九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

Study on the decomposition characteristics of tar derived from low temperature gasification of brown coal over coexisting char

張, 立欣

https://hdl.handle.net/2324/1398405

出版情報：九州大学, 2013, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：やむを得ない事由により本文ファイル非公開（3）

氏　　名：張　立欣

論文題名：Study on the decomposition characteristics of tar derived from low temperature gasification of brown coal over coexisting char
（褐炭の低温水蒸気ガス化時に生成するタールの共存チャーによる分解特性に関する研究）

区　　分：甲

論　文　内　容　の　要　旨

埋蔵量が豊富で、かつ地域偏在性のない石炭のエネルギー資源としての重要性は高く、今後も石炭の使用量は増加すると予想されている。地球温暖化や資源枯渇問題を考慮すると、石炭はできるだけ高効率に利用されなければならない。現在、石炭をエネルギー源とする発電プロセスは、石炭の燃焼熱により発生させた水蒸気を利用してスチームタービンを駆動する直接燃焼発電が主流であるが、石炭をガス化して得られた可燃性のガスによりガスタービンを駆動し、さらにスチームタービンと複合する石炭ガス化複合発電が効率の観点から注目されている。

石炭ガス化においては、石炭をガスへと分解するために必要となる熱を石炭の部分燃焼により賄うが、この燃焼による化学エネルギー損失を出来るだけ小さくする、すなわち、より低温で石炭をガス化することが高効率化につながる。しかし、低温での反応操作は、ガス化反応器あたりの石炭処理能力の低下や石炭ガス化の初期反応である熱分解過程で生成するタール（多環芳香族化合物を主成分とする重質油成分）の残留によるガス化プロセス運転の障害を招く。

そこで本研究では、石炭含有灰分の融点よりも低い1000℃以下でのガス化の迅速化と生成タールの分解を、ガス化炉（気泡流動層）前段に熱分解炉（ダウナー）を設けた粒子循環型流動層ガス化炉により実現すること想定し、これまで研究例のない、ダウナー部での石炭転換特性に着目した基礎実験研究を実施している。本論文は、褐炭を試料とし、共存チャーによる生成タールの分解特性や低コスト触媒による褐炭低温水蒸気ガス化の迅速化について検討した結果を纏めたもので、全5章から構成される。

第1章の緒論では、既往の研究や低温ガス化実現に向けて克服すべき課題について述べ、本研究の位置づけと意義を明らかにしている。

第2章では、豪州褐炭急速熱分解で生成するタールの共存チャーによる改質について検討している。ダウナー部を模擬するために全長2.4ｍの粒子落下式縦型管状反応

器（DTR）を製作し、予め 900℃に加熱した DTR 上部から豪州褐炭及び豪州褐炭の熱分解により得たチャーを同時に供給し、DTR 出口での生成物を詳細に分析している。その結果、試料粒子が DTR を滞在するわずか 3 秒程度の短時間でも、共存チャーの効果により生成タールが分解することを見出すとともに、同時供給するチャー/褐炭比や粒子ホールドアップが高いほど、さらに用いるチャーの表面積が大きいほどタールの分解が顕著になることを明らかにしている。

第 3 章では、ダウナー部装置設計や操作条件設定の指針を得るための熱流動シミュレーションに適用可能な反応速度モデルの構築を目的とし、第 2 章で示した DTR 実験において、DTR の加熱長を変化することで、粒子やガス滞留時間を制御した実験を実施している。得られた実験結果の反応速度解析を行い、ガス、タール、スス、チャーの 4 つの成分および 6 つの反応を考慮したランピングモデルを提案し、生成物分布に及ぼす温度や水蒸気分圧の影響を良好に再現することに成功している。

第 4 章では、安価な天然鉱物を用いて調製した触媒担持褐炭の水蒸気ガス化特性について検討している。金属（Na，Ca，Na/Ca）をイオン交換担持したインドネシア褐炭の DTR における転換特性を調査している。その結果、粒子落下中の約 3 秒足らずの間に生成チャーの *in-situ* での水蒸気ガス化が顕著に進行し、とりわけ Na/Ca 共担持炭のガス化反応性は最も高く、1000℃では、初期熱分解チャーの 73%が迅速にガス化することを見出している。さらに、触媒は、すすやタールの残留量の低減に寄与することも明らかにしている。

第 5 章では、本論文を総括している。