

微粉炭燃焼ボラタイル NO_x 生成・消滅の素反応モデルの検討

Elemental chemical reaction model of volatile NO_x in pulverized coal combustion

後藤 ゆき乃^{1*}・神原 信志¹
GOTO Yukino^{1*}, KAMBARA Sinji¹

¹ 岐阜大学 〒501-1193 岐阜県岐阜市柳戸1-1
Gifu University, 1-1 Yanagido, Gifu, Gifu, 501-1193, Japan

Abstract : In pulverized coal combustion, generation and consumption of volatile NO_x at the initial stage of combustion is important. The purpose of this research is to establish reaction model of volatile NO_x formation. The amounts of volatile N, HCN and NH₃, were input as the influence of coal types. NO_x concentrations in one dimension furnace were estimated using the proposed model, and compared with experimental results. The set parameters had a strong influence on NO_x production.

Keywords : Reaction mechanism, Volatile NO_x, simulation

1. 緒言

種々の燃焼プロセスから排出される窒素酸化物 (NO_x) は、酸性雨、光化学スモッグの原因となるため、国内外を問わずその排出規制が強化・拡大されている。石炭燃焼において環境問題に即する高効率燃焼を実現するためには、燃焼生成物の発生する機構を解明する必要がある。

微粉炭燃焼において発生する NO_x は、主にボラタイル N (Fuel N) の酸化・還元によって決定されると考えられており、特に燃焼初期段階における NO_x 生成・消滅反応の解明が重要である。ボラタイル NO_x の反応メカニズムを明らかにすることで NO_x 生成量を予測できること、ひいては排出量抑制の手段を開発できることが期待される。

本研究では、微粉炭燃焼におけるボラタイル NO_x 生成に強く影響を及ぼすパラメータを探索する事を目標とし、これまでに提案された NO_x の生成・消滅素反応モデルを用いて 1 次元での素反応シミュレーションを行い NO_x の生成量を推定し、検討を行った。

2. 素反応シミュレーションの準備

ソルバーとして汎用の化学反応解析ソフトウェア ANSYS Chemkin 18.2 を使用した。気相反応モデルには NO_x 生成・消滅反応モデル [1] を用いて、素反応シミュレーションを行った。

反応モデルには Plug Flow Reactor (PFR) を用い、初期条件として燃焼炉の距離 (950 mm)、直径 (300 mm)、ガス流量 (674 L/min)、温度分布、模擬ガスの初期組成を与えた。

本研究においては CH₄ を燃料とし、燃焼によって生成する揮発性の N 成分は HCN, NH₃, N₂ として与えた。NO_x 生成・消滅反応に寄与するのは HCN と NH₃ である。Fig.1(a), (b) は、炭種 A~T の熱分解温度に対する HCN, NH₃, N₂ それぞれの収率の変化である [2]。この結果をもとに設定温度での HCN, NH₃, N₂ 量を決定し、初期組成とした。

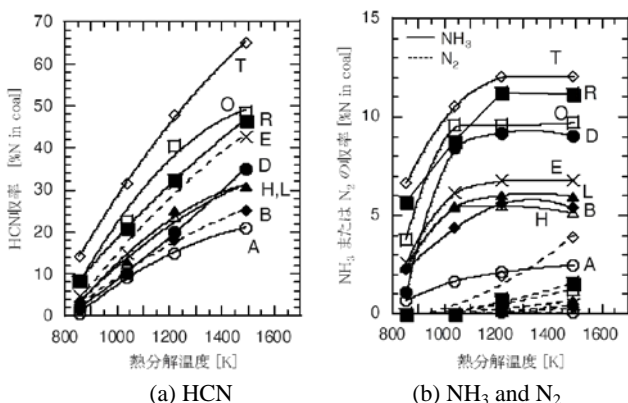


Fig.1 Yields of volatile nitrogen at various pyrolysis temperature

Table 1 に初期設定したガス組成と炉入口から出口までの温度分布 (実測値) を示す。温度分布はガス流入口から 0.1 m ごとに設定した。

Table 1 Gas composition for initial input data

N ₂	0.395446319	HCN	0.00110725
O ₂	0.395446319	NH ₃	0.000390794
CH ₄	0.207609318		

[m]	0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	0.9	0.95
[K]	700	1050	1115	1120	1100	1000	900	850	840	830	825

3. 素反応シミュレーションの結果

Fig. 2 には炉長 (バーナー先端からの距離) に対する各組成の変化挙動を示す。酸素はバーナー近傍で急激に消費され、0.5 m 付近で一定となった。燃料である CH₄ もほぼ同様の挙動で完全燃焼した。

Fig. 3 には NO の変化挙動を示す。NO は 0.2 m 付近で急激に生成し、0.5 m 付近でピーク濃度となったのち、還元反応により減少する結果となった。これは燃焼実験の結果と近似する結果である [2]。これより定義した Volatile NO_x 生成・消滅反応はある程度信頼性があると評価し、次に Volatile NO_x 生成に寄与するパラメータを探索した。

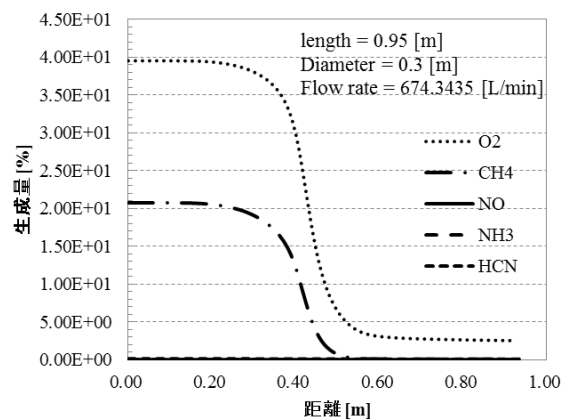


Fig. 2 All materials simulation result.

