

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	ペブル床灰溶融ガス化炉を用いた固体燃料のタールフリーガス化
Title(English)	
著者(和文)	加藤義隆
Author(English)	
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第5436号, 授与年月日:2003年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第5436号, Conferred date:2003/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:
学位種別(和文)	博士論文
Type(English)	Doctoral Thesis

ペブル床灰溶融ガス化炉を用いた
固体燃料のタールフリーガス化

加藤 義隆

平成 14 年度
東京工業大学
総合理工学研究科
環境理工学創造専攻

目次

目次.....	1
第1章 序論.....	7
1-1 はじめに.....	7
1-1-1 研究背景と目的.....	7
1-1-2 MEETプロジェクト.....	7
1-1-3 ガス化.....	8
1-2 既往のガス化技術.....	11
1-3 ペブル床ガス化炉.....	14
1-4 高温空気.....	15
1-5 本論文の構成.....	16
参考文献.....	18
第2章 石炭のガス化特性.....	7
2-1 はじめに.....	20
2-2 既往の空気吹き石炭ガス化.....	20
2-3 実験装置・方法.....	21
2-3-1 実験炉の構成.....	21
2-3-2 実験システムの構成.....	22
2-3-3 測定項目および測定装置.....	23
2-3-4 運転手順.....	24
2-3-5 石炭試料.....	24
2-4 既存の石炭空気吹きガス化炉との比較.....	25
2-4-1 実験条件.....	25
2-4-2 実験結果.....	27
2-4-3 考察.....	28
2-4-3-1 炭素転換率の比較.....	28
2-4-3-2 冷ガス効率の比較.....	28
2-5 ガス化に影響を与える諸要因.....	29
2-5-1 燃料粒径の影響.....	29
2-5-2 熱収支.....	30
2-5-2-1 ガス化ガスの顕熱.....	30
2-5-2-2 放熱損失.....	31
2-5-3 高温空気.....	32
2-5-4 ペブル層の熱的效果とペブル径の影響.....	32
2-5-5 炉底部の影響.....	34

2-5-6	ガス化剤中の水蒸気濃度.....	36
2-6	まとめ.....	39
	参考文献.....	39
第3章	バイオマスのガス化特性.....	42
3-1	はじめに.....	42
3-2	既往の研究.....	42
3-2-1	代替燃料エンジン等.....	42
3-2-2	木質系バイオマス利用のためのガス化技術.....	43
3-3	実験装置・測定・運転方法.....	43
3-3-1	実験装置の改良.....	43
3-3-2	測定.....	43
3-3-3	運転手順.....	44
3-3-4	燃料供給.....	44
3-4	鋸屑ガス化実験.....	45
3-4-1	試料.....	45
3-4-2	実験条件.....	45
3-4-3	実験結果.....	46
3-4-4	鋸屑ガス化実験1の考察.....	47
3-4-5	空気過剰率の影響.....	51
3-4-6	炉長の影響.....	51
3-4-7	炭素転換率の影響.....	52
3-5	鋸屑の反応時間と温度.....	53
3-6	噴流床部の燃料とガス化剤の混合.....	54
3-7	まとめ.....	55
	参考文献.....	55
第4章	廃棄物の燃焼・ガス化特性.....	57
4-1	はじめに.....	57
4-2	RDFおよび一般廃棄物の燃焼特性.....	57
4-2-1	RDFガス化に取り組む背景.....	57
4-2-1-1	ダイオキシン類排出低減に向けた取り組み.....	57
4-2-1-2	廃棄物焼却炉におけるダイオキシン類の発生経路.....	57
4-2-2	RDF.....	58
4-2-3	既存の廃棄物ガス化技術とマスバーン.....	59
4-2-4	ペブル床ガス化炉におけるRDFガス化の目的.....	62

4-2-5	ペブル床ガス化炉における RDF 燃焼実験	62
4-3	下水汚泥 RDF ガス化	63
4-3-1	下水汚泥の処分状況	63
4-3-2	下水汚泥 RDF ガス化の課題	64
4-4	プラスチックガス化	66
4-4-1	プラスチックガス化における既往の研究	66
4-4-2	ポリプロピレン実験	67
4-4-3	燃料供給管の閉塞	68
4-5	まとめ	68
	参考文献	69
第5章	炭化物ガス化に関する検討	71
5-1	はじめに	71
5-2	炭化物ガス化の背景	71
5-3	炭化物ガス化実験	72
5-3-1	実験装置	72
5-3-2	試料	72
5-3-3	実験条件	74
5-3-4	実験結果	74
5-3-5	実験の考察	74
5-4	ガスエンジン駆動のための検討	75
5-4-1	平衡組成における検討	75
5-4-2	エンジン側での検討	76
5-5	まとめ	77
	参考文献	77
第6章	溶融灰に関する検討	78
6-1	はじめに	78
6-2	溶融灰の組成変化	78
6-2-1	金属元素の組成変化	78
6-2-2	ガス化雰囲気による変化	79
6-2-3	運転温度の制限	81
6-3	スラグの連続抽出	81
6-3-1	スラグバスとグリッドの試験	81
6-3-2	検証実験	82
6-4	まとめ	84

参考文献.....	84
第7章 結論.....	86
付録1 高温空気発生装置.....	89
A 1-1 原理.....	89
A 1-2 ペブル床ガス化炉との相性.....	89
付録2 ガス化剤の比較.....	91
A 2-1 計算条件.....	91
A2-1-1 想定するシステムの規模.....	91
A2-1-2 比較するガス化剤.....	91
A2-1-3 原動機.....	92
A2-1-4 その他の条件.....	92
A 2-2 計算結果.....	92
参考文献.....	94
付録3 高温空気流量の計測.....	95
A 3-1 排気ガス成分から高温空気流量を求める方法.....	95
A 3-2 ピトー管で高温空気流量を測る方法.....	96
A 3-3 都市ガス.....	96
参考文献.....	96
付録4 固体燃料の供給.....	97
A 4-1 供給機.....	97
A 4-1-1 テーブルフィーダ.....	97
A 4-1-2 RDF粉砕物などカサの大きなものの供給.....	97
A 4-1-3 スクリューフィーダ.....	98
A 4-2 キャリブレーション.....	98
A 4-2-1 重量測定.....	98
A 4-2-2 データ整理.....	99
A 4-2-3 燃料の種類による特徴.....	100
付録5 温度測定.....	101
A 5-1 温度.....	101
A 5-2 ペブル床部の温度測定.....	101

A 5-3	噴流床部に供給されるガスの温度	101
A 5-3-1	ガス化剤温度	102
A 5-3-1-1	予備実験によるガス化剤温度の測定	102
A 5-3-1-2	計算式の作成	103
A 5-3-2	ガス化剤と搬送ガスを混合したときの温度	105
付録 6	ガス化実験の評価方法	106
A 6-1	ガス化ガス流量の計算方法	106
A 6-2	物質収支の求め方	108
A 6-3	熱収支の計算方法	109
A 6-3-1	計算の仮定	109
A 6-3-2	熱入力	110
A 6-3-3	熱出力側の計算	110
A 6-3-3-1	噴流床部とペブル床部の熱損失	110
A 6-3-3-2	ペブル床部の蓄熱効果	111
	参考文献	112
付録 7	既往のプラントに関する報告例	113
A 7-1	代表的な既往の石炭ガス化炉	113
A 7-2	1970から1980年代の廃棄物ガス化溶融炉	114
	参考文献	115
付録 8	溶融灰の融点予測	116
	参考文献	117
付録 9	ペブル床ガス化炉の改善案	118
	参考文献	118
付録 10	重金属排出挙動調査サンプル実験	119
付録 11	実験装置	122
A 11-1	安全装備	122
A 11-2	ガス化炉の操作性・作業性	122
A 11-3	ガス化炉の気密	124
A 11-4	後流配管	124
A 11-5	ガス分析装置	125

A 1 1 - 5 - 1	試料ガスのサンプリング	125
A 1 1 - 5 - 2	試料ガスの前処理	126
A 1 1 - 5 - 3	分析方法	126
A 1 1 - 5 - 4	測定ガスの排気	127
A 1 1 - 6	その他	127
A 1 1 - 6 - 1	排ガス中のダスト濃度の測定方法	127
A 1 1 - 6 - 2	組み立て作業	127
A 1 1 - 6 - 3	のぞき窓のパージ	127
A 1 1 - 6 - 4	ガス化炉運転前の試料の調査	127
	参考文献	128
	謝辞	129

第1章 序論

1-1 はじめに

1-1-1 研究背景と目的

「高温空気燃焼技術を用いた廃棄物・石炭高効率発電」という研究課題は科学技術振興事業団の戦略的基礎研究推進事業（Core Research for Evolutional Science and Technology ; CREST）に平成9年度分として採択された。「高温空気燃焼技術を用いた廃棄物・石炭高効率発電」という研究プロジェクトは、MEETプロジェクトと呼ばれる。MEETとは Multi-staged Enthalpy Extraction Technology の略である。MEETプロジェクトの目的は「どのような低質な燃料に対しても、ほぼ同様な機器構成で対応でき、燃焼に伴う環境負荷を最低限に抑えながら高効率の発電が行える、安価かつコンパクト、しかも信頼性の高い画期的な発電システムの開発を目的とするものである。⁽¹⁾」とされており、研究代表者の東京工業大学の吉川教授が「小規模な炉も造れる⁽²⁾」と述べるように、中小規模のプラントも対象にしていることがMEETプロジェクトの特徴である。

本論文のタイトルに使用する「灰溶融ガス化炉」という単語は、本論文の中では英語の“Slagging Gasifier”に対応する言葉として使用する。

MEETプロジェクトにおける本研究の役割は、新たにMEETプロジェクトのために提案されたペブル床ガス化炉というガス化炉を石炭 200kg/day 規模の実験装置で運転を行い、ペブル床ガス化炉の特性を調べることである。

本論文で扱うベンチスケールの実験装置は初号機ということで、実証試験を基にペブル床ガス化炉における課題を見つけ出し、対策方法の検討も試みた。

1-1-2 MEETプロジェクト

MEETプロジェクトの基本構想は以下のように述べられている⁽³⁾。

我が国で開発された高温空気燃焼技術を用いて、廃棄物や石炭などの環境負荷の高い燃料に適用可能な、高効率、低環境負荷、しかも低コストの発電システムを開発することを目的とします。本発電システムでは、1000°C以上に加熱された高温空気で燃料をガス化し、生成ガス中の環境汚染物質を除去した後に、生成ガスを再び高温空気で低 NO_x 燃焼させて、蒸気タービンやガスタービンを駆動する方式を採用しています。

以上を具現化するものとして小林、吉川らによって提唱されたシステムはMEETシステム⁽⁴⁾と呼ばれる。MEETシステムの構成は平成9年に提唱されたものから変化し、平成13年頃から図1-1で示されるようになった。平成9年当時は、ガスエンジンコージェネレーション（Gas Engine Co-generation）が低 NO_x 高温空気燃焼ボイラ⁽⁵⁾であった。

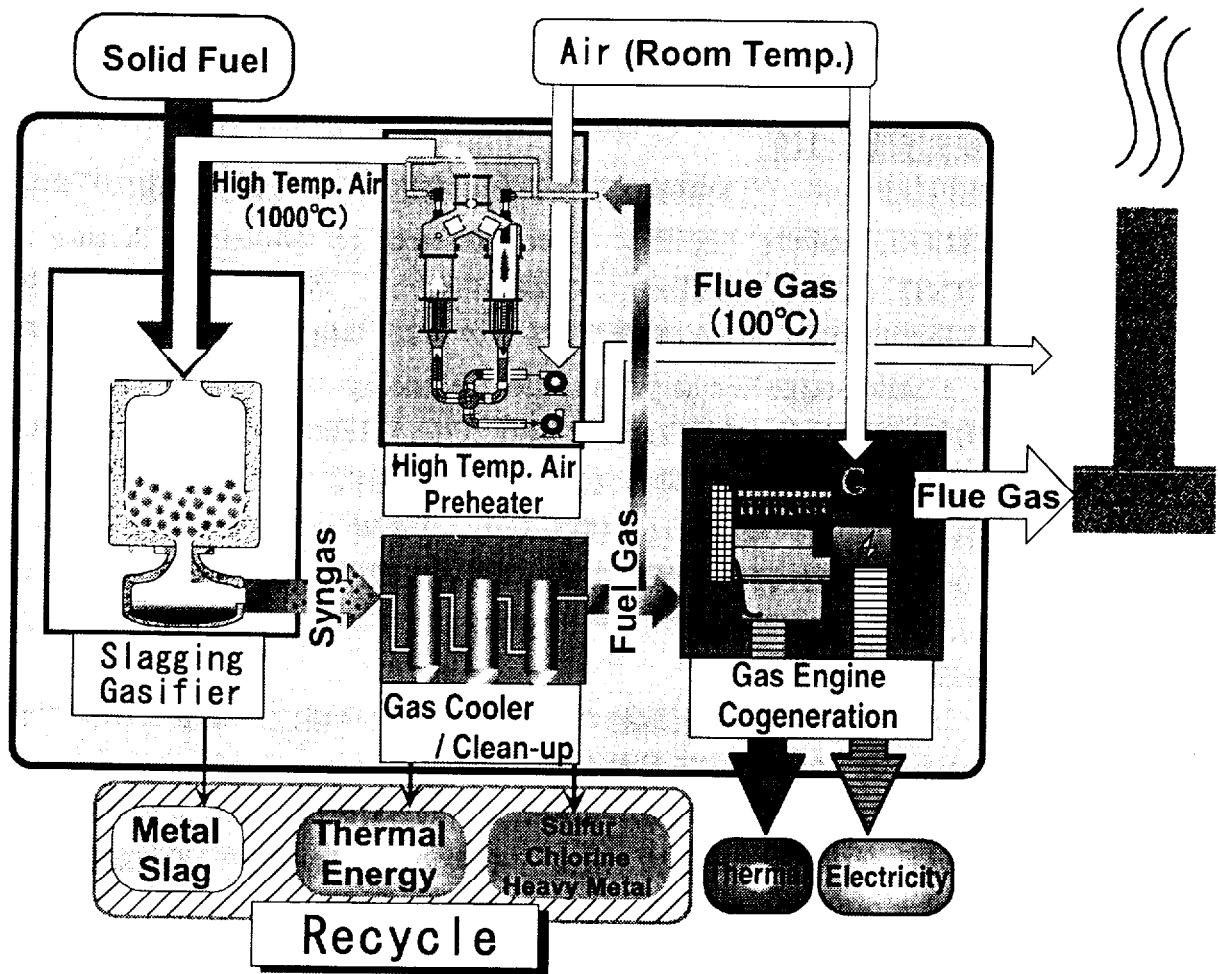


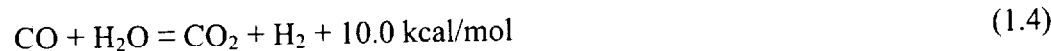
Fig.1-1 Concept of MEET system

MEETシステムの構想は以下の通りである。石炭や廃棄物といった固体燃料はガス化炉の中でガス化され、燃料ガスになる。ガス化剤には水蒸気を添加した1000°C程度の空気を用いる。固体燃料のガス化によって生じた燃料ガスは温度を下げた後に、精製する。精製されたガス化ガスは、その一部をガス化剤である空気を高温に加熱するために用い、残りは様々な用途の燃料として利用する。固体燃料中の灰分はガス化炉内で溶融分離され、スラグとして取り出される。高温空気を用いることにより、灰分の無い気体燃料を発生させる過程で、ガス温度を灰分の融点以上にすることが可能となる。溶融固化されたスラグは、溶融されていない灰とは異なり、比容積が小さい。本研究が対象にしているペブル床ガス化炉は、可燃分をガス化すると同時に灰分の溶融も行う灰溶融ガス化炉の一種であり、MEETシステムの主な構成要素の一つである。

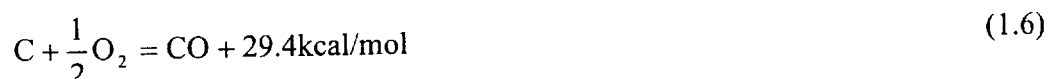
1-1-3 ガス化

ガス化 (Gasification) とは、高分子の化学結合を切断し、 $\text{CH}_4 \cdot \text{H}_2 \cdot \text{CO} \cdot \text{CO}_2$ など

の小さなガス状分子に転換させることである⁽⁶⁾。その手段として熱分解（乾留）および酸素や水蒸気などのガス化剤（Gasifying Agent, Gasification Medium）を用いた部分酸化・改質などが用いられる。この反応で発生するガスをガス化ガス（Syngas, Synthetic Gas）と称している。ガス化には燃焼反応や式(1.1)～(1.5)に示す諸反応を利用する。式(1.1)～(1.5)で示される反応には呼び名があり、文献により異なるが、式(1.1)が熱分解(Pyrolysis)、式(1.2)がメタン化反応(Methane Production Reaction)、式(1.3)が水性ガス化反応(Water Gas Reaction)、式(1.4)がシフト反応(Water Gas Shift Reaction)、式(1.5)が発生炉ガス反応(Boudouard Reaction)と呼ばれている。これらの反応で発生する熱量は文献によって若干の違いがある。



これらの反応を起こすにはある程度の温度が必要であり、外部から熱を加えない限り、反応場の温度を上昇させるために式(1.6)～(1.10)の燃焼反応を起こす必要がある。式(1.9)の $\text{H}_2\text{O}(\text{g})$ は H_2O の気体を意味する。



空気過剰率(Excess Air Ratio) 1.0を超えて空気を投入して燃料を反応させると、式(1.8)、(1.9)の反応で燃料が消費され、発生するガスはただの排ガス(Flue Gas)になる。ガス化ガスを得るためには、空気過剰率を下げた部分燃焼(Partial Combustion)という状態が望ましい。式(1.2)や一酸化炭素と水素からメタンを発生させる反応は常圧では進行し難く、加圧下の比較的低温領域で進行し易い。

ガス化炉の性能を示す指標として用いられる炭素転換率(C.C.R.)および冷ガス効率(C.G.E)は、式(1.11)、(1.12)で定義される。

$$C.C.R. \equiv \frac{\text{ガス化ガス中のC総量}}{\text{投入した固体燃料中のC総量}} \times 100 \quad (1.11)$$

$$C.G.E. \equiv \frac{\text{ガス化ガスの総発熱量}}{\text{投入した固体燃料の総発熱量}} \times 100 \quad (1.12)$$

本格的な石炭の熱分解といえる技術が誕生したのは 1792 年と言われ、蒸気機関を改良したジェームズ・ワットのスポンサーだったウィリアム・マードック（英）が行った⁽⁷⁾。1807 年にはロンドンで石炭の乾留（Carbonization）で発生するガスが照明に利用されている⁽⁸⁾。石炭のガス化技術は、化学工業界において原料製造用あるいは都市ガス製造用として用いられてきたが、近年では石炭ガス化複合発電（Integrated coal Gasification Combined Cycle ; IGCC）の中核技術として研究開発が行われている⁽⁹⁾。IGCC では固体燃料をガス燃料に転換することによりより高い熱効率が見込まれる。ただしガス化が絶対的に良いということではなく、競合する複数の技術が進歩するなかで、ボイラと IGCC があると考えるべきだと思われる。微粉炭ボイラーの蒸気条件（圧力、蒸気温度）を向上させれば熱効率が上がる。1960 年代以降、ボイラーの蒸気条件の向上は重油火力を中心に行われたが、2000 年 7 月には電源開発株式会社橘湾火力 1 号機（1050MW, 25MPa, 600/610°）が運開するに至っている^{(10) 注1}。ボイラと IGCC は使用に適した炭種の違いで差別化される面もある。

廃棄物においては熱分解という単語もガス化として扱われており、文献（11）の中でも「通産省 21 世紀に向けた発電技術懇談会 1997 年 6 月」を出所とする表の中で熱分解という単語がガス化として扱われている。廃棄物の熱分解—ガス化—であるが、日本において中都市以上には焼却炉が整備された 1970 年頃から、廃棄物の資源化を要求する世論が高まり、主として燃料化を目的とした熱分解技術の自己開発^{注2}や海外からの技術導入が行われた⁽¹²⁾。

しかし 2002 年の現時点では廃棄物ガス化はエネルギー回収もさることながら、溶融やダイオキシン制御の手段として捉えられている面がある。廃棄物学会によって刊行された廃棄物研究レビュー（1990—1999）⁽¹³⁾の分類から「ガス化」という単語を探すと、「焼却処理」に関する研究を 8 つに分類した中分類のひとつ「溶融・スラグ」の一項目「ガス化溶融・直接溶融」として登場する。石炭ガス化の分野では灰溶融が石炭中の灰分を溶融させることを指すのに対して、廃棄物の分野において灰溶融はマスパーンの後の灰の溶融を指す。第 4 章で述べるが廃棄物のガス化プラントの多くが、発生させた熱分解ガスやガス化ガスを炉内で燃焼させており、廃棄物のガス化は解決すべき課題が多く大きな進歩が期待できる分野だと言える。

バイオマス（Biomass）のガス化は、木炭の製造が紀元前から行われており⁽⁷⁾、長い歴史がある。第 2 次世界大戦中から薪から発生させたガスでエンジンを駆動する技

術が用いられており、バイオマスのガス化は一般廃棄物 (Municipal Solid Waste: MSW) とは異なり、ガス化ガスで内燃機関を駆動する。ガス化ガスがメタノール生成の原料に用いられるなど、バイオマスのガス化は使用用途が一般廃棄物よりも石炭に近いとも言える。

以上の他にもガス化ガスの用途はあるが、本研究ではガス化ガスをガスエンジン等の内燃機関で使用するものとして話を進める。ガス化ガスをガスエンジンで使用する場合、 1000kcal/Nm^3 以上の発熱量が必要だと言われている。しかし文献によっては発熱量 800kcal/Nm^3 のガス化ガスでもエンジンを駆動している例がある。この点については第 5 章にて言及する。

ガス化によるエンジン駆動と蒸気発生によるタービン駆動の違いは小型のシステムにおいて顕著になると思われる。タービンは小型になるとケーシングとブレードの隙間の割合がタービンブレードに対して相対的に大きくなり、損失が大きくなる。また、ボイラーでは pH が低いと鉄が急速に腐食されるため、腐食を制御するためにアルカリを制缶剤として水の中に入れる缶水処理を要するが⁽¹⁴⁾、極端な負荷変動等の要因でこの缶水が過熱器に持ち込まれると過熱器のアルカリ腐食の原因になる。分散電源 (Distributed Generator; DG) において、内燃機関を用いたガス化システムには、原動機の効率や水の管理の簡便さという利点がある。

1-2 既往のガス化技術

石炭のガス化で現在実用化あるいは開発中のガス化炉を反応装置の面から分類すると基本的には下記の 4 形式に分類することができる。

- 固定床ガス化炉 (Fixed Bed Gasifier)
- 流動床ガス化炉 (Fluidized Bed Gasifier)
- 噴流床ガス化炉 (Entrained Bed Gasifier)
- 熔融床ガス化炉 (Molten Bath Gasifier)

これに廃棄物の熱分解に用いられるロータリーキルンを加えれば、現在研究されている既存のガス化炉は大半が分類可能である。各分類の中で各ガス化炉は更に分類することが可能で、それぞれが炉内圧力や温度・炉の形状・燃料の投入方法・ガス化剤の種類・燃料の種類が異なってくる。ガスを発生させるという意味では、微生物の利用や超臨界水などがあるが、ここでは除外する。

床 (しょう) は分野や文献によっては層 (そう) と呼ばれる。また噴流床を気流床もしくは輸送層⁽¹⁵⁾ と記述する文献もある。なお噴流層という言葉には Spouted Bed という英語訳も存在する。この噴流層 (Spouted Bed) が意味するものは粒子を充填した層の状態である。円錐状の粒子層底部から供給したガスが、粒子層中心軸の粒子を

上向きに吹き上げ噴流 (Spout) を形成し、同時にその周囲を粒子が固定床状に下降する環状構造 (Annulus) をいう⁽¹⁶⁾。本論文でいう噴流床は Entrained Bed を意味するものとする。

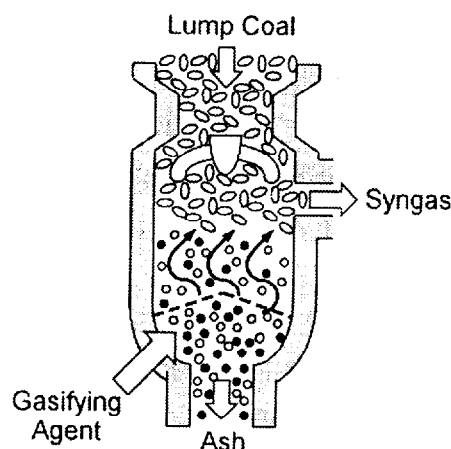


Fig.1-2 Concept of Fixed Bed

固定床炉は、古くから存在する形式で多数の工業実績がある。固定床炉の概念図を図 1-2 に示す。1879 年につくられた最初の石炭ガス化炉が固定床の Mond 炉である⁽⁷⁾。燃料の滞留時間が長く取れる上、燃料とガス化剤が対向流で接触し燃料を効率よく加熱できるため熱効率が大きい。生成ガスの温度が低く、顕熱が小さいことも効率が良いことにつながっている。使用する燃料が石炭の場合は粒径が 5-40mm の塊炭 (Lump Coal) で、供給前の前処理が容易である。

短所は規模の拡大は困難で、焼結灰 (Clinker Ash) を生成しやすいことである。また比較的低温でプロセスが進行するためタール (Tar) は低分子の生成物に変換することができず、後流でタルの処理が必要になる。供給する燃料は塊が良いが、燃料が細かいとガス化剤に吹き飛ばされ炉外に出て行くため、細かい燃料の使用は困難である。燃料の性状によっては炉の閉塞やガス化剤の偏流を起こす。反応が低温で起こるために、反応速度が低く単位面積あたりの処理量が小さい。

外部加熱するものを固定層、内部発熱によって充填物が反応し上から補充する形式を移動層 (Moving Bed) と呼ぶ文献もある⁽¹⁷⁾。発生したタルを分解 (Cracking) するには、空気や水蒸気を添加し 1000℃ を超えた炉内で触媒を用いて改質 (Reforming) する工程を要する。

流動床炉は分散板上に粉碎された試料を供給し、炉底からガス化剤を送り流動化させながらガス化する方式である。流動床炉の概念図を図 1-3 に示す。炉内に砂状の流動媒体を懸濁させる。流動媒体の粗い流動層を粗粒流動層 (Teeter Bed)、流動媒体の細かい流動層を微粉流動層 (Fluid Bed) と呼び分けている文献もある⁽¹⁷⁾。流動床炉の特徴は、固定床炉に比べガス化温度が高く処理量が多いことが挙げられる。また後述する噴流床炉に比べ炉内の燃料保有量が大きく、燃料供給が少々不安定になっ

でも、局所的な酸素濃度の上昇が無く安全だと言われる。

流動床の短所は、溶融灰を層内で発生させると流動媒体を巻き込むため、ガス化温度に上限がありガス化ガス中にタールを含む可能性が高いことである。この短所に対応する技術が研究されており、流動床に関する事例や文献は非常に多い。

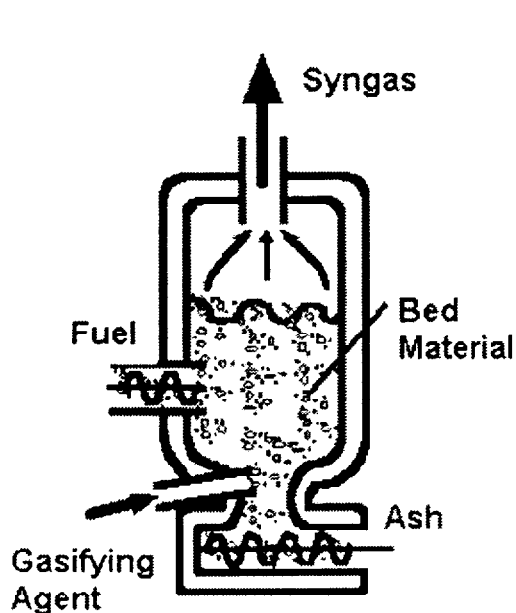


Fig.1-3 Concept of Fluidized Bed

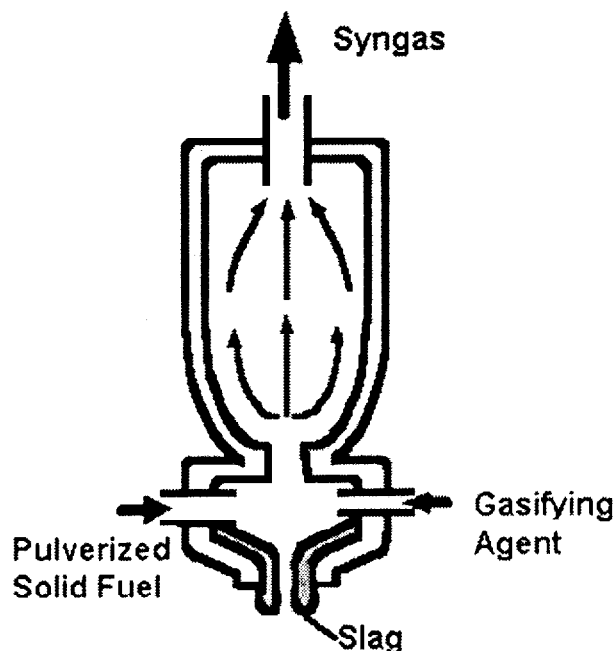


Fig.1-4 Concept of Entrained Bed

噴流床ガス化炉でその特徴を捉え易いのは石炭のガス化炉だが、噴流床方式石炭ガス化炉では平均粒径が 0.1mm 以下の微粉炭 (Pulverized Coal) を燃料として使用する。噴流床炉の概念図を図 1-4 に示す。最近では発電設備を意識して、負荷追従性に優れ、大容量化の容易な噴流床タイプ of ガス化炉の開発が主流になっている。各炭種の灰融点以上の高温雰囲気下でガス化される。ガス化炉内で溶融した石炭灰は水で急冷されて非結晶質のガラス化されたスラグとして炉外へ取り出される⁽⁹⁾。高温でガス化しているためガス化ガス中にタール分はないが、生成するガス化ガスの温度が高く顕熱が大きい⁽⁶⁾ため効率が低い⁽⁶⁾。また温度が高いため耐火物の耐久性や後段の熱交換器部分の耐火物の耐久性が今後の課題である⁽¹⁸⁾。

溶融床炉は炉底に灰分の溶融灰溜めを設け、溶融灰面に石炭と水蒸気を吹き付けて瞬時に石炭をガス化する方法である。炭種適合性には優れているとされるがまだ基礎検討段階にある⁽¹⁹⁾。

ロータリーキルンの概念図を図 1-5 に示す。この形式の炉は中小規模で主に産業廃棄物用として多数稼働している。回転する円筒状の炉は水平方向に対して僅かに傾斜がついてあり、加熱物はロータリーキルン内で移動・攪拌されながら、昇温および熱分解とガス化をし、発生したガスを二次燃焼室で二次空気により燃焼する。ロータリ

一キルンは混入する不純物の排出が容易に可能で、廃棄物の広い性状変化に対応することが可能である。

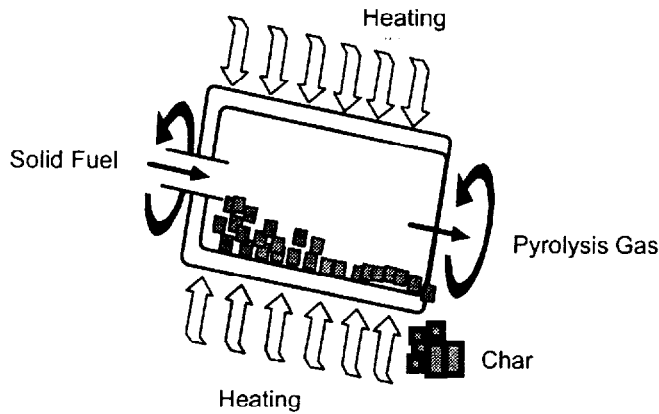


Fig.1-5 Concept of Rotary Kiln

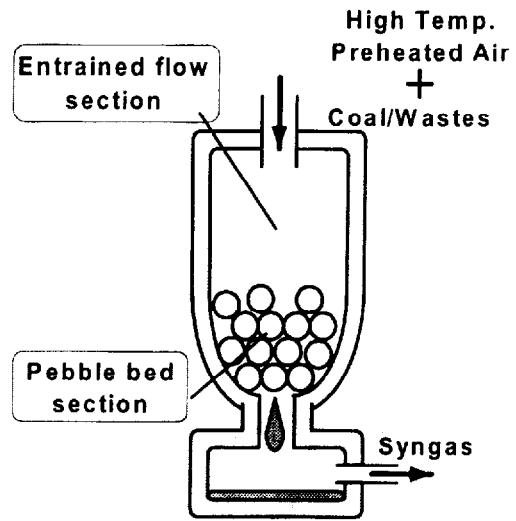


Fig.1-6 Concept of Pebble Bed Gasifier

1-3 ペブル床ガス化炉

本研究で提案するペブル床ガス化炉は、高温予熱空気をガス化剤として用いる灰溶解ガス化炉であり、MEETシステムの基本構成要素の1つである。

ペブル床ガス化炉は、図1-6に示す概念図のように、従来の噴流床ガス化炉の下部にペブル床部を配置した構成の灰溶解ガス化炉である。ペブル床とは、ペブル(Pebble)と呼ばれるセラミックス球を充填した層である。

固体燃料は、粉碎された状態で反応室に上部から搬送ガスと共に投入する。ガス化剤には、高温に予熱された空気に水蒸気を添加したものを利用する。ガス化剤も反応室に上部から吹き込み、炉内にて固体燃料と混合し反応させる。灰分は溶解スラグになり、ペブル床の底から滴下し炉底部にてガス化ガスから分離される。ペブル床ガス化炉は炉のサイズを抑え、廃棄物やバイオマス、石炭などの粒径や組成が異なる多様な固体燃料を同一形式でガス化することをねらっている。

ペブル床ガス化炉では噴流床部(Entrained Flow Section)の下にペブル床(Pebble Bed Section)を設けることによって、以下に示す3つの効果が期待される。

1) 溶解灰の高効率捕獲

ガス化ガス中に含まれる灰分や未燃チャー(Unburnt Char)は、慣性衝突によって、ペブルの表面に捕獲される。灰分はペブルによって加熱されて溶解灰となり、ペブル表面上を流れ降りて行き、ペブル床下部から下方のスラグ受けに向かって滴下し、

ガス化ガスから分離・収集される。ペブル充填層フィルターが高温環境下で高いスラグ捕獲率を達成できることが、小野らによって報告されている⁽²⁰⁾。

2) 固定炭素の反応時間の確保

未反応チャー分は、流れ降りて行く溶融灰の中で十分な炉内滞留時間を確保し、高効率でガス化することが期待される。

3) 熱的緩衝性

ペブル床は熱エネルギーを溜め込み、熱的なバッファとして機能する。この効果によって、固体燃料の供給が一時的に停止しても、しばらくは炉内温度を維持し、溶融灰の流動性に与える影響を軽減させる効果が期待される。特に、廃棄物燃料の場合、燃料の供給量だけでなく燃料の組成が大きく変化するため、炉内温度の変動を少なくするために熱的緩衝性が要求される。ペブル床の熱的緩衝性については第2章で議論をする。

本研究では3つ異なるペブル床炉を実験に利用した。3つのペブル炉のうち2つはガス化炉として用いられ、それぞれ「MEET-I ペブル床ガス化炉」「MEET-II ペブル床ガス化炉」と呼ばれる。MEET-I ペブル床ガス化炉の規模は石炭 200kg/day である。MEET-I ペブル床ガス化炉は最初に製造された炉であり、実験を継続して実施することと信頼性の高いデータを得るために改造繰り返した。MEET プロジェクトの構想では、スラグを水砕スラグにして回収するために、ペブル床ガス化炉の炉底部は水が張っておりスラグバスを形成している。しかし第2章で示すように MEET-I ペブル床ガス化炉は炉底部にスラグバスを設けてはいない。

MEET-II ペブル床ガス化炉は規模が石炭 2 t/day である。炉の底部はスラグバスが設けてある。この実験装置のデータは本論文では第2章 節および第3章 節の議論に用いる。

3つのペブル炉のうち1つは、スラグバスとペブル床部保持部の要素試験を行うための炉である。炉の大きさは MEET-I ペブル床ガス化炉の5倍あるが、燃料には石炭の飛灰と軽油のスラリーを用いており、燃焼雰囲気における灰溶融を行った。この実験装置のデータは本論文第六章3節の議論に用いる。

1-4 高温空気

MEET システムではガス化炉のガス化剤として高温空気または水蒸気を添加した高温空気を使用する。その理由は常温の空気吹きに比べて高い発熱量のガス化ガスを得るためである。小林らは、ガス化剤として使用する空気を 25°C から 1000°C に加熱することでガス化ガスの発熱量を約2倍に高め、ガスタービンを用いた石炭ガス化複合発電プラントの発電端効率が 45.8% (HHV) になるという結果を計算で得ている⁽⁴⁾。この発電端効率は酸素吹き石炭ガス化プラントであるオランダのデムコレック社ブ

フナム発電所の送電端効率約 41% (HHV) ⁽⁹⁾ を上回っている。発電端効率と送電端効率を直接比較することは適当ではないが、酸素吹きガス化プラントに匹敵する効率を得られると予想される。

ガス化ガスの発熱量を高くする手段として、酸素富化空気や高純度の酸素をガス化剤に利用する方法がある。酸素富化空気や純酸素をガス化剤に利用するためには酸素製造プラントが必要になる。

MEET プロジェクトでは、酸素の製造に要する設備コストが中小規模のプラントには大きな負担であると判断し、ガス化剤に予熱空気を採用した。本研究は MEET プロジェクトの一部として行われている関係上、ガス化剤に予熱空気を採用している。高温空気は高温空気発生装置 (日本ファーンエス工業株式会社製) ⁽⁵⁾ を用いれば約 1000°C 以上に加熱することが可能である。この装置の詳細を本論文の付録 1 に記す。小林らは高温空気発生装置で予熱した空気をガス化剤に用いる廃棄物のガス化複合発電の効率を平衡計算を利用して検討した。その結果を表 1-1 に示す。

Table1-1 Performance of MEET IGCC Fueled by Typical Wastes ⁽⁴⁾

Fuel	HHV of syngas [MJ/Nm ³]	Thermal efficiency of process [%]
Corrugated board	4.98	46.0
Textile	5.20	46.1
Lumber	3.85	44.4
Rubber	3.23	42.5
Sludge	4.28	37.6

高温空気と常温空気・酸素富化空気の違いが与える熱収支への影響については、付録 2 にて議論を行う。

1-5 本論文の構成

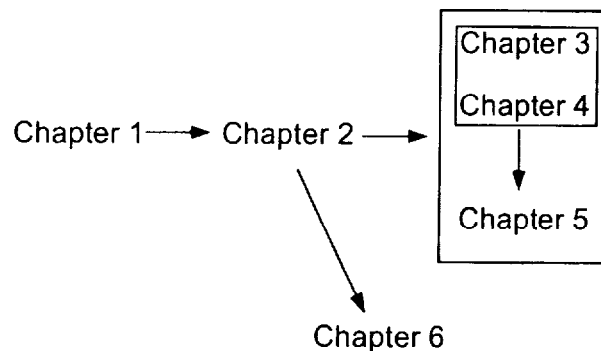


Fig.1-7 Relation of Chapters

本論文は次の6章と付録で構成される。本文2章から6章までの関係を図1-7に示す。

第1章の「序論」では本研究の母体となるMEETプロジェクトと本研究の関係を述べ、本研究の役割がペブル床ガス化炉の特性を調べることであることを示した。またペブル床ガス化炉を主要構成要素の一つとするMEETシステムの概要を述べ、石炭と廃棄物の分野それぞれの視点から見たガス化について説明した。既存のガス化方式を列挙し、それを受けペブル床ガス化炉の基本構想と、ガス化剤に予熱空気を採用した理由を述べた。

第2章では石炭200kg/day規模の実験装置MEET-Iペブル床ガス化炉で実施した実験結果を基に、ペブル床ガス化炉の石炭ガス化特性を述べる。微粉碎した石炭を燃料にしたガス化実験で、冷ガス効率78%で、発熱量が高位発熱量 1187kcal/Nm^3 のガス化ガスを発生させた。粗粉碎した粒径1mm程度の石炭を燃料として供給した実験においても、ペブル床ガス化炉は高位発熱量 889kcal/Nm^3 のガスを冷ガス効率65%で発生させることができた。石炭を試料にした実験で得た知見からガス化炉の形状がガス化特性に与える影響について言及する。

第3章では製材所で発生した鋸屑を無加工の状態に燃料にし、タールフリーでガス化する実験を行った結果と課題を述べる。冷ガス効率53%、発熱量が高位発熱量 873kcal/Nm^3 のガス化ガスを発生させた。燃料が一部未反応のままペブル床をすり抜け、炭素転換率が低下していることが予想された。鋸屑中の灰分が少なくペブル床部での捕獲率が低いことが原因として予想され、炭素転換率の向上が課題であることを明らかにした。対策として空気過剰率を0.44から0.52に変えた条件と噴流床部を500mmから1000mmに延長した条件で実験を実施し、その結果として炉長の延長が反応率の向上に効果があることを明らかにした。噴流床部での燃料拡散が悪いことや、熱損失が大きいことから、炉頭部の改善すべき問題点を挙げた。

第4章では廃棄物燃料(RDF)・プラスチック・下水汚泥RDFを燃料にした実験を試みた結果を述べる。RDFの実験では、燃焼条件におけるダイオキシン類の発生を確認する。下水汚泥RDFは、乾燥汚泥にプラスチックと石灰を混ぜてペレット化したものである。含まれている大量の石灰が耐火物を溶融させることを確認した。またプラスチックが原料に含まれているためペブル床での捕獲は良くなく、一部が未反応のまま炉外へ吹き飛ぶのが確認された。プラスチックガス化を試みた実験では、ペブル床ガス化炉がプラスチックのガス化に向いていないことを明らかにする。

第5章では廃棄物やバイオマスをガス化する際に課題になる燃料供給の問題を回避するために、炭化炉とガス化炉を組合せたシステムをペブル床ガス化炉の応用方法の一つとして提案する。そこで炭化物のガス化特性を調べるために炭化物のガス化実験を行い、ガス化ガスの高位発熱量は定常状態で 574kcal/Nm^3 という結果を得た。高い発熱量のガスを得るために温度の定常性を考慮せずに設定した運転条件では高位発

熱量 774Nm/h^3 のガス化ガスを発生させた。フィルターダストをガス化することによって、ガスエンジン駆動用燃料を生成するための検討を行う。

第6章では主に実験を通して得た溶融灰に関する知見を述べた。

第7章では、2章から5章までの議論をふまえて、ペブル床ガス化炉の特徴を述べ、ペブル床ガス化炉の可能性と課題に対する対策を提示する。

参考文献

- (1) 吉川邦夫, 高温空気燃焼技術を用いた廃棄物・石炭高効率発電, CREST 第2回領域シンポジウム予稿集 環境低負荷型の社会システム, (2000), pp.31-36
- (2) 無公害の焼却炉, 信濃毎日新聞, 1998年10月13日夕刊
- (3) 科学技術振興事業団配布資料, 戦略的基礎研究推進事業 CREST '97-'98, pp.37
- (4) 小林宏充・他, 高温空気を用いた石炭・廃棄物ガス化発電システム, 日本機械学会論文集, 66-641, B(2000), 235-240
- (5) 岩橋崇 小坂仁 吉田延弘 辻潔 吉川邦夫 持田晋 松尾護 安田力 坂井勝 村松清貴 小林宏充, 高温空気を用いた石炭・RDF ガス化発電システムの研究開発—その3: 高温空気予熱機・高温空気燃焼ボイラの開発—, 第6回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, (1998), pp.236-240
- (6) 大内公耳 真田雄三, 石炭エネルギー読本, オーム社, (1982.2)
- (7) 村田徳治, 廃棄物のガス化および熱分解灰溶融プロセスの現状と問題点, 廃棄物の熱分解・ガス化灰溶融システムの開発動向, 株式会社エヌ・ティー・エス, pp.149-165
- (8) 例えば 渡辺健一, 一般教養 現代有機化学 改訂版, 培風館, (1999)
- (9) 例えば 黒崎晏夫監修, 環境と省エネルギーのためのエネルギー新技術大系, 第1版 (1996), pp.645-657
- (10) 氣駕尚志, 微粉炭焚きボイラにおける低 NOx 燃焼に関する研究, 東京工業大学学位論文, 平成12年度, pp.5
- (11) 大森伸二 浅見直人, 廃棄物発電の高効率化に向けたガス化溶融発電技術開発の成果, 季報エネルギー総合工学, (財) エネルギー総合工学研究所, 24-2, (2001.7), pp.44-56
- (12) 平山直道, 廃棄物のガス化溶融技術の現状と問題点, 平山直道先生 勲二等瑞宝章受章記念資料, (2002), pp.10-28
- (13) 廃棄物学会研究委員会編, 廃棄物研究レビュー (1990-1999), (2000)
- (14) 例えば 武内豊, ごみ焼却炉のボイラー計画, ごみ発電の技術開発動向と実用化, (1995), pp.109-126
- (15) 小林清志 荒木信幸 牧野敦, 機械工学基礎講座 燃焼工学—基礎と応用—, 理工学社, (1998)

- (16) 石藏 利文、永島 大、福岡大学 工学部 化学工学科
<http://www.cis.fukuoka-u.ac.jp/~ishikura/kenkyu.htm#SEC3>
- (17) 例えば 橋本健治, 反応工学, 培風館, (2001)
- (18) 藤吉秀昭, 廃棄物循環型社会へのシステム転換と熱分解・ガス化溶融システムの有効性, 廃棄物の熱分解・ガス化灰溶融システムの開発動向, (1998), pp.31-49
- (19) 新井紀男 監修, 燃焼生成物の発生と抑制技術, (株)テクノシステム, (1997)
- (20) 小野栄一・他, 溶融石炭灰除去用高温フィルターの開発, 機論, 63-616, B(1997), 4050-4054

注

- 注1 文献(10)は「火力原子力発電(創立50周年記念火力原子力発電50年のあゆみ), 51-10, (2000), pp.1263-1292 および pp.1241」を参照していると思われる.
- 注2 「自己開発」は文献からの引用
- 注3 Nm³: ノルマルリューベ (Normal Cubic Meter) 0℃ 1 ata 換算の体積. Sm³ (Standard Cubic Meter) は 25℃換算. ata は絶対圧の 1atm.
- 注4 文献(6)で意味する効率とは冷ガス効率だと判断される. IGCC ではガス化ガスの顕熱も利用するため, 一般的にはガス化炉出口温度が高温であることがプラント効率の低下に結びつかない.

