

■原著論文/ORIGINAL PAPER■

予混合触媒燃焼技術の脱臭装置への適応性に関する研究

Studies on Premixed Catalytic Combustion Technique for Deodorizer

松永 秀一*・大越 昭夫・阿曾 良之

MATSUNAGA, Shuichi*, OKOSHI, Akio, ASO, Yoshiyuki

¹ 日本製鋼所 環境システム開発センター 〒051-8505 室蘭市茶津町4番地
Japan Steel Works, Ltd., 4 Chatsu-machi, Muroran, Hokkaido 051-8505, Japan

2004年7月22日受付; 2005年1月18日受理/Received 22 July, 2004; Accepted 18 January, 2005

Abstract : In a catalytic combustion deodorizer, it is advantageous for the running cost to use the premixed fuel combustion technique which requires that the premixed gas be burned completely in the catalysts. This paper describes the catalytic combustion characteristics of the premixed gas and the stable combustion region for kerosene in platinum catalysts, which were examined using a fundamental experimental setup. The stable combustion conditions were obtained under the inlet temperature T_{in} of the premixed fuel gas, where $T_{in} \geq 465$ K, the space velocity $SV \leq 24000$ hr⁻¹, and the equivalence ratio is the optimum value, depending on the T_{in} . Applying these results to the catalytic deodorizer with a heat exchanger, we found that in order to broaden the stable combustion region, it was effective to increase the space velocity, the heat exchange ratio, and the inlet temperature of a foul-smelling gas.

Key Words : Catalyst, Premixed Combustion, Deodorizer, Kerosene, Stable combustion region

1. 緒言

昨今の環境意識の高まりにより、脱臭市場も堅調な伸びを示しており、多種多様な臭気に合わせた脱臭技術の開発が進められている。燃焼脱臭技術は幅広い臭気への適応性を有するのが特長で、そのメカニズムは、臭気性の有機成分を燃焼(酸化)させることで、CO₂やH₂Oなどの無臭成分とするものである。現在の燃焼脱臭方式は、直接燃焼式、触媒燃焼式、蓄熱燃焼式の三つが主流[1-2]となっており、ここ数年、省エネルギーの観点から蓄熱燃焼式の普及が著しい伸びを示しているが、今なお半数以上の需要は触媒式である。

触媒燃焼式の長所は、表1に示すように比較的低温で脱臭処理できるため運転コストが安い、サーマルNO_xの生成が抑制できる、蓄熱燃焼式と比較して装置が安価、コンパクトなどが挙げられる。一方、短所は触媒の被毒成分による適用制限があるなど、必ずしも万能ではなく更なる改善が望まれる。

著者らは、予混合触媒燃焼技術を利用した脱臭装置の開

発を行っている。予混合触媒燃焼技術を応用した燃焼機器の開発は各分野で進んでおり、ガスタービン燃焼器や民生機器などへの適用が盛んに研究されている[3-7]。しかし、脱臭装置への適用についての研究は少ない。

脱臭装置において、予混合触媒燃焼を利用する利点は、運転コストの削減にある。運転コストの大部分は、触媒の加熱に要するエネルギー費である。加熱方法については、電気ヒータまたはバーナーの使用が大半であるが、大型製品においては、費用面からバーナーを使用する場合が一般的である。しかし、バーナー加熱の場合、図1に示すように、脱臭対象の臭気ガス A Nm³/min に加え、本来脱臭が不要な空気 a Nm³/min が、バーナー燃焼用として系外から導入されるため、実際の総処理風量が $(A+a)$ Nm³/min となる。そのため、触媒の空間速度が不必要に高くなり、加熱に際しては余分な燃料費が必要となる。この a Nm³/min の占める割合は、100~200 K 加熱する場合で約5~10%であり、即ち同程度の燃料費の増加を意味する。例えば、処理風量が 100 Nm³/min の製品では、5~10 Nm³/min の空気を 100~200 K 加熱する燃料費に相当し、連続操業ではその影響は少なくない。

一方、予混合触媒燃焼を利用すれば、臭気ガスに含まれる酸素を利用できるため、系外からの空気 a Nm³/min の

* Corresponding author. E-mail: shuichi_matsunaga@jsw.co.jp

Table 1 Deodorization efficiency of Pt catalyst.*1

Substance	Inlet temp.(K)	Inlet conc.(ppm)	Removal percentage (%)
CO	383	380	>99(odorless)
Glutaraldehyde/Vapor	513	3400/80	>99(odorless)
Formaldehyde	433	1000	>99(odorless)
Ethyl alcohol	523	1008	>99(odorless)
Ammonia/Vapor	523	850/2000	>99(odorless)
Trimethylamine	543	1473	>99(odorless)
Toluene	623	537	>99(odorless)
MEK	513	638	>99(odorless)
Cyclohexane	553	551	>99(odorless)
Ethyl acetate	573	587	>99(odorless)
DMF	533	740	>99(odorless)
Methylfuran	423	80	>99(odorless)
n-Butyric aldehyde	483	90	>99(odorless)
Dimethylsulfide	433	13	>99(odorless)
Aceton	573	300	>99(odorless)

*1 Technical data of Tanaka Kikinzoku Kogyo K.K.

