

〈研究発表〉

加圧流動層炉フリーボード部気相燃焼過程に関する詳細数値計算

北島 暁雄¹⁾, 村上 高広¹⁾, 鈴木 善三¹⁾, 山本 隆文²⁾, 折戸 敢³⁾

- ¹⁾ 産業技術総合研究所 エネルギー技術研究部門 (〒305-8569 つくば市小野川 16-1, E-mail: kitajima-a@aist.go.jp)
²⁾ 月島機械株式会社 ソリューション技術部 (〒104-0051 東京都中央区佃 2-17-5, E-mail: t_yamamoto@tsk-g.co.jp)
³⁾ 三機工業株式会社 熱エンジニアリング部 (〒242-0001 大和市下鶴岡 1742-7, E-mail: isamu_oritto@eng.sanki.co.jp)

概要

加圧型流動層炉フリーボード部の気相燃焼特性に着目し、研究室規模の試験炉および北海道長万部町の下水終末処理場内に設置された 5t/day 規模の実証炉運転時に得られた燃焼特性の実測値について詳しい解析・検討を行うため、実機に準じたモデル反応器計算系による詳細化学反応機構を考慮した数値計算を行った。特に、温度分布や N_2O の排出挙動の圧力依存性に関する数値解析的知見について報告する。

キーワード: 加圧流動層, フリーボード, 気相燃焼, 数値計算

1. 緒言

下水汚泥の排出量増加に伴い、有効な処理技術の 1 つとして、近年、焼却処理に関する技術開発が積極的に進められている。下水汚泥は含水量や N (窒素) 成分が多いため、焼却処理をする場合、安定な燃焼の維持や排出ガス清浄化などの点に技術的課題がある。そこで、著者らの研究グループでは、それらの課題に対応する有効な技術として加圧流動層燃焼に着目し、流動層燃焼炉の後段に設置された過給機を排ガスにより駆動させることで、炉内に燃焼用空気を供給し、加圧流動層燃焼を実現させる過給式流動燃焼システムを提案し、実証的研究を進めてきた¹⁾。本研究では、北海道長万部町の週末処理場内に設置された 5t/日規模の実証炉試験運転時に得られた炉内フリーボード部の燃焼特性に関する実測値、および、加圧容器内に設置された実験室規模の流動層燃焼炉による下水汚泥の基礎燃焼特性に関する実測値から得られた知見について、実機に準じたスケールの反応器モデルを対象に、詳細化学反応を考慮した数値計算を行い、特に加圧燃焼時と常圧燃焼時のフリーボード部におけるガス温度分布の違いと、温暖化ガスとして排出削減が重要な N_2O の生成挙動の変化について、現象の解析と検討を試みたので、その結果について報告する。

2. 計算方法および反応機構

本来、実証炉および試験燃焼炉では、砂層も含めた炉内全域が加圧された条件で運転されているが、混相流燃焼領域(砂層領域)を的確に再現する数値計算コードの構築には、技術的にも計算機容量的にも多くの

課題が残されており、汎用性の高いコードの確立には至っていない。そこで、本研究では、既に数値計算対象として高い信頼性が確保されている気相燃焼領域、すなわち炉内フリーボード部での燃焼に着目して計算を行うこととした。具体的には、供給される汚泥(脱水汚泥)の熱分解と補助燃料として投入される A 重油の燃焼は砂層内において完結すると仮定し、砂層上面より下流の気相反応領域のみを検討の対象とする。数値計算コードには汎用詳細化学反応計算ソフト CHEMKINIII パッケージより、一次元流通式反応器 (Plug Flow Reactor) 計算コード PLUG を用いた。化学反応機構には、 CH_4 を主燃料とした一次元層流燃焼の燃焼特性評価で実績のある GRI-Mech 2.11 (49 化学種, 素反応数 277) を用いた²⁾。各化学種の熱化学定数および輸送係数の算出には CHEMKIN サブルーチンを用いた。計算領域は、フリーボード部入口(砂層上面)を反応器入口とし、実機の炉内寸法に基づいて反応器長さを 8200mm, 反応器内径は 700mm (加圧運転用炉) および 1245mm (常圧運転用炉) の二種類に設定した。反応器内圧力については、絶対圧 0.1~1.0MPa の範囲で任意に設定して計算を行った。反応