第2章 石炭のガス化特性

2-1 はじめに

本研究において石炭ガス化には二つの役割がある。一つ目の役割は、実験の立ち上げと熟成である。実験試料として比較的取扱いが容易な石炭で実験を行う事によって実験の立ち上げと熟成を行った。二つ目の役割は、ガス化に関する既往の研究が豊富に行われている石炭で、ペブル床ガス化炉と他方式を比較することである。石炭は他の燃料に比べて高温域でのガス化実験の報告がある分、高温域における他方式との比較が容易である。

日本では中国と異なり、石炭や練炭が日常生活で一般市民に用いられる状況ではなく、分散電源に適した石炭供給網が整備されていないため、あえて石炭を燃料とする分散電源を追求する必要性はない。中小規模のプラントを対象にしている本研究の最終目的は廃棄物ガス化である。石炭ガス化は、廃棄物に比べ性状の安定した石炭を試料にしているため解析が容易であり、ペブル床ガス化炉の基本的な特性を把握することを目的とする。

そこで本章では MEET-I ペブル床ガス化炉で行った実験を基に、ペブル床という形式がガス化炉として機能することを証明した。第3節では MEET-I ペブル床ガス化炉で実施した実験の中から石炭のガス化特性を示す代表的な実験の結果を示し、既に報告されている空気吹き石炭ガス化炉と炭素転換率および冷ガス効率を比較する。第5節では MEET-I ペブル床ガス化炉のガス化特性に影響を及ぼす要因について議論する。

2-2 既往の空気吹き石炭ガス化

欧米の IGCC で空気吹きのものは見当たらない。文献(1)でも述べられているが、欧米の IGCC は酸素吹きである。参考までに酸素吹き石炭ガス化炉の報告を付録7に載せる。

電力中央研究所および(株)クリーンコールパワー研究所による空気吹きの加圧二段噴流床形式の石炭ガス化炉の研究報告を比較対照として取り上げる。2t/day 規模の試験装置で空気過剰率を約 0.3 から約 0.5 まで変化させたときの 1 スルーでの炭素転換率が、石炭の場合で約 0.55 から 0.8、固定炭素 (Fixed Carbon) の場合でおおよそ 0.4 から 0.7 である⁽²⁾。同形式の加圧 24t/day ガス化炉では冷ガス効率約 70%を達成している。⁽¹⁾。この加圧 24t/day ガス化炉の文献では明らかにされていないが、チャーリサイクル用のサイクロンとホッパーがシステムの概念図に示されていることや、炭素転換率と空気比の関係を示した図の中で空気比によらず炭素転換率が 100%と示されていることから、チャーリサイクルを行っていると予想される。

ガス化方式が噴流床ではないが、運転圧力が絶対圧で約 2.1MPa (文献値 20atg)、処理量 40t/day の石炭加圧二段噴流床が石炭転換率^{註1}97.8%と冷ガス効率 75.8%を達成している⁽³⁾。

2-3 実験装置・方法

2-3-1 実験炉の構成

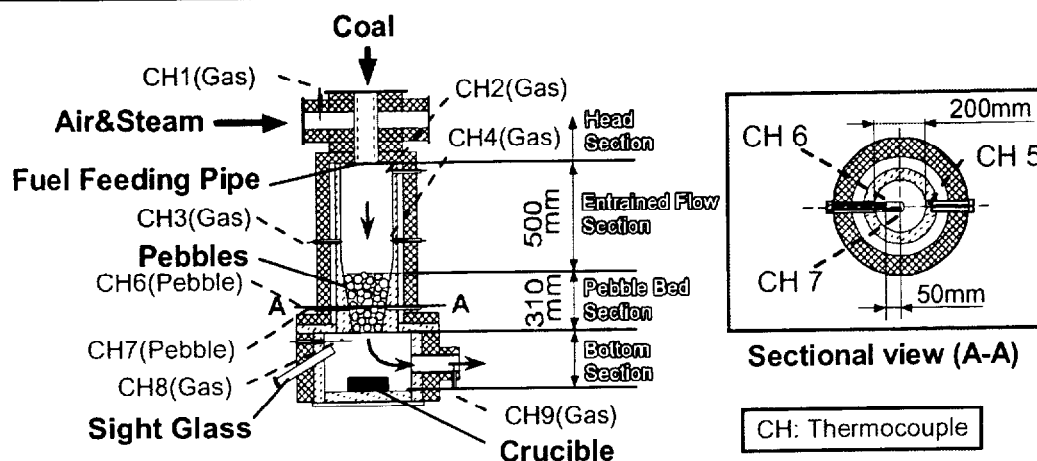


Fig.2-1 Detail view of test facility, MEET-I pebble bed gasifier

図 2-1 に実験装置の図を示す。このペブル床炉は、MEET-I ペブル床ガス化炉と呼ばれ、一日に 200 kg の石炭を処理することを目標に設計された実験装置群の一部である。その実験装置群は、MEET システムの実験装置としては第一号であるため MEET-I と呼ばれる。MEET-I ペブル床ガス化炉の構成を説明するため、ペブル床ガス化炉を便宜的に炉頭部・噴流床部・ペブル床部・炉底部の 4 区画に分ける。

炉頭部は高温空気を取り入れる小さなウィンドボックス（風箱）を形成しており、燃料を供給する水冷二重管がウィンドボックスの中心を鉛直方向に貫いている。固体燃料供給管は外径 100mm 内径 40mm の水冷二重管であり、直径 40mm の内筒から燃料が供給される。高温空気は固体燃料供給管の周囲の幅約 20mm の円形の隙間を通して炉頭部から噴流床室に供給される。また炉頭部には予熱用の都市ガス 13 A を供給する投入口がある。都市ガス 13A は、高温空気が投入される円形の隙間に一部設けられた切り欠きを通して、炉頭部から噴流床部に向けて吹き込まれる。

高温空気は高温空気発生装置によって加熱され、炉頭部に供給される。途中の熱ロスや水蒸気の添加によってガス化剤の温度は低下し、噴流床部に吹き込まれるガス化剤の温度は凡そ 400~600°C の範囲に収まる。高温空気発生装置の詳細は付録 1 と付録 3 にて説明する。ガス化運転時には、すす (Soot) や燃料の未反応物であるチャー^{ii.2}の排出を抑制するために高温空気に水蒸気を添加した。

炉の噴流床部とペブル床部はペブルを充填しない場合、直径 200mm、高さ 810mm の円筒形をしており、上部約 500mm が噴流床部であり、下部 310mm 前後がセラミックス球を充填したペブル床部である。図 2-2 に MEET-I ペブル床ガス化炉の噴流床部に使用している断熱材 (Insulating material) や耐火材 (Refractory) を示す。

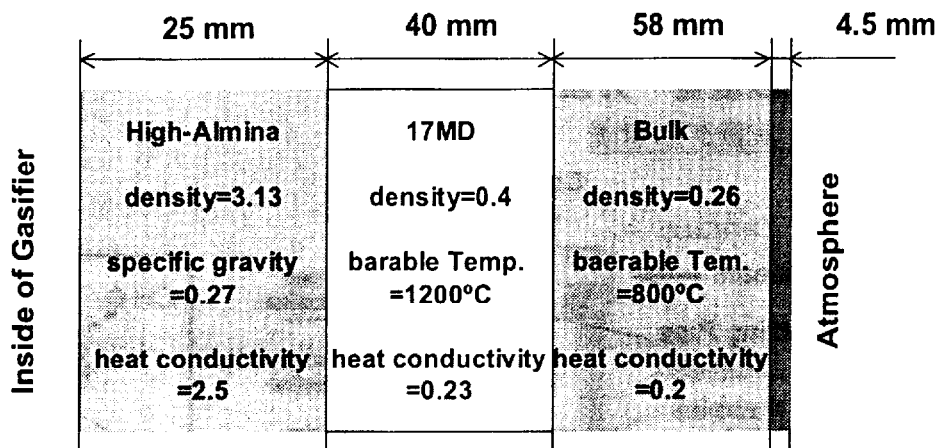


Fig.2-2 Wall of MEET-I pebble bed gasifier

ペブル床部に充填されたセラミックス球はペブルと呼ばれる。充填されたペブルを保持するために、ペブル床部の炉壁がペブル床部の中ほどから徐々に幅を狭め、充填されたペブルの最下層で炉の内壁が幅40mm長さ150mmのスリットを形成している。噴流床部の空間時間 (Space Time) ^{注3} は、1000°Cの空気が20Nm³/hで供給される時約0.6秒である。ペブルには、直径50mmの株式会社ニッカトー製高純度アルミナボール SSA-Sを使用した。ペブル床部はペブルが30個前後で構成されており、5-6の層を形成している。

スリットの下方は炉底部 (Bottom Section) と呼ばれる。スリットの鉛直下方にはスリットから滴下するスラグを回収するためのセラミックスで作られたスラグ受け皿 (Crucible) が置かれている。底部にある観測窓 (Sight Glass) からペブル床部下部のスリット周辺を目視で観測する。スリット部ではスラグが滴下する様子を観察することができる。観測窓からは観測窓を保護するために、アルゴンまたは空気をパージガスとして吹き込む。

2-3-2 実験システムの構成

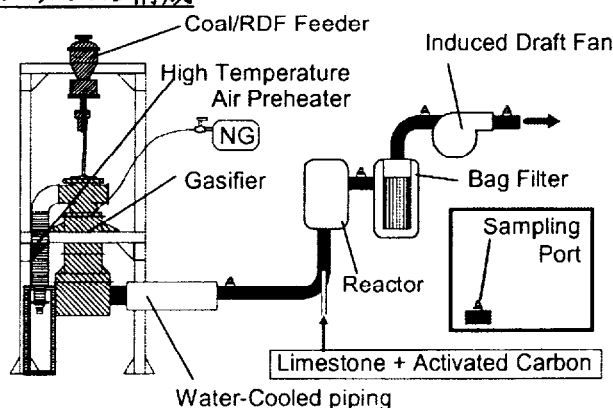


Fig.2-3 Assembly of experimental apparatus

ガス化剤の高温空気は前述のように高温空気発生装置によって供給される。高温空

気に水蒸気を添加できるように高温空気発生装置から炉頭部までの間に、水蒸気を吹き込むラインが設けてある。蒸気は常圧の蒸気発生器内で純水を沸騰させて発生させた。高温空気流量はピトー管で測定した。またピトー管を設置する以前に行った実験もあり、それらも含め高温空気流量の計測方法は付録3にて説明する。

固体燃料供給装置 (Solid Fuel Feeder) は図 2-3 に示すように、ガス化炉上方に設置されており、炉頭部に設置された固体燃料供給管 (Fuel Feeding Pipe) とホースで接続されている。固体燃料は、噴流床部天井から搬送ガスと共に噴流床部へ供給される。固体燃料は事前に、破碎もしくは微粉化された状態で供給装置のホッパー (Hopper) に納める。固体燃料の供給に関しては付録4にて詳しく述べる。

ガス化炉後流には水冷管 (Water Cooled Piping) ・バグフィルター (Bag filter) を配置し、排ガスを冷却・除塵をした後、誘引排風機 (Induced Draft Fan ; IDF) で吸引し排出する。炉内圧力は定圧になるように IDF および IDF 手前に設けたバルブで制御した。

2-3-3 測定項目および測定装置

測定の主な目的は物質収支と熱収支を把握することだが、運転管理のために行う項目もある。実験における主な測定項目は、炉内の温度分布、後流におけるガス化ガスの組成、燃料投入量、水蒸気、空気、パージガスの投入量、炉内圧力、ペブル床部の差圧である。

ペブル床ガス化炉内の温度分布 (Temperature Distribution) は熱電対の測定値から求めた。実験中に熱電対 (Thermocouple) が焼き切れるなどの事故によって測定されなかったケースも多い上、実験を繰り返すうちに熱電対の位置を変更したものがあり、熱電対の位置は実験によって異なる。噴流床部の温度を測定する熱電対は、直接輻射を受けないように設置してあり、内壁にあいた穴から噴流床部の温度を測っている。

熱電対には、主に B 熱電対を用いたが、昇温・降温など炉の運転で 1000°C 未満の温度をチェックする炉底部や、1000°C 前後までしか温度が上がらない部分には R 熱電対を使用した。熱電対を保護する保護管 (シース) には、ニッケト製 SSA-S を用いた。溶融灰に接する測定点では外径 8mm 内径 5mm の保護管を、溶融灰に触れないところでは外径 6 mm 内径 4mm の SSA-S の保護管を用いた。ペブル床部内部の温度測定方法については付録5で詳細を述べる。

ガス化ガスおよび燃焼排ガスの組成を分析する計測機器に下記の分析機器を利用した。ガスクロマトグラフ GC-20B 以外の分析装置は連続計で、データは主にガス化炉を運転するときの指標として用いている。熱収支や物質収支を計算する際に使用するデータにはガスクロマトグラフ GC-20B で測定した値を採用している。

- ガス測定 ; CO・CO₂・CH₄, 島津赤外線式ガス濃度測定器 CGT-7000 (非分散型赤外線吸収法)
- ガス測定 ; H₂・O₂・N₂・CH₄・CO・CO₂・C₂H₂・C₂H₄・C₂H₆, ガスクロマトグラ

2-3-4 運転手順

初期の MEET-I ペブル床ガス化炉には炉本体に自己着火するための設備が無いので、都市ガス 13A の自己着火温度まで高温空気で炉本体を 6 時間程かけて加熱する。ペブル床部温度が 600°C を超えた辺りで都市ガス 13 A を炉内に供給して、都市ガス燃焼で炉を昇温する。炉の保護のために一時間に 200°C /h 未満のペースで昇温していく。温度の調節は都市ガス 13A の投入量を増減して行う。

炉底部の温度が固体燃料の灰分の融点を超えたら、都市ガス 13A と固体燃料を切り替えて固体燃料を自燃させる。固体燃料と都市ガスを切り替える手順を以下に示す。

1. 固体燃料供給装置と固体燃料供給管の間にあるボールバルブを開放する。
2. 固体燃料供給装置から、固体燃料を搬送するための搬送ガスを供給する。
3. 都市ガス 13 A の供給を停止すると同時に、固体燃料の供給を開始する。
4. 固体燃料の供給量を、炉底部の温度が 1300~1400°C になるように、調節する。
また、炉内の温度が 1600°C を超えないようにする。

燃焼条件からガス化条件に入る手順は以下のように行った。ガス化実験を始める前に、ガス化剤に水蒸気を添加し、炉底部の覗き窓に供給するパージガスを空気からアルゴンに切り替える。固体燃料供給装置から吹き込む搬送ガスも、アルゴンに切り替える。運転条件をガス化条件にするために、固体燃料の供給量を多くする。

ガスクロによるガス組成の測定は温度が安定したところで行った。

測定終了後はペブル床内に残ったスラグを洗い流すために、約 5 時間炉内の温度を高く保つ。スラグの洗い流しは都市ガス 13A の燃焼で行うため、燃料を固体燃料から都市ガス 13A に切り替える。燃料の切り替え作業は、都市ガス 13A から固体燃料に切り替える時と逆の手順を踏んでいき、その後に燃料供給管と固体燃料供給装置を結ぶホース内に付着した燃料をたたき落とす。

洗い流しが終了したら、高温空気発生装置を冷却するために高温空気発生装置の燃料を遮断し、ペブル床ガス化炉の温度を一時間に 200~250°C のペースで 1000°C まで降温する。その後は空気・燃料とも停止し、固体燃料供給管と炉頭部を冷却する冷却水を流した状態で、放置し徐冷する。

炉内の観察や底部で収集したスラグの回収は、数日後に炉が十分に冷えた状態で行った。

2-3-5 石炭試料

実験に使用した試料の分析値を表 2-1 に示す。粗砕炭ガス化実験ではスカイライン炭 (Skyline Coal) を使用し、微粉炭ガス化実験では大同炭 (Datong Coal) を使用した。

それぞれの石炭が試料として選択された理由は、1) 灰分の融点が比較的 low、2) 実験実施時に入手可能、という2点である。大同炭の方が燃料比^{注5}が高い。

Table.2-1 Properties of coals

			Skyline Coal	Datong Coal
H.H.V. (wet)		MJ/kg (kcal/kg)	28.39 (6780)	27.38 (6540)
Ultimate Analysis (d)	C	wt%(dry)	72.59	70.7
	H	wt%(dry)	5.42	4.1
	N	wt%(dry)	1.29	0.8
	S	wt%(dry)	0.53	0.8
	Cl	wt%(dry)	0.0137	
	O	wt%(dry)	12.20	11.3
Proximate Analysis (ad)	Inherent Moisture	wt%	6.1	3.4
	Ash	wt%(dry)	7.6	12.3
	Volatile Matter	wt%(dry)	42.5	28.9
	Fixed Carbon	wt%(dry)	49.9	58.8
Ash Fusion Temperature (Reducing)	Softening	°C	1230	1200
	Hemispherical		1255	1380
	Fluid		1295	1385
Mean Fuel Particle Size			1000µm	40µm

2-4 既存の石炭空気吹きガス化炉との比較

特にペブル床ガス化炉の石炭ガス化特性の特徴を示す結果として、二つのガス化実験におけるデータで議論する。二つの石炭ガス化実験を「微粉炭ガス化実験 (Pulverized Coal Gasification Test)」、 「粗砕炭ガス化実験 (Crushed Coal Gasification Test)」と呼び、2-2[既往の空気吹き石炭ガス化]で引用した文献値と比較する。

2-4-1 実験条件

実験の運転条件を表 2-2 に示す。ガス化炉の運転中は高温空気発生装置の運転条件を固定し高温空気の時間当たりの平均流量は一定にした。ペブル床出口のガス温度が灰分の融点を超えるように燃料供給量、すなわち空気過剰率を調整した。

ここで運転条件に含まれる誤差を求めると以下のようなになる。

粗砕炭ガス化実験ではガス化剤の高温空気に、高温空気発生装置の調子が悪かったため、都市ガス 13A を燃焼させた燃焼排ガスが混入した。そのため高温空気の酸素濃度は 18.1%で、二酸化炭素 1.32%と水蒸気 2.5%が含まれている。表 2-2 の空気供給量 22.1Nm³/h のうち 19.0 Nm³/h は高温空気であり、残りが燃料供給機から流す搬送ガスである。また高温空気流量を高温空気発生装置の排ガス中の濃度から求めたため、高温空気流量の測定値には計算上最大 20%の誤差がある。

Table.2-2 Input flow rates of coal gasification tests

Test Name	Crushed Coal Gasification Test	Pulverized Coal Gasification Test
Supplied Fuel	Skyline Coal	Datong Coal
Gasifying Agent	High temp. air added with steam	
Fuel[kg/h]	4.99	9.26
Air[Nm ³ /h]	22.1	26.4
Steam[kg/h]	2.8	2.5
Argon* [Nm ³ /h]	0.0	1.5
Excess Air Ratio	0.62	0.42

*Argon (Grade B) is fed as a purge gas of sight glasses and as an assist gas for fuel supply.

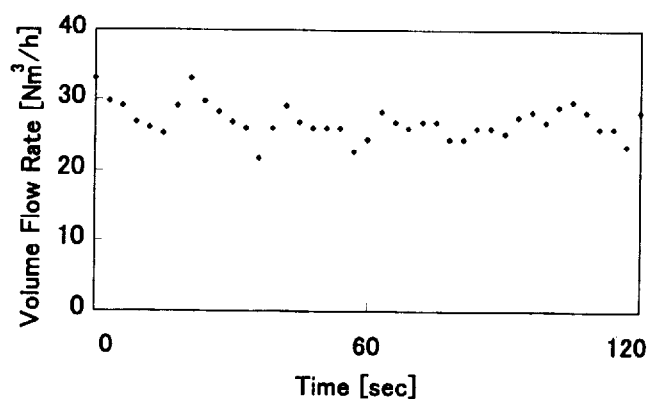


Fig.2-4 Time change of volume flow rate of preheated air

微粉炭ガス化実験では高温空気流量をピトー管で求めた。高温空気流量は図 2-4 に示すように変動している。変動の原因は高温空気発生装置の燃焼室切り替えである。表 2-2 の高温空気流量は 2 分間の平均値である。高温空気流量を 2 分以上の期間で平均値をとれば、同一運転条件において高温空気流量の平均値の変動が 1%未満である。高温空気流量の平均値を、高温空気発生装置の切り替え周期で 1 周期から 1 周期半に相当する時間の平均で求めた場合、高温空気流量の平均値は表 2-2 の値に対して最大

7%の誤差があることを確認している。

固体燃料の供給量は、燃料供給装置の制御パラメータから計算で求めた。計算方法の詳細は付録4に示す。粗砕炭では、計算値と実際の供給量の差が10%未満である。よって粗砕炭供給量の真値は、計算値に対して100から111%である。微粉炭では、計算値と実際の供給量である真値との差が3%未満である。微粉炭供給量の取りうる値は、計算値に対して100から103%である。

2-4-2 実験結果

ガス化実験のガス化ガス組成・冷ガス効率・炭素転換率を表2-3に示す。ガス化ガス中にタールの発生は確認できなかった。また、炭素が二つ以上結合した炭化水素もガス分析装置によって検出されることはなかった。

Table.2-3 Experimental results of coal gasification tests

Test Name		Crushed Coal Gasification Test	Pulverized Coal Gasification Test
Fuel		Crushed Skyline coal	Pulverized Datong coal
H ₂	vol%	13.4	16.1
O ₂		0.0	0.0
N ₂		59.7	52.9
CH ₄		0.6	0.0
CO		14.1	23.1
CO ₂		12.2	8.0
Syngas flow rate*	Nm ³ /h	24.7	39.6
H.H.V(dry)	MJ/Nm ³	3.73 (889 kcal/Nm ³)	4.97 (1187kcal/Nm ³)
L.H.V(dry)		3.44 (821 kcal/Nm ³)	4.65 (1111kcal/Nm ³)
C.C.R	%	100	106
C.G.E.		65	78

*converted as both Ar and H₂O equals to 0%.

ガス化ガス流量の求め方と炭素転換率C.C.R.および冷ガス効率C.G.E.の計算方法は付録6に詳細を記す。2-4-1「実験条件」で述べた運転条件の誤差を考慮すると、炭素転換率C.C.R.の取りうる値は、粗砕炭ガス化実験の場合で84~107%、微粉炭ガス化実験の場合で97~114%である。同様に冷ガス効率の取りうる値は、粗砕炭ガス

化実験の場合で 54~70%，微粉炭ガス化実験の場合で 70~83%である。MEET-I ペブル床ガス化炉における炭素転換率で 100%以上の値が出ている理由はこのような測定誤差である。高温空気発生装置の四方弁が切り替わるタイミングで高温空気流量はほぼゼロになっており、その瞬間に炉内ですすが発生する様子を炉底部に設けられたのぞき窓から観察することができた。炭素転換率は 100%未満である^{注6}。

2-4-3 考察

2-4-3-1 炭素転換率の比較

本研究で実施した粗砕炭ガス化実験と微粉炭ガス化実験の炭素転換率は、誤差を考慮しても、2-2「既往の空気吹き石炭ガス化」で引用した文献(2)の結果に比べて高い値を示している。炭素転換率が高い理由として推測されることは、1) 空気過剰率が高めであることと、2) 炉内で燃料の滞留時間が長く取れることの2つである。

空気過剰率をパラメータにして、スカイライン炭を常圧でガス化する気相反応のみの平衡計算を行ったところ、1000°C近辺を除いた温度域では、空気過剰率 0.40 未満において化学ポテンシャルを求める計算または平衡濃度を求める部分で解が出ないことが多かった。使用した平衡計算ソフトは、メタン燃焼の計算では空気過剰率 0.005 まで対応可能であるため、気相反応のみという仮定で問題が生じていると予想され、平衡組成の面で炭素転換率が 100%にならない運転条件があると予想される。MEET-I ペブル床ガス化炉では炉温維持の目的で空気過剰率を高くしていたため、運転は気相のみの平衡計算が破綻しない範囲で行われていた。

炉内で燃料の滞留時間が長く取れる理由は、2-5「ガス化に影響を与える諸要因」で述べるが、ペブル床部や炉底部に滞留時間を長くする効果がある。

2-4-3-2 冷ガス効率の比較

規模が小さい場合は炉の容積に対する表面積の比が増えるため、相対的に熱ロスの割合が高くなり冷ガス効率が低下する。しかし MEET-I ペブル床ガス化炉の冷ガス効率は規模に対して高い。冷ガス効率が低い理由として、高温空気が炉内に持ち込む顕熱の影響がある。冷ガス効率の定義に従うと、外部から燃料以外のエネルギーを供給しても計算上は考慮されないため、炉の放熱損失が大きいことも高温空気の顕熱によって差し引きされ、大型炉と同等の値が出ている。

参考までに、微粉炭ガス化実験と粗砕炭ガス化実験において、高温空気発生装置がガス化剤の空気を予熱するのに要するガス化ガスを差し引いた時の効率を計算する。計算をする上で以下の仮定を立てた。

- 高温空気発生装置の熱効率は 86%^{注7}である。
- 高温空気発生装置の高温空気出口からペブル床ガス化炉の熱損失は無いものとする。
- ガス化剤に添加する水蒸気の発生および加熱もガス化ガスの燃焼によって成され

るものとみなす。またその熱効率は高温空気発生装置と同じ熱効率であるものとする。

発生したガス化ガスからガス化剤予熱に消費する分を差し引いたガス化ガスのエネルギーの供給された固体燃料に対する効率は、粗砕炭ガス化実験で 40%，微粉炭ガス化実験で 58%となった。

また、炉内に供給されたエネルギーの総量に対してガス化炉で発生したガス化ガスの総発熱量は、粗砕炭ガス化実験で 51%，微粉炭ガス化実験で 63%となった。

2-5 ガス化に影響を与える諸要因

2-5-1 燃料粒径の影響

燃料粒径の影響は前項 2-3 「既存の石炭空気吹きガス化との比較」で扱った微粉炭ガス化実験と粗砕炭ガス化実験の結果を比較することで議論できる。

粗砕炭ガス化実験と微粉炭ガス化実験の炉内の温度分布を図 2-5 に示す。

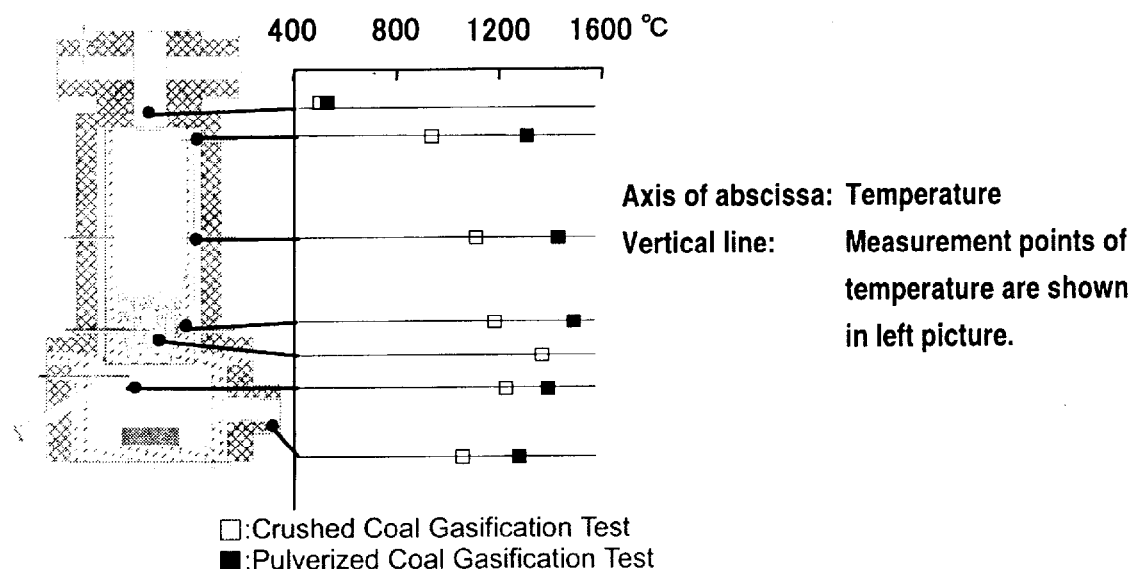


Fig.2-5 Temperature distributions of coal gasification experiments

粗砕炭ガス化実験と微粉炭ガス化実験の温度分布を図 2-5 上で比較すると、燃料粒径の違いが表れている。微粉炭ガス化運転時のほうが噴流床部における温度上昇が速い。燃料粒子は一般に、体積当たりの表面積の比である比表面積が大きいほど、反応速度が速くなる。表 2-1 に示すように、微粉炭の平均粒径と粗砕炭の平均粒径はそれぞれ約 $40 \mu m$ と約 $1000 \mu m$ である。細孔を無視して平均粒径から単純に比較すると、微粉炭の比表面積は粗砕炭の 25 倍ある。そのため、反応初期における揮発分の放出が微粉炭のほうが粗砕炭に比べて多く、反応が速く進むことが予想される。粗砕炭の実験では全体的にガス化温度が低く、また炭種も異なる。そのため定量的な比較はで

きないが、図 2-5 に示す炉内温度分布から、燃料の粒径が大きくなることによって、主な反応域が噴流床部からペブル床部に移っている様子がわかる。燃料粒径が同じであれば燃料比の高い大同炭の反応初期における揮発分の放出はスカイライン炭に比べて少なく燃焼反応が遅いと予想されるが、この結果では炭種の影響より燃料粒径の影響が大きく出ている。

2-5-2 熱収支

粗砕炭ガス化実験の熱収支を図 2-6 に、微粉炭ガス化実験の熱収支を図 2-7 に示す。

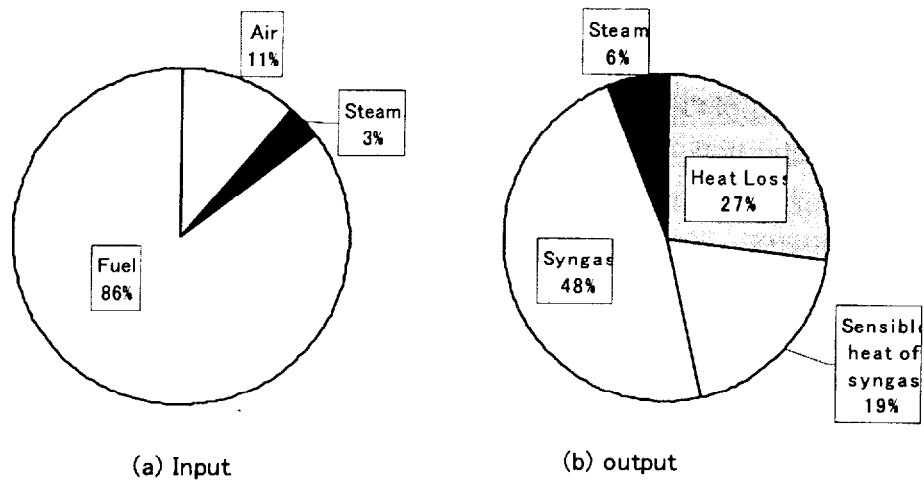


Fig.2-6 Energy balance of crushed coal gasification test

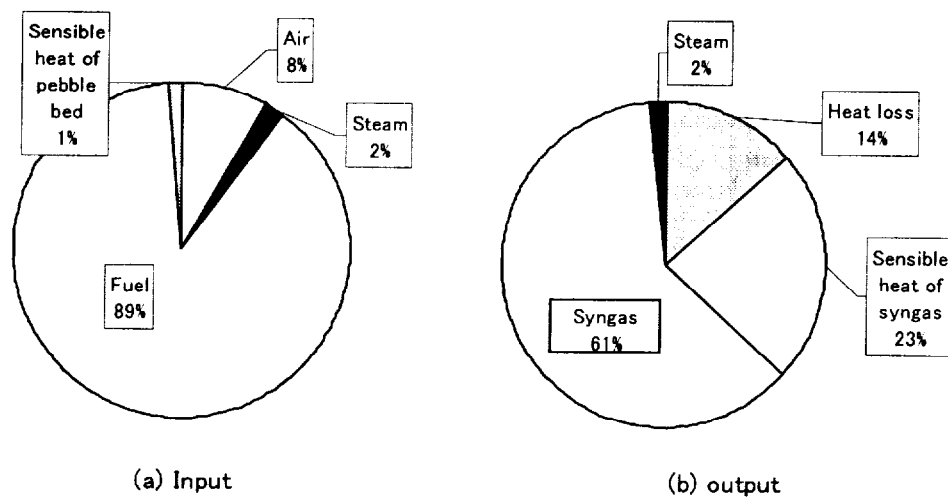


Fig.2-7 Energy balance of pulverized coal gasification test

2-5-2-1 ガス化ガスの顕熱

図 2-6 と図 2-7 からガス化ガスの顕熱が熱出力に占める割合が高いことが分かる。微粉炭ガス化実験では炉の出口温度が高いことや、粗砕炭ガス化実験に比べて放熱損失の占める割合が低いために、熱出力に占めるガス化ガスの顕熱の割合が高い。ペブル床ガス化炉では、ガス化温度は灰の融点によって制限を受けるため、ガス化ガスの

顕熱が大きくなる。MEET-I ペブル床ガス化炉では炉の底部で反応していることや、炉の底部での放熱損失が大きいことによってガス化ガスの顕熱が減少していると言える。ただし放熱損失の分に関しては、熱収支の上ではガス化炉の後流でガス化ガスを冷却するのと同様に廃熱になっているだけなので、損失の計上される項目が異なるだけである。

ガス化ガスの顕熱を利用できればシステムの効率が高くなり都合が良い。しかしボイラでは具体的なメカニズムが明らかになっていないが低空気比運転におけるCO腐食(CO Corrosion)が問題になっており⁽⁴⁾、COが高濃度なガス化ガスでも同様の懸念がある。また水素が存在するために材質によっては水素脆化の心配がある。熔融炉の後段で高温の酸化雰囲気に入れる高温空気加熱器として、外管をセラミックスにしたパヨネット式熱交換器を(株)荏原製作所が提案している⁽⁵⁾。また、(株)東芝がNEDOの委託を受けたガス冷却プロセスにおける顕熱回収・利用技術の開発が平成13から3ヵ年計画で実施するといわれている⁽⁶⁾。ガス化ガスの顕熱回収にはこうした熱交換器が要求されるが、熱源の流体が高温のガス燃料であるため、ガス化雰囲気の場合は腐食対策だけでなく気密が破れた際の対策も要求される。灰熔融ガス化では熔融飛灰(Melting Fly Ash)の伝熱面への付着や、すすや灰による侵食(Erosion)も起こりうるため、ガス化ガスからの排熱回収は困難なものになると予想される。

2-5-2-2 放熱損失

粗砕炭ガス化実験では微粉炭ガス化実験に比べて空気過剰率が高く炉内温度が高くなるはずだが、全体的に炉温が低い。その理由として炉の大きな放熱損失と後述する水蒸気の影響が挙げられる。

また粗砕炭ガス化実験の炉温が低い理由の二つ目には炉の大きな放熱損失を挙げることができる。放熱損失は炉の温度分布で決まるため、ガス化実験によって絶対値に大きな差がでるものではない。MEET-I ペブル床ガス化炉は炉のサイズが極めて小さいため、今回の微粉炭ガス化実験と粗砕炭ガス化実験のように熱負荷^{注8}の差が倍近くあると、熱出力に占める熱ロスの割合が大きく変化してしまう。もしも炉の放熱損失が2%程度であった場合、熱負荷を仮に3分の1に減らしても放熱損失の割合は6%にしかならず、その影響は誤差範囲といっても差し支えない。燃料供給量を3分の1にしても、炉内温度を保つための空気過剰率の調整は増加した放熱損失4%の分だけ増やせば良い。しかし放熱損失が大きい場合は、わずかな燃料供給量や空気過剰率の変化で大きく炉温が変化するため、微妙な調整を常に必要とし、また炉温によってガス化ガスの組成に影響が出る。

平衡計算を利用して石炭投入量が炉の出口温度に及ぼす影響を調べてみた。石炭投入量を微粉炭ガス化実験と同じ量にし、石炭・空気・水蒸気の投入量の比を粗砕炭ガス化実験と同じ比にした計算では、微粉炭ガス化実験の出口温度より高い温度になることが分かった。微粉炭ガス化実験が、本研究で実施した実験の中で最も良い冷ガス

効率と炭素転換率を得ることができた理由のひとつは、本研究で実施した実験の中で最も燃料投入量が多いためだと言える。

第1章で述べたように噴流床式のガス化炉は負荷変動に対応可能である点が長所である。ペブル床ガス化炉は噴流床に類似した形状をしており、噴流床式のガス化炉同様に負荷変動に対応可能であることが期待される。しかし MEET-I ペブル床ガス化炉は放熱損失の割合が大きいため、負荷変動に対応するためには放熱損失の割合を低減する必要がある。

2-5-3 高温空気

MEET-I ペブル床ガス化炉では、熱入力の1割程度が高温空気によって供給されるため、放熱損失が大きい分を補われており、炉温を維持しながらガス化ガスを発生させることが可能である。図2-6と図2-7を比較すると空気過剰率が高い粗砕炭ガス化実験の方が高温空気による熱入力の割合が増加しており、空気過剰率の高い運転ほど高温空気による熱入力への寄与が大きくなると言える。

高温空気発生装置から発生する高温空気の温度は900~1100℃だが、熱ロスや水蒸気の吹き込みによってガス化剤の温度は低下し、また固体燃料供給機から供給する搬送ガスは常温であるため、噴流床部に投入されるガス化剤の温度は500℃程度に低下してしまう。

図2-5において微粉炭ガス化では噴流床部の上部で炉壁温度が1300℃程度あり、保炎機能のない燃料供給管による燃料供給でも燃焼反応が継続していることが分かる。

2-5-4 ペブル層の熱的効果とペブル径の影響

ペブルが存在する事による熱的な効果が二つあげられる。一つは第一章で述べたペブルの効果の三つ目に挙げた熱的緩衝性である。もう一つは輻射熱の制御である。

もともとペブルの充填層は再生蓄熱型熱交換器として利用されている⁽⁷⁾。ペブル床は熱エネルギーを溜め込み、熱的なバッファとして機能する。この効果によって、固体燃料の供給が一時的に停止しても、しばらくは炉内温度を維持する効果が期待された。

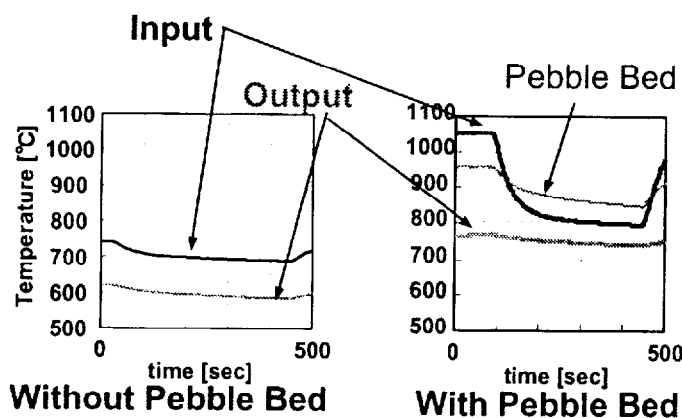


Fig.2-8 Thermal stabilizer function of pebble bed

ペブルが熱的バッファとして機能していることを図 2-8 で示す。図 2-8 は都市 13A の燃焼中に都市ガス 13A を遮断した後の炉内温度の時間変化を表したグラフである。左側のペブル床部が存在しない場合はペブル床部手前の温度変化が小さくても、炉出口の温度が同様に変化しているのが確認できる。一方、ペブル床部がある場合は、ペブル床部手前の温度変化が小さいと炉出口に顕著な温度変化が見られなかったため、炉入り口の温度変化を大きくした状態で炉出口の温度変化を観察した。結果はグラフに示したとおり、炉出口の温度変化は炉の上流の温度変化に比べて小さくなっていると言える。ペブルの熱交換による効果は付録 6 にて計算している。

高温流体中に通気性固体を設けると、通気性固体が輻射遮蔽として働く^{(8) (9)}。本研究で使用しているペブルはペブル層の厚さが 310mm に対してペブルの直径が 50mm と大きく、通気性固体とは異なるが、輻射に影響を与えることが実験から推測できた。