導入が不要で、臭気ガス $A \text{ Nm}^3/\text{min}$ のみを純粋に処理できる。また、燃料の混合を十分行えば、触媒温度を均一に保つことができ、さらに触媒温度が最高温度となるため、バーナーからの熱損失分だけ燃料を削減できる。その結果、燃料費と触媒量の削減が可能となる[8]。しかしながら、脱臭装置へ予混合触媒燃焼を適用する条件として、触媒の常用耐熱温度以下での使用と、触媒内での予混合気の燃焼完結が不可欠である(完全触媒燃焼方式)。

そこで本研究では、脱臭装置における予混合触媒燃焼の適正条件を把握するために、基礎的な予混合触媒燃焼実験により以下の内容を実施した。まず、各燃料(灯油、メタン、プロパン)と触媒(白金、パラジウム)による実験によりその反応性を調べ、脱臭装置に適した組み合わせを選定した。次に、予混合気条件(予混合気温度、当量比、空間速度)を変えて実験を行い、予混合触媒燃焼の燃焼特性を調査した。以上から得られた結果を元に、完全触媒燃焼が可能な燃焼範囲について整理し、さらに脱臭装置の構成を

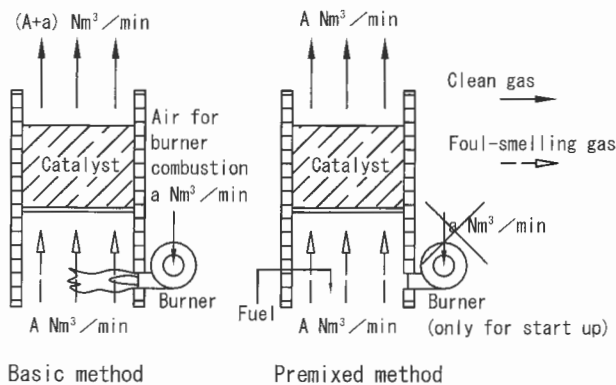


Fig.1 Comparison of basic method and premixed technique.

考慮して、熱回収のみによる運転が継続的に可能な燃焼範囲について明らかにした。

2. 実験装置および実験方法

2.1. 実験装置

実験装置の構成を図2に示す。装置は、熱風供給ライン、燃料供給ライン、触媒部から構成した。熱風供給ラインからは、ブロワを用いて空気を押し込み通風し、電熱ヒータで所定温度に加熱した後燃料混合部へ供給した。供給する空気流量は、調整弁及びマスフローメータにより調整した。燃料供給ラインは、燃料の種類によって構成を変えた。灯油を使用する時は、燃料ポンプを用いてマスフローコントローラで流量を調節しながら、燃料混合部へ供給した。気体燃料時には、各燃料ボンベからレギュレータで調圧し、フロート式流量計を用いて流量を調節した後、燃料混合部へ供給した。各燃料と空気は、燃料混合部で十分に混合した後、触媒へ送られて燃焼し、大気中へ排出される。

触媒部については、図3に詳細及び熱電対挿入位置を示す。触媒部では、予混合気が均一に触媒へ供給されるよう装置構造を検討し、流れや濃度のムラがないことを事前に確認した。触媒部は $\square 125 \text{ mm}$ の角管で製作し、 $\square 100 \text{ mm} \times \text{h}50 \text{ mm}$ のメタルハニカム触媒(田中貴金属工業(株)製)を6段重ねて取り付けた。触媒部とその前後の流路は、放熱損失を抑制するため、厚さ約 50 mm の断熱材で周囲を覆った。測温は、K熱電対 $\phi 1.6 \text{ mm}$ を使用し、触媒中心位置(図3参照)に各層毎に挿入して、触媒を通過するガス温度を測定した。測温点の間隔は、ガスの流れ方向に沿って触媒部および前後で 50 mm とした。

燃焼ガス出口にはサンプリングポートを設け、排ガス連続分析計により3成分($\text{CO}_2, \text{O}_2, \text{CO}$)を測定した。

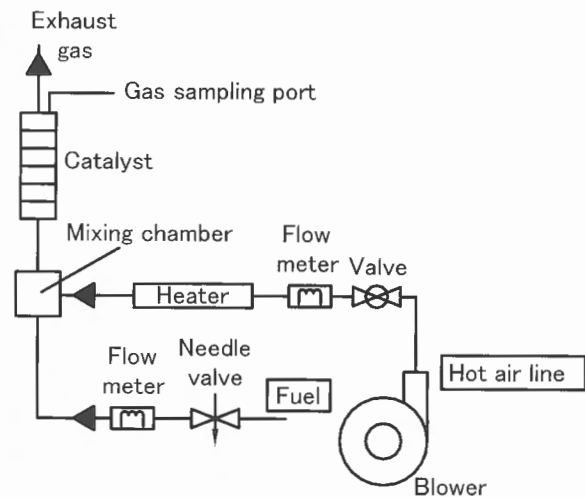


Fig.2 Flow of experimental apparatus.

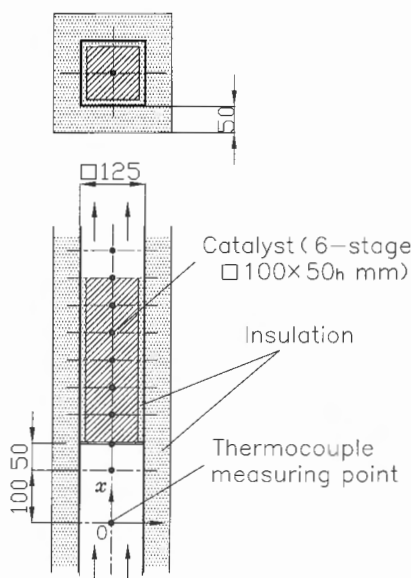


Fig. 3 Detailed structure of catalyst section and thermocouple measuring point.

