



# 岐阜大学機関リポジトリ

## Gifu University Institutional Repository

Title	317 流動層による水素触媒燃焼の制御(燃焼排ガス処理・解析,大気・水循環保全技術)( 本文(Fulltext) )
Author(s)	刑部, 友敬
Citation	[環境工学総合シンポジウム講演論文集] vol.[2006] no.[16] p.[290]-[292]
Issue Date	2006-07-11
Rights	Japan Society of Mechanical Engineers (日本機械学会)
Version	出版社版 (publisher version) postprint
URL	<a href="http://repository.lib.gifu-u.ac.jp/handle/123456789/28348">http://repository.lib.gifu-u.ac.jp/handle/123456789/28348</a>

この資料の著作権は、各資料の著者・学協会・出版社等に帰属します。

## 317 流動層による水素触媒燃焼の制御

## Control of catalytic hydrogen combustion by fluidized bed

○刑部 友敬 (小島プレス)      正 守富 寛 (岐大工)  
 神原 信志 (岐大工)            日比野 智 (岐大工)

Tomotaka OSAKABE, Kojima Pressindustry Co.,Ltd., 3-30,Kanayacyo, Toyota, Aichi  
 Hiroshi MORITOMI, Gifu University  
 Shinji KAMBARA, Gifu University  
 Satoshi HIBINO, Gifu University

As a control system to reduce the residual hydrogen after utilization as hydrogen energy, we proposed a fluidized-bed catalytic combustion system and confirmed the performance. Consequently, we obtained the following conclusions; hydrogen combustion rate is dependent on the bed temperature which suggests that the combustion rate is 100% over 100°C, the combustion rate is considerably decreased with less than 4% of hydrogen concentration the fluidized bed can promote the effective combustion to reduce the completely amount of expensive catalyst, the cooling tube in the fluidized bed can control the bed temperature.

Key Words: fluidized bed, catalytic combustion, hydrogen

## 1. 緒言

現代生活において増大するエネルギー消費に対して、化石燃料利用による環境負荷低減、エネルギー資源の多様化は重要な課題となっている。その中で、二次エネルギー媒体として環境負荷の少ない水素が注目されている。水素は多様かつ不安定な一次エネルギー源を均一なエネルギーキャリアに変換し、蓄エネルギー後、二次エネルギーとして使用できる特徴があり、すぐには使用しないエネルギーを水素に変換し貯蔵、輸送を行うことでエネルギーを無駄にせず効率よく使用することができる<sup>1)</sup>。

このような水素燃料を中核とする時代に向けて、その製造、輸送、貯蔵、利用に関する研究と併せて、排気水素の安全な処理方法も研究すべき要素技術のひとつである。水素は有毒ガスではないが広い燃焼範囲と小さい着火エネルギーにより爆発の危険性は大きい。残存水素を直接処理する方法としては吸蔵、変換、希釈、燃焼がある。本研究では流動層による触媒燃焼に着目し、触媒による安定な水素燃焼と層内抜熱制御について検討した。

## 2. 実験方法

Fig.1 に流動層式水素触媒燃焼装置の概略を示す。触媒粒子 (Pt: 1wt%多孔質アルミナ担持) と希釈粒子 (珪砂) を充填し、水素と窒素および酸素の混合ガスにより流動化させると同時に水素を燃焼処理する。反応管は内径φ45mmパイレックスガラス製で上下2つに分離可能であり、反応管上部はガス排出孔1つと挿入孔4つを設け、K熱電対により反応管内の温度を測定する。また流動層には冷却管を挿入し、温度制御する。

窒素、酸素、水素はマスフローコントローラ (Kofloc 製 Model 3660) により流量制御し、反応管下部の分散板で整流し層内へ供給する。

冷却水はローラーポンプ (Furue Science 製) により制御し、水素による燃焼熱を回収することで層内温度を一定にする。

その回収熱量は冷却水の入口と出口温度から求める<sup>2)</sup>。反応管上部より排出するガスへの移行熱量は入口と出口の温度差より求める。またガス組成は、フィルターで飛散粒子を除去し、冷却後、シリカゲルにより水分を除去し高速ガスクロマトグラフ (TCD-GC, 日本タイラン製 M200) で分析する。

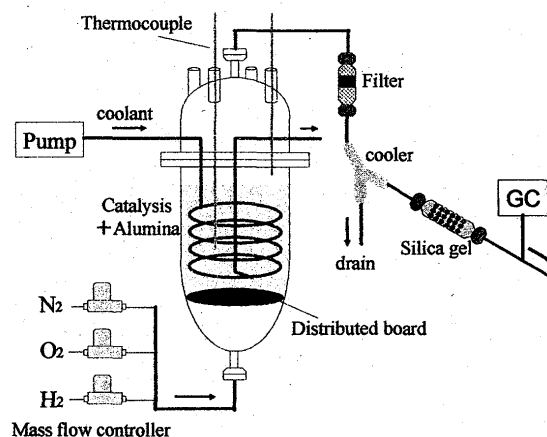


Fig.1 Experimental apparatus for hydrogen combustion

Table 1 に実験条件を示す。本実験に用いた操作パラメータは実験装置や実験条件に制約される。例えば、反応温度は容器の耐熱と冷却能力の限界値から決まる。粒子の飛散と流動化状態の維持を考慮すると、ガス総流量の最大値は 15L/min, 充填粒子量の最大値は 100g, 触媒量の下限値は 0.1g となる。水素濃度の上限は安全性を考慮して 10% とした。それらの範囲から水素空間速度 (SV: space velocity, 1/min)