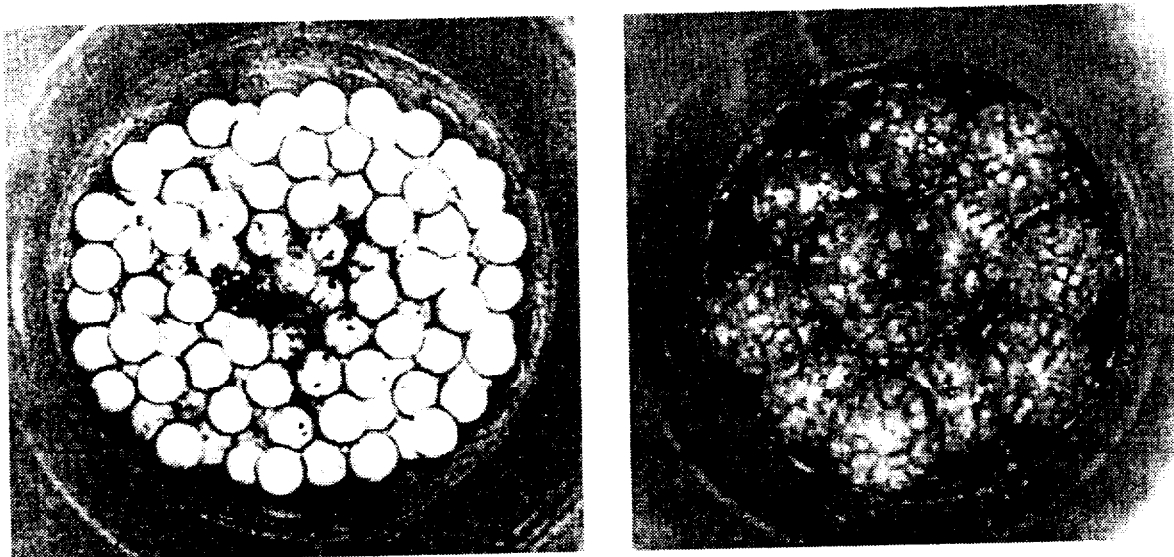


Fig.2-9 Effect of pebble size on the view of top layer of pebble bed from the top

本研究の初期において MEET-I ペブル床ガス化炉のペブル床の構成は上から直径 20mm のペブル^{注9}が 350 個、直径 50mm のペブルが十数個、直径 75mm のペブルが 2 個、となっていた。この構成のペブル床を利用した時の温度分布とペブルが大きいときの温度分布を比較することで、ペブルの輻射遮蔽としての働きを考察することができる。

ペブルのサイズを変えた影響は、粗粉碎したスカイライン炭の燃焼実験を行った際にペブル層の影響を比較することで推測されるようになった。粗碎炭の燃焼では都市ガス 13A 燃焼や微粉炭燃焼に比べて、噴流床部の温度が低くペブル床の中で温度が高くなる傾向がある。ペブルを大きくするとペブル床に隙間が多くなり、1400°C を超えるペブル床中心部を上から直接見ることが可能になる。そのため燃料は噴流床部に

投入された直後からペブル床中心の高温部から輻射を受けることができる。しかし一方、小さいペブルを充填した場合はペブル床の中心部はペブルによって輻射が遮蔽されており、燃料はペブル床中心に到達するまでペブル床中心の輻射を受けることができない。以上は推測であるが、影響は図 2-9 の写真を比較することで裏付けることができる。図 2-9 に示す写真はペブル床部の最上層を実験後に上から撮影したものである。左の写真の中央部に見える黒いものは、固体燃料供給管と固体燃料供給装置の間をつなぐホースに溜まっていた石炭の粉が、炉を開放する際に落ちたものであり、基本的に最上層のペブルはスラグで汚れていない。直径 20mm のペブルを充填した実験で、ペブル床の最上層がスラグで汚れていない理由は、最上層通過時に粒子温度が灰分の融点を超えていないためである。一方、大きなペブルのみを充填した場合は、最上層でも一様なスラグの付着が見られ、噴流床部での粗砕炭の粒子温度が灰の融点以上に達していることがわかる。

ペブル充填層には熱的緩衝性と輻射遮蔽としての役割があることが言える。ただし、輻射遮蔽としての作用は、炉底部の温度を下げて熔融灰の流動性を悪くすることや燃料供給口付近の過熱などの弊害を引き起こすこともある。

2-5-5 炉底部の影響

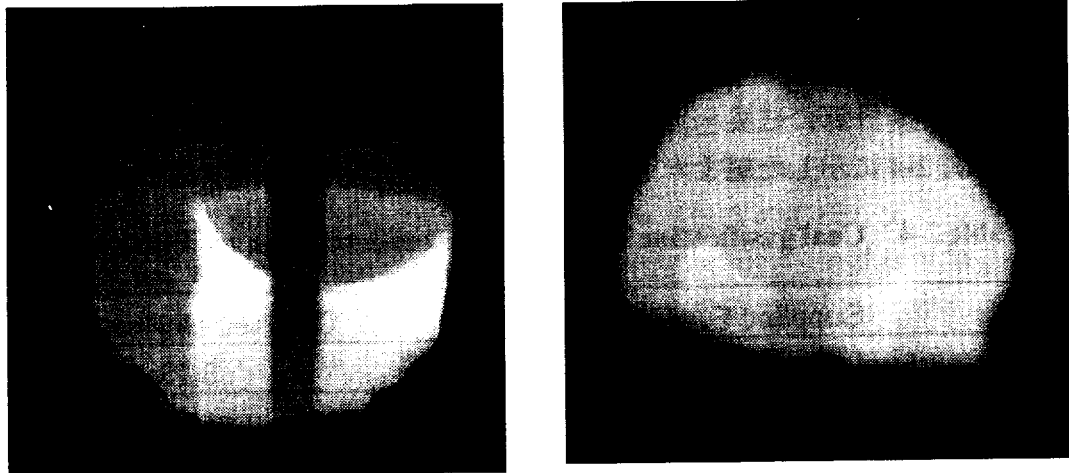
MEET-I ペブル床ガス化炉は、2-4-3-1「炭素転換率の比較」、他の空気吹き灰熔融ガス化炉より 1スルーの炭素転換率が高い。また粗砕炭ガス化実験の結果は、ペブル床ガス化炉によって、粒子径の大きな燃料のガス化が可能になる事を示している。粗砕炭は、ペブルが無い状態で炉内を自由落下させると、本実験で用いたペブル床ガス化炉の場合に炉内滞留時間が 0.2 秒未満である。滞留時間 0.2 秒未満では、平均粒径が 1mm の粗砕炭が高い効率でガス化することは不可能である。しかし実験では、誤差を含むものの、高い炭素転換率を達成した。

炭素転換率が高いことと粗砕炭のガス化が可能であったことの理由に、ペブル床部における燃料捕獲により燃料の滞留時間が長く取れる効果が挙げられる。しかし同時にペブル床部を通過した一部の燃料が炉底部において反応していることも無視し得ない。炉底部に固体状の可燃分が到達していることは、炉底部に設けられたのぞき窓から観察された 2つの現象によって、確認できる。ひとつは燃料の一部が炉底部に到達している様子が見えることである。特にペブル床を新品のペブルで構成した場合に顕著で、粗砕炭を試料に運転している場合、投入開始直後から 1 時間半程は炉底部まで落ちてくる粗砕炭が多い。

なお、この事象はペブル床が機能していないことを意味するものではない。第 4 章ではペブル床の燃料捕獲効果が機能していない事例を扱うが、ペブル床の燃料捕獲効果が機能していない場合は燃焼運転も成立しない。

炉底部に固体状の可燃分が到達していることを示唆する 2つ目の現象は炉底部ですが観察されることである。図 2-10 に炉底部の写真を示す。(a)は炉を都市ガス 13A

燃焼で昇温中の写真である。(b)はユインタプレミアム炭 (Uinta Premium Coal) の微粉炭でガス化条件の運転をしている最中のものである^{注 10}。(b)ではのぞき窓とペブルの間に、拡散燃焼の火炎中で生じるような、すすが存在するため、ペブルがぼんやりと見える。カメラのピントがずれている訳ではない。気相析出のすすが発生する場合は目に見えて黒いものが飛び回る。写真(b)の手前にはのぞき窓に堆積した気相析出のすすが写っている。



(a) gas combustion

(b) coal gasification

**Fig.2-10 View from sight glass to bottom layer from pebble bed section
Fuel: Uinta Premium coal**

MEET-I ペブル床ガス化炉でガス化実験を実施した後に実験炉の底部を開放すると、炉底部の内壁が変色し、スラグ状のもので覆われている。噴流床部の炉内壁は供給する燃料によらず同じ変色を呈するが、実験で供給する燃料の種類によって実験後の炉底部炉内壁の色が異なるため、底部炉内壁の変色は耐火材に由来するものではなく、供給する燃料に由来するものだと考えるのが妥当である。この炉底部の内壁が変色する現象は燃焼条件のみの運転では顕著ではないため、第6章で取り扱う溶融飛灰による影響もあると予想される。

MEET-I ペブル床ガス化炉は炉の底部が水浴状のスラグバスになっていないため、炉底部が高温に維持されて、チャーの酸化反応が継続可能である。MEET プロジェクトで運転された石炭 2t/day 規模の MEET-II ペブル床ガス化炉⁽¹⁰⁾は炉の底部にスラグバスがもうけてあるが、石炭 200kg/day 規模の MEET-I ペブル床ガス化炉はこのスラグバスを持つ石炭 2t/day 規模の MEET-II ペブル床ガス化炉に比べても炭素転換率が高くなる傾向がある。スラグバスがある場合、炉の底部の温度が下がり、炉底部で反応が緩慢になるうえ、スラグバスに捕獲されたチャーは常温に冷却され反応が停止するため、この場合はスラグバスの有無によって炭素転換率に差が出た。

2-5-6 ガス化剤中の水蒸気濃度

石炭の空気吹きガス化ではガス化剤への水蒸気添加が行われる。固定炭素を酸化する効果があるため、第1章で述べた式(1.3)の反応が起こり、すすの低減や発熱量の向上が期待される。水蒸気主体のガス化剤でガス化を行えば、ガス化ガス中に空気由来の窒素が無いいため、ガス化ガスの発熱量が高くなるとの報告がある⁽¹¹⁾。

本研究でも高温空気発生装置で水蒸気の濃度が高いガス化剤を予熱して、粗砕炭ガス化実験と同じ試料でガス化実験を行った。ガス化剤の流量が測定できなかったためガス化剤流量が前述の粗砕炭ガス化実験と同じ流量であると仮定し、水蒸気の流量は体積式の流量計の読み値が正しいと仮定した。運転条件の推定値および実験結果を表2-4に示す。平衡計算の結果と表2-4を比較する、実際の運転条件では空気と水蒸気の供給量が表2-4に示した値よりも少ないことが判明した。

Table.2-4 Coal gasification by high steam concentration gasifying agent

Supplied Fuel		Crushed Skyline coal
Fuel	kg/h	3.23
Air	Nm ³ /h	<11.2*
Steam	kg/h	8.4*
Argon	Nm ³ /h	0.0
H ₂	vol%	19.0
O ₂		0.0
N ₂		59.1
CH ₄		1.1
CO		15.7
CO ₂		5.0
H.H.V		MJ/Nm ³
L.H.V	4.44 (1060 kcal/Nm ³)	
Exit Temperature of Gasifier	°C	956
C.G.E	%	<65*
C.C.R.		<60*

*Estimated Values. It is clarified that these estimated value are wrong.

炭素転換率が高い傾向のある MEET-I ペブル床ガス化炉において、表 2-4 の炭素転換率は低い。実際の炭素転換率は 60% よりさらに低いことが予想されているが、デー

タの信頼性が無いので定性的な話になるが、ガス化剤の水蒸気濃度を高くすると炭素転換率が低くなるという印象を受けた。

実験結果が著しく信頼性に欠けるため、高温過熱した水蒸気の効果を平衡計算と文献で得た知見から検証する。

酸素・二酸化炭素・水蒸気の酸化剤としての反応速度を 700°C, 10kP で比較したときに、二酸化炭素の反応速度に対して酸素の酸化速度が 1×10^5 倍、水蒸気の反応速度が 3 倍と報告されている⁽¹²⁾。このことは、水蒸気がチャーを酸化する反応速度は分圧と温度が一定であれば、酸素の反応速度に比べ 4 桁少ないことを意味している。ガス化剤の酸素濃度を下げる過剰な水蒸気の添加は、チャーがガス化する速度を下げる事が分かる。

温度上昇による反応速度の上昇と水蒸気分圧の半減による反応速度低下の影響を、反応速度の推算式を利用して、比較した。2-4「既存の石炭空気吹きガス化炉との比較」で扱った粗砕炭ガス化実験は微粉炭ガス化実験に比べて燃料供給量が少ないにも関わらず水蒸気投入量が多い。検証のために平衡計算を利用して炉の出口温度を計算した。粗砕炭ガス化実験の運転条件が表 2-2 に示してあるが、平衡計算では水蒸気投入量を半分の 1.4kg/h に変更すると、炉の出口温度が約 100°C 上昇する。反応速度の推算式には、水蒸気が石炭チャーを酸化するときの反応速度を推算するものとして宝田らが報告した式(2.1)⁽¹⁴⁾を採用する。

$$\gamma_{0.5} = 96 \cdot [(Ca+Na) \cdot (O/C)]^{0.3} \exp(-170 \times 10^3 / RT) \cdot (P_{H_2O})^{0.70} \quad (2.1)$$

$\gamma_{0.5}$: 固定炭素転化率 (Fixed-carbon Conversion) 50%における比速度

$\gamma_{0.5} = -1/W \cdot (dW/dt)$; 固定炭素転化率 50%は、反応開始時の石炭チャーの重量に対する時間 t における石炭チャーの重量 W の比。

Ca, Na : 石炭チャー中の Ca および Na の濃度。単位は [mol/g-char]

O/C : 石炭チャーの元素分析における O と C の重量比

R : 気体定数

T : 反応温度, 1173~1273K

P_{H_2O} : 水蒸気分圧, 9.8~37kPa

式(2.1)の適応範囲である反応温度 1173~1273K, 水蒸気分圧 9.8~37kPa において、温度が 100°C 上昇すると反応速度は 3.9 倍になり、水蒸気濃度が半分になると反応速度は 0.6 倍になる。よって水蒸気がチャーをガス化する速度を考慮しても過剰に水蒸気を投入することは反応を緩慢にすることが分かる。

平衡計算において水蒸気投入量を与える影響を図 2-11 に示す。水蒸気投入量を増やしていくと、式(1.4)で示される水性ガスシフト反応の影響が強くなり、ガス化ガスの発熱量は低下していく。またガス化ガスの顕熱とガス化ガス中の水蒸気の潜熱

(Latent Heat) に対するガス化ガスの総発熱量の比をプロットしたが、水蒸気の投入量が増加するにつれガス化ガスの総発熱量（ガス化炉で発生させたガス化ガス全量を燃焼させたときに発生するエネルギー）はガス化ガスの顕熱や排出する水蒸気の潜熱に対して、その比が減少していく。エネルギー抽出を目的にガス化を行う場合には、水蒸気の過剰投入は合理性に欠けていると判断する。水蒸気を過剰投入していくと、ガス化ガス中の水素の濃度が高くなる。原料製造として水素の発生を目的にするならば、水蒸気の過剰投入も無意味ではない。

ここでの議論は水蒸気を過剰に投入した場合を想定したもので、適量であれば効果があると思われる。2-4-3-1「炭素転換率の比較」で述べたように、本研究で行っている平衡計算はすすの発生を考慮できないため、空気過剰率を下げていくと仮定した分子の組み合わせではギブス自由エネルギーに極小値がない状態になり平衡組成を求める部分で計算ができなくなる。水蒸気を投入しない場合は空気過剰率 0.40 未満では計算が収束しなかった。燃料重量の 30% の水蒸気を添加して 1000℃ で計算させたところ、空気過剰率 0.35 以下まで計算することが可能だった。平衡計算が収束しない空気過剰率をすすやタールが発生する条件だと仮定した場合、水蒸気の添加は空気過剰率を下げてもすすやタールの発生を抑制する効果があることになる。しかし反応速度やエネルギー収支を考えると、水蒸気添加量には適量がある。

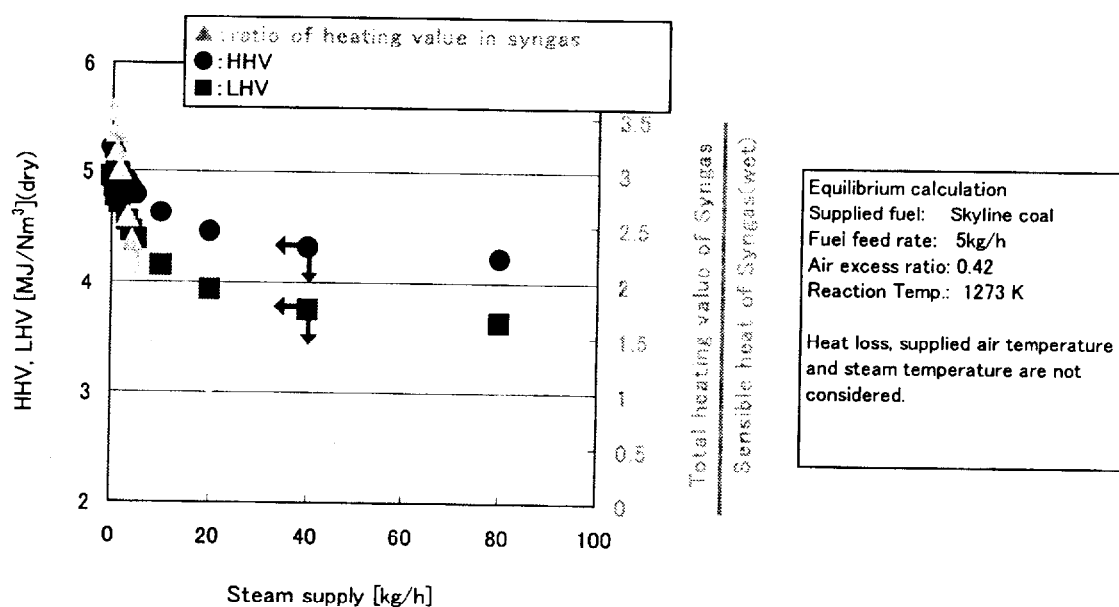


Fig.2-11 Effect of steam supply on gasification performance(Equilibrium Calculation)

2-6 まとめ

- MEET-I ペブル床ガス化炉の炭素転換率と冷ガス効率は小規模のわりに高い値を示す。粗砕炭ガス化実験と微粉炭ガス化実験の冷ガス効率がそれぞれ65%と78%であった。炭素転換率は既存の空気吹き石炭ガス化と比較して高い値を示した。
- 石炭を微粉炭から粗砕炭に変更することによって、主な反応域が噴流床部からペブル床部へと移動した
- 石炭ガス化実験における熱収支では、高温空気の採用によって炉内への熱負荷が約1割増加し、ガス化ガスの顕熱が炉の熱出力の2~3割を占める
- 負荷変動に対応するには実験炉の熱入力に対して放熱損失を相対的に低減することが課題として挙げられる。
- 保炎機能を持たないガス化炉に高温空気を供給した実験において、噴流床部の入り口直下で石炭が燃焼している
- ペブル床には熱的緩衝作用と輻射遮蔽作用がある
- MEET-I ペブル床ガス化炉はペブル床部と炉底部で燃料の滞留時間を稼いでいるため、高い炭素転換率の達成や燃料粒径の大きな粗砕炭のガス化が可能である。炉底部が燃料の滞留時間がガス化反応の大きな役割を果たしている
- ガス化剤への過剰な水蒸気の添加はガス化炉の運転には悪影響を及ぼすため、水蒸気添加量に適量がある

参考文献

- (1) 石橋喜孝 和田潤 大高円, 250MW 空気吹き IGCC (石炭ガス化複合発電) の実証機開発, 第8回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 02-7, (2002), 111-114
- (2) Saburo HARA, Jun INUMARU, Masami ASHIZAWA, Kazuyoshi ICHIKAWA, ; "A Study on Gasification Reactivity of Pressurized Two-Stage Entrained Flow Coal Gasifier", Proc. of International Conference on Power Engineering, (2001.10), pp.267-272
- (3) 新エネルギー・産業技術総合開発機構 石炭技術開発室, 昭和63年度噴流床石炭ガス化発電プラント開発 (噴流床石炭ガス化発電プラント開発の支援研究成果の概要, (1989)
- (4) 藤吉秀昭, 廃棄物循環型社会へのシステム転換と熱分解・ガス化熔融システムの有効性, 廃棄物の熱分解・ガス化灰熔融システムの開発動向, (1998), pp.31-49
- (5) 例えば 内野章, 廃棄物のガス化と高効率発電, 第1回高効率廃棄物発電技術に関するセミナー「高効率小型ごみ発電の可能性を探る」, NEDO・IAE, (2001.11), pp.99-104

- (6) 例えば 松井宏, 廃棄物ガス変換 (ガス化改質) 設備の実証結果と高効率発電技術開発, 第1回高効率廃棄物発電技術に関するセミナー「高効率小型ごみ発電の可能性を探る」, NEDO・IAE, (2001.11), pp.137-142
- (7) 例えば 吉川邦夫, クローズドサイクル MHD の蓄熱形高温熱交換器に関する研究, 東京工業大学学位論文, (1986)
- (8) 越後亮三, ガスエンタルピとふく射エネルギー間の効果的変換方法と工業用炉への応用, 日本機械学会論文集B編, 48-435, (1982.11), pp.2315-2323
- (9) 化学工学協会編, 化学工学の進歩 21 燃焼・熱工学, 木眞書店, (1987.10), pp.70-71
- (10) 吉高恵美 氣駕尚志 石井徹 吉川邦夫 杉山しのぶ 加藤義隆, MEETII ガス化溶解実証プラントの運転状況, 第8回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 02-7, (2002), pp.97-100
- (11) F.Michael Lewis, Jim Swithenbank, David A. Hoেকে, Nigel N. Russell, Shaka V. Shabangu ;" High Temperature, Steam-Only Gasification and Steam Reforming with Ultra-Superheated Steam", Proceedings of 5th CREST international symposium of high temperature air combustion and gasification, (2002.10), J1
- (12) 小林清志 荒木信幸 牧野敦, 機械工学基礎講座 燃焼工学—基礎と応用—, 理工学社, (1998)
- (13) 宝田恭之 井田直幸 日置明夫 神原信志 山本美奈子 加藤邦夫, 石炭チャーの水蒸気ガス化および CO₂ ガス化における反応速度の推算, 燃料協会誌, 67-12, (1988), pp.1061-1069
- (14) 社団法人日本ボイラ協会, ボイラの燃料と燃焼, 第2巻, 共立出版株式会社, (1968)

注

注1 「石炭転換率」は文献からの引用。

注2 本論文では燃焼反応で生じる炭素質の微粒子を「すす」と呼ぶ。ここで言う燃焼反応には部分燃焼ガス化を含めるものとする。すすは気相析出型のすす・液相析出型のすす・残炭型のすすに分類されるが、本論文では残炭型のすすを特にチャーと呼ぶことにする。本論文ではチャーという単語が意味するものとして、燃焼反応に類する反応において固体燃料の熱分解で気相や液相を経ずに生じる固体を主体とした残渣物のうち、炭素質が残留している炭状の固体を指すことにする。

注3 空塔速度 (Space Velocity) は約 0.8m/s である。分野により空塔速度の解釈が異なるので、空間時間で表現した。

注4 覗き窓のパージガスと搬送ガスに空気をを用いているガス化実験もある。

注5 揮発分に対する固定炭素の重量比

注6 炭素転換率が高いことは、現象から判断して妥当な結果である。燃料供給用の搬送ガスを過剰供給すると炭素転換率が下がり、炭素転換率 43～55%の状

態になると、実験装置はガス化炉の後流に大量のすすが堆積し、ガス測定に支障を来たす。

- 注7 MEET-II 実証プラント⁽¹⁰⁾で使用された高温空気発生装置の熱効率。データは日本ファーンズ工業（NFK）の提供によるもの。
- 注8 ボイラの燃焼室負荷[kcal/m³/h]⁽¹⁴⁾に相当する具体的な評価が困難。
- 注9 φ100mmの中実のペブルは熱衝撃でヒビが入った。
- 注10 石炭を使用した実験は運転技術が未熟な時期に行われたものが多く、綺麗な写真が少ない。この実験は石炭による運転の中では写真が綺麗に撮れているため本研究では写真のみ記録として使用した。この写真を撮影した実験では補機類の不備が原因で物質収支が把握できなかった。

第3章 バイオマスのガス化特性

3-1 はじめに

本研究の母体である MEET プロジェクトの目的は、第1章で述べたように、石炭・廃棄物のガス化である。第3章で扱う「バイオマス」とは製材所で発生した鋸屑 (Sawdust) にカンナ屑等が混入したもので、産業廃棄物である。鋸屑が木質系バイオマス (Wood-based Biomass) に相当するためタイトルにバイオマスと冠している。カーボンニュートラルを合言葉にしているバイオマスガス化とは異なり、廃棄物ガス化の一つとして実験を行った。

本研究では石炭を試料にした実験を実施する一方で、廃棄物のガス化を試してきた。産業廃棄物は一般廃棄物に比べ性状が均一なものが多いため、本章で扱う鋸屑の他にプラスチック、下水汚泥を試料にしている。その過程を本章と第4章で述べる。第3章ではガス化実験を行うことができた鋸屑について議論を行う。

木質系バイオマスで灰溶融を行っている前例は見られない。石炭では灰溶融を行うというイメージのある噴流床炉によるガス化でも、Tampella⁽¹⁾によるバイオマスガス化はガス化炉出口温度が500°C未満と低く、灰溶融を行っているという説明も無い。

木質系バイオマスの灰は融点が高いため溶融しにくく、タールが発生しない温度でクリンカを発生させない温度域が狭い。ペブル床ガス化炉ではタールを発生させないことが優先事項であるため、木質系バイオマスであっても灰溶融を行う。

木のタールは木酢液と呼ばれ殺菌・消毒に効果があるとされ、木酢液は市販されている。樹木の焼却灰は、焼畑農業の例でも推測できるが、肥料としての効果がある。そのため木質系バイオマスにおいてはタールや飛灰といった副産物を有価物とみなすことも可能である。しかし必ずしも副産物が有価物として取り扱われるものではなくⁱⁱ¹、副産物を必要としないガス化炉の需要に対応するものとして木質系バイオマスの灰溶融ガス化に取り組む。

鋸屑ガス化実験では最初に実施したガス化実験で炭素転換率が低かったため、炭素転換率の向上を目的とした実験に取り組んだ。

3-2 既往の研究

3-2-1 代替燃料エンジン等

非力だったと言われているが、薪自動車や木炭自動車もガス化技術である。薪自動車では薪を熱分解して発生させたガスでエンジンを駆動する。木炭自動車では木炭を燃やしながら上部から水をたらし、発生させた水性ガスでエンジンを駆動する。薪自動車と同様の原理を応用して、三重県の信栄木材株式会社が廃材を燃料に発電をしている話は有名である⁽²⁾。信栄木材株式会社がガスエンジンで発生させた電力で製材所の使用する電力をまかなうことが可能である。出力は最大100kW、通常50kWである⁽³⁾。木質系バイオマスの代替燃料エンジンは、“woodgas”、“charcoal gas”をWeb上で検索すると、日本以外の事例も紹介されているが、詳細は記されていない。

3-2-2 木質系バイオマス利用のためのガス化技術⁽⁴⁾

噴流床炉の場合は、ガス化温度を上げることでタールの排出はないが固体燃料を微粉砕する必要がある。噴流床炉によるバイオマスのガス化は新日鐵によって行われているが、ガスと共にタールやチャーも併産する。木質系バイオマスのガス化は水分含有率が高くスラグタップ式の高温度ガス化炉は不向きであり、タール発生を抑えた1000℃付近のガス化とするか800℃程度でガス化した後に改質してタールを分解する方法が採られている。そのため最近の木質系バイオマスガス化炉の開発例では流動床方式が多い。本研究のような高温ガス化炉の開発事例は稀有である。

3-3 実験装置・測定・運転方法

3-3-1 実験装置の改良

2章および4章で取り扱う実験の後に、MEET-I ペブル床ガス化炉は実験データの信頼性を高める目的と作業性の向上を目的に改造を施した。

噴流床部を延長可能な部品を作成した。噴流床長さは500mm, 750mm, 1000mmを選ぶことが可能である。

ガス化剤の空気はスーパーヒータ S-12TW (株式会社竹綱製作所)^{注2}で予熱した。高温空気流量は加熱前にSTEC製のマスフローメーターで測定し、データロガーで記録する。流量計で計測した空気を全量加熱して炉内に供給することが可能である。噴流床部投入直前のガス化剤温度を測定するためにK熱電対も追加した。

ガス化炉の後流には、排ガスやガス化ガスを冷却・除塵する機器が設けられている。実験後にダストを全量回収できるように、ガス化ガスの冷却管を縦置きする。

炉内を観察するためにのぞき窓を追加した。

ガス化剤流量が少ない鋸屑ガス化実験では窒素を投入すると炉内の酸素濃度が低下するため、燃料供給口からの搬送ガスには空気を使用した。炉内の異常な圧力上昇による供給機内への火炎の飛込みを防止するため、炉内圧の異常上昇を防ぐために設けていた水封弁(Seal Pot)の水位を30cmにした。また燃料供給機内で火災が発生したときに、離れたところから空気を遮断し窒素に切り替えることができるようにしてある。

灰溶融ガス化炉における重金属の放出挙動を調査するために、ペブル床ガス化炉出口で冷却前のガス化ガスを等速吸引するためのプローブを設けた^{注3}。

3-3-2 測定

第2章の石炭ガス化実験から以下の測定項目を追加した。

- 酸素(運転管理用)；島津ポータブル酸素計 POT-101(磁気風式)を使用。
- ガス化ガス中の水蒸気の濃度；塩化カルシウムを吸収剤に用いる
- ガス化ガス流量；IDF手前に設けたオリフィスで測定

● 運転後のフィルターダストの重量

オリフィスで測定する流量は燃焼排ガスや空気では検定を行ったところ、ガスの温度、水蒸気分圧、絶対圧等の補正を行っても-23~+18%の誤差があった。そのためオリフィスによる流量測定データは計算や運転の確認用として用いた。

フィルターダストの重量とフィルターダストの組成分析から、およそその炭素転換率が計算可能である。フィルター本体やケーシングに付着するダストがあり、運転1回分のダストを正確に定量できないため、計算の確認用に用いている。

3-3-3 運転手順

固体燃料を投入する前に、都市ガス13Aの燃焼によって、ガス化炉を灰溶融可能な温度まで予熱した。炉を改良する際に都市ガス13A点火用にパイロットバーナー(Pilot Burner)を設けたので、石炭ガス化実験と異なり高温空気で炉内を都市ガス13Aの自着火温度まで昇温を待つ必要がなくなった。

都市ガス13A燃焼で炉を所望の温度まで昇温した後、炉の温度分布をガス化条件に近づけるために燃料を都市ガス13Aから固体燃料に切り替え、固体燃料の燃焼運転を行った。ガス化運転は固体燃料の燃焼運転に引き続いて行い、固体燃料の供給量を増加させることで、ガス化条件を得た。

ガス化運転終了後は洗い流しをせずに空気も遮断し、炉内に窒素を吹き込んで冷却した。

3-3-4 燃料供給

燃料供給について論じることは、ガス化特性と直接関係がないように思われる。しかし第4章で述べるように燃料供給に関する取り組みは本研究において重要な位置を占めている。付録4で説明している燃料供給量の推定方法とあわせて、固体燃料の供給が成功したことによって本研究は成り立っている。

鋸屑をガス化する場合、石炭と異なり、燃料を安定供給することが困難である。困難の原因は1)鋸屑の性状と、2)高温空気をガス化剤に選択したことの二つに大別できる。鋸屑は石炭に比べかさ密度が低く、繊維質で供給管の内壁等に引っかかり、圧力を加えると団子状に固まる性質がある。供給を容易にするために燃料を加工することは有効であるが、本研究では異物を除去しただけで鋸屑を無加工のまま供給した。

十分な流量の搬送ガスを用いれば閉塞を防止可能であるが、多量の搬送ガスを流すと常温のガスを多量に炉内へ投入することになり、高温空気をガス化剤に採用した意味はなくなる。搬送ガスの流量を絞りつつ閉塞を防止することが課題となった。

鋸屑の供給はサークルフィーダNCF-250TS(株式会社ヨシカワ)で行った。供給機と炉の間に設けたバルブに鋸屑が堆積し閉塞を引き起こすため、振動子を取り付けた。燃料供給については付録4で説明を行なう。

3-4 鋸屑ガス化実験

3-4-1 試料

実験に使用した試料の分析値を表 3-1 に示す。試料は製材所から提供された鋸屑の廃棄物である。鋸屑にはカンナ屑やビニールテープの切れ端等の異物が混入しており、燃料供給に支障があったため、提供を受けた試料から異物を排除した。粒径は凡そ 1mm である。石炭に比べ灰分が少なく揮発分が多いのが特徴である。

Table.3-1 Property of Sawdust

			Sawdust
Ultimate Analysis (d)	H.H.V. (wet)	MJ/kg (kcal/kg)	17.20 (4109kcal/kg)
	C	wt%(dry)	50.70
	H	wt%(dry)	6.00
	N	wt%(dry)	2.00
	S	wt%(dry)	<0.1
	Cl	wt%(dry)	<0.1
	O	wt%(dry)	40.70
Proximate Analysis (ad)	Inherent Moisture	wt%	11.6
	Ash	wt%(dry)	0.6
	Volatile Matter	wt%(dry)	80.8
	Fixed Carbon	wt%(dry)	18.6
Ash Fusion Temperature (Reducing)	Softening	°C	1150
	Hemispherical	°C	1170
	Fluid	°C	1180

3-4-2 実験条件

実験の運転条件を表 3-2 に示す。燃料供給量と空気過剰率を調整し、ペブル床出口のガス温度が 1200°C 近くになるように試みた。燃料供給機のホッパーが小さい上に鋸屑のかさ密度が 0.14 と石炭の 4 分の 1 で小さいため、燃料ホッパーへの搭載量が少なく、一条件での連続運転時間が 1 時間程度取れるように単位時間当たりの燃料投入量を抑えた。鋸屑ガス化実験 1 に対して鋸屑ガス化実験 2 では空気過剰率を高くし、鋸屑ガス化実験 3 では噴流床の高さを倍に増やした。

実験に使用した炉の模式図を図 3-1 に示す。鋸屑ガス化実験 1 と鋸屑ガス化実験 2

は図 3-1 の左に示す状態で行った。鋸屑ガス化実験 3 は図 3-1 の右側に示す炉で実験を行った。窒素ガスはのぞき窓のパージ用に投入したもので、鋸屑ガス化実験 3 ではのぞき窓が他の実験より多いために、窒素の投入量が増えている。固体燃料供給の搬送空気流量は $1.5\text{Nm}^3/\text{h}$ にした。

Table.3-2 Input flow rates of gasification tests fueled by sawdust

Test name.	Sawdust Gasification Test1	Sawdust Gasification Test2	Sawdust Gasification Test3
Fuel	Sawdust		
Fuel[kg/h]	8.91	7.51	6.90
Air[Nm ³ /h]	16.6	16.6	16.8
N ₂ [Nm ³ /h]	0.4	0.4	0.7
Steam[kg/h]	0		
Air stoichiometry	0.44	0.52	0.57
Height of entrained bed section [mm]	500		1000

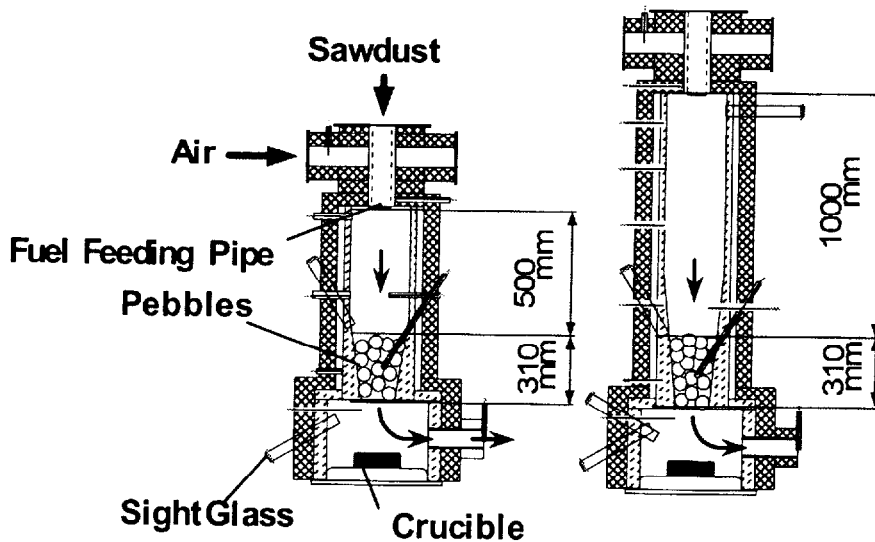


Fig.3-1 Detail of the pebble bed gasifiers used in Sawdust gasification tests

3-4-3 実験結果

ガス化実験の結果の主なデータを表 3-3 に示す。ガス化ガス中にタールの発生は確認できなかった。また、炭素が二つ以上結合した炭化水素もガス分析装置によって検出されることはなかった。

鋸屑ガス化実験 2 と鋸屑ガス化実験 3 の後に回収したフィルターダストから計算した炭素転換率は、それぞれ 93.3% と 93.6% であった。鋸屑ガス化実験 2 と鋸屑ガス化実験 3 の炭素転換率および冷ガス効率の誤差は±5%未満であり、同様の方法でデータ整理した鋸屑ガス化実験 1 の誤差も同程度だと判断される。

Table.3-3 Syngas property, carbon conversion rate and cold gas efficiency

		Sawdust Gasification Test1	Sawdust Gasification Test2	Sawdust Gasification Test3
H ₂	vol%(dry)	10.4	8.0	7.6
O ₂		0.0	0.0	0.0
N ₂		59.9	64.0	65.2
CH ₄		0.9	0.8	0.7
CO		15.7	12.8	11.9
CO ₂		12.4	13.7	13.9
Ar		0.7	0.8	0.8
H ₂ O	vol%(wet)	14.1	14.2	12.9
Syngas Flow Rate*	Nm ³ /h	22.5	20.9	21.2
H.H.V(dry)	MJ/Nm ³ (kcal/Nm ³)	3.656 (873)	2.937 (702)	2.744 (656)
L.H.V(dry)		3.418 (817)	2.750 (657)	2.568 (613)
C.C.R.	%	86	89	96
C.G.E		53	47	50

*converted as both Ar and H₂O equals to 0%.

3-4-4 鋸屑ガス化実験 1 の考察

表 3-3 に示す実験結果を検証するために平衡計算を行った。計算条件の燃料投入量・空気過剰率・水蒸気投入量には表 3-2 の鋸屑ガス化実験 1 の値を用い、ガス化温度には実験で得られた炉出口の温度データを用いた。空気の組成は酸素 21%の窒素バランスとした。計算結果を表 3-4 に示す。「鋸屑ガス化計算 A (Sawdust Gasification Calculation A)」の計算条件は投入した燃料のうち炭素だけ 14%が煤になるものと仮定し、燃料の入力成分を C_(37.86×0.86)H_{66.65}O_{29.24}N_{1.28} とした。「鋸屑ガス化計算 B (Sawdust Gasification Calculation B)」の計算条件は投入した燃料の 14%が全く反応しないと仮定し、燃料の入力成分を 0.86C_{37.86}H_{66.65}O_{29.24}N_{1.28} とした。

Table.3-4 Equilibrium calculation for verification of sawdust gasification test1

	Sawdust gasification Calculation A	Sawdust gasification Calculation B
Fuel	Sawdust	
Gasification Temp. [°C]	1160	
Carbon Conversion [%]	86* ¹	86* ²
H ₂ [vol%](dry)	12.3	11.3
O ₂ [vol%](dry)	0.0	0.0
N ₂ [vol%](dry)	58.9	59.6
CH ₄ [vol%](dry)	0.0	0.0
CO [vol%](dry)	17.8	18.7
CO ₂ [vol%](dry)	10.9	10.4
H.H.V [MJ/Nm ³]	3.821	3.803
L.H.V [MJ/Nm ³]	3.580	3.581
CGE [%]	60	55

*1 ; all of the supplied fuel reacted, and 14% of carbon became soot.

*2 ; 14% of the supplied fuel passed away without reaction.