2.2. 実験方法

触媒燃焼状態を評価し、脱臭装置に最適な触媒と燃料の組み合わせを選定するために、燃料(灯油、メタン、プロパン)と触媒(白金、パラジウム)で組み合わせを変えて、各部の温度変化および排ガス成分を測定した。その最適な組み合わせにおいて、予混合気条件(温度、当量比、空間速度)を変えて燃焼実験を実施し、各パラメータが消炎や完全触媒燃焼の限界、触媒温度に及ぼす影響を調べた。以上から得られた結果を元に、完全触媒燃焼が可能な安定燃焼範囲について整理した。さらに、脱臭装置の熱回収サイクルを考慮してエネルギー収支を計算し、熱回収のみで触媒燃焼が継続できる安定燃焼範囲について検討した。

全ての実験において、触媒の加熱は予混合気により行われるため、入口予混合気温度=触媒初期温度と見なした。臭気ガスについては、成分が多種多様であるため、実際は十分考慮して設計する必要がある。しかし、本実験の目的においては、その性状は空気と見なしても問題がないため、空気で代用した。触媒の常用使用温度については、脱臭装置の汎用温度を考慮して、本実験では 773 K 以下とした。各温度および排ガス成分の値は、データログにより 5 sec. 間隔でサンプリングし、定常状態と見なせるおよそ 20 min 間の平均値から求めた。熱電対の位置は図 3 に示しているが、入口予混合気温度は触媒の上流側へ 50 mm の位置の温度を採用した。

なお、燃焼状態を評価するためのパラメータとして、以下の 5 つの量を選んだ。

- ① 燃料種：灯油(JIS1号)、プロパン、メタン

- ② 触媒種：白金触媒(担持量：1 mg/cm³，セル数：40 cell/cm²)，パラジウム触媒(担持量：10 mg/cm³，セル数：40 cell/cm²)
- ③ 入口予混合気温度 T_{in} (K)：473~773
- ④ 当量比 ϕ (-)：0.022~0.11
- ⑤ 空間速度 SV (hr⁻¹)：10000~37500

3. 実験結果および考察

3.1. 燃料種および触媒種の影響

図 4~6 に燃料種および触媒種をそれぞれ変えた場合の、触媒内のガス温度の変化を示す。触媒上流側へ 150 mm の位置を原点とし、ガスの流れ方向への距離を X 軸として整理した。当量比 $\phi = 0.044$ ，および空間速度 $SV = 20000$ hr⁻¹ は一定条件とし、入口予混合気温度 T_{in} は、それぞれの触媒燃焼反応状態に応じて変えた。図の左から右方向に予混合気は流れ、原点からの距離で 150 mm 以降が触媒に対応する。図 4~6 に示すいずれの条件も、排ガス成分中の CO 濃度は検出限界以下 (< 1 ppm) であり、触媒内で燃焼完結とみなせる条件である。

図 4 の灯油については、白金とパラジウムによる触媒種の差異は殆どなく、入口予混合気温度が $T_{in} \geq 523$ K の条件において、1~2 層目出口で急激に温度が上昇し、3~5 層目出口では変化がない。6 層目出口では若干の温度低下が見られた。両触媒の担持量は、2.2 項に示すとおり大きな差異があるが、灯油に対しては、白金触媒 1 mg/cm³ の担持量でも、パラジウム触媒 10 mg/cm³ の担持量と同等の活性が得られた。供給した灯油の大部分(90~95%)が触媒の 2 層目までで燃焼し、6 層目では放熱損失による影響が大きく、温度が低下したものと推測される。以上の結果から、全ての条件において、触媒燃焼状態は良好であり、安定燃焼が期待できると考えられる。

次に、図 5 のプロパンについては、触媒種および入口予混合気温度により燃焼状態が大きく変化した。白金の場合は、入口予混合気温度 $T_{in} = 573$ K の条件では、6 層目まで燃焼ガス温度の上昇が継続した。また、入口予混合気温度が高くなるほど、触媒の上流層側での燃焼反応が活発になる傾向があった。以上から、入口予混合気温度 $T_{in} = 573$ K の条件で反応は開始するものの、反応完結に灯油よりも時間を要することがわかった。パラジウム触媒では、623 K 以上では良好な燃焼状態を示したが、573 K の条件では若干反応が悪く、特に 1~3 層目までは白金触媒より温度上昇が小さかった。4~5 層目で反応が急激に進み、触媒温度が白金触媒を逆転した。他の条件による燃焼状態も踏まえると、触媒温度が 600 K 付近から反応速度が急激に大きくなるものと考えられる。

一般に、C3 以上の燃料に対しては、白金触媒の方が活性が高く有利であるとされている[9-10]が、本実験では約 600 K 以上の温度領域で、パラジウムの方が優れる結果となった。パラジウム触媒は、約 1073 K 以下では酸化物

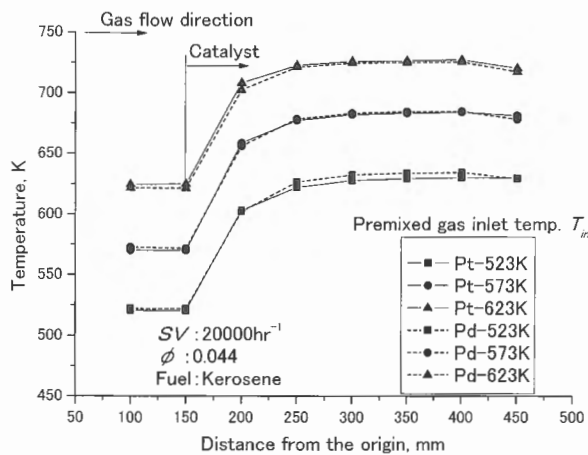


Fig.4 Gas temperature change of inner catalyst. (Fuel: Kerosene)

