

平成 30 年 5 月 16 日現在

機関番号：33910

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14178

研究課題名(和文)石炭燃焼から発生する微小粒子状物質(PM)の粗大化に関する研究

研究課題名(英文)Study on coarsening of fine particulate matter (PM) during coal combustion

研究代表者

二宮 善彦(NINOMIYA, Yoshihiko)

中部大学・工学部・教授

研究者番号：10164633

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：低品位炭は世界に広く分布している。低品位炭には、アルカリ金属およびアルカリ土類金属の含有率が高い石炭が多く、これらの低品位石炭を空気燃焼あるいはOxy-Fuel燃焼すると灰付着、ファウリングおよび微粒子の排出(PM_{2.5})などの問題を引き起こすことが指摘されている。本研究では、低品位炭の燃焼から発生する微小粒子状物質の粗大化に対する瀝青炭の添加による影響、ならびに最適粒子径のカオリン(粘土鉱物)の添加によって微小粒子状物質の低減を図ることを目的に研究を実施した。

研究成果の概要(英文)：Low-rank coals are widely distributed across the world. High content of alkali and alkaline earth metals in low-rank coals cause serious ash related problems such as ash deposition, fouling and ultrafine particulate matter emission (e.g. PM_{2.5}) during air and Oxy-Fuel combustion of coal. This study aims to clarify the effects of a bituminous coal blending on coarsening of fine particulate matter and the addition of kaolin (clay mineral) of optimal particle size on reduction of amount of fine particulate matter during coal combustion.

研究分野：エネルギー化学工学

キーワード：微小粒子状物質 石炭燃焼 PM 粗大化 低品位炭 アルカリ金属

1. 研究開始当初の背景

低品位石炭の有効利用技術開発は、石炭を大量に消費する石炭火力発電所において、将来に向けた重要課題の一つに挙げられている。低品位石炭の賦存量は、世界の石炭資源の半分以上を占める莫大な資源量があるにもかかわらず、産炭地における利用を除いてほとんどが未利用の状態にある。その主な理由は、

固有水分含有率が高い、灰分含有率が高い、ことによる石炭の質量あたりの発熱量が低いことに加え、さらに、石炭有機質と結合したイオン交換性金属 (Na、K、Ca など) の含有率が高いため、燃焼時に低融点の熔融灰分が生成しやすく、揮発性元素由来の微粉フライアッシュ粒子発生量が多い、ことなどによる。本研究では、石炭燃焼から発生する微小粒子状物質の低減と粗大化を図ることによって、集塵効率の低い粒子範囲 (2.5 μm 以下) の発生量を減らす燃焼技術を確認することを目的に、低品位炭に灰物性の異なる瀝青炭を添加した混合燃焼方式、低品位炭に粘土鉱物 (カオリン) を添加した燃焼方式、について、実験室規模のドロップチューブ燃焼装置を使用して検討した。

2. 研究の目的

上記の問題を解決するため、本研究では下記の内容を実施した。

(1) 灰物性の異なる石炭を混合して燃焼することによって、石炭燃焼から発生する微小粒子状物質の低減と粗大化。

(2) 石炭に顆粒の粘土鉱物粒子 (カオリン) の添加による燃焼場で集塵効率の低い微粒子 (2.5 μm 以下) の低減効果の確認。

3. 研究の方法

本実験では、ドロップチューブ燃焼装置 (以降 DTF) を使用した。装置の概略を図 1 に示す。反応管の全長は 2 m、内径は 50 mm で、燃焼に用いた石炭は炉の上部にあるフィーダ