ガス組成において表 3-3 に示した実測値と表 3-4 に示す仮定 A に基づいた平衡計算を比較すると実測値では、1) 水素濃度が低い、2) メタンが若干生成されている、3) CO/CO₂ の値が小さいという傾向がある。

傾向の一つ目の、実測値では水素濃度が低いということは、供給した燃料に含まれる全ての水素が反応したという仮定が誤っていることを示している。また傾向の二番目に挙げた、メタンの生成はガス化炉後段に設けた冷却管内でメタンが発生したことを示している。なぜなら平衡を考慮した時、1160°C でメタンが発生することは無く、またこの温度域で起こる気相反応が平衡に至る時間は炉内で十分に確保できていると考えられるからである。熱分解過程では二酸化炭素が発生し易く CO/CO₂ の値が低くなる傾向がある。傾向の三番目に挙げた CO/CO₂ の値が低いことは、反応が停止した時点で燃料が熱分解を起こしていた可能性があることを示唆している。

鋸屑ガス化計算 B を 500°C で計算した組成のガスを鋸屑ガス化計算 B の組成のガスに 20% 添加すると表 3-3 の実験結果に近い組成が得られ、その組成は乾燥状態で、水素 9.6%、窒素 52.9%、メタン 0.8%、一酸化炭素 13.9%、二酸化炭素 11.2% という組成になり、冷ガス効率も 53.8% になる。

以上のことから判断して、ガス化炉に供給された燃料の一部がペブル床部をすり抜けて炉外の冷却部で冷却される間に熱分解していることが予想され、それを裏付ける

ものとして、セラミックスフィルターから回収したダストの工業分析で灰分と揮発分が出てくる上、元素分析でも水素の存在が確認された。

鋸屑の一部が完全にガス化できなかった理由は、後述するように鋸屑のペブルに対する付着性が悪く、ペブル床をすり抜けたためと考えられる。

一般的に揮発分の多い燃料はガス化し易いが、第2章の粗砕炭ガス化実験と比較したときに、これは逆の結果を示している。

炭素転換率の違いは主にペブル床でのチャー捕獲率の違いによって生じていると考えられる。未燃チャーは、ペブルに付着すると炉内滞留時間が30分以上確保され固定炭素までガス化されるが、ペブルで捕獲されなければ炉内滞留時間は1秒未満になり燃料粒径が大きいと揮発分の放出が済む前に炉外へ排出される。

未燃チャーの捕獲率は灰分含有量の差で生じている。図3-2に鋸屑ガス化実験1と第2章の粗砕炭ガス化実験の炉内の温度分布を示す。

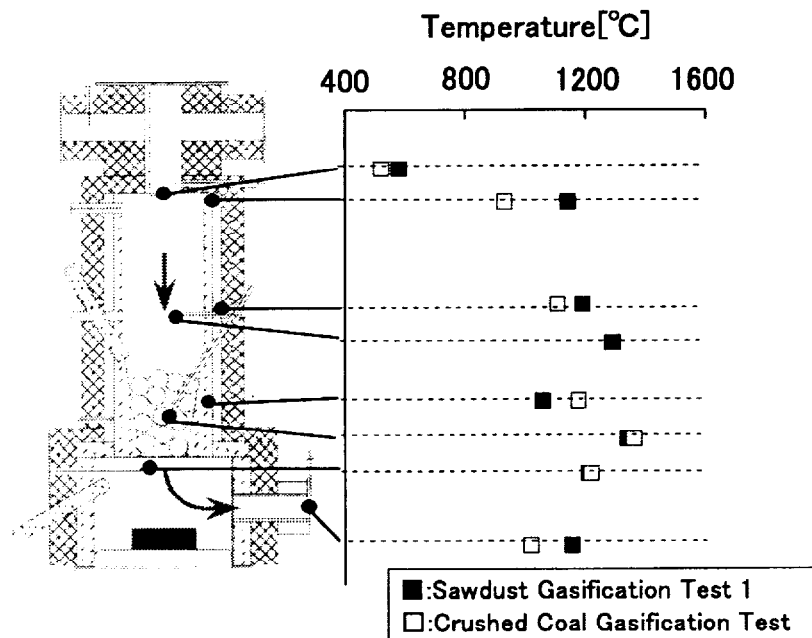


Fig.3-2 Comparison of temperature distributions between coal gasification test and sawdust gasification test1

揮発分を放出し易い鋸屑に比べ、粗砕炭は噴流床部の温度が上昇していない。しかし、ペブル床中心部の温度は粗砕炭ガス化と鋸屑ガス化ではほぼ同じであり、ペブル床部壁面温度は粗砕炭ガス化の方が明らかに高温である。ペブル床部で急に温度が上昇するのは、ペブルの捕獲効果が発揮され、燃料がペブル床内で反応するためである。石炭灰付着に関する研究⁽⁵⁾によると、飛灰の付着性は、粒子中の液相率が90%以上では液相が粒子表面を覆い、著しく増加する。灰分が石炭の約10分の1である木質系バイオマスの場合、ペブル表面を覆うスラグの量が少なくいたために未燃チャーと

ペブル表面の間の液相率が低く、付着性が弱いと考えられる。よって鋸屑の場合はペブルに対して石炭の場合とは捕獲効果が異なると考えられる。

石炭ガス化では図 3-3 に示す現象が起きたと予想されるが、鋸屑が燃料の場合は図 3-4 に示す現象が起りやすいと考えられる。このことは実験後に回収したペブルの灰付着状況から裏付けることが出来る。使用済みのペブルを観察すると、ペブルの側面にはスラグが付着していない。

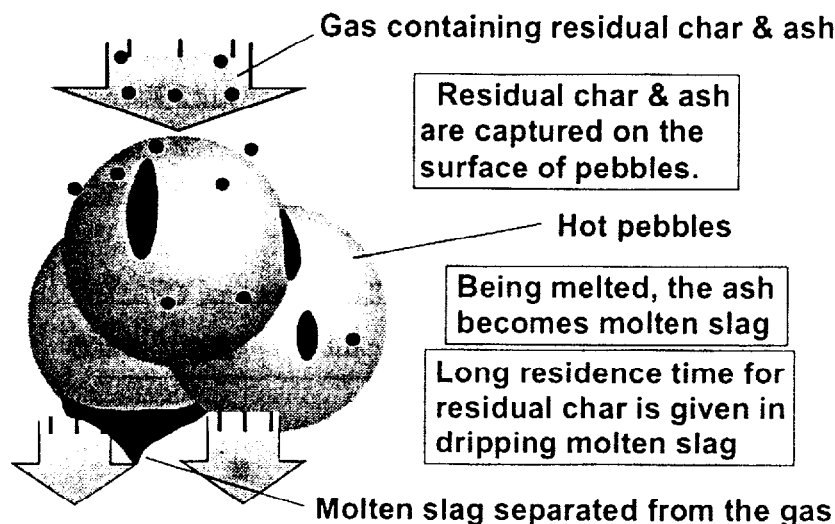


Fig.3-3 Function of pebble in coal gasification

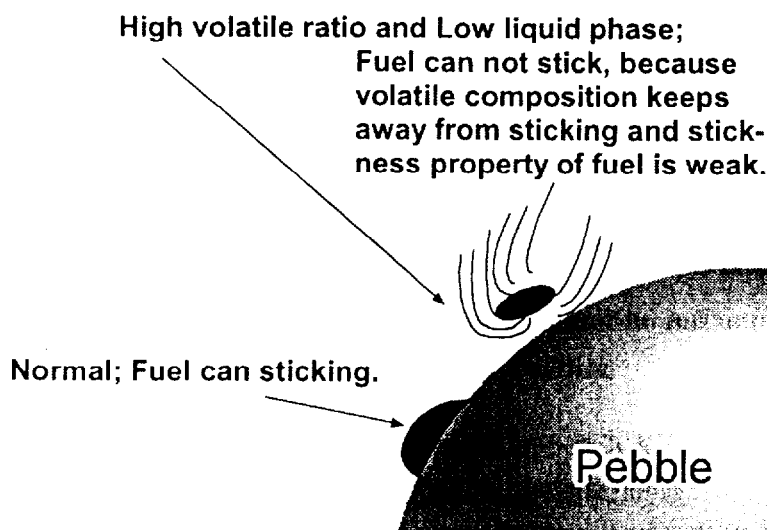


Fig.3-4 Phenomenon on the surface of pebble

小野らはペブル充填層で高い溶融灰捕獲率を達成したが⁽⁶⁾、それはペブルが溶融灰で濡れていたからである。木質系バイオマスをペブル床で高効率捕獲するには、事前にペブル床を溶融灰で十分濡らしておくことが必要である。

鋸屑や鋸屑のチャーがペブル床で捕獲されにくいことは、実験後に回収したペブルの灰付着状況や、後に実施した鋸屑ガス化実験3で運転中に行ったペブル床最上層の観察からも窺い知ることができる。

鋸屑ガス化実験の後に使用済みのペブルを観察すると、ペブルの側面にはスラグが付着していない。ペブルの上方に向いた面は灰で汚れていたことから、鋸屑や鋸屑のチャーはペブルに載ることはできても、衝突によって側面に付着することができないことを示している。大きな燃料はその傾向が顕著で、ペブル床部に到達した後に熱分解反応が始まることがある。実験中にのぞき窓から観察すると、鋸屑中に混入していた長さ5mm程のおが屑がペブル上に載ってから炎を出して炭化する光景が見られた。

熔融灰の不足によって燃料が付着しないのであれば、炉の組み立て時に使用済みのペブルを充填し最初からペブルが灰に覆われている状態で運転を行うか、燃料の配分に炉底部で回収したスラグを添加する、外部から灰に相当するものを添加する、という改善方法が提案できる。木質系バイオマスの場合にはリンが含まれていることが知られているが、第4章で述べるようにリンはSiに対して過剰なCaが存在しないと揮発し黄リンとなる。そのため燃料にはカルシウム分の多いもの^{注4}を添加して灰分を塩基度の高いものにし、さらに融点調整としてガラスのカレットや火成岩の粉末を加えると、運転開始時の灰分の量を増加させることが可能である。スラグの塩基度が高い場合は次章で述べるように耐火材も塩基性のスラグに対応可能な高価なものに変える必要がある。

3-4-5 空気過剰率の影響

炭素転換率を向上させるために鋸屑ガス化実験2では空気過剰率を高くした。鋸屑ガス化実験2では表3-3に示す通り、炭素転換率が86%から89%に向上したが、冷ガス効率は低下した。炭素転換率が向上した理由は、空気過剰率の増加によって反応が燃焼側に近づいたためだと考えられる。空気過剰率を0.44から0.52に変えても鋸屑のペブル床に対する付着性が改善されていないため、燃料の一部がペブル床部を吹き抜けており、冷ガス効率の向上はなかった。

3-4-6 炉長の影響

鋸屑ガス化実験3では、炭素転換率を高くすることを目的に噴流床部の長さを延長することで反応時間を長くした。炉長を変化させた影響は鋸屑ガス化実験2と鋸屑ガス化実験3の比較で議論できる。鋸屑ガス化実験3の噴流床部の長さは、鋸屑ガス化実験2の500mmの倍、1000mmである。炉長の変化による熱損失の増加は25%ほどで、熱収支全体から見ると小さい^{注5}。鋸屑ガス化実験3の空気過剰率が高い理由は、炉底部の温度を維持するために燃料の投入量を抑えたためである。しかし空気過剰率を炭素転換率で除した値が、鋸屑ガス化実験2の0.60に対して鋸屑ガス化実験3では0.59と低く、炉長の延長によって噴流床部の熱損失が25%増加したこともあり、実験Test2よりガス化炉出口温度が50℃低い。

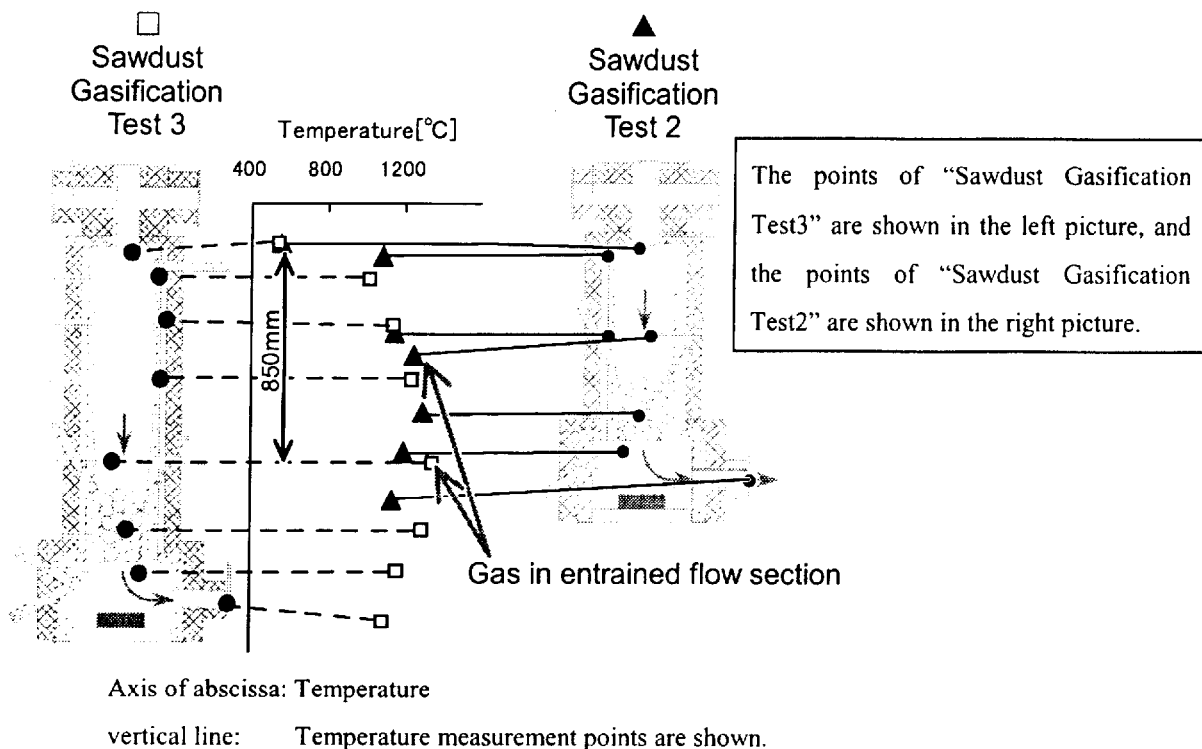


Fig.3-5 Comparison of temperature distribution

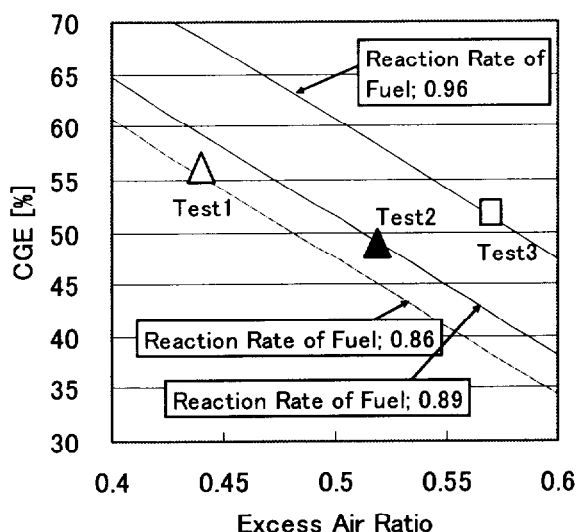
図 3-5 は鋸屑ガス化実験 2 と鋸屑ガス化実験 3 の温度分布を示している。鋸屑ガス化実験 3 のペブル床部直上気流中の温度は 1350℃であり、鋸屑ガス化実験 1 の 1290℃および鋸屑ガス化実験 2 の 1260℃に比べて高い。噴流床部の延長によって反応時間が延びて燃焼反応が促進された結果、未燃チャー分の粒子温度も高くなると予想できる。

未燃チャーの粒子温度が高いことで 2 つの効果が生じると考えられる。一つは粒子温度が高くなることによって固定炭素と粒子周辺のガスの間で固気反応が促進され、固定炭素の存在割合が減少することである。もう一つは粒子中の灰分の粘度が低下することである。双方の効果とも、ペブルと衝突した時に未燃チャーが捕獲され易くなる変化である。

表 3-3 に示されるように鋸屑ガス化実験 3 では炉長の延長により炭素転換率は向上し、鋸屑ガス化実験 2 より高い冷ガス効率を示した。

3-4-7 炭素転換率の影響

図 3-6 は平衡計算で鋸屑ガス化実験における空気過剰率と冷ガス効率、炭素転換率の関係を検証したものである。平衡計算は燃料の一部が未反応ですり抜けているという仮定で計算を行った。縦軸が冷ガス効率、横軸は空気過剰率、パラメータは燃料の反応率である。パラメータの値としては 0.86, 0.89, 0.96 と表 3 の炭素転換率を 100 で除した数値を用いている。表中のプロットはそれぞれ鋸屑ガス化実験 1, 鋸屑ガス化実験 2, 鋸屑ガス化実験 3 に対応する。



“Test1”, “Test2” and “Test3” respectively indicate the experimental results of “Sawdust Gasification Test 1”, “Sawdust Gasification Test 2” and “Sawdust Gasification Test 3”.

Fig.3-6 Effects of carbon conversion rate and excess air ratio (equilibrium calculation)

図 3-6 から言えることは、鋸屑ガス化実験 1 から鋸屑ガス化実験 2 へは空気過剰率を増加させたことで、炭素転換率が向上し、冷ガス効率が低下した。一方、鋸屑ガス化実験 3 でも空気過剰率を増加させており炭素転換率も向上しているが、冷ガス効率が鋸屑ガス化実験 2 に比べて向上している。

3-5 鋸屑の反応時間と温度

図 3-5 に示される鋸屑ガス化実験 2 と鋸屑ガス化実験 3 の温度分布では、噴流床部の入り口から下方向に温度が上昇していく様子が示されている。燃料投入量の多い運転ほど噴流床部での揮発分放出量が多く、発熱反応がより活発である。そのため空気過剰率 0.54 の鋸屑ガス化実験 2 では空気過剰率 0.57 の温度上昇は鋸屑ガス化実験 3 より温度上昇が早い。

図 3-5 からはもう一つのことが言える。燃料供給口の出口から約 850mm 下方の温度を比較すると、左側の鋸屑ガス化実験 3 ではまだ温度が上昇中で発熱反応が起きており、右側の鋸屑ガス化実験 2 では温度が下降中で吸熱反応が起きている。右側の鋸屑ガス化実験では炉底部における熱損失もあるので、温度の差をそのまま評価することはできないが、表 3-3 で示したようにガス化ガスが発生している。燃料の反応時間がほぼ同じでありながら、一方の炉では発熱反応が起きており、もう一方の炉では吸熱反応が起きている。このことから、鋸屑ガス化実験 2 ではペブル床部を吹き抜ける燃料があったものの、ペブル床によって反応が促進されていたことが分かる。

3-6 噴流床部の燃料とガス化剤の混合

反応の促進ということであれば、噴流床部での燃料とガス化剤の攪拌を良好なものにすることは効果があると予想される。しかし MEET-I ペブル床ガス化炉では噴流床部での燃料とガス化剤の攪拌を行っていないため、固体燃料は図 3-7 の写真が示すように燃料供給口の直下ではガス化剤との混合が悪い。

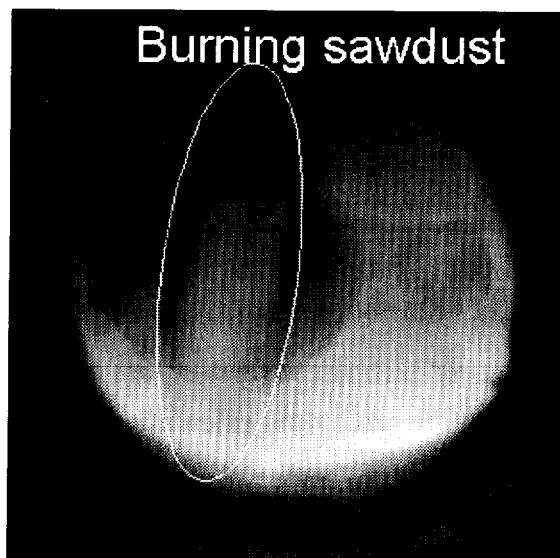


Fig.3-7 Photograph of fuel just below the fuel feeding pipe of MEET-I pebble bed gasifier(Sawdust Gasification Test 3)

本研究と関わりのある石炭 2t/day 規模の MEET-II ペブル床ガス化炉⁽⁷⁾では、噴流床部に投入するガス化剤に旋回をかけ、燃料とガス化剤の混合を促進させている^{注6}。この石炭 2t/day 規模の MEET-II ペブル床ガス化炉ではガス化剤に旋回をかける効果を比較できる実験として、石炭ガス化実験においてガス化剤に旋回をかけない実験も行われた。ガス化剤に旋回をかけない実験では通常の旋回をかけた実験に比べて噴流床部の温度が下がり、炭素転換率と冷ガス効率も低下している。この結果から、ガス化剤に旋回をかけることは、MEET-I ペブル床ガス化炉で炉長を延長した場合と同様の効果が得られていると言える。

MEET-II ペブル床ガス化炉（石炭 2t/day）では、ガス化剤に旋回をかける機構はセラミックスによって製造されていた。このセラミックスで製造された旋回をかける機構には溶融灰が付着していた。運転期間が限定されている石炭 2t/day の MEET-II ペブル床ガス化炉においてバーナへの溶融灰付着は問題ではない。

燃料供給口をバーナ化するためには燃料の種類・形状・投入量等を決定した上で、攪拌機構の耐熱性と炉壁への溶融灰の付着防止を念頭に、バーナ形状を検討することが課題になる。

3-7 まとめ

- 製材所で発生した鋸屑を無加工の状態ですタールの発生無しにガス化し、炭素転換率 86%、冷ガス効率 53%、ガス化ガスの高位発熱量が 3.66MJ/Nm³ (873kcal/Nm³) が達成された。
- 鋸屑ガス化実験 1 では炉内に供給した燃料の一部がペブル床部を吹き抜けており、燃料が高揮発分・低灰分であることがその理由として予想された。対策として灰分を燃料に添加することを対策として提案する。
- 空気過剰率を変えても顕著な炭素転換率の向上はなかった。
- 噴流床部を延長することが炭素転換率と冷ガス効率の向上に効果的であることを確認した。
- 燃料の吹き抜けによって炭素転換率が低下する場合、気相反応における空気過剰率が上がり、冷ガス効率も下がる。
- 空気過剰率が下がる運転ほど噴流床部の温度が上がることから噴流床部ではまだ発生炉ガス反応や水性ガス化反応などの吸熱反応が起きるまで反応が進んでいないことが予想され、また炉内の観察から噴流床部では燃料が全く拡散していないことが明らかになった。
- 炉の頭部は噴流床部の燃料の拡散だけでなく、熱損失の面からも改良が望まれる。

参考文献

- (1) Gasification-Based Biomass, ;
www.eren.doe.gov/biopower/bplib/library/gasificationbased.pdf
- (2) 村田徳治, 廃棄物のガス化および熱分解灰溶融プロセスの現状と問題点, 廃棄物の熱分解・ガス化灰溶融システムの開発動向, 株式会社エヌ・ティー・エス, (1998.4), pp.149-165
- (3) 出口鉄生, 廃木材の再資源化活用(ガス化)について, PPM, 日刊工業新聞社, (1985.9), pp.20-27
- (4) 藤並晶作, 木質系バイオマス利用のためのガス化技術について, 第8回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 02-7, (2002), 241-244
- (5) 市川和芳 沖裕壮 犬丸淳 芦沢正美, 噴流床石炭ガス化炉内における灰付着性予測に関する研究(第1報, 灰付着性と灰溶融性の相関性), 日本機械学会論文集(B編), 67-663, (2002), pp.2776-2783
- (6) 小野栄一 吉川邦夫 小坂仁, 溶融石炭灰除去用高温フィルターの開発, 日本機械学会論文集(B編), 63-616, (1997), pp.4050-4054
- (7) 平田新之助 加藤義隆 杉山しのぶ 吉川邦夫, ペブル床ガス化炉における高温空気ガス化特性, 第39回日本伝熱シンポジウム講演論文集, Vol.1, (2002.6), pp.301-302
- (8) 藤田秀保 志賀一一共著, 環境保全を考えた 乳牛のふん尿処理と利用, 酪農総合研究所, (1998)

- (9) Ryo YOSHIIE, Kousuke NAKAMURA, Hiroshi MORITOMI ; Investigations of heavy metal emissions in ash melting and their mechanisms, Proceedings of 5th International symposium of high Temperature air combustion and gasification, (2002.10), G3

注

- 注 1 堆肥中の有機態窒素は分解による無機化の速度が年間 5~20%で, 残りの有機態窒素は土壤中に蓄積される. この有機態窒素の蓄積が肥料効果を上昇させ, 毎年安定した地力窒素の放出をするようになる. しかし窒素の供給量が多すぎると土壤汚染になるため, 日本国内の酪農家の多くが糞尿を農場内で処理できずにいる. 堆肥の散布作業が重労働であることや高価格が原因で, 需要が少なく販売ルートの確保が困難である. (以上参考文献(8)より) 以上を考慮すると, 樹木の灰が肥料として利用可能であっても, 上記の事項に関しては糞尿と同様の問題があると予想され, 立地条件などが揃わないと樹木の灰が有価物として取引されることはないと思われる.
- 注 2 ヒータ容量: 12kW (3相 200V), 連続使用最高温度: 900°C, 過熱防止設定温度: 1000°C, 最小使用可能風量 0.31Nm³/min (温度 900°C), 最大使用可能風量 (1.5 Nm³/min 以下), ホットスタートが可能. 高温空気発生装置は別の研究目的で改造を加えたことや, 生産中止に伴うハニカムの変更があり, MEET-I ペブル床ガス化炉の実験装置として安定した高温空気の供給ができなくなった. 空気の温度は下がるが簡便さを優先し, 電気ヒータの採用に踏み切った.
- 注 3 ここで採取したダストとセラミックスフィルターで回収したダストおよび実験後に炉内から回収したスラグを基に義家ら⁽⁹⁾によって研究がなされている.
- 注 4 カルシウム分の多いものとしては石灰の他, 牡蠣殻や肉骨粉など動物系試料がある.
- 注 5 都市ガス 13A 燃焼の熱収支でも熱損失の変化が小さいことは確認された. 炉の表面積が増加している割に熱損失の増加が少ないため, 筐体からの放熱は比較的小さいと言える. 噴流床部の熱ロスには, 燃料供給管の水冷された金属面が噴流床部に向けてむき出しで設置されており, その部分での放射熱損失が大きいと予想される.
- 注 6 MEET-I ペブル床ガス化炉でもガス化剤と燃料を混合させる燃料供給口のバーナ化が検討された. しかしスワールを起こす機構は MEET-I ペブル床ガス化炉用の小さなサイズでは細工が細かくなりキャスターでの製作も困難である. 燃料の吹き込み口をバーナ化した場合, 燃料の供給量や燃料の種類がバーナの形状に限定される上, 灰の付着や輻射熱によるバーナの損傷などのトラブルが予想されたため, 燃料吹き込み口をバーナ化する計画は見送られた.

第4章 廃棄物の燃焼・ガス化特性

4-1 はじめに

本章では廃棄物のガス化について議論する。第3章で述べたように、本章で扱う試料はガス化実験でデータを得るまでに至らなかったものである。本章で扱う試料は3種類、一般廃棄物から製造したRDF、乾燥汚泥にプラスチックと生石灰を混ぜてペレット化した下水汚泥RDFならびにプラスチックである。

第2節ではRDF燃焼実験のダイオキシン類の測定結果を報告する。

第3節では下水汚泥RDFについて説明する。下水汚泥RDFの実験では、RDFに添加した生石灰の影響で、炉内の耐火材が溶融し穴が開いたことについて議論する。

第4節ではプラスチックを試料にした実験について説明し、ペブル床ガス化炉がプラスチックのガス化に適さないことを示す。

廃棄物では慣例的に低位発熱量を基準に議論が行われるが、本研究では2章との関連もあり、また扱う試料に湿分も少ないので高位発熱量を基準に計算を行う。

4-2 RDFおよび一般廃棄物の燃焼特性

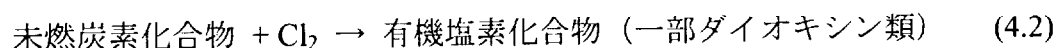
4-2-1 RDFガス化に取り組む背景

4-2-1-1 ダイオキシン類排出低減に向けた取り組み⁽¹⁾

ダイオキシン類の国内発生量の大部分は廃棄物焼却で発生するといわれ、その低減に向けた各種の取り組みが旧厚生省（現環境省）主導にて進められた。平成9年12月の大気汚染防止法の改正・施行により排ガス中の値が規制（既設は平成14年12月より施行）され、その後「ダイオキシン対策推進基本指針」（平成11年3月）策定、「ダイオキシン類対策特別措置法」（平成11年7月）制定などもあり、灰中、排水中の値も規制され、同時に「平成14年度までに全国のダイオキシン類の総排出量を平成9年に比べ約9割削減する」との政策目標が掲げられ、これを受けて各業界毎の取り組みが積極的に行われている。

4-2-1-2 廃棄物焼却炉におけるダイオキシン類の発生経路

廃棄物の燃焼過程におけるダイオキシン類の生成経路は二段階の反応が考えられ、炉内で発生したHClのうち一部が式(4.1)で示す反応によってCl₂になり、このCl₂と有機化合物・熱分解生成物から式(4.2)の反応によって有機塩素化合物が生成する⁽²⁾。



酸化雰囲気においては230°C近辺から600°C以上の温度範囲でダイオキシン類が合成される可能性がある。ガス化ではない通常の焼却炉（Incinerator）ではダイオキシン類排出抑制のために、廃棄物は800°C以上の酸素が行き渡った空間で一定時間燃焼し、

式(4.2)を起こす基になる未燃炭素化合物を燃焼させようとする。また排ガスを冷却する過程でダイオキシン類の再合成 (de novo synthesis) が起こる可能性があるため、排ガスを速やかに 200°C未滿に下げることが求められた。

一方、ガス化反応では反応が高温で行われていれば装置に漏れが無い限り酸素が無いため、式 (4.1) で Cl_2 が発生することも無く、ダイオキシン類発生の可能性は少ないと考えられる。

4-2-2 RDF

旧厚生省がダイオキシン新ガイドラインの中で示した方針は、一般廃棄物のごみ処理は 24 時間運転による焼却処理、もしくはそれができない場合には RDF 化処理のどちらかを選択することが望ましいとするものだった⁽³⁾。これは廃棄物焼却炉がバッチ運転 (不連続運転) を行った場合、燃焼を停止している間に残渣物の温度がダイオキシン類の合成可能な温度になることを受けての処置である。一般廃棄物の処理量が少ない自治体では焼却炉の 24 時間連続運転ができないため、ガイドラインを文字通りに受け取ると RDF 化が望ましいということになる。

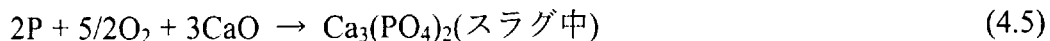
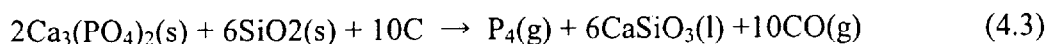
廃棄物固形燃料 (Refuse Derived Fuel ; RDF) は廃棄物を固形燃料化したものである。一般的には廃棄物を破碎・乾燥し、石灰を添加したものをペレット状に成型したものが多く、RDF の起源は、北欧で 100 年以上前から薪の代用物として用いられていた、圧縮成型したバイオマスだと言われている⁽⁴⁾。

金子らは RDF 製造に際して添加する生石灰 CaO の効果として次の 4 つを挙げている⁽³⁾。

1. CaO と水との反応でごみが強アルカリになる。
2. ごみ中の窒素分の減少、有機物の分解、微生物・細菌の死滅が起こり、RDF の腐敗・悪臭の防止ができ、RDF の長期保存が可能となる。
3. 水分除去と RDF の固化作用が助長される。
4. 燃焼時に炭酸カルシウムが塩化水素と反応して塩化カルシウムを生成するため、塩素分の大気への排出量が低減される。

カルシウムを添加することは上で述べた塩化水素との反応以外にも、脱硫・リンの固定に効果がある。生石灰を水と反応させて生成する消石灰 Ca(OH)_2 や消石灰が二酸化炭素を吸収して生成する炭酸カルシウムは乾式脱硫にも利用される。

消石灰や炭酸カルシウムを加熱して生成する生石灰はリンの固定を行う⁽⁵⁾。リンはシリカ共存下 1450°C程度でコークスによって還元されると、式(4.3)に示す反応でリン単体の蒸気となり、それが冷却されると有害な白リンとして凝固する。しかしカルシウムの酸化物は式(4.4),(4.5)に示す反応でリンをスラグ中に固定する。



カルシウム添加の利点を考慮すると RDF への生石灰の添加は有効であるが、添加する量が多い場合は溶融灰の塩基度が高くなり、酸性の溶融灰を取り扱う炉に投入することは炉を損傷させることにつながる。塩基性のスラグを扱うには CaO や MgO を多く含むドロマイトやマグネシア系の耐火材を使う必要があり、コストがかかる⁽⁶⁾。

RDF の製造には実ごみ 1 トン辺り数千から三万円程度の製造コストがかかる上、4000kcal/kg の RDF 1kg の製造に約 1000kcal のエネルギーを投入している⁽⁷⁾。そのため RDF 発電でごみの直接燃焼よりシステムの効率を高くするためには、RDF 製造や輸送のエネルギーをまかなう分、高効率な発電設備が要求される。

本研究に関連し一般廃棄物を原料にした RDF 数種類（株）御池鐵工所、日本リサイクルマネジメント、など）と下水汚泥 RDF（東芝機械株式会社）を市販されているゴミ袋に 3 年間保管したが、劣化やカビなどは確認できなかった。ただし RDF は、実ゴミと比べれば臭わないが、通常の間感ではかなり臭く、某社の一般廃棄物から製造した RDF にハエがたかったこともある。RDF を裸で保管することは避けるべきだが、長期保存は可能である。

RDF の長所は実ゴミより発熱量が高く、粉砕によって組成やサイズのバラつきが小さく空気過剰率の制御が実ゴミより容易であることと、長期保存が可能なことである。

4-2-3 既存の廃棄物ガス化技術とマスバーン

廃棄物の場合は第 1 章で述べたとおり、「ガス化」とは呼ばずに「ガス化溶融」と呼ぶのが一般的である。日本で開発中のガス化溶融炉の多くは生成したガス化ガスを炉内で焼却してしまう。ガス化ガスを内燃機関で利用するものとして「サーモセレクト」⁽⁸⁾のガス化溶融プラントが挙げられる。

川鉄サーモセレクトの標準的な処理フローでは、廃棄物は前処理なしで圧縮され、脱ガスチャンネルで間接加熱により乾燥・熱分解処理し、熱分解物は高温反応炉に押し出されて酸素と熱分解物中の炭素の反応で高温になり溶融され、生成したガスは改質・急冷・精製を経て燃料ガスになる⁽⁸⁾。熱収支や物質収支は明らかにされていない。

一般廃棄物をガス化するプラントの報告で物質収支や熱収支に言及しているものもあったが、物質収支に矛盾があった。

従来の焼却処理（マスバーン）と比較した場合、ガス化溶融技術の利点は次のように述べられる⁽⁹⁾。

1. ガス化溶融技術は、ごみ自身の持つエネルギーで灰を溶融することができるため効率面で有利である。
2. 溶融炉において高温燃焼させるためダイオキシン類や未燃分の発生を抑制する。
3. 金属類を未酸化状態で回収できる。
4. 低空気比燃焼により排ガス量を低減させるため、ボイラーでの熱回収率が向上する。

利点の三つ目に挙げられている「金属類が未酸化状態で回収」だが、鉄やアルミニウムの回収を謳うシステムでは、廃棄物の熱分解処理後で灰溶融処理の前に鉄やアルミニウムの回収を行う。灰溶融炉から生じるメタルは単に「メタル」と表記されており、メタルが何であることを明記している文献は見当たらなかった。溶融処理によって生じたメタルが特に何かの原料として使用可能だという報告も見られない。

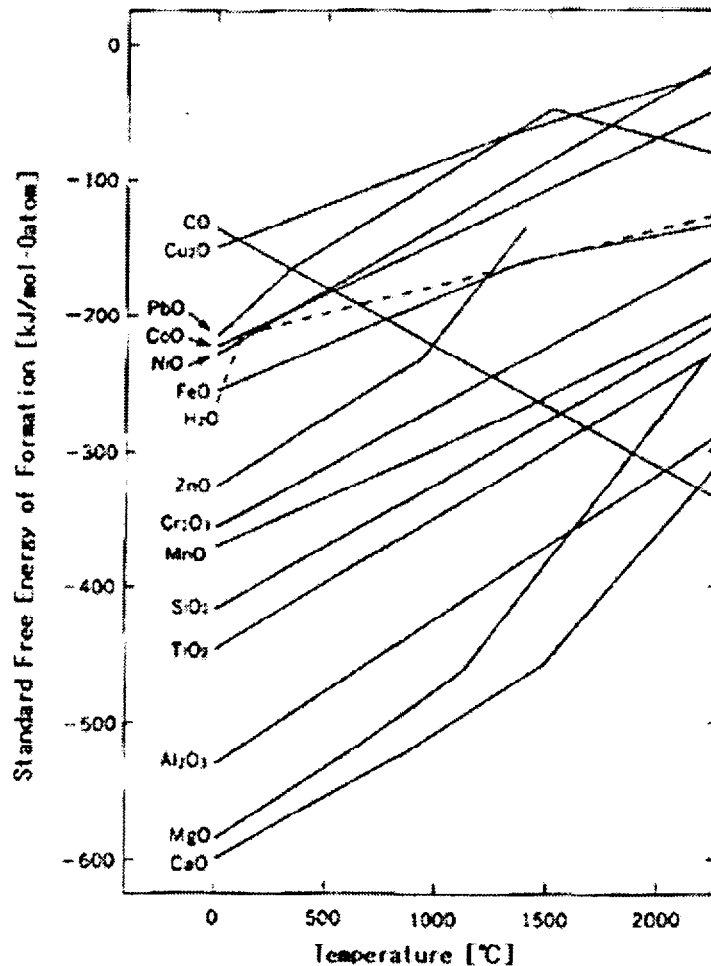


Fig.4-1 Ellingham diagram of reaction of several oxide-formations ⁽⁵⁾

通常の灰溶融炉の運転条件でアルミニウムの生成は不可能である。図 4-1 に示す酸化物生成の標準自由エネルギー変化温度図⁽⁵⁾⁽¹⁰⁾ から、炭素でアルミニウムの酸化物を還元するのは 2000°C 近い温度が必要なことがわかる。酸化物生成の標準自由エネルギー変化温度図を作成するためのデータベースとして文献 (10) によって日本熱測定学会から出されている MALT^{注1)} が紹介されている。

アルミニウムの回収について一般廃棄物の RDF を例に概算した。一般廃棄物の RDF には本章で扱う実験に使用した RDF を仮定した。乾燥状態の RDF1kg に Al は未酸化物換算で約 32g 含まれている。アルミニウムの地金を 1kg あたり 200 円と高めに見積もり、RDF 中のアルミニウム元素が全て地金になるとすると、RDF1kg から約 6 円 18 銭分のアルミニウムの地金を回収することになる。RDF は乾燥させているので、一般廃棄物 1kg から回収できるアルミニウムは 6 円 18 銭より小額になる。

溶融固化したスラグは建設材料であるブロック等に利用することが可能だと報告されている⁽¹¹⁾。しかし、スラグの有効利用は単価的に合わないという意見や、環境庁告示第 46 号法の土壤環境基準でスラグの安全基準を語る考え方が間違っているという意見もある⁽¹²⁾。またガラス状のスラグを鉄筋コンクリート骨材や路盤材として再利用することにドイツの多くの鑑定者が疑念を抱いている⁽¹³⁾。しかし有効利用できなくとも、スラグは取り扱いが良い。

ガス化に対抗する技術として、従来の焼却処理(マスバーン)を進化させた、「次世代マスバーン」と呼ばれる燃焼技術がある。次世代マスバーンは、廃棄物の焼却処理で長く実績のあるストーカ炉を利用した、新しいコンセプトを持ったストーカ式焼却システムのことを指している。その主な特徴は 1.3 から 1.4 程度の低空気比で燃焼温度を 1000°C 以上にし、燃焼効率を向上させることである。また次世代マスバーンのコンセプトは 1) 燃焼効率の向上、2) 焼却灰のクリーン化、3) 熱回収率の向上、4) 経済性の向上、5) 運転の安定性である。ガス化溶融と次世代マスバーンで評価の大きく異なる項目はほとんど無い⁽¹⁴⁾、と報告されている。小規模施設になるにつれ、マスバーンでは電気式の灰溶融炉の熱効率低下が起これり、ガス化溶融に優位性が見られるが、規模が 1000t/day 以上の施設ではガス化溶融とマスバーンが同等もしくはマスバーンが有利になると結論付けられている。

ストーカ炉に組み合わせる灰溶融炉には重油燃焼による方式・電気加熱による方式・コークスベッドを利用する方式がある。重油燃焼による方式には堅型回転炉と傾斜反射炉があり、電気加熱による方式にはアーク炉、抵抗炉、マイクロ波炉、プラズマ溶融炉がある⁽¹⁵⁾。

マスバーンや多くのガス化溶融炉では、熱回収をボイラで行っている。このボイラの熱交換器部分の腐食 (Erosion) があるために、過熱蒸気の温度が高くできず、発電する場合の熱効率が上がらない。この腐食のメカニズムについては多くの文献で議論されている⁽¹⁶⁾⁽¹⁷⁾。

容器包装リサイクル法で容器包装の分別が進むと廃棄物の発熱量が下がり、廃棄物の焼却処理およびガス化溶融に影響が出るという試算もある⁽¹⁸⁾。

廃棄物発電としては、化石燃料で駆動するガスタービンの排熱と焼却炉の排熱で蒸気タービンを駆動する「スーパーごみ発電」もよく知られている⁽¹⁹⁾。

4-2-4 ペブル床ガス化炉における RDF ガス化の目的

前節の廃棄物のガス化溶融とマスバーンの比較で述べたように、ガス化溶融とマスバーンにはそれぞれ適した規模や状況がある。ペブル床ガス化炉では小規模な設備を想定し、内燃機関に供給可能なガス燃料を発生させることを目的にした。

4-2-5 ペブル床ガス化炉における RDF 燃焼実験

RDF の燃焼実験は第 2 章の石炭ガス化実験で使用した装置と同じものを使用した。RDF は粉碎した状態で供給した。粉碎物は綿埃にビニールの切れ端が混ざったような形状になった。

Table.4-1 Property of RDF

Fuel Heating Value			Ash Composition		
HHV	MJ/kg	17.2	SiO ₂	wt%(dry)	35.08
Proximate Analysis			Al ₂ O ₃		33.44
Inherent Moisture	wt%(wet)	2.6	Fe ₂ O ₃		6.53
Volatile Matter	wt%(dry)	69.1	CaO		15.81
			MgO		1.84
			Na ₂ O		1.93
Fixed Carbon	13.1	K ₂ O	0.54		
Ash	17.8	SO ₃	0.25		
Ultimate Analysis (d)			P ₂ O ₅		
			TiO ₂		
C	wt%(dry)	42.0	Ash Fusion Temperature (Reducing)		
H		5.6	Initial Deformation	°C	1135
S		0.1	Softening		1110
N		0.7	Hemispherical		1140
Cl		0.7	Fluid		1160
O		33.2			

この RDF の粉碎物の供給にはサークルフィーダ NCF-250TS (株式会社ヨシカワ) を利用した。無改造のサークルフィーダ NCF-250TS はフィーダー内部で回転歯が供給物を掻き出す機構になっている。しかし RDF の粉碎物はかさ比重が小さいため、

ホッパー内に充填した RDF 粉砕物全体が回転歯と共に回転してしまい、RDF が供給機の外に出てこない。対策として、RDF 粉砕物の回転を防止する長さ 5cm 程度のプレートを作成し、プレートをホッパー内の粉体出口付近に設置した。また、供給機と炉を遮断するためのボールバルブに供給された RDF の粉砕物が堆積しやすいため、RDF 燃焼の間ボールバルブに手で振動を与え続けた。燃料供給については付録 4 で述べる。表 4-1 に RDF の分析値を示す。運転条件は RDF 供給量が 1.4kg/h、炉底部温度が 1280℃、排ガス中酸素濃度が 16.8%であった。

この実験は燃焼条件で運転したときのダイオキシン類の排出量を調べた^{注2}。測定は鋼管計測株式会社に委託した。結果を表 4-2 に示す。

Table.4-2 Result of dioxins measurement

	Total (PCDD _S +PCDF _S)
Entrance of bag filter (gas)	2.4 ng-TEQ/Nm ³
Entrance of bag filter (particles)	7.9 ng-TEQ/Nm ³
Exit of bag filter	0.11 ng-TEQ/Nm ³

バグフィルターの入り口と比較して出口のダイオキシン類濃度が下がった理由は、すずいダイオキシン類が吸着し、バグフィルターで捕獲されたものと思われる^{注3}。MEET-I ペブル床「ガス化炉」の RDF 燃焼運転ですずいが生じた理由は、燃焼実験の最中に高温空気発生装置が間欠的に空気の供給が止まるためである。

4-3 下水汚泥 RDF ガス化

下水汚泥 RDF は乾燥した下水汚泥 (Dried Sewage Sludge RDF) に 3 割のプラスチックと 2 割の石灰を加えたものである。分析値を表 4-3 に示す。本研究では一般廃棄物から製造した RDF よりも供給が容易で、プラスチックと異なり灰分が存在し、なおかつ石炭と異なり固定炭素のほとんど無いものとして下水汚泥 RDF を試料に選んだ。