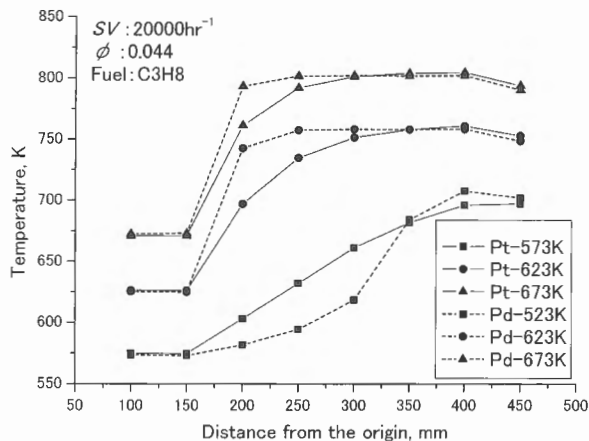


Fig.5 Gas temperature change of inner catalyst. (Fuel: Propane)

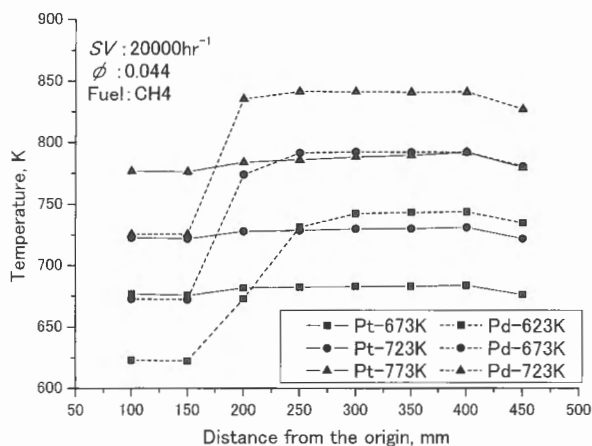


Fig.6 Gas temperature change of inner catalyst. (Fuel: Methane)

PdO として存在し、担持体の酸化物と親和性が良いことから凝集が起こりにくく、約 873 K 以上では比較的活性表面積が大きくなり、白金触媒より活性に優れる[11-12]。しかしながら、本実験はそれ以下の温度領域であるため、この影響は少ないと考えられる。主な原因としては、触媒担持量の差が考えられる。一般に、ある担持量までは触媒が増加するほど活性が向上し、十分量に達するとほぼ安定する。本実験の白金触媒は担持量が少なく、一方、パラジウム触媒の担持量は十分な量であるため、この担持量の差が燃焼状態に影響を及ぼしているものと考えられる。

図 6 のメタンについては、白金触媒の場合、入口予混合気温度 $T_{in} = 773$ K としても、触媒内の温度に殆ど変化がなかった。一方、パラジウム触媒を用いると、入口予混合気温度 $T_{in} \geq 623$ K から触媒の温度が上昇し、さらに入口予混合気温度が高いほど、触媒の上流側での温度上昇幅が大きくなった。全体的な燃焼傾向としては、灯油と同様な燃焼挙動が見られた。白金触媒は、入口予混合気温度 $T_{in} \leq 773$ K の条件においては、メタンに対して殆ど活性がなかった。

以上から、触媒燃焼においては、①灯油、②プロパン、③メタンの順で反応性が高いことがわかった。また、白金触媒とパラジウム触媒については、大部分の入口予混合気温度でパラジウム触媒が活性が高いか同等であったが、プロパン燃焼時の 550~600 K の比較的低い温度領域においては、白金触媒の方が活性が高い場合もあった。

以上の結果から、予混合式触媒脱臭装置に適した組み合わせを検討すると、表 1 に示すように悪臭物質の大部分が 623 K 以下の触媒予熱温度で処理可能であるため、この近傍の温度で安定的に燃焼できる灯油を使用することが望ましいと考える。この場合、触媒については白金及びパラジウムで差はないが、担持量を考慮すると白金が効果的である。

以上から、次項以降では白金触媒-灯油の組み合わせについて詳しく調べた結果を示している。

3.2. 消炎限界、完全触媒燃焼限界

燃焼状態の調査に際し、各領域を区別するため、ここでは触媒温度が低下し燃焼を維持できない領域を“消炎”，その境界を“消炎限界”，予混合燃焼が触媒内で完結できない領域を“不完全燃焼”，その境界を“完全触媒燃焼限界”としてそれぞれ定義した。

図 7 には、消炎限界について、消炎が起きた入口予混合気温度と空間速度の関係を示す。

消炎については、高温状態から温度を下げる場合と、低温状態から上げる場合でヒステリシスが存在すると考えられるが、ここでは入口予混合気温度を 2~3 K 刻みで低下させ、触媒 1 層目の出口温度が急激に低下した時の温度とした。

空間速度が大きいほど、高い入口予混合気温度で消炎が起きた。空間速度が大きいほど触媒方面の温度境界層が薄

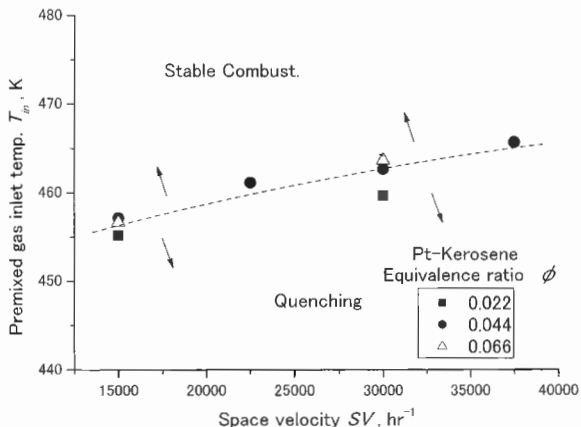


Fig.7 Quenching limit for each premixed gas conditions.

