修士論文概要書

Summary of Master's Thesis

Date of submission: 01/20/2017

専攻名(専門分野) Department	総合機械工学専攻	氏 名 Name	渡邉 佑哉	指導	山垣	隆雄	ÉП
研究指導名 Research guidance	エクセルギー工学	学籍番号 Student ID number	CD 5215B095-4	教 員 Advisor		1-1-04	Seal
研究題目 Title	炭素循環製鉄用 CO2 吸収材の形状設計に関する研究 ~円筒状吸収材の充填層反応器の性能予測~						

1. 研究目的

近年の地球温暖化問題を背景に、温室効果ガスの主要因とされる CO₂の排出削減に向けた炭素循環製鉄の実現が望まれている.適用可能な高温 CO₂分離回収技術として,本研究では,550℃ で CO₂ を吸収し、700℃で放出することで、繰り返し利用可能なセラミックス製 CO₂吸収材 Li4SiO4 (LS)を用いる.本年度は、CO₂ の吸収反応と多孔質体内物質移動を同時に考慮した円筒状 LS の吸収モデルを開発し,未反応核モデルで乖離の大きい反応律速条件での予測精度を向上させた.また、開発したモデルを基に、生成物層の物質輸送抵抗を緩和し、高い吸収速度を維持できるペレット形状について考察した.さらに、円筒状 LS の充填層反応器における吸収反応の数値解析によって、充填層反応器の性能を予測するとともに、実験にて検証した.

2. 研究方法

2.1 反応帯形成モデル

LS 多孔質体内の物質移動・反応モデルはこれまで生成層が拡 散抵抗となって反応面(未反応核表面)に到達した CO₂が全て 消滅する未反応核モデルとして近似的に扱ってきた.しかしな がら,化学反応が律速となる低温・低 CO₂濃度の条件において は実験値との間に乖離が見られ,未反応核内部にも CO₂が浸透 していると考えられる.そこで,化学種の保存式の消滅項に化 学反応式を連成させることで CO₂の反応帯を形成する吸収モデ ル(反応帯形成モデル)による数値解析を実施した.本モデル は既報の通り,LS 内部の生成層において,吸収済の CO₂量(反 応率)に依存して吸収速度が低下する効果を考慮した.

反応帯形成モデルの妥当性 を確認するために,外径D_o,内 径D_i,高さhがそれぞれ 5mm, 2mm, 5mmの円筒状 LS の吸 収挙動を模擬した.反応帯形成 モデルによる計算結果を図1に 示す.同図より明らかなように, 反応帯形成モデルは円筒状 LS の吸収挙動を精度よく模擬し



た.本反応帯形成モデルを用いて円筒状 LS の形状変化による吸 収挙動を予測し,高い吸収速度を維持できるペレット形状につ いて考察していくこととした.

2.2 充填層反応のモデル化

LS 充填層の CO2吸収量は,充填層を通して時間・空間で積分 した反応量として求められ,CO2分離回収システムの実用的な 反応器設計と性能評価のためには,充填層反応器内の熱流動お よび物質移動・反応をモデル化した数値解析による吸放出挙動 の予測が必要である.そこで,反応帯形成モデルによる単粒子 の吸収速度に基づき,大きな反応熱を伴う非定常・非等温な充 填層反応器内における粒子・流体のエネルギー保存式および CO2保存式を連成して数値解析することにより,充填層反応器 における吸収挙動を予測した.

3. 研究成果

3.1 円筒状 LS の形状変化による吸収挙動への影響

円筒状 LS の外径D_o[mm],内径D_i[mm]および高さh[mm]をパ ラメータとして,経過時間に対する CO₂吸収量を計算した.外 径変化,内径変化および高さ変化による吸収挙動の計算結果を 図 2~4 にそれぞれ示す.最大吸収量は 25wt%に設定した.図 2 ~4 より, D_o が小さく, D_i が大きく,hが小さいほどペレットの

実体積が小さくなり,内部ま での CO₂拡散距離が短縮され るため,吸収速度が速く,吸 収完了までの時間を短縮でき る.また,吸収速度に対して 外径および内径の感度が大き く,高さの影響は小さい.



Elapsed time min 図3 内径の影響

10

5

3.2 充填層反応器の CO2 吸収挙動の予測

 $D_i = 0mn$

 $D_i = 3mm$ $D_o = 5mm, h = 5mm$

15

20

 $D_i = 1mm$

 $D_i = 2mn$

本解析モデルは円筒状 LS を充填した反応器に高温ガスを流 すことを想定し、反応器管内を軸対称とする 2 次元の非定常で 固体と流体の温度が異なる非等温の充填層としてモデル化した. 固体と流体におけるエネルギー保存式および CO₂保存式を式(1) ~(3)にそれぞれ示す.

・エネルギー保存式

Gas phase

°25 ≈12 20

² accumulation 5 2

õ õ

0

 $\frac{\partial}{\partial t}(\rho_g h_g) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho_g u_z h_g) + \frac{\partial}{\partial r}(\rho_g u_r h_g) = \frac{\partial}{\partial z}\left(\lambda_{axg}\frac{\partial T_g}{\partial z}\right) + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(\lambda_{rdg}r\frac{\partial T_g}{\partial r}\right) + \alpha_{sg}\sigma_{sg}(T_s - T_g) \quad (1)$

Solid phase

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho_s h_s) = \frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda_{axs} \frac{\partial T_s}{\partial z} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\lambda_{rds} r \frac{\partial T_s}{\partial r} \right) - \alpha_{sg} \sigma_{sg} (T_s - T_g) + R_{CO_2} \left(\Delta H - \int_{T_g}^{T_s} C_{pg} \, dT \right)$$

$$\cdot \mathbf{CO}_2 \langle \mathbf{E} \langle \mathbf{Z} \mathbf{T} \rangle$$

$$(2)$$

 $\frac{\partial}{\partial t}(C_{co_2}) + \frac{\partial}{\partial z}(u_z C_{co_2}) + \frac{\partial}{\partial r}(u_r C_{co_2}) = \frac{\partial}{\partial z}\left(D_{ax}\frac{\partial C_{co_2}}{\partial z}\right) + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(D_{rd}r\frac{\partial C_{co_2}}{\partial r}\right) - R_{co_2}$ (3)

円筒状 LS ($D_o: 5$ mm, h: 5mm)の内径をパラメータとして、経過時間に対する吸収速度を計算し、図 5 に示す.同図より、円筒状 LS の内径が大きいほど充填層の比表面積が増大するため、吸収速度が大きい.

また,吸収速度の変化率が1%以下となった時間を吸収完了時間と定義し、内径に対する充填層反応器の吸収容量および吸収 完了時間の関係を図6に示す.同図より、円筒状LSの内径が 大きいほど吸収容量は減少するが、吸収完了時間は短縮された. すなわち、吸収容量の増加と吸収完了時間の短縮はトレードオ フの関係にある.

