廃棄プラスチック樹脂のサーマルリサイクルに関する研究*

(PET 樹脂粉末燃焼における未燃率の数値予測)

山北 龍児^{*1}, 石野 洋二郎^{*1}, 大岩 紀生^{*1}An Investigation on Thermal Recycling of Recycled Plastic Resin
(Numerical Prediction of Unburnt Rate in PET-Resin Powder Combustion)Ryuji YAMAKITA, Yojiro ISHINO and Norio OHIWA^{*2}^{*2} Graduate School of Engineering, Nagoya Institute of Technology,
Gokiso-cho, Showa-ku, Nagoya-shi, Aichi, 466-8555 Japan

To burn PET-resin powder as an alternative fuel and to realize the effective thermal recycling of a great deal of recycled PET-resin, a series of experimental investigations has been made on the physical aspect of PET-powder combustion in the industrial burner. The results showed that a large amount of PET-powder of up to about 80% is exhausted without burn-up in the open atmospheric operation, whereas it is perfectly consumed in the high temperature in-furnace operation. Understanding of the relationship between the heating time and the unburnt rate of PET-powder is therefore necessary for getting an important knowledge to reduce the amount of unburnt PET-powder. In this paper, the behavior of particle diameter is first modeled according to those experimentally measured, a particle-size histogram of PET-powder is transformed to a particle-number distribution by stepping the particle diameter at 0.01 μm intervals, and finally a numerical prediction of the unburnt rate in the PET-powder combustion is attempted by introducing the parcel approximation. The results give good quantitative agreement between the unburnt rates of PET-powder measured experimentally and those predicted numerically.

Key Words: Heterogeneous Combustion, Thermal Recycling, Micro PET-Resin Particle, PET-Resin Powder, Unburnt Rate, Numerical Prediction

1. 緒 言

本研究ではこれまでに、廃棄プラスチック樹脂の一種である PET 樹脂粉末 (Polyethylene terephthalate resin powder, PET-resin あるいは PET-powder と略記) を助燃料とし、二次空気またはプロパン・空気予混合気とともにバーナ内に供給したときの燃焼特性を調べてきた。研究では主として物理的側面に的を絞り、窯業用助燃料として用いた PET 粉末の炉内燃焼特性⁽¹⁾⁽²⁾、PIV/PTV 計測法を用いた大気開放燃焼時における燃え残り要因の検討⁽³⁾、高温酸化性雰囲気中における PET 粉末燃焼特性の把握⁽⁴⁾、単一球状 PET 微粒子の急速加熱過程の可視化実験⁽⁵⁾⁽⁶⁾、および球対称一次元熱伝導解析⁽⁷⁾といった巨視的な粉末燃焼挙動から微視的な微粒子挙動の解明に至るさまざまな実験および解析的アプローチを試みてきた。

しかしながら、効果的な PET 粉末燃焼を可能にする実用バーナを検討する際、未燃 PET 樹脂排出量の低減に関するデータは重要である。特に、バーナ構

造・寸法などを策定する場合、高温燃焼場における PET 樹脂微粒子の加熱から消滅に至るまでの過程を詳細に観察し、加熱時間と未燃率 (PET 粉末供給量に対する未燃 PET 樹脂排出量の割合) との関係をあらかじめ把握することは、非常に有意義な知見を与える。

そこで本論文では、球形 PET 微粒子の急速加熱実験の画像計測結果に基づく粒子挙動のモデル化と PET 粉末の粒子サイズのヒストグラムの粒子個数分布への変換を行い、これにパーセル近似を導入して PET 粉末燃焼における未燃率の数値予測を試みた。

記 号

- $d, d(t)$: 時刻 t における PET 粒子の直径 μm
 d_0 : PET 粒子の初期直径 μm
 d_{150} : モデル化の基準とした粒子の初期直径 (=150 μm)
 d_m : PET 粉末の質量メディアン直径 μm
 d_s : 分級された粒子直径 μm
 $F_M(d_0)$: PET 粉末の質量分布
 $M(t)$: 時刻 t における未燃率 %
 N_0 : 粒子個数
 Nu : ヌッセルト数