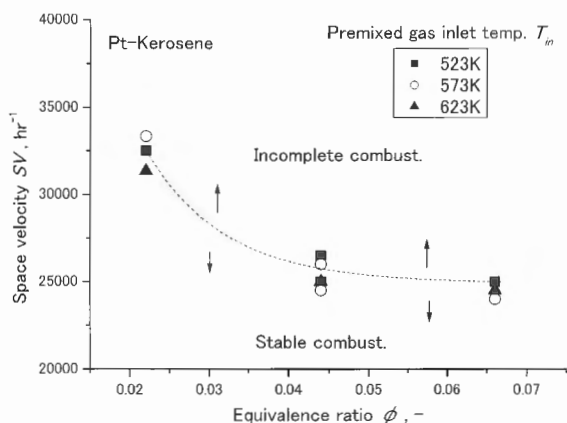


Fig.8 Complete combustion limit for each premixed gas conditions.

くなり、触媒から気相への対流による熱移動量が増加する[13]。一方、触媒の着火は、反応速度式から触媒温度のみに依存する。そのため、触媒温度を維持するには、空間速度が大きいほど高い入口予混合気温度が必要となるものと考えられる。また、当量比の影響についてはあまり明確ではなかった。以上から、図7に図示した破線より下側は消炎領域となる。本実験条件範囲においては、おおよそ入口予混合気温度 $T_{in} \geq 465 \text{ K}$ であれば、触媒燃焼は維持できると考えられる。

次に、完全触媒燃焼限界について当量比と空間速度の関係で整理した結果を図8に示す。完全触媒燃焼限界は、空間速度を $300 \sim 500 \text{ hr}^{-1}$ ずつ増加させ、連続分析計によりCOの排出が始まった条件を限界とした。

完全触媒燃焼限界は、当量比が大きいほど低い空間速度側へ移行したが、減少傾向については直線的ではなく、当量比の増加に伴い緩やかになった。本実験においては、おおよそ空間速度 $SV = 24000 \sim 25000 \text{ hr}^{-1}$ に漸近した。また、入口予混合気温度の影響は明確ではなかった。

この傾向については、触媒表面近傍での燃料濃度が影響していると考えられる。触媒近傍では、当量比が高いほど燃料濃度が高いため、触媒下流まで燃料が輸送される。ま

た同様に、空間速度が高いほど触媒下流まで燃料が輸送される。燃料が触媒下流まで輸送されるほど未燃または不完全燃焼で排出されやすい。そのため、希薄な条件ほど高い空間速度まで完全触媒燃焼が可能であったと考えられる。

3.3. 予混合気条件による触媒温度への影響

触媒温度について検討するため、触媒内の最高到達温度に着目した。本実験ではガス温度を測定しているが、実際は触媒温度とガス温度は異なり、その挙動についてはシミュレーション等により種々検討されている[13-16]。しかし、本実験条件は完全触媒燃焼に限定しているため、触媒内の燃焼ガス最高到達温度近傍は、燃焼ガス温度=触媒温度と見なした。

図9に、予混合気条件を変化させた場合の、触媒内における燃焼ガス最高到達温度(実験値)と、理論断熱燃焼ガス温度(計算値)を比較した結果を示す。各物性値は熱物性値集[17]より引用した。また、図10に、入口予混合気温度 $T_{in} = 573 \text{ K}$ 、当量比 $\phi = 0.044$ と一定とした条件について、空間速度と燃焼ガス最高到達温度の関係を示した。図には

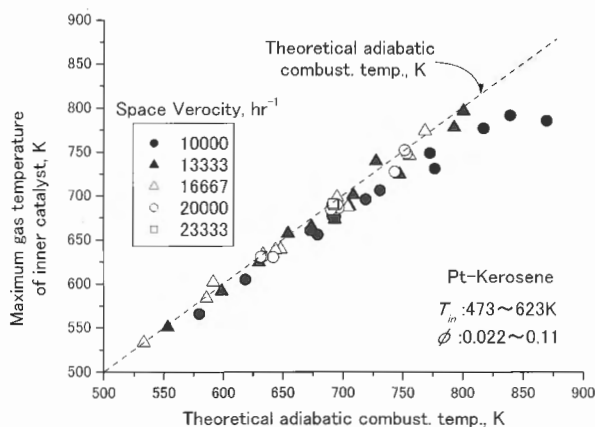


Fig.9 Relationship between equivalence ratio and maximum gastemperature of inner catalyst.

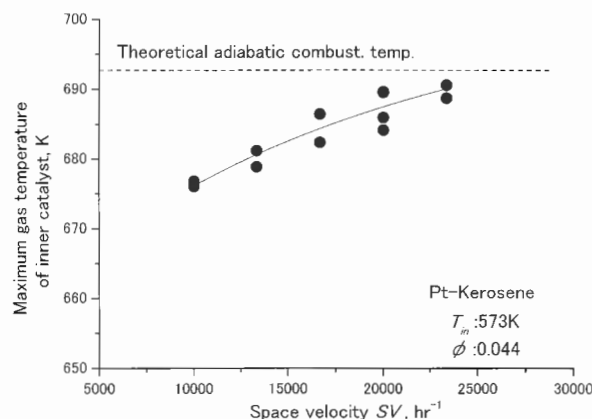


Fig.10 Relationship between space velocity and maximum gas temperature of inner catalyst.

