

有害成分乾式同時除去用複合化粒子の調製と高温脱硫特性

(東農工大 BASE) (学)阿部匡悦・(学)米持雄一・(正)塚田まゆみ・(正)神谷秀博*
(岐阜大院) (正)神原信志・(正)守富寛・(電源開発)上原隆志

1. 緒言

石炭ガス化燃料電池発電システムにおいて、燃料電池電極の保護のため、 H_2S やアルカリ金属、重金属など有害成分を除去する必要がある。ガス精製には現在、湿式精製法が用いられているが、室温付近まで冷却するため熱ロスが大きく、廃液の処理に多くのプロセスとエネルギー消費を伴う。熱ロスが少ない乾式精製プロセスは、乾式脱硫剤として脱硫時の炭素析出や焼結防止を目的に SiO_2 ナノ粒子を複合化した酸化鉄、亜鉛フェライト¹⁾ や脱アルカリ剤としてカオリン等²⁾ が繰返し利用可能な吸収剤として開発されている。

本研究は、脱硫・脱アルカリ機能を有する粒子を液相合成法及び物理的手法により複合化し、 H_2S やアルカリ金属など有害成分の同時除去法の確立を目的とした。粒子複合化による脱硫剤反応時の焼結等の防止機能を確認するため、複合化粒子の脱硫特性を評価した。

2. 実験方法

2.1 液相合成法による複合化粒子の調製

1.5 M 硝酸鉄水溶液、およびそれに 1.5 M 硝酸亜鉛水溶液を 2 : 1 に混合した溶液にアルカリ・重金属吸収能力のあるカオリナイト、セピオライト ($Mg_8Si_{12}O_{30}(OH)_4(OH)_4 \cdot 6H_2O$) または活性白土粒子を分散させた。この溶液中に 4.5 M アンモニア水を添加し、313 K で 1 h 熟成して酸化鉄、亜鉛フェライト前駆体を共沈物として得た。洗浄・遠心分離した固形分は 373 K で 24 h 乾燥し、1073 K で 5 h 焼成した。

2.2 物理的手法による複合化粒子の調製

複合化母剤粒子として球形シリカ(電気化学工業 FB-74 平均粒径 31.6 μm)とアロフェン(品川化成 セカード KW)を用いた。脱硫剤として酸化鉄(平均粒径 0.33 μm)、重金属、アルカリ金属等の除去剤としてカオリン(平均粒径 0.86 μm)をジェットミル粉砕し、シータコンポーザ(徳寿工作所 THC-Lab 型)により複合化を行った。母剤のシリカ粒子と有害成分除去粒子の比率(5 or 10 %)およびシータコンポーザの回転数(3000 or 5000 rpm)により複合状態を変化させた。

2.3 複合化粒子の構造分析及び脱硫試験

調製複合化粒子の微構造は FE-SEM, XRD により観察した。脱硫実験は調製した複合粒子を石英ガラス管に 1 g 充填し、模擬石炭ガス化ガス(H_2 2%, H_2S 1000ppmv, N_2 balance)を 673 K で粒子層を通過させガス中の H_2S 濃度の経時変化を FT-IR(Termo Electron Nexus 470)のガスセルにより測定した。

3. 結果及び考察

3.1 液相合成法により調製した複合化粒子の評価

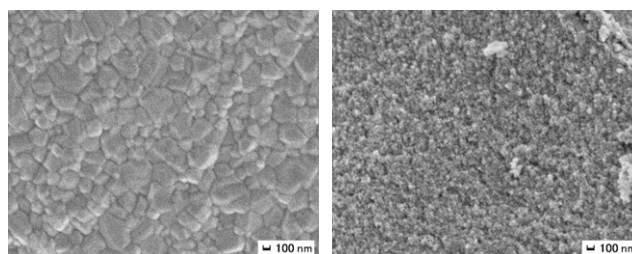
活性白土の添加の有無による亜鉛フェライト粒子の FE-SEM 観察した結果を Fig.1 に示す。セピオライト、活性白土粒子を添加して合成すると未添加に比べ酸化鉄、亜鉛フェライトとともに粒子が微細化した。Fig.2 の XRD 分析から 25%活性白土を添加して亜鉛フェライトを合成した場合でも亜鉛フェライト相とともに活性白土結晶相が認められ、フェライト合成時の高アルカリ下でも活性白土粒子は構造を維持し、目的とした複合化粒子が合成できることが確認された。

3.2 物理的手法により調製した複合化粒子の評価

回転数 5000 rpm で作成した粒子を FE-SEM で観察した結果、母剤粒子表面全体に脱硫剤および脱アルカリ剤が被覆されていることが確認された。

4. 結論

液相合成法及び物理的方法ともに、各成分吸収機能を有する複合化粒子の調製が可能であることが確認された。特に脱アルカリ剤存在下で、脱硫剤を液相合成すると脱硫剤粒子の微細化が確認され、各粒子の脱硫及び脱アルカリ特性が評価できた。



(a) Without addition (b) Activated clay addition

Fig.1 FE-SEM image of zinc ferrite particle

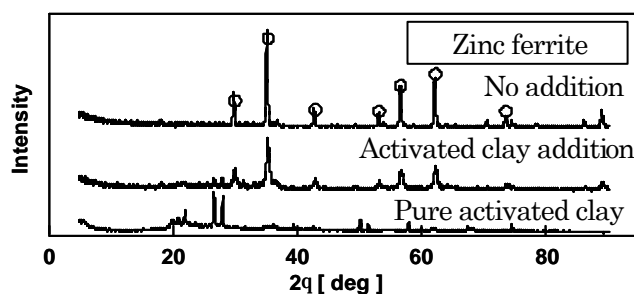


Fig.2 XRD Analysis

5. 引用文献

- 1) 白井裕三, 名古屋大学学位論文 (2002)
- 2) S. Q. Trun et al, J. Inst. Energy, **71**, 163 (1998)

*Tel:042-388-7068 Email:kamiya@cc.tuat.ac.jp