

平成 22 年 5 月 1 日現在

研究種目： 基盤研究(B)
 研究期間： 2007 ～ 2009
 課題番号： 19360437
 研究課題名(和文) 固体燃焼・ガス化プロセスにおける灰の挙動に関する学理構築
 研究課題名(英文) Theoretical approach on ash behaviors in combustion/gasification processes of solid fuels

研究代表者
 成瀬 一郎 (Ichiro Naruse)
 名古屋大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号：80218065

研究成果の概要(和文)：本研究では、石炭、廃棄物、バイオマス等による燃焼・ガス化プロセスにおける燃料中の灰成分に関する物理・化学的挙動ならびに炉外への排出特性を、定量的かつ速度論的に解明し、その学理を構築する。主要な研究内容は、

- 1) 燃料中に含有している灰成分の存在形態の定量化によるキャラクタリゼーション
- 2) 燃焼・ガス化実験による反応過程中における灰粒子の凝集・分裂挙動の速度論解明
- 3) 灰付着実験による炉内における灰付着挙動の速度論解明
- 4) 炉外への灰粒子の排出特性定量化

である。

研究成果の概要(英文)：Behaviors of ash compositions in coal, waste, biomass and so forth during combustion or gasification processes were elucidated theoretically and quantitatively. The following issues were discussed in this research:

- 1) Characterization of ash occurrence in the fuels
- 2) Elucidation of coagulation and destruction behaviors during combustion or gasification
- 3) Behaviors of ash deposition in the furnace
- 4) Quantification of emission of particulate matter

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	3,800,000	1,140,000	4,940,000
2008年度	9,900,000	2,970,000	12,870,000
2009年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
総計	14,900,000	4,470,000	19,370,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・エネルギー学

キーワード：石炭、灰、燃焼、ガス化、バイオマス、廃棄物、灰付着、微量成分

1. 研究開始当初の背景

近年の原油価格高騰を受け、再度、固体燃料の代表である石炭が見直されつつある。その一方で、京都議定書に基づく地球温暖化ガ

ス削減の観点から、様々な可燃性廃棄物を含むバイオマスの燃料利用が国内外で加速している。このような石炭やバイオマスをエネルギー資源として利用する場合、主なエネル

ギー変換技術は燃焼やガス化プロセスである。しかし、固体燃料のエネルギー変換技術として燃焼やガス化プロセスを採用する場合、スラッキングやファウリングのような燃料中の灰に関する各種トラブル例が数多く報告されている。現状では、このようなトラブルに対して個別に対応しているに過ぎず、これは、これらのトラブルを学術的な観点から説明できていないことに起因している。そこで、申請者らは、これまでに、石炭の燃焼・ガス化条件における灰の付着特性に関して実験的に検討してきた。また、様々な温度域における石炭燃焼実験および下水汚泥やバイオマス等の廃棄物の燃焼実験等も実施しており、微量金属成分の一部が微粒子に濃縮し易い傾向や廃棄物由来の灰は熔融し付着し易い特性を有すること、とりわけ植物由来のバイオマスに関しては微粒子灰が生成し易いこと等をすでに明らかにしている。しかし、これらの知見は、あくまでも、異なる燃料あるいは異なる操作条件で得られた結果であり、いまだ燃料、操作条件等に依存しない灰の挙動に関する学理が未熟であることを痛感した。このような経緯から、この現況を打破するためには、灰の挙動に関する入口から炉出口までの一連の灰挙動に関する学理モデルを構築する必要であると着想した。

2. 研究の目的

本研究では、石炭、廃棄物、バイオマス等による燃焼・ガス化プロセスにおける燃料中の灰成分に関する物理・化学的挙動ならびに炉外への排出特性を、定量的かつ速度論的に解明し、その学理を構築する。期間内に実施する研究項目は次の通りである。

- 1) 燃料中に含有している灰成分の存在形態の定量化によるキャラクタリゼーション
- 2) 燃焼・ガス化実験による反応過程における灰粒子の凝集・分裂挙動の速度論解明
- 3) 灰付着実験による炉内における灰付着挙動の速度論解明
- 4) 炉外への灰粒子の排出特性定量化

このようにして得られたこれらの成果を統合することにより、固体燃焼・ガス化プロセスにおける灰挙動の総合的な学理モデルを構築する。

3. 研究の方法

各種固体燃料中に含有している灰成分の存在形態分析は、灰のバルク的な分析の他、燃料中の可燃成分と共存している灰分（インクルードミネラル）と全く独立して存在している灰分（エクスクルードミネラル）とを分離して、それぞれの灰分粒子中の粒径、組成、化合物形態を定量的に分析する。また、各種燃料中の灰の高温条件における粉体材料力

