

廃棄物処理等科学研究費補助金 総合研究報告書概要版

研究課題名・研究番号=マイクロ波誘電加熱による PVC 脱塩素技術の超高効率化による環境リスク低減 (K 1 7 3 3)

国庫補助金精算所要額 (円) =61,423,000

研究期間 (西暦) =2004-2005

研究年度 (西暦) =2004-2005

代表研究者名=丑田 公規 (独立行政法人理化学研究所)

共同研究者名=姫野 龍太郎 (独立行政法人理化学研究所) 安齋 正博 (独立行政法人理化学研究所) 上垣外 修一 (独立行政法人理化学研究所) 野寄 龍介 (北海道大学大学院理学研究科)

研究目的=廃棄プラスチック (以下廃プラ) は炭化水素が主たる成分であることから、石炭の代用物として製鉄所の高炉やコークス炉においてフィードストックリサイクルに供することが出来る。しかし、現在市場に流通している主要プラスチック材料のうち、約 20% を占めるポリ塩化ビニル (PVC) が塩素を成分として含み、処理中に発生する塩化水素が設備を腐食損傷する。このため、あらかじめ廃プラに脱塩素処理を施さなければならないが、混合廃プラでは加熱による脱塩素効率が低くなるので、通常の加熱処理は分別され PVC を濃縮された廃プラでのみ有効である。分別された廃プラばかりでなく、混合廃プラでも脱塩素処理を効果的に達成できるように、マイクロ波照射による誘電加熱法で、PVC のみを選択的に加熱する方法を開発してきた。その結果、高い効率を有する処理装置を作らない限り、経済優位性が実現せず、普及にほど遠いことがわかった。本研究では、処理装置の設計を根本的に改めるために、誘電加熱プロセスの精密なシミュレーションをスーパーコンピュータで実行する。そのため、誘電率、熱物性などのプラスチック材料の物性値取得と解析プログラムシステムの開発を平行して行い、最終年度には、高効率の処理装置を実現することを目標とする。

研究方法=市場に流通する主要プラスチックについて、厳密なマイクロ波領域の誘電率測定および熱伝導度測定を行い、データを集積する手法を確立するため、本年度は引き続きデータの集積を進めた。まず、ネットワークアナライザを用いた誘電率測定システムによる誘電率測定においては、電気オープンを用いた恒温槽内での測定により 100 以上の温度に対応した測定システムを製作した。測定部位の温度上昇があるため、ケーブルや測定セルの特性が変化してしまうので、ケーブルなどの温度管理を行い、測定機器 (ネットワークアナライザ) の冷却も行った。また、熱伝導度、熱拡散測定のための物性測定装置について、半田を用いない高温用の測定機材を追加導入し、測定温度範囲の拡充を行った。試料は厚さ 5mm 直径 5cm のディスクを 100 個程度作製し、これを 2 枚用いて規格化した測定を行った。これから構築したパラメータを用いて、シミ

ュレーションを行い、最適アプリケーションを戦略的に設計する技術を確立するために、有限要素法を用いた電磁界のシミュレーションプログラムを作成し、熱伝導シミュレーションと完全に連携した解析を行なうようにプログラムを連結した。試料を回転させるターンテーブルの回転も導入できるようになった。引き続き、PVCを市販の電子レンジによるマイクロ波照射で分解した時のメカニズムの実験的な解析については、引き続き温度上昇カーブを各温度で精密に測定しながら、シミュレーションと対比できるデータを取得した。

結果と考察=マイクロ波領域の誘電率測定に関しては、フィルム試料を用いて広範囲の温度領域における測定実験を行った。測定用フィクスチャはAPC7ケーブルを改造して作成したものであるが、理研の精密加工技術を用いてさらに性能が向上したフィクスチャを製作した。この時APC7ケーブルに使われているプラスチック材料を耐熱性の高いものに交換するなどの改良を行った。これにより測定フィクスチャが量産化され、そのうち良好なものをセレクトすることにより、安定的な測定ができると共に、完全に性能がそろった測定が北海道大学(40GHzシステム)と理化学研究所(20GHzシステム)において、比較可能な測定ができるようになった。

各種プラスチックフィルム試料については室温から100(去年は80)までの温度で誘電率測定をすでに北海道大学の設備(20GHzまで測定可能)を用いて行った。これによると主要プラスチックではPVCのみが誘電正接にマイクロ波領域に明瞭な誘電緩和ピークを持っている。PVCについては純粋PVC、炭酸カルシウム入りPVC、軟質PVCペレット、軟質PVCシートの3種類を測定した。マイクロ波の吸収を示す誘電正接はこの順序で大きくなるが、軟質PVCシートのみが桁違いに大きな値を取り、しかもそれが温度上昇につれて大きく増大することがわかった。これは従来の実験結果と定性的によく一致する。この他に、テフロン系のプラスチック(PTEF,ETFE,2F-3FH)、ポリスチレン2種(アタクチックポリスチレン、シンジオタクチックポリスチレン)についての誘電率データを集積した。