ーより 0.15 ~ 0.2 g/min で供給した。炉の温度は 1400 および 1450 に設定し、11.5 L/min の空気を上部より供給して燃焼させた。燃焼灰は、反応管下部に設置したステンレス製水冷プロンプで捕集し、サイクロンおよび Low pressure Impactor で分級した。サイクロンで捕集した燃焼灰はレーザ回折式粒子径分布測定装置 (島津製 SALD-2300) を用いて粒径を測定した。また、Low pressure Impactor で風力分級した燃焼灰粒子は蛍光 X 線分析装置 (リガク製 RIX-2100) を用いて元素分析を行った。実験後の燃焼灰の観察には走査電子顕微鏡 (日本電子製 JSM-6510) を用いた。

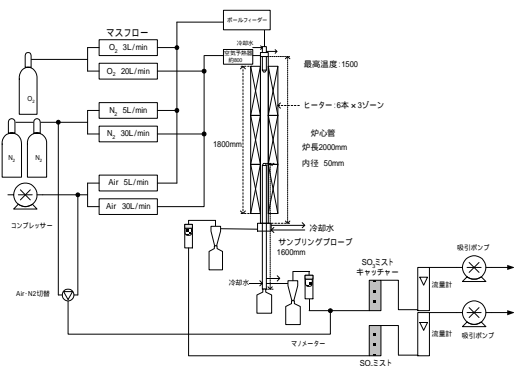


図 1 燃焼実験装置

4. 研究成果

(1) 灰物性の異なる石炭の混合燃焼技術による微小粒子状物質の粗大化

本実験では 2 種類の中国炭 (XJ: 低品位炭、JR: 瀝青炭) を使用した。表 1 に石炭の工業分析および灰分の分析結果を示す。混炭の燃焼試験は、XJ 炭に JR 炭を 0、10、20、30wt% 添加して行った。

表 1 使用した石炭の工業分析値および灰分の化学分析値 [wt%]

Coal Name	XJ [wt%]	JR [wt%]
kind of coal	Lignite	Bituminous
Moisture	22.0	7.3
Volatile matter	22.7	33.8
Fixed carbon	52.1	47.2
Ash	3.2	11.7

Chemical composition of ash (wt %)		
SiO ₂	5.2	56.3
Al ₂ O ₃	7.5	26.2
CaO	42.9	1.7
Fe ₂ O ₃	4.88	5.1
MgO	13.7	2.8
K ₂ O	0.3	3.2
Na ₂ O	4.3	1.0
SO ₃	20.1	2.1

図 2 には、1450℃、空気雰囲気下で燃焼したときの燃焼灰の質量濃度基準の粒径分布を示す。XJ 炭の灰分は 3.2%と低いにもかかわらず、1μm以下の微粒子の発生量は最も多い。一方、JR 炭は、石炭鉱物由来の粒子である 2.5μm の灰分粒子の生成量が多い。XJ 炭に JR 炭を 10、20、30wt%添加すると、1μm以下の粒子発生量が低下し、JR 炭を 20%添加することにより、発生量は約 1/3 に低下した。一方、2.5μm以上の粒子発生量が増加し粒子の粗大化の傾向が確認された。

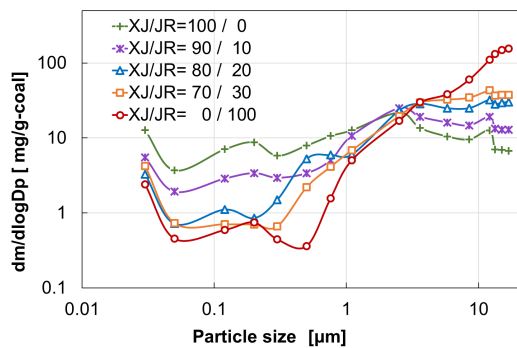


図 2 1450℃、空気雰囲気下で燃焼したときの燃焼灰の質量濃度基準の粒径分布

図 3 には、XJ 炭に JR 炭を 10、20、30wt%添加したときの PM 発生量を、0.2μm以下 (PM_{0.2})、1μm以下 (PM₁)、2.5μm以下 (PM_{2.5}) の積算質量で整理した結果を示す。JR 炭を 20%添加することにより、それぞれの発生量は約 1/3 に低下し、また、灰付着に起因する Na、Ca、Mg 元素も、原炭に比べて 1/5 以下に低下することが明らかになった。本結果から、瀝青炭を混合燃焼することによって、燃焼場でガス状金属が瀝青炭中の鉱物と反応・凝縮して粒子の粗大化したためと考えら

