

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

課題番号 1-1907

課題名 「排熱で運用可能な高効率連続再生式
PM2.5除去装置の開発」

(体系的番号 JPMEERF20191007)

令和元年度～令和3年度

英文課題名 「Development of Highly Efficient Continuous Regeneration Type
PM2.5 Removal Device Operated at Waste Heat」

〈研究代表機関〉

国立大学法人九州大学

〈研究分担機関〉

愛知電機株式会社

令和4年5月

目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに（研究背景等）	
2. 研究開発目的	
3. 研究目標	
4. 研究開発内容	
5. 研究成果	
5-1. 成果の概要	
5-2. 環境政策等への貢献	
5-3. 研究目標の達成状況	
6. 研究成果の発表状況	
6-1. 査読付き論文	
6-2. 知的財産権	
6-3. その他発表件数	
7. 国際共同研究等の状況	
8. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 ミネラル分と水蒸気によるPM _{2.5} 燃焼反応の促進と再生温度の低温下に関する研究 (九州大学)	19
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
II-2 フィジビリティスタディ (愛知電機株式会社)	34
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
III. 研究成果の発表状況の詳細	49
IV. 英文Abstract	52

I. 成果の概要

課題名 1-1907 排熱で運用可能な高効率PM2.5除去装置の開発

課題代表者名 山本 剛 (九州大学大学院工学研究院化学工学部門 准教授)

重点課題 主：【重点課題③】環境問題の解決に資する新たな技術シーズの発掘・活用

副：【重点課題⑬】大気・水・土壌等の環境管理・改善のための対策技術の高度化及び
評価・解明に関する研究

行政要請研究テーマ (行政ニーズ) 「非該当」

研究実施期間 令和元年度～令和3年度

研究経費

52,000千円 (合計額)

(各年度の内訳：平成31年度：20,150千円，令和2年度14,690千円，令和3年度：17,160千円)

研究体制

(サブテーマ1) ミネラル分と水蒸気によるPM_{2.5}燃焼反応の促進と再生温度の低温下に関する
研究 (九州大学)

(サブテーマ2) フィジビリティスタディ (愛知電機株式会社)

研究協力機関

研究協力機関はない。

本研究のキーワード PM_{2.5}，付着力，流動層，連続再生，低温燃焼，カリウム，水蒸気

1. はじめに（研究背景等）

PM(Particulate matter)の一次粒子は、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伴い微小化し、粒径 $2.5\mu\text{m}$ 以下の $\text{PM}_{2.5}$ が増えている。PMは粒径が小さいほど人体の奥深くに入り込むため呼吸器系・循環器系疾患を引き起こし、世界中で毎年数百万の人々が早死にしているとNatureにおいて報告された。現在、PMの除去にはバグフィルタ、DPF(Diesel Particulate Filter)、電気集塵機が用いられているが、 $\text{PM}_{2.5}$ が小さいため、バグフィルタやDPFの気孔のすり抜け、電気集塵機におけるPMの帯電性能の悪化が起り、従来法の $\text{PM}_{2.5}$ 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する高効率 $\text{PM}_{2.5}$ 除去装置の開発が必要である。

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時、粒子間にファンデルワールス力等の付着力が働き、粒径が小さいほど支配的になる。そこで研究代表者らは、粒子間付着力を利用してPMを捕集するため、緩やかな流動層をPM除去装置に適用した（図1.3参照）。 $\text{PM}_{2.5}$ として粒径 $0.2\mu\text{m}$ 、 $0.5\mu\text{m}$ 、 $2.25\mu\text{m}$ のシリカ粒子を用い、バスやトラックなどの排ガスの濃度程度（ $30\text{mg}/\text{m}^3$ ）で実験を実施した結果、PM捕集効率はいずれの粒径においても100%となり、本法の $\text{PM}_{2.5}$ に対する有効性が示された。また燃焼機関から排出されるPMは、すす等の可燃分が大半を占めることから、PMの捕集と燃焼を同時に行う連続再生式として運用すれば半永久的に使用できる。一般に、すす等のPMを燃焼するためには 600°C 程度の熱を外部から供給する必要があるが、これを 300°C 程度に下げることができれば排ガスの熱で処理可能となる。そこで本研究では、流動層の低温燃焼機関としての特性、ミネラル分の触媒効果、水蒸気の低温燃焼促進効果を利用してPMの燃焼速度を向上させ、排熱で運用可能な高効率連続再生式 $\text{PM}_{2.5}$ 除去装置の開発を目指す。

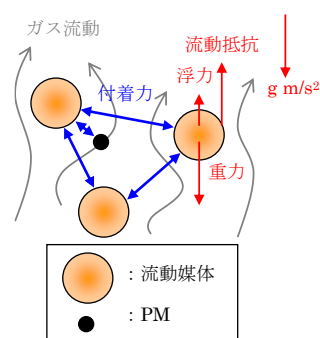


図1.3 流動層内の力学系

2. 研究開発目的

流動層を用いた連続再生式 $\text{PM}_{2.5}$ 除去装置では、PMを流動媒体に付着することでPMを捕集し、さらに流動媒体表面でPMを燃焼処理することで連続再生式の運用を行う。このようなPMの捕集と燃焼を同時に行う連続再生式は、“PM燃焼速度>PM付着速度”という条件での運転が必要である。この条件が達成されれば、PMを高効率捕集しながら流動媒体表面をクリーンな状態に保つことができ装置の長寿命化につながる。本法において用いている流動層は低温燃焼機関として知られ、PMの燃焼温度を大幅に低下可能であることから、本法の連続再生式の運用温度について調査した。その結果、従来法ではPMの燃焼に 600°C 程度の熱を外部から加える必要があるが、本法では流動層の低温燃焼機関としての特性を利用することで 400°C において連続再生式の運用が可能であった。この 400°C という連続再生温度を排熱程度の 300°C まで低下させるためには、さらなる装置の改善が必要である。

石炭科学の分野において、カーボンを燃焼促進物質であるミネラル分と接触させて燃焼することで、燃焼温度が 150°C 程度低下することが報告されている。また燃焼排ガスに含まれる水蒸気は、酸素と同様に酸化剤として作用することが知られ、その効果は低温域ほど大きい。そこで本研究では、ミネラル分を流動媒体に触媒担持し、PMとミネラル分を接触させながら燃焼することで、PMの燃焼反応を促進させ燃焼温度の低温化を図る。また、排ガス中の水蒸気の影響について調査し、水蒸気の酸化特性によりPMの燃焼反応速度を向上させる。さらに、ミネラル分と水蒸気を同時に考慮することでPMの燃焼反応を相乗的に向上させ、排熱程度の 300°C において運用可能な高効率連続再生式 $\text{PM}_{2.5}$ 除去装置を開発する。また要素技術の開発を進め、フィジビリティスタディにより経済および環境評価を行う。以上の成果を基に、本装置の最適化、スケールアップデータの取得、ディーゼルエンジンを用いた実証試験を行うとともに、フィジビリティスタディにおいて、工業レベルでの評価を行い従来技術に対するメリットおよび本装置の設計指針を示す。

3. 研究目標

全体目標	<p>燃焼機関から排出されるPMは、すす等の可燃分が大半を占めることから、PMの捕集と燃焼を同時に行う連続再生式として運用すれば半永久的に使用できる。一般に、すす等のPMを燃焼するためには600°C程度の熱を外部から供給する必要があるが、これを300°Cに下げることができれば排ガスの熱で処理可能となる。そこで本研究では、流動層の低温燃焼機関としての特性、ミネラル分および水蒸気の低温燃焼促進効果を利用してPMの燃焼速度を向上させ、排熱で運用可能な高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発する。また、キックオフ会合等で実用化を意識した実証試験を行うことが望ましいとのことでしたので、上記装置の開発に加え、ディーゼル発電機等を用いて実証試験を実施し、本法の性能評価を行う。</p>
サブテーマ1	ミネラル分と水蒸気によるPM燃焼反応の促進と再生温度の低温化に関する研究
サブテームリーダー/所属機関	山本剛／九州大学
目標	<p>ミネラル分と水蒸気によるPM燃焼反応の促進と再生温度の低温化に関する研究 石炭科学の分野において、カーボンを燃焼促進物質であるミネラル分と接触させて燃焼することで、燃焼温度が150°C程度低下することが報告されている。また燃焼排ガスに含まれる水蒸気は、酸素と同様に酸化剤として作用することが知られ、その効果は低温域ほど大きい。そこで本研究では、ミネラル分を流動媒体触媒担持し、PMとミネラル分を接触させながら燃焼することで、PMの燃焼を促進させ燃焼温度の低温化を図る。また、排ガス中の水蒸気の影響について調査し、水蒸気の酸化特性によりPMの燃焼速度を向上させる。さらに、ミネラル分と水蒸気を同時に考慮することでPMの燃焼反応を相乗的に向上させ、排熱で運用可能な高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発する。以上のようにして開発した装置の最適化後、ディーゼル発電機等を用いて実証試験を実施し、本法の性能評価を行う。</p>
サブテーマ2	フィジビリティスタディ
サブテームリーダー/所属機関	田中良／愛知電機株式会社
目標	<p>要素技術の開発を進め、第一次フィジビリティスタディにより経済および環境評価を行う。以上の成果を基に、本装置の最適化およびスケールアップデータの取得を行うとともに、第二次フィジビリティスタディを実施し、工業レベルでの評価を行うことで従来技術に対する明確なメリットを示す。</p>

4. 研究開発内容

研究代表者らは、これまで粒子間付着力を利用することで、既存のPM除去装置では高効率捕集できないPM_{2.5}の高効率捕集に成功した。さらに、流動層の低温燃焼特性を活かすことで、既存の装置では600°Cの熱が必要であった連続再生温度を、400°Cにまで低下することに成功した。この連続再生温度を300°C程度に下げることができれば排ガスの熱で処理可能となる。そこで本研究では、流動層の低温燃焼機関

としての特性、ミネラル分および水蒸気の低温燃焼促進効果を利用してPMの燃焼速度を向上させ、排熱で運用可能な高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発する。具体的には、サブテーマ（1）において、PMの付着・燃焼挙動における水蒸気およびミネラル分の影響を調べる。PMとしてカーボンブラックを、流動媒体として焼結アルミナ粒子あるいはミネラル分担持焼結アルミナ粒子を用い、水蒸気濃度、流動層温度、空塔速度をパラメーターとして付着・燃焼実験を行う。なお、カーボンブラックはふるいにより3つの粒径に分類し、PMの粒径依存性についても検証する。測定はスモークメータにより黒煙濃度を、ガラスファイバー製フィルタを用いた重量法により粒子濃度を測定する。また、PM燃焼率の測定およびカーボンバランスの確認をするため、フーリエ変換赤外分光光度計(FTIR)によりppmオーダーの生成ガス組成(CO, CO₂)を測定する。以上の結果から、PMの燃焼温度をどの程度下げることができるのかを明らかにする。また、これらの研究を踏まえ、ミネラル分と水分の相乗効果により本装置のさらなる再生温度の低下を目指す。これらの結果から、PM燃焼速度およびPM捕集効率における水分とミネラル分の相乗効果について検討するとともに、本装置の最適化を行い排熱で運用可能な高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発する。上記の実験で使用する装置は、直径80mm程度のラボスケールサイズであるが、実用化を踏まえて実験装置の直径を200mm程度にスケールアップし、この装置において最適化を行うとともに、スケールアップデータを取得する。これらの結果をラボスケールデータと比較し、データの同一性や相似性について検討を行うことで実用化の際の装置について検証する。さらに、以上のようにして開発した装置の最適化後、ディーゼルを用いて実証試験を実施し、本法の性能評価を行う。また、サブテーマ（2）では、本研究システムと既存システムとの比較を行うことで、フィジビリティスタディを行う。サブテーマ（1）の研究データを基にパラメータサーベイを行い、最適な操作・装置条件を選択して連続再生装置の各設計値を決定する。これらの概念図を基に、詳細図を計画するとともに、実機を想定して汚染の改善を含めた性能の確立、経済面における優位性等を明確にする。さらに、スケールアップ条件を詳細に検討後、概念図のスケールアップバージョンを作成し、流動層の特性技術計算を行うことで各装置の要素を決定する。これらの概念データに基づき、製作図を設計するとともに、全体プラントへの配置想定を織り込み、性能計算、各要素設計計算を行い、装置の詳細図を起こす。

5. 研究成果

5-1. 成果の概要

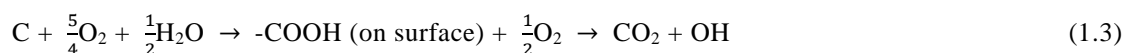
5-1.1 ミネラル分と水蒸気によるPM燃焼反応の促進と再生温度の低温化に関する研究

(1) 水蒸気の影響

連続再生温度をさらに低下させて排熱のみで運用するためには、PMの燃焼速度を促進することが有効な手段となる。そこで、燃焼排ガスに含まれ燃焼促進効果を有する水蒸気を添加し、その影響について調査した。はじめに、燃焼の効果を明瞭にするために、PM投入濃度100 mg/m³という極めて高濃度の条件の元で実験を行った。その結果、全ての条件で捕集効率は時間経過とともに減少した。本装置において、PMは流動媒体に付着・堆積することで捕集されるため、連続的にPMを捕集するとPMの堆積量は次第に増加し、流動媒体表面においてPMの凝集体が形成される。流動層内において、PMに働く力は付着力と分離力に大別され、それぞれPMの粒径と体積に比例することから、凝集体が形成されて成長すると、流動抵抗等の分離力が次第に大きくなっていき、PMは流動媒体から剥離しやすくなる。また、流動媒体表面がPMで覆われていくと、新たにPMが付着する場所が少なくなるため、捕集効率が減少したと考えられる。流動層はその攪拌混合特性から低温燃焼器として知られ、またPMの構成成分は大半が可燃物であることから、流動媒体表面に堆積したPMを低温で燃焼処理することが可能である。水蒸気0 vol.%の場合、捕集効率は300°C以上において常温よりも高い値を示し、その値は温度上昇とともに増加した。これは300°C以上の条件において、PMの燃焼に伴い流動媒体表面のPM堆積量が減少し、PMの剥離が抑制されたこと、新たなPMが付着しやすいことが原因である。一方、250°Cの場合、温度が低いため燃焼反応はほとんど生じず、捕集効率の上昇は確認されなかった。水蒸気5-15 vol.%の場合、250°Cを含む全ての条件で捕集効率が上昇し、PMの燃焼促進効果が確認された。水蒸気による燃焼促進効果について、

各温度でPM 捕集効率の上昇幅を比較すると、低温域において水蒸気の燃焼促進効果が比較的大きく、捕集効率の上昇が顕著であった。特に、水蒸気0 vol.%の場合には捕集効率に対する燃焼促進効果が確認されなかった250 °Cの条件においても、捕集効率の上昇が確認された。

水蒸気のPM燃焼促進効果をさらに詳細に検討するため、FT-IRを用いて排ガス分析を実施した。空塔速度0.4 m/s, PM粒径100-125 μm, PM濃度100 mg/m³, 水蒸気濃度0, 10 vol.%, 粒子層温度250, 400°Cにおける180分目の測定結果を図1.5に示す。250°Cの場合、水蒸気0 vol.%ではCOおよびCO₂ともにほとんど生成が確認されなかった。一方、水蒸気10 vol.%ではCOはほとんど検出されなかったが、CO₂は57 ppm検出され、250°Cでも水蒸気の添加により燃焼反応が促進されることが示された。400°Cの場合、水蒸気の有無によらずCO, CO₂の生成が確認され、どちらの条件においても燃焼反応が生じていることが確認された。水蒸気を添加することで主にCO₂濃度が増加し、それに伴ってCO, CO₂の総量も増加しているため、水蒸気の添加により燃焼が促進されることが示された。さらに、この原因について考察するため、系内の反応機構について議論する。一般に、すす等のPMと水蒸気を含む空気との燃焼反応では、O₂, H₂Oが酸化剤となる。この反応は、酸化剤がPM表面に化学吸着することで化合物を形成した後、炭素原子を伴って脱離するという二段階の反応であることが知られおり、以下の(1.1) - (1.6)式により記述される。ただし、本研究ではPMとしてカーボンブラックを用いているため、以下の反応式においてPMをCと記載する。またPMの酸化反応において、単にO₂との反応を考える場合には式(1.1), (1.2)のみでよい。



粒子層温度400°C, 水蒸気0 vol.%では、CO およびCO₂ がそれぞれ121 ppm, 94 ppm生成し、COのほうがやや多かった。炭素とO₂の直接反応は、炭素の表面上に酸素分子が吸着しC(O₂)を形成後、CO₂として脱離する場合((1.1)式)、分離した酸素分子が吸着しC(O)を形成後、COとして脱離する場合((1.2)式)、またC(O)を形成後、炭素表面で酸素原子が移動しCO₂として脱離する場合((1.1)式)の3通りの経路で進むと言われている。本反応においては、上記の2通りの反応経路を持つ(1.1)式の反応よりも(1.2)式の反応のほうが優勢であった。しかし、水蒸気存在下の反応を検討する際には、新たに(1.3) - (1.6)式も検討しなければならない。粒子層温度400°Cにおいて水蒸気を添加すると、COおよびCO₂はそれぞれ157 ppm, 224 ppmとなり、CO濃度よりもCO₂濃度のほうが大幅に増加した。水蒸気存在下では、数百度という低温においても(1.3)式の反応によりカルボキシル基等が生成され、水蒸気濃度とともに増加することが報告されている。カルボキシル基は100 - 400°Cの範囲で選択的にCO₂となり、それと同時にCOの酸化作用を持つOHが生じる。250 - 400°Cにおいても水蒸気によりPM燃焼反応が促進されていることから、(1.3)式が水蒸気によるPM燃焼促進の主な反応経路であると考えられる。さらに、(1.4)式により生成したOHがCOを酸化し、CO₂となることでCOが減少したと考えられる。(1.5)式は水性ガスシフト反応として知られ、低温かつ水蒸気存在下においてCOを酸化する反応である。この反応は250 - 400°Cの温度範囲では可逆的であるが、H₂等の生成物よりも水蒸気濃度のほうが高いため、平衡が右に傾きCOがCO₂に酸化される。(1.6)式は主に800°C以上の高温で生じる反応として知られていることから、本反応では無視できる。

(2) ミネラル分の影響

(1)の水蒸気の影響と同様、はじめにカリウムを担持した流動媒体を用いPM投入濃度100 mg/m³で実験を行った。その結果、250°Cの場合、カリウムの有無による違いはほとんど見られなかった。また常温における結果との違いもほとんどないことから、250°CではPMがほとんど燃焼しないことが示唆された。

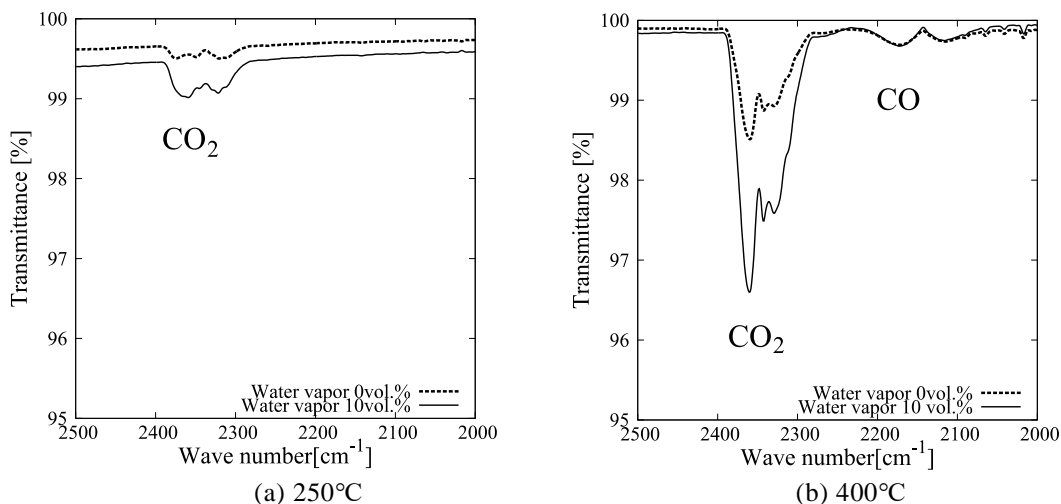


図1.5 FT-IR分析結果

(PM粒径100-125 μm, PM濃度100 mg/m³, 水蒸気濃度0, 10 vol.%, 空塔速度0.4 m/s, 時間180分)

一方, 300°C以上の条件では, カリウムを触媒担持することにより捕集効率が上昇している. これは, カリウムの触媒効果によりPMの燃焼が促進されて流動媒体表面のPM堆積量が減少し, PMの剥離が抑制されるとともに新たなPMが付着する場所が増えたためであると考えられる. カリウム担持の影響をより詳細に検討するため, 浄化ガスのFT-IR分析と流動媒体のXRDパターン測定を実施した. 図1.9に空塔速度0.4 m/s, PM粒径100-125 μm, PM濃度100 mg/m³, 粒子層温度400°Cにおける180分目のFT-IR分析結果を示す. カリウムを担持しない場合, COおよびCO₂の濃度はそれぞれ127 ppmおよび97 ppmであるが, カリウムを担持した場合のCOおよびCO₂の濃度はそれぞれ102 ppmおよび416 ppmである. このことから, カリウムはPM燃焼時にCO₂の生成を選択的に増加させるが, COの生成は増加させないことが示された. 図1.10にカリウムを担持した場合としない場合の燃焼率を示す. カリウムを担持した場合, 総燃焼率は80%を超えるが, カリウムを担持しない場合の総燃焼率は30%程度である. また, カリウム担持の有無によるCO燃焼率にはあまり大きな差はないが, CO₂燃焼率はカリウムを担持した場合に特に多くなっていることがわかる. 図1.11にカリウムを担持した流動媒体の連続再生実験前後におけるXRDパターンを示す. また比較のため, カリウムを担持していない流動媒体のXRDパターンを併せて示す. カリウムを担持していない場合は, Al₂O₃のみが検出された. またカリウムを担持した場合, カリウム含有化合物として検出されたのはK₂CO₃のみである. カリウムとして流動媒体に担持したのはCH₃COOKであるが, 触媒担持の焼成の際にK₂CO₃に変換されたため, K₂CO₃ピークのみが検出された. K₂CO₃のピークは, 400°Cにおける実験前後においてほとんど変化しないことが示された. また, カリウムを触媒として用いた場

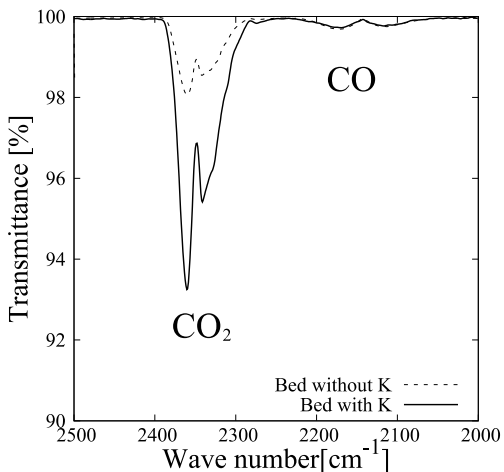


図1.9 FT-IR分析結果

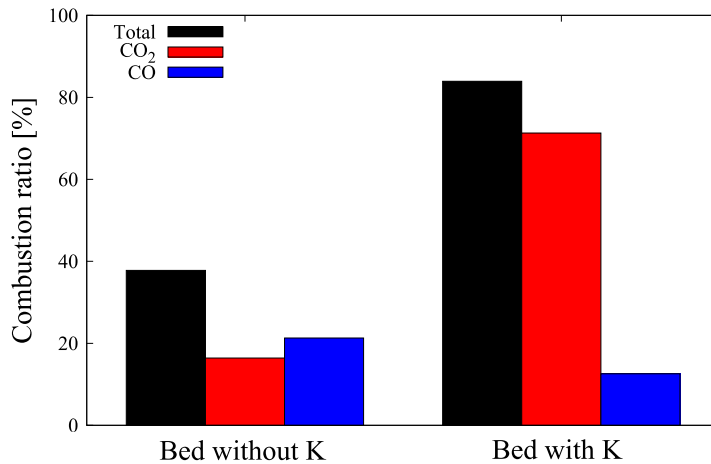


図1.10 燃焼率詳細

(PM粒径100-125 μm, PM濃度100 mg/m³, 温度400°C, 空塔速度0.4 m/s, 時間180分)

合、高温ではカリウムが昇華し反応の失活が起こるが、本実験の温度域ではカリウムが昇華しないことが示唆された。

FT-IRの分析結果とXRDパターンから、カリウム存在下におけるPMの反応機構について検討した。図1.12に反応機構の概略図を示す。PMは流動媒体にランダムに付着することから、PMとカリウムの接触状態はルーズコンタクトあるいはタイトコンタクトに大別される。カリウム存在下におけるPMの反応には、(1.7)-(1.13)式および(1.14)-(1.18)式により示される2つのメカニズムがある。まず、酸素がカリウムに吸着され((1.7), (1.8)式)、吸着された酸素がカリウムの表面からPMの表面に移動する((1.9), (1.10)式)。PMの表面に移動した酸素は炭素と結合し、PMがCOあるいはCO₂として除去される((1.11)-(1.13)式)。これらの反応は、ルーズコンタクトおよびタイトコンタクトのいずれの状態においても起こる反応である。また酸素がPMの表面に直接吸着され、(1.11)-(1.13)式によりCOあるいはCO₂になる場合もあるが、いずれの場合においてもCOおよびCO₂が同時に生成される。(1.11)-(1.13)式によるCOおよびCO₂生成はカリウムが担持されていない場合でも起こる反応であり、カリウムを担持することで(1.7)-(1.10)式を経由し、COおよびCO₂の生成量が増加する。しかし、FT-IRの結果から、カリウムを担持すると選択的にCO₂が生成されることから、これらの反応はあまり多く起こらないことが示唆される。



(1.14)-(1.18)式により示される反応メカニズムは、カリウムと炭素の直接反応((1.14), (1.17)式)があることから分かるように、タイトコンタクトの場合にのみ起こる反応である。K₂CO₃はCO₂を生成するとともに、K₂OあるいはK₂O₂に変換される。K₂O₂は炭素と反応してCO₂を生成するとともに、K₂Oに変換される。また、K₂O₂とK₂OはCO₂を吸収してK₂CO₃に変換される。以上のように、これらの反応はCO₂を生成しながら循環する反応であり、周期的にK₂CO₃、K₂O、K₂O₂に変換されることから、これらの反応においてK₂CO₃、K₂O、K₂O₂が重要な役割を果たす。FT-IRの結果から、カリウムを担持すると選択的にCO₂が生成されることから、これらの反応が支配的であることが示唆される。

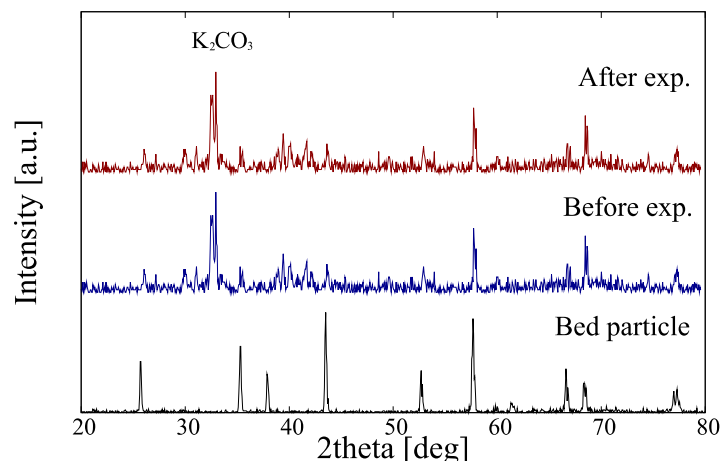


図1.11 流動媒体のXRDパターン

(PM粒径100-125 μm, PM濃度100 mg/m³, 温度400°C, 空塔速度0.4 m/s)

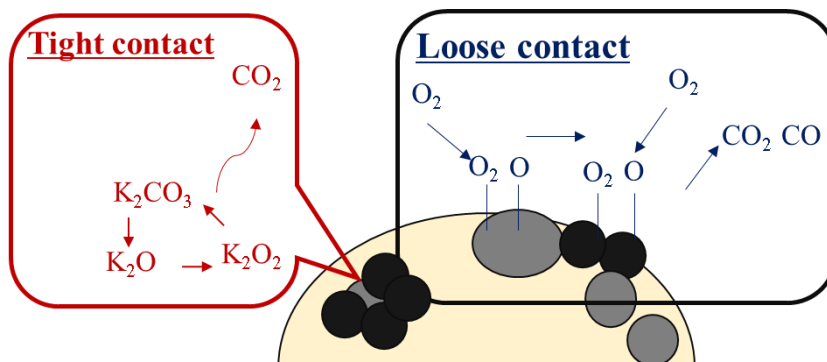


図1.12 反応機構概略図

(3) 連続再生温度の低温化

水蒸気およびカリウムの触媒担持による低温化（連続再生温度）の相乗効果について調査するため、PM粒径 $20\ \mu\text{m}$ 以下、PM濃度 $30\ \text{mg}/\text{m}^3$ 、水蒸気濃度 $10\ \text{vol.}\%$ 、空塔速度 $0.4\ \text{m}/\text{s}$ 、粒子層温度 330°C において、捕集効率と燃焼率の測定を行った。結果を図1.14に示す。図より、上記と同様に捕集効率は240分間100%を維持し、また燃焼率は上記と同様の傾向を示している。燃焼率は210分において100%に到達するまで時間経過とともに上昇し、210分以降100%以上を維持して定常状態となった。水蒸気の影響により、PM表面にカルボキシル基等が生成され、またカリウム表面に吸着された酸素がPM表面に移動することで、カルボキシル基と酸素が反応し最終的にCOあるいは CO_2 が生成される。カリウムと水蒸気による相乗効果により、このようにPM燃焼反応がさらに促進されたことから、従来法ではPMの燃焼に 600°C 程度の熱が必要であるが、本装置では 330°C において連続再生運転が可能となった。

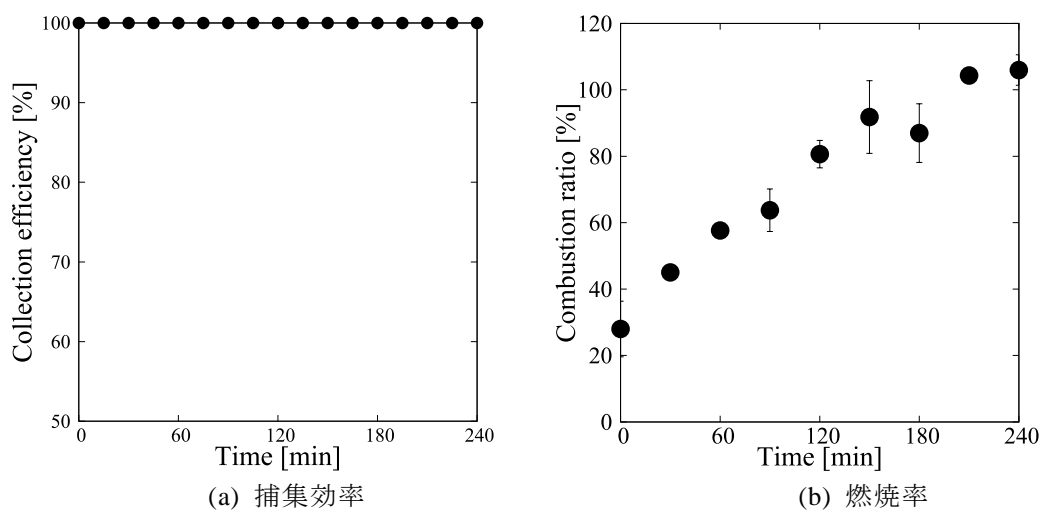


図1.14 330°Cにおける捕集効率と燃焼率

(PM粒径 $20\ \mu\text{m}$ 以下、PM濃度 $30\ \text{mg}/\text{m}^3$ 、水蒸気濃度 $10\ \text{vol.}\%$ 、空塔速度 $0.4\ \text{m}/\text{s}$ 、温度 330°C)

上述のように、水蒸気とミネラル分を利用することで連続再生温度は 330°C まで低下した。さらに連続再生温度を低減するため、ミネラル分をより多く担持することが可能な流動媒体(ナイガイセラビーズ)を用いて実験を行った。PM粒径 $20\ \mu\text{m}$ 以下、PM濃度 $30\ \text{mg}/\text{m}^3$ 、水蒸気濃度 $10\ \text{vol.}\%$ 、空塔速度 $0.15\ \text{m}/\text{s}$ 、粒子層温度 300°C において、捕集効率と燃焼率の測定を行った。結果を図1.17に示す。図より、上述のアルミナイトボールの場合と同様に捕集効率は240分間100%を維持し、また燃焼率も同様の傾向を示している。燃焼率は時間経過とともに上昇し、210分目におおよそ100%に到達後、100%以上を維持して定常状態となった。ナイガイセラビーズを用いてカリウムの担持量を増加したことにより、PMの燃焼反応がさらに促進され、アルミナイトボールの場合よりも連続再生温度が 30°C 低下した。以上のようにカリウ

ム担持量増加に伴うPM燃焼反応の促進により、従来法ではPMの燃焼に600°C程度の熱を外部から加える必要があるが、本法では300°Cにおいて連続再生運転が可能となった。

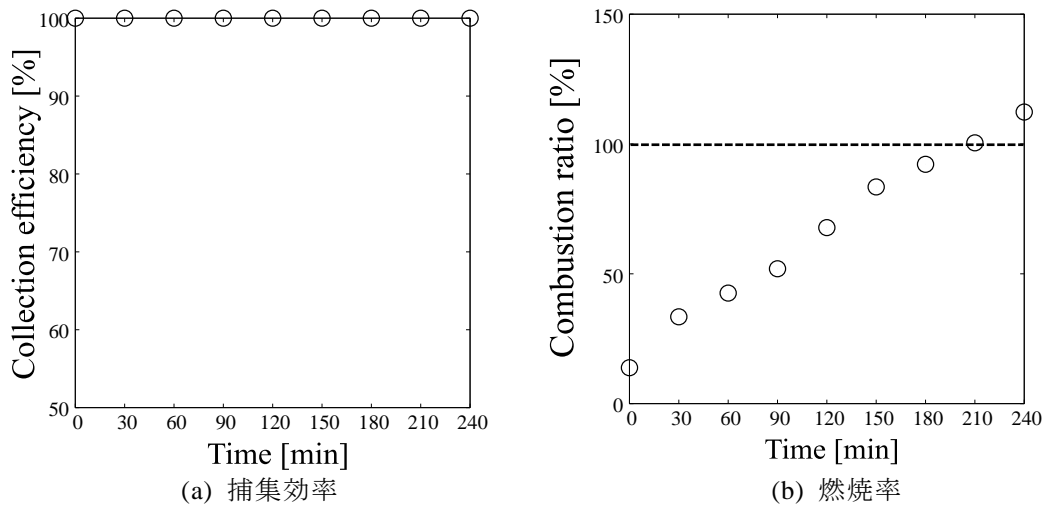


図1.17 ナイガイセラビーズを用いた300°Cにおける捕集効率と燃焼率

(PM粒径20 μm 以下, PM濃度30 mg/m^3 , 水蒸気濃度10 vol.%, 空塔速度0.15 m/s, 温度300°C)

(4) スケールアップとディーゼルへの適用

実用化を踏まえて実験装置の直径を80.7 mmから190.9 mmにスケールアップし、本装置におけるデータを取得する。はじめに、スケールアップ装置の流動状態を確認するため、アルミナイトボールを用いて空頭速度0.4 m/sにおいて流動化させた結果、空隙率が高い壁際において多くのガスが通過する結果となった。この問題を解決し流動層全体を流動化させるため、流動層の入口を150 mmに狭めて、再度、流動化実験を実施したところ、良好な流動状態が得られた。この装置を用いて80.7 mmの装置と比較を行ったところ、粒子層温度250-400°Cにおいて捕集効率は同様の結果となった。さらに、スケールアップ装置において連続再生の検討を行うため、PM粒径20 μm 以下, PM濃度30 mg/m^3 , 空塔速度0.4 m/s, 水蒸気濃度10 vol.%, 粒子層温度330°Cにおいて、捕集効率と燃焼率の測定を行った。結果を図1.18に示す。燃焼率については少しばらつきがあるが、80.7 mmの装置と同様、捕集効率は100%を維持し燃焼率は210分目において100%に到達した。以上の結果から、スケールアップ装置においてもスケールアップ前の装置と同様の結果になることが示された。

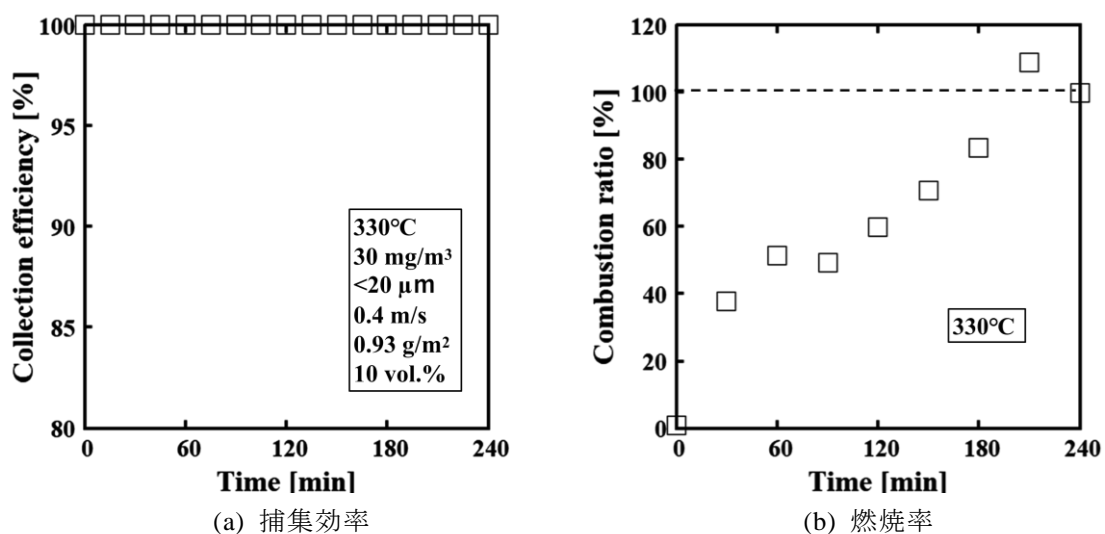


図1.18 スケールアップ装置を用いた330°Cにおける捕集効率と燃焼率

(PM粒径20 μm 以下, PM濃度30 mg/m^3 , 水蒸気濃度10 vol.%, 空塔速度0.4 m/s, 温度330°C)

次に、図1.19に示すディーゼル（L70N、ヤンマー製）を用い、ディーゼルの回転数を2000 rpmに設定した上で、ディーゼルから排出されるPMを含んだ排ガスを用いてPM捕集・燃焼実験を実施した。ディーゼルから排出されるPMの粒径分布（頻度分布および積算分布）をインパクターにより測定した。その結果を図1.20および1.21に示す。頻度分布よりディーゼルから排出されたPMは0.1 μm 付近の粒径が最も多くなっており、かなり小さい粒径であることが分かる。また、頻度分布および積算分布から、ディーゼルから排出されたPMは10 μm 以下の粒径が99%程度を占めていることが示された。なお、PMの濃度について、インパクターによる測定結果は40.865 mg/m^3 、スモークメータによる測定結果は38.2 mg/m^3 、となり、ほぼ同じ濃度が得られている。



図1.19 使用したディーゼル

このようなPM粒径分布を含む排ガスを本装置に導入し、350°CにおいてPM捕集・燃焼実験を行った。結果を図1.22に示す。実験は540 min間連続的に行ったが、捕集効率は100%を維持した状態であり、本装置の優れたPM捕集特性が示された。なお、ディーゼル排ガス中には多くのCO₂が含まれており、PMの燃焼に伴うCO₂増加量が誤差程度となるため、燃焼率については計測ができなかった。

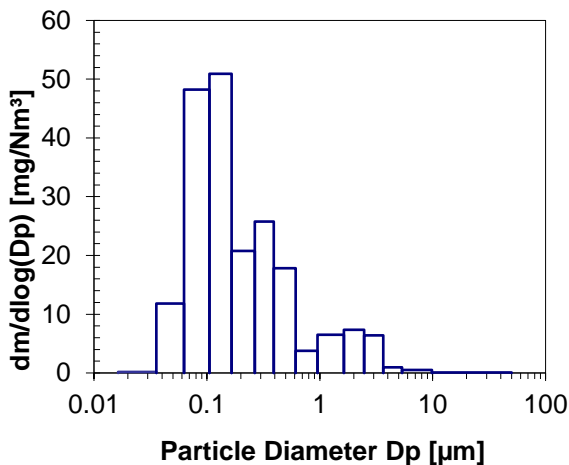


図1.20 PM粒径頻度分布

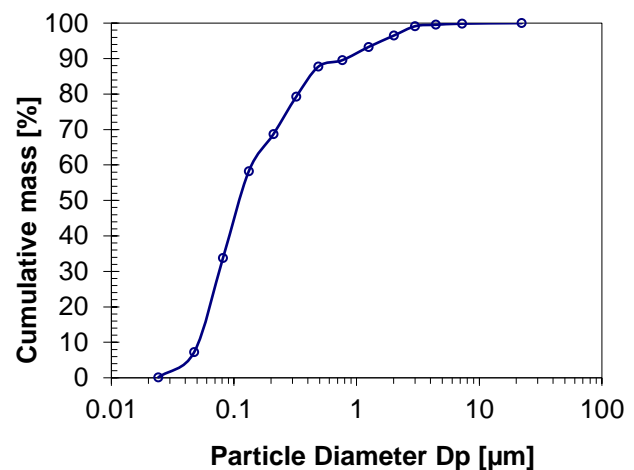


図1.21 PM粒径積算分布

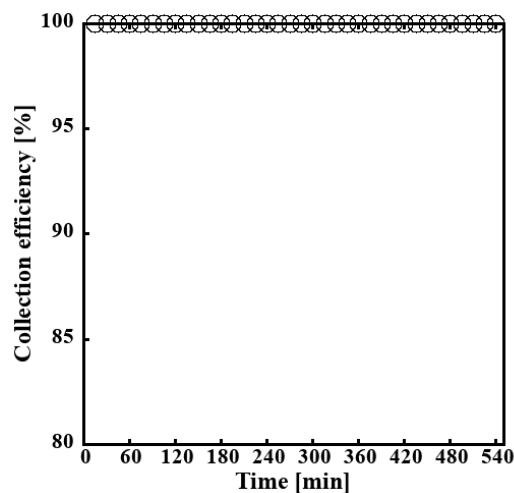


図1.22 ディーゼル排ガスを用いた350°Cにおける捕集効率

5-1.2 フィジビリティスタディ

(1) 従来の排ガス処理装置

ボイラ、焼却装置、発電機などの燃焼排ガスに含まれるばい塵を捕集する装置として、現在使用されているサイクロン、バグフィルタ、電気集塵機および本流動層集塵機の比較を表2.1に示す。バグフィルタは、ろ布を用いて排ガス中に含まれるばい塵を捕集する装置であり、数 μm 程度の粒子まで捕集可能であるが、ろ布の目詰まりによって交換等のメンテナンスが必要となる。電気集塵機は、ばい塵を帯電させて電極に集めることで排ガス中に含まれるばい塵を捕集する装置であり、数 μm 程度の粒子まで捕集可能であるが、運転には電力が必要である。バグフィルタや電気集塵機は数 μm 程度の粒子まで集塵可能であるが、 $\text{PM}_{2.5}$ のようなより小さい粒子の集塵は難しいことから、新しい方式の集塵機である流動層式の採用が望まれる。流動層式は従来の方式と全く異なり、流動層を応用して層内の流動物質に微小粒子を集塵するものである。従来のバグフィルタや電気集塵機では $\text{PM}_{2.5}$ をスルーして捕集できないが、本方式は微小粒子に働く力を利用して $1\mu\text{m}$ 以下のナノ粒子まで捕集可能な高性能集塵機であり、微小物質の飛散を完全に防止することが可能となる。従って、あらゆる処理方式の最終段にこの集塵機の使用が可能で、その最終集塵効率率は99.99%となる。流動層式はシステムがシンプルで運転のメンテナンスが非常に簡単、消耗品の耐久性が高く、運用コストが極めて廉価であるという特徴を有する。煤塵処理系では、発生源の種類により飛散する煤塵特性が異なりかつ性能も異なるので、一概にコストの比較は難しいが、一般的な安価の順は、サイクロン→マルチサイクロン→バグフィルタ→電気集塵機となる。そのうち、電気集塵機は運転のために電力を消費するので、他の集塵機と違いトータルコストはかなり高額となる。その他の費用として、集塵した煤塵（ダスト）の処理装置が必要で装置が大型化すると、ダスト処理装置のコストが集塵機本体並のものとなってくる。また脱硫や脱硝装置を設ける場合は、その汚泥や交換する触媒の費用がかかり、トータルコストはシステム構成および目標性能値などの仕様で決まっている。

表2.1 各集塵システムの概略比較表

集塵システム	サイクロン	バグフィルタ	電気集塵機	流動層集塵機
コスト	低価格	高価格	高価格	中価格
集塵効率	95 % 微粉の集塵不可	99.9 % ダストをほぼ集塵	99 % ダストをほぼ集塵	99.99% ダストをすべて集塵
圧力損失	中	高	低	低
ダイオキシン	高温集塵により抑制	集塵面で生成	少	極少
メンテナンス	内壁断熱材張替必要	バグフィルタ交換 逆洗必要	電力必要	若干の電力必要

表2.2に、 $\text{PM}_{2.5}$ 除去を目標に設定した本研究の流動層装置と各集塵装置との比較を示す。なお、本研究の流動層集塵機は300から400°C程度での運用を想定していることから、比較対象は同様に高温で運用可能かつ最新式の高温電気集塵機、高温バグフィルタとする。ここで、設備コストについては流動層集塵機を100とし、それに対する割合として示した。想定される仕様でのコストを含んだ経済計算の結果において、本研究の流動層集塵機と高温電気集塵機、高温バグフィルタの総合比較を行うと、各本体のコストの差は比較的小さい。しかし、最終目標である $\text{PM}_{2.5}$ の捕集を考慮すると、他の集塵機は現状技術レベルでは殆ど $\text{PM}_{2.5}$ の捕集が出来ず、本研究のみが $\text{PM}_{2.5}$ の捕集が可能であるという相違が圧倒的な結果となっている。高温電気集塵機はその特性上電荷をあげても捕集の限界があり、バグフィルタは濾布の構造に工夫をしたとしても集塵特性上目詰まりを避ける限界距離があるために、 $\text{PM}_{2.5}$ の捕集には上限がある。本研究の流動層集塵機は、他の方式と異なり流動層内で捕集かつ集塵された粒子が再燃焼するために、 $\text{PM}_{2.5}$ のスルーが極端に少なくなっている。これは $\text{PM}_{2.5}$ を除去する究極的な手法と考えられ、また他の方式とコストの差がさほど大きくないという結果を考えると、早急に実用化を図るべきと考えられる。

実用化時に問題となるスケールアップについては、技術的課題となる要素がなく容易に小型から大型まで同様の設計思想で実用化できる。

表2.2 流動層集塵機と各集塵機との比較

アイテム	高温電気集塵機	高温バグフィルタ	流動層式集塵機
仕様			
方式	高温コロナ放電	セラミック	流動層式
風量 m ³ N/h	1,200	1,200	1,200
使用温度 °C	400以下	400以下	400以下
入口含塵量 mg/m ³	30以下	30以下	30以下
出口含塵量 mg/m ³	10以下	10以下	0.1以下
集塵効率 %	99	99.9	99.99
出口PM _{2.5} 含塵量	1以下	1以下	0.01以下
圧力損失	低	高	低
設備コスト			
本体	110	120	100
運用費	110	130	100
償却及び諸税	110	120	100
メンテナンス費	90	110	100
建設費	130	120	100
装置条件			
据付制約	高さ方向	特になし	特になし
電源	常用	非常時	非常時
大型化	制約なし	制約なし	制約なし
ダスト処理	要	要	不要（層内燃焼）
ダスト処理コスト	大	大	不要
PM _{2.5} 除去率	50 %以下	80 %以下	99 %以下
総合評価	50	45	100

(2) 流動層集塵機の外形図

FSの標準設計値として表2.8の諸条件を採用し、流動層集塵機の外形図を図2.4～2.8のように設計した。この外形図を基に、製作図を作成した。製作図があれば、金属加工メーカーに依頼して、流動層集塵機を製作することができる。

表2.8 FSの標準設計値の諸条件

流動層空塔速度	0.4 m/s
流動層静止層高	100 mm
流動層温度	400°C
流動媒体平均径	0.42 mm
流動媒体	アルミナ粒子
装置仕様	
本体	鋼板製ボックス型
分散板	SUS316 多孔板 板厚1.0 mm以上

(3) 設計の要点

一般的に工場で使用される2.8 tクレーンで運搬可能なように、流動層集塵機の質量を2.8 t 以内の2.1 t で設計するとともに、一般的な輸送に使用される10 tトラックで運搬できるように、流動層集塵機の大き

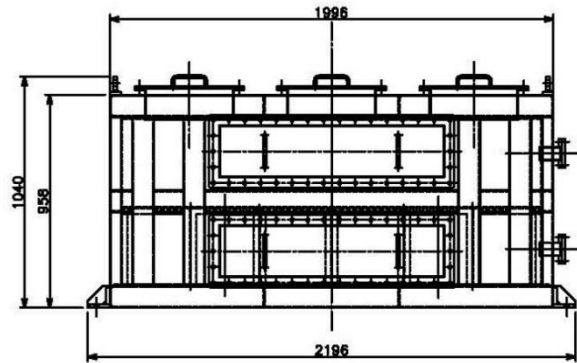


図2.4 流動層集塵機の正面（短辺）

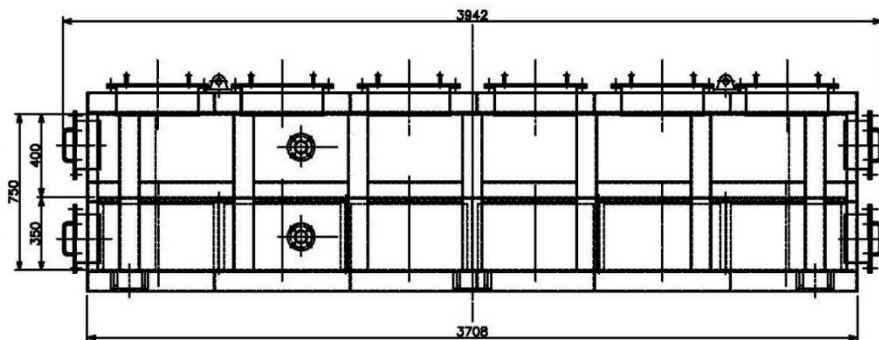


図2.5 流動層集塵機の側面図（長辺）

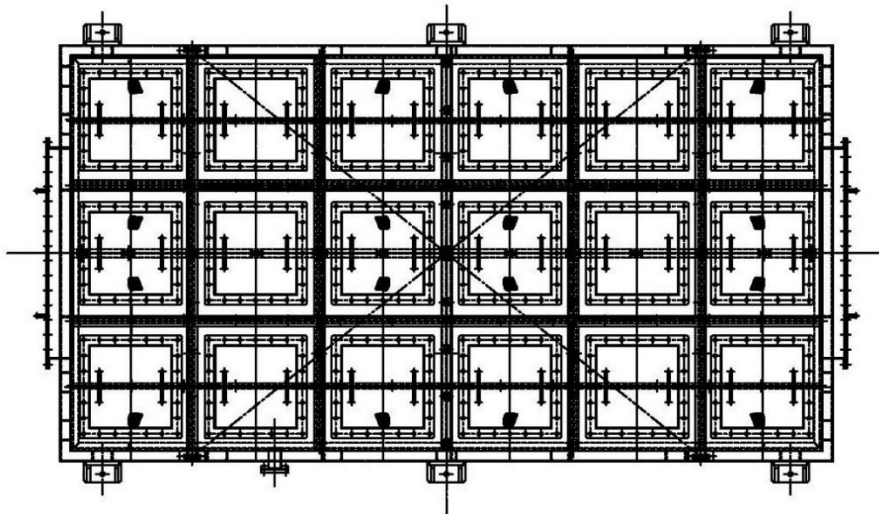


図2.6 流動層集塵機の平面図（上面）

さに注意した。10tトラックの荷台寸法は、W2340～2490 mm×L9500～10000 mmで、高さ制限は2500 mm程度である。流動層集塵機は、この寸法以下のW2196×L3942×H1040 mmで設計した。流動層集塵機の出入口フランジは水平方向に長い角形フランジとした。通常、プラントでは、排ガス管は円形であるため、円形フランジと角形フランジの接続管を製作する必要がある。排ガス管の仕様が判明すれば、接続管を設計することは可能である。また、耐熱温度が高く、面積が大きく、気密の取れるガスケットは入手が困難である。今回はドイツ製のノバフィットSSTC（耐熱温度550℃、長辺1120mm以下）を選定した。流動層集塵機は400℃以下で運用するため、装置自体も400℃近くまで加熱される場合があると考えられる。設置するプラントの換気風量、安全対策に応じて、断熱材は設計可能である。今回、流動層集塵機は耐熱温度の高いステンレス製で設計した。ステンレス製であれば、本体価格は鉄製と比較すると高額

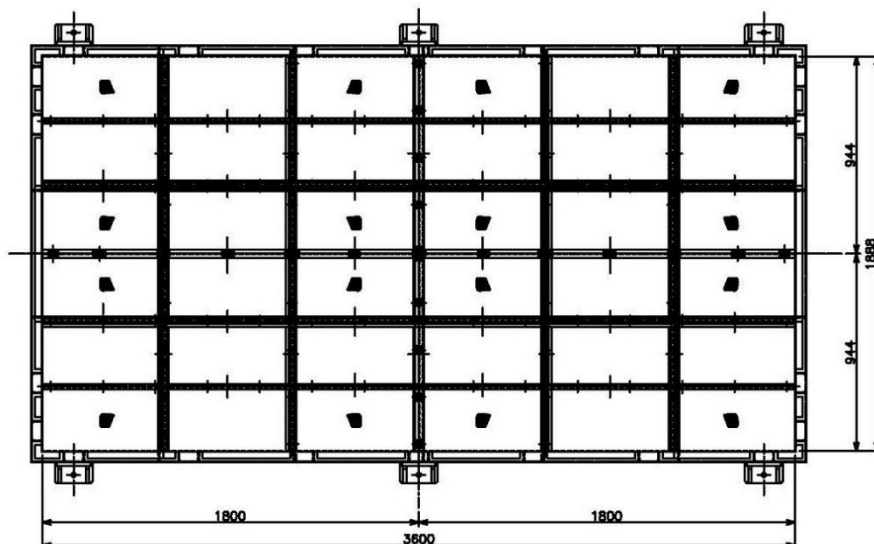


図2.7 流動層集塵機の平面図（分散板面）

であるが、耐熱塗装などが必要なく、塗装の手間とコストはかからない。経験上、ステンレス製のボルトは高温で使用すると噛み込んで回すことが困難となるため、流動層集塵機の本体はステンレス製であるが、あえてボルトは鉄製とした。また、鉄製でも強度の高い強度区分8.8のボルトを仕様することとした。流動媒体の交換などのために、流動層集塵機の上にはパネルで開放できるようになっている。パネルは人の力で開けられるように、8 kgまでの質量とした。流動媒体の交換のために、吸引器等で搬出できるように上部はほぼ全面が開放できる構造とした。流動層集塵機は長尺物のため、流動層集塵機の中央よりに吊耳を設置すると流動層集塵機は凸型に湾曲し、流動層集塵機の側面に近い側に設置すると流動層集塵機は凹型に湾曲する。これによって、内部の分散板が変形する恐れがある。装置の湾曲する方向が相殺するような位置に吊耳を設置し分散板の変形を抑える設計とした。

(4) 流動層集塵機のコストダウン

上記、流動層集塵機の価格は11,824千円と試算されたが、流動層集塵機のコストダウンを検討した。

(4)-1 耐圧設計のコストダウン

上記の設計では安全率を考慮して圧損を10kPaとして設計しているが、この圧損を5 kPaにし、流動層集塵機の本体の板厚を4 mmから3 mmに変更した場合のコストダウンの効果を試算した。

側板の強度について、圧力 p から最大の曲げ応力 σ_{max} を計算し、曲げに対する強度に問題はないこと、最大たわみ δ_{max} を計算し、最大たわみ δ_{max} は許容されるたわみ以下であることから、圧損が5 kPaとした場合、側板の板厚を3 mmにしても、側板の強度に問題はない。同様に底板および天板の強度について、圧力 p から最大の曲げ応力 σ_{max} を計算し、曲げに対する強度に問題はないこと、最大たわみ δ_{max} を計算し、最大たわみ δ_{max} は許容されるたわみ以下であることから、圧損が5 kPaとした場合、底板および天板の板厚を3 mmにしても、底板および天板の強度に問題はない。これらの計算により、流動層集塵機の内圧を昨年度の設計値10kPaから、5kPaに変更することで、本体板厚を4 mmから3 mmに変更しても強度に問題ないことが明らかとなった。本体板厚を4 mmから3 mmに変更した場合の重量変化は、側板は72 kg減少、底板は57 kg減少、サポートは19 kg減少、天板は37kg減少、上蓋は36 kg減少となる。なお、横蓋は長さが長いため、ひずみ防止のために板厚は4 mmのままとした。これらの重量減少分を合計すると合計で221 kgとなる。よって、総重量は、昨年度の設計では2100 kgとなっていたが、板厚を3 mmにすることで1880 kgに減量化することができる。本体板厚を4 mmの場合の流動層集塵機の価格は11,824千円（総質量2100kg）、板厚を3 mmにした場合の流動層集塵機の価格は10,960千円（総質量1880kg）となる。これらの結果から、コストダウンの効果は864千円となる。

(4)-2 耐熱設計および分散板取付け方法によるコストダウン

流動層温度を300°Cまで低下させることができれば材質をSUSからSSに変更できる可能性があるため、流動層集塵機の価格は大幅に削減することができる。また、分散板の本体への取付けを溶接からネジ止めに変更できれば、流動層集塵機の価格を大幅に低減することができる。上記の設計では、分散板は本体に溶接取付けで、本体および分板の材質をSUSとした場合の流動層集塵機の価格は、ガスケット、ボルト、ナット類含み、本体価格（SUS304）9,384千円、分散板（SUS316）2,440千円となり、流動層集塵機価格は11,824千円となる。本体の材質をSUSからSSに変更し取付け方法をビス止めにした場合の流動層集塵機の価格は本体（SS400）5,265千円、分散板（SUS316）2,440千円となり、流動層集塵機価格は7,705千円となる。上記の設計では、流動層集塵機の価格は11,824千円、耐熱設計と取付け方法を変更した場合の価格は7,705千円となる。この計算結果から、コストダウンの効果は4,119千円となる。

(4)-3 分散板の穴径変更によるコストダウン

分散板の穴径は、アルミナ粒子より大きい径であっても、運用時は排ガス等の流体が穴を流れているため、アルミナ粒子が穴から流下することはほとんどない。そこで、流動層集塵機に使用する分散板の開孔率を1.6%のまま、穴径を0.3 mmから0.6 mmに変更し、穴の数を減少させた場合のコストダウンを検討する。穴径を0.3 mmから0.6 mmに変更すると、穴一つあたりの面積は4倍となる。そのため、同じ開孔率の分散板を製作する場合、穴の数を4分の1にすることができる。分散板の製作にかかる時間を約4分の1にすることができるため、コストダウンが可能となる。製作メーカーに見積を依頼したところ、穴径0.3 mmのレーザ加工の場合は2,440千円、穴径0.6 mmのレーザ加工の場合は2,208千円となり、使用する分散板の価格を232千円コストダウンが可能である。

(5) 流動層集塵機の運用方法

大型ディーゼル発電機で発電する発電所での流動層集塵機の運用を検討した結果、流動層集塵機の動作温度、圧力を確保するためには、なるべく発電機に近い位置に流動層集塵機を設置する必要があると考えられる。また、13MWの発電機に流動層集塵機を使用する場合、今回、設計した仕様では、8台の流動層集塵機が必要な計算となった。廃棄物処分場での流動層集塵機の運用を検討した結果、燃焼室からの排ガスも発電所と同様に300°C程度に低下している可能性がある。発電所と同様に、流動層集塵機をなるべく燃焼室に近い位置に設置する必要がある。また、排ガス流量が10,000 m³N/hの廃棄物処分場では、流動層集塵機は5台必要な計算となった。加えて、廃棄物処分という条件を考慮すると、今回の流動層集塵機の動作温度はダイオキシンの生成温度帯となるため、ダイオキシンの分解能力を調査する必要があると考えられる。

5-2. 環境政策等への貢献

<行政等が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政等が活用することが見込まれる成果>

現在、集塵装置として使用されているのは、フィルタ法によるバグフィルタやDPF、静電気を利用した電気集塵機である。しかし、PM_{2.5}はバグフィルタやDPFの気孔径よりも小さく気孔をすり抜け、電気集塵機ではPM_{2.5}が小さく帯電性能が悪くなるため、各種集塵装置においてPM_{2.5}の捕集性能は低下している。したがって、従来法によりPM_{2.5}を高効率捕集するためには、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、新たな手法の開発が必要である。一方、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、粒子間にファンデルワールス力等の付着力が働き、粒子径が小さいほどこれらの力が支配的になることが知られている。研究代表者らは、この粒子間付着力を利用してPMを捕集するため、緩やかな流動層をPM除去装置として適用した。

流動層内の粒子は、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、PMが流動媒体に接近すると粒子間に働く付着力によりPMがベッド粒子に付着する。粒子間付着力は粒径が小さいほど支配的になることから、本法によりPM_{2.5}の高効率捕集に成功した。また、燃焼器から排出されるPMは大半がすす等の可燃成分であるため、PMを捕集すると同時に燃焼処理を行う連続再生式としての運用が可能である。現在、連続再生式として用いられているDPFでは、PMの燃焼に600°C程度の熱を外部からエネルギーを供給する必要があるが、本流動層式PM_{2.5}除去装置では、流動層の低温燃焼機関としての特性、ミネラル分の触媒効果、水蒸気の低温燃焼促進効果を利用してPMの燃焼速度を向上させ、排熱で運用可能な高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発した。

5-3. 研究目標の達成状況

研究代表者らは、流動層を用いた高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発し、既往の研究において、粒子間付着力によるPMの高効率捕集と流動層の低温燃焼特性によるPMの燃焼温度低減により、本連続再生式装置が400°Cで運用可能であることを示してきた。サブテーマ（1）では、さらに連続再生温度を低減し、排熱で運用可能な装置を開発するため、水蒸気の燃焼促進効果とミネラル分の触媒効果を利用した。水蒸気の利用においては、水蒸気の有無による比較を行い、その反応特性を解明するとともに、連続再生温度を20°C低減させた。ミネラル分の利用においては、カリウムを流動媒体に触媒担持して実験を実施し、カリウムによるPMの反応特性を解明するとともに、連続再生温度を50°C低減させた。また、水蒸気とミネラル分の相乗効果を目的としてこれらを同時利用した結果、連続再生温度は330°Cとなった。さらに連続再生温度を低減させるため、よりミネラル分の担持量を増やせる流動媒体を用いて実験を実施した。その結果、既存の装置ではPMの燃焼に600°C程度の熱を外部から加える必要があるが、本装置では流動層の低温燃焼特性、水蒸気の燃焼促進効果、ミネラル分の触媒効果により、300°Cにおいて連続再生が可能であることを示した。また、実用化に向けてスケールアップデータを取得するため、実験装置の直径を80.7 mmから190.9 mmにスケールアップして実験を行い、本装置の優れたスケールアップ特性が示された。これらの結果を基礎として、本装置をディーゼル排ガスに適用した結果、540分間連続的に排ガスを供給した場合においても100%の捕集効率を維持した。サブテーマ（2）では、本研究システムと既存システムとの比較から、本システムのほうがPM_{2.5}の捕集効率が高いこと、既存システムではPMの燃焼に600°C程度の熱が必要であるが、本システムであれば連続再生温度が300°C程度で実行可能であることから、本システムの優位性を示した。一方、イニシャルコストおよびランニングコストについて、既存システムのデータを取得することはできなかったが、本システムで使用する流動層は装置形状が簡単であることから、分散板のコストが多少かかるものの既存システムよりもイニシャルコストが高くなることは考えにくい。さらに連続再生を実施する際のランニングコストについても、既存システムでは600°C程度の熱を外部から加える必要があるが、本システムであれば排熱程度で運用可能であることから、低く抑えられると考えられる。以上のように、サブテーマ（1）では本装置が排熱温度程度である300°Cにおいて連続再生が可能であることを示すとともに、実用化を踏まえたスケールアップ試験およびディーゼル排ガスを用いた実証試験を実施した。また、サブテーマ（2）では、運搬や設置を考慮した詳細な製作図を設計するとともに、コスト削減への道筋を示したことから、本研究の目標はある程度達成したと考えている。

6. 研究成果の発表状況

6-1. 査読付き論文

<件数>

8 件

<主な査読付き論文>

1) K. YOKOO, H. MATSUNE, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, T. YAMAMOTO: Powder Technology,

- 355, 657-666 (2019) (IF : 5.134)
Promoting effect of water vapor on particle matter combustion in a low-temperature continuous regeneration type PM removal device using a fluidized bed.
- 2) K. YOKOO, H. MATSUNE, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, T. YAMAMOTO: Advanced Powder Technology, 31, 718-729 (2020) (IF : 4.833)
Kinetic modeling of PM combustion with relative velocity at low-temperature and numerical simulation of continuous regenerating type PM removal device that uses a fluidized bed.
- 3) K. YOKOO, A. KUSU, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, T. YAMAMOTO: Chemical Engineering Journal, 388, 124247 (2020) (IF : 13.273)
PM combustion enhancement to reduce continuous regeneration temperature of fluidized bed type PM removal device using catalyst-doped bed particle.
- 4) K. YOKOO, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Mechanical Engineering Letters, 6, 20-00444 (2021) (IF : -)
Parallelization of DEM simulation on distributed-memory computer via three-dimensional slice grid method.
- 5) K. YOKOO, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Powder Technology, 380, 506-517 (2021) (IF : 5.134)
Numerical investigation of PM filtration in fluidized-bed-type PM removal device based on force balance via CFD-DEM simulation.
- 6) K. YOKOO, A. WAKIZAKA, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Advanced Powder Technology, 32, 151-165 (2021) (IF : 4.833)
Experimental and numerical investigation of catalytic PM combustion in a fluidized bed type PM removal device for low-temperature continuous regeneration.
- 7) K. YOKOO, T. YAMAZAKI, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Advanced Powder Technology, 33, 103508 (2022) (IF : 4.833)
Increase in processing flue gas flow rate while maintaining the fluidization state and filtration performance in a low-temperature continuous regeneration filter using a fluidized bed.
- 8) K. YOKOO, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Powder Technology, 402, 117336 (2022) (IF : 5.134)
CFD-IBM-DEM simulation for elucidation of PM filtration mechanisms in fluidized bed filter.

6-2. 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	8 件
その他誌上発表（査読なし）	0 件
口頭発表（学会等）	16 件
「国民との科学・技術対話」の実施	0 件
マスコミ等への公表・報道等	0 件
本研究に関連する受賞	0 件

7. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

8. 研究者略歴

研究代表者

山本 剛

名古屋大学大学院工学研究科修了，博士（工学），現在，九州大学大学院工学研究院准教授

研究分担者

1) 岸田 昌浩

京都大学大学院工学研究科修了，博士（工学），現在，九州大学大学院工学研究院教授

2) 田中 良

名古屋大学大学院工学研究科修了，博士（工学），現在，愛知電機株式会社電力カンパニーシステム開発センター新エネ開発グループ主任

2) 山田 直人

名古屋工業大学工学部第二部機械工学科卒業，学士（工学），現在，愛知電機株式会社電力カンパニーシステム開発センター新エネ開発グループ主任

II. 成果の詳細

II-1 ミネラル分と水蒸気によるPM燃焼反応の促進と再生温度の低温下に関する研究

国立大学法人九州大学

工学研究院 化学工学部門
工学研究院 化学工学部門

山本 剛
岸田 昌浩

[要旨]

粒子状物質(Particulate Matter; 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微小化し、粒径 $2.5\ \mu\text{m}$ 以下のPM_{2.5}が増加している。PMは粒径が小さいほど呼吸時に気管を通り抜け、気管支や肺の奥深くに入り込むため、呼吸器系疾患、循環器系疾患、肺ガンの原因物質とされ、世界中で毎年数百万の人々が早死にしている。現在、PMの除去にはバグフィルタ、電気集塵機、DPF等が用いられているが、微小径のPMを高効率捕集することは難しい。そこで研究代表者らは、粒子間付着力を利用して微小径のPMを高効率捕集するため、緩やかな流動層を適用し、PM_{2.5}の高効率捕集を達成した。さらに、燃焼器から排出されるPMは多くの可燃分を含むこと、流動層は低温燃焼器として知られていることから、PMの捕集と燃焼処理を同時に行う連続再生式の運用を試みた。その結果、既存の方法ではPMの燃焼に 600°C 程度の熱を外部から加える必要であるが、本法では流動層の低温燃焼特性により 400°C において連続再生を達成した。本研究では、連続再生温度をさらに低減し、排熱で運用可能な装置を開発するため、水蒸気の燃焼促進効果およびミネラル分の触媒効果を用いた実験を実施した。

水蒸気が無い場合、PMはCOを生成する反応が優勢であるが、水蒸気存在下ではCO₂を生成する反応が優勢となる。これは、PM表面にカルボキシル基等が生成されて選択的にCO₂となり、それと同時にCOの酸化作用を持つOHが生じるためと考えられる。これらの効果によりPMの燃焼反応が促進され、連続再生温度が 400°C から 20°C 低減された。一方、ミネラル分としてカリウムを流動媒体に触媒担持した場合も、水蒸気を添加した場合と同様にCO₂を生成する反応が優勢となった。これは、流動媒体上のカリウムが周期的にK₂CO₃、K₂O、K₂O₂に変換しながらCO₂を排出する反応が起こったためであると考えられる。このカリウムの効果により、連続再生温度は 400°C から 50°C 低減された。また、水蒸気とミネラル分の相乗効果を目的としてこれらを同時利用した結果、連続再生温度は 330°C まで低減した。ここまでの結果から、さらに連続再生温度を低減させるためには、ミネラル分の担持量を増加することが有効であると判断し、より担持量が増やせる流動媒体を用いて実験を実施した。その結果、既存の装置ではPMの燃焼に 600°C 程度の熱を外部から加える必要があるが、本装置では流動層の低温燃焼特性、水蒸気の燃焼促進効果、ミネラル分の触媒効果により、 300°C において連続再生が可能であることを示した。さらに実用化を踏まえ、実験装置の直径を $80.7\ \text{mm}$ から $190.9\ \text{mm}$ にスケールアップして実験を行った。その結果、スケールアップによるデータの相違はなく、本装置の優れたスケールアップ特性が示された。以上の結果を基礎として、本装置をディーゼルに適用した結果、540分間連続的に排ガスを供給した場合においても100%の捕集効率を維持した。以上のように、本研究成果により、本装置が排熱温度程度である 300°C において連続再生が可能であることを示すとともに、スケールアップデータの取得およびディーゼルを用いた実証試験を実施していることから、研究目標はおおよそ達成したと考えている。

1. 研究開発目的

粒子状物質 (Particulate matter; 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低下するため、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く、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。

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、粒子間にファンデルワールス力、液架橋力、静電気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。そこで研究代表者らは、粒子間付着力を利用して $\text{PM}_{2.5}$ を高効率捕集するため、PM除去装置として緩やかな流動層を適用した。その結果、図1.1に示すように、PM粒径 $0.2\mu\text{m}$ 、 $0.5\mu\text{m}$ 、 $2.25\mu\text{m}$ 、各PM濃度 $45\text{mg}/\text{m}^3$ 、 $40\text{mg}/\text{m}^3$ 、 $30\text{mg}/\text{m}^3$ 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^{1,2)}。これらの結果から、本法が $\text{PM}_{2.5}$ に対して有効な捕集手段となり得ることが示された。なお、一般的なバスやトラックの排ガスに含まれるPMの濃度は $30\text{mg}/\text{m}^3$ 程度である。

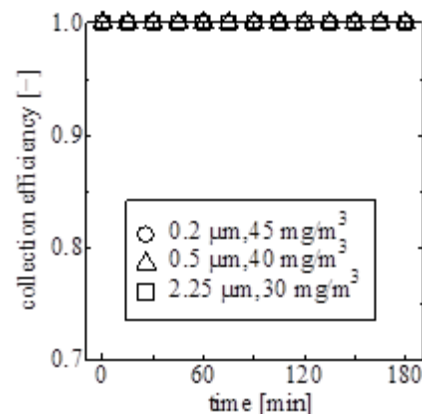


図1.1 $\text{PM}_{2.5}$ の捕集効率

流動層を用いたPM除去装置における捕集では、PMが時間経過とともに流動媒体表面に付着し堆積していくが、付着したPMを燃焼処理し流動媒体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。化石燃料の燃焼に伴い排出されるPMは、主に微小



図1.2 PM捕集後の流動媒体

径のすすであり、大半が可燃分である。一般に、すす等のPMを燃焼処理するためには 600°C 程度の熱を外部から加える必要があるが、流動層は低温燃焼機関として知られ、より低温においてPMの燃焼処理が可能である。そこで研究代表者らは、PMの捕集と燃焼処理を同時に行う連続再生式について、本法の運用温度の探索を行った。連続再生式として運用するためには、“PM燃焼速度>PM付着速度”という条件での運転が必要であるが、本法では流動層の低温燃焼特性により 400°C において連続再生運転が可能となり³⁾ (図1.2参照)、従来技術よりも大幅に低温化された。

流動層を用いた連続再生式 $\text{PM}_{2.5}$ 除去装置では、PMを流動媒体に付着することで捕集し、さらに流動媒体上でPMを燃焼処理することで連続再生式の運用を行う。上述の通り、本法では 400°C で連続再生運転を可能としたが、この温度を 300°C に下げることができれば排ガスの熱で処理可能となる。そこで本研究では、流動層の低温燃焼機関としての特性、ミネラル分および水蒸気の低温燃焼促進効果を利用してPMの燃焼速度を向上させ、排熱で運用可能な高効率連続再生式 $\text{PM}_{2.5}$ 除去装置の開発を目指す。

2. 研究目標

石炭科学の分野において、カーボンを燃焼促進物質であるミネラル分と接触させて燃焼することで、燃焼温度が 150°C 程度低下することが報告されている。また燃焼排ガスに含まれる水蒸気は、酸素と同様に酸化剤として作用することが知られ、その効果は低温域ほど大きい。そこで本研究では、ミネラル分を流動媒体に触媒担持し、PMとミネラル分を接触させながら燃焼することで、PMの燃焼を促進させ燃焼温度の低温化を図る。また、排ガス中の水蒸気の影響について調査し、水蒸気の酸化特性によりPMの燃焼速度を向上させる。さらに、ミネラル分と水蒸気を同時に考慮することでPMの燃焼反応を相乗的に

向上させ、排熱で運用可能な高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発する。以上のようにして開発した装置の最適化後、ディーゼル発電機等を用いて実証試験を実施し、本法の性能評価を行う。

3. 研究開発内容

本研究では、排熱で運用可能な高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発し、装置の最適化およびスケールアップを行う。研究代表者らは、粒子間付着力(Fig.1.3)を利用することで、既存のPM除去装置では高効率捕集できないPM_{2.5}の高効率捕集に成功した。さらに、流動層の低温燃焼特性を活かすことで、既存の装置では600℃の熱が必要であった連続再生温度を、400℃にまで低下することに成功した。本研究では、ミネラル分と排ガスに含まれる水蒸気がPM燃焼反応に及ぼす影響を詳細に調べ、ミネラル分の燃焼促進特性および水蒸気の酸化特性によりPMの燃焼速度を向上させる。またミネラル分と水分を同時に適用し、その相乗効果によりPMの燃焼速度をさらに向上させ、排熱で運用可能な連続再生式PM除去装置の開発を目指す。次に、本法の最適化およびスケールアップを行い、ラボスケールデータとの比較からデータの同一性や相似性について検討を行う。

PMの付着・燃焼挙動における水蒸気およびミネラル分の影響を調べる。ミネラル分について、既往の研究ではカーボンに直接、ミネラル分を担持して実験を行っているが、本法の場合は流動媒体にミネラル分を触媒担持することが望ましい。はじめに、流動媒体として焼結アルミナを用い、そこに担持するミネラル分の最適量を決定するための実験を行う。ミネラル分としてカリウムを適用し、担持量を変化させて実験を行うことにより、最もPMの燃焼を促進するミネラル分と担持量を決定する。次に、PMとしてカーボンブラックを、流動媒体として焼結アルミナ粒子あるいは上記で決定したミネラル分担持焼結アルミナ粒子を用い、水蒸気濃度、流動層温度、空塔速度をパラメーターとして付着・燃焼実験を行う。なお、カーボンブラックはふるいにより3つの粒径に分類し、PMの粒径依存性についても検証する。測定はスモークメータにより黒煙濃度を、ガラスファイバー製フィルタを用いた重量法により粒子濃度を測定する。また、PM燃焼率の測定およびカーボンバランスの確認をするため、フーリエ変換赤外分光光度計(FTIR)によりppmオーダーの生成ガス組成(CO, CO₂)を測定する。以上の結果から、PMの燃焼温度をどの程度下げることができるのかを明らかにする。また、これらの研究を踏まえ、ミネラル分と水分の相乗効果により本装置のさらなる再生温度の低下を目指す。上記の実験結果から、本項の実験の最適条件について検討し、その条件を中心に実験を実施するとともに、最適なミネラル分およびその担持量や空塔速度についても、上記の結果から条件を絞り込んで実験を実施する。以上の結果から、PM燃焼速度およびPM捕集効率における水分とミネラル分の相乗効果について検討するとともに、本装置の最適化を行い排熱で運用可能な高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発する。上記の実験で使用する装置は、直径80mm程度のラボスケールサイズである。本項では、実用化を踏まえて実験装置の直径を200mm程度にスケールアップし、この装置において最適化を行うとともに、スケールアップデータを取得する。これらの結果をラボスケールデータと比較し、データの同一性や相似性について検討を行うことで実用化の際の装置について検証する。さらに、以上のようにして開発した装置の最適化後、ディーゼルを用いて実証試験を実施し、本法の性能評価を行う。

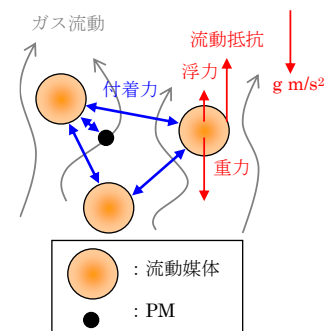


Fig.1.3 流動層内の力学系

4. 結果及び考察

4.1 水蒸気の影響

研究代表者らが開発してきたPM_{2.5}除去装置は、粒子間付着力を利用してPM_{2.5}を高効率捕集するために緩やかな流動層を適用している。本法では、PMを流動媒体表面に付着して捕集を行うが、連続的に長時間捕集を続けるとPMが流動媒体表面に堆積し、PMが付着する場所が少なくなること、PMが凝集し流動媒体から剥がれやすくなること等から捕集効率が低下する。そこで、PMを捕集すると同時に流動媒体表面において燃焼処理を行い、“PM燃焼速度>PM付着速度”という条件を達成することで、連続再生式としての運用を可能とした。従来の装置では、PMを燃焼させるために外部から600℃程度の熱を加える

必要があるが、本法では流動層の低温燃焼特性を利用することで連続再生温度は 400°C となった。連続再生温度をさらに低下させて排熱のみで運用するためには、PMの燃焼速度を促進することが有効な手段となる。本項では、燃焼排ガスに含まれ燃焼促進効果を有する水蒸気を添加し、その影響について調査した。図1.4にPM粒径 $100\text{-}125\ \mu\text{m}$ 、PM投入濃度 $100\ \text{mg}/\text{m}^3$ 、水蒸気濃度 $0\text{-}15\ \text{vol.}\%$ 、粒子層温度 $250\text{-}400^{\circ}\text{C}$ 、空塔速度 $0.4\ \text{m}/\text{s}$ の捕集効率の経時変化を示す。比較のために、水蒸気を添加しない条件における結果と、常温における捕集効率を合わせて示す。一般に、バスやトラックなどの排気ガスのPM濃度は $30\ \text{mg}/\text{m}^3$ 程度であり、 $100\ \text{mg}/\text{m}^3$ というPMの濃度は極めて高い濃度である。本実験においては燃焼の効果を明瞭にするために、このような極めて高濃度の条件の元で実験を行った。図より、全ての条件で捕集効率は時間経過とともに減少した。本装置において、PMは流動媒体に付着・堆積することで捕集されるため、連続的にPMを捕集するとPMの堆積量は次第に増加し、流動媒体表面においてPMの凝集体が形成される。流動層内において、PMに働く力は付着力と分離力に大別され、それぞれPMの粒径と体積に比例することから、凝集体が形成されて成長すると、流動抵抗等の分離力が次第に大きくなっていき、PMは流動媒体から剥離しやすくなる。また、流動媒体表面がPMで覆われていくと、新たにPMが付着する場所が少なくなるため、捕集効率が減少したと考えられる。流動層はその攪拌混合特性から低温燃焼器として知られ、またPMの構成成分は大半が可燃物であることから、流動媒体表面に堆積したPMを低温で燃焼処理することが可能である。水蒸気 $0\ \text{vol.}\%$ の場合、捕集効率は 300°C 以上において常温よりも高い値を示し、その値は温度上昇とともに増加した。これは 300°C 以上の条件において、PMの燃焼に伴い流動媒体表面のPM堆積量が減少し、PMの剥離が抑制されたこと、新たなPMが付着しやすいことが原因である。一方、 250°C の場合、温度が低いいため燃焼反応はほとんど生じず、捕集効率の上昇は確認されなかった。

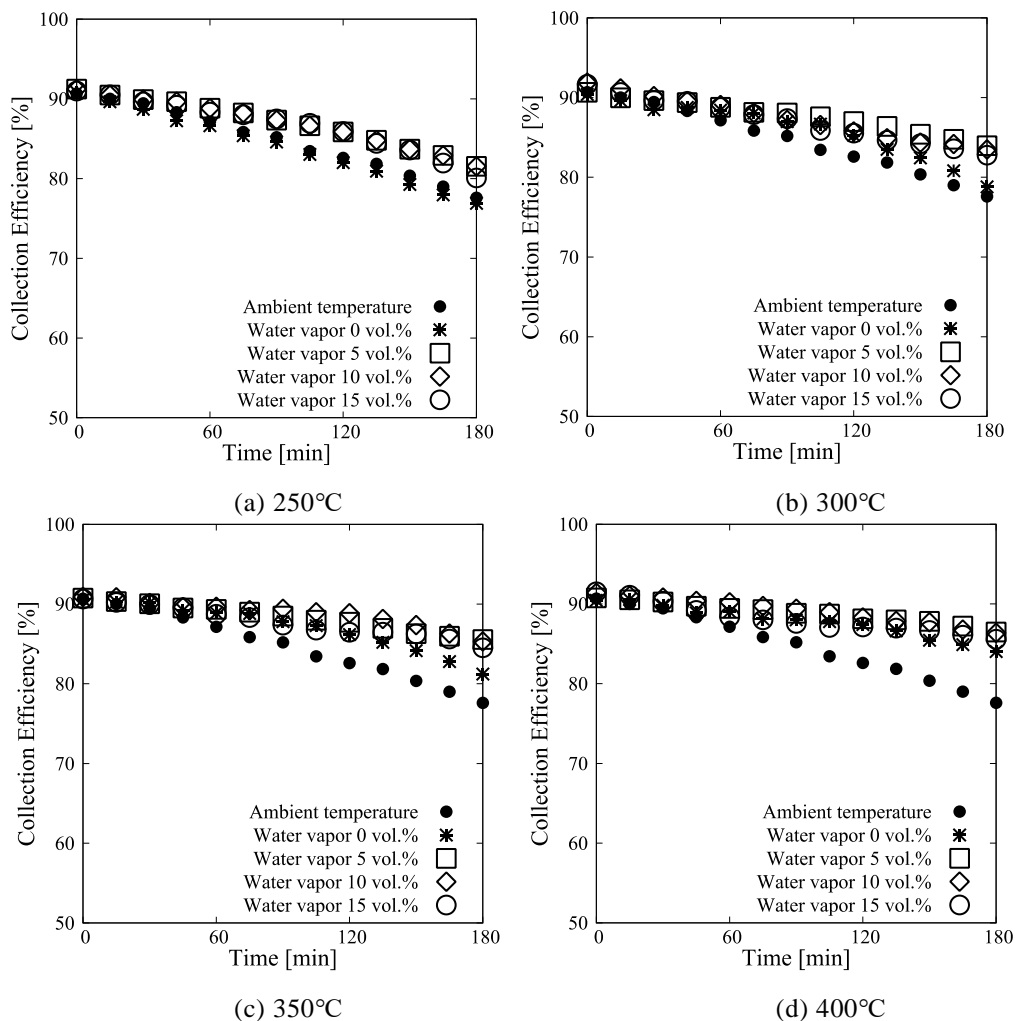
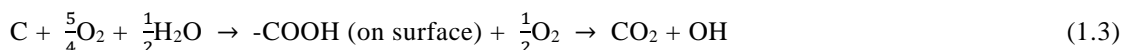


図1.4 捕集効率の経時変化における水蒸気の影響

(PM粒径 $100\text{-}125\ \mu\text{m}$ 、PM濃度 $100\ \text{mg}/\text{m}^3$ 、水蒸気濃度 $0\text{-}15\ \text{vol.}\%$ 、温度 $250\text{-}400^{\circ}\text{C}$ 、空塔速度 $0.4\ \text{m}/\text{s}$)

水蒸気5-15 vol.%の場合、250°Cを含む全ての条件で捕集効率が上昇し、PMの燃焼促進効果が確認された。水蒸気による燃焼促進効果について、各温度でPM捕集効率の上昇幅を比較すると、低温域において水蒸気の燃焼促進効果が比較的大きく、捕集効率の上昇が顕著であった。特に、水蒸気0 vol.%の場合には捕集効率に対する燃焼促進効果が確認されなかった250°Cの条件においても、捕集効率の上昇が確認された。また水蒸気添加量について、水蒸気5および10 vol.%の場合が最も捕集効率が高く、15 vol.%の場合は捕集効率が微減していることが確認された。本実験では、水蒸気を空気とともに供給しているが、水蒸気と空気の総量を一定に保つようにしているため、高い水蒸気濃度の条件ほど供給酸素濃度は低下する。したがって、水蒸気は燃焼促進効果を有するが、それと同時に酸素濃度の低下により燃焼反応の抑制も生じた。ある一定量を超えて水蒸気が添加されると、酸素濃度の低下に起因する燃焼反応の抑制効果が上回るため、水蒸気量が多くなると捕集効率が低下したと考えられる。

水蒸気のPM燃焼促進効果をさらに詳細に検討するため、FT-IRを用いて排ガス分析を実施した。空塔速度0.4 m/s, PM粒径100-125 μm, PM濃度100 mg/m³, 水蒸気濃度0, 10 vol.%, 粒子層温度250, 400°Cにおける180分目の測定結果を図1.5に示す。250°Cの場合、水蒸気0 vol.%ではCOおよびCO₂ともにほとんど生成が確認されなかった。一方、水蒸気10 vol.%ではCOはほとんど検出されなかったが、CO₂は57 ppm検出され、250°Cでも水蒸気の添加により燃焼反応が促進されることが示された。400°Cの場合、水蒸気の有無によらずCO, CO₂の生成が確認され、どちらの条件においても燃焼反応が生じていることが確認された。水蒸気を添加することで主にCO₂濃度が増加し、それに伴ってCO, CO₂の総量も増加しているため、水蒸気の添加により燃焼が促進されることが示された。さらに、この原因について考察するため、系内の反応機構について議論する。一般に、すす等のPMと水蒸気を含む空気との燃焼反応では、O₂, H₂Oが酸化剤となる。この反応は、酸化剤がPM表面に化学吸着することで化合物を形成した後、炭素原子を伴って脱離するという二段階の反応であることが知られおり、以下の(1.1) - (1.6)式により記述される。ただし、本研究ではPMとしてカーボンブラックを用いているため、以下の反応式においてPMをCと記載する。またPMの酸化反応において、単にO₂との反応を考える場合には式(1.1), (1.2)のみでよい。



粒子層温度400°C, 水蒸気0 vol.%では、CO およびCO₂ がそれぞれ121 ppm, 94 ppm生成し、CO のほうがやや多かった。炭素とO₂の直接反応は、炭素の表面上に酸素分子が吸着しC(O₂)を形成後、CO₂ として脱離する場合 ((1.1)式)、分離した酸素分子が吸着しC(O)を形成後、CO として脱離する場合 ((1.2)式)、またC(O)を形成後、炭素表面で酸素原子が移動しCO₂ として脱離する場合 ((1.1)式) の 3 通りの経路で進むと言われている。本反応においては、上記の 2 通りの反応経路を持つ(1.1)式の反応よりも(1.2)式の反応のほうが優勢であった。しかし、水蒸気存在下の反応を検討する際には、新たに(1.3)-(1.6)式も検討しなければならない。粒子層温度400°Cにおいて水蒸気を添加すると、COおよびCO₂はそれぞれ157 ppm, 224 ppmとなり、CO濃度よりもCO₂濃度のほうが大幅に増加した。水蒸気存在下では、数百度という低温においても(1.3)式の反応によりカルボキシル基等が生成され、水蒸気濃度とともに増加することが報告されている。カルボキシル基は100 - 400°Cの範囲で選択的にCO₂となり、それと同時にCOの酸化作用を持つOHが生じる。250 - 400°Cにおいても水蒸気によりPM燃焼反応が促進されていることから、(1.3)式が水蒸気によるPM燃焼促進の主な反応経路であると考えられる。さらに、(1.4)式により生成したOHがCOを酸化し、CO₂となることでCOが減少したと考えられる。(1.5)式は水性ガスシフト反応として知られ、低温かつ水蒸気存在下においてCOを酸化する反応である。この反応は250 - 400°Cの温

度範囲では可逆的であるが、 H_2 等の生成物よりも水蒸気濃度のほうが高いため、平衡が右に傾きCOが CO_2 に酸化される。(1.6)式は主に $800^\circ C$ 以上の高温で生じる反応として知られていることから、本反応では無視できる。

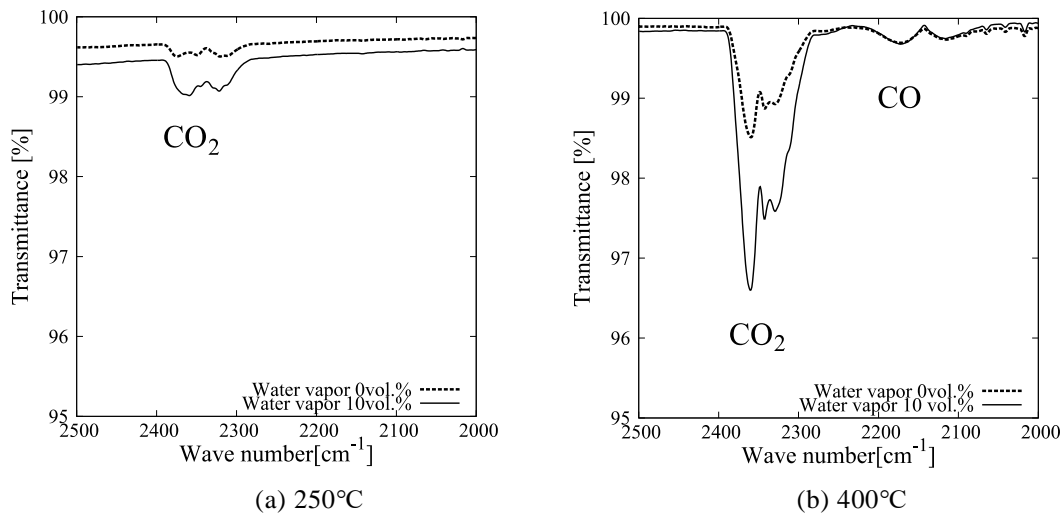


図1.5 FT-IR分析結果

(PM粒径 $100-125\ \mu m$, PM濃度 $100\ mg/m^3$, 水蒸気濃度 $0, 10\ vol.\%$, 空塔速度 $0.4\ m/s$, 時間 $180\ 分$)

連続再生装置の運転条件として望まれるのは、高捕集効率、高燃焼率、低再生温度である。研究代表者らが開発した装置は、捕集効率 100% を維持しながら、PMの捕集と燃焼処理を同時に行う連続再生式としての運用を $400^\circ C$ で可能とした。水蒸気を添加することでPMの燃焼反応がさらに促進されることから、連続再生温度の低下が見込める。そこで水蒸気による低温化（連続再生温度）について調査するため、PM粒径 $20\ \mu m$ 以下、PM濃度 $30\ mg/m^3$ 、水蒸気濃度 $10\ vol.\%$ 、空塔速度 $0.4\ m/s$ 、粒子層温度 $380^\circ C$ において、捕集効率と燃焼率の測定を行った。結果を図1.6に示す。なお、PMはふるいにより分級しているが、市販されているふるいの中で最も目の細かいものが $20\ \mu m$ であるため、本実験はPM粒径 $20\ \mu m$ 以下で行った。また、PM濃度 $30\ mg/m^3$ は一般的なバスやトラックの排ガスに含まれるPM濃度程度である。図より、 240 分間連続的にPMを供給しているにも関わらず、捕集効率は 100% を維持している。燃焼率について、PMの燃焼速度はあまり早くないため、実験開始時の燃焼率は 20% 程度である。流動媒体表面に付着したPMは燃焼によりすぐに CO 、 CO_2 として除去されるわけではなく、PMの一部が燃えその残りが

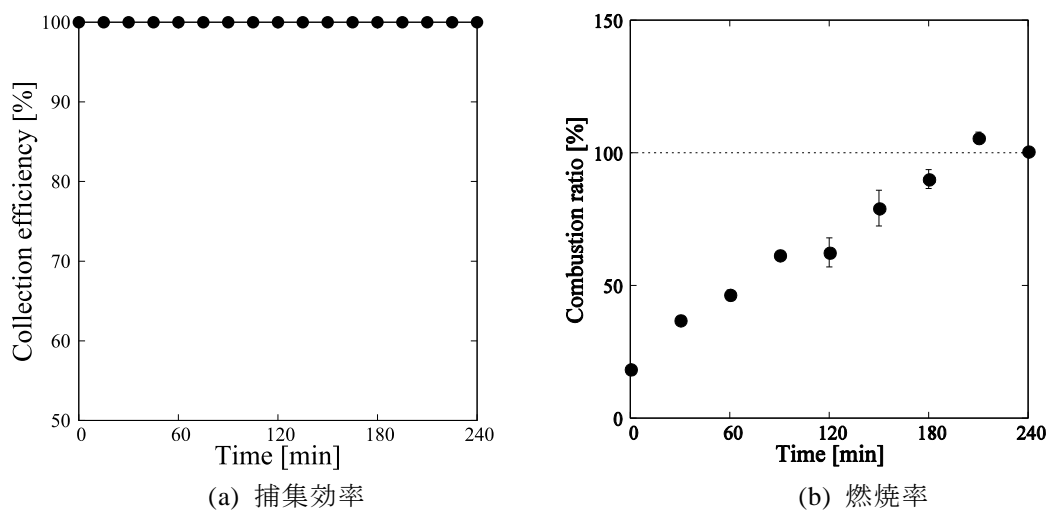


図1.6 $380^\circ C$ における捕集効率と燃焼率

(PM粒径 $20\ \mu m$ 以下、PM濃度 $30\ mg/m^3$ 、水蒸気濃度 $10\ vol.\%$ 、空塔速度 $0.4\ m/s$ 、温度 $380^\circ C$)

流動媒体表面に堆積するため、PMの堆積量は時間経過とともに増加する。新たに付着したPMも燃焼するが、堆積したPMも燃焼し続けるため、燃焼率は時間経過とともに上昇していく。燃焼率は実験開始から210分の段階において100%を超え、210分以降100%以上を維持したことから、“PM燃焼速度>PM付着速度”となり定常状態に達したと言える。このことから、従来法ではPMの燃焼に600°C程度の熱が必要であるが、本法では流動層の低温燃焼特性に加え、水蒸気の燃焼促進効果により380°Cで連続再生運転が可能となった⁴⁾。

4.2 ミネラル分の影響

本法の連続再生温度をさらに低下させるためには、触媒等を用いてPMの燃焼速度を向上させることが有効な手段となる。石炭科学の分野において、石炭に含まれるミネラル分（カルシウム、カリウム、マグネシウム等）がカーボンの燃焼反応を促進することが知られ、ミネラル分により反応温度が150°C程度低下したことが報告されている。そこで本項では、流動媒体にミネラル分を触媒担持することで、PMの燃焼反応を向上し本法の再生温度を大幅に低下させることを目指す。予備実験において、PMにカルシウムとカリウムを触媒担持して比較した結果から、本研究ではミネラル分としてカリウムを適用する。はじめに、流動媒体に触媒担持するカリウムの適切な量を決定するため、0.225 g-catalyst/kg-bed particleを基準に、10倍まで担持量を増加しPM捕集実験を実施した。実験条件は、PM粒径100-125 μm, PM濃度100 mg/m³, 粒子層温度400°C, 空塔速度0.4 m/s, カリウム担持量0.45 - 2.25 g/kgであり、その結果を図1.7に、180分における各捕集効率を表1.1に示す。捕集効率はカリウム担持量の増加とともに上昇しているが、これはPMとカリウムの接触確率が上昇し、PMの燃焼が促進されたためである。しかし、カリウム担持量が1.58 g/kgを超えると、捕集効率の変化はほとんど見られなかった。担持量が1.58 g/kg以上では、カリウムが流動媒体表面に均一に分布し、ほとんどのPMと良好に接触したためであると考えられる。これらの結果から、担持するカリウムの量は1.58 g-catalyst/kg-bed particleに設定した。

Ambient tmp.	●	Bed with 1.13 g/kg of K	◇
Bed without K	□	Bed with 1.35 g/kg of K	◇
Bed with 0.45 g/kg of K	○	Bed with 1.58 g/kg of K	+
Bed with 0.68 g/kg of K	△	Bed with 1.80 g/kg of K	×
Bed with 0.90 g/kg of K	▽	Bed with 2.25 g/kg of K	*

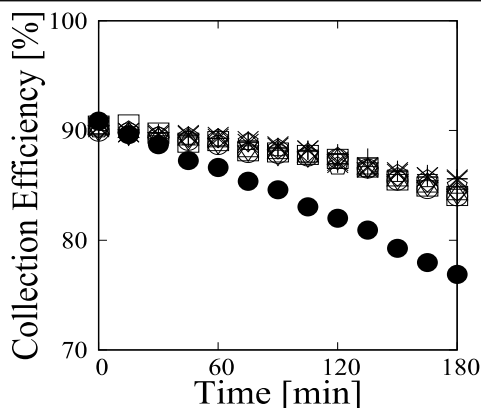


図1.7 カリウム担持量の影響

表1.1 180分時における捕集効率

Amount of doped potassium	Collection efficiency at 180 min [%]
Ambient temperature	76.9
Bed without potassium	84.0
Bed with 0.45 g/kg of potassium	84.0
Bed with 0.68 g/kg of potassium	84.1
Bed with 0.90 g/kg of potassium	84.2
Bed with 1.13 g/kg of potassium	84.4
Bed with 1.35 g/kg of potassium	85.0
Bed with 1.58 g/kg of potassium	85.6
Bed with 1.80 g/kg of potassium	85.5
Bed with 2.25 g/kg of potassium	85.6

カリウムを担持した流動媒体を用い、PM粒径100-125 μm, PM投入濃度100 mg/m³, 粒子層温度250-400°C, 空塔速度0.4 m/sにおける捕集効率の経時変化を図1.8に示す。比較のために、カリウムを担持しない条件における結果と、常温における捕集効率を合わせて示す。一般に、バスやトラックなどの排気ガスのPM濃度は30 mg/m³程度であり、100 mg/m³というPMの濃度は極めて高い濃度である。本実験においては燃焼の効果を明瞭にするために、このような極めて高濃度の条件の元で実験を行った。図より、250°Cの場合、カリウムの有無による違いはほとんど見られなかった。また常温における結果との違いもほとんどないことから、250°CではPMがほとんど燃焼しないことが示唆された。一方、300°C以上の条件では、カリウムを触媒担持することにより捕集効率が上昇している。これは、カリウムの触媒効果によりPMの燃

焼が促進されて流動媒体表面のPM堆積量が減少し、PMの剥離が抑制されるとともに新たなPMが付着する場所が増えたためであると考えられる。

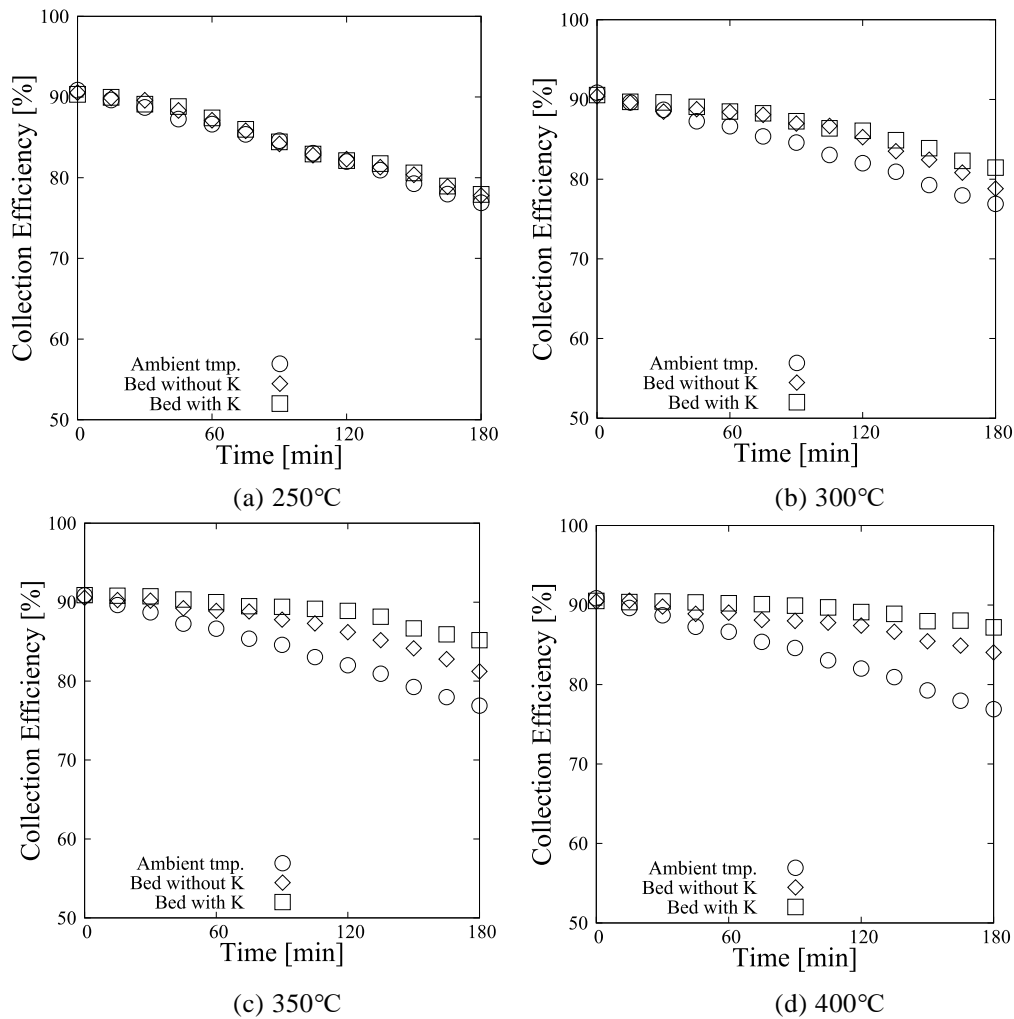


図1.8 カリウムを担持した場合における捕集効率の経時変化
(PM粒径100-125 μm , PM濃度100 mg/m^3 , 温度250-400°C, 空塔速度0.4 m/s)

カリウム担持の影響をより詳細に検討するため、浄化ガスのFT-IR分析と流動媒体のXRDパターン測定を実施した。図1.9に空塔速度0.4 m/s, PM粒径100-125 μm , PM濃度100 mg/m^3 , 粒子層温度400°Cにおける180分目のFT-IR分析結果を示す。カリウムを担持しない場合、COおよびCO₂の濃度はそれぞれ127 ppmおよび97 ppmであるが、カリウムを担持した場合のCOおよびCO₂の濃度はそれぞれ102 ppmおよび416 ppmである。このことから、カリウムはPM燃焼時にCO₂の生成を選択的に増加させるが、COの生成は増加させないことが示された。図1.10にカリウムを担持した場合としない場合の燃焼率を示す。カリウムを担持した場合、総燃焼率は80%を超えるが、カリウムを担持しない場合の総燃焼率は30%程度である。また、カリウム担持の有無によるCO燃焼率にはあまり大きな差はないが、CO₂燃焼率はカリウムを担持した場合に特に多くなっていることがわかる。

図1.11にカリウムを担持した流動媒体の連続再生実験前後におけるXRDパターンを示す。また比較のため、カリウムを担持していない流動媒体のXRDパターンを併せて示す。カリウムを担持していない場合は、Al₂O₃のみが検出された。またカリウムを担持した場合、カリウム含有化合物として検出されたのはK₂CO₃のみである。カリウムとして流動媒体に担持したのはCH₃COOKであるが、触媒担持の焼成の際にK₂CO₃に変換されたため、K₂CO₃ピークのみが検出された。K₂CO₃のピークは、400°Cにおける実験前後においてほとんど変化しないことが示された。また、カリウムを触媒として用いた場合、高温ではカリウムが昇華し反応の失活が起こるが、本実験の温度域ではカリウムが昇華しないことが示唆された。

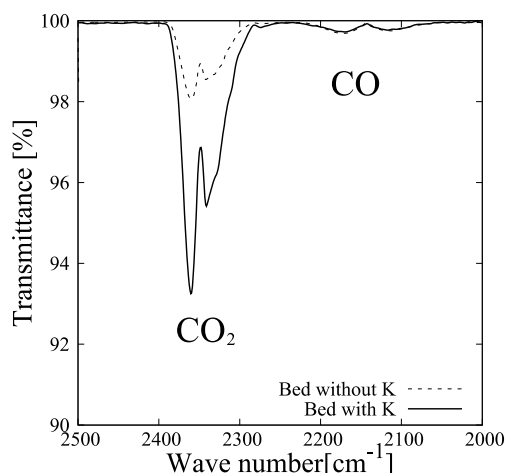


図1.9 FT-IR分析結果

(PM粒径100-125 μm , PM濃度100 mg/m^3 , 温度400 $^{\circ}\text{C}$, 空塔速度0.4 m/s , 時間180分)

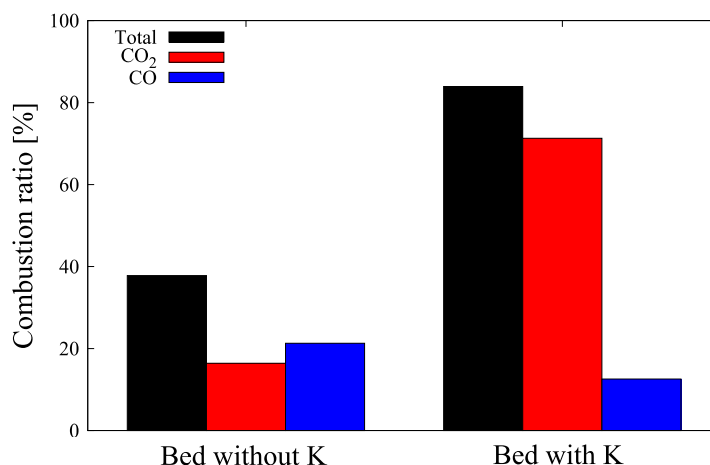
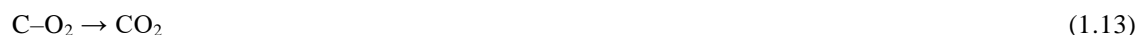
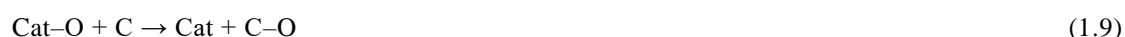
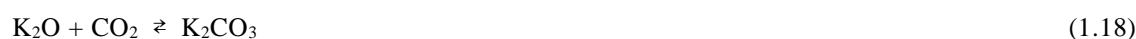


図1.10 燃焼率詳細

FT-IRの分析結果とXRDパターンから、カリウム存在下におけるPMの反応機構について検討した。図1.12に反応機構の概略図を示す。PMは流動媒体にランダムに付着することから、PMとカリウムの接触状態はルーズコンタクトあるいはタイトコンタクトに大別される。カリウム存在下におけるPMの反応には、(1.7)-(1.13)式および(1.14)-(1.18)式により示される2つのメカニズムがある。まず、酸素がカリウムに吸着され((1.7), (1.8)式), 吸着された酸素がカリウムの表面からPMの表面に移動する((1.9), (1.10)式)。PMの表面に移動した酸素は炭素と結合し、PMがCOあるいはCO₂として除去される((1.11)-(1.13)式)。これらの反応は、ルーズコンタクトおよびタイトコンタクトのいずれの状態においても起こる反応である。また酸素がPMの表面に直接吸着され、(1.11)-(1.13)式によりCOあるいはCO₂になる場合もあるが、いずれの場合においてもCOおよびCO₂が同時に生成される。(1.11)-(1.13)式によるCOおよびCO₂生成はカリウムが担持されていない場合でも起こる反応であり、カリウムを担持することで(1.7)-(1.10)式を経由し、COおよびCO₂の生成量が増加する。しかし、FT-IRの結果から、カリウムを担持すると選択的にCO₂が生成されることから、これらの反応はあまり多く起こらないことが示唆される。



(1.14)-(1.18)式により示される反応メカニズムは、カリウムと炭素の直接反応((1.14), (1.17)式)があることから分かるように、タイトコンタクトの場合にのみ起こる反応である。K₂CO₃はCO₂を生成するとともに、K₂OあるいはK₂O₂に変換される。K₂O₂は炭素と反応してCO₂を生成するとともに、K₂Oに変換される。また、K₂O₂とK₂OはCO₂を吸収してK₂CO₃に変換される。以上のように、これらの反応はCO₂を生成しながら循環する反応であり、周期的にK₂CO₃, K₂O, K₂O₂に変換されることから、これらの反応においてK₂CO₃, K₂O, K₂O₂が重要な役割を果たす。FT-IRの結果から、カリウムを担持すると選択的にCO₂が生成されることから、これらの反応が支配的であることが示唆される。



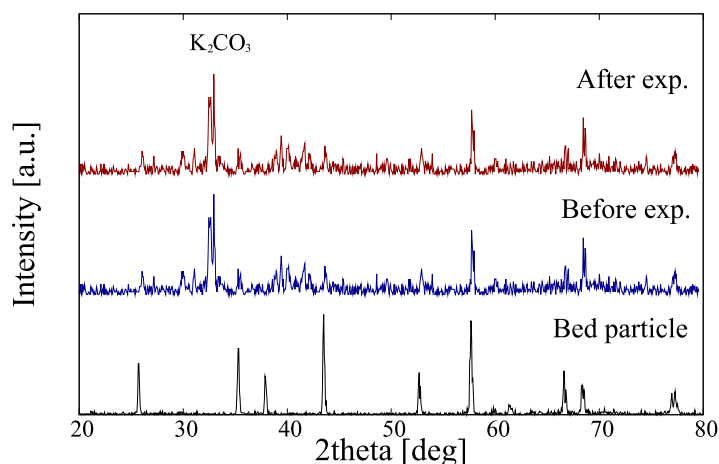


図1.11 流動媒体のXRDパターン

(PM粒径100-125 μm , PM濃度100 mg/m^3 , 温度400 $^{\circ}\text{C}$, 空塔速度0.4 m/s)

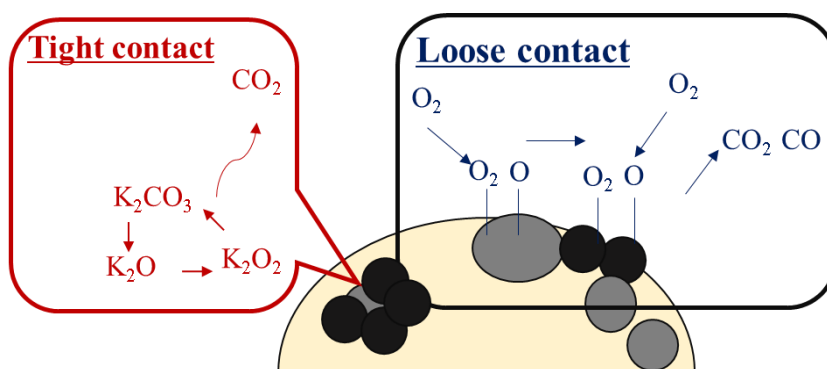


図1.12 反応機構概略図

次に、カリウムの触媒担持による低温化（連続再生温度）について調査するため、PM粒径20 μm 以下、PM濃度30 mg/m^3 、空塔速度0.4 m/s、粒子層温度350 $^{\circ}\text{C}$ において、捕集効率と燃焼率の測定を行った。結果を図1.13に示す。なお、PMはふるいにより分級しているが、市販されているふるいの中で最も目の細かいものが20 μm であるため、本実験はPM粒径20 μm 以下で行った。また、PM濃度30 mg/m^3 は一般的なバスやトラックの排ガスに含まれるPM濃度程度である。図より、240分間連続的にPMを供給しているにも関わらず、捕集効率は100%を維持している。燃焼率について、実験開始時の燃焼率は15%程度である。PMの燃焼速度は早くないため、捕集されたPMはすぐに燃え尽きるわけではなく、“PM燃焼速度<PM付着速度”の状態である。したがって、この段階においてPMの堆積量は時間経過とともに増加する。堆積したPMは燃焼し続け、また新たに付着したPMも燃焼するため、燃焼率は時間経過とともに上昇する。210分において、燃焼率は100%に到達し、それ以降100%以上を維持した。これにより“PM燃焼速度>PM付着速度”となって定常状態に達したことから、本法では流動層の低温燃焼特性に加え、カリウムの燃焼促進効果により350 $^{\circ}\text{C}$ で連続再生運転が可能となった。

最後に、水蒸気およびカリウムの触媒担持による低温化（連続再生温度）の相乗効果について調査するため、PM粒径20 μm 以下、PM濃度30 mg/m^3 、水蒸気濃度10 vol.%、空塔速度0.4 m/s、粒子層温度330 $^{\circ}\text{C}$ において、捕集効率と燃焼率の測定を行った。結果を図1.14に示す。図より、上記と同様に捕集効率は240分間100%を維持し、また燃焼率は上記と同様の傾向を示している。燃焼率は210分において100%に到達するまで時間経過とともに上昇し、210分以降100%以上を維持して定常状態となった。水蒸気の影響により、PM表面にカルボキシル基等が生成され、またカリウム表面に吸着された酸素がPM表面に移動することで、カルボキシル基と酸素が反応し最終的にCOあるいはCO₂が生成される。カリウムと水蒸気による相乗効果により、このようにPM燃焼反応がさらに促進されたことから、従来法ではPMの燃焼に600 $^{\circ}\text{C}$ 程度の熱が必要であるが、本装置では330 $^{\circ}\text{C}$ において連続再生運転が可能となった⁵⁾。

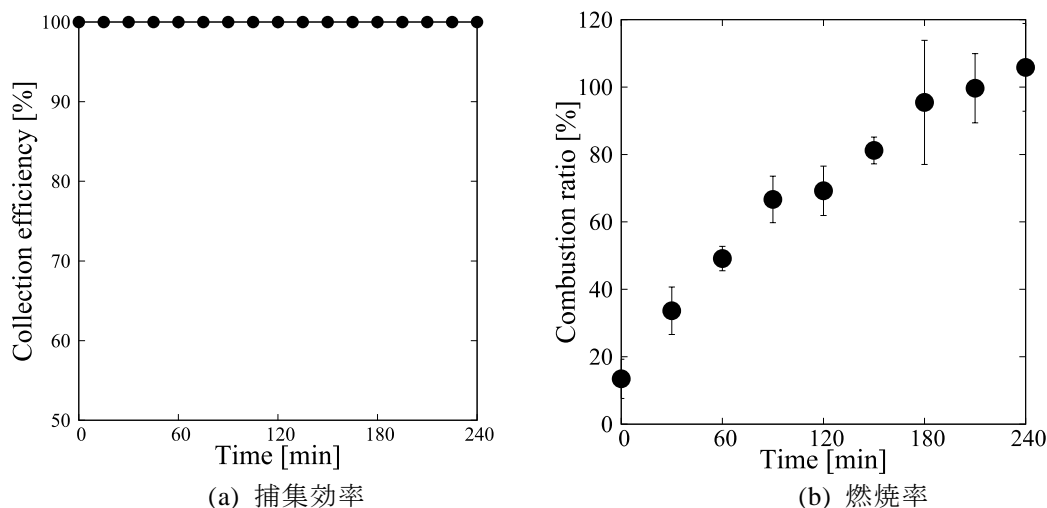


図1.13 350°Cにおける捕集効率と燃焼率
(PM粒径20 μm 以下, PM濃度30 mg/m^3 , 空塔速度0.4 m/s , 温度350°C)

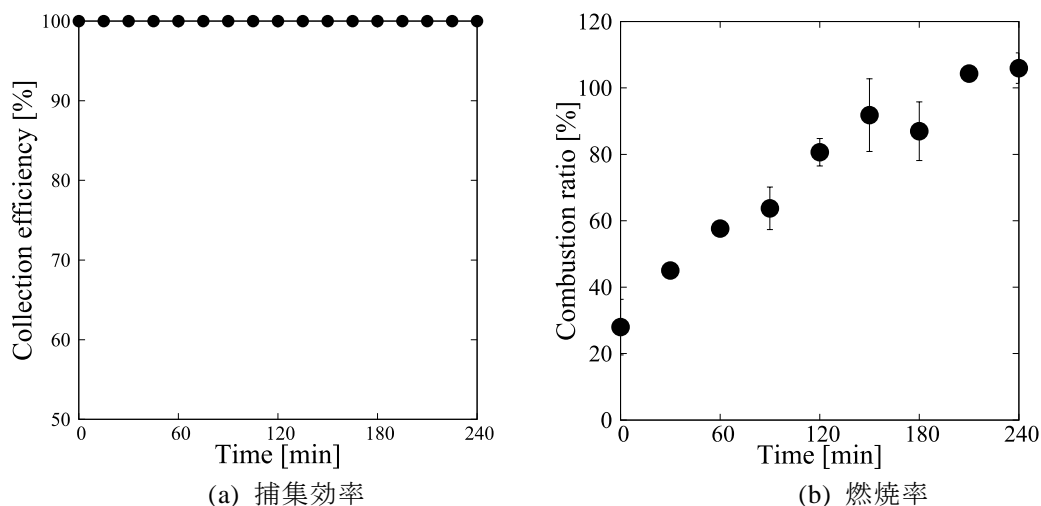


図1.14 330°Cにおける捕集効率と燃焼率
(PM粒径20 μm 以下, PM濃度30 mg/m^3 , 水蒸気濃度10 vol.%, 空塔速度0.4 m/s , 温度330°C)

4.3 ミネラル分増加によるさらなる低温化

上述のように, 水蒸気とミネラル分を利用することで連続再生温度は330°Cまで低下した. 本項ではさらに連続再生温度を低減するため, ミネラル分をより多く担持することが可能な流動媒体 (ナイガイセラビーズ) を用いて実験を行った. 図1.7と同様に最適なミネラル分担持量を決定する実験を行ったところ, そのカリウム担持量は9.48 $\text{g-catalyst}/\text{kg-bed particle}$ と大幅に増加することができた. しかし, ここで用いたナイガイセラビーズは径が小さく, かつその密度は2700 kg/m^3 と上述のアルミナイトボールの密度3700 kg/m^3 よりも軽い. それゆえ, アルミナイトボールの空頭速度が0.4 m/s の時と同様の流動状態が得られるのは, 空頭速度0.15 m/s の時である. 同様の流動状態において, ナイガイセラビーズとアルミナイトボールの捕集状況を比較するため, PM粒径100-125 μm , PM投入濃度100 mg/m^3 , 粒子層温度(a)常温, (b)400°C, 空塔速度0.15, 0.4 m/s における捕集効率の経時変化を図1.15に示す. どちらの粒子も同様の傾向を示し, いずれの温度においても時間経過とともに捕集効率は減少したが, 温度が上昇すると流動媒体表面に付着したPMの燃焼により, 流動媒体表面がよりクリーン保たれ, 捕集効率が上昇した. また, ナイガイセラビーズは径が小さく軽いため, 流動媒体の表面積が大きく, また層内の空隙率が小さくなるため, アルミナイトボールよりも高い捕集効率を示した.

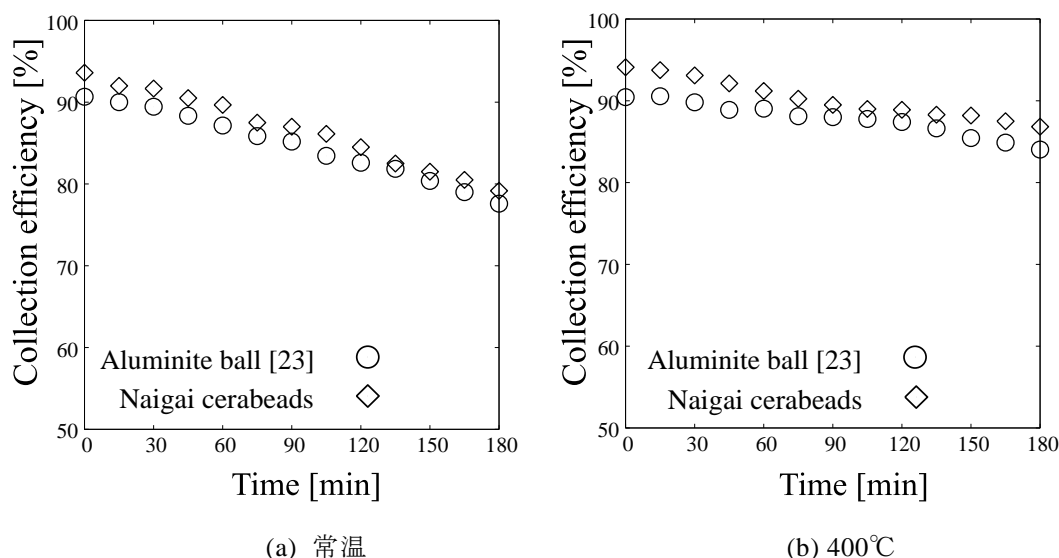


図1.15 捕集効率の経時変化

(PM粒径100-125 μm , PM濃度100 mg/m^3 , 空塔速度0.15, 0.4 m/s)

カリウムを担持したナイガイセラビーズを用い、PM粒径100-125 μm , PM投入濃度100 mg/m^3 , 粒子層温度250-400°C, 空塔速度0.15 m/s における捕集効率の経時変化を図1.16に示す. 比較のために, カリウムを担持しない条件における結果と, 常温における捕集効率を合わせて示す. 一般に, バスやトラックなどの排気ガスのPM濃度は30 mg/m^3 程度であり, 100 mg/m^3 というPMの濃度は極めて高い濃度である. 本実験においては燃焼の効果を明瞭にするために, このような極めて高濃度の条件の元で実験を行った. 基本的な挙動はアルミナイトボールと同様であり, 250°CではPMの燃焼がほとんど起こらず捕集効率の上昇は見られないが, 温度上昇とともに, またカリウムの担持とともにPMの燃焼が促進され, 捕集効率が増した. 特に, カリウムを担持した400°Cでは捕集効率の低下が僅かであり, 大幅なPMの燃焼促進が起こっていることが示されている.

最後に, カリウム担持量増加による連続再生温度の低温化について調査するため, PM粒径20 μm 以下, PM濃度30 mg/m^3 , 水蒸気濃度10 vol.%, 空塔速度0.15 m/s , 粒子層温度300°Cにおいて, 捕集効率と燃焼率の測定を行った. 結果を図1.17に示す. 図より, 上述のアルミナイトボールの場合と同様に捕集効率は240分間100%を維持し, また燃焼率も同様の傾向を示している. 燃焼率は時間経過とともに上昇し, 210分目におおよそ100%に到達後, 100%以上を維持して定常状態となった. ナイガイセラビーズを用いてカリウムの担持量を増加したことにより, PMの燃焼反応がさらに促進され, アルミナイトボールの場合よりも連続再生温度が30°C低下した. 以上のようにカリウム担持量増加に伴うPM燃焼反応の促進により, 従来法ではPMの燃焼に600°C程度の熱を外部から加える必要があるが, 本法では300°Cにおいて連続再生運転が可能となった⁶⁾.

4.4 スケールアップとディーゼルへの適用

本項では, 実用化を踏まえて実験装置の直径を80.7 mmから190.9 mmにスケールアップし, 本装置におけるデータを取得する. はじめに, スケールアップ装置の流動状態を確認するため, アルミナイトボールを用いて空頭速度0.4 m/s において流動化させた結果, 空隙率が高い壁際において多くのガスが通過する結果となった. この問題を解決し流動層全体を流動化させるため, 流動層の入口を150 mmに狭めて, 再度, 流動化実験を実施したところ, 良好な流動状態が得られた. この装置を用いて80.7 mmの装置と比較を行ったところ, 粒子層温度250-400°Cにおいて捕集効率は同様の結果となった. さらに, スケールアップ装置において連続再生の検討を行うため, PM粒径20 μm 以下, PM濃度30 mg/m^3 , 空塔速度0.4 m/s , 水蒸気濃度10 vol.%, 粒子層温度330°Cにおいて, 捕集効率と燃焼率の測定を行った. 結果を図1.18に示す. 燃焼率については少しばらつきがあるが, 80.7 mmの装置と同様, 捕集効率は100%を維持し燃焼率

は210分目において100%に到達した。以上の結果から、スケールアップ装置においてもスケールアップ前の装置と同様の結果になることが示された。

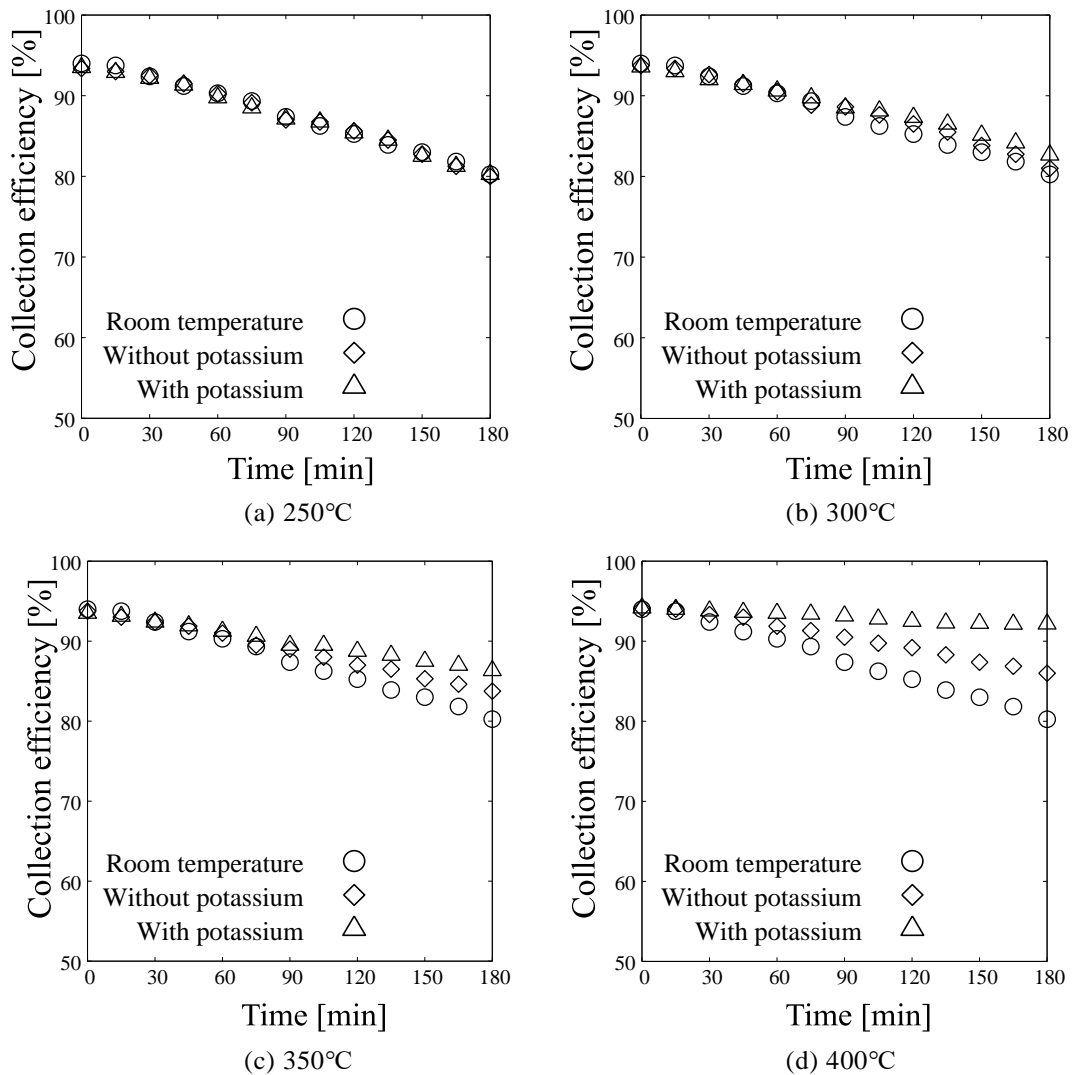


図1.16 ナイガイセラビーズにカリウムを担持した場合の捕集効率の経時変化 (PM粒径100-125 μm , PM濃度100 mg/m^3 , 温度250-400°C, 空塔速度0.15 m/s)

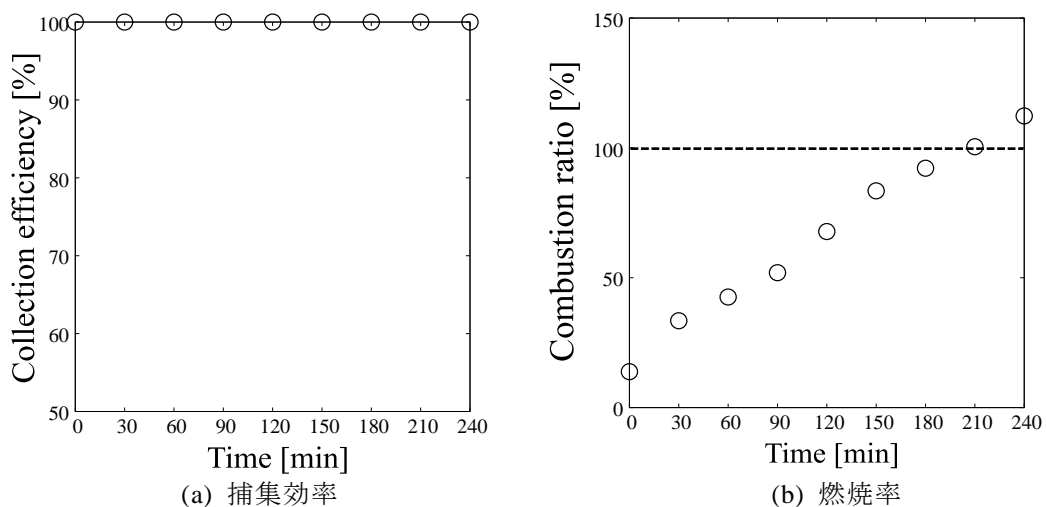


図1.17 ナイガイセラビーズを用いた300°Cにおける捕集効率と燃焼率

(PM粒径20 μm 以下, PM濃度30 mg/m^3 , 水蒸気濃度10 vol.%, 空塔速度0.15 m/s , 温度300°C)

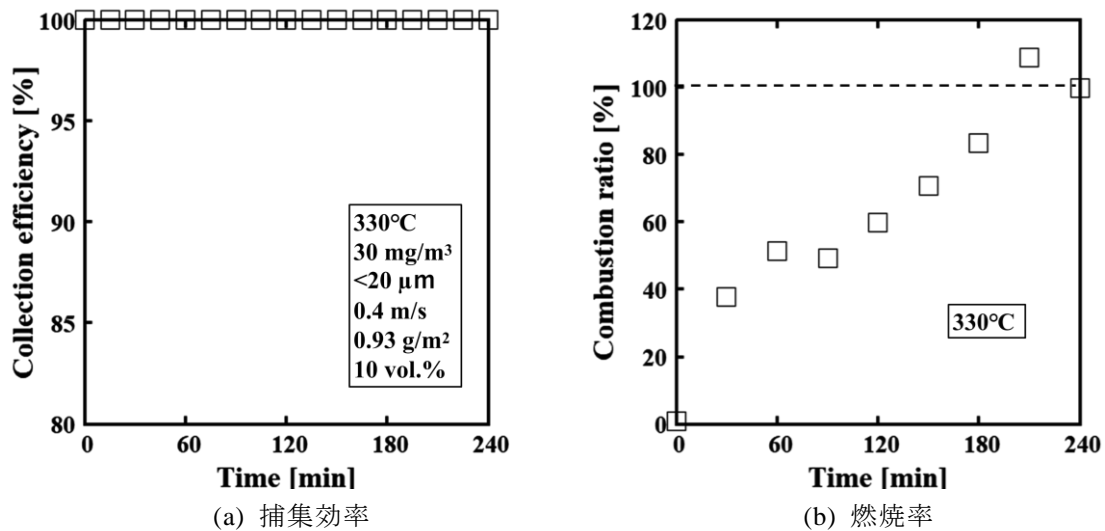


図1.18 スケールアップ装置を用いた330°Cにおける捕集効率と燃焼率

(PM粒径20 μm以下, PM濃度30 mg/m³, 水蒸気濃度10 vol.%, 空塔速度0.4 m/s, 温度330°C)

次に, 図1.19に示すディーゼル (L70N, ヤンマー製) を用い, ディーゼルの回転数を2000 rpmに設定した上で, ディーゼルから排出されるPMを含んだ排ガスを用いてPM捕集・燃焼実験を実施した. ディーゼルから排出されるPMの粒径分布 (頻度分布および積算分布) をインパクターにより測定した. その結果を図1.20および1.21に示す. 頻度分布よりディーゼルから排出されたPMは0.1 μm付近の粒径が最も多くなっており, かなり小さい粒径であることが分かる. また, 頻度分布および積算分布から, ディーゼルから排出されたPMは10 μm以下の粒径が99%程度を占めていることが示された. なお, PMの濃度について, インパクターによる測定結果は40.865 mg/m³, スモークメータによる測定結果は38.2 mg/m³, となり, ほぼ同じ濃度が得られている.



図1.19 使用したディーゼル

このようなPM粒径分布を含む排ガスを本装置に導入し, 350°CにおいてPM捕集・燃焼実験を行った. 結果を図1.22に示す. 実験は540 min間連続的に行ったが, 捕集効率は100%を維持した状態であり, 本装置の優れたPM捕集特性が示された. なお, ディーゼル排ガス中には多くのCO₂が含まれており, PMの燃焼に伴うCO₂増加量が誤差程度となるため, 燃焼率については計測ができなかった.

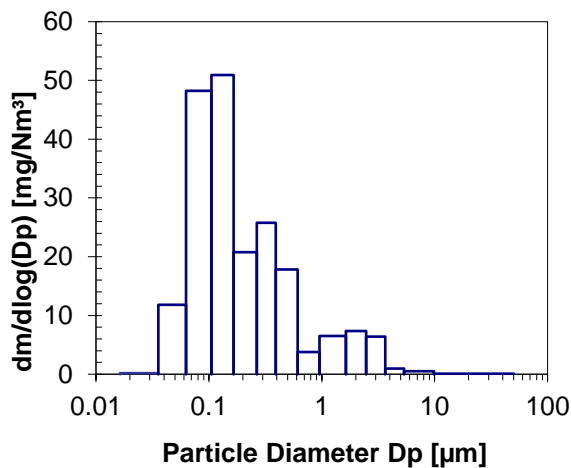


図1.20 PM粒径頻度分布

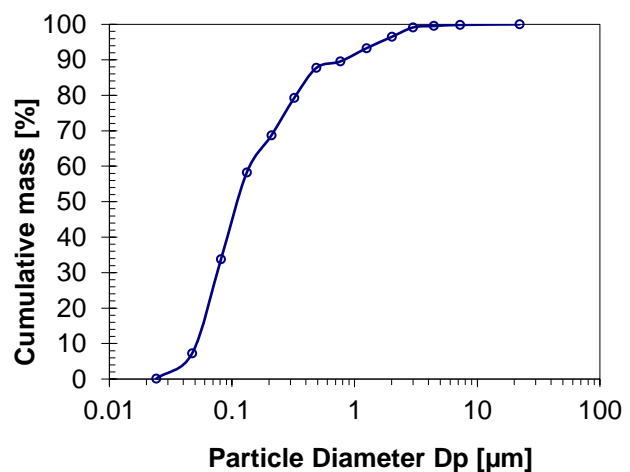


図1.21 PM粒径積算分布

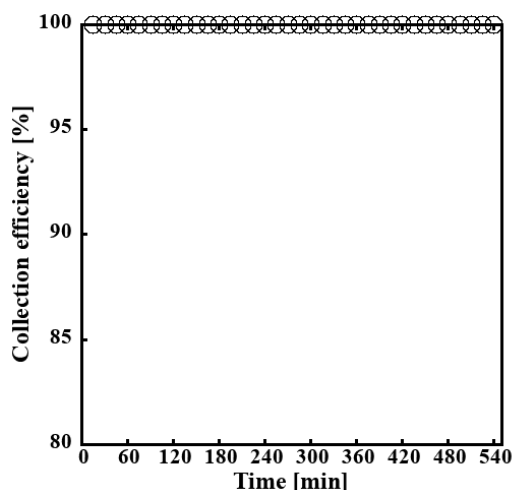


図1.22 ディーゼル排ガスを用いた350℃における捕集効率

5. 研究目標の達成状況

研究代表者らは、流動層を用いた高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発し、既往の研究において、粒子間付着力によるPMの高効率捕集と流動層の低温燃焼特性によるPMの燃焼温度低減により、本連続再生式装置が400℃で運用可能であることを示してきた。本研究では、さらに連続再生温度を低減し、排熱で運用可能な装置を開発するため、水蒸気の燃焼促進効果とミネラル分の触媒効果を利用した。水蒸気の利用においては、水蒸気の有無による比較を行い、その反応特性を解明するとともに、連続再生温度を20℃低減させた。ミネラル分の利用においては、カリウムを流動媒体に触媒担持して実験を実施し、カリウムによるPMの反応特性を解明するとともに、連続再生温度を50℃低減させた。また、水蒸気とミネラル分の相乗効果を目的としてこれらを同時利用した結果、連続再生温度は330℃となった。さらに連続再生温度を低減させるためには、ミネラル分の担持量を増加することが有効であると判断し、より担持量が増やせる流動媒体を用いて実験を実施した。その結果、既存の装置ではPMの燃焼に600℃程度の熱を外部から加える必要があるが、本装置では流動層の低温燃焼特性、水蒸気の燃焼促進効果、ミネラル分の触媒効果により、300℃において連続再生が可能であることを示した。さらに、実用化に向けてスケールアップデータを取得するため、実験装置の直径を80.7 mmから190.9 mmにスケールアップして実験を行った。その結果、スケールアップによるデータの相違はなく、本装置の優れたスケールアップ特性が示された。これらの結果を基礎として、本装置をディーゼル排ガスに適用した結果、540分間連続的に排ガスを供給した場合においても100%の捕集効率を維持した。以上のように、本研究成果により、本装置が排熱温度程度である300℃において連続再生が可能であることを示すとともに、実用化を踏まえたスケールアップ試験およびディーゼル排ガスを用いた実証試験まで実施していることから、目標はおおよそ達成したと考えている。

6. 引用文献

- 1) T. YAMAMOTO, T. TSUBOI, J. TATEBAYAH: Powder Technology, 288, 26-34 (2016).
- 2) T. YAMAMOTO, K. HORI, J. TATEBAYAH: Powder Technology, 289, 31-36 (2016).
- 3) T. YAMAMOTO, K. YOKOO, A. KUSU, J. TATEBAYAH: Powder Technology, 323, 86-94 (2018).
- 4) K. YOKOO, H. MATSUNE, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, T. YAMAMOTO: Powder Technology, 355, 657-666 (2019).
- 5) K. YOKOO, A. KUSU, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, T. YAMAMOTO: Chemical Engineering Journal, 388, 124247 (2020).
- 6) K. YOKOO, A. WAKIZAKA, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Advanced Powder Technology, 32, 151-165 (2021).

II-2 フィジビリティスタディ

株式会社フォトンコンピューターシステム（令和元年度）

R&Dグループ 館林恂
R&Dグループ 植濃一夫
R&Dグループ 麓川昌弘

愛知電機株式会社（令和2年度～令和3年度）

電力カンパニーシステム開発センター新エネ開発グループ 田中 良
電力カンパニーシステム開発センター新エネ開発グループ 山田 直人

【要旨】

サブテーマ（2）のフィジビリティスタディでは、サブテーマ（1）において得られた操作・装置条件のデータを基に、実機を想定して汚染状況の改善を含めた性能の確立、装置の詳細設計および全体プラントへの配置を想定した総合的な評価を行い、本システムの技術優位性について検討を行った。

本研究システムと既存システムとの比較から、本システムのほうがPM_{2.5}の捕集効率が高い。また連続再生温度について、既存システムではPMの燃焼に600℃程度の熱が必要であるが、本システムであれば300℃程度で実行可能である。一方、イニシャルコストおよびランニングコストについて、既存システムのデータを取得することはできなかったが、本システムで使用する流動層は装置形状が簡単であることから、分散板のコストが多少かかるものの既存システムよりもイニシャルコストが高くなることは考えにくい。さらに連続再生を実施する際のランニングコストについても、既存システムでは600℃程度の熱を外部から加える必要があるが、本システムであれば排熱程度で運用可能であることから、低く抑えられると考えられる。これらのことを踏まえるとともに、サブテーマ（1）の結果を基に、運搬や設置を考慮した詳細な製作図を設計するとともに、コスト削減への道筋を示した。以上のことから、本研究の目標はある程度達成したと考えている。

1. 研究開発目的

本研究では、排熱で運用可能な高効率連続再生式PM_{2.5}除去装置を開発し、装置の最適化およびスケールアップを行う。また、これらの最適化されたデータを基礎として、本装置の設計指針を示すとともに、本システムの性能および経済性の評価を行い、その技術優位性を明らかにする。

サブテーマ（1）において得られた操作・装置条件のデータを基に、サブテーマ（2）においてフィジビリティスタディ(FS)を行う。フィジビリティスタディでは、実機を想定して汚染状況の改善を含めた性能の確立、装置の詳細設計および全体プラントへの配置を想定した総合的な評価を行い、本システムの技術優位性について明確に示す。

2. 研究目標

要素技術の開発を進め、第一次フィジビリティスタディにより経済および環境評価を行う。以上の成果を基に、本装置の最適化およびスケールアップデータの取得を行うとともに、第二次フィジビリティスタディを実施し、工業レベルでの評価を行うことで従来技術に対する明確なメリットを示す。

3. 研究開発内容

サブテーマ（2）では、フィジビリティスタディを行う。これは本研究システムと既存システムとの比較を行い、その優位性を明確にするものである。はじめに、サブテーマ（1）の研究データを基にパラメータサーベイを行い、最適な操作・装置条件を選択して連続再生装置の各設計値を決定する。これらの概念図を基に、詳細図を計画するとともに、実機を想定して汚染の改善を含めた性能の確立、経済

面における優位性等を明確にする。さらに、スケールアップ条件を詳細に検討後、概念図のスケールアップバージョンを作成し、流動層の特性技術計算を行うことで各装置の要素を決定する。これらの概念データに基づき、製作図を設計するとともに、全体プラントへの配置想定を織り込み、性能計算、各要素設計計算を行い、装置の詳細図を起こす。

4. 結果及び考察

4.1 従来の集塵装置の調査

4.1.1 従来技術

(1) 従来の排ガス処理装置

ボイラ、焼却装置、発電機などの燃焼排ガスに含まれるばい塵を捕集する装置として、現在使用されているサイクロン、バグフィルタ、電気集塵機および本流動層集塵機の比較を表2.1に示す。バグフィルタは、ろ布を用いて排ガス中に含まれるばい塵を捕集する装置であり、数 μm 程度の粒子まで捕集可能であるが、ろ布の目詰まりによって交換等のメンテナンスが必要となる。電気集塵機は、ばい塵を帯電させて電極に集めることで排ガス中に含まれるばい塵を捕集する装置であり、数 μm 程度の粒子まで捕集可能であるが、運転には電力が必要である。バグフィルタや電気集塵機は数 μm 程度の粒子まで集塵可能であるが、PM_{2.5}のようなより小さい粒子の集塵は難しいことから、新しい方式の集塵機である流動層式の採用が望まれる。流動層式は従来の方式と全く異なり、流動層を応用して層内の流動物質に微小粒子を集塵するものである。従来のバグフィルタや電気集塵機ではPM_{2.5}をスルーして捕集できないが、本方式は微小粒子に働く力を利用して1 μm 以下のナノ粒子まで捕集可能な高性能集塵機であり、微小物質の飛散を完全に防止することが可能となる。従って、あらゆる処理方式の最終段にこの集塵機の使用が可能で、その最終集塵効率は99.99%となる。流動層式はシステムがシンプルで運転のメンテナンスが非常に簡単、消耗品の耐久性が高く、運用コストが極めて廉価であるという特徴を有する。煤塵処理系では、発生源の種類により飛散する煤塵特性が異なりかつ性能も異なるので、一概にコストの比較は難しいが、一般的な安価の順は、サイクロン→マルチサイクロン→バグフィルタ→電気集塵機となる。そのうち、電気集塵機は運転のために電力を消費するので、他の集塵機と違いトータルコストはかなり高額となる。その他の費用として、集塵した煤塵（ダスト）の処理装置が必要で装置が大型化すると、ダスト処理装置のコストが集塵機本体並のものとなってくる。また脱硫や脱硝装置を設ける場合は、その汚泥や交換する触媒の費用がかかり、トータルコストはシステム構成および目標性能値などの仕様で決まっている。

表2.1 各集塵システムの概略比較表

集塵システム	サイクロン	バグフィルタ	電気集塵機	流動層集塵機
コスト	低価格	高価格	高価格	中価格
集塵効率	95 % 微粉の集塵不可	99.9 % ダストをほぼ集塵	99 % ダストをほぼ集塵	99.99% ダストをすべて集塵
圧力損失	中	高	低	低
ダイオキシン	高温集塵により抑制	集塵面で生成	少	極少
メンテナンス	内壁断熱材張替必要	バグフィルタ交換 逆洗必要	電力必要	若干の電力必要

表2.2に、PM_{2.5}除去を目標に設定した本研究の流動層装置と各集塵装置との比較を示す。なお、本研究の流動層集塵機は300から400℃程度での運用を想定していることから、比較対象は同様に高温で運用可能かつ最新式の高温度電気集塵機、高温バグフィルタとする。ここで、設備コストについては流動層集塵機を100とし、それに対する割合として示した。想定される仕様でのコストを含んだ経済計算の結果において、本研究の流動層集塵機と高温電気集塵機、高温バグフィルタの総合比較を行うと、各本体のコス

トの差は比較的小さい。しかし、最終目標であるPM_{2.5}の捕集を考慮すると、他の集塵機は現状技術レベルでは殆どPM_{2.5}の捕集が出来ず、本研究のみがPM_{2.5}の捕集が可能であるという相違が圧倒的な結果となっている。高温電気集塵機はその特性上電荷をあげても捕集の限界があり、バグフィルタは濾布の構造に工夫をしたとしても集塵特性上目詰まりを避ける限界距離があるために、PM_{2.5}の捕集には上限がある。本研究の流動層集塵機は、他の方式と異なり流動層内で捕集かつ集塵された粒子が再燃焼するために、PM_{2.5}のスルーが極端に少なくなっている。これはPM_{2.5}を除去する究極的な手法と考えられ、また他の方式とコストの差がさほど大きくないという結果を考えると、早急に実用化を図るべきと考えられる。実用化時に問題となるスケールアップについては、技術的課題となる要素がなく容易に小型から大型まで同様の設計思想で実用化できる。

表2.2 流動層集塵機と各集塵機との比較

アイテム	高温電気集塵機	高温バグフィルタ	流動層式集塵機
仕様			
方式	高温コロナ放電	セラミック	流動層式
風量 m ³ N/h	1,200	1,200	1,200
使用温度 °C	400以下	400以下	400以下
入口含塵量 mg/m ³	30以下	30以下	30以下
出口含塵量 mg/m ³	10以下	10以下	0.1以下
集塵効率 %	99	99.9	99.99
出口PM _{2.5} 含塵量	1以下	1以下	0.01以下
圧力損失	低	高	低
設備コスト			
本体	110	120	100
運用費	110	130	100
償却及び諸税	110	120	100
メンテナンス費	90	110	100
建設費	130	120	100
装置条件			
据付制約	高さ方向	特になし	特になし
電源	常用	非常時	非常時
大型化	制約なし	制約なし	制約なし
ダスト処理	要	要	不要（層内燃焼）
ダスト処理コスト	大	大	不要
PM _{2.5} 除去率	50 %以下	80 %以下	99 %以下
総合評価	50	45	100

