

博士論文の要旨及び審査結果の要旨

氏名 GAO CAIYUN  
 学位 博士 (工学)  
 学位記番号 新大院博(工)第403号  
 学位授与の日付 平成26年3月24日  
 学位授与の要件 学位規則第4条第1項該当  
 博士論文名 Coal combustion in a dual-fluidized bed system under Ca-Looping process conditions  
 (Caルーピングプロセス条件での2塔式循環流動層による石炭燃焼)

論文審査委員 主査 教授・清水 忠明  
 副査 教授・木村 勇雄  
 副査 教授・金 熙濬  
 副査 教授・藤澤 延行

博士論文の要旨

この論文は Ca-Looping プロセス条件における 2 塔式流動層システム内での石炭燃焼に関する研究である。この研究は 5 つの章で行われた。第 1 章では、CO<sub>2</sub> 捕集技術に関する文献調査がまとめられた。燃焼後排ガスから CO<sub>2</sub> 捕集できる有望な方法が Ca-Looping プロセスである。このプロセスは CaO による CO<sub>2</sub> 吸収(発熱反応)と CaCO<sub>3</sub> の CaO と CO<sub>2</sub> への分解(吸熱反応)の可逆反応を用いる。このプロセスでは、石炭を CaCO<sub>3</sub> の熱分解用熱源として用いて、常圧で CO<sub>2</sub> を捕集するための流動層吸収器(炭酸化反応器)と流動層再生器の組み合わせが設計されている。しかし、再生器から炭酸化反応器へ吸収剤に伴って未反応チャー(固定炭素分)が輸送され、それが吸収器で CO<sub>2</sub> と CO を生成源する可能性があることが一つの問題である。CO 生成は排ガス中の汚染物質となり、CO<sub>2</sub> の生成は未反応 CaO を消費することで CO<sub>2</sub> 捕集効率を低下させることが懸念される。加えて、再生器での NO<sub>x</sub> 生成が考えられ、NO<sub>x</sub> は圧縮段階で硝酸を生成する可能性がある。この問題を解決するために、再生器内での石炭燃焼挙動と、再生器から吸収器へのチャーの輸送を明らかにする必要がある。

第 2 章では、Ca-Looping プロセス条件で、2 塔式流動層固体循環システムを用いて O<sub>2</sub> 富化空気中での石炭燃焼に着目した。この 2 塔式流動層システムは燃料と O<sub>2</sub> 富化空気を供給した高速流動層再生器(焼成器)と、空気を供給した気泡流動層吸収器で構成されている。再生器から吸収器へのチャーの輸送と吸収器での CO および CO<sub>2</sub> の生成を含めた石炭の燃焼挙動を評価するために、不活性な石英砂が流動媒体として用いられた。再生器での粒子循環速度と粒子滞留時間が測定され、適切な運転条件が決定された。この条件で 3 種類の石炭を用いて燃焼実験を行った。石炭の揮発分含有量が吸収器における CO と CO<sub>2</sub> の生成および、再生器からの NO<sub>x</sub> 排出に及ぼす影響が検討された。高揮発分石炭は吸収器における CO と CO<sub>2</sub> の生成を低減するためには有利であったが、燃料中窒素の NO<sub>x</sub> への転化率は低揮発分石炭の場合より高かった。

第 3 章は、O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 混合ガス中での石炭燃焼をベンチスケール 2 塔式流動層システムを用いて行った。O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 混合雰囲気を用いられた理由は、排ガスを再生器に循環することを模倣するためであり、排ガス再循環は高 CO<sub>2</sub> 濃度排ガスを得るとともに O<sub>2</sub> 富化ガス中での燃焼時にホットスポット形成を防止する目的があるためである。再生器での NO<sub>x</sub> 生成と吸収器における CO と CO<sub>2</sub> の生成が評価された。O<sub>2</sub>/CO<sub>2</sub> 混合ガス中と O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 混合ガス中の石炭燃焼の結果を比較することで、O<sub>2</sub> を希釈するガスは吸収器における CO と CO<sub>2</sub> の生

成には影響しないとわかったが、一方で再生器での NO<sub>x</sub> 生成は高炭化度炭を用いた時に影響された。

第4章では、2塔式流動層の再生器からの NO<sub>x</sub> 排出を、同一の高速流動層を持つ1塔式循環流動層燃焼装置で同じ石炭を同じ条件(温度、流動化ガス)で燃焼したほかの研究グループの結果と比較した。カルシウムルーピングプロセスを模擬した2塔式流動層は高速流動層再生器と気泡流動層吸収器を持ち、チャーの一部分が吸収器で消費されるが、一方、従来の1塔式循環流動層燃焼装置では燃焼装置を飛び出したチャーを炉内にリサイクルすることで全ての燃料が単一の流動層反応器で燃焼する。両方のシステムで、酸素富化空気を用いた燃焼をカルシウムルーピングプロセスの再生器温度条件で行った。両方の反応器で不活性な石英砂を流動媒体に用いた。同一条件では、1塔式循環流動層燃焼装置からの NO<sub>x</sub> 生成は、2塔式流動層の再生器からの NO<sub>x</sub> 生成より少なかった。炭酸化反応器からの CO<sub>2</sub> と CO の排出から、2塔式流動層の再生器でのチャー燃焼量の減少の程度を計算した。高速流動層内での燃料中 N の NO<sub>x</sub> への転化率と、燃料中の固定炭素/揮発分比率の関連を与える経験式が得られた。

第5章では、本研究の総括を行った。この研究は石炭を燃料とし CaO を吸収剤とするカルシウムルーピングプロセスの2塔式流動層の重要な技術革新をもたらした。石炭が O<sub>2</sub> 富化雰囲気下で燃焼するとき、高揮発分炭は吸収器内の CO と CO<sub>2</sub> の生成を抑制するために有利であるが、高揮発分炭の燃料中 N の NO<sub>x</sub> への転化率は低揮発分炭より高かった。O<sub>2</sub> 希釈ガス(N<sub>2</sub>あるいはCO<sub>2</sub>)は吸収器からの CO と CO<sub>2</sub> の生成には影響しなかったが、再生器からの NO<sub>x</sub> 生成については高炭化度炭で影響した。最後に、2塔式流動層と1塔式循環流動層での NO<sub>x</sub> 生成を比較することで、燃料中 N の NO<sub>x</sub> への転化率と燃料中の固定

#### 審査結果の要旨

本学位論文では、火力発電所などからの排ガスなど CO<sub>2</sub> を含むガスから CO<sub>2</sub> を選択的に分離回収するための新しいプロセスである Ca-Looping プロセスにおいて、窒素酸化物、一酸化炭素という汚染物質の発生を抑制し、なおかつ吸収剤である CaO の有効利用割合を高めるための検討課題として、再生器で用いられる燃料である石炭の燃焼に着目し、小型2塔式流動層実験装置を用いて、石炭の燃焼挙動を明らかにした。加えて、窒素酸化物の生成に大きく影響を及ぼす固定炭素分の挙動について、1塔式流動層燃焼装置との比較を行い、燃料性状と窒素酸化物の生成の関係を定量的に明らかにした。これらの成果は、新たな CO<sub>2</sub> 分離技術の発展に寄与するものとして充分評価されうるものである。

よって、本論文は博士(工学)の博士論文として十分であると認定した。