Table 1: Estimated composition of gaseous mixture at reactor inlet

Gas	Mass [kg]
CO	8.46
CO ₂	70.04
H ₂ O	178.83
H ₂	0.24
CH ₄	5.80
N ₂	474.00
O ₂	58.17

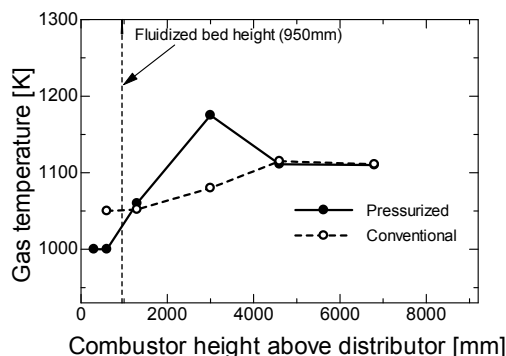


Fig.1: Typical temperature profiles measured in the pressurized and conventional combustors

器入口における気体の組成は、測定された脱水汚泥性状より、定常運転時の砂層内ガス温度実測値に基づいて、汚泥が完全に熱分解したものと仮定し、 CO 、 CO_2 、 H_2O 、 H_2 、 CH_4 、 N_2 、 O_2 を主要成分として算出したものを用いた(表1)。また反応器入口気体温度は試験運転時の砂層上面における気体温度実測値に基づいて決定し、反応器入口気体流速は、圧力条件によらず 150cm/s で一定とした。実証炉および実験室規模加圧流動層に関する装置や実験方法、実験結果などの詳細については、既報に報告されている¹⁾

図1に加圧運転時(絶対圧 0.2MPa)および常圧運転時(絶対圧 0.1MPa)に実測された炉内気体温度分布の一例を示す。投入汚泥の含水量などを一定に制御することが難しいため、温度測定時には定量値にばらつきがみられたものの、図に示されているように、定性的には加圧した場合の方が炉内における温度上昇領域の軸方向温度勾配が増大し、常圧運転時に比べ、最高温度到達位置が上流側に移動する傾向があること、また、常圧運転時には、最高温度到達後、下流での温度変化が小さいのに対し、加圧運転時には、最高温度到達後、下流に向かって気体温度が顕著に低下していく傾向があることが明らかとなった。そこで、本研究では、圧力条件の違いに起因した、上述のフリーボード内気体温度分布の変化に着目し、詳細化学反応を考慮した数値計算結果から、本現象に関する検討、考察を行う。

3. 数値計算結果

3.1 炉内温度分布

図2に、断熱条件で計算を行った反応器内軸方向気体温度分布を示す。図中、縦軸は気体温度、横軸は反応器入口からの軸方向距離であり、実線は絶対圧 1.0MPa 、破線は 0.2MPa 、一点鎖線は 0.1MPa の結果をそれぞれ示す。図より、加圧によって温度上昇領域の軸方向温度勾配が増大すること(温度上昇が速やか

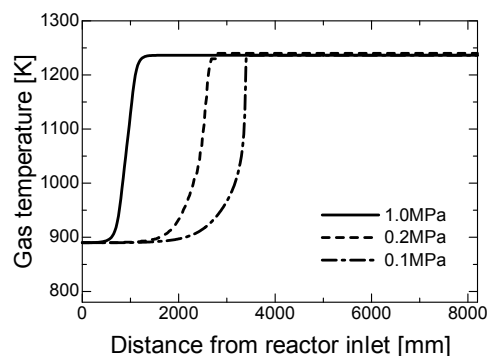


Fig.2: Calculated temperature profiles in the reactor under adiabatic condition

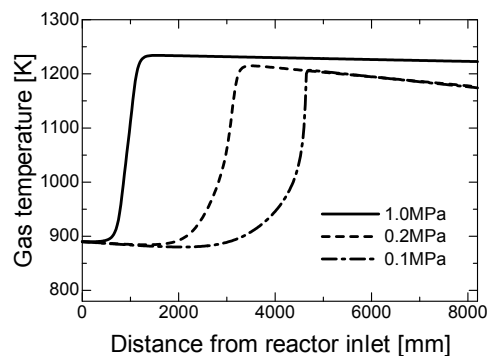


Fig.3: Calculated temperature profiles in the reactor with considering overall heat transfer