* 原稿受付 2006年2月22日。

^{*1} 正員, 名古屋工業大学大学院工学研究科 (〒466-8555 名古屋市昭和区御器所町)。

E-mail: oiwa.norio@nitech.ac.jp

$Nu_{ex,150}$: 150 μm の粒子を用いた加熱実験時のヌッセ
ルト数の概算値 (=2.3)

q_s : 質量割合 %

T_g : 加熱温度 $^{\circ}\text{C}$

t : 加熱時間 ms

t_i : 各素過程の所要時間 ($i=l, m, s, v$) ms

t_l : 液体加熱時間 ms

t_m : 融解時間 ms

t_s : 固体加熱時間 ms

t_v : 熱分解・ガス化時間 ms

t_{ef} : モデルにおける加熱に伴う膨張終了時間
ms

t_{vf} : モデルにおける熱分解・ガス化終了時間
ms

ϕ : プロパン・空気予混合気の当量比

ρ_0 : PET 粒子の初期密度 kg/m^3

$\rho(t)$: 直径 $d(t)$ の粒子の密度 kg/m^3

2. 実験装置および方法

2.1 実験装置 図1に実験装置の系統図を示す。装置は、急速加熱用小形バーナ(外径9mm, 内径7mm), 球状PET微粒子懸架装置, 点火装置, プロパン・空気予混合気供給系, 光学顕微鏡(Olympus製, ECETr-II), 高速度CCDビデオカメラ(Photron製, FASTCAM-PCI-i, 最大撮影速度: 10 000 fps, 最小露光時間: 16.7 μs), およびPCコントローラからなる。光学顕微鏡の光源には白色高輝度LEDを用い, ハレーションを抑制するためにND-4フィルタ(KENKO製, PRO ND4)をカメラレンズ前に取付けた。

Fig. 1 Optical system used for abrupt heating experiment

Fig. 2 A series of a single heating process

2.2 実験手順および方法

不規則な形状をしたPET粒子の球状粒子への成形法とその支持法, および急速加熱過程に関しては文献(6)に記載されているので, 本論文では, 1回の急速加熱実験の代表的な手順(a)~(c)を図2に示すにとどめる。なお, PET微粒子の設置位置に関しては, 当量比 $\phi=0.8$ のプロパン・空気混合気を供給した急速加熱用バーナ下流中心軸上の平均温度と酸素濃度をあらかじめ測定し, 加熱温度 $T_g=1600^{\circ}\text{C}$ を満たす座標を決定している。温度測定には素線径50 μm のR形熱電対を, 酸素濃度測定には O_2 -Analyzer (Testo, 350 M/XL)を用いた。PET粒子加熱点における測定酸素濃度は4.2%である。

本実験では, はじめにプロパン・空気混合気の当量比を $\phi=0.8$ に設定し, 点火直後の燃焼ガスによってPET微粒子を急速加熱したときの高速度顕微鏡観察を行い, その燃焼挙動を詳細に観察した。その際, 得られた任意の時刻における画像から粒子の長径と短径の測定を行い, その単純平均値を代表粒子径とし, 粒子径の時間変化を調べ, 総合的に粒子挙動について考察・検討した。さらに得られた画像を解析して融解開始, 熱分解・ガス化開始および熱分解・ガス化終了時刻を読み取り, すでに得られた解析結果⁽⁷⁾と比較・検討した。

続いて, それらの検討結果に簡単化のための仮定を導入し, 一方で加熱から熱分解・ガス化過程に至るまでのPET微粒子挙動のモデル化を行い, 他方では球形粒子仮定に基づいて粒度分布を個数分布に置換し, パーセル近似を適用することでPET粉末燃焼における未燃率の数値予測を試みた。

3. 実験結果および考察

3.1 PET微粒子の高速度顕微鏡観察 PET粒子の急速加熱過程の高速度顕微鏡撮影結果の一例を図3に示す。図3(a), (b)および図3(c)は, それぞれ初期粒子径を $d_0=100, 150 \mu\text{m}$ および $199 \mu\text{m}$ とした場合である。加熱温度は $T_g=1600^{\circ}\text{C}$ であり, 撮影速度は1 000 fps, 露光時間は0.1 msに設定されている。図中の左上には加熱後の時刻 t [ms]が併記されている。また, PET微粒子の撮影画像から得られた粒子直径の時間変化を図4に示す。横軸は加熱後の時刻 t [ms]を, 縦軸は粒子径 d [μm]を, 図中の数値は初期粒子径 d_0 [μm]を表す。

図3(a)によれば, $d_0=100 \mu\text{m}$ の粒子では, $t \approx 4$ msで融解が開始し, $t \approx 7$ msで粒子全体が液滴となって形状が崩れ, 熱分解温度まで達した部分から熱分

(a) $d_0=100\ \mu\text{m}$ (b) $d_0=150\ \mu\text{m}$ (c) $d_0=199\ \mu\text{m}$ Fig. 3 High-speed direct microscopic photographs of PET-particle ($\phi=0.8$, $T_0=1600^\circ\text{C}$)