破線でこの時の理論断熱燃焼ガス温度を示す。入口予混合気温度と空間速度については、3.2.項により判明した燃焼限界を考慮して、安定燃焼が可能な範囲 ($T_{in} \geq 465 \text{ K}$, $SV \leq 24000 \text{ hr}^{-1}$) において条件を設定した。

図9においては、全般に計算値と実験値が良く一致した。しかし、空間速度が低い条件では、若干のばらつきが見られたので、図10のように空間速度と最高到達温度の関係で整理すると、空間速度が低いほど計算値と実験値の差が大きかった。この理由は、低空間速度ほど触媒からのふく射による熱損失割合が大きいたことが原因と考えられ、このことはふく射を考慮した一次元定常モデルによるシミュレーション等で示されている[16]。しかしその差は、空間速度 $SV = 10000 \text{ hr}^{-1}$ の最大条件においての約 15 K で、実用上の影響は小さいと考えられる。

以上から、触媒の常用使用温度である 773 K 以下の条件については、実用上は理論断熱計算程度で十分に触媒温度が予測可能であることがわかった。

3.4. 実用上の安定燃焼範囲

前項までの結果と脱臭装置の運転を考慮して、予混合触媒燃焼が安定的に継続する実用上の燃焼範囲について検討した。各領域を区別するため、3.2.項の定義に加え、安定的に連続燃焼できる範囲を“安定燃焼”，燃焼は可能であるが触媒温度が常用使用温度を越える範囲を“過昇温”としてそれぞれ分類した。

3.4.1 安定燃焼範囲

図7～10から得られた実験結果を総括して、図11に各予混合気条件における触媒燃焼状態の分布状況を示す。各境界については、実験から得られた結果をもとに外挿し、実際の脱臭装置で使用される条件範囲である、 $5000 \text{ hr}^{-1} \leq SV \leq 50000 \text{ hr}^{-1}$, $0.01 \leq \phi \leq 0.12$, $300 \text{ K} \leq T_{in} \leq 900 \text{ K}$ の領域について図示した。

消炎限界については、図7にも示すように、当量比および空間速度が大きいくほど、入口予混合気温度が高温側へ僅かながら移行する。図示した範囲については、おおよそ入口予混合気温度 $T_{in} \geq 465 \text{ K}$ であれば、全条件において触媒燃焼が可能である。常用限界については、総入熱量 (= 燃料熱量 + 予混合気顕熱) の関係から、当量比が低いと入口予混合気温度が高く、当量比が高いと入口予混合気温度が低くなる。図では常用使用限界温度が 773 K の場合を示したが、限界温度が高くなると、燃焼範囲との境界面は高温側へ広がる。その場合、更に高い当量比まで燃焼が可能となる。また、図10で示したが、熱損失の影響により、同当量比で比較すると空間速度が小さいほど入口予混合気温度が高温側へ広がる。完全燃焼限界については、図8にも示すように、当量比が大きいくほど低空間速度側へ移行する。その傾向は曲線的となり、高当量比側では空間速度 $SV = 24000 \sim 25000 \text{ hr}^{-1}$ に漸近する。以上の3つの境界で囲まれた図中の斜線で示した領域内が、予混合触媒燃焼の安定燃焼範囲となる。なお、各境界面上は、いずれも安定

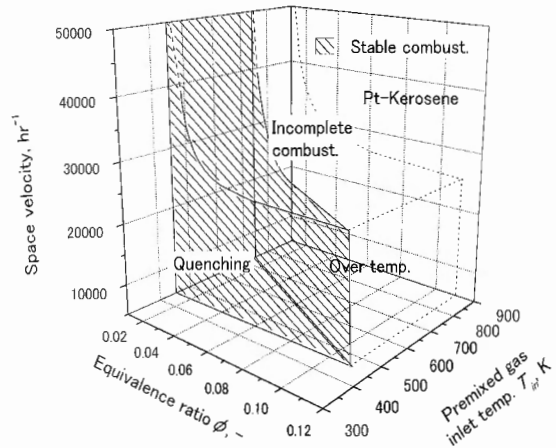


Fig.11 Stable combustion region of complete premixed catalytic combustion.

燃焼範囲から除外される。

3.4.2 熱交換器を考慮した安定燃焼範囲

図11は触媒燃焼のみに着目して安定燃焼範囲を整理したものであるが、脱臭装置では運転コストの低減から熱交換器を使用し、燃焼ガスから廃熱を回収して連続運転を継続させるため、入口予混合気温度と予混合触媒燃焼後の排ガス温度が互いに影響を与える。

そこで、実機の機器構成を考慮した安定燃焼範囲について検討した。図12に触媒脱臭装置の熱交換器周りのフローを示す。

各位置のガス温度を $T_0 \sim T_3$ 、予混合触媒燃焼による温度上昇を ΔT_c とした。また、熱交換器—触媒間の流路については、断熱により放熱損失はないものとして、熱交換器周りのエネルギー収支を検討する。