になる)、また、温度上昇領域自体も上流側に移動し、最高温度到達点为上流方向に移動する傾向が、本計算結果においても存在することがわかる。すなわち、フリーボード部温度上昇領域における、加圧による温度分布の変化に関しては、本計算によって定性的に再現できていると考えられ、気相燃焼の進行に対する加圧の影響が、炉内温度分布の変化に直接的に関連している可能性を示唆している。一方、加圧運転時の実測温度分布において顕著であった、最高温度到達後の気体温度の低下領域は確認することができない。そこで、反応器から系外すなわち周囲雰囲気への熱移動を考慮し、雰囲気温度 360K (実証炉近傍の実測値)を与え、反応器と雰囲気間の総括熱伝達率を $h=2.8\text{W}/(\text{m}^2\text{K})$ として新たに計算を行うこととした。その際、実機運転条件に基づき、常圧条件では反応器内径を $d=1245\text{mm}$ とし、加圧条件では $d=700\text{mm}$ として計算を行っている。図3に計算結果の一例を示す。図に示されているように、系外への熱伝達を考慮すると、圧力条件によらず、反応気体は最高温度到達後、下流に向かって徐々に温度が低下するという計算結果が得られた。さらに、最高温度到達後の温度低下率(軸方向温度勾配)は、前述の熱伝達条件が同一の場合、炉内径が小さい程、顕著となることが併せて行った計算の結果から確かめられた。このことから、図1に示した炉内気体温度分

布の実測時に、最高温度到達後の温度低下は加圧運転時の方が顕著であったことの一因には、雰囲気への熱輸送と関連した炉内径の違いの影響を挙げることができる。さらに、図2と図3の各圧力条件における気体温度分布を比較すると、0.1MPaでは、図2に示された断熱条件と、図3に示された反応器系外への熱伝達を考慮した場合とでは、気体温度分布に大きな違いがあるのに対し、加圧下では、圧力の増大に伴って、断熱条件と熱伝達を考慮した場合との温度分布の差が小さくなり、特に1.0MPaでは、温度分布に殆ど差がみられない。このことは、加圧運転では、炉内フリーボード部の燃焼領域における、炉壁面を通じた系外への熱伝達に起因する熱損失の影響を、相対的に小さくできる可能性を示唆していると考えられる。

次に、加圧下において、温度上昇領域における軸方向温度勾配が増大し、温度上昇領域自体が上流側に移動する現象について詳しい検討を加えるため、燃焼における化学反応からの熱の生成挙動に着目する。図4に、雰囲気温度360K、反応器と雰囲気間の総括熱伝達率を $h=2.8\text{W}/(\text{m}^2\text{K})$ として計算を行った場合の、全素反応過程に基づいた総括熱発生率の軸方向分布の一例を示す。図に示されているように、反応器内圧力の増大に伴って、総括熱発生率は著しく増大し、また、化学反応からの顕著な熱発生がみられる領域も上流側に移動するという結果が得られた。図3に示した同じ条件における気体温度分布との比較から明らかな通り、温度上昇領域の圧力依存性の傾向と、化学反応に起因する熱発生領域の圧力依存性の傾向は対応しており、したがって、反応器内圧力の変化が温度上昇領域の挙動に与える影響は、圧力変化によって化学反応過程からの熱発生挙動が影響を受けることに起因していると考えられる。そこで、考慮した全ての素反応について、総括熱発生率に対する寄与を調べた結果、GRI-Mech 2.11を用いた本計算においては、(R35)、(R46)、(R87)、(R101)、(R119)、(R120)、(R168)の7本の素反応が支配的であり、特に、R35は熱発生領域における総括熱発生率への寄与が、約50%以上であることがわかった。R35は下記の素反応である。

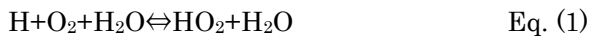


図5にR35の熱発生率軸方向分布を示す。図より、図4に示した総括熱発生率の反応器内圧力依存性と極めてよく似た傾向を示しており、総括熱発生率の挙動には、R35の熱発生挙動が支配的に影響を与えていることがわかる。R35は式1に示したように、三体であるH₂Oの存在下で、HとO₂からHO₂が生成される素反応である。HO₂の生成、消費に関連する素反応群は全体に熱発生率が大きく、また、圧力依存性が高いこ