解によるガス化が始まる。それとほぼ同時に粒子を覆うように輝炎が形成され、 $t \leq 16\ \text{ms}$ までエンベロップ形の輝炎が観察されるが、 $t \approx 16\ \text{ms}$ になると輝炎が吹き飛び、熱分解・ガス化が終了する。

次に、図 3(b) に示した $d_0=150\ \mu\text{m}$ の場合を見ると、まず $t \approx 6\ \text{ms}$ で融解が始まる。 $t \approx 15\ \text{ms}$ で熱分解によるガス化が始まり、そのガス化ガスの発生から

Fig. 4 Variations of the diameter of the PET particle with the initial diameter d_0

Fig. 5 An example of microscopic photograph of collected unburnt PET-particles

約 1 ms 後に後流形の輝炎が現れ、 $t \approx 30\ \text{ms}$ に至るまで輝炎と粒子の間に球殻状の弱い発光領域が形成されている。本論文には示さないが、干渉フィルタを用いた発光観察によれば、輝炎発生後の粒子前面に明確な CH ラジカル発光の軌跡が検知されている。したがって、輝炎と青炎が樹脂液滴まわりにエンベロップ火炎を構成していることが知れる。

熱分解によるガス化が始まると粒子は急激に膨張し始め、その液滴表面には多重の凸形の膨らみが存在する。多重の丸い膨らみは不規則に、そして頻繁に現れ、その間、粒子はタングステン線上で踊るように動き回っている。そして $t \approx 30\ \text{ms}$ 以降から、粒子内部からのガス化ガスの放出が顕著になり、粒子は急激に小さくなる。これに伴って、形成された輝炎は徐々に粒子を覆うように接近し、その後、 $t \approx 39\ \text{ms}$ で PET 粒子の熱分解によるガス化が終了し、火炎も消滅する。

さらに図 3(c) に示すように、初期粒子径が $d_0=199\ \mu\text{m}$ と大きくなっても、基本的な粒子挙動は $d_0=150\ \mu\text{m}$ の場合と同様である。しかし、熱分解・ガス化後の粒子直径の急激な増加とその液滴表面に重畳して現れる凸形の膨らみが $d_0=150\ \mu\text{m}$ に比して顕著に現れている。その結果、 $t < 60\ \text{ms}$ の期間の粒子径変

化に明確な二段階の増加過程が出現している。

ここで、熱分解によるガス化後の急激な膨張に言及すると、図4からこの間の急激な粒子直径の増加率は1.15~1.25, したがって体積膨張率は1.50~1.95にも達し、温度上昇による線膨張のみでは説明できないことがわかる。燃焼途中で吹き消された粒子の顕微鏡観察および回収された未燃粒子の顕微鏡観察から、これに対する最も現実的な要因の一つとして、大きな表面積・体積比を有する微小樹脂液滴の急速加熱に起因する液滴内部における熱分解・ガス化に伴う泡立ち(bubbling)の存在が指摘されている⁽³⁾⁽⁶⁾。図5に回収された未燃粒子の顕微鏡写真の一例を示す。大小さまざまな寸法と種々の形状の粒子が観察され、個々の粒子の表面あるいは内部に見られる多くの気泡の存在が泡立ちの発生を示唆している。

なお、PET粒子の初期直径 d_0 によらず、熱分解によるガス化後、タングステン線上に残留した炭素が長時間をかけて表面燃焼しながら消滅する。PET樹脂の加熱温度700°Cの熱分解残留物中に17%(wt)のチャー分が含まれるという分析結果⁽⁸⁾を加味すると、この表面燃焼は熱分解に伴う残留チャー分の影響が主要因であると考えられる。また図4から、初期直径の増加とともに融解、膨張、熱分解によるガス化等の各素過程が長くなることが知れる。

3.2 球対称一次元熱伝導解析結果との比較

PET微粒子の画像観察および解析で得られた時間経過の結果を図6に示す。図6中の●、○印および□印はそれぞれ図3の高速顕微鏡観察結果から読み取った粒子の融解開始、熱分解・ガス化開始および熱分解・ガス化終了時刻を表す。一方、図中の4種類の曲線は微小浮遊近似等の仮定によって簡単化された球対

称一次元熱伝導解析⁽⁷⁾により算出された各素過程までの所要時間 t_i を示す。

図6を見ると、融解開始時刻(●印)と熱分解・ガス化開始時刻(○印)が解析によって予測された所要時間 t_m および t_i とほぼ一致している。この結果に対しては、球形に成形したPET粒子の採用が解析条件と合致していることが大きく影響し、熱分解・ガス化開始まで粒子が球形を維持していることがわかる。しかし、熱分解・ガス化終了時刻を見ると、測定結果(□印)のほうが解析結果の所要時間 t_o に比して非常に長い。この理由として、解析には実験で観察されたような熱膨張と泡立ちによる体積膨張過程が考慮されていないことが挙げられる。なお、解析で得られた熱分解・ガス化終了時間(点線) t_o に図4から読み取った泡立ちによる膨張過程の時間を加味すれば、観察された熱分解・ガス化終了時刻(□印)とほぼ一致する。

