

## 学位論文審査報告

阿部, 力也

<https://hdl.handle.net/2324/16626>

---

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 23 (1), pp.53-54, 2001-06. Interdisciplinary Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University

バージョン :

権利関係 :

## 学位論文審査報告

氏名(本籍) 阿部力也(福島県)  
学位記番号 総理工博乙 第308号  
学位授与の日附 平成13年1月31日  
学位論文題目 加圧流動床複合発電システムにおける排ガス成分の生成メカニズムと濃度予測手法の確立

### 論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 持田 勲  
(副査) 〃 〃 今石 宣之  
〃 〃 〃 江口 浩一

### 論文内容の要旨

加圧流動床(以下、PFBC と略す)ボイラは、燃焼効率、脱硫効率、発電効率等においてよりすぐれた性能を有しており、プラントの運用性、信頼性、経済性が十分実証されれば、石炭利用技術の多様化・拡大が図れ、立地の選択肢が広がるので、その技術確立が大いに期待されている。

電源開発株式会社は、地球環境負荷低減技術開発の一環として、独自の排ガス高温脱塵システム(セラミックフィルター)を組合わせ、電気出力71MWのPFBC複合発電実証機を建設し、運転研究を行った。

本研究は、数多くの燃焼試験排ガス中の硫黄酸化物・窒素酸化物の排出挙動と系内温度および酸素濃度を詳細に分析し、これらガス間の相互作用を解析して、排出濃度の予測手法の構築を試み生成機構を考察した。さらに流動媒体でありかつ脱硫材である石灰石を観察し、PFBC炉内における脱硫機構について考察した。

第1章では、全世界的な環境問題の状況と石炭利用技術の高度化の必然性、その中におけるPFBC技術の占める位置付け・役割・将来性について明確にし、PFBC排出ガス成分の濃度予測および生成機構解明の重要性について述べた。

第2章では、窒素酸化物の生成機構を解明し、発生濃度の予測手法の確立を目的とした。PFBCでは一般に燃焼温度が低いため発生する窒素酸化物濃度も低く押さえることができるが、リアルタイムでのボイラ出口窒素酸化物濃度の予測ができれば、プラント本体および脱硝装置の最適制御も可能となり実機運転上非常に有効である。実機PFBCにおいて、負荷変化に伴って石炭投入量・燃焼温度・排ガス温度・流動床層高・炉内圧力・排ガス中 $O_2$ 分圧などの条件パラメータは相互に関連しながら変化し、窒素酸化物濃度に影響することを認めた。単一炭4炭種、2炭混炭2種の燃焼試験結果をまとめ、排出される $NO_x$ および $N_2O$

濃度に対する操作条件および炭種の影響を解析した。流動層燃焼条件では空気中 $N_2$ が $NO_x$ 生成源にならないことを確認した上で、排ガスのサイクロン内温度( $T_c$ )・酸素分圧( $P_{O_2}$ )と排出 $NO_x$ ・ $N_2O$ 濃度の相関を定式化できる事を示した。さらに、燃料石炭中の窒素分が窒素酸化物( $NO_x$ 、 $N_2O$ のモル総和)に転化される全窒素転換率と $N_2O$ 転換率とが排ガス温度と酸素分圧の間に良い相関を見出した。窒素酸化率と $N_2O$ 転換率の差を $NO_x$ 転換率として計算(ASH<sup>TR</sup>- $NO_x$ 式)し、実測 $NO_x$ 値と計算 $NO_x$ 値との一致が良好であり、PFBCで発生する $NO_x$ の予測が可能であることを報告した。