れる。

まとめ

低品位炭に瀝青炭を 0～30wt%添加した混合燃焼試験により、1μm以下 (PM₁) の微粒子発生量が 1/3 以下に減少、一方 2.5μm以上の粒子発生量の大幅な増加が観察され、微小粒子状物質の粗大化現象が確認された。1μm以下の灰付着に起因する Na、Ca、Mg も混合燃焼により低品位炭のみの燃焼に比べて 1/5 以下に減少し、燃焼場でガス状金属が瀝青炭中の鉱物粒子と反応・凝縮して粒子の粗大化に寄与していることが確認された。

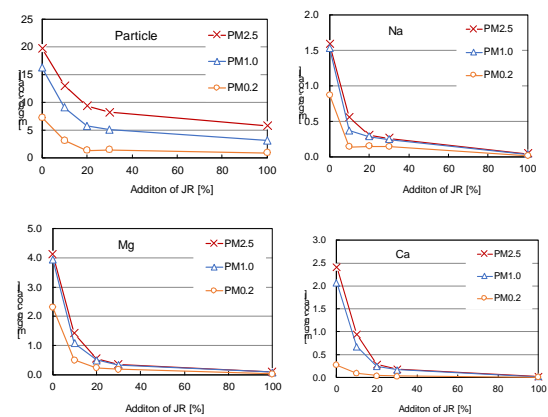


図 3 XJ 炭に JR 炭を 10、20、30wt%添加したときの PM および元素別発生量 (Na、Mg、Ca) の積算質量で整理

(2) 石炭に顆粒粘土鉱物 (カオリン) の添加による微小粒子の低減

石炭に顆粒の粘土鉱物粒子 (カオリン) を添加し、微小粒子がカオリン粒子に付着するイメージを図 4 に示す。

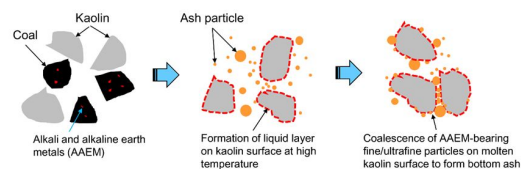


図 4 燃焼場における微小粒子が顆粒カオリン粒子表面に付着するイメージ

石炭中の (Na+K) に対してモル比を 1.4 倍

(石炭質量の 10wt%) で、空気燃焼および Oxy Fuel 燃焼条件 (28%酸素 / 二酸化炭素)、燃焼温度 1400 で実験を行った。カオリン粒子の粒径は、45 μm 以下、45-106 μm 、106-150 μm 、150-250 μm 、250-500 μm の粒径範囲の 5 種類を選び、最適な粒径範囲によるアルカリ金属の吸収効果を検討した。

表 2 使用した石炭の工業分析値および元素分析値 [wt%]

Proximate analysis (ad), %	
Moisture	8.07
Volatile matter	37.67
Ash	14.94
Fixed carbon	39.32
LHV, MJ/kg	21.13
Ultimate analysis (daf), %	
C	83.05
H	7.26
N	1.25
S	0.32
O (by difference)	8.12

表 3 使用した石炭灰分およびカオリンの化学分析値

Composition	Coal sample	Kaolin
SiO ₂	45.79	50.51
Al ₂ O ₃	14.3	47.07
CaO	6.07	0.16
Fe ₂ O ₃	14.98	1.09
Na ₂ O	0.99	-
MgO	3.12	-
K ₂ O	0.76	0.20
SO ₃	12.98	-
P ₂ O ₅	0.62	0.14
TiO ₂	0.39	0.70