4. 解析手法

4.1 粒子挙動のモデル化

本解析では、残留炭素の燃焼・消滅期間は考慮せず、加熱開始から熱分解に伴うガス化終了時刻までをモデル化の対象とする。この場合、数多くのプラスチック樹脂の中でPET樹脂が数少ないチャー分を含有する樹脂であるという特殊性、および残留炭素の表面燃焼の複雑性を加味してモデル化を簡単化した。図7に、図3に示した単一の球形PET微粒子の加熱から残留炭素の消滅に至る過程のうち、加熱開始から熱分解によるガス化終了時刻までの粒子径の二乗の時間変化を示す。縦軸は粒子径の二乗 d^2 [μm^2]、横軸は加熱時間 t [ms]を意味し、○、△、□印はそれぞれ初期直径 d_0 が100、150 μm および199 μm の粒子の挙動を表す。加熱温度は $T_g=1600^\circ\text{C}$ である。

Fig. 6 Comparison of the experimental results with the numerical results, where ●, ○ and □ indicate the times when the melting of PET starts, the thermal decomposition and gasification starts and the latter terminates, respectively

Fig. 7 Comparison of the modeled particle behavior with the measured particle behavior

図7から、それぞれの初期粒子径に対して、粒子は加熱によっていったん膨張し、その後、熱分解・ガス化に起因して一定の傾きで減少することが知れる。そこで近似的ではあるが、実際の膨張過程を加味した以下のような現実性の高い粒子挙動のモデル化を試みた。

モデル化するにあたっては、図3(b)および図4と図7の△印で示された $d_0=150\mu\text{m}$ の粒子挙動を基準とし、加熱から熱分解・ガス化に至るまでの過程を二つの素過程(加熱に伴う膨張過程と熱分解に伴うガス化過程)に分割し、各過程は独立して進行すると仮定する。そして、加熱に伴う膨張挙動を膨張比 $[d(t)d_0]^3$ と時刻 t の直線近似で、一方、熱分解・ガス化に伴う減少過程を d^2 -則を仮定してモデル化し、初期粒径 d_0 と時間 t の間に相似則を適用する。これにより、以下のように、粒子径 $d_0=150\mu\text{m}$ の粒子挙動を用いて、任意の初期粒子径の粒子挙動を表現することが可能となる。

任意の初期直径に対する加熱時間

$$t = t_{150}(d_0/d_{150})^2(Nu_{ex,150}/Nu) \quad \cdots\cdots\cdots (1)$$

加熱に伴う膨張過程

$$[d(t)d_0]^3 = [1 + 1.80 \times 10^{-2}(Nu/Nu_{ex,150})(d_{150}/d_0)^2 t] \cdots\cdots\cdots (2)$$

熱分解に伴うガス化過程

$$d(t)^2 = (2.49d_0)^2 - 3.60 \times 10^{-3}(Nu/Nu_{ex,150})t \quad \cdots\cdots\cdots (3)$$

加熱に伴う膨張終了時刻

$$t_{ef} = 1.36 \times 10^{-3} d_0^3 (Nu_{ex,150}/Nu) \quad \cdots\cdots\cdots (4)$$

熱分解に伴うガス化終了時刻

$$t_{vf} = 1.73 \times 10^{-3} d_0^3 (Nu_{ex,150}/Nu) \quad \cdots\cdots\cdots (5)$$

ここで $d(t)$ 、 d_0 、 d_{150} はそれぞれ時刻 t における粒子径、初期粒子径およびモデル化の基準とした粒子の初期直径(=150 μm)を、 Nu 、 $Nu_{ex,150}$ は任意の加熱条件下のヌッセルト数および $d_0=150\mu\text{m}$ の球形PET微粒子の加熱実験時のヌッセルト数(=2.3)を表す。得られたモデル粒子挙動を3組の直線群を用いて図7に併記する。実線、破線および一点鎖線は、それぞれ $d_0=100, 150\mu\text{m}$ および $199\mu\text{m}$ の粒子の挙動を表す。なお、矢印で示した折れ点は加熱に伴う膨張終了時刻 t_{ef} の軌跡に、 t 軸との交点(●印)は熱分解に伴うガス化終了時刻 t_{vf} の軌跡に対応する。図7によれば、モデル化された粒子挙動は基準粒子に比較して粗大な粒子に対しては過小評価、微細な粒子に対しては過大評価傾向にあるものの、全体としては画像計測で得られた粒子挙動を比較的良好に表現していることがわかる。