一方室温における熱伝導度、熱拡散係数、比熱容量の精密測定を9種類のプラスチック(PVC、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ABS、PMMA、PET、POM、6-ナイロン)について定量的に測定することが出来た。添加剤の多いポリスチレンに関しては、測定が困難であった。さらに、これらの熱輸送係数の温度変化を95までPVCについて行った。これによると、ガラス転移点より低い温度(50付近)で、熱拡散係数、比熱容量が大きく変化し、70付近で変化量が頭打ちになることがわかった。また熱伝導度はほぼ一定であった。ばらつきの多い測定値ではあったが、補間することによりなめらかな曲線を得ることが出来たので、これをそのままシミュレーションプログラムに用いることが可能になった。

2年度を通じて電磁界と、熱伝導および熱流の計算を連結して行う連成解析のオリジナルプログラムを理化学研究所の情報基盤センターに依頼して作成した。このシミュレーションでは、1)ある温度で各空間点の材料または空気の誘電率を指定し、2)誘電加熱の際の電磁界をシミュレーションし、3)誘電加熱による注入エネルギーを計算し、4)各点における発熱、熱伝導を計算し、5)各点の温度を求めるというステップを取る。これは電磁界シミュレーションの時定数が、1周期0.4ns程度(2.45GHz)であるのに対し、温度変化による熱物性や誘電率の変化がミリ秒程度より遅いものと考え、1)-3)と4)-5)が全くかけ離れた時定数になることを利用してデカップルしたシミュレーションを行っていることが特徴である。また、格子点を回転させることも出

来るので、ターンテーブルを用いた時の過熱状況もシミュレーションできる。これはプラスチックのマイクロ波加熱の状況を把握し、なおかつ加熱装置を設計するのに有力なツールとなる。材料定数の非線形性を十分に考慮するために、数値解析法を改良し、誤差の発生する要因や、時間刻み幅の影響などを十分に検討した。理化学研究所のスーパーコンピューター（RSCC）上で稼働することを前提とし、入力に際しては CAD データとの連携、可視化に関しては 4D ビジュアライザとの連携が出来るように設計した。

テスト計算として $285 \times 285 \times 155$ の寸法からなるアプリケーション底部に 10cm 角厚さ 0.1 mm の PVC フィルムを置いて $E_z = 40.0$ kV/m かけた場合の過熱状態を 60 秒までシミュレーションした。このとき約 60 秒でフィルム上にマイクロ波の波形を反映した温度分布が出来、中心温度が 150 程度にまでなることが確認された。これは、実際の試料の状況と定性的に一致する。このときのアプリケーション内の電場モード、磁場モードも可視化できている。さらに同じアプリケーション内に $50 \times 50 \times 50$ の PVC ブロックを置いた場合の過熱状況をシミュレーションした。マイクロ波の波束の腹の部分に当たる立方体試料内の限られた領域に加熱が進行することがわかった。そこで、250 以上の温度になったところは速やかに脱塩素が完了したものと仮定して、脱塩素分布を求め、脱塩素された領域の体積から脱塩素率を決定した。

また試料をターンテーブル上に置いて回転させるシミュレーションも行った。この解析には格子点の取り方を工夫する必要がある。これにより、上記脱塩素領域の体積が拡大し、脱塩素率が向上することがわかった。 $50 \times 50 \times 50$ の立方体型 PVC ブロック、ならびに $160 \times 60 \times 20$ の直方体型ブロックのシミュレーションを行ったところ、直方体型の試料ではさらにムラのない加熱が可能で、脱塩素領域が拡大することがわかった。このため試料全体の脱塩素率は著しく向上した。これは従来のターンテーブルを用いた実験とよく一致している。

結論= 2年間の研究でプラスチック材料の誘電率並びに熱物性の測定システムと、電磁界のシミュレーションプログラムがほぼ完成した。前者の測定システムでは、測定温度をさらに拡充することが求められるが、装置の改良によりおよそ 100 までの測定が可能になり、温度上昇プロセスをシミュレーションするだけの連続データを取得することができた。またシミュレーションでは電磁界と熱流の連成解析が初めて可能になり、ターンテーブルの回転を含めた高度なシミュレーションが可能になった。