

高揮発性石炭の化学構造パラメータ同定法の提案と 石炭ガス化炉におけるタール生成特性に関する研究

横濱, 克彦

<https://hdl.handle.net/2324/7329509>

出版情報 : Kyushu University, 2024, 博士 (工学), 課程博士
バージョン :
権利関係 :



氏 名	横濱 克彦			
論 文 名	高揮発分炭の化学構造パラメータ同定法の提案と石炭ガス化炉におけるタール生成特性に関する研究			
論文調査委員	主 査	九州大学	教授	渡邊 裕章
	副 査	九州大学	教授	宮崎 隆彦
	副 査	九州大学	教授	林 潤一郎

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

石炭の熱分解プロセスで発生するタールや煤は、後流プロセスでの運転阻害要因となるため発生量の把握が重要である。熱分解ガスの発生量予測に **Chemical Percolation Devolatilization (CPD)** 理論に基づく石炭の化学構造を考慮した反応解析手法が用いられているが、従来の ^{13}C -NMR スペクトル解析に基づく化学構造推定手法は、熱分解ガス発生量の予測精度が低い。そこで本研究では、新たな化学構造パラメータの同定法を構築するとともに、実ガス化炉条件における本手法の有効性を検証することを目的とした。

まず、燃料比が 0.94～1.64 の高揮発分炭 8 炭種に対して、工業分析値と CPD モデル計算結果を比較するため、 ^{13}C -NMR スペクトル解析を実施し、化学構造同定過程における種々モデルパラメータの感度について調査を行った。その結果、橋頭炭素の化学シフトが石炭の化学構造同定過程に決定的な役割を果たすことがわかった。また、この過程で、従来の CPD モデルではある定数値として与えられていた芳香核クラスタに接続する α 炭素数をその反応に着目して適切な値を推定することが可能な CPD- α モデルを提案した。次に、橋頭炭素の化学シフトピーク位置を推定するため、 ^{13}C -NMR スペクトル解析で計測した芳香族炭素割合とメチレン類炭素割合の関係を表す相関関数を構築した。上述の CPD- α モデルと相関関数を用いて推定された化学シフトを用いて得られる石炭の化学構造に基づく熱分解ガス発生量の予測値を、前述の 8 種の高揮発分炭の示差熱天秤を用いた熱分解実験結果と比較した。その結果、従来の CPD モデルでは平均誤差が 18%と大きかったが、CPD- α モデルでは 6%にまで低減することが確認できた。さらに、供試炭 8 種のうちの 2 炭種については、高压流通管式反応試験装置 (DTF) の熱分解実験結果との比較を実施した。その結果、高压条件においては、従来の CPD モデルでは平均誤差が 17 %であるのに対し、CPD- α モデルでは 2%にまで低減可能であることがわかった。さらに、軽質ガスやタールの発生割合など、炭種間の差異も定性的に捉えられることがわかった。以上より、燃料比が比較的低い高揮発分炭に対する CPD- α モデルの予測結果は、幅広い昇温速度および温度範囲において従来の CPD モデルよりも誤差が大幅に低減し、モデルの精度が向上することを確認した。

次に、本石炭化学構造同定法を、熱分解過程で発生するタール成分の化学種と発生量に着目した拡張 CPD モデル、ならびに気相の素反応モデルと組み合わせることで、タールの発生・分解モデルを予測するモデルの構築を行った。本モデルには、4 種類の官能基と 3 種類の架橋を考慮し、タール分解には 10 種の分解反応式を、タール蒸発反応には 8 種の反応式をそれぞれ考慮した。タール組成には 1 環から 7 環までのうち 4 種の芳香核を採用し、その割合はキュリーポイントパイロライザーと高压 DTF を用いて決定した。気相反応モデルには 76 化学種 131 素反応が含まれる化学反応メカニズムを採用した。検証には、前述の 8 種類の高揮発分炭の工業分析データと示差熱天秤デ

ータ、および 2 炭種の高圧 DTF でのタール発生データを用いた。その結果、工業分析揮発分、示差熱天秤の重量減少、および高圧 DTF のいずれの実験値に対する誤差は 3%以内であり、高精度な予測が可能であることがわかった。ただし、本モデルではタールからのすす生成を考慮していないため、高分子量のタール予測については誤差が生じることもわかった。

さらに、本研究で構築されたタール発生・分解モデルを、石炭処理量 24t/日規模の石炭ガス化炉試験装置で計測されたヒドロカーボン濃度との比較を実施した。その結果、本研究で提案するタール発生・分解モデルは、実機クラス石炭ガス化炉出口のタール濃度を精度よく評価可能であることを確認した。

以上、要するに、本論文は、 ^{13}C -NMR スペクトル解析と新たな化学構造モデルに基づく高揮発分炭の化学構造同定法と、同法を用いた石炭熱分解およびタール発生・分解挙動を高精度に良く予測するモデルを提案するものであり、熱工学分野や化学工学分野における石炭の高温反応装置の研究開発や設計手法の進展に寄与するところが多い。よって本論文は博士（工学）の学位論文に値するものと認める。