Fig. 8 An example of transformation processes of particle-size histogram to particle-number distribution, where $d_m=145\mu\text{m}$

4.2 個数分布への置換 本論文では、計算負荷を軽減させる目的で、はん用の噴霧燃焼の数値シミュレーションコードでもよく用いられるパーセル近似⁽⁹⁾を適用して未燃率の数値予測を行った。そのため、データとして与えられたPET粉末の粒径のヒストグラムから累積分布、質量分布および個数分布への変換が必要がある。その変換手順を、質量メディアン直径 $d_m=145\mu\text{m}$ の粉末を例に挙げて説明する。

図8(a)、(b)に、用いたPET粉末のヒストグラムと変換された粒子の個数分布 $N_0(d_0)$ をそれぞれ示す。まず、図8(a)に示されるヒストグラムを累積分布に変換する。次にPET粒子を球形と仮定し、粒子径の分割幅を $\Delta d_0=0.01\mu\text{m}$ に設定して、不連続的な累積分布をできるだけ滑らかな粒子径累積分布に置き換える。この平滑化された累積分布を微分・正規化して質量分布 $F_M(d_0)$ に変換し、最後に、次式を用いて質量分布 $F_M(d_0)$ を粒子数分布 $N_0(d_0)$ に変換すると、図8(b)に示す滑らかな曲線が得られる。

$$N_0(d_0) = 6F_M(d_0)/\pi\rho_0 d_0^3 \quad \cdots\cdots\cdots (6)$$

ここで、 ρ_0 はPET粒子の初期密度を意味する。

4.3 未燃率の算出 加熱開始後の任意の時刻 t における未燃率 $M(t)$ は、加熱時刻 t における残留PET粒子の質量を初期の供給質量で除した値として次式のように表される。ただし、未燃率にチャー分は考慮されていない。

$$M(t) = \frac{\sum N_0[d(t)]\rho[d(t)]d(t)^3 + \sum N_0[d(t)]\rho_i d(t)^3}{\sum N_0(d_0)\rho_0 d_0^3} \quad \cdots\cdots\cdots (7)$$

ここで右辺の分子第1項と第2項は、それぞれ時刻 t における加熱膨張過程にある粒子の質量および熱分解・ガス化過程にある粒子の質量を意味し、分母はPET粉末供給量を意味する。また、加熱膨張時の直径 $d(t)$ の粒子の密度 $\rho[d(t)]$ は質量保存則に従って

変化させ、熱分解・ガス化時の密度は $\rho_t = 8.91 \times 10^2 \text{ kg/m}^3$ と一定に保たれる。なお、初期密度 ρ_0 は $1.38 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ である。

5. 解析結果および考察

本解析では、まず式(1)～(5)の粒子挙動モデルの中から式(2)および式(3)を用いて、初期粒子径 d_0 をもつ粒子直径の時間変化 $d(t)$ を表現する。そして、図8(b)に示す初期個数分布 $N_0(d_0)$ をもとに、 $N_0[d(t)]$ 個の同一直径 $d(t)$ の粒子からなる仮想的な粒子群を追跡し(パーセル近似⁽⁹⁾)、時刻 t における個数分布 $N_0[d(t)]$ を把握する。得られた $N_0[d(t)]$ をもとに、粒子径 $d(t)$ の挙動および熱分解・ガス化量を単純に $N_0[d(t)]$ 倍し、式(7)を用いて未燃率 $M(t)$ を予測する。以下に、個数分布と未燃率の挙動について得られた結果を示す。

5・1 個数分布の時間変化 単一 PET 微粒子の急速加熱実験に対応する条件(加熱温度 $T_g = 1600^\circ\text{C}$ 、ヌッセルト数 $Nu = 2.3^{(7)(9)}$)において、PET 粉末の質量メディアン直径 $d_m (= 89.7, 145, 185 \mu\text{m})$ をパラメータとしたときの、加熱時刻 t に伴う個数分布の変化 $N_0[d(t)]$ について考察する。図9に個数分布の時間変化を示す。図9中、(a)～(c)、(d)～(f)および(g)～(h)はそれぞれ加熱初期、加熱中期および加熱後期における代表的な個数分布の形状変化を示す。横

軸は時刻 t における球状粒子の直径 $d(t)$ を、縦軸はその粒子数 $N_0[d(t)]$ を意味する。それぞれのメディアン直径の粉末の個数分布を表示するにあたり、 $N_0 < 1$ の個数は物理的に意味をもたないこと、および粒子数が広範囲にわたって変化することを加味して、縦軸の粒子個数を対数表示した。