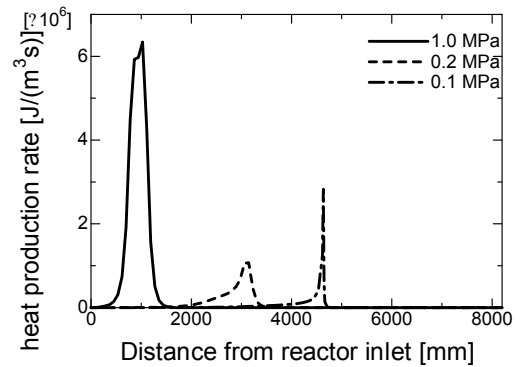


Fig. 4: Heat production rate profiles in the reactor with considering overall heat transfer

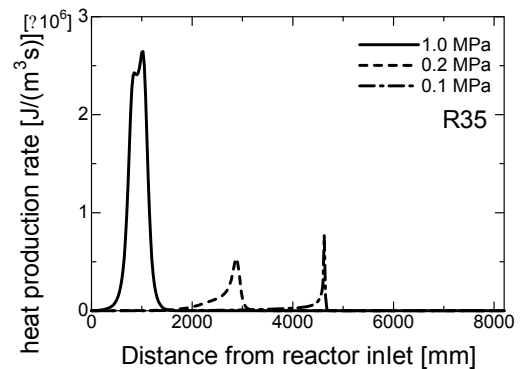


Fig. 5: Heat production rate profiles of R35 in the reactor with considering overall heat transfer

とは以前から知られており、なかでも、式1の三体反応の影響が非常に大きいことが、近年、高压燃焼に関する化学反応動力学の観点からも指摘されており³⁾、本計算結果が示す炉内フリーボード部における総括熱発生率と温度上昇領域の挙動における圧力依存性は、主として、式1の三体反応による熱発生挙動の圧力依存性に支配されており、さらに、温度分布の実測値と比較しても、温度上昇領域の圧力依存性に関する計算結果は、定性的によく対応がとれていることから、実測温度分布の圧力依存性に大きな影響を与える可能性のある素反応として式1の関与が重要である可能性が高いと結論づけることができる。

3.2 N₂O 生成挙動

N₂Oは、地球温暖化ガス排出削減の観点から非常に重要な物質である。汚泥焼却においては試料にNの含有量が多いことから、焼却処理過程に伴う排出量の低減は重要な技術的課題となる。当研究グループの実証炉においては、煙道出口付近での測定において、0.2MPa程度の加圧条件で、N₂O排出量を常圧運転時の50%以下に抑制できることが明らかとなっている。燃料過程に伴う窒素酸化物の生成挙動に関しては、化学反応動力学的に未成熟であり、気相燃焼全般に適用可能な汎用性の高い反応機構の構築には至っていない

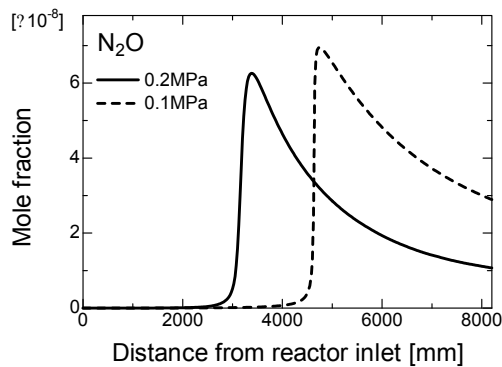


Fig.6: Mole fraction profiles of N_2O in the reactor with considering overall heat transfer

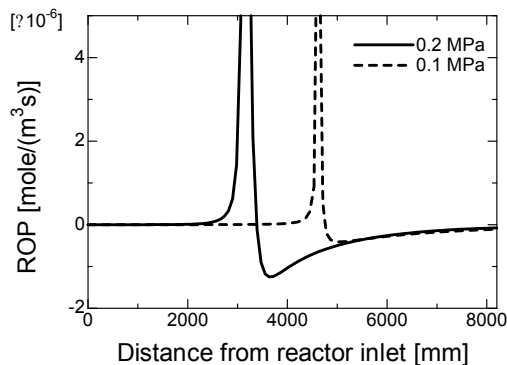


Fig.7: Calculated profiles of rate of production for N_2O in the reactor with considering overall heat transfer