第3章では、PFBC炉内における脱硫材の変化に注目して、炉内脱硫機構の解明、排出 $SO_2$ 濃度の予測を試みた。PFBCのような高 $CO_2$ 分圧条件では、投入する石灰石と $SO_2$ の直接反応( $CaCO_3 + SO_2 + 1/2O_2 \rightarrow CaSO_4 + CO_2$ )で進行するため、脱硫率が低いと考えられてきた。しかし71MWePFBCにおいて、脱硫率が98%を超えることを実証し、環境負荷低減を高効率・低コストで実現できることを明らかにした。大型流動床の底部では空気が供給される散気管から一定範囲の $CO_2$ 分圧の低い領域で、カルシネーション( $CaCO_3 \rightarrow CaO + CO_2$ )が起り、より脱硫性能の大きな生石灰が生成して、 $SO_2$ を捕捉すると考えた。生石灰は、バーナー近傍の還元的条件で発生する $H_2S$ をも捕捉( $CaO + H_2S \rightarrow CaS + H_2O$ )し、層内脱硫をさらに向上させる。

一方、脱硫率は層温度・酸素分圧の影響に加え、排出ガスが激しく攪拌されるサイクロンにおけるガス温度との相関も強いことを見出した。一旦 $SO_2$ を吸着して石膏となった脱硫剤がフリーボード部分で熱分解あるいは $CO$ などの還元剤との反応により $SO_2$ を放出する。これらの反応がサイクロン部内で平衡に達しているとして予測の背景を明らかにした。

第4章では、PFBCで発生する $NO_x$ 、 $N_2O$ 、 $SO_2$ 、 $CO$ 間の相互作用について解析した。55回の定常状態試験結果と連続運転試験結果の両方において、これらのガス成分間に相関相互作用があることを認めた。石膏の熱分解( $SO_2$ と $CO$ の関係)と、窒素酸化物の酸化還元反応( $NO$ 、 $N_2O$ 、 $CO$ )のそれぞれに部分平衡が成立している事を確認した。これらを組み合わせたガス間の相互作用( $CaSO_4 + N_2O + 2CO \rightleftharpoons CaCO_3 + 2NO + SO_2 + Volatile-C$ )を仮定し、これらガスの濃度比( $(N_2O/SO_2) \times (CO/NO)^2$ )をサイクロン平均ガス温度( $T_c$ )に対して、アレニウスプロットしたところ、定常状態においても過渡状態においても、きわめて高い相関を認めた。

第5章では、PFBC排ガス中の $CO$ 濃度の予測式を

導出し、第2章で得られた NO, N<sub>2</sub>O の予測式と第4章で導き出した相互作用式を組み合わせ、SO<sub>2</sub> の予測式を導き出した。これらの一連の予測式を ASH<sup>TR</sup> 式と命名した。これにより、NO・N<sub>2</sub>O・CO・SO<sub>2</sub> 等の排出静的濃度の予測が可能になる。この予測式において N<sub>2</sub>O と SO<sub>2</sub> はサイクロン排ガス温度 (T<sub>c</sub>) の1乗に依存し、NO<sub>x</sub> と CO は T<sub>c</sub> の1/2 乗に依存する。サイクロン中での排ガスに関する数々の反応がルシャトリエの法則に従ってそれぞれの濃度を決定していると理解した。しかしながら、部分負荷時の層高調整で BM がベッドに投入されると局所的に燃焼不良が起り、これらのガス濃度がスパイク状に変化する。この変化はベッド温度の変化に対応している事を見出した。燃焼の急激な変化はベッド温度の急減につながり、バーナーゾーンにおいて未燃カーボンや CO 等還元物質を生成し、ベッド層上において NO を還元し、N<sub>2</sub>O を増加させたり、ベッド内での SO<sub>2</sub> 捕捉を妨げ、ベッド層上での SO<sub>2</sub> 濃度を増加させる等の変化を起こすと考えられる。

こうしてベッド温度をパラメーターとして ASH<sup>TR</sup> 式を補正して、スパイク状の濃度変化の予測を確立する見とおしを得た。

第6章では、以上を総括し、結論を述べた。

### 論文調査の要旨

石炭の加圧流動床 (PFBC) ボイラーは燃焼効率、脱硫効率、発電効率においてすぐれた性能が期待できることから、プラント運用、信頼性および経済性についての実証、さらに商業化が進められている。電源開発株式会社は、新規な発電技術を実証する国家プロジェクトとして、71MW の PFBC 複合発電実証機を建設、運転研究を行った。阿部氏はこの国家プロジェクトのリーダーとして参画し、実証試験を主導した。