図9(a)は、3種類の質量メディアン直径 d_m を有する PET 粉末の加熱開始時 ($t = 0 \text{ ms}$) における初期個数分布 $N_0[d(0)] [= N_0(d_0)]$ に相当する。これにより、 d_m が大きくなると分布が右側に移動し、微細な粒子数の減少と粗大な粒子数の増加が現れることがわかる。ここで、図9(a)の初期個数分布を図9(b)～(h)の個数分布と比較すると、以下のような定性的粒子挙動が得られる。まず、温度上昇に起因する熱膨張は、初期粒子数を維持したまま粒子径を徐々に増加させ、分布を右方向に移動させる。それに対して、熱分解・ガス化は粒子数も粒子径も減少させ、時間の経過とともに分布形状を平たんにしながら横軸に接近させる。なお、図9(b)以降の分布曲線に見られる折れ点は、加熱に伴う膨張過程と熱分解に伴うガス化過程の境界に対応する。

加熱開始から $t = 2 \text{ ms}$ [図9(b)] で、 $d_m = 89.7 \mu\text{m}$ および $145 \mu\text{m}$ の個数分布に折れ点(図中の矢印)が現れる。それに対して、 $d_m = 185 \mu\text{m}$ の大きな初期メディアン直径の PET 粉末の個数分布には折れ点は

Fig. 9 Variations of particle-number distributions with time, where $Nu = 2.3$

現れず、わずかな右側への分布の移動のみが認められる。このことは、 $30\text{ }\mu\text{m}$ 程度の微細粒子は速やかに熱分解温度まで加熱され、熱分解・ガス化によって粒径を減じ加熱初期段階の早期に消滅すること、約 $50\text{ }\mu\text{m}$ より大きな初期粒子は熱膨張過程にあって粒子径を増加させることを示している。 $t=4\text{ ms}$ になると、 $d_m=185\text{ }\mu\text{m}$ の個数分布にも明確な折れ点が現れ、熱分解・ガス化過程まで進行した微細な粒子の存在が示されている。なお、 $t=0\sim 4\text{ ms}$ の初期加熱の間、 $d\geq 150\text{ }\mu\text{m}$ の粒子の個数分布形状はほとんど変化していない。

続いて、図9(d)～(f)に示される加熱中期の $t=8\sim 32\text{ ms}$ における個数分布を見ると、初期粒子径によらず折れ点の粒子径がさらに右側に移動し、 $t=8\text{ ms}$ における $d\approx 90\text{ }\mu\text{m}$ から $t=32\text{ ms}$ における $d\approx 180\text{ }\mu\text{m}$ へと増大している。このことは、加熱開始後 $t=32\text{ ms}$ になると、約 $180\text{ }\mu\text{m}$ より小さな粒子はすべて熱分解・ガス化過程にあることを意味している。またこの期間では、個数分布が次第に平坦化されていくこと、加熱に伴う膨張によって加熱直後の初期よりも粗大な粒子径が多く存在していくことなどの共通点がうかがえる。

最後に、図9(g)、(h)に示される $t>32\text{ ms}$ の加熱後期の個数分布を見ると、メディアン直径 d_m によらず加熱中期の分布傾向がそのまま観察され、時間の経過とともに折れ点の位置が粗大な粒子側へ移行していくことがわかる。さらに時間が経過して、不連続折れ点における粒子径がそれぞれのメディアン直径のPET粉末中の最大粒子の直径に達すると、その粉末のすべての粒子が熱分解・ガス化過程に入ることになり、その後、熱分解・ガス化によって粒子径も粒子数もともに減少していき、ついには消滅に至る。初期メディアン直径 $d_m=89.7\text{ }\mu\text{m}$ を有する粉末を例にとると、 $t\approx 60\text{ ms}$ で折れ点における粒子直径が粉末中の最大粒子直径に達し、約 20 ms 後の $t\approx 80\text{ ms}$ に消滅する。この挙動は、図9(g)から図9(h)への個数分布の変化によってよく表現されている。

以上の解析結果および考察に基づいて、大小さまざまなPET粒子群からなるPET粉末の集成的燃焼挙動を定性的に検討する。上記の粒子の個数分布の時間変化によれば、微細な粒子は早期に熱分解・ガス化・燃焼により消滅し、それらの燃焼が一方で後続する微細な粒子の熱分解・ガス化・燃焼を、他方では比較的粗大な粒子の加熱に伴う膨張・融解・熱分解を促進すると考えられる。したがって、メディアン直径が小さく微細な粒子を多く含む粉末ほど、加熱の初期段階か