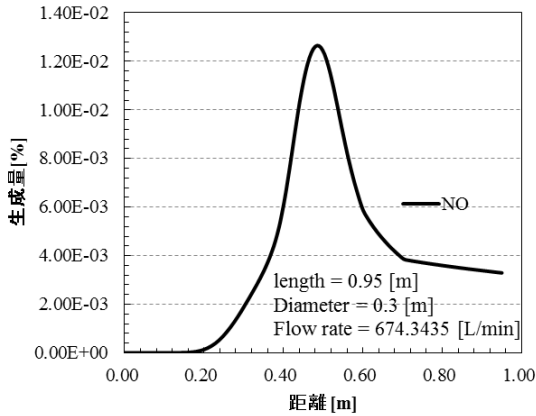


Fig. 3 Simulation result of NO formation.

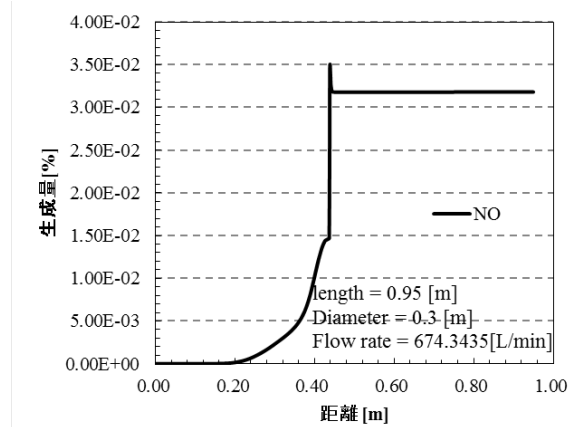


Fig. 6 Simulation result of high temperature.

4. 結果および考察

4.1. NH₃, HCN 組成の影響

Fig. 4に燃料中空素の初期組成として与えたNH₃, HCN量を変化させた結果を示す。この図ではモル分率をNH₃ 0.000661とし, HCN 0.000807とした結果がある。Fig.3と比較すると大きな変化が見られ, Fuel N組成はVolatile NO_xを考える上で重要であることが分かった。

Fig. 5はFig. 3, Fig. 4の条件におけるNO生成反応に大きく寄与する素反応である。NO消費反応に変化は見られないがFig. 3の反応において生成反応の種類が増加し, 一度増加したNOが減少する事は無く増え続ける結果となったと考えられる。

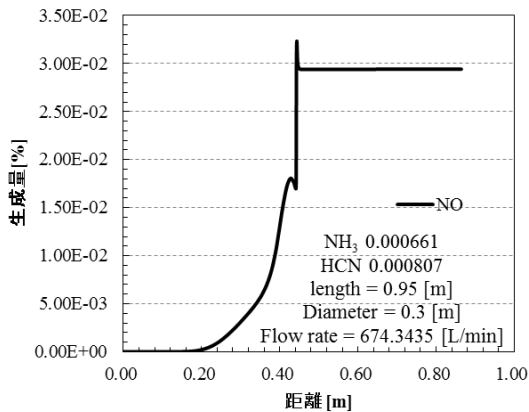


Fig. 4 Simulation result of high NH₃ mol fraction..

Table 2 Temperature distribution

[m]	0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	0.9	0.95
[K]	700	1050	1120	1130	1100	1000	900	850	840	830	825

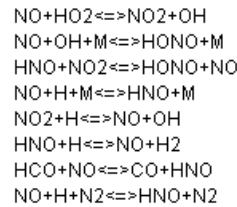


Fig. 7 Important elemental reactions for temperature

4. 結言

微粉炭燃焼におけるボラタイルNO_x生成に強く影響を及ぼすパラメーターを探索する事を目標とし, 過去に提案したNO_xの生成・消滅素反応モデルを用いて1次元での素反応シミュレーションを行いNO_xの生成量を推定し, 検討を行った。

NH₃, HCNの組成, 温度分布がVolatile NO_x生成・消滅に関して重要なパラメーターであることがわかった。

参考文献

- Peter Glarborg, Maria U. Alzueta, Kim Dam-Johansen, Combustion and flame 115:1-27 (1998)
- 神原信志, 宝田恭之, 中川紳好, 加藤邦夫, 化学工学論文集 19(3):496-504 (1993)

謝辞

本研究を行うにあたり, ご協力いただいた神戸製鋼所 清水努氏に感謝する。

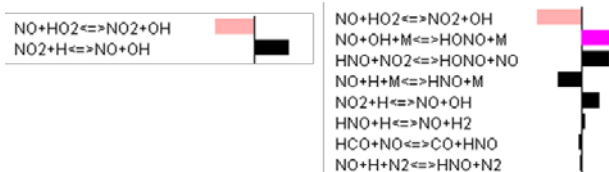


Fig. 5 Important elemental reactions for fuel N species (Left is for Fig. 2, Right is for Fig. 3)

3.2. 温度分布の影響

Fig. 6に温度分布を変化させた結果を示す。Table 2は変化させた温度分布である。初期の温度分布と比較して温度が最大になっている位置の温度を最大10 K大きくしたが非常に大きく変化を示した。

Fig.7は温度分布を変化させた時, NO生成反応に大きく寄与する素反応である。温度変化によってNH₃, HCNがNOに酸化・還元する量が大きく変化することがわかった。以上から, Fuel N成分の組成と反応管内の温度分布を正確に予測出来れば実炉のNO生成量を精度良く推測できると考えられる。