学的な物性は、昇温条件で加重をかけ、その際の変形度合いを測定することによりキャラクタリゼーションを行う。燃焼ならびにガス化実験は、実機での反応挙動をある程度模擬できる横型高温反応炉等を使用し、窒素希釈式水冷サンプリングプローブによって反応過程中の粒子を詳細に採集する。採集した粒子は、上述の分析計測方法によって、原炭中灰分と同様な灰粒子のキャラクタリゼーションを行う。灰の付着実験は、炉内へ水冷プローブを挿入して実施し、8mm ビデオで付着挙動の観察を行うとともに、灰が付着したプローブに関しては、付着した灰の質量を計測後、樹脂で固めてその断面を切断し、前述の灰のキャラクタリゼーション試料に供する。燃焼・ガス化場から排出される微粒子に関しては、採取粒子を Low Pressure Impactor (LPI) によって分級採取する。採取した粒子は、酸分解して溶液化し、原子吸光分光分析装置によって元素分析を行う。各種燃料の燃焼・ガス化プロセスにおける燃料中灰成分の物理・化学的挙動ならびに炉外への排出特性を定量的かつ速度論的に解明するための方法論は、反応過程粒子内に分布している灰粒子（インクルード灰粒子）の存在位置変化を統計処理し、灰粒子の粒子内凝縮速度を求める。一方、エクスクルード粒子に関しては、その粒径変化等から分裂速度を求める。灰付着挙動に関しては、灰付着量の時間変化から付着速度の算出し、反応雰囲気および燃料種の差異による付着機構の差異を定量的に明確にする。さらに、炉外への灰粒子の排出特性に関しては、分級した排出粒子の粒径や組成を分析することにより検討する。

4. 研究成果

- 1) 燃料中に含有している灰成分の存在形態の定量化によるキャラクタリゼーション

図1に、原炭中に含有している灰成分の存在形態を分離したSEM写真を示す。図中、赤色の部分が Included mineral 粒子、青色の部分が Excluded mineral 粒子である。なお、灰色は炭素質、黒色は試料を固めるために使用した樹脂である。

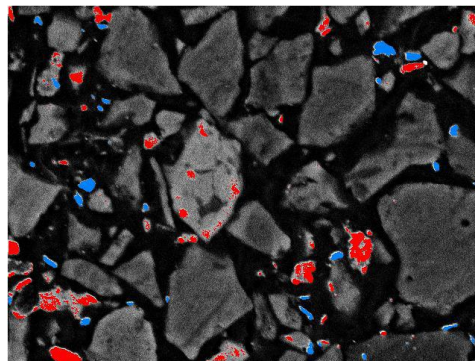


図1 原炭中における灰成分の存在形態

つぎに、図1の画像から Included および Excluded mineral 粒子の粒径分布と組成分布を分析・定量した。その結果の一例として、各粒径での Included および Excluded mineral 粒子の存在割合の結果を図2に示す。

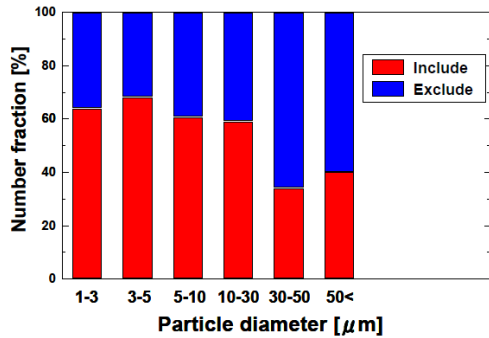


図2 各粒径での Included および Excluded mineral 粒子の存在割合

このような分析・定量を、炭種を変えて実施したところ、炭種によって、Included および Excluded mineral 粒子の存在割合が異なることならびに各粒径での Included mineral と Excluded mineral とで組成が異なる石炭があること等を明らかにした。

2) 燃焼・ガス化実験による反応過程における灰粒子の凝集・分裂挙動の速度論解明

図3に、燃焼過程における4炭種の灰粒径変化の実験結果を示す。本図が示すように、炭種によって、石炭中に含有する灰粒子の粒径変化が異なることがわかる。これは、灰粒子の融点や先述した原炭中の Included および Excluded mineral 粒子の存在割合に依存していた。