本研究は、このプロジェクトにおいて、排ガスが環境基準を満たすよう、硫黄および窒素の酸化物、一酸化炭素の排出濃度を詳細に追跡し、その排出濃度とボイラー、サイクロンの温度あるいは酸素濃度から予測する手法を確立し、これら排ガスの各成分の生成機構あるいは石灰石による捕捉機構を明らかにすることを目的とした。本研究の主な成果は以下の通りである。

(1) PFBC は、燃焼温度が800℃付近にあるため、窒素酸化物濃度を低く抑さえられることを特徴としているが、さらに排出窒素酸化物濃度を連続予測するため、種々の条件における排出濃度を追跡し、種々の条件パラメーターとの相関を解析した結果、排出 NO<sub>x</sub>, N<sub>2</sub>O 濃度がサイクロン平均ガス温度 (T<sub>c</sub>) および酸素分圧 (PO<sub>2</sub>) と相関して定式化できる事を見出した。

さらに石炭中の窒素が、窒素酸化物に転換される割合、つまり全窒素転換率、N<sub>2</sub>O への転換率、排ガス濃度、酸素濃度との相関を認め、全窒素転換率と N<sub>2</sub>O 転換率の差から算出できる NO<sub>x</sub> 転換率が実測 NO<sub>x</sub> 値とよく一致することを認めている。

(2) 本 PFBC において、従来想定されていた CaCO<sub>3</sub> による脱硫より高い脱硫率が達成できる事を見出している。CaCO<sub>3</sub> が CO<sub>2</sub> 分圧の低い炉底部で脱炭酸し、CaO を生成していることを認め、このため、脱硫率が向上すると考えている。さらにバーナー近隣で生成する H<sub>2</sub>S も捕捉できることも、脱硫率の向上に寄与すると考察している。

(3) 脱硫率は流動層温度、酸素分圧に加えて、T<sub>c</sub> とも相関することから、流動層で生成した CaSO<sub>4</sub> がサイクロン内で熱分解、あるいは還元され、SO<sub>2</sub> を放出する機構を提案している。

(4) PFBC で発生する NO<sub>x</sub>, N<sub>2</sub>O, SO<sub>2</sub>, CO の濃度に関する式 N<sub>2</sub>O/SO<sub>2</sub> × (CO/NO)<sub>2</sub> が、アレニウスプロットにおいて、T<sub>c</sub> と直線関係にあることを認め、これらのガス成分の転換反応において部分平衡が成立するとして理解している。

(5) 前項のアレニウス式に基づいて、N<sub>2</sub>O, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, CO の濃度相関予測式を算出し、これらの濃度予測値が実測値と一致することを確認し、これらの定常濃度の予測法を確立している。さらに層高調整等により、流動層が動的に変化すると、これに対応したスパイク状の濃度変化が定常濃度に重畳することを認めている。このような濃度の変化は層温度の変化に対応していることから、こうした非定常濃度についても、予測式を提案している。

(6) N<sub>2</sub>O, SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, CO の排出濃度の予測式に基づき、流動層、フリーボード、サイクロン、セラミックフィルター等、PFBC 装置各部所での石炭の熱分解、チャー生成、揮発分およびチャー燃焼、石灰石、石灰灰の変化にこれらのガスの反応を対応させ、その動的状況を推論し、広義の燃焼機構を考察し、排ガス濃度の予測と制御の手法を提案し、操業指針を確立している。

以上、本論文は PFBC の実証プラントの運転で蓄積された NO<sub>x</sub>, N<sub>2</sub>O, SO<sub>2</sub>, CO 等の排ガス濃度に関する膨大なデータを整理し、その濃度予測式を提案し、炉内反応機構を推定し、排ガス規制を遵守する操作法を確立したもので、実用上の意義に加えて、燃焼工学、環境保全のための化学工学、石炭科学において価値ある業績であり、博士 (工学) の学位に値する。

~~~~~