PM の発生率を低減するためのカオリンの最適な粒径範囲を検討するため、カオリン添加した燃焼実験において、燃焼灰のフライアッシュへの分配率を測定した空気燃焼の結果を図 5 に、Oxy-fuel 燃焼の結果を図 6 に示す。図からわかるように、粒径 106 ~ 150 μm 範囲のカオリン粒子が最も効果的であり、1 μm 以下の微粒子発生量が空気および Oxy Fuel 燃焼のそれぞれで、未添加の場合に比べて 22.5%、18.1% の減少が確認された。

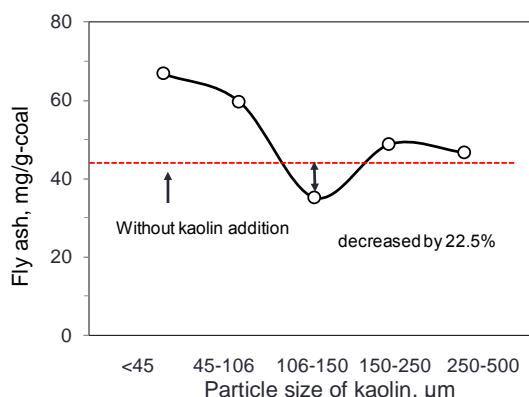


図 5 カオリン粒子を添加した空気燃焼実験において、燃焼灰のフライアッシュへの分配率を測定した結果

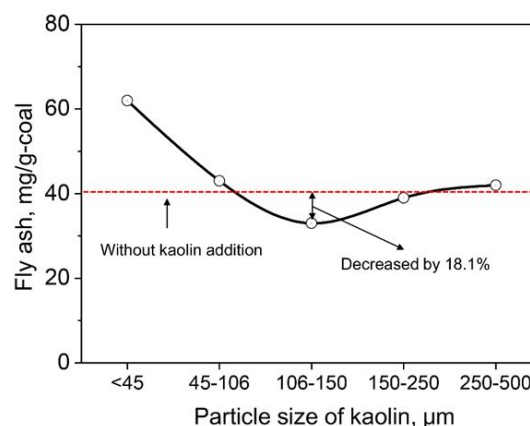


図 6 カオリン粒子を添加した Oxy-fuel 燃焼実験において、燃焼灰のフライアッシュへの分配率を測定した結果

つぎに、原炭、および 106 ~ 150 μm 範囲のカオリン添加した石炭の Oxy-fuel 燃焼実験において、Ma、K、Ca および Mg 元素のボトムアッシュ、フライアッシュ、微粒子への分配率の測定結果を図 7 に示す。原炭の燃焼結果と比較して、106 ~ 150 μm 範囲のカオリン粒子を添加することによって、ボトムアッシュの増加、フライアッシュおよび微粒子への 2/3 ~ 1/5 の割合で減少することが確認された。

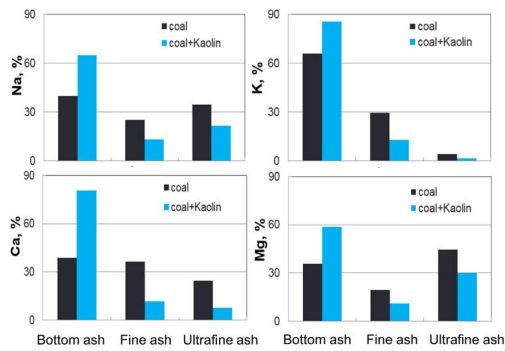


図 7 原炭およびカオリン添加した石炭の Oxy-fuel 燃焼実験において、Na、K、Ca および Mg 元素のボトムアッシュ、フライアッシュ、微小粒子への分配率

図 8 には、原炭および原炭に 106 ~ 150 μm 範囲のカオリン粒子を添加した Oxy-fuel 燃焼実験における 10 μm 以下のフライアッシュの質量濃度基準の粒径分布の測定結果を示す。1 μm 以下の PM および Na、K、Ca を含む微粒子濃度は、カオリンを添加することによって、1/5 ~ 1/10 に低下している。図 9 のカオリン粒子表面の SEM 写真に示すように燃焼場において微粒子がカオリン粒子と反応し、アルカリ金属を含むフライアッシュが付着・溶解して捕捉されることによるものと推定される。