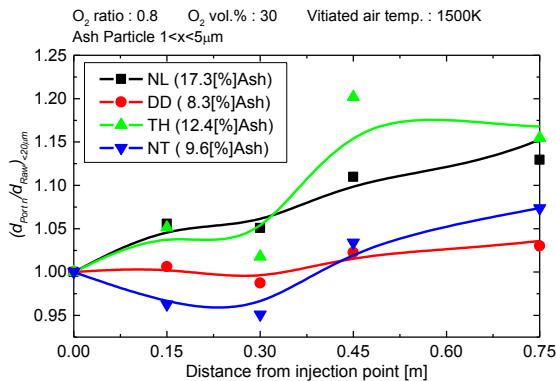


図4 燃焼過程における灰粒径の経時変化

3) 灰付着実験による炉内における灰付着挙動の速度論解明

実際の微粉炭燃焼条件において得られた灰付着層の断面構造の写真を図5に示す。本図より、伝熱管表面上には、数ミクロン程度の灰粒子が選択的に付着していることがわかる。この現象は炭種によらず同様であった。

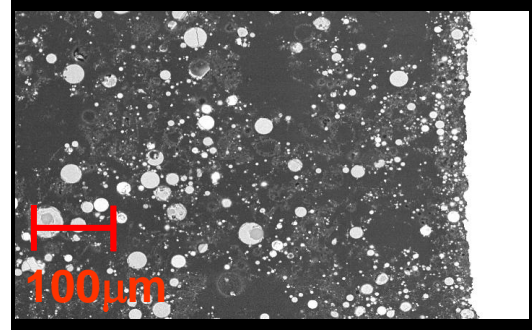


図5 微粉炭燃焼条件において得られた灰付着層の断面構造写真

つぎに、この初期付着層の灰組成を分析し、付着直前のチャー粒子中の灰組成と比較した。その結果を図6に示す。本図より、付着できる灰組成は、ある特定の組成であることがわかる。いわゆる灰付着には組成の選択性も存在しているといえる。なお、得られた各付着灰粒子の組成に基づいて高温条件での灰の粘性係数を計算したところ、初期付着層を構成する灰粒子の粘性係数は低く、高温場では溶融している可能性があることを明らかにした。

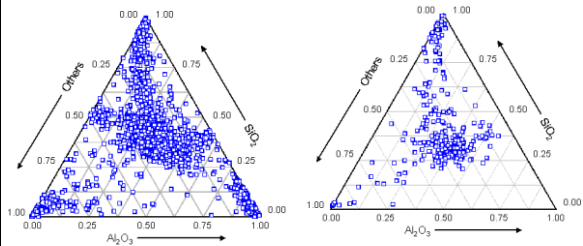


図6 付着直前のチャー粒子中の灰組成(左)と初期灰付着層の灰組成(右)の比較

4) 炉外への灰粒子の排出特性定量化

灰中には各種微量元素成分が含有している。この微量元素成分の一部には、高温で容易に揮発化し、最終的には集塵困難な微粒子に濃縮して大気へ排出されてしまう可能性がある。本実験では、比較的揮発化し易い微量元素成分として鉛化合物に着目し、燃焼過程での微粒子への濃縮特性を実験的に検討した。

図7は、乾燥下水汚泥を試料として電気加熱式ドロップチューブ反応炉で燃焼させた場合の微粒子への鉛の濃縮特性を示している。図中、青色のプロットが燃焼過程での鉛化合物の微粒子への濃縮特性を示しており、本結果から、鉛化合物は1 μm以下の微粒子に濃縮していることがわかる。なお、このような微粒子への濃縮を抑制する技術に、炉内へ捕捉剤を添加する方法がある。本実験では、カオリンを微量乾燥下水汚泥に添加して同