4-3-1 下水汚泥の処分状況

平成 5 年度の日本の下水汚泥は、発生固形物量ベースで 155.9 万 t/年である。その最終安定化状態の 62.7%は焼却灰、脱水汚泥は 24.8%、乾燥汚泥が 1.2%、液状汚泥が 0.6%、コンポストが 7.1%、溶融スラグは 3.6%となっている⁽²⁰⁾。下水汚泥の 9 割は脱水しており、下水汚泥の脱水にエネルギーを消費している。

Table.4-3 Property of Sewage Sludge RDF

Fuel Heating Value			Ash Composition		
HHV	MJ/kg	19.4	SiO ₂	wt%(dry)	13.71
Proximate Analysis			Al ₂ O ₃		6.80
Inherent Moisture	wt%(wet)	4.2	Fe ₂ O ₃		15.88
Volatile Matter	wt%(dry)	65	CaO		40.88
			MgO		1.65
			Na ₂ O		0.67
Fixed Carbon	wt%(dry)	1.0	K ₂ O		0.36
Ash		34			
Ultimate Analysis (d)					
C	wt%(dry)	45.8	Ash Fusion Temperature (Reducing)		
H		5.1	°C		
S		1.1		Softening	1350
N		2.5		Hemispherical	1560
Cl		<0.1		Fluid	1570
O		12.5			

4-3-2 下水汚泥 RDF ガス化の課題

下水汚泥 RDF は二つの問題で現在 MEET-I ペブル床ガス化炉では扱うことができないと判断した。問題の一つは、添加した生石灰によってスラグが塩基性になり耐火材を腐食すること、もう一つはペブル床部を燃料が吹き抜けることである。

下水汚泥単体の灰分の組成分析例⁽²¹⁾では、SiO₂が43.5%、Al₂O₃が15.7%、CaOが9.82%であり塩基度は低い、シリカが増加すると焼却灰中のリンが減少する⁽²¹⁾。第3章で述べたようにカルシウムが不足するとリンが白リンとして揮発するため、リンの揮発を抑制するにはカルシウムの添加をせざるを得ない。

図4-2は下水汚泥RDFをガス化した実験の後、炉底部を下から撮影した写真である。腐食によりスリットの幅が広がり、白く円で囲った場所にあったペブルが一つ落下している。厚さ20mmの耐火材は酸性のスラグに対する耐食性が強い材料である。同実験ではペブルも腐食された。下水汚泥RDFは脱水と消臭のために燃料の20wt%が石灰であり、表4-3に示すように、灰分には大量のカルシウムが含まれている。CaO/SiO₂の比が高く、4-2-2 RDFで述べたように本来であれば塩基性スラグに対応した耐火材やペブルを用いるべき組成である。Al₂O₃の融点は2050℃、CaOの融点は2610℃であるが、Al₂O₃とCaOを組み合わせたときの酸化物2成分系における液相生

成最低温度は 1360°Cである⁽²²⁾。これは複数の固体酸化物が接触状態で溶融点の低い共品をつくることを意味する。

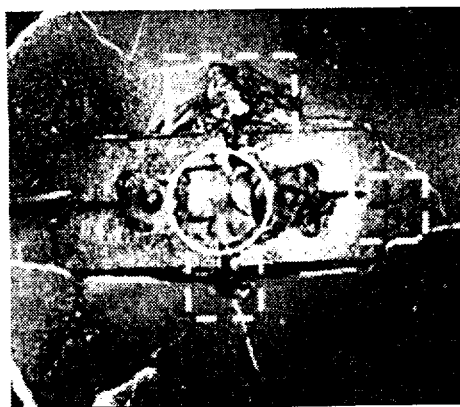


Fig.4-2 Around slit after sewage sludge RDF

腐食にはスラグの組成だけでなくスラグの粘度も影響する。この実験ではペブル床部が閉塞したために一度緊急停止したが、その後数分で閉塞は解消している。ペブル床部で閉塞し易いのは空隙の狭い箇所、スリット部分は空隙が狭くなっている。一度閉塞した炉が数分後に閉塞を解消したことは、スリット部を閉塞させたスラグが自重で数分の間に流れ落ちたと考えられる。ペブル床ガス化炉は通常の灰溶融炉より温度が低いため、石炭や一般廃棄物 RDF の実験では溶融灰の流れが極めてゆっくりとしていたが、下水汚泥 RDF では溶融灰の粘度が低かったことも伺える。

図 4-2 ではまた、白く四角で囲ったところでは耐火材が腐食によって穴が開き、スリットを形成する耐火材の外側にある断熱材の部分がスラグによって大きく穴が開いている。図 4-2 で一番上に囲ってある部分では、ペブル床の上の方まで大きな空洞になっていた。断熱材は耐食性に劣るため、耐火材に入ったヒビの間から侵入したスラグによって激しく腐食される。MEET-I ペブル床ガス化炉のペブル床部では、耐火材の中と外の温度差が 30~50°C 程度であるため、耐火材の外にスラグが侵入してもスラグによる侵食性は衰えない。このことから、スラグに対する高い耐食性が要求される部分では、耐食性が高い材料の外側で温度がスラグ融点以下に下がっていることが安全上望ましい。

この実験から、ペブルや耐火物の組成に頼った腐食対策だけでは、多様な燃料への対応は困難であることが分かる。

溶鋳炉も耐火物の腐食は激しく、鑄鉄溶解炉の一種キュポラでは、大型炉において炉壁損傷の低減を目的に溶解帯の炉壁を水冷しているものがあり、耐火材の裏張り無しで操業するノーライニング・キュポラも使われている⁽⁶⁾。第 6 章で紹介する実験炉においても、フラックス (Flux) ¹⁾ として添加した Na の影響で炉内が激しく腐食されたが、水冷された箇所は腐食の影響が見られなかった。スラグ自身の固化物によ

る皮膜でセルフコーティングにする方法は炉の保護だけを考慮すれば良い手段だと言える。

図 4-3 は下水汚泥 RDF のガス化を試みた運転の後の、ペブル床ガス化炉直後の水冷配管を写した写真である。配管の下に溜まっている茶色いものは下水汚泥 RDF の粉砕物である。燃料の吹き抜けについては、ポリプロピレンのガス化で顕著に現象が現れており、4-4 プラスチックガス化にて議論する。

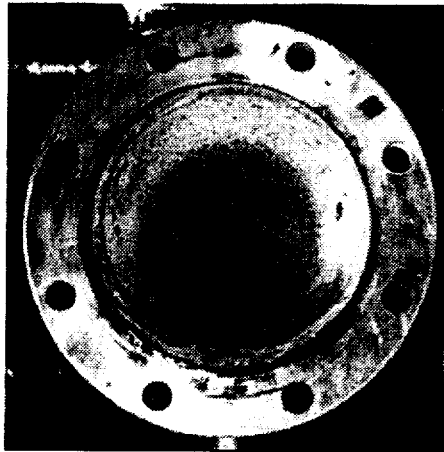


Fig.4-3 Exit of pebble bed gasifier (after sewage sludge RDF gasification test)

4-4 プラスチックガス化

本研究ではポリプロピレンのガス化実験を試みたが、ポリプロピレンの燃焼条件に入ったところで炉底部の温度が異常に上昇したため、燃料の供給を数分で停止した。

また3種混合のプラスチックの粉体で実験を行ったところ、燃料供給管が閉塞した。

4-4-1 プラスチックガス化における既往の研究

廃プラスチックのサーマルリサイクル技術基礎データ集⁽²³⁾では廃プラスチックのガス化の説明に1ページしか費やしおらず、1例が紹介されているだけである。プラスチックの熱利用は油化や専焼・混焼が多い。荏原製作所と宇部興産によって流動床炉と旋回炉を組み合わせた加圧二段ガス化システム (EUP) が廃プラ用に開発された⁽²⁴⁾⁽²⁵⁾。NEDO の CADDET プロジェクト番号 : JP-2002-029 として実証試験が済みであり、Feasibility Study(FS)の値として冷ガス効率 73.6%・エネルギー回収率 55.2%を出している⁽²⁵⁾。純粋なガス化とはやや異なるが、廃プラスチックを製鉄の高炉のコークスに混ぜ、コークスを節約するような技術は製鉄会社によってパンフレットが出されている。

噴流床ガス化炉は IGCC での稼動実績があるが、廃プラスチックのガス化を目指した研究は少ない^{(26) (27)}。庄司らは文献 (26) で式 (4.6) (4.7) を実験式として報告している。

$$C.C.R. = 1.0 + a \log(\theta_t) \quad (0.4 < \theta_t < 1.0) \quad (4.6)$$

$$C.G.E. = 1.25(1 - \theta_t / C.C.R.) \quad (4.7)$$

a: Coefficient, θ_t : Oxygen ratio

4-4-2 ポリプロピレン実験

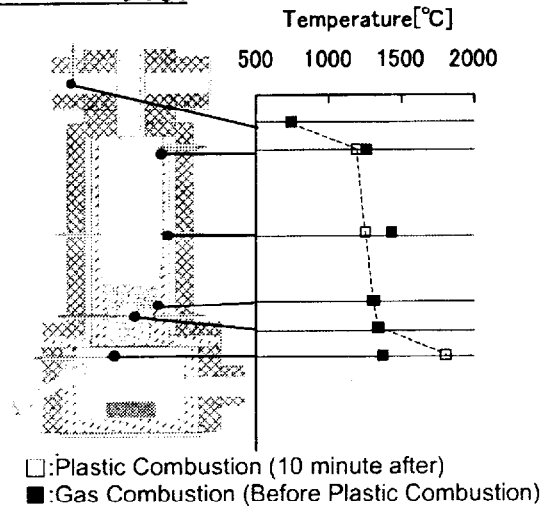


Fig.4-4 Temperature distribution of polypropylene combustion

実験で炉に供給した試料はポリプロピレンである。添加剤の影響が出ない、原料の状態である。ポリプロピレン供給前後の MEET-I ペブル床ガス化炉の温度分布を図 4-4 に示す。ポリプロピレンがペブル床部で捕獲されず炉底部で燃焼し、炉底部の温度が 1800°C を超えた。

ペブル床ガス化炉はペブルで未燃炭素を捕獲し滞留時間を稼ぐことで、噴流床式ガス化炉より背の低い炉でガス化を実現すると期待されている。しかしポリプロピレンは第 3 章の鋸屑とは異なり、揮発分しかなく、ペブルに捕獲される要素がない。そのため投入した試料のうち、未反応物が全て炉底部で反応し、反応の制御ができない。

プラスチックは発熱量が高く、前述の文献 (23) を参照しても燃焼性が良いと判断する。図 4-4 に示すように炉底部では 1800°C を超えており、ポリプロピレンの燃焼性が良いことは確かだといえる。

ポリプロピレンと第 3 章の鋸屑を比較してみる。熱重量分析 (Thermogravimetry: TG) で求めた熱分解の反応速度定数を文献 (28) で比較すると、ポリプロピレン熱分解の反応速度定数は鋸屑の凡そ 10^{16} 倍大きな値になる。

ポリプロピレンの方が鋸屑より燃焼性に優れているが、ペブル床炉では燃焼実験もままならなかった。この傾向は、その後数回ポリプロピレンで実験を試みたが同じであった。ポリプロピレンと比較することにより、第 3 章で取り上げた鋸屑は、ポリプ

ロピレンより燃焼性が劣っており、また一部の燃料がガス化炉を吹き抜けペブル床の効果が期待通りのものでなかったが、ペブルの働きでガス化できていることが伺える。

ポリプロピレンの燃焼性が劣る要素として予想されることは、表面に細孔がなく比表面積が小さいことである。この点について定量的な議論を行うにはガスの拡散を考慮できる装置で確認するしかなく、Drop Tube Furnace (DTF) はその類の装置として有効だと思われる。しかし微粉炭等の滞留時間が長くとれる燃料に対して DTF は有効な実験装置だといえるが、本研究で用いる燃料は自由落下に近い状態で落下するため、通常の DTF だと滞留時間をほとんど変えられない。そのため粗粒な燃料に対応可能な実験方法を考える必要があるといえる。本研究はペブル床ガス化炉の初号機を運転してその特性を知ることが目的であり、現時点では粗粒な燃料の燃焼初期の反応特性を知る以前の段階である。しかし燃料粒径の最適値を探る上では重要だと思われる。

4-4-3 燃料供給管の閉塞

粒径 1mm 未満に砕いたプラスチックで実験を試みたところ、燃料供給管が閉塞した。同様な現象は廃トナーのガス化を試みた時にも起こっている。閉塞は噴流床部に面した先端で起こっている。燃料供給管内でも燃料が噴流床部およびペブル床部からの輻射加熱によってプラスチックや廃トナーが溶融し、冷却された管壁に接触すると溶融していたプラスチックや廃トナーが凝固したと思われる¹⁵⁾。MEET-I ペブル床ガス化炉では燃料供給管の中でも輻射を受けて熱分解を起こしていると予想される。その予想が正しければ、固体燃料の反応初期に輻射が強く影響しており、第2章で述べたペブル床による輻射の影響は噴流床部の反応に影響を与えるといえる。

4-5 まとめ

一般廃棄物から製造した RDF を試料に用いた RDF 燃焼実験では粉碎した RDF の供給が困難であることと、ダイオキシン類の濃度が明らかになった。

下水汚泥 RDF の実験では揮発分の多い燃料はペブルで捕獲され難いことと、塩基度の高いスラグは炉を損傷することが明らかとなった。こうした廃棄物に対しては、スラグの組成に合った耐火材を選定することや、スラグの冷却によるセルフコーティングが炉の保護方法として良い手段であると考えられる。

プラスチックのガス化では、ペブル床ガス化炉がプラスチックのガス化に向いていないことを述べた。また MEET-I ペブル床ガス化炉の燃料供給管で燃料が噴流床部やペブル床部から輻射を受けて熱分解を起こしている可能性について示唆した。

参考文献

- (1) 小川紀一郎, 先進型廃棄物発電技術開発の現状と課題, 第一回高効率廃棄物発電技術に関するセミナー「高効率小型ごみ発電の可能性を探る」予稿集, 2001, pp.75-91
- (2) 新井紀男 監修, 燃焼生成物の発生と抑制, (株)テクノシステム, (1997)
- (3) 金子司郎 谷口浩巳 泉雅之, カトレルごみ固形燃料化システム, 石川島播磨技報, 38-2, (1998), pp.74-77
- (4) 久保田宏 松田智, Creative Chemical Engineering Course 11 廃棄物工学—リサイクル社会を創るために—, 培風館, (1999)
- (5) 石原浩二 高木秀夫 矢野良子 訳, スワドル無機化学—基礎・産業・環境—, 東京化学同人, (1999)
- (6) 千々岩健治 編著, 鋳物の現場技術, 日刊工業新聞社, (2000)
- (7) 石田直美, 目指せ廃棄物処理の最適化 第一部 基軸はサーマルリサイクル, 日刊工業新聞, H11年1月26日付
- (8) 例えば 小沢昇 清水益人 尾前純也 山田純夫, 廃棄物からの熱分解ガスによるガスエンジン発電稼動状況, 第8回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 日本機械学会, 02-7, (2002.6), pp.101-104
- (9) 大森伸二 浅見直人, 廃棄物発電の高効率化に向けたガス化溶融発電技術開発の成果, 季報エネルギー総合工学, (財)エネルギー総合工学研究所, 24-2, (2001.7), pp.44-56
- (10) 徳田昌則, 廃棄物の溶融技術・システムの高度化の基礎と炉内解析例, 廃棄物の「溶融処理技術とスラグの有効利用」, (株)エヌ・ティー・エス, (1996), pp.3-27
- (11) 例えば 藤田賢二, 廃棄物の処理をめぐる行政の動向について, 廃棄物の溶融処理技術とスラグの有効利用, 株式会社エヌ・ティー・エス, (1996), pp.29-47
- (12) 古角雅行, ユーザーサイドからみた溶融技術に求められる機能とシステムのあり方について, 廃棄物の溶融処理技術とスラグの有効利用, 株式会社エヌ・ティー・エス, (1996), pp.75-93
- (13) 村田徳治, 廃棄物のガス化および熱分解灰溶融プロセスの現状と問題点, 廃棄物の熱分解・ガス化灰溶融システムの開発動向, 株式会社エヌ・ティー・エス, pp.149-165
- (14) 廃棄物学会研究委員会廃棄物焼却研究部会, ごみの中間処理におけるマスパーンの再評価 —マスパーン VS ガス化溶融—, 第12回廃棄物学会研究発表会小集会発表資料, (2001,1)
- (15) 例えば 福永勲, ごみ焼却飛灰における重金属等の溶出の規制と対策技術の開発動向, 飛灰対策 有害物質除去・無害化・再資源化技術, 株式会社エヌ・ティー・エス, (1998), pp.137-165
- (16) 吉葉正行 平成12年度廃棄物学会有功賞受賞者講演 高耐食材料のR&Dによる廃棄物エネルギー利用の高効率化推進 - 材料屋からみた廃棄物処理プラント環境 - 第12回廃棄物学会研究発表会講演論文集 II, (2001), pp.589-591

- (17) 例えば 湯川憲一, ボイラーチューブの腐食対策技術について, ごみ発電の技術開発動向と実用化, NTS, (1995), pp.151-173
- (18) 藤吉秀昭, 廃棄物循環型社会へのシステム転換と熱分解・ガス化溶融システムの有効性, 廃棄物の熱分解・ガス化溶融システムの開発動向, (株) エヌ・ティー・エス, (1998.4), pp.31-49
- (19) 例えば 三橋俊嗣 青木克彰 宇治茂一 千葉紘一, ゴミ発電・スーパーゴミ発電システム, 日本機械学会誌, 102-973, (1999.12), pp.746-745
- (20) 佐藤和明, 汚泥の処理・リサイクルの現状と技術開発の動向, 汚泥の処理と再資源化・再利用, エヌ・ティー・エス, (1996), pp.5
- (21) 浅田信二, 新しい汚泥焼却システムの開発とリサイクル, 汚泥の処理と再資源化・再利用, エヌ・ティー・エス, (1996) pp.111
- (22) L.A. Lay 著 井関孝善 訳, セラミックスの耐食性ハンドブック 第1版, 共立出版株式会社, (1985)
- (23) (社) プラスチック処理促進協会, 廃プラスチックのサーマルリサイクル技術基礎データ集, (1994)
- (24) 藤並晶作, 木質系バイオマス利用のためのガス化技術について, 第8回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 02-7, (2002), 241-244
- (25) <http://www.nedo.go.jp/nedo-info/caddet/infostore/jp-2002-029.html>, 2002年12月6日
- (26) 庄司恭敏 新道憲二郎 神吉達夫, 噴流床によりプラスチックの部分燃焼ガス化 ベンチスケール試験と反応過程のモデル化, 化学工学論文集, 27-1, (2001), pp.34-41
- (27) 熊田憲彦 庄司恭敏 尾崎弘憲 藤井健一, プラスチック系廃棄物のガス化発電技術に関する研究, 第8回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 日本機械学会, 02-7, (2002.6), pp.89-90
- (28) 庄司恭敏 中村正紀 尾崎弘憲, 廃棄物の噴流床ガス化過程の熱重量分析, 化学工学論文集, 27-1, (2001), pp.27-33

注

- 注1 日本熱測定学会編, 熱力学データベース MALT, 科学技術社, (1987)
- 注2 同じ RDF 燃焼実験で回収したスラグについて, 環境庁告示第46号に従い, 溶出試験を行った. 基準を超える溶出の生じる成分はない.
- 注3 廃棄物焼却灰中のダイオキシン類低減のために灰の分級をするケースもある⁽¹⁴⁾.
- 注4 灰の融点を下げるための添加剤. 通常カルシウムを使用することが多い. 添加量が不相当だと融点が高くなることもある.
- 注5 解決にはロータリーバルブの設置や搬送ガスの吹き込み方に工夫を要する.

第5章 炭化物ガス化に関する検討

5-1 はじめに

本研究では燃料の取り扱いやペブル床ガス化炉の特性を考慮して揮発分の少ないフィルターダストのガス化を試みた。第2節ではフィルターダストガス化に取り組む背景を説明し、第3節ではガス化実験の結果および考察を行う。第4節で炭化物ガス化で発生するガス化ガスによるガスエンジンの駆動について検討する。

5-2 炭化物ガス化の背景

本研究では、乾燥した比較的粉碎の容易な試料を扱ってきた。しかし、3章および4章で述べたように、ペブル床ガス化炉では燃料の供給が困難であった。粉碎したバイオマスや廃棄物は、綿状に繊維が広がりかさ密度が低くなる。繊維質の破砕物は供給管の内壁等に引っかかり易く、圧力を加えると団子状に固まる性質がある。粉碎物のこの性質が供給機内外で閉塞を引き起こし、粉碎物の供給が不能になることも度々あった。安全上の問題で燃料の搬送ガスには不活性ガスを用いるが、搬送ガスを大量投入するとガス化炉内が不活性ガスで希釈され温度が低下する上、ガス化ガスの発熱量も落ちる。そのため搬送ガスの流量を絞りつつ閉塞を防止しなければならない、破砕した燃料の供給は困難である。

また運転用の燃料の確保という意味では、バイオマスを燃料として選択した場合、バイオマス燃料は発生量が年間を通して安定していないことが問題である⁽¹⁾。そのため、年間を通してバイオマス燃料主体で設備を運転するためには備蓄が必要であり、燃料の腐敗防止に努めなければならない。

以上を考慮して燃料を熱分解炉などで利用した後に残渣として生じるチャーをペブル床ガス化炉で扱うことをペブル床ガス化炉の応用方法の一つとして検討する。第4章で示したように、ペブル床ガス化炉は燃料比の低い燃料のガス化では、ペブルの燃料を捕獲する効果が十分に得られない。通常、熱分解やガス化においては燃料比の低いものがガス化し易く、燃料比の高い燃料のガス化は困難が付きまとう。ペブル床ガス化炉が燃料比の高い燃料の代表とも言えるチャーのガス化に向いていれば、燃料の特性に合わせたガス化炉の選択が可能になる。燃料を炭化した場合、破砕のみならず微粉碎も容易であり、取り扱いが容易であることが利点である。また炭化したものは腐敗し難く、熱分解による炭化をRDF化の一手法とみなすことが可能である。

バイオマスの多くは固定炭素の含有量が少なく、炭化を行った場合の収率が原料に対して重量で2-3割程度になるため、炭化物のガス化だけではエネルギーの利用効率が低く、炭化物のガス化は炭化の設備に比べ小規模なものになる。熱分解で脱塩素したチャーを燃焼炉で利用するコンセプトが既に存在しており、そのシステムに関連した文献の中で廃棄物を400℃で熱分解するとチャーの収率が30~40%になるという報告がある⁽²⁾。炭化物の収率は熱分解の条件しだいで、多少の変動があると思われる。

チャーと熱分解ガスを別々に利用するシステムは前例があり、新規性のあるものではないが、小規模の施設を想定すると初期投資が増加し負担になる可能性がある。しかし、焼却炉でも廃棄物や燃料の脱水機・乾燥機および排水・排ガス処理などの付帯設備を持つため、本研究では立地や初期投資などの問題は検討を避ける。

5-3 炭化物ガス化実験

5-3-1 実験装置

実験装置は、第3章で紹介した改造後のMEET-Iペブル床ガス化炉を用いた。噴流床部高さは500mm、燃料供給には石炭供給で使ったテーブルフィーダと同じものを用いた。

5-3-2 試料

Table.5-1 Property of filter dust

Fuel Heating Value			Ash Composition		
HHV	MJ/kg	26.0	SiO ₂	wt%(dry)	40.71
Proximate Analysis			Al ₂ O ₃		16.64
Inherent Moisture	wt%(wet)	1.2	Fe ₂ O ₃		7.94
			CaO		13.64
			MgO		2.11
Volatile Matter	wt%(dry)	2.2	Ash Fusion Temperature (Reducing)		
Fixed Carbon		75.9	Softening	°C	1140
			Hemispherical		1170
Ash		21.9	Fluid		1190
Ultimate Analysis (d)			Mean Particle Diameter	µm	3.34
C	wt%(dry)	76.8	Bulk Specific Density		
H		0.3			
S		1.1			
N		0.4			
Cl		<0.1			
O		<0.1			
			0.14		

試料には、本研究と関わりの深いMEET-IIペブル床ガス化炉の石炭ガス化実験⁽³⁾で発生したフィルターダストを用いた。炭化物の試料の候補として木炭も挙がっていたが、燃料の運搬や加工が必要なくフィルターダストの処分も可能なため、石炭のフィルターダストを試料にした。表5-1に燃料の分析値を示す。

Table.5-2 Input flow rates of tests fueled by filter dust

Test name.	Filter Dust Combustion Test	Filter Dust Gasification Test1	Filter Dust Gasification Test2
Fuel	Filter Dust		
Fuel[kg/h]	1.89	4.47	4.89
Air[Nm ³ /h]	17.3	15.8	12.3
N ₂ [Nm ³ /h]	0.4	0.4	0.4
Steam[kg/h]	0	2.1	2.5
Air stoichiometry	1.33	0.51	0.37

Table.5-3 Syngas property, carbon conversion rate and cold gas efficiency

		Filter Dust Combustion Test	Filter Dust Gasification Test1	Filter Dust Gasification Test2
H ₂	vol%(dry)	0.0	5.4	8.1
O ₂		6.5	0.0	0.0
N ₂		78.5	66.7	62.1
CH ₄		0.0	0.0	0.0
CO		-	13.6	17.5
CO ₂		14.1	13.5	11.6
Ar		0.9	0.8	0.7
H ₂ O	vol%(wet)	0	8	10
Syngas Flow Rate*	Nm ³ /h	17.7	19.0	16.1
H.H.V(dry)	MJ/Nm ³ (kcal/Nm ³)	- (-)	2.401 (574)	3.240 (774)
L.H.V(dry)	MJ/Nm ³ (kcal/Nm ³)	- (-)	2.296 (548)	3.081 (736)
C.C.R.	%	93	81	67
C.G.E	%	-	39	41

*converted as both Ar and H₂O equals to 0%.

5-3-3 実験条件

運転条件を表 5-2 に示す。ここでは 3 種類の実験条件を取り上げる。それぞれを本論文ではフィルターダスト燃焼実験 (Filter Dust Combustion Test), フィルターダストガス化実験 1 (Filter Dust Gasification Test 1) フィルターダストガス化実験 2 (Filter Dust Gasification Test 2) と呼ぶことにする。フィルターダストガス化実験 2 はガス化ガスの発熱量を高くすることを目的にあえて非定常な温度分布で運転を行った^{注1}。

5-3-4 実験結果

ガス化ガスの組成および冷ガス効率・炭素転換率を表 5-3 に示す物質収支および熱収支の計算方法は第 3 章の鋸屑ガス化実験 1~3 と同じ方法で行った。燃料供給で 9% の誤差を確認した。炭素転換率および冷ガス効率は表 5-3 に示した値に対して 100~112% の値を取り得る。ここで取り上げた実験は全て一回の運転の中で条件を振ったものだが、運転終了後に MEET-I ペブル床ガス化炉の後流に配置したセラミックスフィルターから回収したダストの重量および分析値から炭素転換率を概算したところ、85% という値を得ている。運転条件としてはフィルターダストガス化実験 1 に要する運転時間が長かったため、表 5-3 の結果と比較しても妥当な値だと判断される。

図 5-1 に温度分布を示す。フィルターダストガス化実験 2 は非定常状態だったので、温度の変化度合いを図 5-1 に記入した。

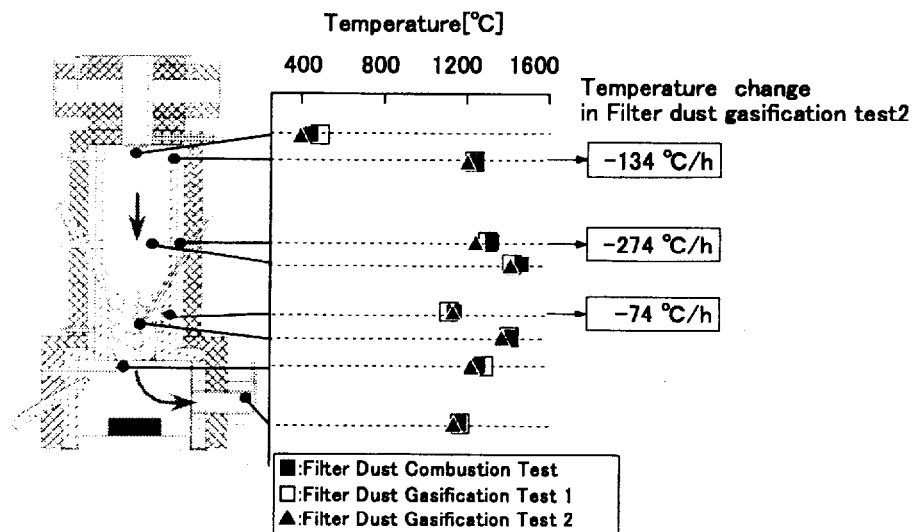


Fig.5-1 Temperature distributions of experiments fueled by filter dust

5-3-5 実験の考察

噴流床部の温度を比較すると、ガス化剤に添加する水蒸気の量が多い実験ほど、噴流床部に投入直後のガス化剤の温度が下がっている。空気過剰率の低い運転条件の方が噴流床部の温度上昇が早い傾向は、揮発分が少ないフィルターダストの実験でも同様で、フィルターダスト燃焼実験とフィルターダストガス化実験 1 を比較することにより確認できる。他の燃料に比べると運転条件の変化に対する炉温の変化が緩慢な印

象を受けた。過剰投入された燃料の熱分解がないため、温度が低下し難いと考えられる。

燃料として供給されたフィルターダストは揮発分をほとんど含まないが、噴流床部での温度上昇が早い。他のバイオマス燃料に比べて極端に燃料粒径が小さく、燃料として供給されたフィルターダストは内部表面積 (Internal Surface Area) を考慮しない幾何学的表面積と体積の比が約 $0.6\text{m}^2/\text{cm}^3$ と微粉炭より二桁大きい。アルカリ性の Ca や Na が触媒効果を持つという報告⁽⁴⁾もあるが、燃料として供給されたフィルターダストは元の石炭より灰分中の Ca 濃度が高く、灰の組成によって反応速度が向上している可能性がある。これらのことが影響して噴流床部の温度上昇が早いと考えられる。しかし、フィルターダスト燃焼実験の炭素転換率が 90%代前半と燃焼条件にしては低く、燃料としての反応性が乏しいことが窺える。燃料として供給されたフィルターダストの粒径が小さいためにペブルに慣性衝突する燃料の割合が減少してペブルによる捕獲効果は薄れていることは大いにありうる。

5-4 ガスエンジン駆動のための検討

5-4-1 平衡組成における検討

一般的にガス化ガスをガスエンジンで使用するにはガス化ガスの発熱量が $1000\text{kcal}/\text{Nm}^3$ 程度必要だと言われているが、表 5-3 に示すとおり、ガス化ガスの発熱量を増加させるための条件で運転を行ったフィルターダストガス化実験 2 でもガス化ガスの高位発熱量は $1000\text{kcal}/\text{Nm}^3$ に至っていない。

空気過剰率を炭素転換率で除した値を求めると、フィルターダストガス化実験 1 では 0.63、フィルターダストガス化実験 2 では 0.55 になる。気相反応のみを考慮する平衡計算を行うと、これらの値は計算可能な空気過剰率の下限に近く、反応時間を長く took ところでは劇的な改善は見られないと予想される。

現行の設備でガス化ガスの発熱量を向上する手立てとしては 2 種類の方法が考えられる。一つは炉温を上げること、もう一つは水蒸気の投入量を増やして空気過剰率を下げることである。

まず平衡計算上でフィルターダストガス化実験 2 を基にガス化温度を上げる方法でガス化ガスの発熱量向上の方法を検討してみた。フィルターダストガス化実験 2 と同じ燃料投入量・空気過剰率・水蒸気投入量・炭素転換率を仮定してガス化温度を 1400°C にして平衡計算をしたところ、ガス化ガスの低位発熱量は乾燥状態で 10% 向上したが、ガス化ガスの顕熱が 120% 増加した。ガス化炉の放熱損失をフィルターダストガス化実験 2 と同じ条件で仮定し、燃料供給量・空気過剰率・炭素転換率を合わせて水蒸気投入量だけを変えたところ、水蒸気投入量を $2.5\text{kg}/\text{h}$ から $2.0\text{kg}/\text{h}$ ・ $1.7\text{kg}/\text{h}$ へと減らしたところ、ガス化ガスの発熱量はそれぞれ 3%・5% と増加した。この計算結果から、ガス化温度を上げることは、平衡計算上ではガス化ガスの発熱量向上の効果

が無いに等しいと言える。ただし炉内温度が高い場合、反応が促進されるため、反応がより平衡に近づくことによって炭素転換率が向上し、ガス化ガスの発熱量が向上する可能性はある。具体的には、燃料とガス化剤の投入量を増加して炉の放熱を相対的に減少させることや、高温空気の温度をフィルターダストガス化実験2の399℃より高い温度にすること、水蒸気投入量を適度に減らすこと、などの条件変更が要求される。

次に、水蒸気投入量増加により空気過剰率を下げるのが可能になると仮定し、平衡計算上で水蒸気投入量によるガス化ガスの発熱量向上を検討した。ここではガス化温度を1000℃に保てるものと仮定して計算する。水蒸気投入量をフィルターダストガス化実験2では2.5kg/hだったが、3kg/h、10kg/h、へと増加させてみた。水蒸気投入量を3kg/hに増加したところ、計算上は空気過剰率を0.49まで下げることができた。このとき、ガス化ガスの発熱量は低位発熱量が3.71MJ/Nm³、高位発熱量が3.95MJ/Nm³まで向上することが可能である。また、水蒸気投入量を10kg/hまで増加させた場合は平衡計算上で空気過剰率を0.42まで下げることができた。この条件で算出されるガス化ガスの平衡組成では、乾燥状態のガス化ガスの高位発熱量が4.19MJ/Nm³ (1000kcal/Nm³)に達した。現実には炉温を保つことは困難で、炉温を上げるための改善が必要になる。

5-4-2 エンジン側での検討

西川らは式(5.1)で示す燃焼速度指数⁽⁵⁾ (Combustion Potential; C_p)が、ガスエンジンの安定運転範囲と高い相関性を持ち、低発熱量ガスに対してのガスエンジンの出力率を評価するのに燃焼速度指数が定量的にも有効であると述べている⁽⁶⁾。

$$C_p = K_2 \frac{[H_2 + 0.6(C_m H_n + CO) + 0.3CH_4]}{\sqrt{d}} \quad (5.1)$$

H₂, C_mH_n, CO, CH₄: 各成分の燃料ガス中の濃度 Vol%,

K₂: 燃焼ガス中の酸素濃度で規定される補正係数, 酸素0%で1

d: 燃料ガスの対空気比重

別宮らは燃焼速度指数13.39のガス燃料で火花点火エンジンを運転し、「低回転で適度な空燃比での運転であれば、ガソリン機関に比べて出力は低下するものの同程度の熱効率がえられる」と述べている⁽⁷⁾。フィルターダストガス化実験2で発生させたガス化ガスの乾燥状態における燃焼速度指数は15.8であり別宮らが運転したガス燃料より燃焼速度指数が高い。

以上を考慮すると、フィルターダストガス化実験2で発生したガス化ガスは、低回転で適度な空燃比での運転であればという条件付ではあるが、オットーサイクル機関での使用が可能であると判断できる。

5-5 まとめ

燃料供給と保管の容易さから炭化物のガス化を提案し、石炭 2t/day 規模の MEET-II ペブル床ガス化炉の微粉炭ガス化時に得られたフィルターダストを用いた実験から以下の知見を得た。

- 実験では炭素転換率は 67% で低位発熱量 3.08MJ のガス化ガスを発生させた。定常状態では炭素転換率 81% で高位発熱量 2.40MJ/Nm³ のガス化ガスを得た。
- 発熱量を上げる条件は、水蒸気の添加量を増やし（空気過剰率/炭素転換率）を 0.49 まで下げ、炉温を高く維持することが要求される。
- ガスエンジンに関する文献調査からフィルターダストガス化実験 2 で発生させたガス化ガスでも、限定された条件においてエンジンの駆動が可能である。

参考文献

- (1) 藤並晶作, 木質系バイオマス利用のためのガス化技術について, 第 8 回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 02-7, (2002), 241-244
- (2) 貝原祐二, 新型熱分解・ガス化溶融システムの開発事例, 廃棄物の熱分解・ガス化灰溶融システムの開発動向, エヌ・ティー・エス, (1998.4), pp.129-145
- (3) 吉高恵美 氣駕尚志 石井徹 吉川邦夫 杉山しのぶ 加藤義隆, MEETII ガス化溶融実証プラントの運転状況, 第 8 回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 02-7, (2002), pp.97-100
- (4) 宝田恭之 井田直幸 日置明夫 神原信志 山本美奈子 加藤邦夫, 石炭チャーの水蒸気ガス化および CO₂ ガス化における反応速度の推算, 燃料協会誌, 67-12, (1988), pp.1061-1069
- (5) 日本熱エネルギー技術協会編, 熱管理便覧, 改訂 3 版, 丸善株式会社, (1971), pp.186
- (6) 西川隆史 宇津山俊二 高橋喜四郎 中野圭一, 低発熱量ガスエンジンへの応用, 日本鋼管技報, No.107, (1985), pp.79-86
- (7) 別宮光洋 吉川邦夫 遠藤浩之, 廃棄物ガス化発電用低カロリーガス駆動エンジンの燃焼特性に関する研究, 第 12 回廃棄物学会研究発表会講演論文集 II, (2001.10), pp.607-609

注

- 注 1 MEET-I ペブル床ガス化炉のペブル床部は噴流床部に比べて反応室の幅が狭くなっており耐火材が厚く、また周辺の断熱材が噴流床部より厚い。耐火材とペブルの熱容量が大きく、断熱材も厚いため、耐火材の温度が 30°C/h のペースで下がる運転条件では反応室より断熱材の温度が高くなっており、反応系を外部から加熱している状態になる。逆に昇温状態では外部から冷却しているのと同じような状態になる。

第6章 溶融灰に関する検討

6-1 はじめに

電中研レビューNo.44⁽¹⁾注¹でも扱われているように、燃料中の灰分を溶融させて溶融灰にする灰溶融ガス化炉にとって灰の付着や閉塞は大きな技術課題である。ペブル床ガス化炉を運転する際に、溶融灰^{注2}の性質を理解することは、安全運転を行う上で重要である。本研究に関する実験においても、スラグが原因となるトラブルは多かった。本節ではスラグの挙動に関する事象について述べる。第1項では、実験で観察されたことや実験後に採取した試料の分析値などを基に炉内におけるスラグの挙動と問題点について述べる。第2項では、炉の大型化とスラグの連続抽出のための装備が炉に与える影響について述べる。

6-2 溶融灰の組成変化

6-2-1 金属元素の組成変化

MEET-I ペブル床ガス化炉では、炉底部に置いたスラグ受け皿でスラグを収集し、後日冷却したところで回収する。第2章で扱った粗砕炭を燃焼した実験によって採取した溶融灰の成分と、燃料のスカイライン炭の灰分を比較すると、組成に違いが見られる。灰化温度は815°Cである。組成を酸化物換算で表6-1に示す。

実験後に回収したスラグにはアルミナ (Al_2O_3) の濃度が増加している。その理由は二つ考えられる。一つはスラグによるペブルや耐火材の腐食である。ペブルや炉内の耐火材に多く含まれているアルミナが溶け出し、スラグ中のアルミナの割合は増加する。またシリカも CaO や Fe_2O_3 に比べてスラグ中の残存率が高いが、MEET-I ペブル床ガス化炉の耐火材に SiO_2 が含まれているため、その影響は無視できない。組成分析の試料収集用にはペブルと同じ材質の坩堝を用いた。

元の灰分とスラグの組成が変化するもう一つの理由として、スラグの揮発が挙げられる。高温場においてアルミナをトレーサーとして灰に含まれる成分の残存率を比較すると、 $\text{SiO}_2 \cdot \text{CaO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot \text{MgO} \cdot \text{TiO}_2$ はその残存率が低下する⁽²⁾。しかし純金属の場合は沸点⁽³⁾や蒸気圧⁽⁴⁾を表示している文献もあるが、比較的蒸気圧の高い金属元素を選び調べていくと、金属状態になることが難しい金属や溶融灰中に濃度が低いものばかりである。本研究で使用した実験装置では、ペブルや炉壁に付着したスラグやペブルや炉壁の腐食を定量できないため、灰分の物質収支を把握しているとは言い難く、溶融飛灰に関する検討は行うことができなかった。燃焼実験では溶融灰を回収し溶融灰の捕集効率を計算することができたが、第2章で述べたようにガス化実験を実施した後に実験炉の底部を開放すると炉底部の内壁が変色しスラグ状のもので覆われており、溶融灰が受け皿では全量回収できていない。

義家らがMEET-I ペブル床ガス化炉のセラミックフィルターで捕獲したフィルターダストとガス化炉出口の1000°C超の雰囲気中で捕獲したダストの成分を比較したと

ころ、Ca をトレーサーとした場合に Fe の濃縮率 (Enrichment Factor) がダストの捕獲した位置によって異なることから⁽⁵⁾、ガス化炉出口からセラミックスフィルターの間に配置された水冷配管で凝縮・付着するような、熔融飛灰が発生していることが伺える。よって本研究では熔融飛灰の発生が懸念され、それを定量的に議論することを課題として挙げる。

**Table.6-1 Comparison between ash and slag
(in combustion test by MEET-I pebble bed gasifier)**

	Ash in coal	Slag (Combustion test)
SiO ₂	63.48	62.4
Al ₂ O ₃	12.36	21.3
Fe ₂ O ₃	5.42	5.05
CaO	8.13	6.27
MgO	1.00	1.21
Na ₂ O	1.60	1.35
K ₂ O	1.61	1.35

Unit : wt%

6-2-2 ガス化雰囲気による変化

ペブル床ガス化炉では熔融灰によってチャーがペブルに捕獲されることが期待されている。そのためペブル表面に付着している熔融灰は炭素を含んでいる。ガス化実験直後に炉内へ窒素を供給してスラグを採取した石炭を試料に扱う実験では光沢のあるスラグを得ることがあった。その光沢は鉛筆の芯に似たものである。また実験後に炉底部のみ常温の空気を供給して冷却した石炭ガス化実験では、図 6-1 に示すように泡だったスラグを得ている。この気泡はスラグ中で酸素原子と炭素原子が化合して二酸化炭素になったものである可能性がある。ガス化実験後に酸化雰囲気 1300℃以上で 5 時間置いた場合は図 6-2 に示すガラス状のスラグを得ることが多かった。

熔融灰の粘度を測定したデータ^{注3}を参照すると、試料の加熱時間が長くなり試料重量が減少しているものほど粘度が増加していた。本研究で採集した石炭ガス化実験のスラグには、灰化のための酸化雰囲気 815℃の加熱によって、重量が 7%増量したものがあつた。溶けたスラグ中に石炭粒子を落とすとスラグ中に埋没しても炭素は燃焼・ガス化が可能だと報告されている⁽⁶⁾。しかし、温度・熔融灰の組成・熔融灰の厚さ、気相の雰囲気などによってスラグ中の炭素濃度が影響を受けることが予想される。先程の加熱時間が長くなるほど粘度が増加する傾向が見られた件から察するとスラグ中の炭素濃度が熔融灰の粘度に影響を与える可能性が高い。