Fig. 10 Comparison of the numerical results with the experimental results

ら活発な燃焼が起こり、結果として、未燃率の低減が可能になると予測される。

5・2 未燃率の数値予測 図10に、質量メディアン直径 d_m およびヌッセルト数 Nu を変化させたときの未燃率の時間変化を示す。図10の3本の太線は単一微粒子実験($Nu=2.3^{(7)(9)}$)、細線は工業用バーナにおけるPET粉末燃焼実験($Nu=3.5^{(3)}$)に対応する条件下での解析結果を表し、実線、破線、一点破線はそれぞれ $d_m=89.7, 145\text{ }\mu\text{m}$ および $185\text{ }\mu\text{m}$ の未燃率を表す。

図10から、 $Nu=2.3$ の場合に着目すると、微細な粒子を多く含む $d_m=89.7\text{ }\mu\text{m}$ の場合、未燃率は加熱の初期段階で急激に減少し、 $t=40\text{ ms}$ ですでに $M\leq 10\%$ となり、それ以後、徐々に減少していく。一方、比較的粗大な粒子を多く含む $d_m=145, 185\text{ }\mu\text{m}$ の場合には、 $d_m=89.7\text{ }\mu\text{m}$ に比べ緩やかな減少傾向を示し、 $t=50\text{ ms}$ でそれぞれ $M\approx 25\%$ および $M\approx 42\%$ になることが知れる。これにより、未燃率に及ぼす初期平均粒径の著しい影響を知ることができる。

ヌッセルト数の影響に関しては、式(2)および式(3)で示されているように、単一微粒子実験を基準としたヌッセルト数の比 $Nu/Nu_{ex,150}$ で表現され、 Nu が大きいくほど加熱が促進され、未燃率が小さくなることがわかる。 $d_m=89.7\text{ }\mu\text{m}$ の場合を見ると、粒子がすべて消滅するまでの加熱時刻が $Nu=2.3$ の場合の $t\approx 80\text{ ms}$ から $Nu=3.5$ の場合の $t\approx 50\text{ ms}$ へと約0.7倍($Nu/Nu_{ex,150}$ の逆数に相当)短くなっていることから容易に理解できる。

5・3 予測値と実測値の比較・検討 最後に、工業用バーナを用いたPET粉末燃焼実験で得られた未燃率の実測値($Nu=3.5$)を図10に併記し、細線($Nu=3.5$)で示した予測値との比較・検討を行った。図中の○、□印および△印は、質量メディアン直径 $d_m=176.4\text{ }\mu\text{m}$ のPET粉末をそれぞれ $d_s\leq 100\text{ }\mu\text{m}$, 100

$\mu\text{m} < d_s \leq 180 \mu\text{m}$ および $d_s > 180 \mu\text{m}$ に分級して燃焼させた場合を表す。この場合、数値予測の加熱時間に相当する PET 粒子の燃焼場滞在時間の算出には PTV 計測結果⁽³⁾を用いた。

ここで、未燃率の実測値をどの予測値と比較するかについて検討する。PET 粉末をふるいで分級する場合、小さな粒子径範囲で分級された粉末には微細粒子が偏って多く含まれ、大きな粒子範囲で分級された粉末には粗大粒子が偏って含まれる。この特徴は滑らかな個数分布をもつ数値予測対象の粉末と大きく異なる。そこでこのような個数分布特性の差を加味して、 $d_m = 89.7 \mu\text{m}$ の予測値と $d_s \leq 100 \mu\text{m}$ の実測値(○印)を、 $d_m = 185 \mu\text{m}$ の予測値と $100 \mu\text{m} < d_s \leq 180 \mu\text{m}$ の実測値(□印)を比較する。

図 10 によれば、 $d_m = 89.7 \mu\text{m}$ の予測値と $d_s \leq 100 \mu\text{m}$ の実測値(○印)、および $d_m = 185 \mu\text{m}$ の予測値と $100 \mu\text{m} < d_s \leq 180 \mu\text{m}$ の実測値(□印)の差はそれぞれ 6.2% および 3.2% であり、計算値はよく未燃率を予測している。この結果は、物理的・化学的諸現象が複雑に絡み合ったプラスチック樹脂の熱分解・ガス化・燃焼過程でも、現象の巨視的特徴を把握し適切に加味すれば、簡単なモデルでも未燃率を予測可能であることを示唆している。しかし詳細に見ると、数値予測値は実測値を過小評価している。この要因として、まず、PET 樹脂に固有の残留チャー分が加味されていないことがあげられる。そのほかに、上述の個数分布の差、パーセル近似の適用があげられ、実際の PET 粉末燃焼場における粒子間の相互干渉から生じる局所的な温度分布とそれに伴う熱伝達率の評価を適切に行っていないことに起因するものと考えられる。