の上限は 20, 滞留時間の上限は 2.6 秒と決まる。ここでは, Table1 に示すように処理能力が最大となる条件について主に検討することとした。

Table 1 Experimental conditions

	Range
Hydrogen concentration, vol%	1, 5, 10
Alumina particles with catalyst, g	0.1, 1, 10
Dilution particle volume, g	20~100
Bed temperature, °C	15~600
Total gas flow rate, L/min	2.5, 6, 15
Hydrogen space velocity, 1/min	1~20
Rétention time, sec	0.6~2.6

3. 結果および考察

水素燃焼率と特性, 冷却水による層内温度制御に着目し実験結果を整理する。

3. 1 予備実験

冷却しない条件での層内の温度上昇を Fig.2 に示す。アップフローにすると流動層となるが, 同条件で気体を反応管上部よりダウンフローで供給することで固定層となる。流動層, 固定層ともに半径方向の温度分布はなかった。固定層は温度上昇時, 軸方向に強い温度分布が存在し, 層温度は約 400°C と高温で定常となった。一方, 流動層は軸方向にも温度分布はなく, ガスにより持ち去られる顕熱により固定層より低い約 220°C で定常となった。しかし, いずれの条件も冷却無しで 150°C 以下に温度制御することは困難であることがわかった。

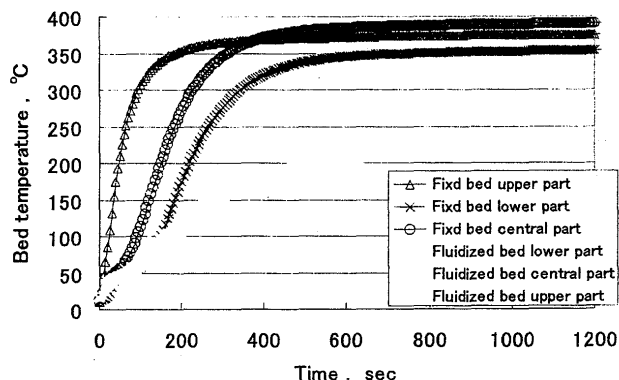


Fig.2 Changes of bed temperature without heat control

3. 2 水素燃焼率と燃焼特性

冷却水で層内を一定温度に制御した場合の層内温度と水素燃焼率を Fig.3 に示す。100°C 以上の高温になるとどの条件も燃焼率はほぼ 100% となり, 水素の燃焼速度は層内温度と強く相関し, 温度低下にともない 30°C で 50% 程度まで減少する。

水素濃度は 4~75% が燃焼範囲で 4% 以下は燃焼しにくく<sup>3)</sup>, 燃焼率は水素初期濃度にも影響される。白金触媒下で水素は 20°C 程度の室温でも燃焼反応は進む。しかし, 本実験でも, 上述の燃焼範囲下限以下の水素初期濃度 1% 条件では燃焼率は低く, 30°C で 10~20% となった。また, 燃焼範囲内の水素初期濃度 5% では 30°C の低温でさえ 40% 以上の燃焼率となった。

ガス総流量を変化させ滞留時間の影響を確認した実験では, 滞留時間 0.36~2.6 秒の範囲では燃焼率への大きな影響は見られず, 反応には十分な時間であると考えられる。

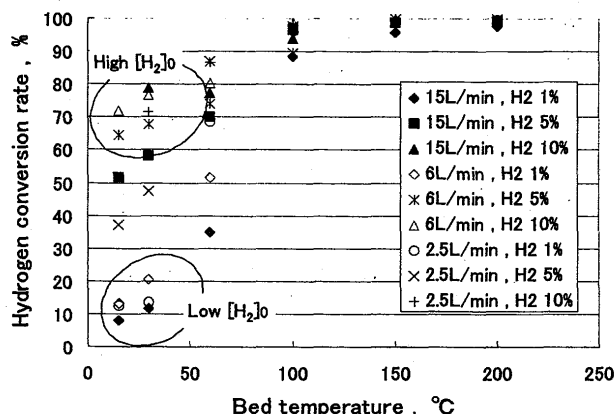


Fig.3 Influence of initial hydrogen concentration on hydrogen rate

Pt 触媒量の水素燃焼率に与える影響を Fig.4 に示す。ここでは 100°C 以上の高温域では触媒量に関係なく約 100% 燃焼するので, 20~30°C の低温および低濃度水素条件での水素燃焼率に及ぼす触媒量の影響に着目した。Pt 触媒担持粒子を 0.1g から 10g (Pt 0.001g~0.1g) に増加させることにより低温域では 40% 程度水素燃焼率が增加した。