まとめ

低品位炭に粒径 106 ~ 150 μm 範囲のカオリンを添加し、空気燃焼および Oxy Fuel 燃焼 (28%酸素 / 二酸化炭素) 条件で燃焼試験を DTF で行った。粒径 106 ~ 150 μm 範囲のカオリン粒子が最も効果的であり、1 μm 以下の微粒子発生量が空気および Oxy Fuel 燃焼のそれぞれで、未添加の場合に比べて 22.5%、18.1% の減少が確認された。この効果はカオリン粒子表面に Na、K、Ca が捕捉されて溶解し、飛散灰粒子の捕捉が容易になったためと推定された。

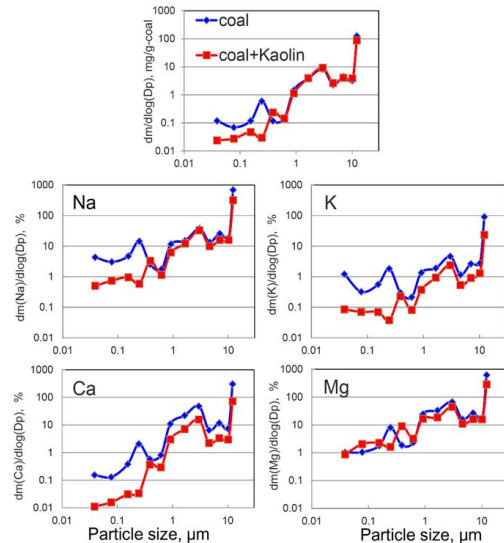


図 8 原炭および原炭に 106 ~ 150 μm 範囲のカオリン粒子を添加した Oxy-fuel 燃焼実験における 10 μm 以下のフライアッシュの質量濃度基準の粒径分布

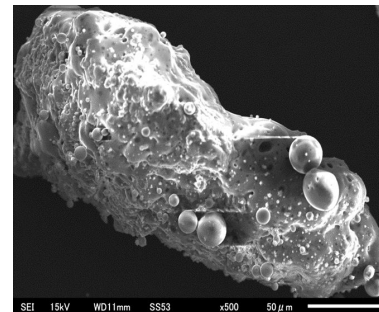


図 9 カオリン粒子表面の SEM 写真

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

Juan Chena, Facun Jiao, Zhongbing Dong, Osamu Niyomura, Tomoaki Namioka, Naomii Yamada, Yoshihiko Ninomiya; Effect of kaolin on ash partitioning during combustion of a low-rank coal in O₂/CO₂ atmosphere, Fuel, 査読有, 222, 538-543 (2018)
doi.org/10.1016/j.fuel.2018.02.191

〔学会発表〕(計 3 件)

1) Juan Chen, Facun Jiao, 山田直臣, 二宮善彦; 低品位石炭の燃焼におけるカオリン粒子の添加による微小粒子の低減に関する

研究、第 54 回石炭科学会議、No2-7(2017)

- 2) Juan Chen, Facun Jiao, Yoshihiko Ninomiya;
Effect of kaolin addition on fly ash emission
during combustion of low-rank coals, Tenth
Mediterranean Combustion Symposium
(2017)
- 3) 西尾依織, 加藤彩, 三宅淳, 焦癸存, 山田
直臣, 二宮善彦; 性質の異なる石炭の混合
燃焼による気相析出由来の微粒子の発生
量低減に関する研究、第 26 回日本エネル
ギー学会大会(2017)

6 . 研究組織

(1)研究代表者

二宮 善彦 (NINOMIYA, Yoshihiko)

中部大学・工学部・教授

研究者番号：10164633