以上から、PET 粉末に対応した寸法の球形 PET 微粒子の加熱実験をもとに物理過程およびヌッセルト数の影響を適切に表現し加味すれば、単純化された本解析モデルでも PET 粉末燃焼時の未燃率を十分に数値予測することが可能であり、一連の本モデル化手法の妥当性を示すことができた。

6. 結 言

本論文では、球形 PET 微粒子の急速加熱実験の画像計測結果に基づいて粒子挙動のモデル化を行い、パーセル近似を適用することにより、任意の平均粒径の PET 粉末燃焼における未燃率の数値予測を試みた。得られた結果は以下のように要約される。

(1) 単一樹脂微粒子の急速加熱過程および回収された未燃粒子の高速度顕微鏡観察結果に基づいて、熱分解・ガス化による樹脂液滴内部の泡立ちが加熱初期

の著しい体積膨張の主要因となり、同時に液滴表面に多重の凸形の膨らみを生じさせることを明らかにした。

(2) 単一 PET 微粒子加熱実験の粒子挙動を加熱に伴う膨張および熱分解に伴うガス化過程の二つの独立した素過程に分割し、相似則を適用することで簡単なモデル化を行った。これにより、加熱・熱分解・ガス化過程における粒子直径の時間変化に対する現実性の高いモデル表現が可能となった。

(3) 供試 PET 粉末の粒子サイズのヒストグラムに球状粒子仮定を導入し、滑らかな粒子の個数分布に置換することにより、パーセル近似の適用を可能にした。これにヌッセルト数の変化を加味して、任意の仕様の PET 粉末の任意の加熱時間における粒子の個数分布の挙動と未燃率の数値予測を可能にした。

(4) 未燃率の数値予測値と実測値はよい一致を示し、これにより、本論文における一連のモデル化の妥当性が示された。

文 献

- (1) Yamakita, R. et al., An Investigation on Thermal Recycling of Recycled Plastic Resin (Combustion Characteristics of PET-Resin Powder in a Ceramic Kiln Furnace), *Trans. JSME*, (in Japanese), *Series B*, Vol. 71, No. 701 (2005), pp. 357-364.
- (2) Yamakita, R. et al., An Investigation on Thermal Recycling of Recycled Plastic Resin (Effects of Auxiliary Rate and Median Diameter of PET-Resin Powder), *Trans. JSME*, (in Japanese), *Series B*, Vol. 71, No. 711 (2005), pp. 2792-2799.
- (3) Yamakita, R. et al., An Investigation on Thermal Recycling of Recycled Plastic Resin (PIV/PTV Measurements of Flow Characteristics and Appearances of Flying PET-Particles in the Improved Industrial Burner), *Trans. JSME*, (in Japanese), *Series B*, Vol. 72, No. 713 (2006), pp. 187-193.
- (4) Yamakita, R. et al., An Investigation on Thermal Recycling of Recycled Plastic Resin (Combustion Characteristics of Polyethylene Terephthalate Resin Powder in a High Temperature Oxidizing Atmosphere), *JSME Int. J., Series B*, Vol. 48, No. 1 (2005), pp. 83-91.
- (5) Yamakita, R. et al., High-Speed Direct Microscopic Observations of Ignition and Burning Processes of a Micro Plastic-Resin Particle Under Stationary and Abrupt Heating, *Proc. 1st Int. Symp. on Micro and Nano Technology*, (2005), CD-ROM: Paper No. XXXIV-C-04.
- (6) Yamakita, R. et al., Appearances of Multiple Micro Explosions, Micro Jets and Micro Diffusion Flames Around an Abrupt Heated Micro PET-Resin Particle, *Proc. 5th Asia-Pacific Conf. on Comb.*, (2005), pp. 209-212.
- (7) Yamakita, R. et al., An Investigation on Thermal Recycling of Recycled Plastic Resin (Spherically Symmetric Analysis of Abrupt Heating Processes of a

- Micro Plastic-Resin Particle), *Trans. JSME*, (in Japanese), *Series B*, Vol. 71, No. 708 (2005), pp. 2154-2161.
- (8) Arai, N. and Miura, T. ed., *Guidelines of Practical Furnace Design and Control*, (in Japanese), (2001), p. 208, Techno-system Co. Ltd.
- (9) Nakamura, M. et al., The Effects of Energy Exchange Between Droplets and Gaseous Phase and a Parcel Model on Numerical Simulations of Spray Combustion, *Proc. Thermal Eng. Conf. '05*, (in Japanese), No. 05-17 (2005), pp. 87-88.
-