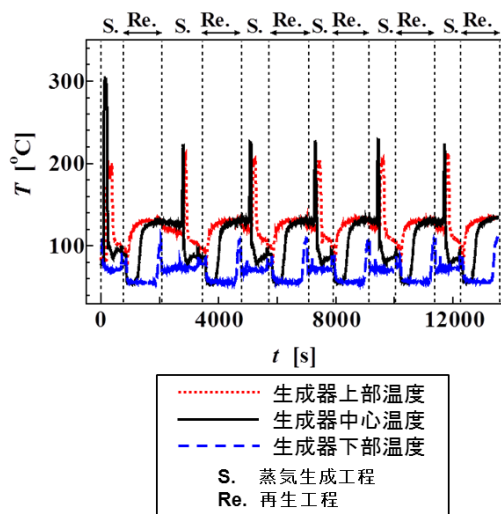


図6 サイクル時の温度経時変化 (再生工程1200秒)

Investigation on the Adsorption Process for Steam Generation Using a Zeolite-water System, Journal of Chemical Engineering of Japan, 査読有, 印刷中

4. Bing Xue, Keisuke Tahara, Kazuya Nakashima, Atsushi Noda, Erfina Oktariani, Agung Tri Wijayanta, Koichi Nakaso, Jun Fukai, Numerical Simulation for Steam Generation Process in a Novel Zeolite-Water Adsorption Heat Pump, Journal of Chemical Engineering of Japan, 査読有, 掲載決定

〔学会発表〕(計11件)

1. 野田 敦嗣, Erfina Oktariani, 中曾 浩一, 深井 潤, 高温蒸気生成のための直接熱交換式吸着ヒートポンプ, 化学工学会第42回秋季大会, 京都, 2010.9.6.
2. Atsushi Noda, Erfina Oktariani,

- Koichi Nakaso, Jun Fukai, Performance of Prototype Adsorption Heat Pump for Regenerating High Temperature Steam, 13th Asia Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress, Taipei, Taiwan 2010. 10. 8.
3. 中曾浩一, Erfina Oktariani, 深井 潤, 低温排熱有効利用のための水蒸気再生システムの検討, 化学工学会熱工学部会平成 22 年度熱工学部会講演会/日本伝熱学会東海支部 第 21 回東海伝熱セミナー, 常滑, 2010. 11. 12.
 4. Agung Tri Wijayanta, Erfina Oktariani, Xue Bing, Atsushi Noda, Kazuya Nakashima, Keisuke Tahara, Koichi Nakaso, Jun Fukai, Multiphase CFD Model in Packed Bed Reactor for Zeolite-water Adsorption System, International Workshop on Process Intensification 2010, Fukuoka, Japan, 2010. 12. 2.
 5. 中曾 浩一, Erfina OKTARIANI, 野田 敦嗣, 板谷 義紀, 中川 二彦, 深井 潤, 未利用温排熱から高温水蒸気を生成する蒸気回生システムの性能予測, 粉体工学会 2010 年度 第 2 回 西日本談話会, 北九州, 2010. 12. 21.
 6. 中島 数矢, 田原 啓右, 野田 敦嗣, 薛 冰, エリフィナ オクタリアニ, アグン トリ ウィジャ ヤンタ, 中曾 浩一, 深井 潤, 水蒸気発生のための直接熱交換式吸着ヒートポンプの検討, 第 48 回日本伝熱シンポジウム, 岡山, 2011. 6. 1.
 7. Koichi Nakaso, Erfina Oktariani, Atsushi Noda, Kazuya Nakashima, Keisuke Tahara, Bing Xue, Agung Tri Wijayanta, Jun Fukai, Estimation of Performance of Adsorption/Desorption System for Regenerating Steam from Waste Water of Industrial Process, ASME 2011 5th International Conference on Energy Sustainability & 9th Fuel Cell Science, Engineering and Technology Conference, Washington DC, USA, 2011. 8. 10.
 8. Bing Xue, Kazuya Nakashima, Atsushi Noda, Erfina Oktariani, Agung Tri Wijayanta, Koichi Nakaso, Jun Fukai, Steam generation model in zeolite-water adsorption heat pump for utilizing waste water, 2011 Joint of Korea/Japan/Taiwan Chemical Engineering Conference, Busan, Korea, 2011. 11. 11.
 9. Agung Tri Wijayanta, Erfina Oktariani, Atsushi Noda, Kazuya Nakashima, Xue Bing, Koichi Nakaso, Jun Fukai,

Potential of Adsorption Heat Pump for Steam Generation, International Symposium on EcoTopia Science 2011, Nagoya, Japan, 2011. 12. 10.

10. 中曾 浩一, Erfina Oktariani, Bing Xue, 中島 数矢, 野田 敦嗣, Agung Tri Wijayanta, 深井 潤, 高含水ゼオライト再生速度に及ぼすガス導入条件の影響, 2011 年度 第 2 回西日本談話会, 北九州, 2011. 12. 14.
11. 中曾 浩一, 深井 潤, 製鉄プロセスにおける低温排水の再利用技術の提案, 日本鉄鋼協会 環境・エネルギー・社会工学会炭素循環製鉄研究会シンポジウム, 横浜, 2012. 3. 29.

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中曾 浩一 (Koichi Nakaso)
九州大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号: 40363379

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし