E233

ミスト化ゼオライト粒子による炭酸ガス吸収の促進 ～続報 操作条件の影響～

Enhancement of CO₂ Gas Absorption by utilizing Zeolite Particle with Mist Formation 2nd Report : The Effect of operating condition

正 瀧本 昭 (金沢大)

正 多田 幸生 (金沢大)

正 大西 元 (金沢大)

○学 土橋 亮太 (金沢大院)

Akira TAKIMOTO, Yukio TADA, Hajime ONISHI and Ryota DOBASHI,
Kanazawa University, 2-40-20 Kodatsuno Kanazawa, 920-8667

High efficiency of gas absorption may be one of the important techniques for protection of global environment. We have proposed the new method for Carbon Dioxide gas absorption, that is the condensate film method by utilizing condensation process and the solution condensate method. In present investigation, a new concept of the enhancement of gas absorption by utilizing zeolite particles with mist formation was proposed, and its proof experiment was conducted with regard to the gas absorption rate in vertical cooling tube. By comparing the present proposed method with falling liquid film method and our past-proposed methods, the effectiveness of the gas absorption through the zeolite particles and mist droplet was clarified. Furthermore, the effect of operating condition such as gas flow rate, gas concentration, temperature, vapor concentration and zeolite particle number density was examined.

Key Words: Physical Gas Absorption, Zeolite Particle, Mist Formation, Carbon Dioxide

1. 緒 言

温室効果ガスによる地球温暖化は地球規模に及ぶ重大な問題である。短期的に実行可能な CO₂ 削減などの取り組みが急務であることは勿論のこと、中・長期的な視野に立った対策を講じる必要がある。

本研究は以上の観点から、高効率な CO₂ の分離・回収技術の開発を目的に、凝縮とミスト化を併用した新たなガス吸収法（凝縮液膜法）を提案し、CO₂ ガスと水蒸気の混合気流を対象に凝縮吸収実験、理論解析を行い、流下液膜法との比較によりその有効性を明らかにしてきた⁽¹⁾⁽²⁾。しかし、凝縮速度が支配的となる本方式ではガス溶解度から回収率に限界があった。前報では、その改良案として溶液効果を付加し、本方式のガス吸収能の向上に対するその有用性を明らかにしてきた⁽³⁾。本報ではさらにガス回収率の向上を目指して、ガス吸着能の高いゼオライト微粒子をミスト核とする CO₂ ガス分離・回収技術を提案し⁽⁴⁾、その有用性ならびに操作条件の影響について実験的に追求したものである。

2. システム原理

本研究で提案する、ミスト化ゼオライト粒子を利用した新たなガス吸収法を Fig.1 に示す。ガス分子が凝縮性気体を含む高温の混合気を冷却面と接触させ凝縮液膜の形成と同時にガス分子を液膜表面へ吸収させる。この時、液膜表面におけるガス濃度は凝縮により常に更新され、ガス吸収は気相内ガス拡散律速となり大幅な促進が期待される。また、気流中に熱力学的に不安定な過飽和な状態の生成により、安定系への移行過程の一環として気流中に含まれるゼオライト微粒子を核としたミストの発生を伴う。このミスト発生は、ガス吸収に対する吸収表面積の増加とガス分子の拡散距離の短縮など、二次的な吸収促進効果をもたらすこととなる。また、ミスト核としてのゼオライト微粒子は炭酸ガス吸着能力が高く、よりガス吸収の促進が期待される。

3. 実験装置と方法

実験装置の概要を Fig.2 に示す。コンプレッサーから供給された加圧空気はマスフローコントローラにより流量調

Fig.1 Gas absorption method by utilizing Zeolite particle with mist formation

節され、ヒーター、加湿器により、加熱・調湿され混合部において試料ガスと混合、試験主要部へ流入する。同時に上部空気溜まりより、スクリュフィーダーによってゼオライト微粒子 0.7 μm (ZSM-5) が所定量添加される。試験円管は内径 9.09mm、外形 9.5mm の螺旋溝付銅円管で、長さ 424mm の冷却部と 750mm の助走部からなる。冷却部における混合気体の凝縮、およびゼオライト微粒子のミスト化によってガスが吸収される。

実験は供試ガスに二酸化炭素を用い、壁面冷却温度を $T_w=3.0^\circ\text{C}$ 一定で、入口流速 $U_{in}=1.0\sim3.0\text{m/s}$ 、入口温度 $T_{in}=60\sim80^\circ\text{C}$ 、入口蒸気濃度 $\rho_{vin}=0.05\sim0.22\text{kg/m}^3$ 、入口ガス濃度 $\rho_{gin}=0.005\sim0.015\text{kg/m}^3$ の範囲で種々変化させ、定常状態のもとガス吸収実験を行った。試験部出口から排出されるガス濃度を、ガスクロマトグラフにより測定し、ガス吸収量を算出した。

4. 結果と考察

4.1 ガス吸収に対する操作条件の影響 Fig.3 にガス吸収速度についてゼオライト数密度との関係で、入口温度、入口蒸気濃度、入口流速および入口ガス濃度をパラメータにそれぞれ示す。いずれの結果も、ゼオライト数密度の増

Fig.2 Experimental apparatus

加に伴いガス吸収速度は増加しているが、数密度が約 0.4×10^{15} particles/m³ を境にほぼ頭打ちとなり一定値を示している。即ちガス吸収速度に対してゼオライトの数密度に臨界値が存在することがわかる。この臨界数密度は、入口流速の増加により若干小さくなるものの、他の操作パラメータによる影響はほとんど見られない。これは、流速の増加に伴い管内流速速度勾配が大きくなることにより、粒子の凝集が促進されたことが一因と考えられる。また本実験の操作条件の影響としては、今回用いた疎水性ゼオライトの特徴として、入口温度および入口蒸気濃度の影響は殆ど見られないが、入口ガス濃度および入口流速の増加に伴う物質移動速度の増加により、ガス吸収速度が増加することがわかる。

4.2 ミスト化の効果 Langmuir の吸着等温式を用いて計算したゼオライトへの CO₂ 全圧下でのガス吸着能、および実験条件に相当する分圧下での CO₂ ガス吸着能について、ガス吸収速度をゼオライト数密度との関係で実験結果と比較し Fig.4 に示す。ゼオライトをミスト化した本方式の実験結果は、飽和吸着を仮定した計算結果に比してより高い値を示しており、ゼオライトミスト化を用いた本方式が有効であることがわかる。

Fig.3 Relation between rate of gas adsorption and zeolite particle number density under variety of operating condition

4.3 ガス回収率 ガス回収率と凝縮速度の関係について本研究で提案したこれまでのガス回収法と、ここで提案するゼオライトを用いたガス回収法とを比較して Fig.5 に示す。ガス回収率が凝縮速度に支配される溶液凝縮液膜法に対し、本方式では低い凝縮速度においても高いガス回収率を示し、また、ゼオライトを用いない凝縮液膜法に比べ、約 3 オーダー近いガス回収率の向上を示しており、本方式の有効性が明らかといえる。

5. 結言

- (1) 供給ゼオライト数密度の増加に伴いガス吸収速度は増加する。しかし、ある臨界数密度に達すると、ミスト化粒子が凝集するためガス吸収速度は頭打ちとなる。
- (2) Langmuir の吸着等温式を用いて計算したガス吸収速度と実験値との比較により、ゼオライトをミスト化する本方式の有効性が確認された。
- (3) 凝縮液膜法と比較し、ゼオライト供給時において約 3 オーダー近いガス回収率の向上が得られ、ゼオライトの優れた吸着能が確認されるとともに本方式の有効性が明らかとなった。

参考文献

- (1) 瀧本・他 2 名, 第 35 回日本伝熱シンポジウム, (1998), 735.
- (2) 瀧本・他 2 名, 冷凍空調論文集, 18, 2, (2001), 135.
- (3) 瀧本・他 2 名, JSME2000 年次大会, No.00-1(2000), 729.
- (4) 瀧本・他 2 名, JSME2002 年次大会, (2002).

Fig.4 Effect of mist formation

Fig.5 Efficiency of gas collection