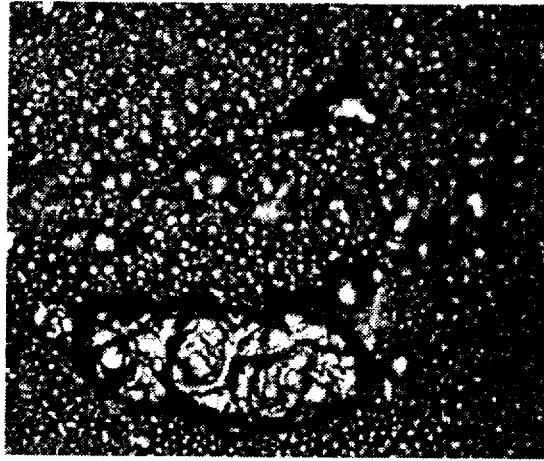


Fig.6-1 Slag with bubbling (Cooled by air just after coal gasification test)

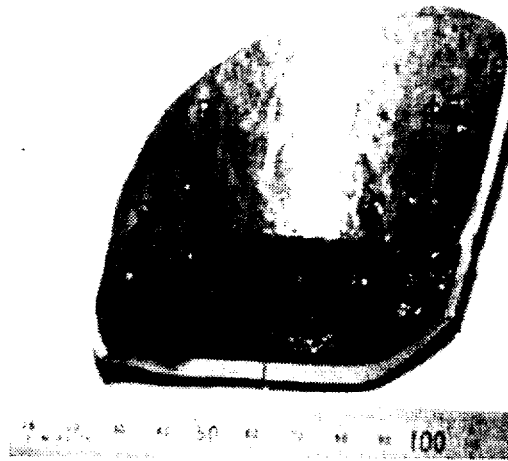


Fig.6-2 Slag (Coal combustion test)

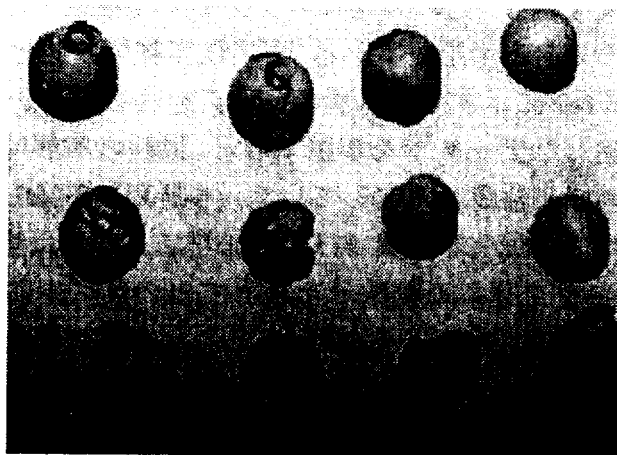


Fig.6-3 Pebbles injured in coal combustion test under condition with the temperature over 1600°C

6-2-3 運転温度の制限

ペブル床部の温度が 1600℃を超えた条件のスカイライン炭燃焼実験では、図 6-3 のようにペブルが損傷した。温度が上昇することによってスラグの粘度が下がり、ペブルが腐食されたと考えられる。第 4 章の下水汚泥 RDF における腐食もそうであるが、高温場では溶融灰によってペブルや耐火物が腐食されるという問題が発生する。激しく腐食されていないとしても、実験後に溶融灰を回収して融点の測定を依頼すると、溶流点が高くなっていることがしばしばあった。温度が低いと溶融灰の粘度が高く炉が閉塞するが、温度が高いとペブルや耐火物の腐食によって溶融灰の組成が変化し融点や粘度が上がる問題がある。

そのため現行のペブル床ガス化炉では運転条件が限られた範囲でしか行うことができないが、その範囲は明らかではない。

6-3 スラグの連続抽出

6-3-1 スラグバスとグリッドの試験

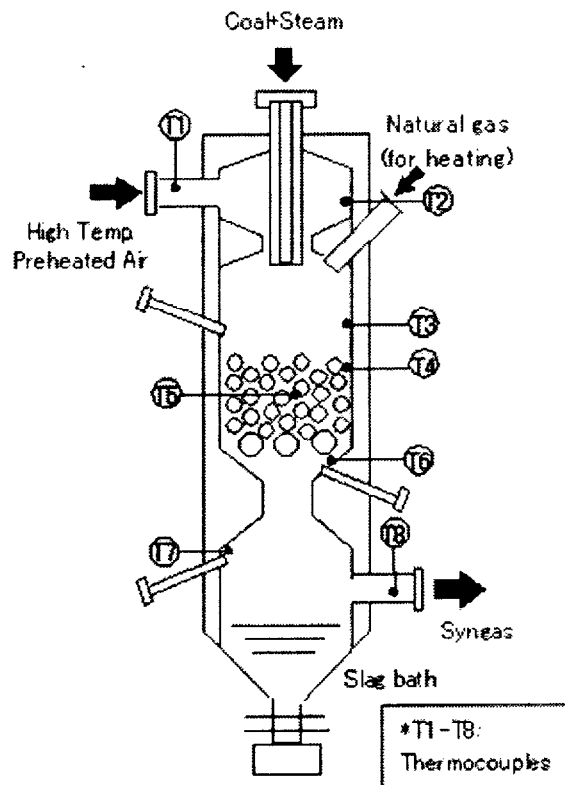


Fig.6-4 Schematic view of the MEET-II pebble bed slagging gasifier⁽⁷⁾

ペブル床ガス化炉を実用化するためには、処理量に合わせたガス化炉の大型化が必要である。また連続運転をするために、炉の運転を停止せずにスラグを炉外に排出する設備の必要性が生じた。

炉の大型化にはペブル床部の拡大が必要であるが、ペブル床の支持を図 2-1 や図 3-1 の MEET-I ペブル床ガス化炉のように炉内壁を絞ってスリットを形成する方法では大型化が困難である。そこで円形断面の水冷金属管にセラミックスを被覆したものをグリッド (Grid) にして、そのグリッドを格子状に並べた上にペブルを積み上げることになった。図 6-4 は MEET-II ペブル床ガス化炉という、石炭 2t/day 規模のペブル床ガス化炉を模式的に表した図である。図中の T5 が示す部分がペブル床であり、図中 T6 の示す部分の上にある少し大きめの三つの丸がグリッドである。グリッドはスラグに接触するところに配置されるため、表面温度がスラグの融点以上であることとスラグによる腐食に対する高い耐食性が要求され、またペブル床を支持する強度が必要である。

スラグの連続排出のために考えられたのはスラグバスである。炉の底部に水を張り、そこにスラグを滴下させ冷却固化する。冷却固化されて水砕スラグになったスラグは、何等かの機構によって炉外へ排出される。

グリッドやスラグバスは水を用いるため、温度が千数百度になる炉内の温度分布に影響があると予想された。そこで専用の炉を用いてグリッドとスラグバスの影響を調べるための検証実験を行った。

6-3-2 検証実験

スラグバスとグリッドの検証実験のために MEET-I ペブル床ガス化炉の約 5 倍の処理容量を持つペブル床炉で石炭模擬燃料の燃焼実験を行った。石炭模擬燃料には軽油と飛灰を混合したスラリーを用いており、主な目的は、温度分布とエネルギー収支を求めることである。

測定項目には、熱電対による炉内温度分布の測定、画像処理による放射温度計でグリッド周辺の温度測定と観察、グリッドの下方約 30mm の水平面をグリッドに対して直角に熱電対をトラバースした温度測定、炉の底部にスラグバスを設けているときは単位時間の水蒸気蒸発量の測定などが行われた。

炉底部の形状を変更して実験が実施された。各実験で使用した炉の仕様は以下の通りである。

- グリッドとスラグバスを単純に組み合わせたもの
- 炉の底部に耐火レンガを敷き詰めスラグバスを廃止したもの
- スラグバスを設けてグリッドの下に図 6-4 の MEET-II ペブル床ガス化炉が持つような輻射よけの絞りを設けたもの

これらの実験によって以下の知見を得た。

- グリッドを用いたペブル床の支持は可能である

- 水冷された部分はスラグによる腐食の影響が抑制されている
- グリッド表面の温度は、 燃焼ガスの当たり具合に左右される
- グリッドの温度は炉底部の影響を受けている
- スラグがスラグバスに向かって離脱する部分が最もスラグが固化し易く、 閉塞を起こし易い

それぞれの項目について詳細を述べていく。

グリッドによるペブル床部の支持は十分に温度の高い条件でも問題はなかった。 三本のグリッドで約 100kg のペブル床を支持したが、 問題になる大きなたわみは観察されなかった。

石炭模擬燃料には極端に融点を下げる Na 系フラックスを混ぜていたため、 炉内が激しく熔融灰に腐食された。 しかし水で冷却されていた箇所では減肉や表面のエクボなど腐食による変化は無かった。

燃焼ガスの当たり具合によってペブル床を支持するグリッドの表面温度が左右されることは、 温度分布を示す画像から明らかであった。 実験後に観察されたスラグの形状からも温度ムラがあったことが分かった。 閉塞はしていないが、 スラグが図 6-5 に示すような形で垂れ下がり、 一部では両端のグリッドから伸びてきたスラグがペブル床下方にブリッジを形成していた。 スラグの形状は下から見ると鍾乳石のようだが、 ガスが流れていた側は滑らかである。 図 6-5 のような形状のスラグが形成されたのは以下のような過程をたどったと思われる。

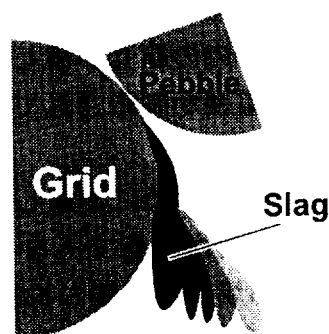


Fig.6-5 Schematic view of slag on grid

一度スラグが滴（しずく）状になるとその滴状のスラグの壁側には燃焼ガスが直接当たらない。 底部の温度が低いので、 高温のスラグから炉底部の低温部に向かって放射によって熱が奪われる。 スラグが冷めたあと、 そのスラグの上を新たなスラグが滴下していき、 再び同じようにスラグは固化する。 それが繰り返されて図 6-5 のような形状になる。

スラグバスの有無や輻射遮蔽として取り付けられた絞りの有無によって、 ペブル床を支持するグリッドの下面温度は大きく変動した。 輻射による影響以外にも蒸発する

水蒸気の影響が懸念された。スラグバスがある場合はペブル床部を抜けた高温ガスが炉底部で水面を叩き水蒸気を発生させていることが分かっていたため、その蒸気を含んだガスが炉底部を循環することによって炉底部全体の温度が低下する影響が懸念された。MEET-II ペブル床ガス化炉（石炭 2t/day）ではスラグバスの水面を下げることにより、スラグ分離部とガス化炉出口温度を向上させた⁽⁷⁾。

スラグがスラグバスに向かって離脱する部分が最もスラグが固化しやすく閉塞を起こしやすいことは、ペブル床部からスラグバスへの放射損失を抑えるために放射遮蔽を設けて実施した実験で明らかになった。グリッド部における温度低下の問題はほぼ解決した。しかし放射遮蔽として設置した絞り部分で図 6-5 と同様な形状でスラグが成長する傾向が確認された。つまり放射遮蔽を目的に設けられた絞りが、スラグがスラグバスに向かって離脱する部分となり、最もスラグが固化しやすく閉塞を起こしやすい箇所になったと言える。

付録 8 で溶融灰の融点や粘度の予測に用いた方法を紹介する。

6-4 まとめ

スラグの組成が燃料として供給されたときの灰分の組成から変化している。その理由として溶融灰による耐火材やペブルの腐食があり、また溶融飛灰の発生も予想される。溶融飛灰の発生に関しては十分な検討ができなかったため、定量的な議論を行うことが今後の課題として挙げられる。

スラグが還元雰囲気さらされ、固定炭素も含んでいることから、溶融灰の性状が酸化雰囲気と異なることが予想される。

温度が高くなると溶融灰による炉内の腐食が激しくなり、温度が低いと溶融灰が容易に閉塞することから運転可能な温度が制限されている。しかしその範囲は明らかではない。

ペブル床ガス化炉大型化を検討するために実施した実験で以下の知見を得た。

- グリッドを用いたペブル床の支持は可能である
- 水冷された部分はスラグによる腐食の影響が抑制されている
- グリッドの表面には温度分布があり、燃焼ガスの当たり具合に表面温度は左右される
- グリッドの表面温度は高温ガスの当たり具合に左右され、炉底部の影響も受ける。
- スラグはスラグバスに向かって炉壁等から離脱する部分で最も閉塞し易い

参考文献

- (1) 佐藤幹夫 犬丸淳 編集担当, 石炭ガス化複合発電の実現に向けて—実証機開発の支援と将来への研究展開—, 電中研レビューNo.44, (財)電力中央研究所, (2001.11)

- (2) 釘崎裕之 大崎一乃 成瀬一郎 大竹一友, 高温・高酸素濃度場における微粉炭の反応特性, 材料とプロセス
- (3) 大中逸雄 荒木孝雄, 溶融加工学, (株) コロナ社, 初版第5刷, (1994)
- (4) 徳田昌則, 廃棄物の溶融技術・システムの高度化の基礎と炉内解析例, 廃棄物の「溶融処理技術とスラグの有効利用, (株) エヌ・ティー・エス, (1996), pp.3-27
- (5) Ryo YOSHIIE, Kousuke NAKAMURA, Hiroshi MORITOMI ; Investigations of heavy metal emissions in ash melting and their mechanisms, Proceedings of 5th International symposium of high Temperature air combustion and gasification, (2002.10), G3
- (6) Reiji NODA, Ichiro NARUSE, Kazutomo OHTAKE ; Fundamentals on Combustion and Gasification Behavior of Coal Particle Trapped on Molten Slag Layer, Journal of Chemical Engineering of Japan, 29-2, (1996), pp.235-241
- (7) 吉高恵美 氣駕尚志 石井徹 吉川邦夫 杉山しのぶ 加藤義隆, MEETH ガス化溶融実証プラントの運転状況, 第8回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 02-7, (2002), pp.97-100

注

- 注1 インターネットで閲覧可能
- 注2 本論文では灰分が融けた状態の物を溶融灰と呼び, 溶融灰とその固化物をスラグと呼ぶ.
- 注3 電源開発からデータを提供して頂いた. 溶融灰中で炭素のロータを回転させるときのトルクから粘度を測定する. 鉄分は炭素で還元が可能である.

第7章 結論

本研究ではペブル床ガス化炉という新たに考案されたガス化炉について、石炭200kg/day規模の実験装置 MEET-I ペブル床ガス化炉を用いて、その特性を明らかにした。

第2章では石炭ガス化実験から以下のことが明らかとなった。

- MEET-I ペブル床ガス化炉の炭素転換率と冷ガス効率は小規模のわりに高い値を示す。粗砕炭ガス化実験と微粉炭ガス化実験の冷ガス効率がそれぞれ65%と78%であった。炭素転換率は既存の空気吹き石炭ガス化と比較して高い値を示した。
- 石炭を微粉炭から粗砕炭に変更することによって、主な反応域が噴流床部からペブル床部へと移動した
- 石炭ガス化実験における熱収支では、高温空気の採用によって炉内への熱負荷が約1割増加し、ガス化ガスの顕熱が炉の熱出力の2~3割を占める
- 負荷変動に対応するには実験炉の熱入力に対して放熱損失を相対的に低減することが課題として挙げられる。
- 保炎機能を持たないガス化炉に高温空気を供給した実験において、噴流床部の入り口直下で石炭が燃焼している
- ペブル床には熱的緩衝作用と輻射遮蔽作用がある
- MEET-I ペブル床ガス化炉はペブル床部と炉底部で燃料の滞留時間を稼いでいるため、高い炭素転換率の達成や燃料粒径の大きな粗砕炭のガス化が可能である。
- ガス化剤への過剰な水蒸気の添加はガス化炉の運転には悪影響を及ぼすため、水蒸気添加量には適量がある

第3章では製材所で発生した鋸屑をガス化する実験で以下のことを示した。

- 製材所で発生した鋸屑を無加工の状態ですタールの発生無しにガス化し、炭素転換率86%、冷ガス効率53%、ガス化ガスの高位発熱量が $3.66\text{MJ}/\text{Nm}^3$ が達成された。
- 鋸屑の一部がペブル床部を吹き抜けており、燃料が高揮発分・低灰分であることが原因だと予想される。灰分を燃料に添加することを対策として提案する。
- 空気過剰率を変えても顕著な炭素転換率の向上はなかった。
- 噴流床部の延長が炭素転換率と冷ガス効率の向上に効果的であることを確認した。
- 燃料の吹き抜けによって炭素転換率が低下する場合、気相反応における空気過剰率が上がり、冷ガス効率も下がる。
- 噴流床部では発生炉ガス反応や水性ガス化反応などの吸熱反応が起きるまで反応が進んでいないことが予想され、また観察から噴流床部では燃料が全く拡散していないことが明らかになった。
- 炉の頭部は噴流床部の燃料の拡散だけでなく、熱損失の面からも改良が望まれる。

第4章では鋸屑以外の種々の廃棄物のガス化を試み、以下のことを示した。

- 粉碎した RDF は供給が困難である。ガス化は燃料供給が課題である。
- 塩基度の高いスラグは炉を損傷させる。
- ペブル床部で捕獲されない燃料はガス化実験の実施が困難であり、ペブル床ガス化炉はプラスチックのガス化には向いていない
- MEET-I ペブル床ガス化炉の燃料供給管で燃料が噴流床部やペブル床部から輻射を受けて熱分解を起こしている可能性がある

第5章では炭化物のガス化をペブル床ガス化炉の応用方法の一つとして提案し、石炭 2t/day 規模の MEET-II ペブル床ガス化炉の微粉炭ガス化時に得られたフィルターダストを用いた実験から以下の知見を得た。

- 実験で炭素転換率は 67% で低位発熱量 $3.08\text{MJ}/\text{Nm}^3$ のガス化ガスを発生させた。
- さらに発熱量を上げるためには、水蒸気の添加量を増やし（空気過剰率/炭素転換率）を 0.49 まで下げ、炉温を高く維持することが要求される
- ガスエンジンに関する文献調査から、MEET-I ペブル床ガス化炉の炭化物ガス化実験で発生させたガス化ガスでも限定された条件においてエンジンの駆動が可能である

第6章では実験から以下の知見を得た。

- 溶融灰による耐火材やペブルの腐食や、溶融飛灰の発生が予想される。溶融飛灰の発生に関しては、定量的な議論を行うことが今後の課題として挙げられる。
- スラグが還元雰囲気さらされ、固定炭素も含んでいることから、溶融灰の性状が酸化雰囲気と異なることが予想される。
- 運転可能な温度は、高温側は腐食に、低温側は灰の融点に、制限されている。

また、ペブル床ガス化炉の大型化を検討するための要素試験で以下の知見を得た。

- 水冷グリッドを用いたペブル床の支持は可能である
- 水冷された部分はスラグによる腐食の影響が抑制されている
- グリッドの表面温度は高温ガスの当り具合に左右され、炉底部の影響も受ける。
- スラグはスラグバスに向かって炉壁等から離脱する部分で最も閉塞し易い

以上をまとめると、ペブル床ガス化炉は高温空気をガス化剤に採用しており、以下の特徴を有する。

- 小規模ゆえに炉の放熱が大きい、その影響を高温空気の顕熱で低減している
- 燃料供給機構に保炎機能を持たないが、固体燃料は噴流床部に投入された直後から反応を開始する。

またペブル床ガス化炉はペブル充填層を炉内に持ち、以下の特徴を有する。

- 微粉炭ではない粒径 1mm 程度の石炭をガス化することが可能である
- 高揮発分・低灰分な固体燃料のガス化には不向きだが、揮発分がほとんど無く灰分の多い炭化物ガス化も可能である
- ペブル床部によって燃料の滞留時間を稼ぐことができる
- ペブル床部下方の空間も固体燃料の滞留時間を稼ぐ効果に寄与している
- ペブル床部が輻射遮蔽や熱的緩衝作用を持つ

さらにペブル床ガス化炉は灰溶融を行い、以下の特徴を有する。

- 炉出口のガス化ガス温度が高く、ガス化ガスの顕熱が大きい
- 低灰分な燃料の場合、燃料の吹き抜け防止対策として灰分の添加も考えられる。
- リンを含む燃料のガス化では、スラグをカルシウム過多の塩基性に調整し、炉内の耐火物を塩基性のスラグに対応したものにす
- スラグに対する高い耐食性が求められる部分では、冷却によるスラグのセルフコーティングも検討の余地がある
- 運転可能な温度条件は、下限は灰の融点、上限はペブルの耐食性で決まるが、その範囲は燃料の種類に応じて異なる

今後の課題としては以下のものがあげられる。

- 安定な燃料供給の実現
- 炉頭部が原因となる熱損失の低減
- 粗粒な燃料を対象にした燃焼初期の反応特性の評価
- 燃料粒径の最適化
- 燃料の種類・形状・投入量等を決定し、攪拌機構の耐熱性と炉壁への溶融灰の付着を考慮した燃料供給方法の最適化
- 水蒸気投入量など運転条件の最適化
- 負荷変動時に炉の放熱がガス化ガス組成へ与える影響の低減
- ペブル充填層の熱的緩衝作用と輻射遮蔽作用の評価および対策
- 溶融飛灰および灰分の定量的な議論
- ガス化雰囲気における溶融灰の性状の把握
- 溶融灰中に含まれる炭素の反応性の把握
- 円滑な溶融灰の抜き出し
- 灰溶融温度による運転可能な温度条件の把握と運転可能な条件の拡大
- ガス化実験によって生じる生成物の適正な処理
- 低発熱量ガスを利用する原動機の開発

付録 1 高温空気発生装置

MEET-1 ペブル床ガス化炉の実験で用いた高温空気発生装置について説明する。

A 1 - 1 原理

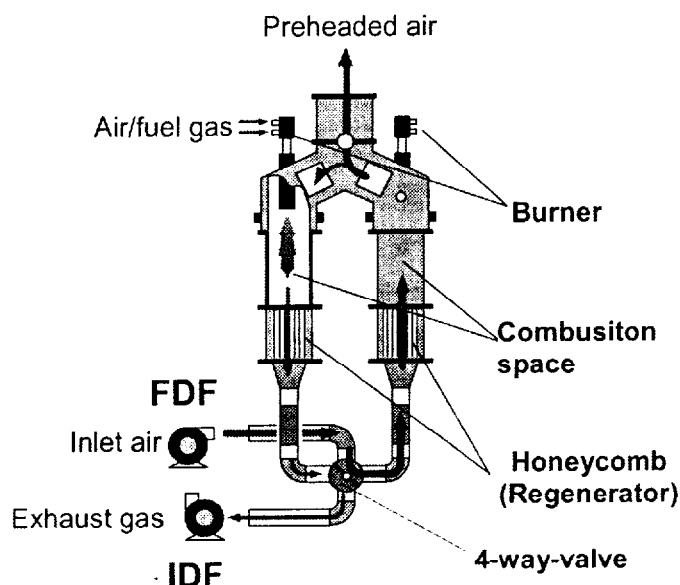


Fig.A1-1 Schematic view of high temperature air preheater

高温空気発生装置は、図 A1-1 に示すように、2 対のバーナと蓄熱体で構成される蓄熱再生式燃焼システムである。

一方のバーナが燃焼モードである時、 1200°C の燃焼ガスが、そのバーナの下方にあるハニカム状蓄熱体^{注1}を通過することで、ハニカム状蓄熱体を加熱する。ハニカム状蓄熱体出口では、燃焼ガスは 100°C 程度まで冷やされる。数十秒後、4 方弁が切り換り燃焼室が入れ代わると、常温の空気が加熱されたハニカム状蓄熱体を燃焼ガスとは逆方向から通過する。この空気はハニカム状蓄熱体と熱交換を行い 1000°C 程度まで温度が上昇する。加熱された空気は休止している燃焼室を通過した後、上部で2 方向に別れる。一方は高温予熱空気として取り出され、もう一方は反対側の燃焼室での燃焼用空気として利用される。

15~30 秒で燃焼室を交互に切り替えながらこの運転を行うことにより、それぞれのハニカム状蓄熱体が蓄熱と放熱を繰り返し、連続的に高温空気を取り出すことが可能となる。

A 1 - 2 ペブル床ガス化炉との相性

MEET-I で用いていた高温空気発生装置は燃焼室が二つしかなかったため、燃焼室切り替えの際にペブル床ガス化炉への高温空気の供給が止まってしまう。高温空気の供給が途切れてもペブル床ガス化炉の後流では IDF がガス化ガスを引き続けるため、炉内および高温空気発生装置出口の圧力が低下してしまう。それによって高温空気発

生装置の内部で圧力バランスが狂い、高温空気流量の変動を生じる。

ペブル床ガス化炉で高温空気発生装置を使用する場合は3通りの改善方法が考えられる。一つ目は許容される圧力変動を設定した上で IDF と高温空気発生装置の間に適切なバッファとなる空間を設けることである。二つ目は高温空気発生装置の燃焼室の数を増やし、常に FDF から IDF までの通路を確保することである。三つ目は高温空気発生装置の出口付近に外部からのバイパスを設け、高温空気の供給が停止したときに圧力に応じて常温の空気が供給されるようにすることである。

三つ目の方法は高温空気発生装置が突如停止した場合でも、高温空気発生装置をバイパスした配管からガス化炉へ空気を供給し続けることが可能になるという利点がある。高温空気発生装置以外にガス化剤の供給する手段が無い場合、高温空気発生装置が停止するとガス化炉はガス化剤の供給が止まり、即時停止に追い込まれる。しかし空気の供給があればガス化炉は単独で運転を続行し、安全にガス化炉を停止することができる。高温空気発生装置をバイパスしてガス化炉に常温空気を供給する配管を設置する場合、バイパスの逆流防止対応や、高温空気と常温空気の温度差によって生じる供給口付近のサーマルショック対策が要求される。

石炭 2t/day 規模の MEET-II 実証プラントで使用された高温空気発生装置は、燃焼室とハニカムを 4 組持ち、ハニカム側に切り替えバルブを各燃焼室に一組ずつ設けていた。

本研究で使用していた高温空気発生装置は、MEET プロジェクト^{注2}の別の研究のために低カロリーガスを燃焼させるためにバーナを変更した。その変更によって発熱量が 10 倍ある都市ガス 13A で運転すると火炎長が短く、火炎検知器が火炎を検知しなくなったため、ペブル床ガス化炉での使用に支障があった。

図 A1-1 に示す IDF と FDF をインバータで制御すると高温空気流量は自由に変更することが可能になり、本研究では 7~40Nm³/h で高温空気流量を振った実績がある。

MEET-I ペブル床ガス化炉の実験の際にペブル床ガス化炉内で閉塞が発生した時に、高温空気発生装置が圧力放散弁のような役割を果たしたこともある。

注

注1 六角形ではないがハニカムと称している。

注2 本文第1章参照

付録2 ガス化剤の比較

本文第1章で紹介した MEET システムでは、ガス化剤を高温空気発生装置で加熱する事が大きな特徴である。

IGCC は、既に欧米で 300MW 級の実証機あるいは商用機の開発が進められているが、欧米の IGCC はいずれも酸素吹きであり、酸素製造に多くの動力を消費するため、送電端効率は必ずしも高くない。日本で開発を進めている IGCC は空気吹きであるため、高度なガス化技術が必要であるが、開発できれば世界で最も高効率な IGCC となり得る⁽¹⁾。酸素吹き IGCC は効率以外の面で利点があるが、この付録ではガス化剤の選択によって生じるシステム効率の差について議論する。

A 2-1 計算条件

A2-1-1 想定するシステムの規模

この付録では小規模な設備を想定してシステム計算を行う。日本の新エネルギー財団がメコン川の支流モン川に建設したナンモン水力発電所⁽²⁾の発電容量が 70kw であるが、このサイズを想定すると、MEET-I ペブル床ガス化炉に近いサイズである。

A2-1-2 比較するガス化剤

ガス化剤は高温空気、予熱空気、酸素富化空気、常温空気の4種類を比較する。それぞれの条件を表 A2-1 に示す。

Table.A2-1 Assumption of each gasifying agent

	温度 °C	発生方法
高温空気	1000	高温空気発生装置にガス化ガスを供給して空気を加熱する。高温空気発生装置の効率は 86%。
予熱空気	600	ガスエンジンの排熱から熱交換器で空気を予熱する。ガスエンジンの排熱温度を上げるためにエンジンの熱効率を 25% に下げる。
高温空気	190	排熱を利用
酸素富化空気	190	酸素濃度 32%。消費電力 0.50 kWh/Nm ³ -O ₂

高温空気発生装置の効率は製造元の日本ファーンズ工業株式会社から提供されたデータから 86% を用いる。

予熱空気は、工場におけるエネルギーの使用の合理化に関する事業者の判断の基準（平成 11 年 1 月 25 日 通商産業省告示第 39 号）の II 1 (2) 20]ⁱⁱ に関連した別表 3 (B) の (2) 工業炉に関する目標廃熱回収率 (II 1 (2) 20] 関係) に記載されている予熱空気温度の基準値で最も高温な 595°C を参考にした。それに類する技術によって 600°C の予

熱空気を発生できるものと仮定した。

常温空気はガスエンジンの排ガスで 190℃まで予熱するものとする。

酸素富化空気は市販されている酸素富化膜のユニットで酸素濃度 32%の酸素富化空気を製造するものとする。仕様は株式会社キナンの燃焼効率強化装置 KOISANSO を参考にした⁽³⁾。ファン動力は比較対照の他のガス化剤を想定したシステムにおける FDF に相当するものとみなし、酸素富化に要する電力は真空ポンプのみ考慮する。この効率は全低圧式空気分離装置を用いる深冷分離法で酸素を製造する場合の消費電力 0.5kWh/Nm³-O₂⁽⁴⁾ とほぼ同じ値である。

空気吹きのみガス化炉でもパージ用に不活性ガスを必要とするため、空気分離機を備えたと考えられるが、計算上は無視する。

A2-1-3 原動機

IGCC では発電のためにガスタービンだけでなく蒸気タービンを駆動している。しかし小規模な施設において蒸気タービンやガスタービンを原動機として採用することは、原動機の製作コストや効率を考慮すると、不適當である。よってこの付録 2 では原動機にはオットーサイクルのガスエンジンをを用いる。熱効率は発電まで含めて 27%を仮定する。ガスエンジンの排熱を利用する場合は効率が 25%に下がるものとする。

A2-1-4 その他の条件

空気予熱以外の廃熱回収は行わないものとする。酸素製造以外の所内動力は計算上無視する。

ガス化反応は平衡になると仮定し、気相反応のみを考慮する。炭素転換率は 100%、灰溶融のエネルギーは無視しうるものとみなす。計算は全て高位発熱量基準で行う。燃料は本文表 2-1 のスカイライン炭を供給し、ガス化温度は 1000℃を維持するものとする。空気吹きの場合はガス化剤に燃料重量の 30%の水蒸気を添加する。ガス化炉は常圧で運転するものとする。燃料供給量とガス化剤投入による熱入力とガス化ガスと熱損失の熱支出が釣り合うまで空気過剰率を調整する計算プログラムを使用した。

A 2 - 2 計算結果

図 A2-1 に計算条件にしたがって計算した結果を示す。グラフの X 軸には炉の熱損失とスカイライン炭による熱入力の比をとった。MEET-I ペブル床ガス化炉は 0.2 から 0.3 の間になる。ガス化炉の規模が大きくなるほど、この比は 0 に近づいていく。

ガス化剤の予熱温度を 1000℃にしても、ガス化炉の規模が同じであれば高温空気発生装置を使用しない常温空気を使用するガス化と同じ効率を出している。

ガスエンジンの排ガスをレキュペレータに通して顕熱回収したシステムは他のシステムより高い効率を出している。MEET-I ペブル床ガス化炉で噴流床部に供給されるガス化剤の温度が 500℃程度なので、600℃の予熱空気でもガス化するシステムを組め

ば、プラントの効率を高くできると予想する。

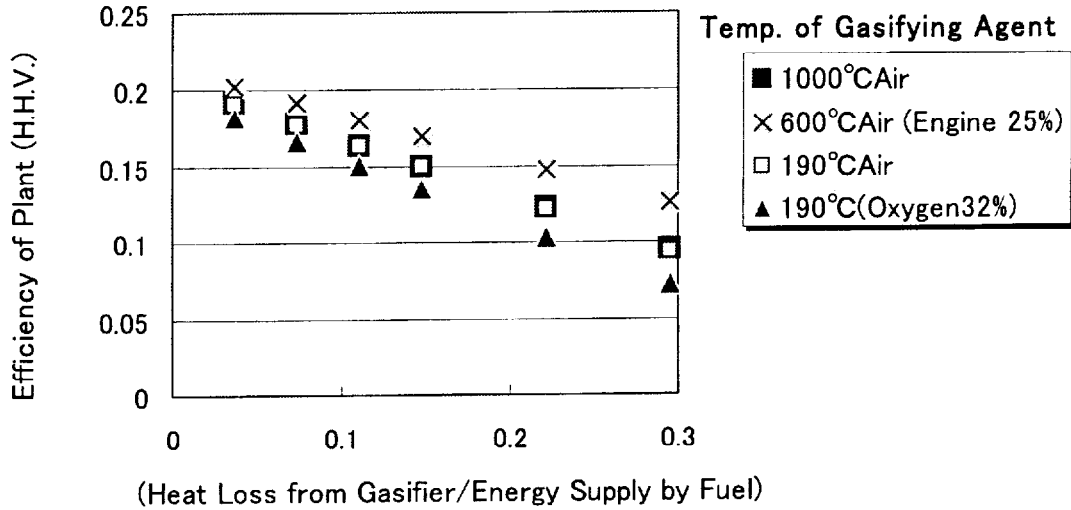


Fig.A2-1 Comparison of plant efficiency (calculation)

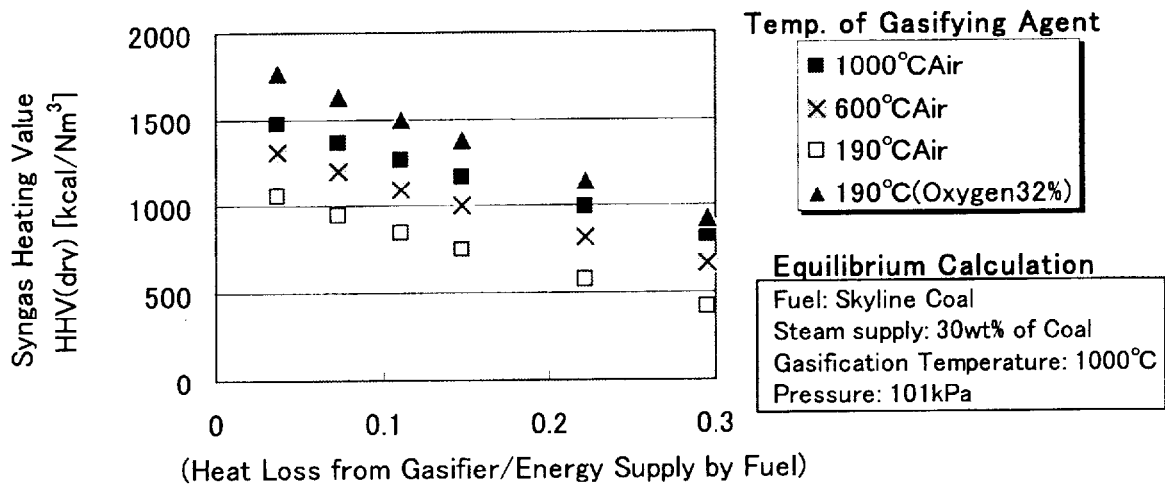


Fig.A2-2 Comparison of Syngas heating value (calculation)

高温空気発生装置を用いるシステムが常温空気でガス化を行うプラントに対して有利な点は、ガス化ガスの発熱量を図 A2-2 の放熱の大きな条件で比較すると明らかになる。ガス化剤に高温空気をを用いると、常温の空気をガス化剤に用いる炉に比べて、相対的に熱損失が大きい規模の小さな炉でもある程度の発熱量のガスを発生させることが可能になる。

熱損失の割合は熱負荷にも関係しており、定格運転で熱損失の割合が 10% の炉でも負荷を 50% まで下げれば熱損失の割合は増加する。もともと熱損失の大きな条件から熱負荷を減らしていくと、熱損失の割合は大きく変化する。熱損失の割合が大きく変

化すると図 A2-2 に示すようにガス化ガスの発熱量が大きく変化する。図 A2-2 は熱損失と燃料供給量の比が同じであっても、空気の予熱温度によってガス化ガスの発熱量が調整可能であることを示している。

本文の第 2 章で述べたとおりガス化炉の熱収支に占める熱損失が大きい場合は、負荷変動を与えたときにガス化ガスの組成に及ぼす影響が大きくなってしまう。予熱空気の温度を制御できれば、熱損失の大きなガス化炉で負荷変動を与えた場合でも、ガス化ガスの発熱量を保つことが可能になる。

付録 1 で述べたように高温空気発生装置は 1000°C を超える温度の空気を発生させる能力があり、またその流量を変えることも可能である。ガス化炉に負荷変動を与える際にガス化剤の一部を高温空気発生装置が供給する 1000°C 超の空気に置き換えれば、炉内投入直後の反応に外乱を与えることになるが、ガス化炉出口でのガス化ガスの組成と温度を調整することが可能になる。付録 1 で述べたように高温空気発生装置は高温空気流量の平坦化を行い、操作性を向上させれば、ガス化炉の運転を自由度の高いものにする可能性がある。

酸素富化空気を用いた条件はシステムの効率が他の条件に比べて低いが、図 A2-2 から明らかなように、容易にガス化ガスのカロリーアップが可能である。

参考文献

- (1) 石橋喜孝 和田潤 大高円, 250MW 空気吹き IGCC (石炭ガス化複合発電) の実証機開発, 第 8 回動力・エネルギー技術シンポジウム講演論文集, 02-7, (2002), 111-114
- (2) 企画特集 地球環境と企業貢献, 毎日新聞 12 版, 2002 年 6 月 30 日, 23 面
- (3) 株式会社キナン web site, <http://www.kinan.co.jp/creation/kankyo/koisanso.html>
- (4) 財団法人省エネルギーセンター web site, http://www.eccj.or.jp/law/m_1_term/detail/8/177.htm

注

注 1

II エネルギーの使用の合理化の目標及び計画的に取り組むべき措置

1 エネルギー消費設備等に関する事項

(2) 熱利用設備

20]

排ガスの廃熱の回収利用については、別表第 3(B) に掲げる廃ガス温度及び廃熱回収率の値を目標として廃ガス温度を低下させ廃熱回収率を高めるよう努めること。

別表第 3(B) 目標廃ガス温度及び目標廃熱回収率(II 1 (2) 20]関係)

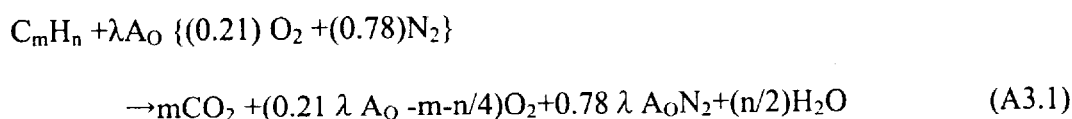
(2) 工業炉に関する目標廃熱回収率(II 1 (2) 20]関係)

付録3 高温空気流量の計測

A3-1 排気ガス成分から高温空気流量を求める方法

高温空気流量は、高温空気発生装置に投入される全空気から、高温空気発生装置で燃焼空気量を差し引くことによって求めることができる。ただし、高温空気発生装置内では燃焼排ガスが全て4方弁を通過しIDFに行くことと仮定する。

炭化水素 C_mH_n が燃焼する時の化学反応式は式 (A3.1) で表現できる。また、空気の成分は酸素と窒素がそれぞれ 21%と 78%であるとする、式 (A3.1) の左辺第二項の中括弧内で表すことができる。



A_O : C_mH_n が完全燃焼する時の理論空気量

λ : 空気過剰率, $m \cdot n$: 炭化水素の価数

$$\lambda A_O = C_mH_n \cdot [(n/4) - (100m + 78(n/4)) / (O_2\% - 21)] \quad (A3.2)$$

$$\lambda A_O = C_mH_n \cdot [(n/4) + m / (CO_2\% / 100)] \quad (A3.3)$$

高温空気発生装置の排気ガス中の酸素と二酸化炭素の濃度をそれぞれ $O_2\%$, $CO_2\%$ とおくと、式(A3.1)を整理した時に式(A3.2), (A3.3)が成り立つはずである。式(A3.2), (A3.3)から燃料の組成と流量、排ガス中の酸素・二酸化炭素濃度がわかれば、燃焼空気の量を推測することができる。ここで言う燃焼空気量は高温空気発生装置に供給したが、高温空気発生装置内部で消費され、ペブル床ガス化炉に供給されていない空気を意味する。

測定器具を保護するために、本研究ではサンプリングしたガスを前処理機で除塵・除湿した後に測定を行っている。測定ガス中に水分はないものと考えていたが、測定ガスの冷却温度が $5^\circ C$ 程度なので、常圧でも水の蒸気圧を考慮すると約 1vol% 残る。そのため厳密に言うと式(A3.2), (A3.3)に分析機器の表示値を代入しても成り立たない。酸素・二酸化炭素・窒素を同時に測定し、それらの比をもとに計算することが望ましい。本文第2章の粗砕炭ガス化実験は高温空気発生装置の排ガスの組成から高温空気流量を求めたが、その辺りの誤差がある。

また高温空気発生装置の排ガス測定に連続計を用いる場合は、測定装置の応答速度を考慮しなければならない。連続計の表示する測定値の補正方法は文献(1)で述べられている。

A 3-2 ピトー管で高温空気流量を測る方法

前項 A 3-1 の方法は、応答速度が極めて遅く、秒単位で変化する空気流量の計測には不向きである。そこで、高温空気の出口にピトー管を設置した。ピトー管周辺に十分な直管部分が無いため、ピトー管手前に整流器を設置した。整流器には高温空気発生装置の蓄熱体に使われているセラミックスハニカムを用いた。

高温空気流量の計算式はベルヌーイの式を利用したものである。ピトー管係数は、都市ガス 13A を高温空気で燃焼させたときの排ガスの組成を基に計算した。

A 3-3 都市ガス

都市ガス 13A は複数の炭化水素の混合物である。その混合比は一定ではないため、式 (A3.2) , (A3.3) を使用するときには供給元に問い合わせる必要がある。本研究に関連して数回問い合わせたが、式 (A3.1) の m および n の値が変わったことはない。

参考文献

- (1) Reiji NODA, Ichiro NARUSE, Kazutomo OHTAKE ; Fundamentals on Combustion and Gasification Behavior of Coal Particle Trapped on Molten Slag Layer, Journal of Chemical Engineering of Japan, 29-2, (1996), pp.235-241

付録4 固体燃料の供給

固体燃料の供給量を知ることは、安全に実験を行うために必要である。また固体燃料の供給量を把握していなければ、運転条件の制御が困難になる。ここでは燃料の供給量を把握する手法について説明する。

固体燃料の供給は気体燃料や液体燃料と異なり、流量を測ることができない。MEET-I ペブル床ガス化炉の実験では、炉の開放・組立の作業性との兼ね合いや供給機に接続する配管類の負荷が供給機に懸からないようにするノウハウを持たないことから、供給装置ごとロードセルに載せて重量変化を量ることはしなかった。