4.1.2 排ガス処理設備調査対象

電気集塵機、バグフィルタを使用している可能性のある発電業、廃棄物処分業、製造業などに電気集塵機、バグフィルタの仕様の間合せを実施した。これらの企業の設備からはばい煙が発生する可能性があり、今後PM_{2.5}対策を実施する可能性がある。また、燃焼させる燃料の種類によるばい煙の発生する可能性を表2.3にまとめた。

4.1.3 大気汚染防止法

大気汚染防止法では、ばい煙が発生させるおそれのある施設のうち、一定の規模以上のものを「ばい煙発生施設」としている。これらの設備では今後PM_{2.5}対策が必要となる可能性がある。（表2.4参照）

表2.3 燃料の種類によるばい塵発生の可能性

燃料の種類	内容
気体燃料（天然ガス等）	ばい煙の発生が少なく、排ガスの集塵は実施していない。今後PM _{2.5} 対策を実施する可能性は低い。
液体燃料（軽油、重油等）	燃焼状態によっては、ばい煙が発生するため、排ガスの集塵が必要になる。今後PM _{2.5} 対策を実施する可能性がある。
固体燃料（石炭、廃棄物等）	ばい煙が発生しやすく、排ガスの集塵対策を実施している。今後PM _{2.5} 対策を実施する可能性がある。

表2.4 大気汚染防止法の規制対象となる規模

設備の種類	対象となる規模
廃棄物焼却炉	焼却能力 200kg/h 以上
ボイラ	燃焼能力 50L/h 以上（重油換算）
ディーゼル発電	燃焼能力 50L/h 以上（重油換算）

（重油換算）液体燃料は10L，気体燃料は16m³，固体燃料は16kgが，重油10Lの相当するものとして換算。

4.1.4 液体燃料を使用する場合

4.1.4.1 製造業の調査

製造業での排ガス処理装置の使用状況を調査した。今回は，液体燃料でもばい煙の発生しやすい重油ボイラを使用している企業を調査対象とした。

(1) 中部地方 A社

重油ボイラ3台を製品の製造工程で使用している。排ガス量は2000～5000 m³/h程度である。電気集塵機やバグフィルタ等を使用しなくても，排ガス基準を守れるため，集塵装置は未設置との回答であった。

(2) 中部地方 B社

重油ボイラ1台を製品の製造工程で使用している。排ガス量は1000 m³/h程度である。電気集塵機やバグフィルタ等を使用しなくても，排ガス基準を守れるため，集塵装置は未設置との回答であった。

4.1.4.2 設備製造メーカーの調査

ボイラを製造しているメーカーに排ガス処理装置について問合せを実施した。

(1) ボイラメーカー M社

灯油，重油等の液体燃料を燃料としたボイラでは，ばい煙が発生することはなく，ばい煙対策装置を設置することはない。固体燃料を使用する場合は，ばい煙対策装置を設置することはあるが，現在では排ガス規制が厳しく，ばい煙が発生する可能性がある固体燃料は基本的に扱わない。絶対数として非常に少ないが，ばい煙対策装置を導入する場合も，受注生産のため標準品としては存在しない。また，過去の導入実績については非公開となっており，情報を得ることはできなかった。

4.1.4.3 液体燃料を使用する場合の調査結果

製造業および設備製造メーカーを対象に，液体燃料を使用する場合の排ガス処理装置の使用状況を調査した。重油ボイラ等，液体燃料では，ばい煙の発生が少なく，排ガス処理装置を導入している例は見つからなかった。今後も排ガス中のPM_{2.5}対策を実施する企業は少ないと考えられる。

4.1.5 実装置の調査

弊社において，過去にバグフィルタ(Fig.2.1)が付属した廃棄物処分装置を開発したことがある。バグフィルタは250℃での使用を想定し，処理量は5 m³/h，価格は500万円程度であった。廃棄物処分装置は実用化に至らず，実際に排ガス処理装置を使用することはなかったため，ランニングコストは不明である。



図2.1 バグフィルタ

4.1.6 発電所の調査

火力発電所は燃焼による排ガス量が多く、地域住民への説明も必要なことから、排ガス処理装置を導入し、排ガス中のばい塵に注意を払っている。今後はPM_{2.5}に配慮した排ガス処理を行う可能性がある。

(1) 中部地方 J社 発電所

中部地方の火力発電所に排ガス処理装置の問合せを実施した。設備規模は排ガス量で100万m³/h程度である。排ガス処理には電気集塵機を使用している。ばい煙に関する調査内容に関しては、環境影響調査書のみ公開しており、電気集塵機の仕様等に関しては企業の競争力に影響する内容のため非公開と言う回答であった。環境影響調査書では、ばい塵の排出濃度は、0.02 mg/m³程度と報告されている。PM_{2.5}については無回答であった。大気汚染防止法では、施設・規模ごとの排出基準(濃度)を一般排出基準では0.04~0.5g/m³、特別排出基準*では0.03~0.2g/m³と定めており、この規制を遵守する設備仕様となっている。

※特別排出基準とは、大気汚染の深刻な地域において、新設のばい煙発生施設に適用されるより厳しい基準。

4.1.7 民間の廃棄物処分業の調査

廃棄物処分場では固体の廃棄物を燃焼させるため、ばい煙が発生する。そのため、排ガス処理にはバグフィルタが設置されている。今後はPM_{2.5}に配慮した排ガス処理を行う可能性がある。

(1) 四国地方 O社 廃棄物処分業

四国地方の廃棄物処理業者に排ガス処理装置の問合せを実施した。保有している焼却施設は120t/日の焼却炉を2台保有している。排ガス処理装置にはバグフィルタを使用している。バグフィルタ等の焼却炉の排ガス処理設備の仕様およびランニングコストについては非公開との回答であった。

4.1.8 公共の焼却場の調査

公共の廃棄物処分場でも民間の廃棄物処分場と同様、固体廃棄物を燃焼させるため、ばい煙が発生する。そのため、排ガス処理にはバグフィルタが設置されている。今後はPM_{2.5}に配慮した排ガス処理を行う可能性がある。

(1) 中部地方 A市 焼却場

中部地方の自治体に廃棄物処理施設の排ガス処理装置について問合せを実施した。焼却施設の集塵機の一つについて回答があった。排ガス処理量は、50,000m³/hで、バグフィルタ等の排ガス処理装置は他の装置と一括で購入しているため価格は不明であるとの回答であった。また、バグフィルタのろ布は3年周期で交換しており、交換工事費用は2,000万円であるとの回答を得た。

(2) 中部地方 B市 焼却場

中部地方の自治体に廃棄物処理施設の排ガス処理装置について問合せを実施した。排ガス処理装置は95,000 m³/hを2台と50,000m³/h×2台保有している。PTFEフェルト、GPフェルト等を使用しているなど、バグフィルタのろ布の仕様は詳細に公開しているが、排ガス処理装置の価格や、ランニングコストは非公開となっている。

4.1.9 従来の集塵装置の調査のまとめ

民間、公共施設のいずれにおいても、集塵機の仕様については非公開であり、調査は困難であった。得られた数少ない情報では、処理量5 m³/hの小型集塵機の価格は500万円程度であることが判明した。ランニングコストは、バグフィルタの場合は50,000m³/hのガス処理量の装置で、3年間で2,000万円のコストがかかることが判明した。

4.2 流動層集塵機の運用方法

4.2.1 発電所での運用

(1) 発電機の仕様

発電所で使用されている発電機は、船舶で使用されるような大型ディーゼル発電機で、今回調査した3ヶ所の発電所では13 MW, 15 MW, 18 MWの定格出力であった。発電所で使用されている発電機の一例を下表に示す。吸入する空気を圧縮する過給器と、空気を冷却する空気冷却器を備えている。燃料は重油を使用する。起動時は粘度の低いA重油を使用するが、安定稼働時にはC重油を使用して発電する。

表2.5 発電所向けディーゼル発電機仕様

仕様	V型単動4サイクル 過給器, 空気冷却器付
シリンダ数	12
シリンダ容量	1500 L
圧縮比	12.5
回転数	514 min ⁻¹
定格出力	13 MW
排ガス流量	76000 m ³ N/h

(2) 発電所の機器構成

発電所の機器構成の概略をFig.2.2に示す。発電機からの排ガスは消音器により騒音を低減する。屋外に排出される前に、ばい煙を測定するためのばい煙測定口1が設置されている。屋外には排ガスの熱を回収するボイラが設置されている。排ガスはボイラで熱回収、消音器で騒音を低減した後、煙突から排出される。煙突には排ガス中のばい煙を測定するためのばい煙測定口2が設置されている。発電所によっては、熱回収ボイラと2次消音器の位置が逆になっている場合があるが、概ね下図のような構成である。

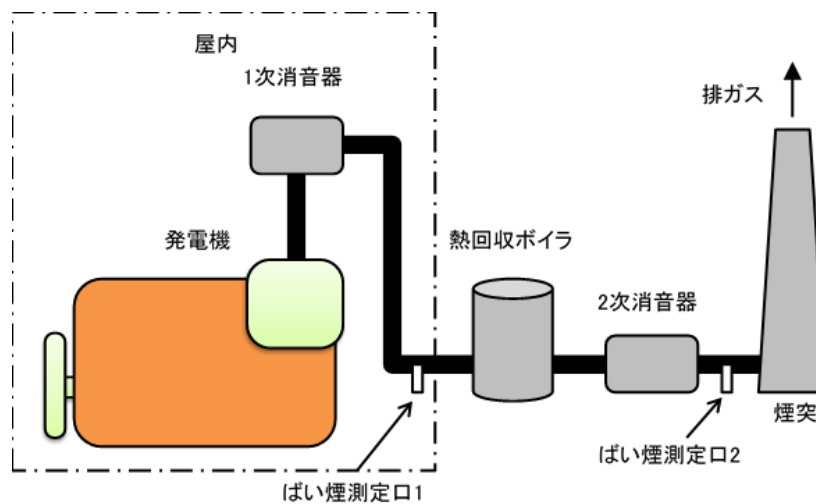


図2.2 発電所の機器構成の概略

(3) 流動層集塵機の設置位置検討

発電所で流動層集塵機を使用する場合の設置位置を検討した。流動層集塵機で流動媒体を流動させるためには10 kPa程度までの圧力が必要である。また、PM_{2.5}を除去するためには排ガス温度が300~400℃程度必要である。これらを踏まえて、発電所での設置位置を検討した。

・排ガス条件

発電機の後段に設置されている1次消音器の仕様を下表に示す。1次消音器は発電機の直後に設置されており、1次消音器の入口条件は、発電機の出口条件である排ガス条件と考えることができる。

表2.6 1次消音器の仕様

項目	仕様
入口温度	310 ~ 350℃
入口圧力	5 kPa
排ガス流量	76000 m ³ N/h

- ・排ガス温度

発電機のシリンダから排出される排ガスの温度は600°C以上あると考えられるが、実際に発電機より排出される温度は310～350°Cである。これは発電所で使用する大型の発電機には、一般的に過給器が装備されていることが要因である。過給器とは、排ガスの熱、圧力、運動エネルギーを利用し、発電機の吸入する空気を加圧する装置である。過給器でエネルギーを取り出された事により、排ガスの温度は低下した。本研究で検討している流動層集塵機は300～400°Cでの運用を予定しており、設置する位置はなるべく発電機に近い位置に配置する必要があると考えられる。発電機の排ガスが流動層集塵機の動作温度に満たない場合は、過給器の性能調整や排ガスを加熱する手段が必要になる。

- ・排ガス圧力

排ガスの圧力は5 kPa程度と考えられる。排ガスの圧力が流動層集塵機の流動媒体を流動させるのに十分な圧力であれば、別途ブロアを設置する必要はない。また、発電機から離れるに従って圧力損失で排ガスの圧力は低下するため、流動層集塵機は発電機になるべく近い位置に設置する必要がある。

- ・排ガス流量

排ガス流量は76000 m³N/hであり、今回設計している流動層集塵機の装置容量(ガス量)は10,000 m³N/hであることから、流動層集塵機は8台設置する必要がある。

4.2.2 焼却処分場での運用

廃棄物の焼却処分場で、流動層集塵機を使用する場合の運用を検討した。

(1) 焼却処分場の仕様

中部地方の2つの自治体に廃棄物の焼却処分場について問合せを実施した。1つ自治体の焼却処分上の排ガス処理量は、50,000 m³N/hで、もう一つの自治体は、95,000 m³N/hであった。流動層集塵機で処理する予定の排ガスの仕様を下表に示す。

表2.7 焼却処分場の排ガス仕様

項目	仕様
燃焼排ガス温度	800°C以上
燃焼室出口温度	300 ～ 400°C
排ガス冷却後温度	200°C以下
排ガス流量	50,000 ～ 95,000 m ³ N/h

(2) 焼却処分場の機器構成

廃棄物の焼却処分場の概略をFig.2.3に示す。廃棄物は燃焼室で焼却し処理される。発生した高温の排気ガスは冷却装置で冷却される。冷却装置は水を噴霧し排ガスを冷却する方法、ボイラによって熱回収する方法などがある。燃焼室からの排ガスは300～400°Cであるが、冷却装置によって200°C以下に冷却された後、集塵装置を用いて、すすなどの固形分を除去する。その後、触媒を用いて窒素酸化物やダイオキシン類を分解した後、煙突から大気に放出される。

(3) 流動層集塵機の設置位置検討

- ・排ガス温度

発電所で流動層集塵機を使用する場合の設置位置を検討した。今回、流動層集塵機は排ガス温度300～400°Cでの運用を想定し設計している。構成材料の物性から、500°Cまでは強度に問題なく使用できると考えられる。燃焼室から排出される排ガスは、300～400°Cであるため、燃焼室直後に流動層集塵機を設置することが必要であると考えられる。

- ・排ガス流量

排ガス流量は50,000 m³N/hの場合、今回設計している流動層集塵機の装置容量(ガス量)は10,000 m³N/hであることから、流動層集塵機は5台、95,000 m³N/hの場合は、10台設置する必要がある。

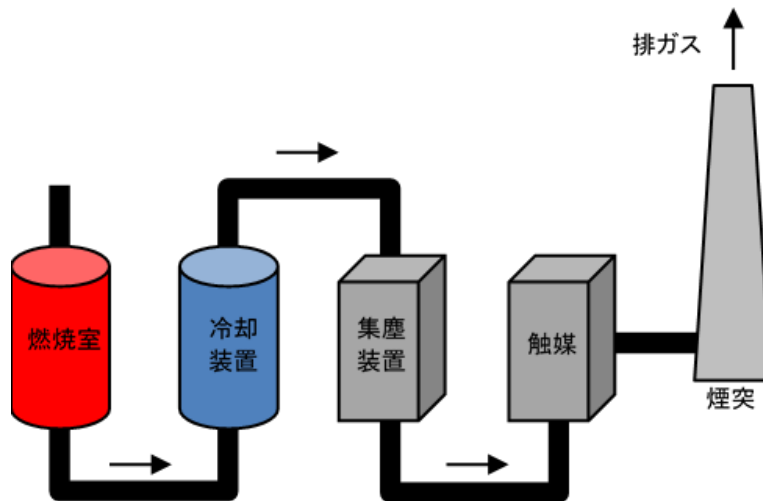


図2.3 廃棄物焼却処分場の概略

(4) ダイオキシン類の対策

焼却処分場では、燃焼室で800°Cの高温で2秒以上保持する条件で廃棄物を焼却し、その後の冷却装置で排ガスを急冷する。排ガスを急冷する理由は、ダイオキシンが300～500°C程度で生成されるため、排ガスがこの温度の時間を極力短くするためである。流動層集塵機はその機能上、ダイオキシンを分解する能力を有すると考えられるが、300～500°Cのダイオキシンが多く生成される温度帯にあるため、別途、ダイオキシン分解能力を調査する必要がある。

4.3 流動層集塵機の詳細設計

4.3.1 流動層集塵機の外形図

FSの標準設計値として表2.8の諸条件を採用し、流動層集塵機の外形図を以下のように設計した。この外形図を基に、製作図を作成した。製作図があれば、金属加工メーカーに依頼して、流動層集塵機を製作することができる。

表2.8 FSの標準設計値の諸条件

流動層空塔速度	0.4 m/s
流動層静止層高	100 mm
流動層温度	400°C
流動媒体平均径	0.3 mm
流動媒体	アルミナ粒子
装置容量 (ガス量)	大型 ; 40,000m ³ N/h, 小型 ; 4,000 m ³ N/h
装置仕様	
本体	鋼板製ボックス型
分散板	SUS316 多孔板 板厚1.0 mm以上

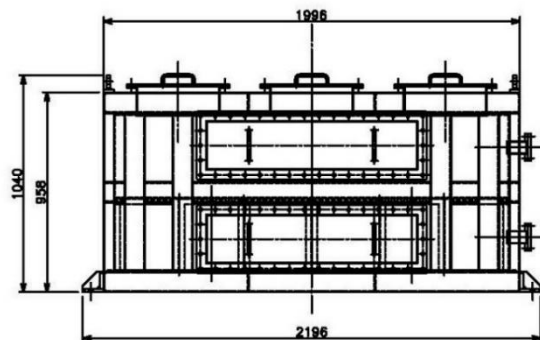


図2.4 流動層集塵機の正面 (短辺)

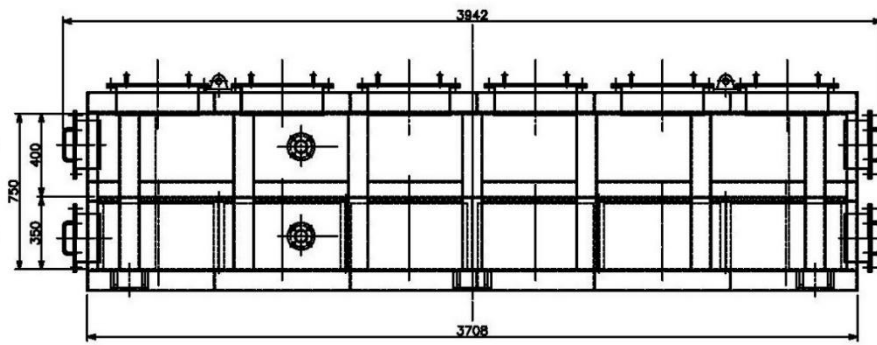


図2.5 流動層集塵機の側面図（長辺）

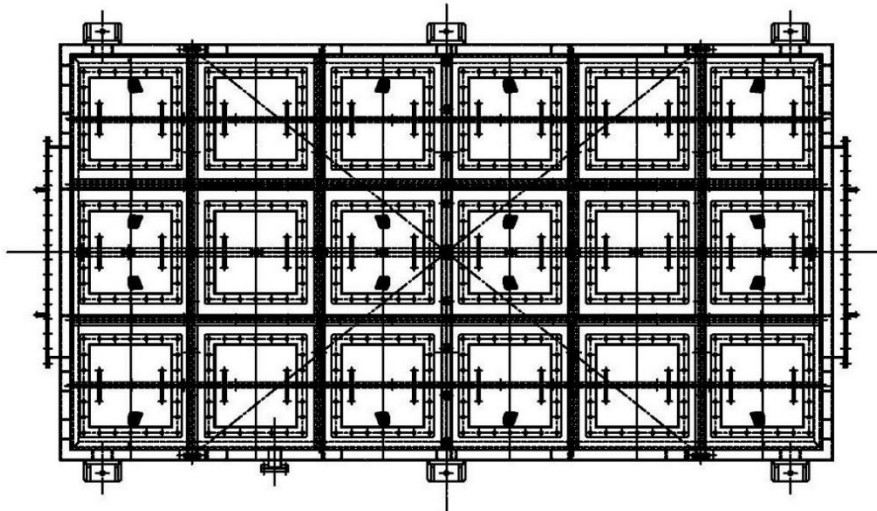


図2.6 流動層集塵機の平面図（上面）

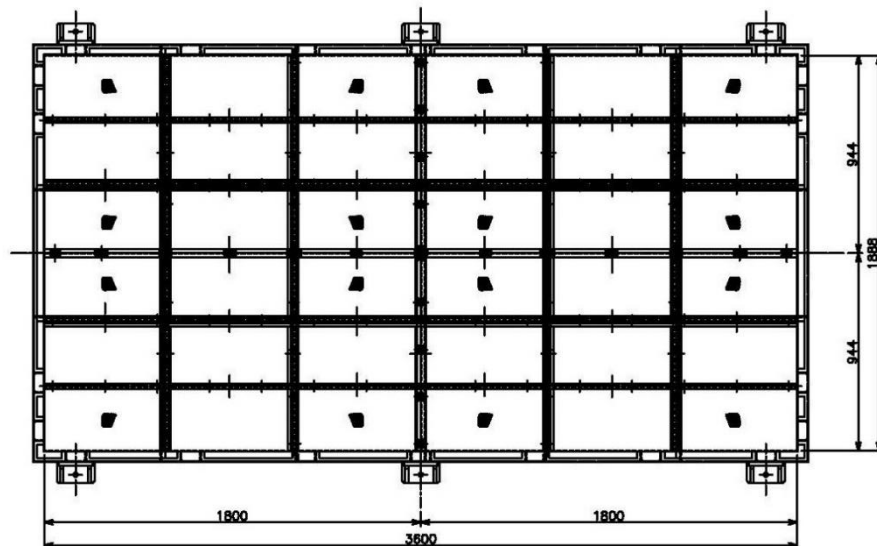


図2.7 流動層集塵機の平面図（分散板面）

4.3.2 設計の要点

(1) 吊り荷重

一般的に工場で使用される2.8 tクレーンで運搬可能なように、流動層集塵機の質量を2.8 t 以内の2.1 t で設計した。



図2.8 天井クレーンの例

(2) トラックでの運搬

一般的な輸送に使用される10tトラックで運搬できるように、流動層集塵機の大きさに注意した。10tトラックの荷台寸法は、W2340～2490 mm×L9500～10000 mmで、高さ制限は2500 mm程度である。流動層集塵機は、この寸法以下のW2196×L3942×H1040 mmで設計した。

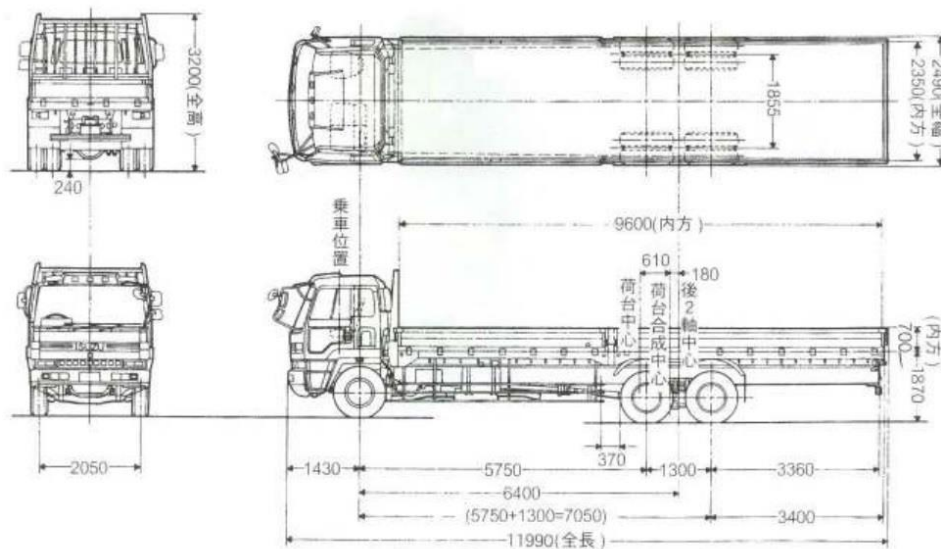


図2.9 一般的な10tトラックの寸法

(3) 排ガス配管との接続

流動層集塵機は中間研究結果報告書の概念設計図を元に設計した。概念設計図では流動層集塵機の出入口フランジは水平方向に長い角形フランジとなっていたため、製作図でもそのようになっている。通常、プラントでは、排ガス管は円形であるため、円形フランジと角形フランジの接続管を製作する必要がある。排ガス管の仕様が判明すれば、接続管を設計することは可能である。

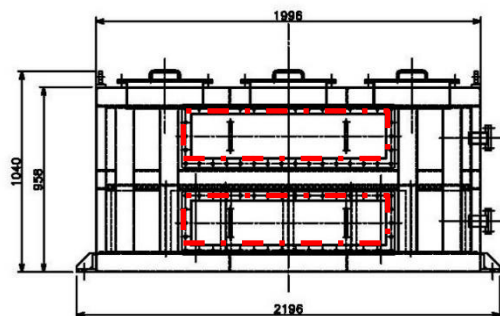


図2.10 出入口フランジの形状

(4) ガスケットの選定

耐熱温度が高く、面積が大きく、気密の取れるガスケットは入手が困難である。今回はドイツ製のノバフィットSSTC（耐熱温度550°C、長辺1120mm以下）を選定した。