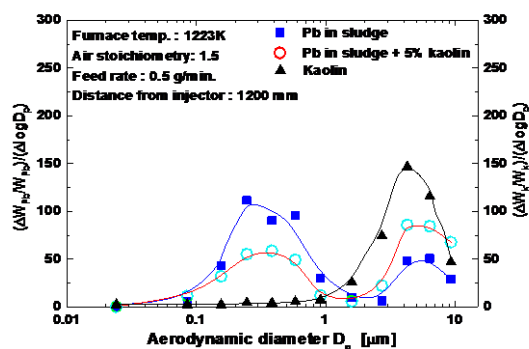


図7 乾燥下水汚泥を試料として電気加熱式ドロップチューブ反応炉で燃焼させた場合の微粒子への鉛の濃縮特性

一条件で燃焼させたところ、赤色のプロットのように鉛化合物の微粒子への濃縮が抑制できている。

最後に、微粉炭燃焼ボイラにおける灰付着の低減技術の開発も行った。従来から、微粉炭燃焼ボイラでは耐磨耗のために炉内伝熱管表面に合金薄膜の溶射を行っている。本研究では、耐磨耗とともに耐灰付着の機能を有する合金材料を開発し、実験室レベルから実機レベルの装置において、この溶射薄膜による灰付着低減を実験および理論的に実証した。図8は、開発した溶射材を伝熱管表面に200 μm 程度溶射して、実機微粉炭燃焼ボイラに設置した際の灰付着状況の写真である。本図より、溶射を施工した伝熱管表面にはほとんど灰が付着していない様子が観察できる。この理由を、灰付着部のガス組成や温度を模擬して熱力学平衡計算を実施したところ、この溶射皮膜が存在することによって灰粒子と伝熱管との化学反応が抑制され、灰の溶融を低減させているからであった。

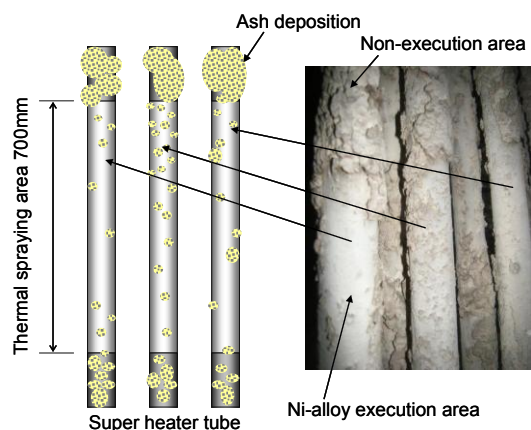


図8 実機微粉炭燃焼ボイラに設置した際の灰付着状況

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計9件)

- 1) 長田宏、義家亮、成瀬一郎 (8名中8番) : 界面反応を伴う石炭灰付着機構の解明、査読有、日本エネルギー学会誌、88、2、2009、816-822
- 2) 多久和毅志、義家亮、成瀬一郎 (4名中4番) : 充填層式木質バイオマスガス化炉の反応挙動解明、査読有、日本機械学会論文集B編、75、2009、242-248
- 3) H. Naganuma, R. Yoshiie, I. Naruse (8名中8番) : Control of ash deposition in pulverized coal-fired boiler, 査読有、Proceedings of Combustion Institute, 32, 2009, 2709-2716
- 4) H. Yao, I. Naruse: Behavior of lead compounds during municipal solid waste incineration, 査読有、Proceedings of Combustion Institute, 32, 2009, 2685-2691
- 5) 成瀬一郎 : 燃焼プロセスにおける微量成分を含む微粒子の生成挙動と炉内吸収技術、査読無、工業加熱、46、2009、31-37
- 6) 成瀬一郎、S. Raharjo、義家亮 (5名中1番) : 溶融アルカリ炭酸塩を用いた炭素系物質のガス化・脱硫特性、査読有、日本機械学会論文集B編、74、2008、2636-2641
- 7) T. Takuwa, I. Naruse: Detailed kinetic and control of alkali metal compounds during coal combustion, 査読有、Fuel Processing Technology, 88, 2007, 1029-1034
- 8) A. Gani, I. Naruse: Effect of cellulose and lignin content on pyrolysis and combustion characteristics for several types of biomass, 査読有、Renewable Energy, 32, 2007, 649-661
- 9) T. Takuwa, I. Naruse: Emission control of sodium compounds and their formation mechanisms during coal combustion, 査読有、Proceedings of the Combustion Institute, 31, 2007, 2863-2870

〔学会発表〕(計16件)

- 1) 成瀬一郎 : 環境調和型高効率エネルギー変換技術～地域規模から地球規模まで～、広域産学官交流ネットワーク、2009年12月3日、メルパルク長野(長野)
- 2) 義家亮、植木保昭、成瀬一郎 : 石炭ガス化過程における微粒子および微量成分の放出、第47回燃焼シンポジウム、2009年12月3日、札幌コンベンションセンター(札幌)
- 3) 松浦幹夫、義家亮、成瀬一郎 : 微粉炭燃焼ボイラの灰付着制御技術の開発、第47回燃焼シンポジウム、2009年12月3日、