A 4-1 供給機

A 4-1-1 テーブルフィーダ

MEET-I ペブル床ガス化炉では微粉炭・粗砕炭・下水汚泥 RDF・フィルターダスト・ポリプロピレンをテーブルフィーダ（商品名 マイクロフィーダ MF-LV-2（三協パイオテク株式会社））で供給した。この装置では、モーターを駆動して固体燃料を供給する。モーターへの電源入力を調節することで、固体燃料の供給量を調節する。モーターへの電源入力と固体燃料の供給量の関係は、固体燃料供給装置のセッティングしだいで変化する。

本研究で使用したマイクロフィーダ MF-LV-2 にはホッパーが追加されており、ホッパーに入れることができる固体燃料の量はかさ密度が0.6程度の微粉炭の場合25～30kgである。微粉炭の供給誤差は3%未満である。

かさ比重の小さいものを供給しようとするホッパーからテーブルに出るところで閉塞し、本文第3章の鋸屑ガス化実験では使用できなかった。

A 4-1-2 RDF粉砕物などかさの大きなものの供給

鋸屑および一般廃棄物から製造されたRDFの破砕物は繊維状でかさが大きいため、供給装置にサークルフィーダ NCF-250TS（株式会社ヨシカワ）を改造して使用した。このサークルフィーダはホッパーの底部で、歯が0.6～1.8rpmで回転し供給物かき出して移送する。RDF粉砕物は綿状でかさ密度が小さいため、市販状態のサークルフィーダでは、かき出されずにホッパーの中でRDFが歯と共に回転していた。

ホッパー内で燃料が回転しないように、長さ5cm程度のプレートをホッパー内の粉体出口付近に設置したところ、粉砕したRDFを供給することができた。しかし大量に搬送空気を流しても、供給装置を出たところにあるボールバルブの中で、幅1mm程度の段差に粉砕したRDFが引っ掛かり閉塞し易い。運転中は段差付近に振動を与え続ける必要がある。偏芯したおもりをモーターに取り付けたもので振動を与え続けることが可能であるが、人手で叩き続けても良い。仮に搬送ガスで振動が与えられるなら、試す価値があると思われる。

この供給機はテーブルフィーダのMF-LV-2に比べて定量性が劣るものの、流路が

比較的広く、閉塞し難い。また供給物が閉塞しても燃料を強制的に押し出す機構を持たないため、装置が破損することは無い。

A 4-1-3 スクリューフィーダ

本研究と関係の深い MEET-II ペブル床ガス化炉（石炭 2t/day）ではスクリューフィーダを用いた。スクリューフィーダは、スクリュー一回転する毎に一回、粉体を押し出す。回転数が遅いと供給が断続的になる。供給量の変動が許容可能な時間的周期および燃料供給量を考慮した上で、供給機のサイズや数を決定することが望ましい。

スクリューフィーダは供給物を強制的に送り出すため、フィーダーの出口やスクリューの部分で閉塞が生じるとスクリューやモータに負荷がかかる。MEET-I ペブル床ガス化炉の鋸屑ガス化実験ではスクリューを破損している。

A 4-2 キャリブレーション

ペブル床ガス化炉は燃料の滞留時間が短いため、燃料供給量の変動を許容する時間周期は長くても秒単位である。ロードセルを使用した供給量の制御では応答速度が遅いため、手動での制御が望ましいと判断した。手動で燃料供給量を制御する場合、事前に燃料の種類とセッティングを決定し、モーターへの電源入力と固体燃料の供給量の間にある相関関係を調べておく。キャリブレーションは目盛と固体燃料の供給量の相関を取る作業になる。

A 4-2-1 重量測定

ホッパーの中に残っている固体燃料の量が、供給量に影響を与える場合がある。そのためホッパー内の固体燃料の量を変えて、数回のキャリブレーションを行う。

固体燃料の供給量は粉体供給量サンプリングシステム MUC-175（ミュー精機株式会社）で量った。このサンプリングシステムは、指定したサンプリングタイムの間に変化する電子天秤の指示値を、指定したサンプリング回数だけ記録し続ける。マイクロフィーダ MF-LV-2 のキャリブレーションには、サンプリングタイムを 10 秒間にし、サンプリング回数を 10 回にした。天秤や試料に振動が加わると電子天秤の指示値が変化するため、測定中に人が動くことは許されない。記録にはサンプリングシステムでなくとも、時計で時間を測り人手で重量変化を記録しても問題ない。

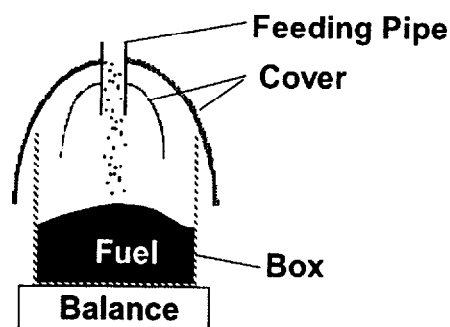


Fig.A4-1 Prevention of fuel scattering

本研究では燃料の飛散による測定誤差を防ぐために、受け皿と燃料供給管の間にカバーをした。カバーは柔軟性のあるビニール袋で作成しており、受け皿にかかる荷重が無視しうるようにした。図 A4-1 にその模式図を示す。

搬送空気を流した状態でキャリブレーションをすることができれば良いが、搬送空気を流しながら供給量のキャリブレーションを行うと供給した微粉炭が飛散し測定した重量が不正確になるので、搬送ガスを流した状態でのキャリブレーションは好ましくない。搬送ガスを流しながらキャリブレーションをするときは、図 A4-1 のカバーに空気の抜け穴を設け、その抜け穴にウエスを差し込んだ。ウエスで燃料の飛散を低減することが可能だが、誤差は生じる。

A 4 - 2 - 2 データ整理

各目盛の供給量は、10 回のサンプリングで測定した供給量の平均値で示すことにした。供給量は g/h の単位で整理した、Fig. A4-2 に、本研究で実験中に使用したグラフの一例を示す。固体燃料の供給量と目盛の相関式は最小二乗法で求めた。相関式の次数は相関式と計測結果が大きくずれないように選ぶ。

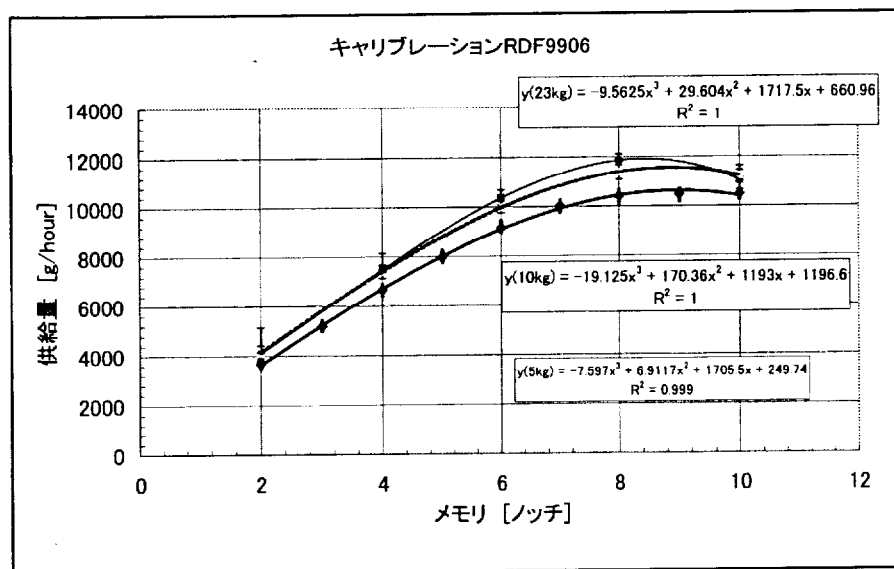


Fig.A4-2 Example of graph used during experiment to control fuel feed rate

実験前に準備しホッパーに詰めた固体燃料の量と、実験後に残った固体燃料の量とを比較し、実際に実験で投入した固体燃料の量を求める。実験中の運転記録とキャリブレーションの結果を基に固体燃料の計算上の供給量を求める。実際に実験で投入した固体燃料の量と計算上の供給量を比較してキャリブレーションの結果を補正する。補正係数は、ホッパー内の燃料重量には影響するがモーターへの電源入力によらず一定とみなした。データ整理に使う固体燃料の供給量は補正したキャリブレーション結果から求める。

一度キャリブレーションに使用した固体燃料は平均粒径が変化している可能性があるため、基本的には再利用せずに廃棄する。実験前に固体燃料供給装置のセッティングを変更したときは、固体燃料の使用量を節約するために、セッティングからキャリブレーション、実験までを一連の作業とみなして、実際に投入した固体燃料の量を求める。

燃料の種類によっては大気湿度によって水分量が変わるものがあるので、キャリブレーション時と運転時の固体燃料の水分をそれぞれ測定して供給量を補正することが望ましい。

A4-2-3 燃料の種類による特徴

図 A4-2 は粒径 1mm 程度に砕いた下水汚泥 RDF のキャリブレーションである。固体燃料供給装置のホッパーに入っている燃料の量に供給量が影響を受けることが下水汚泥 RDF の特徴と言える。しかし、10 回のサンプリングの中で供給量のばらつきは少ない。図 A4-2 にも誤差として記入してあるが注意して見なければ気が付かない程度である。

この下水汚泥 RDF の特徴は、同じような燃料粒径を持つ粗砕石炭でも言える。

微粉炭を供給する場合、ホッパーに入っている微粉炭の量は供給量に影響を与えない。しかし、10 回のサンプリングの中でばらつきが大きい。時々平均に対して+40% 程度の変動がある。これは微粉炭が軽く、供給するホースの内側に微粉炭の一部が付着することが影響している。ホースの内側に付着した微粉炭は溜まったところで落ちるようで、その時サンプリングした供給量は大きな値を示す。実験中は常に搬送空気を流しているため、問題は無いと思われる。

付録 5 温度測定

A 5-1 温度

MEET-I ペブル床ガス化炉では熱電対の示す温度を「温度」としている。熱電対の保護管が触媒として作用する可能性はないものとしている。また輻射を受けていることは明らかだが、それも含めて温度とする。ガスの温度、燃焼中の粒子の温度、熱電対の温度とそれぞれ異なるものである。しかしガスの温度や粒子温度の測定を追及すると、研究への負担が大きくなるため、本研究では誤差が生じることを承知で、熱電対の表示値を温度とみなす。

熱電対の温度の基準点はデータロガーに内蔵されたプログラムによるものを使用している。誤差が生じる可能性はあるが、1000℃レベルの温度に対して数度の誤差は無視し得ると判断した。

A 5-2 ペブル床部の温度測定

ペブル床部の温度測定は保護管付の熱電対で行っている。熱電対は本文図 2-1 に示すように、平成 11 年 7 月までペブル床部の耐火材に穴をあけて水平に差し込んでいたが、耐火材に開けた穴はスラグによって干渉されるようになった。また、その穴からスラグが断熱材の層に浸入する。

そこで対策として平成 11 年 11 月から本文図 3-1 に示すように、噴流床部の耐火壁に穴をあけ斜めにペブル床部中心まで差し込んだ。この変更によって、熱電対を通す穴がスラグによって干渉されるというトラブルがなくなった。

熱電対の挿入方法を変更するまでは一つの保護管に 2 対の熱電対を挿入して、ペブル床部の水平方向の温度分布を調べていたが、熱電対の挿入方法を変更するとペブル床内部に水平方向に 2 点の測定点を設けるには 2 本の熱電対を別々に炉外から挿入しなければならず、炉に開ける穴が多くなり炉の断熱性が低下するため、ペブル床部内の温度測定点は一点になった。

A 5-3 噴流床部に供給されるガスの温度

噴流床部に供給されるガス化剤の温度は熱収支を取るときに影響する。しかし本文第 3 章で述べた改造を施すまで、噴流床部に供給される直前のガス化剤温度を測定する熱電対は設置されていなかった。熱電対は炉頭部のガス化剤入り口付近にのみ設置してあった。本節では噴流床部に供給されたガス化剤と燃料供給機から供給される搬送ガスが混合するときの温度を求める計算方法について述べる。大胆な仮定や大雑把な計算をしている部分もあるが、本研究では熱電対をしかるべき箇所に設置するまでの暫定的な処置として行った計算なので、厳密なものではない。しかし噴流床部に供給されるガス化剤の温度を測れるように熱電対を新設したところ、本研究において特に問題になる差ではないため、これ以上の計算方法の追求は行っていない。

A 5-3-1 ガス化剤温度

まず噴流床部に供給されるガス化剤の温度を求める。熱電対が設けてある仕様のガス化炉では熱電対の測定値を使用することが可能である。噴流床部に供給される際のガス化剤温度を直接測定する熱電対が無い場合は以下のようにして計算で求めた。

炉頭部は燃料供給管の保護や、気密部分の変形を防止するために水冷されている。それゆえ炉頭部の熱損失には冷却損失と筐体表面からの放熱の2種類がある。炉の周辺における空気の流れは複雑であるため、筐体表面から空気への放熱量を評価することは困難である。そこで、低温側流体の温度が常温であるとみなし、冷却媒体として炉頭部の冷却水のみを考慮して計算する。計算の流れは以下ようになる。

1. 噴流床部に吹き込まれるガス化剤の温度を予備実験で測定する
2. 温度測定を行った予備実験において、ガス化剤が炉頭部で損失した熱量を求める
3. 炉頭部を熱交換器とみなして、ガス化剤の流量・入り口温度から炉頭部出口のガス化剤温度を求める式を求める。この式を実際のガス化実験のデータ整理で利用する。

A 5-3-1-1 予備実験によるガス化剤温度の測定

予備実験で噴流床部に吹き込まれるガス化剤の温度を求めた。MEET-I ペブル床ガス化炉の噴流床部の一番上にある熱電対挿入口から炉の中心部近くまで届く熱電対を挿入すると、熱電対の先端を吹き込み口の真下数センチの位置に着けることができる。噴流床部に吹き込まれるガス化剤を直接熱電対の先端にあてると、熱電対の先端には対流伝熱でガス化剤の熱が伝わる。

噴流床部の炉内壁と熱電対の間で輻射によって熱交換が起こるため、影響を排除しなければならない。MEET-I ペブル床ガス化炉の炉内の温度が高温空気の温度だけで安定させるには長い時間を必要とするが、高温空気流量が安定しないため、高温空気発生装置だけで炉内の温度を安定させることは困難であった。

そこで高温空気を供給しつつ、都市ガス 13A を少量供給して、30~50°C/h で炉内をガス化剤の温度と推定される温度まで昇温した。炉内壁から熱電対への放射による影響が少ないと考えられる温度に炉内温度が達したところで、都市ガス 13A の供給を遮断して温度変化を測定した。本文第2章の図 2-8 の左側のグラフが予備実験で得た温度変化である。都市ガス遮断時の熱電対の温度は 740°C、5 分後に熱電対の温度が上昇し始めた時の温度が 690°Cであった。

都市ガス 13A の供給を遮断する前まで熱電対は火炎によって昇温されているため、ガス化剤温度より熱電対の温度は高くなっている。都市ガス 13A の供給を遮断すると、加熱源がなくなり、熱電対はガス化剤によって冷却される。熱電対の単位時間あたりの温度変化を縦軸にとり熱電対の温度を横軸にとってグラフを作成した時に、グラフ

にプロットした点が一次関数に近似可能であれば輻射の影響は少ないと仮定した。このとき X 軸切片をガス化剤の温度とみなした。

A 5 - 3 - 1 - 2 計算式の作成

予備実験における炉頭部の熱損失を求める。炉頭部に供給したガス化剤の温度と流量、計算で求めた噴流床部に供給されるガス化剤の温度から、炉頭部におけるガス化剤の熱損失が計算可能である。

先の A 5 - 3 - 1 - 1 で求められる熱損失は、測定した予備実験と同じ条件でしか成り立たない。そこで他のガス化実験のガス化剤温度を計算するために、炉頭部を熱交換器とみなして、炉頭部での熱損失をガス化剤の温度と熱容量流量の関数で表わすことにする。

高温空気を高温側の流体、水冷ヘッド・水冷燃料管・炉外の空気を低温側流体とする。高温側流体の熱容量流量を mc_h 、低温側流体の熱容量流量を mc_c とし、式(A5.1)という仮定を立てる。

$$mc_c < mc_h \quad (A5.1)$$

熱容量流量比 R と伝熱通過単位 Ntu を次のように定める。

$$Ntu = (K \cdot A) / (mc_c) \quad (A5.2)$$

$$R = (mc_c) / (mc_h) \quad (A5.3)$$

ただし K は熱通過率、 A は伝熱面積とする。これらを用いて熱交換器に関する式を整理して式(A5.4)を得る。

$$T_h = T_{h1} - (T_{h1} - T_{c1}) \frac{\exp(-K \cdot A \frac{mc_h + mc_c}{m_{ch} \cdot m_{cc} - 1})}{\frac{mc_c + mc_h}{mc_c}} \quad (A5.4)$$

T_h : 高温側流体温度

T_{h1} : 高温側流体入り口温度

T_{c1} : 低温側流体入り口温度

この式は mc_c と mc_h が入れ代わっても意味合いが変わらないため、高温側流体と低温側流体の大小関係を入れ替える。

実際に実験装置においては式(A5.5)が成り立っているので、式(A5.6)が成り立つものと仮定する。

$$mc_c \gg mc_h \quad (A5.5)$$

$$\frac{mc_h + mc_c}{mc_c} \doteq 1 \quad (\text{A5.6})$$

ここで、式(A5.4)を式(A5.6)に従って整理したのが式(A5.7)である。

$$T_h = T_{h1} - (T_{h1} - T_{c1}) \left[\exp\left(-\frac{KA}{mc_h}\right) - 1 \right] \quad (\text{A5.7})$$

水冷ヘッドと水冷燃料パイプの冷却水は温度が正確に把握できていないものの冷水である。大雑把に T_{c1} をやや高めの 30°C と仮定する。KA を求めれば、通常的气体化実験で噴流床部に吹き込まれるガス化剤の温度を計算する式が作成可能である。

T_{c1} を 30°C と仮定した以外は、先程の A5-3-1-1 で行った予備実験の値を用いる。炉頭部の入り口温度を T_{h1} 、噴流床部に吹き込まれたガス化剤の温度を T_h とする。高温空気の流量から m を求め、空気の T_h から T_{h1} までの平均定圧比熱を c_h に代入すると、MEET-I ペブル床ガス化炉では KA は 3.8 を得た。

以上より MEET-I ペブル床ガス化炉ではガス化剤の温度低下 $dT_{head}\text{K}$ を式(A5.8)で表わすことができた。

$$dT_{head} = (T_{GA} - 30) \left[1 - \exp\left(-\frac{3.8}{mc_h}\right) \right] \quad (\text{A5.8})$$

mc_h : ガス化剤熱容量流量 [kJ/(K·h)]

T_{GA} : 炉頭部入り口のガス化剤温度

炉頭部における熱損失 L_{head} は式(A5.9)で表わされる。

$$L_{head} = mc_h \cdot dT_{head} \quad (\text{A5.9})$$

炉頭部入り口のガス化剤温度 T_{GA} は式(A5.10)で求めた。

$$T_{GA} = 25 + \frac{\dot{m}c_{air}(T_{Air_in} - 25)}{\dot{m}c_{steam} + mc_{air}} \quad (\text{A5.10})$$

T_{Air_in} : 炉頭部入り口の高温空気温度。実験ではこの温度が計測された。

mc : 熱容量流量

ドットは $25 [^\circ\text{C}]$ から $T_{Air_in} [^\circ\text{C}]$ までの平均定圧比熱で求めた値、ドットの無いものは $T_{Air_in} [^\circ\text{C}]$ における定圧比熱で求めた値

下付きの添え字が air のものは高温空気発生装置から供給される空気の熱容量流量を示し、下付きの添え字が steam のものは蒸気発生器から発生した蒸気のもの示す。

A 5-3-2 ガス化剤と搬送ガスを混合したときの温度

搬送空気とガス化剤が反応室で混合した時の温度 $T_{CH2.5}$ を求める。求める温度を T_{gE} 、搬送空気とガス化剤の元の温度をそれぞれ T_1 ・ T_2 とする。

搬送空気とガス化剤の熱容量流量をそれぞれ mc_1 、 mc_2 とすると式(A5.11)が成り立つ。

$$mc_1(T_{gE}-T_1)+mc_2(T_{gE}-T_2)=0 \quad (A5.11)$$

この式(A5.11)を解いて、反応室に投入されるガス化剤と固体燃料搬送ガスの混合した温度 T_{gE} を求めた。温度変化が大きいため熱容量流量 mc_1 ・ mc_2 は平均定圧比熱を基に計算した。

式(A5.11)は、以下のようにして計算した。まず定圧比熱を求めるために T_{gE} 概算する。搬送空気の熱容量流量を温度 T_1 の定圧比熱で求め、ガス化剤の熱容量流量を温度 T_2 の定圧比熱で計算する。暫定的に計算した熱容量流量で式 (A5.11) の T_{gE} を概算する。次に概算した T_{gE} と T_1 ・ T_2 で搬送空気とガス化剤の平均定圧比熱を求めて、その平均定圧比熱を用いて再び熱容量を再計算し、 T_{gE} を求めた。

付録6 ガス化実験の評価方法

付録6ではMEET-Iペブル床ガス化炉における熱収支と物質収支の取り方を説明する。ガス化炉の性能を評価する指標として炭素転換率と冷ガス効率が本文第1章に示す式(1.11)と式(1.12)で定義されているが、ガス化炉の特性を把握するためには物質収支と熱収支を把握する必要がある。付録6では物質収支と熱収支の計算方法の核になる部分を説明する。A6-1でガス化ガス流量および炭素転換率・冷ガス効率の計算方法を、A6-2で物質収支の求め方を、A6-3で熱収支の計算方法を説明する。

A6-1 ガス化ガス流量の計算方法

ガス化ガスの流量を直接流量計で測定することは困難である。本文第3章で述べたように本研究でもオリフィス^{注1}を使用しているが、その誤差は大きい。そのためガス化ガスの流量の計算に窒素バランスを利用した。

窒素バランスでガス化ガス流量を求めるために以下に示す3つの仮定をした。

- 窒素原子のモル流量は炉の入り口と出口の間で変化しない。
- 燃料・空気・水蒸気・アルゴン以外のものは炉内に投入されていない。空気の漏れ込み等は無いものとする。
- ガス化ガスに含まれる窒素酸化物やシアン・アンモニアは無視できると考え、炉内に投入された窒素原子は全て窒素ガスになっているものとする。

これらの仮定に基づいて、乾燥状態・アルゴン0%換算のガス化ガスの流量を式(A6.6)で表わすことができる。炭素転換率と冷ガス効率をそれぞれ式(A6.7)と式(A6.8)で表わす。

$$N_{pre} = 2 \left(\frac{A_{pre}}{v} \cdot \frac{C_{N2_pre}}{100} \right) \quad (A6.1)$$

$$N_{fuel} = \frac{A_{fuel}}{M} \cdot \frac{C_{N_fuel}}{100} \quad (A6.2)$$

$$N_{carr} = 2 \left(\frac{A_{carr}}{v} \cdot \frac{C_{N2_carr}}{100} \right) \quad (A6.3)$$

$$N_{purg} = 2 \left(\frac{A_{purg}}{v} \cdot \frac{C_{N2_purg}}{100} \right) \quad (A6.4)$$

$$N_{syn} = N_{pre} + N_{fuel} + N_{carr} + N_{purg} \quad (A6.5)$$

$$A_{syn} = \left(\frac{100}{C_{N2_syn}} \right) \cdot \frac{N_{syn}}{2} \cdot v \quad (A6.6)$$

$$C.C.R. = \frac{A_{syn} \cdot (C_{CO2_syn} + C_{CO_syn} + C_{CH4_syn})}{A_{fuel} \cdot C_{C_fuel} + A_{pre} \cdot C_{CO2_pre}} \times 100 \quad (A6.7)$$

$$C.G.E. = \frac{A_{syn} \cdot E_{syn}}{A_{fuel} \cdot E_{fuel}} \times 100 \quad (A6.8)$$

- A*: 流量 (気体 ; [Nm³/h], 固体 ; [kg/h])
C: 濃度 (気体 ; [vol%], 固体 ; [wt%])
E: 高位発熱量 [kcal/Nm³]
M: 分子量 [kg/mol]
N: 窒素のモル流量 [mol/h]
v: 1mol 当たりの体積 [Nm³/mol]
C.C.R.: 炭素転換率 [%]
C.G.E.: 冷ガス効率 [%]

添え字

- syn*: ガス化ガス (乾燥)
pre: 高温空気 (乾燥)
fuel: 燃料 (恒湿)
carr: 固体燃料供給時に使用する搬送ガス
purg: 覗き窓用のバージガス
N2_syn: ガス化ガス中の窒素 (乾燥)
CO2_syn: ガス化ガス中の二酸化炭素 (乾燥)
CO_syn: ガス化ガス中の一酸化炭素 (乾燥)
CH4_syn: ガス化ガス中のメタン (乾燥)
N2_pre: 高温空気中の窒素 (乾燥)
N_fuel: 窒素 (石炭の工業分析値)
C_fuel: 炭素 (石炭の工業分析値)
N2_carr: 固体燃料供給時に使用する搬送ガスに含まれる窒素ガス

N2_purg: 覗き窓用のバージガスに含まれる窒素ガス

A 6 - 2 物質収支の求め方

式(A6.6)は乾燥状態・アルゴン 0%換算のガス化ガス流量を表しているが、熱収支を求める場合はアルゴンと水蒸気も求める必要がある。

水蒸気は JIS Z8808-1995 の 6 に記載されている「排ガス中の水分量の測定」に準ずる方法で測定が可能だが、物質収支の物質供給側が把握できていれば、ガス化ガスの組成から概算することが可能である。

燃料が十分に熱分解して燃料中に酸素が残っていないことと、灰分中に鉄のような容易に還元されるものが含まれていないという仮定が成り立てば、ガス化炉に供給した酸素原子はガス化ガスか水蒸気のいずれかになる。この仮定の下で、ガス化炉に供給される酸素原子の全供給量からガス化ガス中の酸素原子を差し引くと、残った酸素原子のモル数が水蒸気のモル数になる。ただし供給する空気に含まれる湿度による影響は、実験時の湿度を記録していなかったため無視した。

アルゴンは、供給した空気に対して 0.93%含まれており、反応もせずに出て行くため、空気の供給量が正確に把握できていれば、排出量が計算可能である。

これらの方法は実験において物質の供給量が正確に把握できて初めて成り立つ計算方法なので、物質収支の供給側を正確に測定し把握することが不可欠である。固体燃料の供給は付録 4 で説明したが、供給量だけでなく供給するものの元素分析値も必要である。

バージガス・空気流量などの流量は全て流量計で測定する。浮き子式の流量計を用いる場合は必ず圧力計で浮き子のある空間の圧力を測定し、流量計の校正を行った。流量計と圧力計の間に流量調節用のバルブなどの差圧を発生させるものが存在すると、校正が不可能になるので注意を要する。浮き子式流量計はベルヌーイの式で校正が可能だが、計測する流体に仕様が合う流量計を選択することが望ましい。流量計に供給するガスはレギュレーターで圧力を一定に保つ。

熱線式流量計も表示値を比熱で補正して測定値として利用している。浮き子式の流量計で検定を行い、この補正方法が妥当な方法であることを確認した。

本文第 3 章で実験に用いた MEET-I ペブル床ガス化炉は、物質収支を正確に把握するために測定系のリーク（漏れ）を排除している。ガス化炉から測定系まではボールバルブで外部から遮断できるようになっており、実験前にはガス化炉から測定系までの空間に圧力を加えて密閉し、密閉した後の圧力低下が十分に遅いことを確認した。運転中に配管に設けられているバルブが異物を噛み込むとバルブが閉まらなくなり、リークを発生させる。それゆえバルブが異物を噛み込むことを防止するために、ガス化ガスの配管から分岐する配管はドレン水 (Drain) 抜きの配管以外全てが上方向に分岐させた。

A 6-3 熱収支の計算方法

A 6-3-1 計算の仮定

MEET-1 ペブル床ガス化炉のガス化反応の熱収支を項目別に整理する。

MEET-1 ペブル床ガス化炉への熱入力は以下のものを仮定した。

- 固体燃料および都市ガス 13A
- 噴流床部に吹き込まれるガス化剤の潜熱と顕熱

MEET-1 ペブル床ガス化炉からの熱出力は以下のものを仮定した。

- 筐体表面からの熱損失
- ガス化ガスの持つ発熱量
- ガス化ガスの顕熱
- ガス化ガスに含まれる水蒸気の潜熱
- すすなどの固体状可燃分

条件によって入力・出力どちらにもなり得るものとして以下のものを仮定した。

- 炉の顕熱
- スラッグの顕熱と潜熱

本論文では、エンタルピーの基準を 25°C にした。

水蒸気の潜熱と水の比熱は文献(1)から引用した。水蒸気・二酸化炭素・窒素の熱容量は文献(2)の平均定圧比熱を用いて計算した。アルゴンは文献(1)を参照する限り定圧比熱の変化が小さく、アルゴンが含まれている量自体少なく全体に対する影響が小さいため、少々の誤差が全体に与える影響は少ないと判断し 0.9300kJ/(Nm³・K) という平均定圧比熱を採用して計算した。

すすなど固体状可燃分の発熱量はグラファイトの発熱量と等しいと仮定した。グラファイトの高位発熱量は 393.5kJ/mol である⁽¹⁾。

スラッグの顕熱と潜熱について考える。富岡らによると灰投入量 3 t/h のときに電気抵抗式灰溶融炉の消費電力は 600kWh/t(2160MJ/t) である⁽³⁾。灰 1kg あたり 2.16MJ/kg になり、仮に灰溶融炉の効率が 100% であったとしても、石炭燃焼の場合は他の誤差に埋もれてしまう程度である。本研究では高灰分低発熱量の試料ではガス化実験が成功していないため、灰分の顕熱および潜熱は無視可能である。

A 6 - 3 - 2 熱入力

熱入力は、物質収支と温度が求められていれば計算可能である。

A 6 - 3 - 3 熱出力側の計算

ガス化ガスの顕熱を求めるときの温度は炉出口に設けた熱電対の測定値を用いる。ガス化ガス流量は式 (A6.6) の計算値に A6-2 物質収支の求め方で述べた方法によってアルゴン流量を加えて計算する。水蒸気の潜熱と顕熱は「水蒸気」という別項目で計算する。ガス化炉の放熱損失は予備実験で求めた実験式を利用して計算する。以下に実験式を求める方法を記す。

A 6 - 3 - 3 - 1 噴流床部とペブル床部の熱損失

噴流床部とペブル床部の熱損失は、ペブル床ガス化炉からペブルを取り除いた状態で都市ガス 13A の燃焼運転する予備実験を基に求めた。温度が定常状態の反応室における熱収支を次のように仮定した。

- 反応室に投入された高温空気の顕熱と都市ガス 13A の発熱量を入力とする。
- 熱出力は炉の筐体からの熱損失とペブル床下部のスリットから排出される燃焼ガスの顕熱である。炉底部でスリットの真下に位置する熱電対の測定値が、ペブル床下部のスリットから排出される燃焼ガスの温度であるとする。
- 都市ガスは噴流床部で速やかに完全燃焼している

高温空気流量と都市ガス 13A の供給量から燃焼排ガスの組成と流量を求め、燃焼排ガスの熱容量を求める。この熱容量は 25°C から炉底部の熱電対が表示している温度までの平均定圧比熱に燃焼排ガスの流量を乗じて求めた。この熱容量と炉底部の熱電対の指示値から計算で炉底部での燃焼排ガスの顕熱を求めた。高位発熱量基準の熱入力から燃焼排ガスの潜熱と顕熱を差し引くと、熱損失を求めることができる。

上記の仮定に基づいて熱収支を求めると、ペブル床部の下から 150mm の高さに位置する耐火材の外側の温度が 1309°C のときに噴流床部とペブル床部の熱損失は 11.9kW であった。

炉の外表面が常に 100°C であると仮定すると、伝熱量は温度差に比例するため噴流床部とペブル床部での熱損失は式 (A6.9) で表わされる。実際には耐火物の熱伝導度は温度によって変化するため、炉内温度と表面温度測定箇所によっては表面温度が 200°C 近い場所もあり、式(A6.9)は 10%前後の誤差が出てくる。しかし筐体表面と外気温度の差から計算するより表面温度の測定誤差の影響が少ないため、式(A6.9)を採用した。

$$L=35.49(T_{pehb}-100) \quad (A6.9)$$

L : 熱損失 [kJ/h] , T_{pebb} : ペブル床部の耐火材外側の温度

ペブルが充填されている状態で固体燃料を燃焼させると、ペブル床部と噴流床部で温度が異なるため、噴流床部と噴流床部の熱損失を式 (A6.10) , (A6.11) で示すことにする。50/80 と 30/80 はそれぞれ反応室全体における噴流床部とペブル床部の内壁の面積比である。ペブル床部の内壁は円筒形ではないため正確な面積比ではないが、炉の構造まで考えると複雑になるので、深追いを避ける。

$$L_{ent}=35.49 \cdot (50/80) \cdot (T_{ent}-100) \quad (A6.10)$$

$$L_{pebb}=35.49 \cdot (30/80) \cdot (T_{pebb}-100) \quad (A6.11)$$

L_{ent} : 噴流床部の熱損失 [kJ/h] , L_{pebb} : ペブル床部の熱損失 [kJ/h]

T_{ent} : 噴流床部の耐火材の温度 [°C]

T_{pebb} : ペブル床部の耐火材外側の温度 [°C]

A 6 - 3 - 3 - 2 ペブル床部の蓄熱効果

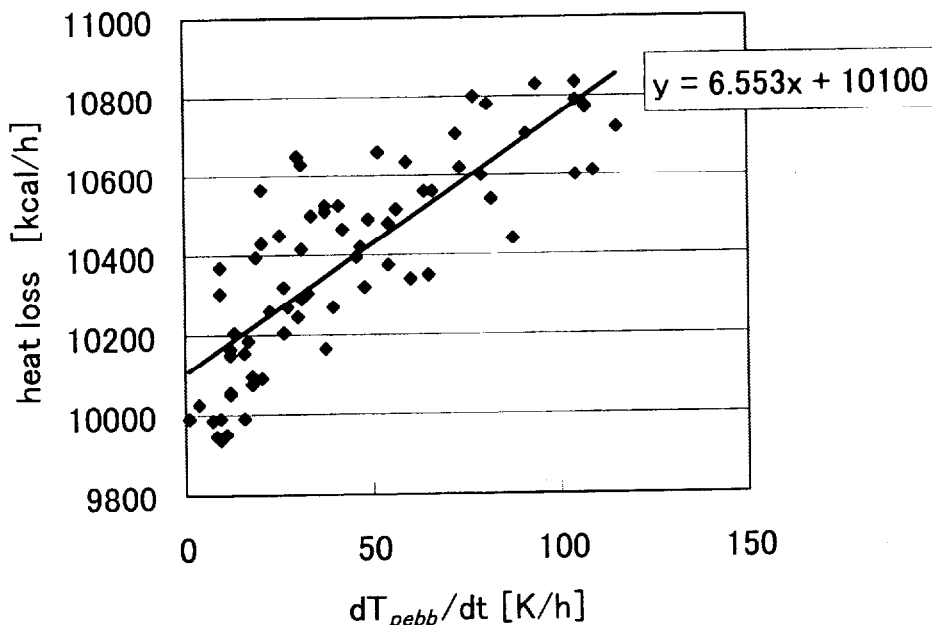


Fig.A6-1 Relation between temperature transition and heat loss in pebble bed section

式(A6.10), (A6.11)は定常状態での式であるが、炉内の温度が変動しているときの熱収支についても考えた。ペブル床部では噴流床部より断熱材が厚く、耐火壁の厚みも厚い。そのためペブル床部は熱容量が大きい。ガス化ガスの温度が 30°C/h 以上のペー

スで下がっているときは、炉内の耐火材の温度がガス化ガスよりも高い。このとき、ガス化ガスから炉外に向かう熱損失は存在しないことになる。むしろ、ペブル床部に貯えられていた顕熱がガス化ガスに供給されることになる。ペブル炉の顕熱は図 A6-1 から求めた。図 A6-1 は温度を上昇させている最中の熱損失をペブル床部の耐火材外側の温度変化で整理したものである。基準になる温度を大きく変動させると筐体表面からの熱損失も変化してしまうため、ペブル床部の耐火材外側の温度は 1200～1210℃ の間に保った。図 A6-1 から相関式の傾き 6.55 がペブル床の熱容量であると考えられる。よってペブル床での熱損失は非定常時、炉の熱容量 6.55 [kcal/K] と単位時間当りの温度変化の積が加算される。更に温度が極端に下がる場合は式(A6.11)の熱損失を除外しなければならない。

炉底部の熱損失も都市ガス 13A を燃焼する運転で評価した。炉底部の温度を示す熱電対と炉出口との温度差が炉底部での熱損失による温度低下であると仮定して、実験式(A6.11)を求めた。

$$L_{bott}=11.35(T_{bott}-100) \quad (A6.11)$$

L_{bott} : 炉底部での熱損失 [kJ/h] , T_{bott} : 炉底部の熱電対の指示値 [°C]

式(A6.11)の 11.35 は伝熱係数、100 は仮定された炉外表面温度を表わす。

参考文献

- (1) 日本機械学会, 伝熱工学資料 改訂第 4 版, 丸善, (1986)
- (2) 山崎正和, 熱計算入門Ⅲ 燃焼計算, 省エネルギーセンター, (1989)
- (3) 富岡淳 山中信幸 鈴木永芳 勝呂洋次, 横浜市環境事業局金沢工場における電気抵抗式灰溶融炉稼動状況, 第 12 回廃棄物学会研究発表会講演論文集 II, (2001.10) , pp.835-837)

注

注 1 空気で検定し、補正はガス化ガスの組成、温度、管内の全圧で行っている。ガス化ガスの水分はオリフィス直前の温度から水の飽和蒸気圧を求め、飽和蒸気圧と配管内の全圧の比から水分濃度を推定している。またオリフィスの前後に十分な直管を設けてあるので、オリフィスによる測定値は運転時の目安や計算値のオーダー確認に利用可能である。

付録7 既往のプラントに関する報告例

A7-1 代表的な既往の石炭ガス化炉

Table.A7-1 主な石炭ガス化プロセスの特徴と性能概要⁽¹⁾

プロセス名称	炉形式	ガス化 剤	石炭供給	炭素転 換率	冷ガス 効率	生成ガス 発熱量 kcal/Nm ³	開発状況
シェルプロセス	噴流床 対向流型	酸素	微粉炭	99% 以上	約80%	約2800	2,000t/day 規模 試験中
テキサコ プロセス	噴流床 下降流型	酸素	石炭スラ リー	98% 以上	約75%	約2500	1,000t/day 規模 実証中
ダウプロセス	噴流床 対向流型	酸素	石炭スラ リー	99% 以上	約70%	約2200	2,400t/day 規模 実証済
電中研・三菱 プロセス	噴流床 旋回上昇流型	空気	微粉炭	97% 以上	約80%	約1000	200t/day 規模試 験中
日立バブコック プロセス	噴流床 旋回上昇流型	酸素	微粉炭	98% 以上	約80%	約2800	50t/day 規模実 証済
HTW プロセス	流動床	空気	粉炭	92% 以上	約80%	約2700	720t/day 規模実 証済
BGL プロセス	固定床	酸素 / 蒸気	塊炭	データ 無し	約80%	約3100	600t/day 規模実 証済

パイロットプラント段階のプロセスの性能は、パイロット規模での目標性能

A7-2 1970年から1980年代の廃棄物ガス化溶融炉(2)(3)

Fig.A7-2 1970年代～1980年初頭におけるガス燃料化技術比較表(2)(3)

プロセス	企業・機関 (技術提供先)	炉形式	プロセスの特徴			技術水準
熱分解ガス化	工業技術院 池原製作所	二塔流動層炉	<ul style="list-style-type: none"> 原料を熱分解する炉と主にチャーを燃焼する炉から成り、両炉は熱媒体(砂)でシールされているため高カロリーのガスが回収される。 熱分解炉の流動化に生成ガスの一部を用い、燃焼炉における熱媒体の播送および流動化に空気を用いるのが特徴。 	<ul style="list-style-type: none"> 高カロリーガスのため貯留輸送が容易。 外部での利用が難しいチャー、タールは、系内で利用しガスのみ回収。 		<ul style="list-style-type: none"> ① '73-'75. φ300 単塔式による運転。 ② '73-'82. 横浜市に30t/日のパイロットプラントを建設し、'79-7月から熱分解運転。
	月島機械㈱ (パイロックス)	二塔流動層炉	<ul style="list-style-type: none"> 原料を熱分解する炉と主にチャーを燃焼する炉から成り、両炉は熱媒体(砂)でシールされているため高カロリーのガスが回収される。 両炉の流動化はスチームによる。 	<ul style="list-style-type: none"> 高カロリーガスのため貯留輸送が容易。 外部での利用が難しいチャー、タールは、系内で利用しガスのみ回収。 	<ul style="list-style-type: none"> 流動化にスチームを用いるため起動操作が複雑で、排水も多く発生する。 	<ul style="list-style-type: none"> ① '72. 1kg/時のベンチスケール実験 ② '73-'75. 10kg/時の小型二塔流動床による連続運転。 ③ '74. コールドモデル実験。 ④ '76-'78. 40t/日の実証プラントによる各種実験 7,000時間。 ⑤ '79. 船橋市に450t/日(150t/日×3基)の商業プラントを建設し、現在まで引き続き調整中。
	日立プラント建設㈱[デストラ] (Pollution Control Ltd.)	垂直レトルト炉	<ul style="list-style-type: none"> 炉は外熱方式で、炉頂に供給された原料は下降しながら昇温し熱分解する。チャー分の多い残渣が炉底より排出される。 	<ul style="list-style-type: none"> 構造が比較的簡単で、レトルトをユニット化して処理量の増減ができる。 	<ul style="list-style-type: none"> チャーの有効利用がなされない。 減容率が低い。 各レトルトへの原料振り分けが難しい。 	<ul style="list-style-type: none"> 国外 ① '67-'70. 0.5t/時のテストプラントを運転(デンマーク)。 ② '71. 5t/日の実証プラントによる7,000～8,000時間の連続運転完了。 国内 ③ '76. 4t/日の実証プラントを運転。
	日立造船㈱	壱型ガス化炉	<ul style="list-style-type: none"> 炉内でガス化だけ行われ生成チャーは炉下部の火格子で部分燃焼し、熱分解の熱源となる熱分解部分燃焼方式である。 	<ul style="list-style-type: none"> 炉下部からチャーを含む残渣を回転火格子と灰カキ板によって炉外に取り出せる。 	<ul style="list-style-type: none"> 生成ガスのカロリーが低く、燃料ガスとして回収できない。 	<ul style="list-style-type: none"> ① '76. 舞鶴市で20t/日の実証プラントを建設し、各種ごみに対する実験を行なっている。
溶融ガス化	㈱タクマ[トラックス] (Carborundum)	壱型シャフト炉	<ul style="list-style-type: none"> 発生ガスは二次燃焼室で燃焼し、一部は炉内に残存するチャーの燃焼用とし、残りは廃熱ボイラで熱回収する。 	<ul style="list-style-type: none"> 残渣はスラグとなり、埋立処分が比較的容易。 	<ul style="list-style-type: none"> 酸素富化空気を使用するため、酸素製造用電力を必要とする。 燃料ガスとしての回収が難しい。 	<ul style="list-style-type: none"> 国外 ① '69-'77. ニューヨーク州オーチャードパークで75t/日の実証プラントを運転。 ② '77-'82. フランス、西ドイツ、アメリカで100t/日×1基、200t/日×4基が商業化されている。 国内 ③ '80. 浜松市にストーカ焼却灰と不燃物を主体とする分別収集ごみを4:6の割合で処理する75t/日のプラントを建設し、11月から稼働中。
	昭和電工㈱[ユニオン] (Union Carbide Co.)	壱型シャフト炉	<ul style="list-style-type: none"> 炉頂に供給された原料は下降しながら乾燥、熱分解、燃焼、溶融して、スラグとして排出される。 燃焼ガスと熱分解ガスは原料と混ざりながら上昇し炉頂より出る。 炉底からは純酸素を吹き込む。 発生ガスの湿式洗浄方式と、直接燃焼する乾式方式がある。 	<ul style="list-style-type: none"> 残渣はスラグとなり、埋立処分が比較的容易。 	<ul style="list-style-type: none"> 純酸素を使用するため、酸素製造用電力を多く必要とする。 燃料ガスとしての回収が難しい。 	<ul style="list-style-type: none"> 国外 ① '71-'76. ニューヨーク州メリータウンで5t/日のパイロットプラントを運転。 ② '74-'77. サウスチャールストン市で200t/日の実証プラントを運転。 ③ '80. ニューヨーク州トナワンダ町で20t/日の実証プラントを運転(乾式法)。 国内 ④ '81. 秩父市で75t/日のプラントを建設し、10月から稼働中。
	新日本製鐵㈱	壱型シャフト炉	<ul style="list-style-type: none"> 炉頂に供給された原料は下降しながら乾燥、熱分解、燃焼、溶融して、スラグとして排出される。 燃焼ガスと熱分解ガスは原料と混ざりながら上昇し炉頂より出る。 炉底からは酸素富化した予熱空気を吹き込む。 原料とともにコークス、石灰を炉に供給する。 	<ul style="list-style-type: none"> 残渣はスラグとなり、埋立処分が比較的容易。 	<ul style="list-style-type: none"> コークスなどの副資材をかなり必要とする。 燃料ガスとしての回収が難しい。 	<ul style="list-style-type: none"> ① '74-'80. 北九州市で20t/日のパイロットプラントを運転。 ② '74-'80. 東京都の分別ごみを対象とする40t/日の実証プラントを運転。 ③ '79. 釜石市に100t/日(50t/日×2基)のプラントを建設し、9月から稼働中。 ④ '80. 茨城市に450t/日(150t/日×3基)のプラントを建設し、8月から稼働中。
	川崎重工業㈱[ランガード] (Monsanto Enviro-Chem Systems)	ロータリーキルン炉	<ul style="list-style-type: none"> 炉の一方より原料が供給され、反対側にあるバーナの熱風を向流に流して部分的に燃焼させ、熱分解ガス化する。 ガスは洗浄された後、助燃油とともに燃焼される。 		<ul style="list-style-type: none"> 生成ガスのカロリーが低く、利用が限定される。 炉内温度のコントロールが難しい。 炉のガスシールが難しい。 	<ul style="list-style-type: none"> 国外 ① '79. ボルチモア市で1,000t(U.S.)/日のデモンストラーションプラントを運転、トラブル続出し、'77以降、焼却炉に変更し断続的に運転。 国内 ② '74. 神戸市で30t/日の実証プラントを運転。 ③ '79. 神戸市プラントを改修し、中間処理施設として稼働中。