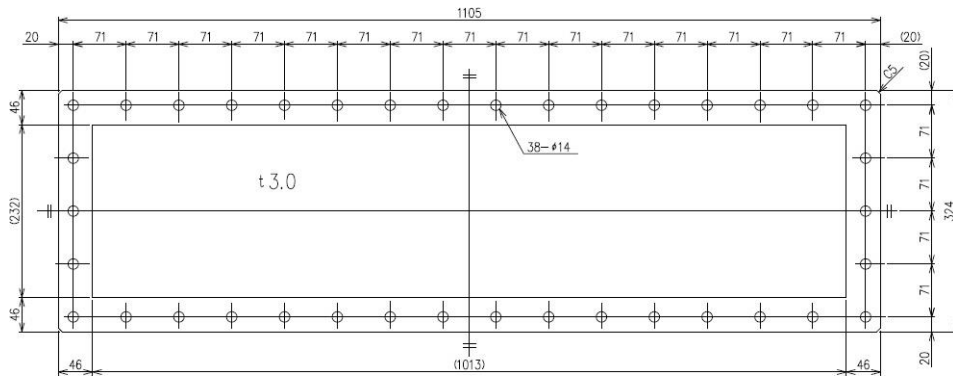


図2.11 ガスケット製作図

(5) 断熱材

流動層集塵機は400°C以下で運用するため、装置自体も400°C近くまで加熱される場合があると考えられる。設置するプラントの換気風量、安全対策に応じて、断熱材は設計可能である。



図2.12 断熱材の例

(6) 塗装

流動層集塵機は耐熱温度の高いステンレス製で設計した。ステンレス製であれば、本体価格は鉄製と比較すると高額であるが、耐熱塗装などが不要なく、塗装の手間とコストはかからない。



図2.13 耐熱塗装の例

(7) ボルトの材質

経験上、ステンレス製のボルトは高温で使用すると噛み込んで回すことが困難となるため、流動層集塵機の本体はステンレス製であるが、あえてボルトは鉄製とした。また、鉄製でも強度の高い強度区分8.8のボルトを仕様することとした。



図2.14 ボルトの例

(8) パネルの重さ

流動媒体の交換などのために、流動層集塵機の上にはパネルで開放できるようになっている。パネルは人の力で開けられるように、8 kgまでの質量とした。

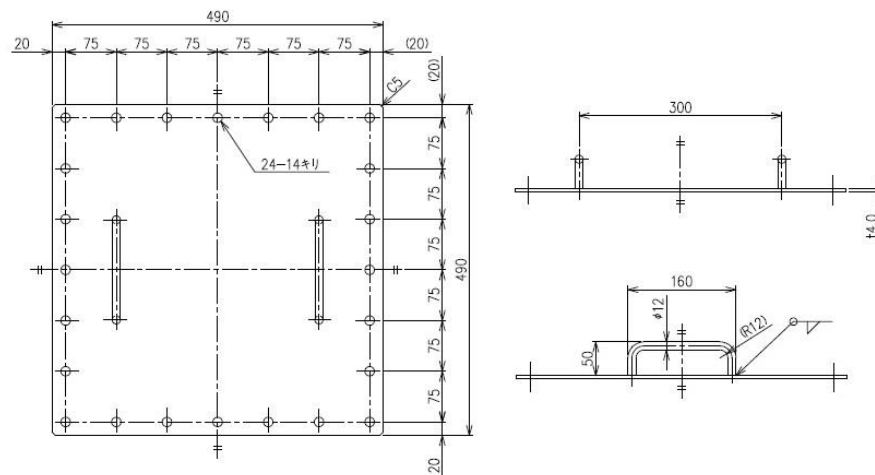


図2.15 パネルの製作図

(9) パネルのレイアウト

流動媒体の交換のために、吸引器等で搬出できるように上部はほぼ全面が開放できる構造とした。

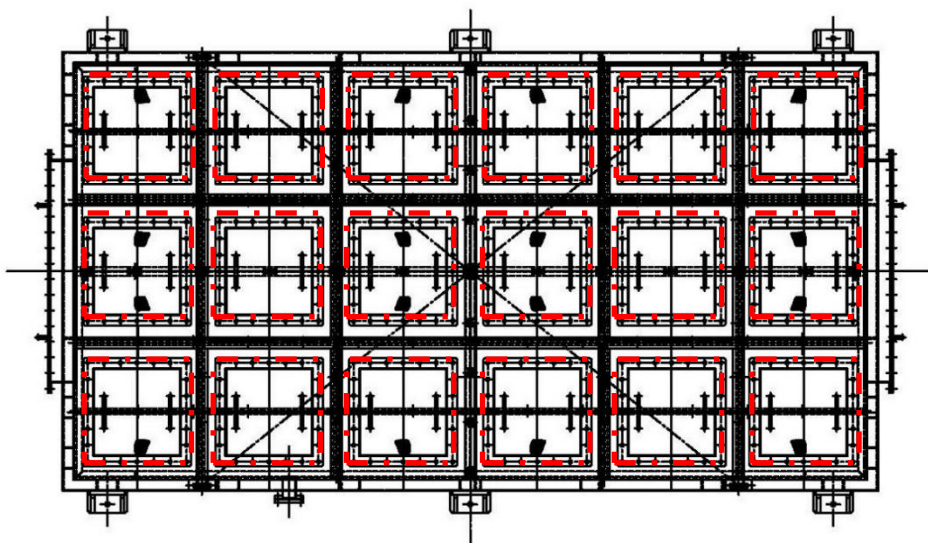


図2.16 上面パネル配置

(10) 吊耳の設置位置

流動層集塵機は長尺物のため、流動層集塵機の中央よりに吊耳を設置すると流動層集塵機は凸型に湾曲し、流動層集塵機の側面に近い側に設置すると流動層集塵機は凹型に湾曲する。これによって、内部の分散板が変形する恐れがある。装置の湾曲する方向が相殺するような位置に吊耳を設置し分散板の変形を抑える設計とした。

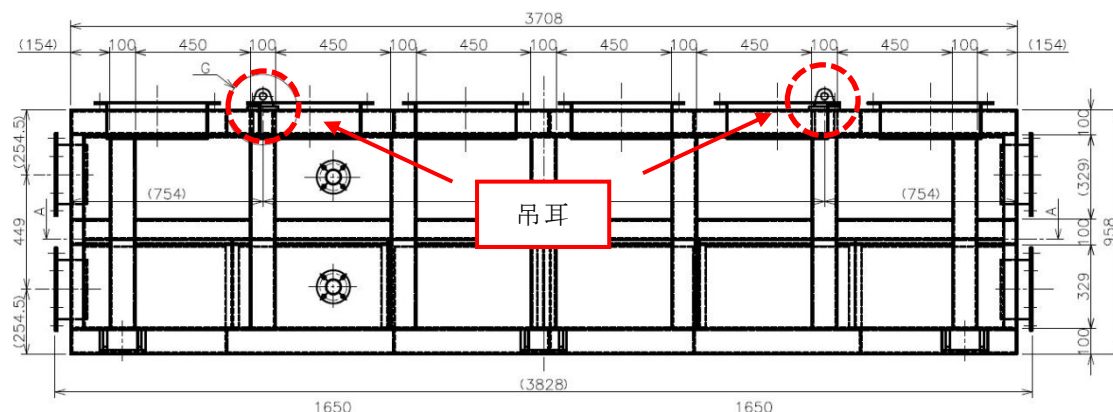


図2.17 吊耳の設置位置

4.4 流動層集塵機のコストダウン

2020年度の調査で、流動層集塵機の価格は11,824千円と試算した。2021年度は、この流動層集塵機のコストダウンを検討した。

4.4.1 耐圧設計のコストダウン

流動層集塵機の圧損が数kPa程度ということが判明しているが、正確な値は測定できていない。昨年度の設計では安全率を考慮して圧損を10kPaとして設計している。本年度は圧損を5 kPaにし、流動層集塵機の本体の板厚を4 mmから3 mmに変更した場合の、コストダウンの効果を試算した。

4.4.1.1 耐圧計算

(1) 側板の強度計算

圧力 p から最大の曲げ応力 σ_{max} を計算すると、 $\sigma_{max} = 0.45 \times pb^2 / t^2 = 0.45 \times 0.005 \times 329^2 / 3^2 = 27 \text{ N/mm}^2$ となる。許容曲げ応力 σ_a は昨年度の計算と同様に 92 N/mm^2 であるから、最大曲げ応力 σ_{max} は許容曲げ応力 σ_a より小さく、曲げに対する強度に問題はない。同様に最大たわみ δ_{max} を計算すると、 $\delta_{max} = 0.024 \times pb^4 / Et^3 = 0.024 \times 0.005 \times 329^4 / (16.2 \times 10^4 \times 3^3) = 0.321 \text{ mm}$ となる。たわみは鋼構造設計基準（日本建築学会）での通常たわみ許容量を参考にすると、短辺の300分の1以下にする必要がある。側板の短辺は329 mmであるため、許容されるたわみは1.10 mmとなる。最大たわみ δ_{max} は許容されるたわみ以下であった。圧損が5 kPaとした場合、側板の板厚を3 mmにしても、側板の強度に問題はない。

(2) 底板および天板の強度計算

圧力 p から最大の曲げ応力 σ_{max} を計算すると、 $\sigma_{max} = 0.3 \times pb^2 / t^2 = 0.3 \times 0.005 \times 560^2 / 3^2 = 52.3 \text{ N/mm}^2$ となる。許容曲げ応力 σ_a は分散板の計算と同様に 92 N/mm^2 であるから、最大曲げ応力 σ_{max} は許容応力 σ_a より小さく、曲げに対する強度に問題はない。同様に最大たわみ δ_{max} を計算すると、 $\delta_{max} = 0.014 \times pb^4 / Et^3 = 0.014 \times 0.005 \times 560^4 / (16.2 \times 10^4 \times 3^3) = 1.574 \text{ mm}$ となる。たわみは鋼構造設計基準（日本建築学会）での通常たわみ許容量を参考にすると、短辺の300分の1以下にする必要がある。底板および天板の短辺は560mmであるため、許容されるたわみは1.87 mmとなる。最大たわみ δ_{max} は許容されるたわみ以下であった。圧損が5 kPaとした場合、底板および天板の板厚を3 mmにしても、底板および天板の強度に問題はない。

(3) 重量変化とコストダウンの検討結果

前項までの計算により、流動層集塵機の内圧を昨年度の設計値10kPaから、5kPaに変更することで、本体板厚を4 mmから3 mmに変更しても強度に問題ないことが明らかとなった。本体板厚を4 mmから3 mmに変更した場合の重量変化は、側板は72 kg減少、底板は57 kg減少、サポートは19 kg減少、天板は37kg減少、上蓋は36 kg減少となる。なお、横蓋は長さが長い為、ひずみ防止のために板厚は4 mmのままとした。これらの重量減少分を合計すると合計で221 kgとなる。よって、総重量は、昨年度の設計では2100 kgとなっていたが、板厚を3 mmにすることで1880 kgに減量化することができる。

昨年度の設計値である、本体板厚を4 mmの場合の流動層集塵機の価格は11,824千円（総質量2100kg）、板厚を3 mmにした場合の流動層集塵機の価格は10,960千円（総質量1880kg）となる。これらの結果から、コストダウンの効果は864千円となる。

4.4.2 耐熱設計および分散板取付け方法によるコストダウン

昨年度は流動層集塵機内の流動層温度を400°Cとして設計している。流動層温度を300°Cまで低下させることができれば材質をSUSからSSに変更できる可能性があるため、流動層集塵機の価格は大幅に削減することができる。また、昨年度の設計では分散板を本体に全溶接する設計となっている。分散板の本体への取付けを溶接からネジ止めに変更できれば、流動層集塵機の価格を大幅に低減することができる。

(1) 流動層温度400°C、溶接仕様（昨年度の設計）

昨年度の設計では、分散板は本体に溶接取付けで、本体および分板の材質をSUSとした場合の流動層集塵機の価格は、ガスケット、ボルト、ナット類含み、本体価格（SUS304）9,384千円、分散板（SUS316）2,440千円となり、流動層集塵機価格は11,824千円となる。

(2) 流動層温度300°C仕様、ビス止め仕様

本体の材質をSUSからSSに変更し取付け方法をビス止めにした場合の流動層集塵機の価格は本体（SS400）5,265千円、分散板（SUS316）2,440千円となり、流動層集塵機価格は7,705千円となる。

(3) コストダウンの検討結果

昨年度の設計では、流動層集塵機の価格は11,824千円、耐熱設計と取付け方法を変更した場合の流動層集塵機の価格は7,705千円となる。この計算結果から、コストダウンの効果は4,119千円となる。

4.4.3 分散板の穴径変更によるコストダウン

分散板の穴径は、アルミナ粒子より大きい径であっても、運用時は排ガス等の流体が穴を流れているため、アルミナ粒子が穴から流下することはほとんどない。そこで、流動層集塵機に使用する分散板の開孔率を昨年度設計の1.6%のまま、穴径を0.3 mmから0.6 mmに変更し、穴の数を減少させた場合のコストダウンを検討する。

(1) CD額

穴径を0.3 mmから0.6 mmに変更すると、穴一つあたりの面積は4倍となる。そのため、同じ開孔率の分散板を製作する場合、穴の数を4分の1にすることができる。分散板の製作にかかる時間を約4分の1にすることができるため、コストダウンが可能となる。製作メーカーに見積を依頼したところ、穴径0.3 mmのレーザ加工の場合は2,440千円、穴径0.6 mmのレーザ加工の場合は2,208千円となり、使用する分散板の価格を232千円コストダウンが可能である。

4.5 まとめ

4.5.1 流動層集塵機の運用方法

(1) 発電所での運用

大型ディーゼル発電機で発電する発電所での流動層集塵機の運用を検討した結果、流動層集塵機の動作温度、圧力を確保するためには、なるべく発電機に近い位置に流動層集塵機を設置する必要があると

考えられる。また、13MWの発電機に流動層集塵機を使用する場合、今回、設計した仕様では、8台の流動層集塵機が必要な計算となった。

(2) 焼却処分場での運用

廃棄物処分場での流動層集塵機の運用を検討した結果、燃焼室からの排ガスも発電所と同様に300℃程度に低下している可能性がある。発電所と同様に、流動層集塵機をなるべく燃焼室に近い位置に設置する必要がある。また、排ガス流量が10,000 m³N/hの廃棄物処分場では、流動層集塵機は5台必要な計算となった。加えて、廃棄物処分という条件を考慮すると、今回の流動層集塵機の動作温度はダイオキシンの生成温度帯となるため、ダイオキシンの分解能力を調査する必要があると考えられる。

4.5.2 流動層集塵機の製作図

昨年度、流動層集塵機の外形図を作成した。本年度はこの外形図を基に、製作図を作成した。流動層集塵機の各部分の荷重、運搬方法等、10項目を考慮し、実際に流動層集塵機を製作できるように設計を実施した。この製作図があれば、金属加工メーカーにて流動層集塵機が製作可能である。

4.5.3 流動層集塵機のコストダウン

耐圧設計、耐熱設計および分散板取付け方法、分散板の穴径変更による流動層集塵機のコストダウンを試みた。流動層集塵機の設計を再考し、コストダウンがどの程度になるか試算した結果、耐圧を10kPaから5kPaに変更した場合は864千円、耐熱温度を400℃から300℃に変更し、取付けを全溶接からビス止めに変更した場合は、4,119千円、分散板の穴径を0.3 mmから0.6 mmに変更した場合は、232千円コストダウンが可能となる結果となった。

5. 研究目標の達成状況

本研究システムと既存システムとの比較から、本システムのほうがPM_{2.5}の捕集効率が高い。また連続再生温度について、既存システムではPMの燃焼に600℃程度の熱が必要であるが、本システムであれば300℃程度で実行可能である。一方、イニシャルコストおよびランニングコストについて、既存システムのデータを取得することはできなかったが、本システムで使用する流動層は装置形状が簡単であることから、分散板のコストが多少かかるものの既存システムよりもイニシャルコストが高くなることは考えにくい。さらに連続再生を実施する際のランニングコストについても、既存システムでは600℃程度の熱を外部から加える必要があるが、本システムであれば排熱程度で運用可能であることから、低く抑えられると考えられる。以上のことを踏まえるとともに、サブテーマ（1）の結果を基に、運搬や設置を考慮した詳細な製作図を設計するとともに、コスト削減への道筋を示したことから、本研究の目標はある程度達成したと考えている。

6. 引用文献

特に記載すべき事項はない。

Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

(1) 誌上発表

<査読付き論文>

【サブテーマ1】

- 1) K. YOKOO, H. MATSUNE, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, T. YAMAMOTO: Powder Technology, 355, 657-666 (2019) (IF : 5.134)
Promoting effect of water vapor on particle matter combustion in a low-temperature continuous regeneration type PM removal device using a fluidized bed.
- 2) K. YOKOO, H. MATSUNE, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, T. YAMAMOTO: Advanced Powder Technology, 31, 718-729 (2020) (IF : 4.833)
Kinetic modeling of PM combustion with relative velocity at low-temperature and numerical simulation of continuous regenerating type PM removal device that uses a fluidized bed.
- 3) K. YOKOO, A. KUSU, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, T. YAMAMOTO: Chemical Engineering Journal, 388, 124247 (2020) (IF : 13.273)
PM combustion enhancement to reduce continuous regeneration temperature of fluidized bed type PM removal device using catalyst-doped bed particle.
- 4) K. YOKOO, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Mechanical Engineering Letters, 6, 20-00444 (2021) (IF : -)
Parallelization of DEM simulation on distributed-memory computer via three-dimensional slice grid method.
- 5) K. YOKOO, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Powder Technology, 380, 506-517 (2021) (IF : 5.134)
Numerical investigation of PM filtration in fluidized-bed-type PM removal device based on force balance via CFD-DEM simulation.
- 6) K. YOKOO, A. WAKIZAKA, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Advanced Powder Technology, 32, 151-165 (2021) (IF : 4.833)
Experimental and numerical investigation of catalytic PM combustion in a fluidized bed type PM removal device for low-temperature continuous regeneration.
- 7) K. YOKOO, T. YAMAZAKI, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Advanced Powder Technology, 33, 103508 (2022) (IF : 4.833)
Increase in processing flue gas flow rate while maintaining the fluidization state and filtration performance in a low-temperature continuous regeneration filter using a fluidized bed.
- 8) K. YOKOO, M. KISHIDA, T. YAMAMOTO: Powder Technology, 402, 117336 (2022) (IF : 5.134)
CFD-IBM-DEM simulation for elucidation of PM filtration mechanisms in fluidized bed filter.

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表（査読なし）>

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

(2) 口頭発表 (学会等)

【サブテーマ1】

- 1) T. YAMAMOTO, K. YOKOO, H. MATSUNE, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, 11th Asian Aerosol Conference (2019) PM combustion enhancement effect and reaction mechanism by potassium in continuous regeneration type PM removal device.
- 2) T. YAMAMOTO, K. YOKOO, H. MATSUNE, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, European Aerosol Conference EAC 2019 (2019) Reduction of continuous regeneration temperature by potassium catalysis in fluidized bed type PM removal device.
- 3) K. YOKOO, T. YAMAMOTO, H. MATSUNE, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, APChE 2019 (2019) CFD-DEM analysis of PM filtration due to adhesion force using fluidized bed.
- 4) K. YOKOO, T. YAMAMOTO, H. MATSUNE, M. KISHIDA, J. TATEBAYAH, 2019 AIChE Annual Meeting (2019) Kinetic modeling of low-temperature PM combustion with relative velocity in the presence of water vapor.
- 5) 横尾健人, 山本剛, 岸田昌浩, 化学工学会第85年会 (2020) 流動層式PM除去装置におけるPM捕集挙動のCFD-DEMシミュレーション
- 6) 山本剛, 横尾健人, 岸田昌浩, 舘林恂, 第57回日本伝熱シンポジウム (2020) 流動層式PM除去装置における水蒸気による連続再生温度の低下
- 7) 横尾健人, 山本剛, 岸田昌浩, 混相流シンポジウム (2020) CFD-IBM-DEM数値計算に基づく流動層を用いたPM2.5除去に関するベッド粒子径の影響
- 8) 横尾健人, 山本剛, 岸田昌浩, 日本機械学会2020年度年次大会 (2020) 流動層式PM2.5除去装置のCFD-DEMシミュレーションと運転条件の影響
- 9) 横尾健人, 山本剛, 岸田昌浩, 化学工学会第51回秋季大会 (2020) PM2.5の凝集構造が充填層フィルタの集塵性能に及ぼす影響に関する数値計算
- 10) K. YOKOO, T. YAMAMOTO, M. KISHIDA, 2020 AIChE Annual Meeting (2020) CFD-IBM-DEM Analysis of PM Filtration in Fluidized Bed Based on Force Balance to Evaluate Operation Conditions.
- 11) 山崎智行, 横尾健人, 山本剛, 岸田昌浩, 第58回燃焼シンポジウム (2020) 流動層を用いた連続再生式PM除去装置の処理量増加と燃焼挙動に与える影響
- 12) 横尾健人, 山本剛, 岸田昌浩, 第34回数値流体力学シンポジウム (2020) CFD-IBM-DEM数値計算による流動層フィルタの流動状態とPM2.5除去の関係
- 13) 山本剛, 横尾健人, 岸田昌浩, 舘林恂, 第58回日本伝熱シンポジウム (2021) カリウム触媒と水蒸気を用いたPM燃焼促進による流動層式PM除去装置の連続再生温度の低減
- 14) 山崎智行, 大島一真, 山本剛, 岸田昌浩, 化学工学会第52回秋季大会 (2021) 流動層式PM除去装置における最適設計因子の探索と処理量増加
- 15) 山本剛, 令和3年度化学工学会粒子・流体プロセス部会ミキシング技術分科会夏季セミナー「ミキシング技術とシミュレーション技術の進展」 (2021) 流動層を用いた高効率連続再生式PM除去装置の開発に関する研究
- 16) 【予定】山本剛, 横尾健人, 岸田昌浩, 第59回日本伝熱シンポジウム (2022) カリウム触媒の増強による流動層式PM除去装置の連続再生温度のさらなる低減

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

(3) 「国民との科学・技術対話」の実施

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

(4) マスコミ等への公表・報道等>

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

(5) 本研究費の研究成果による受賞

【サブテーマ1】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

IV. 英文Abstract

Development of Highly Efficient Continuous Regeneration Type PM_{2.5} Removal Device Operated at Waste Heat

Principal Investigator: Tsuyoshi YAMAMOTO

Institution: Kyushu University, Fukuoka City, Fukuoka, JAPAN

Tel: +81-92-802-2752 / Fax: +81-92-802-2752

E-mail: yamamoto@chem-eng.kyushu-u.ac.jp

Cooperated by: Aichi Electric CO., LTD.

[Abstract]

Key Words: PM_{2.5}, Adhesion force, Fluidized bed, Continuous regeneration, Low combustion, Potassium, Water vapor

We have developed a highly efficient PM_{2.5} Removal device of the continuous regeneration type, which could be operated at a bed temperature of 400°C, utilizing low-temperature fluidized bed combustion and relying on adhesion forces for the effective collection of small PM particles. In this study, to decrease the continuous regeneration temperature and develop the PM_{2.5} removal device that can be operated with waste heat, the combustion rate of PM is promoted by the effect of promoting low-temperature combustion of water vapor and the catalytic effect of potassium. When water vapor exists, water vapor promotes PM combustion and the concentration of CO₂ significantly increases. It is reported that complex groups (e.g., carboxyl groups) are generated with water vapor and carboxyl groups transfer into CO₂ even at several hundred degrees. Potassium was doped on the bed particles as K₂CO₃. K₂CO₃ promotes PM combustion and selectively enhances CO₂ generation. CO₂ is generated from the oxidation of K₂CO₃ and transformation of K₂O₂ to K₂O with the consumption of PM. K₂O is converted to K₂CO₃ with the re-absorption of CO₂. The lowest continuous regeneration temperature decreases to 330°C with maintaining the collection efficiency 100% owing to the promoting effect of water vapor and the catalytic effect of potassium on PM combustion. To further reduce continuous regeneration temperature, a rough surface bed particle was selected, and the potassium supported amount was increased. As a result, although existing continuous regeneration devices require temperatures of 600°C for PM combustion, the device reported herein could be operated at a bed temperature of 300°C. In addition, scale-up data was acquired by scaling up the experimental equipment and a demonstration experiment using diesel was conducted with the aim of putting this device into practical use. From the comparison before and after the scale-up, it is shown that the scale-up device has the same results as the device before the scale-up. The demonstration experiment using diesel was carried out continuously for 540 min. The collection efficiency is maintained at 100%, and it is shown that this device has the excellent PM collection characteristics. On the other hand, a feasibility study was conducted based on experimental data. It is indicated that the superiority of this device in terms of PM_{2.5} collection performance, initial cost, and running cost. A detailed production drawing of this device was designed considering the transportation and installation of the device, and the path to cost reduction was shown.