が、GRI-Mech 2.11 には N_2O の生成消費に関する反応機構が含まれている。そこで、本研究では、 N_2O 排出量の圧力依存性に関する簡単な検討を試みた。図 6 に、雰囲気温度 360K、反応器と雰囲気間の総括熱伝達率を $h=2.8W/(m^2K)$ として計算を行った場合の反応器内 N_2O モル分率の軸方向分布を示す。図中、実線が 0.2MPa、破線が 0.1MPa の計算結果である。その他の計算条件は温度分布の計算条件と同様である。図より、 N_2O モル分率は反応器内の温度上昇領域近傍で増大し、その後、下流に向かって徐々に減少するという結果が得られたが、0.2MPa、0.1MPa の場合ともに、反応器出口付近でモル分率の減少が進行している結果となっており、本計算条件では、反応器内において N_2O に関連する反応が完結していないと考えられる。図 7 に、 N_2O の総括生成率の軸方向分布を示す。図より、0.2MPa、0.1MPa の場合ともに、反応器出口付近において総括生成率は負の値を示しており、 N_2O の消費（分解）反応が進行していることを裏付けている。しかし、加圧条件では 0.1MPa の場合と比較して、総括生成率が温度上昇領域近傍で正の最大値をとった直後に、負の値が顕著な領域、すなわち、消費反応が非常に活発な領域が存在している。結果として、 N_2O モル分率の変化については、図 6 に示されているように、加圧条件の方が最大値をとった直後の減少が急激であ

る。ここで、GRI-Mech 2.11 における N_2O に関連した素反応は 7 本あるが、主要な反応は下記に示す R185 であり、総括生成率に対する寄与は約 90%以上である。



したがって、実測された加圧運転時における煙道出口付近での N_2O 排出量低下は、本計算結果を考慮するならば、 N_2O の生成に関わる素反応のうち、特に式 2 に示した R185 の圧力依存性に起因して、温度上昇領域（最高温度到達領域）近傍で生成量が最大となった直後に、消費量が著しい領域を経ることで引き起こされる可能性が考えられる。式 2 は、式 1 と同様に三体反応であり、三体存在しない環境では N_2O の分解方向に反応が進行する。このことから、主要な燃焼反応の完結と同時に、R185 において三体となる物質が完全に消費され、結果として、最高温度到達後は N_2O が分解する方向に反応が進んでいくことが考えられるが、前述の通り、窒素酸化物の生成挙動に関しては、化学反応論的にまだ成熟しておらず、本計算結果による解釈は、3.1 項で述べた温度分布に関する検討と異なり、あくまでも 1 つの可能性を論じた推察にすぎない。今後の窒素酸化物に関する生成機構の発展により、さらに正確な解釈が可能となることが気体される。

4. 結言

一次元流通式反応器計算コードを用いて詳細化学反応を考慮した数値計算を行い、下水汚泥焼却用加圧流動層燃焼炉フリーボード部で測定された、圧力変化が気体温度分布に与える影響、および N_2O 排出挙動与える影響に関して検討を加えた。その結果、実測された加圧に伴う温度上昇領域の軸方向温度勾配の増大、および温度上昇領域の上流側への移動は、 HO_2 に関する特定の素反応の活性化に伴う熱発生率の増大と熱発生領域の上流側への移動によって矛盾なく説明できること、最高温度到達後の温度変化には、系外への熱移動に起因して、炉内径が大きな影響を与える可能性が明らかとなった。また、 N_2O の排出に関する圧力依存性については、 N_2O に関する特定の素反応の圧力依存性が原因である可能性が明らかとなった。

参考文献

- 1) 村上高広ほか 7 名: 過給式流動炉実証プラントにおける下水汚泥の燃焼特性評価, 高温学会誌, Vol.35, No.2, pp.81-84 (2009)
- 2) C.T. Bowman, et al., http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/
- 3) 日比數士ほか 6 名: 高圧条件下において利用可能な酸水素詳細化学反応モデルに関する研究, 第 47 回燃焼シンポジウム講演論文集, pp.618-619 (2009)