図A7-2は、文献(2)から文と表題を原文のまま引用した。文献(2)の表の出典は「(財)クリーン・ジャパン・センター、再資源化技術の開発状況調査報告書(廃棄物の燃料化技術調査)、(1995.3)」であるが、文献(3)にも、字体と表題および

一部の表記が異なるが、極めて類似した図が掲載されている。文献(3)は「昭和 57 年度工業技術院委託研究報告書、資源再生利用システムの評価研究 (2/2 分冊) 一資源再生利用システムの総合評価 WG-1, 財団法人日本産業技術振興協会, (1983.3), pp.56-112」から引用しており, 表中の「現在」は昭和 57 年以前だと思われる。

参考文献

- (1) 例えば 黒崎晏夫監修, 環境と省エネルギーのためのエネルギー新技術大系, 第1版 (1996), 645-657
- (2) 例えば 鍋島淑郎, 新しい廃棄物処理技術としての熱分解・ガス化灰溶融システムについて, 廃棄物の熱分解・ガス化灰溶融炉システムの開発動向, エヌ・ティー・エス, (1998.4), pp.16
- (3) 平山直道, 廃棄物のガス化溶融技術の現状と問題点, 平山直道先生 勲二等瑞宝章受章記念資料, (2002). pp.10-28

付録8 溶融灰の融点予測

溶融スラグ挙動について言及した文献を紹介する。参考文献(1)は石炭溶融灰の粘度を測定した実験値が載っている。文献(2), (3)からの引用ということで、Dr.Anupam Sanyal より提供された溶融灰の融点を予測する三元図を例として図 A8-1 に示す。SiO₂-CaO-Al₂O₃ だけではなく Fe₂O₃ も考慮しているため、文献(1)の実験値と 100°C 程度の差はあるが傾向が似ている。還元雰囲気中で測定した粘度や融点は酸化雰囲気中で測定した値に比べて下がる傾向があり、Fe₂O₃ の濃度に応じて酸化雰囲気における融点と還元雰囲気における融点の差が大きくなる傾向がある。

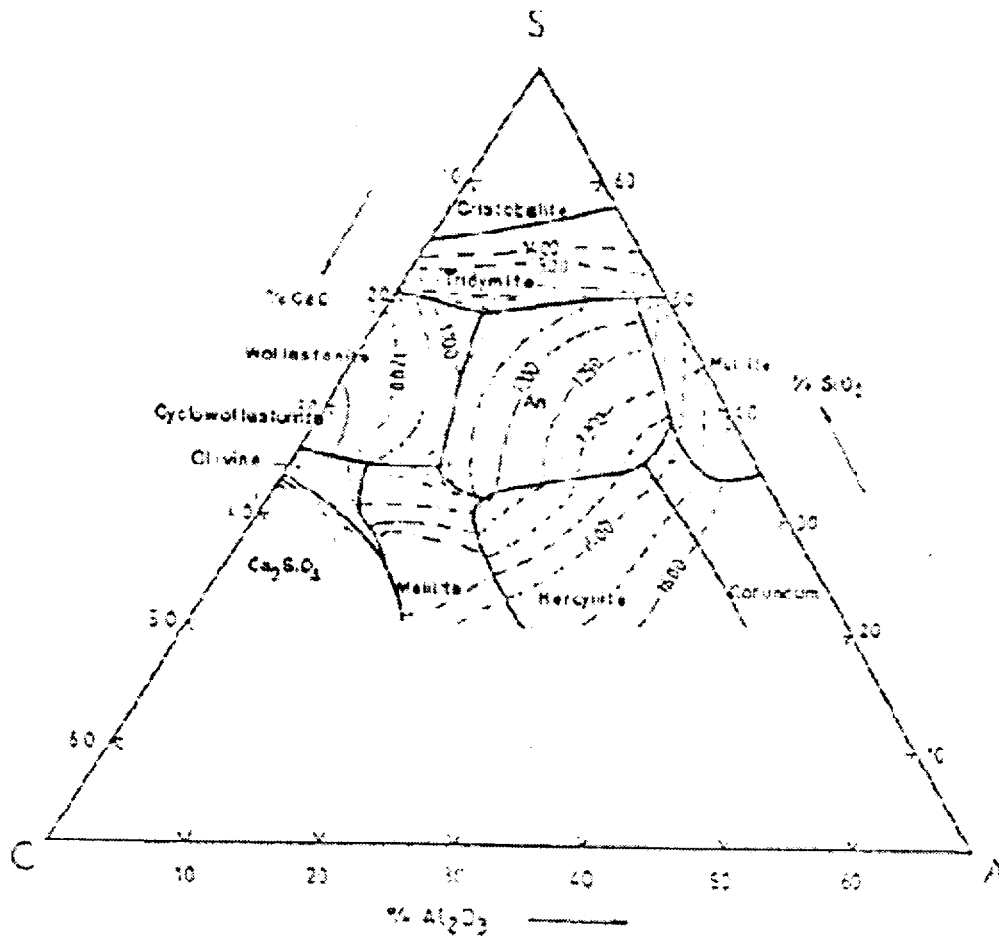


Fig.A8-1 System CaO - Al₂O₃ - SiO₂ - FeO (30 % FeO Plane)

溶融灰の粘度を式 (A8.1) ⁽⁴⁾ のような形でスラグの組成から予測する方法もある。

$$\log_{10} \mu = 4.468(SP/100)^2 + 1.265(10^4/T) - 7.44 \quad (A8.1)$$

$$SP = \frac{100 \times SiO_2}{SiO_2 + \text{Equiv.} Fe_2O_3 + CaO + MgO}$$

μ : スラグの粘度[poise], (1[poise] = 1/10 [Pa · s])

T : 温度[K]

SiO₂, Equiv.Fe₂O₃, CaO, MgO; 各成分の酸化物換算の重量濃度

熔融灰の粘度を予測する研究は多数なされているので、この付録8では、熔融灰の融点を予測する方法があることを紹介するにとどめる。

参考文献

- (1) 電源開発株式会社総合技術試験所, 火力 研究報告 平成8年度「燃料電池用石炭ガス製造技術開発」のうち熔融スラグ挙動調査(第3分冊), (1997.3)
- (2) Anupam SANYAL, et al.; "Slagging in Boiler furnaces – A Prediction Technique Based on High Temperature Phase Equilibria", J. Inst. 20, (1986.3)
- (3) Anupam SANYAL,; "Slagging Prediction Techniques Based on Thermal behavior of Coal Minerals and High Temperature Phase Equilibria", Proceedings of International Symposium on High Temperature Air Coal Combustion, (1998.11),pp.226-245
- (4) SOSEPH G. SINGER, P.E. ; "Combustion Fossil Power – A reference book on fuel burning and steam generation", Combustion Engineering, Inc., (1991)

付録9 ペブル床ガス化炉の改善案

この付録9ではペブル床ガス化炉の構造を熔融灰の閉塞防止と炭素転換率向上の点から改善策を提案する。ペブル床ガス化炉で閉塞し易い箇所は主に2箇所あり、一つはペブル床を支える部分であり、MEET-I ペブル床ガス化炉であればスリットの部分である。もう一つは熔融灰がスラグバスに向かって離脱する最後の接触部分である。

ペブル床を支える部分は、壁とペブルに挟まれてスラグの抜け道が最も狭いため、少ない熔融灰で閉塞を生じる。そこで、グリッドを図A9-1のように段違いに並べ、その隙間に整然と並ばないペブルを配置すると、ペブル床を支持する部分でもスラグの抜け道を大きくとることが可能である。

本文で明らかにしたが、ペブル床ガス化炉ではペブル床部の下が熔融床として機能している。その特性を活かす炉形状として図A9-2に示すペブル床ガス化炉を提案する。ペブル床部の下には熔融床とガス化ガス出口、スラグの抜き出し口を設け、ガス化ガスの一部をスラグバス側に抜き出し、スラグの裏側で燃焼させて灰溶解を円滑に行う。この形状であればペブル床部の下をガス化反応のために使用可能である。

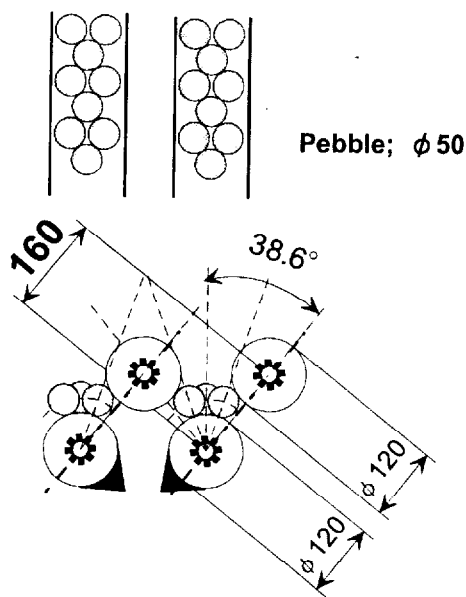


Fig.A9-1 Pebble support to prevent slag plugging

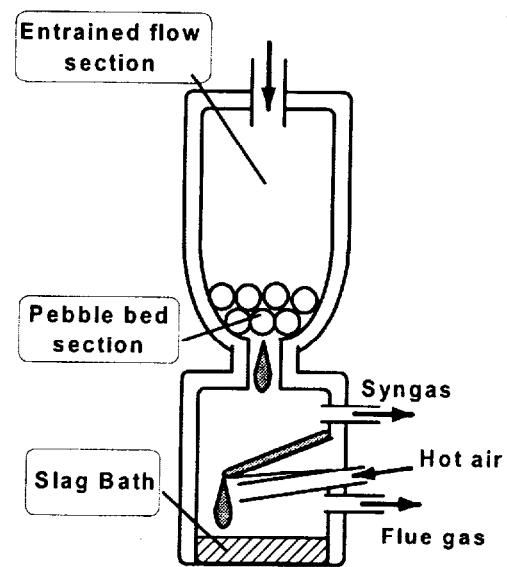


Fig.A9-2 New concept of pebble bed gasifier

充填層による固体微粒子の捕獲に関する研究⁽¹⁾は既に行われているが、ペブルのサイズは捕獲効率を犠牲にしても、スラグの閉塞を防止することが望ましい。

参考文献

- (1) 例えば ウィリアムCハインズ, エアロゾルテクノロジー, 井上書院, (1985)

付録 10 重金属排出挙動調査サンプル実験

重金属の排出挙動を調査するサンプルになった実験条件を紹介する。サンプルになった実験は以下の4点である。

- 鋸屑ガス化実験 1 (Sawdust gasification test 1)
- 微粉碎木質ペレットガス化実験 (Pulverized wood pellet gasification test)
- フィルターダストガス化実験 3 (Filter dust gasification test 3)
- フィルターダストガス化実験 4 (Filter dust gasification test 4)

鋸屑ガス化実験 1 (Sawdust gasification test 1) は本章第 3 章でデータを公開している。またフィルターダストの燃料分析値は本文第 5 章表 5-1 に示されている。

Table.A10-1 Property of pulverized wood pellet

Fuel Heating Value			Ash Composition		
HHV	MJ/kg	20.0	SiO ₂	wt%(dry)	20.52
Proximate Analysis			Al ₂ O ₃		7.05
Inherent Moisture	wt%(wet)	7.0	Fe ₂ O ₃		4.75
			CaO		36.26
Volatile Matter	wt%(dry)	83.4			
Fixed Carbon		16.0			
Ash		0.6			
Ultimate Analysis (d)					
C	wt%(dry)	51.0	Ash Fusion Temperature (Reducing)		
H		6.1	Initial Deformation	°C	
S		0.1	Softening		
N		<0.1	Hemispherical		
Cl		<0.1	Fluid		
O		42.3			

Table.A10-2 Input flow rates of tests for heavy metal sampling

Test name.	Pulverized wood pellet gasification Test	Filter Dust Gasification Test3	Filter Dust Gasification Test4
Fuel	Pulverized wood pellet	Filter Dust	Filter Dust
Fuel[kg/h]	7.0	3.3	4.9
Air[Nm ³ /h]	11.3	17.3	16.4
N ₂ [Nm ³ /h]	0.4	0.4	0.4
Steam[kg/h]	0.0	1.7	0.0
Air stoichiometry	0.36	0.77	0.48

Table.A10-3 Syngas property, carbon conversion rate and cold gas efficiency

		Pulverized wood pellet gasification Test	Filter Dust Gasification Test3	Filter Dust Gasification Test4
H ₂	vol%(dry)	12.8	0.8	0.7
O ₂		0.0	0.2	0.0
N ₂		52.8	76.5	72.4
CH ₄		2.1	0.0	0.0
CO		20.1	2.9	13.3
CO ₂		11.5	18.7	12.7
Ar		0.6	0.9	0.9
H ₂ O	vol%(wet)	9.2	10.0	0.0
Syngas Flow Rate*	Nm ³ /h	17.4	18.2	18.2
H.H.V(dry)	MJ/Nm ³ (kcal/Nm ³)	5.03 (1200)	0.47 (112)	1.77 (424)
L.H.V(dry)		4.70 (1122)	0.45 (108)	1.76 (421)
C.C.R.	%	94	85	68
C.G.E		61	10	25

*converted as both Ar and H₂O equals to 0%.

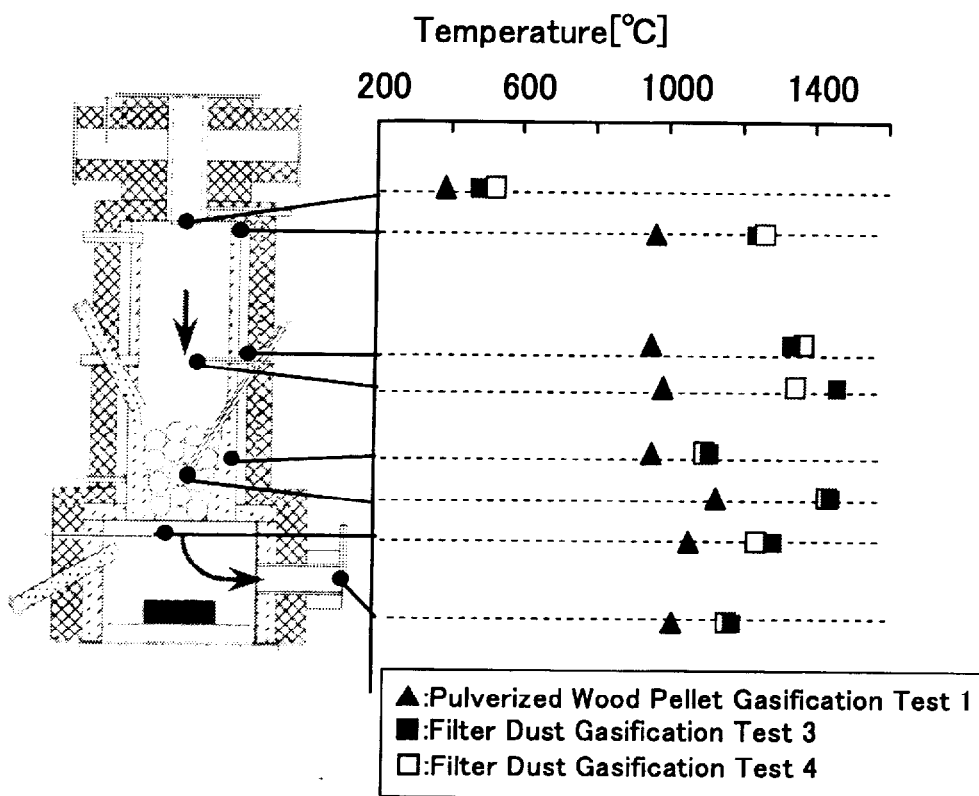


Fig.A10-1 Temperature distributions of experiments for heavy metal sampling

付録 11 実験装置

本研究で実施した実験の大半は外部に発表されていない。基礎実験と異なり、実験を実施してもデータが取れないことは多々あり、収集したデータに信頼性が無く破棄したことも多い。ガス化実験は事故が新聞に載ることも在り危険である。それゆえ実験装置の立ち上げは重要である。

この付録では、新規参入者向けに、MEET-I ペブル床ガス化炉の立ち上げにおいて検討したものを紹介する。しかし素人が装置を組み上げることは時間の無駄になることもあり、また危険な場合もある。可能であれば、実験装置の製作に長けた専門の業者に委託することが望ましい。

A 1 1 - 1 安全装備

耐火材やダストなどの粉塵が舞うのでマスクを使用した。本研究では有害なガスは発生しないので、粒径の小さなすずに対応可能な目の細かい防塵マスク（3M, #8511 防塵マスク）を使用した。

ガス化炉の覗き窓を覗いている最中に覗き窓のガラスが破損すると、顔面に破片が刺さる可能性がある。顔面の保護のため溶接面を用意した。

一酸化炭素中毒を防止するために携帯型のガス警報機を使用した。一酸化炭素以外のガスを検知する警報機もあるので、必要な警報機を用意することが望ましい。

ガス化炉で発生する一酸化炭素が系外に漏れるときは、硫化水素やアンモニアなどの臭いのあるガスも漏れるため、センサーが警報を鳴らす前に気を付くことが可能である。木質系バイオマスを用いた MEET-I ペブル床ガス化炉でガス化する場合でもガス化ガスがわずかに空気とは異なる臭いを発する。センサーだけに頼らず臭いに気を付けることが、ガス化ガスのリークの早期発見につながる。

A 1 1 - 2 ガス化炉の操作性・作業性

実験装置の操作性は安全面とデータの信頼性に影響する。操作性を高くするために、MEET-I ペブル床ガス化炉は改造時に操作用のバルブと流量計を集約した。操作の指標になる数値を参照しながらバルブの操作が可能になり、人手を減らすことが可能になった。一度実験装置を組み上げると変更が困難な場合もあり、実験装置を組む前に検討をすることが賢明である。ケーブルや配管が通路をふさぐと危険も伴うため、レイアウトも考慮した。

A 1 1 - 2 - 1 配線

ケーブル類は電気工事関係のカタログに配線を束ねるものなどがある。配線の両端にタグを付けると便利である。端子台を使用すると、配線作業に便利だと思われる。

パソコンでデータを収集する場合にパソコンのモニターを見ながらバルブの操作できると、データの経時変化をチェックすることが可能で、また表示項目の変更が容

易であり、専用の操作盤とは異なる利点がある。MEET-I ペブル床ガス化炉では、ガスクロマトグラフィーを除くガス分析計と、熱電対の温度、熱線式流量計のデータ等はデータロガーで収集され、データロガーから GP-IB でパソコンに転送された。パソコンではこのデータをハードディスクに記録すると同時に、データをモニターに表示した。

測定データを電圧に変換^{注1}して出力する測定機器はケーブルの長さに制限がある。測定機器とデータロガーの距離が離れている場合はアンプで電圧信号を増幅し、データロガーで補正を加えた。データロガーの位置とガス化炉の操作位置が離れてしまう場合は、専用の延長ケーブル^{注2}を用いることでパソコンのキーボード・マウスとモニターを移設することが可能で、本体から離れた場所でパソコンの操作が可能である。

A 1 1 - 2 - 2 供給系の配管

空気・窒素・都市ガスなどの供給系の配管は、集約する手前までテーパネジの配管や溶接したもので引いておく。テーパネジや溶接で作成された配管は JIS で規格が定まっているため、バルブの選定も容易である。配管の 25A は直径 25mm を意味しているが、商品ごとに微妙に異なり、同じなのはネジ部だけであることもある。

操作するバルブや流量計の配管は、変更可能な方法で組み上げておくと、不具合が生じた場合に容易に変更できるため便利である。変更を加える可能性のある箇所や頻繁に脱着する部分は、スウェージロックやワンタッチ継ぎ手を使用した。テーパネジと違い、脱着時に配管を回転させなくて良いため、脱着が容易である。ワンタッチ継ぎ手を使用するときは、断面形状が歪んでいるとリークが発生するため、チューブカッターを使用した。配管径はインチとセンチメートルがあるが、1/4 インチと 6mm が特に紛らわしいので注意を要する。

継ぎ手は種類に応じた使用方法をする。シールテープはテーパネジの配管に使用するものであるが、乱用する者が多い。メタルタッチやパッキン・オーリングでシールする箇所にシールテープを使用すると漏れの原因になる。

ハンドルのついたボールバルブは開閉状態が目視で確認可能なため便利である。しかし流量の調節が必要な箇所は、流量調節の容易なバルブを選定することが望ましい。ボールバルブでも流量の調節は可能であるが、操作性が極めて悪い。

流量計など外力に弱い装置などは、配管の力がかからないようにフレキシブルなチューブで接続した。配管全体の剛性が強いと、炉の開放時や配管の変更時に、流量計に負荷がかかり、また組み立て時に配管の位置が合わないなど作業に支障が出る。フレキにはステンレスメッシュホースの他、安全上問題がないと思われる箇所には安価な計装用ポリウレタンチューブを使用し、柔軟性と耐圧性が同時に要求される場所にはテトロンブレードホースを使用している。MEET-I ペブル床ガス化炉では、固体燃料供給機とペブル床ガス化炉本体の間にテトロンブレードホースが使用されている。テトロンブレードホースの固定はタケノコとホースバンドで行った。

冷却水配管には流量調節バルブと流量計を設ける。流量計はフローチェッカーで代用可能である。これらのものが無ければ冷却水を十分に流し、配管を直列に接続した。流量調節をしないで冷却水の配管を並列に接続した場合、差圧の大きい側には冷却水が流れなくなり、冷却不良を起こす。

A 1 1 - 3 ガス化炉の気密

MEET-I ペブル床ガス化炉パッキンには、ふっ素樹脂ガスケット（ニチアスソフトシール 6mm×15m, トンボ NO. 9096）を使用した。使い捨てだが、通常ガスケットと異なり、シールする面の形状を選ばない上、スペアの保存場所が小さくて良い。ブランケットなどの断熱材をパッキンと高温部分の間に挟み、高温のガスが直接パッキンに触れないようにした。

熱電対の保護管が折れると、保護管内とガス化炉内が通じてしまう。熱電対の根元にシリコン系接着剤^{注3}をシール剤として充填し、折れた保護管からリークが生じないようにした。シリコン系接着剤は金属を腐食させることがあるため、シリコン系接着剤を選ぶ際にカタログで確認した。

溶融灰が付着する箇所に挿入されている熱電対は、保護管が痩せ始めると短期間で保護管に穴があく。そのため保護管に異常が見られたら新しい保護管に交換する。

炉が閉塞した場合は炉内圧が上昇するので^{注4}、圧力開放弁として水封弁（シールポット）を設けた。圧力開放弁の出口は実験装置の系外、またはガス化炉の後流に接続した。初期の MEET-I ペブル床ガス化炉はマンメータが水封弁として機能しており、炉の閉塞が見分け易かった。圧力開放弁とその配管にはガス化炉内の高温のガスが流れるので、高温のガスに対応した設計が望ましい。ガス化炉が突然閉塞して水封弁が突然噴くこともあり、ガスの排出場所に注意を要する。

A 1 1 - 4 後流配管

MEET-I ペブル床ガス化炉の実験を円滑に行う上で、ガス化炉の後流配管におけるドレン、腐食、すすの対策が重要であった。

ドレン対策としては、1) ドレンが溜まってはならない場所は保温材やヒータで保温する、2) 配管の水が溜まる可能性のある部分にはドレン抜きを設ける、3) 適当な場所でガス化ガスを冷却しドレンを落とす、の3つが大きな柱になる。

ドレンの溜まってはならない場所は、ガス化ガスからすすが除去されていない場所である。特に、フィルターで水蒸気が凝縮すると差圧が上がり、IDF に負担がかかる。そのためフィルターまでは、水を凝縮させないように温度管理が必要である。

ドレンはガス化炉と同じ系の空間であれば、どこでも凝縮する可能性がある。高低差があれば低いところに溜まる。配管に傾斜が無い場合はドレンの排出ができないので、配管には傾斜を持たせ、ドレンが溜まる箇所にドレン抜きの配管を設ける。

ドレン抜き配管はバルブを2重に入れる。運転中のドレン抜きでは、大気とガス化ガスの配管が通じると危険なので、2重に入れたバルブとバルブの間に一度ドレンを溜める。その後、ガス化ガス配管側のバルブを完全に閉じ、ドレンを系外に排出する。ドレンを排出するときにガス化ガスも若干出てくるので、留意する。ガス化ガスが流れない場所でも炉の運転を停止した後に水蒸気が拡散してくるので、適当なところで弁を閉じて空間を遮断する。

ガス化ガス中の水蒸気は、ガス化ガスを冷却すると凝縮し、除去できる。ガス化ガスの冷却器にはセジメントトラップや冷却管、スクラバー+デミスターなどがある。

ドレンはガス化ガス中の微量成分によって水が腐食性を持つことが多いため、腐食対策をする。MEET-I ペブル床ガス化炉の場合でも配管が錆びていたことがあるが、硫黄の影響もあると考えられる。表面の腐食が皮膜として機能することもある。

配管は消耗品とみなして、交換が容易な設計をすることも重要である。実験装置の配管は点検やダスト類の収集などの理由で開放する必要が生じる。取り外しの困難な配管は実験に支障を来す。

配管はエルボ一部分にダストが溜まり易い。配管の曲がり角をT(チー)にするとダストの溜まる量はエルボ使用時に比べ多くなるが、ダストの回収が容易になる^{ii.5}。フィルターへの負荷を減らすために、あえてガスの流速を落としてダストを溜める箇所があると、実験に供する試料の選択幅が広がると思われる。

フィルターは掃除がしやすいように、フィルターを上から開放できるようにする。フィルターに下からアプローチすると、作業者は頭からダストをかぶる。すすは十分に冷却されていないと燃えるので、フィルター内の温度とガス組成に注意した。

ガス化ガスを引くIDFにレシプロコンプレッサーは適さなかった。コンプレッサーに混入したすすが、シリンダーとピストンの間からクランクケースにまぎれこみ、潤滑油の流動不良を引き起こした。また、ガス化ガスや排ガスに含まれている水蒸気がクランクケースへ吹き抜け、潤滑油が乳化した。

ルーツやレシプロのIDFを使用する場合は、IDFが停止したときのために、バイパスを設けておくことが望ましい。ルーツを使用したときは、IDFで空気の漏れ込みがあった。いずれのIDFでも、背圧が高いと配管が熱くなる。

A 1 1 - 5 ガス分析装置

A 1 1 - 5 - 1 試料ガスのサンプリング

サンプリングラインは一部の接続部を除いてテフロンコーティングのものを使用した。サンプルガスを引くポンプも、漏れやオイルの混入を防止するため、テフロン加工のダイヤフラムポンプを使用した。電源が入っていないダイヤフラムポンプに圧力をかけてガスが流れるようであれば内部の消耗品を交換する必要がある。

高温のガスをサンプリングするときは、サンプリング用の配管を金属の配管にして、

金属の配管を冷却した。本研究では高温空気発生装置から出てくる高温空気をサンプリングしていた。配管の酸化を考慮するとガラスやセラミックスの配管が望ましいが、実験現場では破損し易く危険だと判断し、金属の配管を採用した。バルブは、焼きつき防止のために炉本体から離れたところに設置し、バルブに高温のガスが流れないようにした。なお圧力測定用の配管では、高温ガスの通過による焼き付きは生じない。

A 1 1 - 5 - 2 試料ガスの前処理

組成分析をするガスは、サンプルガスの前処理機（以下、前処理機）で水分とダストを除去した。ガス化ガスには水分が多いため、カタログモデルでは対応できなかった。前処理機は島津科学サービスによってガス化ガス対応の改造を施された。

ガス化装置にフィルターはあるが、フィルターを通過するすすが存在するので、ガス分析装置の手前にはサンプルガス専用のフィルターが必要である。ドレン対策で述べた話と矛盾するが、MEET-II 実証プラントではセラミックスフィルターとウェットスクラバーを通した後でも、運転上問題にならない量ではあるが、ガス化ガスにすすが存在していた。

前処理機はサンプルガスの分配も行っており、除塵・除湿したガスの一部をオーバーフローで排気する。常にオーバーフローが流れていれば、ガスサンプリングの系内の圧力が大気より高く、大気の混入を防止できる。

ガスを冷却して除湿する方式の前処理機では、冷却部における飽和蒸気圧分だけサンプルガスに水蒸気が残り、ガス分析の測定値に誤差が生じた。

実験中に溜まったドレン水は測定終了後に速やかに廃棄した。ドレン水は蒸発するので、配管が接続されている分析計内部には水が溜まる。分析装置を稼動していない時は配管を遮断した。

A 1 1 - 5 - 3 分析方法

本研究で利用したガスクロマトグラフィーGC-20B は自動ガスクロで測定間隔が約20分と長く不便だが、半日の予熱で数日間問題になるようなドリフトがなかった。

ガス分析計の選定は測定する方式とサンプルガスの組成によっては、干渉作用によって正確な測定値が得られないものがあり、また場合によっては測定装置が破損する。本研究では限界電流ジルコニア法の酸素計にガス化ガスを導入してセンサーを焼損させた。ガス化炉では還元されるのでNO_xは発生しないが、ガス化ガスからNO_xを検知したこともある^{注6}。分析装置やサンプルガスの前処理方法の決定には、十分な検討を要する。燃焼計測については文献（1）で言及されている。

硫黄は灰分中の金属元素と化合して硫化鉄などの硫化物になるが、一部が硫化水素（H₂S）や硫酸カルボニル（COS）として排出される。H₂S は一部のステンレスを腐食する。実験装置 MEET-I でも配管が錆びており、熱収支では影響がないが、装置の耐久性やガス処理のことを考慮すると微量成分の測定は必要事項である。ガス化ガス中の微量成分は JIS K 0804-1998 に記載されている検知管で測定が可能である。より

正確な分析が必要であれば専門の業者に依頼することも可能である。

A 1 1 - 5 - 4 測定ガスの排気

オーバーフローさせたサンプルガスや測定したガスは有害なので、専用に配管を引いて除害装置へ排気した。分析計出口配管の背圧が高いと分析値に異常が出るので、除害装置に導く配管は太くする。

A 1 1 - 6 その他

A 1 1 - 6 - 1 排ガス中のダスト濃度の測定方法

排ガス中のダスト濃度の測定方法は JIS の Z8808-1995 で定められているが、プローブで吸引するサンプルガスの流速を母集団の排ガスと同じ流速にしなければならず、サンプルガスの流速決定が面倒である。ガス化炉においてはガス化ガスの流量を測定することは面倒が多く、実験装置 MEET-I では困難である。

改造後の MEET-I ペブル床ガス化炉では重金属捕獲のためにガス化炉出口の直管部分でサンプリングをした。ガス化ガス流量は本論文付録 6 に示す方法で求め、サンプルガスの吸引量は配管とサンプリングプローブのサイズから計算した。サンプルガスの流量は、JIS で定められている方法に準ずる方法で行うと、常温で乾燥状態のガス流量を測定することになる。そのためガス化炉から出てくるガス化ガスの流量も乾燥状態の換算値が良い。

A 1 1 - 6 - 2 組み立て作業

炉や配管などの重量物には玉掛け可能なアイボルトを設けた。リフターを使用すると、組み立て作業が円滑に進められた。最大荷重 1 t 以上の懸架装置を使用するときには、たとえ吊り上げるものが軽い場合でも、玉掛けと懸架装置の操作に資格が必要になる。

ボルトとナットの締結を基本に背く方法で行うと、何らかの問題を生じるので、慣れない作業者が居る時は注意する。

A 1 1 - 6 - 3 のぞき窓のパージ

本研究ではガス化炉の内部を観察するためにのぞき窓を設けた。上向きに覗き込むのぞき窓はパージガスが少量でものぞき窓がすすや水蒸気で曇ることはない。一方、上から下に向かってのぞく窓は水蒸気やすすで曇り易い。大量に不活性ガスを流すと炉内が希釈されるので好ましくない。不活性ガスをガラスに直接吹き付けると、吹き付けている部分は曇らない。しかし一度水滴が付着するとガスを吹き付けても良好な視界を復元することは困難である。

A 1 1 - 6 - 4 ガス化炉運転前の試料の調査

ガス化実験は準備や実験後作業に時間と労力がかかるため、明らかに運転できない燃料は事前に試料の候補から外した。本研究では DTF を使用していないため、燃料をバーナーで加熱したときの挙動を観察して予想を立てた。客観的な数値が出る方法

ではないが、運転不可能なものを試料の候補から外すことが可能である。

外部からの持ち込まれた試料には発熱量の不明なものがある。元素分析値から求めた理論空気量[Nm³/kg-fuel]を1000倍した数値は高位発熱量[kcal/kg]に近い値を示し、燃料の発熱量を概算可能である。低位発熱量は燃焼ガス中の水分の凝縮潜熱を高位発熱量から差し引く。到着ベースの低位発熱量は固有水分と湿分を考慮し、恒湿ベースの低位発熱量は工業分析の分析値に相当する固有水分を考慮して計算する。

参考文献

- (1) 日本機械学会, 燃焼工学ハンドブック, 丸善, (1995)

注

- 注1 熱電対は電圧で出力されるが、補償導線で配線している。データが4-20mAなどの電流で出力される場合は、データロガーの端子台に並列に抵抗を加えると電圧の出力に変換できる。双方ともアンプは不要。
- 注2 MEET-I ペブル床ガス化炉では「のび太くん」シリーズ（販売：株式会社ユニット）を使用した。
- 注3 シリコン系接着剤が手に付着すると落とすのが大変である。万一手に付着した場合は拭き取ってから洗う。扱う前に、使い捨ての手袋を使用する、ベタベタとするハンドクリームを使用する、手にオイルを吹いておく、大量の唾を付けておく、などの対策が効果的である。
- 注4 噴流床部圧力が高くなる時は、既に炉内が閉塞し始めており、短時間で炉が緊急停止に追い込まれることが多い。
- 注5 本研究でもRDFガス化を見据えて、ダスト対策をした配管が作成された。しかし諸事情により配管が使用不可能になり、研究で無視しうる量でも飛散したダストを作業者が吸い込めば健康を害する可能性があるため、ダイオキシン類の発生が懸念されるRDFガス化実験は見送られた。
- 注6 限界電流ジルコニア法のセンサーに可燃性ガスを流すと焼損する。そのため本文第3章で磁気式酸素計を導入した。磁気式酸素計はNO_xが干渉成分になるため、燃焼条件ではジルコニア法の酸素計が望ましい。また常温化学発光法のNO_x計は二酸化炭素が干渉成分である。

謝辞

本論文は、科学技術振興事業団の戦略的基礎研究推進事業に採択された「高温空気燃焼技術を用いた廃棄物・石炭高効率発電」（通称：MEETプロジェクト）の一部として行った研究をまとめたものです。私はMEETプロジェクト開始半年後から参加し、ペブル床ガス化炉の実用化を目標に研究を進めてきましたが、論文しか残せなかったことは無念です。実用化に至らなかった要因には、テーマが困難であったことや無知もさることながら実用化に対する強い意志が欠落していました。

基礎研究やシミュレーションを始められるような知見を得られたことが本研究の成果です。第2章で議論した粗砕炭ガス化実験と微粉炭ガス化実験のデータを基に、中国の精華大学(Tsinghua University)李政(Li Zheng)教授に指導される学生、肖小清(XIAO Xiaoqing)によってペブル床ガス化炉をモデル化した数値計算が組み込まれました。その計算が出す結果は実験現場でMEET-Iペブル床ガス化炉を操作している私の感覚に沿うものです。

私が本研究に参加し始めた頃は研究室にもノウハウが無く、実験場の床に散乱したボルトを整理するところから始めました。そのような状況から、多くの方の指導や協力の御蔭でこの論文を書くことができました。地味で「研究」と呼ばれない作業が、研究を左右します。論文ではデータの信頼性が無くても問題は無いのですが、現物を扱えば結果は表れます。通常の論文では地味な作業を書く機会が無いので、学位論文で保存することを選びました。実験で生じたネガティブな情報も、現場の生きた情報として盛り込みました。本論文の参照によって生じる不具合には一切責任を持ちませんが、張・佐藤両氏をはじめ、本論文を参照する方々に、この論文が役に立つ事を願います。多少、玉虫色の表現をする箇所もありますが御容赦下さい。

本研究は省エネルギーと廃棄物処理を主な目的としていたが、完全無欠な技術ではありません。何事に対しても評価するものが置かれている場面や状況により賛成と反対の意見があると思います。適材適所で選択の自由度が広がるように、対抗する技術も含めて研究であるなしに関わらず同種の目的を持った多様な取り組みがなされることを望みます。

多くの方の厚意や指導の御蔭で、本研究を進めることが出来ました。日本ファーンエス工業株式会社の笠原正弘氏、持田晋氏、柳瀬雅夫氏、勝島氏、橋氏、味方洸氏、特に笠原氏には安全教育や基本的なところから御世話になりました。氣賀尚志氏、石井徹氏、吉高恵美氏を始め石川島播磨重工業株式会社とIICの関係者には石炭ガス化・プラント関係で御世話になっています。松田裕光氏・梶谷史郎氏・進藤進氏を始め電力中央研究所のPDTFの関係者からは実験の基礎的なノウハウを学ばせて頂きました。同じくPDTF関係者の金子氏をはじめテクノサービスの方から安全管理についてアドバイスを受けています。溶融灰のデータは電源開発株式会社から頂きました。ガス分析装置の関係は東京島津科学サービス株式会社に御世話になりました。粉体供

給機の操作方法は三協パイオテク株式会社の東原裕文氏から受けています。セラミックスの取り扱いには株式会社ニッカトーの美野欣弘様から教えていただきました。熱電対の取り扱いを鈴木理研工業株式会社の鈴木鐵蔵氏に教えて頂きました。現場では柴田誠氏・知念氏をはじめ(株)インテックには電気関係で、配管関係では高瀬浄二氏・高瀬峰雄氏をはじめ J.Concept および旧三晃工業に御世話になっています。東工大長津田キャンパス MHD 実験棟では高橋浩枝技官をはじめ MHD 関係者には御世話になり、また御迷惑お掛けしました。下水汚泥 RDF は東芝機械株式会社中央研究所が製造したのを使っています。Thank you very much, Dr.Pian, Perry, Walter and guys in DIAL, Mississippi State University. 岐阜大学の義家亮助手にはミシシッピにいた頃から常に積極的な議論をして頂き、そのアドバイスは参考にさせていただきました。慶應義塾大学法学部の小林宏充講師には数値解析をして頂くと同時に、常日頃から先輩として助言を頂いています。JST の秘書さん中村早苗様、丹治様、井林をとね様、今井康恵様には研究室内で常に御世話になりました。

小坂仁氏、小山由宇氏、安藤純之介氏、瀧谷知之氏、関太填氏、杉山しのぶ氏、小西理人氏、平田新之助氏、佐藤圭太郎氏、張剣氏には、短期間の方も居ますが、同じ実験装置の担当として共同作業をしてもらいました。また岩橋崇氏、河合一寛氏、吉田延弘氏、奥野友康氏にも研究室内の燃焼系グループとして共同作業をして頂きました。実験時のシフトや何かと手伝ってくれる研究室のメンバーに感謝します。

学部生時代に指導し私の基礎を築いて下さった、東京都立大学の坂本守義教授、太田正広廣教授、山口元助教授、村上和彦先生ならびに先輩であった山田敏雅氏に感謝します。本研究はその影響を大きく受けております。坂本守義教授には、本研究で燃料供給ばかり取り組んでデータが取れなかった時代に、それが研究だと励まして頂きました。

スラグ中に含まれた状態の炭素の反応速度が雰囲気・温度・スラグの組成・スラグの厚みから受ける影響を調べるために、科学技術振興事業団から、University of Maryland College Park へ派遣して頂きました。しかし実験装置の不備でTGの予備実験だけで終わってしまいました。リターンマッチの機会を与えてくださった事業団の宮川光彦氏に感謝します。その中の FT-IR は東芝の山下氏が使用していたものです。また熱重量示差熱同時分析装置の購入予算は科学技術振興事業団の宮川様の厚意によるものです。本論文を優先したために、その研究は中途になってしまいました。本研究の実験で採取したスラグの一部は試料として保管されています。この研究を引き継ぐ後輩に期待します。

ここに関係者に対して謝意を表します。

私の院生生活を刺激的ものにして下さった東工大の指導教官吉川邦夫教授に感謝します。