木炭層による NO 吸着特性と吸着平衡に関する研究

金沢大学工学部 関平和 〇鎌足慶樹 鈴木将司

1.はじめに

土壌汚染や有機系廃棄物の処理は、大部分が焼却によってなされている。その際、ガス化した NOx、SOx、 重金属などの有害ガスが発生し、これらのガスのうち SOx や重金属と比べ、NOx は近年その処理技術にあま り改善が見られていないのが現状である。

焼却場から排出される NOx の処理が困難であるのは、排出される NOx の約 90%上が NO だからである。 NO は水に難解で、かつ吸着し難い物質であるため、処理以前に捕らえること自体が難しい。現在幾つかの企 業体では、オゾン添加により NO を NO₂に酸化し、取り扱いを簡易化して処理を行っている。しかし、操作 は実験的な見地に頼っているのが現状であり、莫大な初期投資費用およびランニングコストがかかっている。 そこで、本研究は吸着実験の挙動を数学的モデルによって表現することで、吸着プロセス及び理論を明確化し、 吸着操作を効率化することを目標としている。

2.実験方法

内径 100mm、高さ 50mm のアクリル製円筒容器に入れら れた木炭(IOT カーボン社製造、比表面積 450m²/g、粒子径 2-3.5mm)層の下部から、NO200ppm 混入ガス(窒素ベース) を一定流量で送入し、層上部から排出されるガス中の NO 濃度を経時的に測定した。



なお、低温下で木炭の吸着速度が上がることに注目した。 実験環境を低温かつ恒常的に保つことで、飽和までの時間 が短縮できると考えられる。そこで、温度管理を容易にす

るために冷蔵庫を低温槽として使用し、その内部で実験を行った。実験の概略を図-1に示す。

3.実験結果と考察

実験結果の一例を図-2に示す。出口の NO 濃度は実験を 開始して 0.05hr 程度で上昇し始め、1hr でおよそ 140ppm と なり、しばらくほぼ一定の値となった。140hr から NO 濃度 は再びゆっくり上昇し始め、ガスが切れる 174hr には 194ppm に到達した。

実験開始1-5hrの吸着速度と温度の経時的変化を図-3に 示す。吸着速度と温度の間には負の相関がみられる。つま り、温度が上昇すると、吸着速度が下降している。これは、 多孔質体の吸着現象にみられる特性である。この傾向は、 実験を開始して1hr以降常にみられた。

以上の実験結果に基づき、文献を参考にしつつ、木炭の 吸着プロセスを以下のごとく(図-4参照)であると想定し た。



VII-039

I:実験開始から lhr 程度までの期間で、層内の空隙をガスが 通過していくと同時に、粒子内のマクロ孔[D<50nm]が細孔拡散² によりガスで充填されていく。

Ⅱ:実験開始 lhr 以降 140hr 程度の時間帯であり、マクロ孔か らミクロ孔[D<2nm]にガス粒子が表面拡散現象によって移動す る。吸着プロセスにおいて、この期間が長時間続く。文献から、 多孔質体では表面拡散によるミクロ孔への吸着が大部分を占め ており、表面拡散は温度に依存することがわかっている。

Ⅲ:実験開始140hr 以降であり、期間Ⅱにおいてミクロ孔がガ

ス粒子で満たされたあと、マクロ孔への吸着が始まる。期間 I と異なり、出口の NO 濃度は急激に上がらず時間をかけて滑らかに変化する。マクロ孔の吸着速度は吸着量の差を推進力とする LDF モデルであると考えた。 また、期間 II と同様に吸着速度に温度依存性がみられ、表面拡散現象であることがわかる。

4. 数理モデルの構築

実験結果の挙動を定性的に表現するため、考察をもとに以下のモデルを構築した。

$$\frac{\partial X}{\partial t} = -\frac{v}{\varepsilon} \frac{\partial X}{\partial z} - \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon} \left[\left(N_0 - N' \right) e^{-\beta_1 t} + \begin{cases} N' & \left(0 < t < t^* \right) \\ N' e^{-\beta_2 \left(t - t^* \right)} & \left(t > t^* \right) \end{cases} \right]$$

上記の微分方程式の解析解を以下に示す。

$$\begin{split} X|_{L} &= \left(X_{in} - \frac{1 - \varepsilon}{\nu} LN'\right) \left(1 - e^{-2\frac{\nu}{dL}t}\right) - \frac{2(1 - \varepsilon)(N_{0} - N')}{2\frac{\nu}{L} - \beta_{1}\varepsilon} \left(e^{-\beta_{1}t} - e^{-2\frac{\nu}{dL}t}\right) \quad (0 < t < t^{*}) \\ X|_{L} &= X_{in} \left(1 - e^{-2\frac{\nu}{dL}t}\right) - \frac{1 - \varepsilon}{\nu} LN' \left[e^{-2\frac{\nu}{dL}(t - t^{*})} - e^{-2\frac{\nu}{dL}t}\right] \\ &- \frac{2(1 - \varepsilon)(N_{0} - N')}{2\frac{\nu}{L} - \beta_{1}\varepsilon} \left(e^{-\beta_{1}t} - e^{-2\frac{\nu}{dL}t}\right) - \frac{2(1 - \varepsilon)N'}{2\frac{\nu}{L} - \beta_{2}\varepsilon} \left[e^{-\beta_{2}(t - t^{*})} - e^{-2\frac{\nu}{dL}(t - t^{*})}\right] \quad (t > t^{*}) \end{split}$$

X:容器出口の NO 濃度のモル分率、t:時間、v:断面平均速度、ε:空隙率、z:装置内の鉛直方向距離、 N₀:吸着速度の初期値、N':表面拡散による吸着速度、 $\beta_1 \cdot \beta_2$:定数、t^{*}:期間 II からIIIへ移行する時間、 L:吸着媒体層高さ

実験値と一致するように各種パラメータ(N₀、N'、β₁、β₂)を決定 することができる。ただし、これらの値の妥当性については、木炭 粒子への物質移動、吸着プロセスの機構を考慮しつつ検討する必要 がある。計算結果を図-5に示す。

5. 参考文献

1) 竹内雍:吸着分離-入門から操作設計まで-

2) 竹内雍:最新吸着技術便覧-プロセス・材料・設計-