供給水素の SV に対する水素燃焼量(L/min)を Fig.5 に示す。触媒量を 100 倍変えても水素燃焼量に大きな変化はない。触媒単位重量あたりの燃焼量は触媒量の少ないほうが増加する傾向にあるが, この SV 範囲での燃焼量は SV と相関が強くその他の因子の影響が小さく, 触媒量の影響は見えない。本実験条件では SV 値をさらに増加することは装置の制約上できなかったが, 水素燃焼量は SV 値を増加させると触媒量による影響が出てくると考えられる。この確認は今後の課題である。

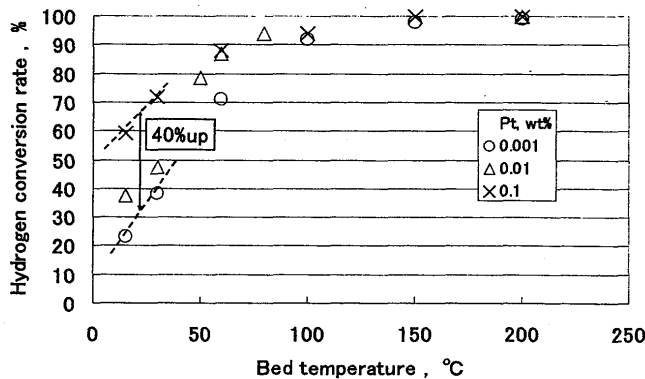


Fig.4 Influence of amount of catalyst on hydrogen conversion rate for low initial hydrogen concentration

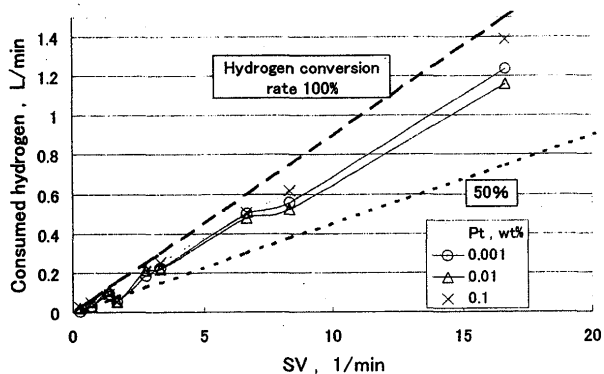


Fig.5 Relationship between space velocity and consumed hydrogen

### 3.3 水冷制御時の熱収支

流動層式水素触媒燃焼装置内の水冷管冷却による熱回収と装置全体での熱収支結果を Fig.6 に示す。生成熱は冷却水、排出ガス、壁からの放熱、層内の蓄熱の4つと考えられる。本実験での層内温度は定常であり蓄熱量は無視できる。図より熱収支はいずれも90%以上となることがわかる。熱回収量の中で最も多いのは冷却管内の水への移行で、約80%である。層温度120℃、150℃ではほとんどが水蒸気へと変わり冷却水へ移行した熱はその蒸発熱に使われる。次に排出ガスへの移行量が多く約5~10%、側面壁からの放熱量の割合は比較的小さいことがわかる。Fig.6 に示されていない50℃以下の低温実験では水冷と空冷の併用が必要だが、水冷管を層内に浸漬でき伝熱効果の大きい流動層を使用することで温度制御を容易に行うことができ、また流動層式水素触媒燃焼が有効であることを確認できた。

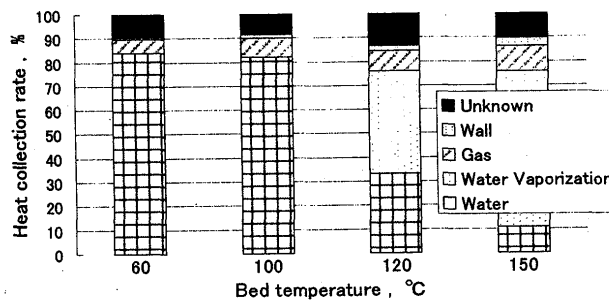


Fig.6 Heat balance of fluidized bed reactor with water cooling tube

### 4. 結言

水素利用にともなう残存水素の処理方法として、流動層式触媒燃焼法を提案し、その性能を確認した。その結果、以下のことを明らかにした。水素燃焼率は層内温度に強く相関があり、層内温度100℃程度で100%燃焼が可能である。水素初期濃度に影響され4%以下の低濃度は燃焼しにくい。流動層を用いることで高効率燃焼が可能であり触媒量を低減できる。層内に冷却管を挿入し抜熱することで温度制御を容易に行うことができる。

### 参考文献

- 1) 守富寛, 岐阜を考える (財団法人岐阜県産業経済振興センター) 特集論文 岐阜県における水素エネルギー利用策, (2005,N0.121)37-41
- 2) 流動層ハンドブック (培風館) 245-254
- 3) 高野伸一他, 水素利用技術集成 (株式会社エヌ・ティー・エス), (2003)231-235