入口予混合気と触媒燃焼後の湿り燃焼ガス間のエネルギー収支は、予混合触媒燃焼反応を考慮して、次式のように考えられる。

$$MCp_1T_1 + Q = G_2Cp_2T_2 + \epsilon \tag{1}$$

また、熱交換器周りのエネルギー収支は、

$$G_2Cp_2T_2 \times \eta = MCp_1T_1 - MCp_0T_0 \tag{2}$$

ここで、

- M : 入口予混合気質量流量 [kg/hr]
 - G : 湿り燃焼ガス質量流量 [kg/hr]
 - Cp : 定圧比熱 [kJ/kg · K]
 - T : 温度 [K] Q : 燃料の保有熱 [kJ/hr]
 - ϵ : 熱損失 [kJ/hr] η : 熱交換率 [-]
- 添字(図12の各位置に対応)

- 0 : 臭気ガス入口 1 : 触媒入口
- 2 : 触媒出口 3 : 熱交換器出口
- c : 触媒

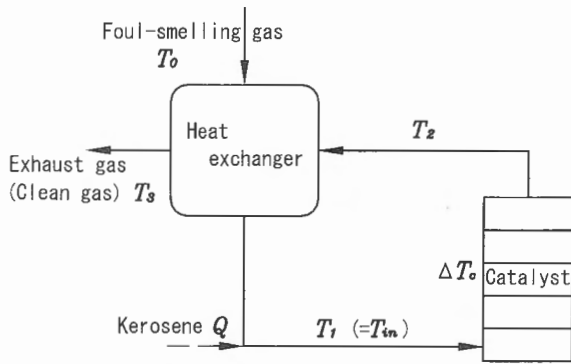


Fig.12 General system flow of catalytic combustion deodorizer including heat exchanger.

①式の熱損失 ε は、系外への熱ふく射による損失を意味する。式①、②を解くことにより、予熱なしで触媒燃焼を継続することができる実用上の燃焼範囲がわかる。

得られた解を図 11 に反映して、実用上の安定燃焼範囲について再度整理した結果を図 13 に示す。図示した結果は、 $SV = 20000 \text{ hr}^{-1}$ 、 $T_0 = 323 \text{ K}$ の場合で、図 11 の空間速度： 20000 hr^{-1} の横断面図に相当する。この図から、熱交換率 η が安定燃焼範囲へ及ぼす影響がわかる。

熱交換率 η は汎用熱交換器の一般的な値で、 $0.4 \leq \eta \leq 0.7$ として考えた。図のように、定常後の予熱なしで触媒燃焼を継続することができる安定燃焼範囲は、斜線部のようになりに狭くなる。しかし、熱交換率 η が高くなるに従い、その範囲は低い当量比、高い入口予混合気温度側へ拡大する。また、図 14 に詳細は示すが、 T_0 が低くなると領域は狭くなる。本実験では、 $\eta = 0.5$ 、 $T_0 = 273 \text{ K}$ の条件で実用上の安定燃焼範囲が僅かとなり、それ以下の条件では予熱なしで触媒燃焼を継続することが不可能であることがわかった。

同様に、入口予混合気条件が安定燃焼範囲へ及ぼす影響を図 14 に示す。図には、 $\eta = 0.7$ の条件において、 $SV = 10000 \text{ hr}^{-1}$ と $SV = 20000 \text{ hr}^{-1}$ 、および $T_0 = 273 \text{ K}$ と $T_0 = 323 \text{ K}$ の場合について示した。

空間速度が高くなると、安定燃焼範囲は低い当量比、高い入口予混合気温度側へ拡大する。しかし、消炎限界および常用限界については、空間速度が高くなると安定燃焼範囲が若干狭くなる方向へ移動する。また、空間速度の場合と同様に、 T_0 が高くなると安定燃焼範囲は低い当量比、高い入口予混合気温度側へ広がる。その影響は、空間速度の場合よりも大きい。

この図から、例えば、 $\eta = 0.7$ 、 $SV = 20000 \text{ hr}^{-1}$ 、 $T_0 = 323 \text{ K}$ の条件においては、 $\eta = 0.042$ 付近で最も広く入口予混合気温度を変化させることができ、また、 T_0 および空間速度が小さくなると、その値は高当量比側へ移動することがわかる。また、消炎限界以上の温度で、入口予混合気温度が低い条件ほど当量比は広い範囲で変化できることがわかる。なお、安定燃焼範囲の変化については、系外への

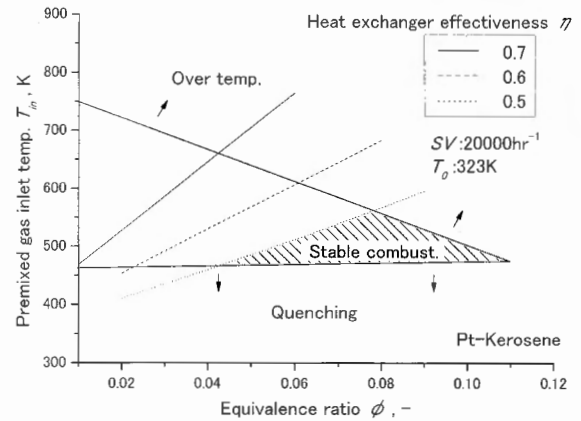


Fig.13 Effect of heat exchanger effectiveness on stable combustion area.