- 札幌コンベンションセンター (札幌)
- 4) 長沼宏、成瀬一郎、義家亮、植木保昭
 燃焼灰付着挙動の炭種依存性、第 46 回
 石炭科学会議、2009 年 11 月 26 日、鹿児島
 島東急ホテル (鹿児島)
 - 5) H. Ono, R. Yoshiie, I. Naruse:
 Gasification Reactions of Woody
 Biomass Pellets in a Packed Bed
 Reactor, IWEE2009, 2009 年 11 月 25 日
 慶応大学 (横浜)
 - 6) 成瀬一郎: 固体燃焼・ガス化、第 43 回
 化学工学の進歩講習会、2009 年 11 月 12
 日、中部大学 (名古屋)
 - 7) R. Yoshiie, I. Naruse: Combustion and
 NOx Formation in CO₂-O₂ atmosphere, The
 10th Japan-China Symposium on Coal and
 Cl Chemistry, 2009 年 7 月 27 日, エポ
 カルつくば国際会議場 (つくば)
 - 8) 小野浩史、義家亮、成瀬一郎: 充填層式
 ガス化炉による木質バイオマスのガス
 化挙動、第 19 回環境工学総合シンポジ
 ヴム 2009、2009 年 7 月 10 日、おきなわ
 女性財団・沖縄県男女共同参画センター
 (那覇)
 - 9) K. Akiyama, R. Yoshiie, I. Naruse:
 Characteristics of ash deposition
 behaviors of upgraded brown coal (UBC)
 and bituminous coal, The Sixth
 Mediterranean Combustion Symposium,
 2009 年 7 月 8 日, コルシカ (フランス)
 - 10) R. Yoshiie, I. Naruse: Coal conversion
 technologies and control of toxic
 emissions, The 2nd Shanghai Jiao Tong
 University (SJTU) -Nagoya University
 International Research Exchange Forum
 on Environmental Studies, 2008 年 11
 月 28 日, 上海 (中国)
 - 11) I. Naruse, A. Gani: Co-combustion
 characteristics of coal with biomass
 and NO and N₂O formation and
 decomposition behaviors, The 32nd
 International Symposium on Combustion,
 2008 年 8 月 3 日, モントリオール (カナ
 ダ)
 - 12) I. Naruse: Role of Coal Utilization
 Technology for Sustainable Society,
 The 6th International Symposium on
 Coal Combustion, 平成 19 年 12 月 4 日,
 武漢 (中国)
 - 13) 成瀬一郎、河合隆之 微粉炭燃焼場に

おける灰付着特性の予測、第 44 回石炭
 科学会議、平成 19 年 10 月 11 日、秋田
 大学 (秋田)

- 14) 長沼宏、成瀬一郎: 石炭灰と金属との付
 着力温度依存性、日本エネルギー学会大
 会、平成 19 年 8 月 3 日、九州大学 (博
 多)
- 15) 長沼宏、成瀬一郎、微粉炭ボイラにおけ
 る灰の付着制御、日本学術振興会石炭・
 炭素資源第 148 委員会第 109 回研究会、
 平成 19 年 5 月 28 日、化学会館 (東京)
- 16) 成瀬一郎、河合隆之: 微粉炭燃焼・ガス
 化プロセスにおける灰付着機構と微量
 成分、日本学術振興会石炭・炭素資源第
 148 委員会第 109 回研究会、平成 19 年 5
 月 28 日、化学会館 (東京)

[図書] (計 3 件)

- 1) 成瀬一郎、義家亮他 6 名、三恵社、燃焼・
 ガス化技術の基礎と応用、2009, 65-83
- 2) 成瀬一郎他 23 名、化学工学、朝倉書店、
 2008, 71-116
- 3) 成瀬一郎他 22 名、コロナ社、生態恒常性
 工学、2008, 86-111

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
 なし
- 取得状況 (計 0 件)
 なし

[その他]

- ・ホームページ
<http://www.mech.nagoya-u.ac.jp/naruse/>

6. 研究組織

- (1) 研究代表者
 成瀬 一郎 (Ichiro Naruse)
 名古屋大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号: 80218065
- (2) 研究分担者
 義家 亮 (Ryo Yoshiie)
 名古屋大学・大学院工学研究科・准教授
 研究者番号: 60293544
- (3) 連携研究者
 なし