

環境・生命工学専攻		紹介教官氏名	成瀬一郎 助教授
申請者氏名	村上 高広		

論文要旨(博士)

論文題目	クリーンコールテクノロジーにおけるアルカリ金属化合物の挙動と役割に関する研究
------	--

(要旨 1,200字程度)

次世代の石炭利用技術には、さらなる高効率化と環境調和性が求められており、このような観点から、石灰石による炉内脱硫や加圧燃焼が可能という特徴を有する流動層石炭燃焼では、加圧流動層石炭燃焼や石炭ガス化/燃焼トッピングサイクルのような複合発電システムが実用化あるいは開発段階にある。この両特徴には、アルカリ金属化合物が関与しており、前者に関しては、アルカリ金属化合物が石灰石の脱硫効率を向上させる可能性があること、後者に関しては、高温高圧の反応ガスをガスタービンへ導入することから生成ガス中のアルカリ金属化合物がタービン翼を高温腐食させる可能性があること等が指摘されている。そこで、本研究では、炉内脱硫特性に及ぼすアルカリ金属化合物の効果および石炭燃焼あるいはガス化場におけるアルカリ金属化合物の放出特性という2つの課題について検討した。

第1の炉内脱硫特性に関する課題では、これまでに、脱硫剤として石灰石と同様の炭酸カルシウムからなりしかも水産廃棄物である貝殻が有効であると報告されている。そこで、本課題では、貝殻中に含有しているアルカリ金属と塩素に着目し、この影響を定量的および理論的に究明することを目的とし、アルカリ金属化合物微量添加石灰石による脱硫実験ならびに分子動力学計算による生石灰構造の変化に関する解析をそれぞれ実施した。石灰石へ様々なアルカリ金属化合物あるいは塩化物を微量添加して脱硫実験を行ったところ、脱硫率を向上させる最適な添加物質はNaClであった。さらに、貝殻、石灰石およびNaClを微量添加した石灰石の焼成後の結晶構造をX線回折分析装置によって分析したところ、貝殻とNaCl添加石灰石によるCaOは結晶化していたのに対し、石灰石のみのそれはアモルファス構造であった。このような実験事実から、脱硫性能は焼成後の試料の結晶構造に起因するものと考え、つぎに、この結晶構造の相違について分子動力学法により、CaO単独の場合とCaO 1分子をNaCl 1分子に置換した場合の構造変化について解析した。その結果、CaOのみではアモルファス化するような高温状態であっても、NaClを置換すればCaOの結晶構造は維持されることを明らかにした。さらに、KClおよびLiClに対しても同様の解析を行った結果、NaClがCaOの結晶化を最も促進した。これは、各アルカリ金属塩化物のポテンシャルエネルギーや各アルカリ金属のイオン半径の差異によるものであった。

第2の課題である石炭燃焼あるいはガス化場におけるアルカリ金属化合物の放出特性に関しては、炭種、反応雰囲気、反応温度に依存しないアルカリ金属化合物、特にNaの放出特性を定量評価できる指標の究明を目的とした。さらに、燃焼過程中の粒子を分級採取し、微粒子生成機構とNaの濃縮特性についても実験的に検討した。前者の結果として、Naの放出挙動は炭種や反応条件に依存した。しかし、原炭断面における2次元元素分析によるNaとSiとの存在位置的な相互相関係数および化学平衡計算による反応後凝集相中のNa化合物の生成割合という2つを指標にすれば、石炭性状のみでNa放出特性を予測可能であった。一方、後者に関しては、燃焼排ガス中には集塵困難なサブミクロン以下の粒子が高濃度で存在しており、Na化合物はこのサブミクロン粒子中に凝縮し易い傾向があった。