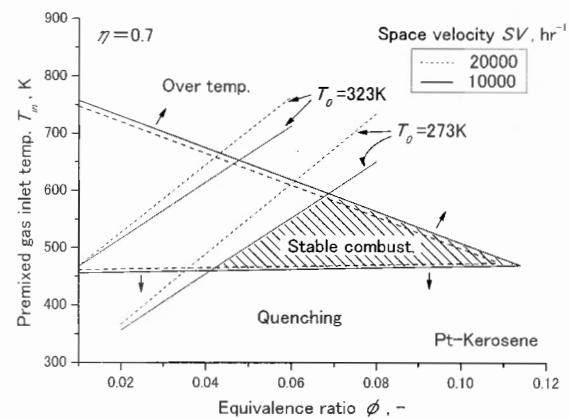


Fig.14 Effect of premixed gas conditions on stable combustion area.

熱損失量の変化に起因するものも多いが、これらは装置の規模や断熱厚さ等により大きく左右される。ここでは、使用した実験装置に限定した安定燃焼範囲を示している。また、熱交換器-触媒間の流路については断熱を仮定しているが、実際は放熱損失があるため、実設計ではこれらも考慮する必要がある。

以上から、脱臭装置において安定燃焼範囲を広くするためには、完全触媒燃焼が可能な範囲内で空間速度を高くとること、可能な限り高熱交換率とすること、処理ガスは高い温度で利用することが有効である。

4. 結言

予混合式触媒燃焼脱臭装置を考慮して、完全触媒燃焼の基礎的燃焼特性の把握を目的として、基礎的な燃焼実験を実施し、実用上の燃焼範囲について検討した結果、以下の知見を得た。

- 予混合式脱臭装置には、その反応性や反応温度から白金触媒-灯油の組み合わせが適している。

- ・消炎限界温度は、空間速度が大きいほど高温となる。空間速度が高いほど、対流による触媒表面から気相への熱移動量が大きくなるため、燃焼維持には相対的に高いガス温度が必要となるためと推測される。灯油-白金触媒の場合、 $10000 \text{ hr}^{-1} \leq SV \leq 37500 \text{ hr}^{-1}$ の範囲では、455～465 K 程度である。
- ・完全触媒燃焼限界は、当量比 ϕ の増加とともに低空間速度側へ移行する。 ϕ が 0.06～0.12 では空間速度の減少幅は小さく、 $SV=24000 \sim 25000 \text{ hr}^{-1}$ 付近に漸近する。一方、 $\phi \leq 0.06$ の範囲では変化が大きく、当量比減少とともに曲線的に高い空間速度側へ移行する。この傾向は、触媒表面での燃料濃度分布の影響と考えられる。
- ・触媒内の最高到達温度は、773 K 以下では予混合気条件によらず、理論断熱計算でほぼ予測できる。
- ・脱臭装置において、予熱なしで触媒燃焼が継続可能な安定燃焼範囲については、熱交換器の作用により操作範囲が大幅に制限される。安定燃焼範囲を広げるには、完全触媒燃焼条件内で空間速度を高くすること、熱交換率は高くすること、処理ガスは高い温度で利用することが有効である。

References

1. Honda, N., *Kankyou-ken-no-atarashii-nensyou- kougaku* (in Japanese) : 1287-1301 (1999).
2. Iwamoto, M., *Kankyou-syokubai-handbook* (in Japanese) : 615-679 (2001).
3. Furuya, T., Yoshine, T., Yamanaka, S., Yamada, M., Hara, Y., Furuse, Y., Tsuchiya, T., *Proc. 12th Symp. on Cata. Combust.* (in Japanese) : 1-8 (1991).
4. Beebe, K., Ohkoshi, A., Radak, L., Weir, A. Jr., *Proc. Tokyo Int. Gas Turbine Cong.:* III -53 (1987).
5. Tokita, Y., Takachi, M., Moroga, K., Abe, Y., Uchida, T., *Proc. 39th Symp. (Japanese) on Combust.* (in Japanese) : 89-90 (2001).
6. Tokita, Y., Takachi, M., Moroga, K., Abe, Y., Uchida, T., *Proc. 40th Symp. (Japanese) on Combust.* (in Japanese) : 49-50 (2002).
7. Maruo, S., Naoi, T., Onoue, K., *Proc. 11th Symp. on Cata. Combust.* (in Japanese) : 9-15 (1991).
8. Matsunaga, S., Okoshi, A., Aso, Y., *Proc. 40th Symp. (Japanese) on Combust.* (in Japanese) : 51-52 (2002).
9. Sato, M., Shomoto, T., *Proc. 15th Symp. on Cata. Combust.* (in Japanese) : 17-20 (1993).
10. Honda, N., *Kankyou-ken-no-atarashii-nensyou- kougaku* (in Japanese) : 1183-1191 (1999).
11. Hara, K., Tsuchiya, T., Furuya, T., Yoshine, T., *Proc. 9th Symp. on Cata. Combust.* (in Japanese) : 23 (1993).
12. Iwamoto, M., *Kankyou-syokubai-handbook* (in Japanese) : 757-765 (2001).
13. Ohta, M., Yamashita, H., Zhao, D., Matsunaga, S., *Proc. Thermal Engineering Conference '04* (in Japanese) : 49-50 (2004).
14. Sata, K., Zhao, D., Nakamura, Y., Yamashita, H., *Proc. 40th Symp. (Japanese) on Combust.* (in Japanese) : 155-156 (2002).
15. Konno, J., Takeuchi, M., *Proc. 28th National Heat Trans. Symp.* (in Japanese) : 277-279 (1991).
16. Nomura, Y., Okubo, Y., Osawa, K., *JSME Trans. B.* (in Japanese) 57: 710-714 (1991).
17. JSME, *JSME Data Book: Thermophysical Properties of Fluids* (in Japanese) : (1991)