

炭種の影響を考慮した微粉炭燃焼 NO_x 生成・消滅のメカニズムの検討NO_x formation and reduction mechanism including effect of coal types during pulverized coal combustion石川 和成¹・神原 信志^{1*}・早川 幸男¹・清水 努²ISHIKAWA Kazunari¹, KAMBARA Sinji^{1*}, HAYAKAWA Yukio¹, SHIMIZU Tsutomu²¹ 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

² (株) 神戸製鋼所 〒651-2271 神戸市西区高塚台1-5-5

Kobe Steel, Ltd., 1-5-5 Takatsukadai, Nishi-ku, Kobe, 651-2271, Japan

Abstract : In order to predict NO_x formation and reduction in a pulverized coal combustion, the effect of coal types, an elementary reaction model, and a reactor network model were studied. NO_x formation profiles in a tube furnace and a turbulent flow furnace were compared with simulation results. Calculated NO_x peak concentrations for two different coals were good agreement with the actual concentrations, however, the actual NO_x profiles in the early stage and the reduction stage during combustion did not match the simulated NO_x profiles. It was found that the NO_x formation profiles greatly depend on the reactor network configuration. The technical issues in this study are to establish an optimal reactor network model and to improve the rate constant of the important elementary reactions in the NO_x reduction stage.

Keywords : NO_x, pulverized coal combustion, coal type, reactor network model, elementary reaction model

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、環境負荷物質であり、健康影響も懸念されるため、その排出規制は世界的に強化されている。微粉炭燃焼における NO_x 生成・消滅に関する研究は、1970 年代から国内外で積極的に行なわれ、1990 年には選択的触媒脱硝法 (SCR) や選択的無触媒脱硝法 (SNCR) が確立した¹⁾。しかし、最近の NO_x 濃度規制はより厳しい方向 (低濃度規制) にあることから、低 NO_x 燃焼技術開発をさらに推進する必要がある。

微粉炭燃焼において低 NO_x バーナーで発生する NO_x は、石炭中の窒素分 (Fuel N) が主な起源であるが (Fuel NO_x)、その発生濃度は燃焼中に揮発する窒素分 (Volatile N) の酸化・還元反応に支配される²⁾。Volatile N の組成はシアン化水素 (HCN) とアンモニア (NH₃) が主であり³⁾、炭種によって Volatile N 量、HCN 量、NH₃ 量が異なるため、NO_x 排出濃度は炭種の影響を強く受ける⁴⁾。

HCN と NH₃ の酸化・還元反応を組み込んだ NO_x 生成・消滅の素反応モデルは、Miller and Bowman モデル⁵⁾を基盤として Glarborg モデル⁶⁻⁸⁾として発展してきた。これらの素反応モデルを用いて実ボイラでのシミュレーション手法を確立できれば、炭種の影響を考慮した微粉炭燃焼での NO_x 発生濃度を精度よく予測するとともに、さらなる低 NO_x 燃焼へのアプローチが可能となる。

3次元熱流体シミュレーションによって実ボイラにおける NO_x 濃度予測法が積極的に開発されているが、計算収束の観点で詳細な素反応モデルを適用するには限界がある。本研究では、乱流燃焼場で炭種別の NO_x 生成濃度を精度よく簡便に予測する手法を開発することを目的に、NO_x 生成・消滅反応場をいくつかの反応器でネットワーク化したモデルを適用することを検討した。

2. シミュレーション方法

2.1 炭種の影響パラメータ

炭種の影響パラメータとして、Volatile N の組成である HCN と NH₃ の生成量を考える。

炭種によるこれらの生成量は、熱分解実験によってすでに求められている⁴⁾。素反応シミュレーションにおいて HCN, NH₃ 量を初期値として与えることで、NO_x 生成・還元反応速度に影響し (Fig.1)、炭種の影響を表現できると考えた。

2.2 素反応モデルと反応器モデル

素反応モデルは HCN と NH₃ に関する素反応が充実している Glarborg モデル⁶⁻⁸⁾を基盤として、微粉炭燃焼用に改良したモデルを使用した。改良点は前報で述べた⁹⁾。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。

反応器モデルは一般的に1つの流通反応器 (Plug Flow Reactor: PFR) を用いて、温度と滞留時間、燃料組成を初期値として与えて素反応計算を行うが、微粉炭燃焼のように燃焼初期で急激な温度上昇があり、かつ NO_x 生成・還元反応速度が速い系では、単一の反応器モデルでは適さないことがわかっている⁹⁾。そこで完全混合反応器 (Perfectly Stirred Reactor: PSR) をいくつか組み合わせ合わせた完全混合槽列モデルとし、特に燃焼初期段階で PSR 反応器を多数配置することで NO_x 生成・還元挙動を精度よく予測できようになる。

Fig.2 はガスタービンの燃焼解析に用いられた反応器モデルの例である¹¹⁾。燃料と空気の混合域を PSR1 とし、燃焼域を PSR2、循環流を PSR3、燃焼域後流を PFR1 とし、4つの反応器でモデル化 (リアクターネットワークモデル) した例である。本研究では、まず層流炉のリアクターネットワークモデルを構築し、NO_x 濃度の予測精度を確認した。次に乱流炉のリアクターネットワークモデルについて検討した。

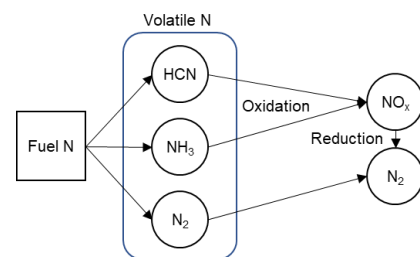


Fig. 1 Parameters of coal types on NO_x formation and reduction.

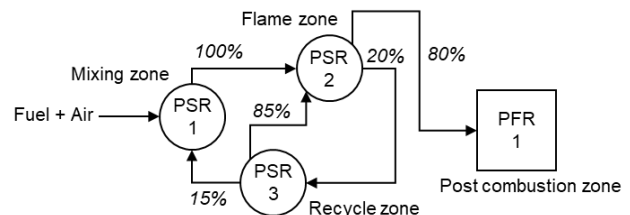


Fig.2 Example of reactor network model on a gas turbine¹¹⁾.

3. 結果および考察

3.1 層流炉

外熱式層流炉 (反応管内径 52 mm, 長さ 1396 mm) を用いて、炉温を 1200°C または 1400°C に設定し、微粉炭を 1.8 g/min, 空気比 1.0 でシングルバーナーから投入し、生成ガス分布 (NO_x,

CO, CO₂, O₂) を測定した。

Fig.3 に示すように6つのPSRで反応器モデルを構成し、実際の温度分布と使用した石炭のHCN, NH₃量および空気量を入力してNO_x生成挙動をシミュレーションした結果および実験値との比較をFig.4に示す。

NO_xは着火後急速に生成し、ピーク濃度に達した後、還元反応により減少に転じる挙動を示す。シミュレーション値は、バーナーからの距離0~0.4 mまでのピーク濃度とその後の還元挙動を良く表現できているものの、距離0.4 m以降は計算値と実験値の間に差異が生じた。この原因は2つ考えられ、1つは反応器モデルの構成(特に空気の入出口の数と分配方法)であり、もうひとつはNO_x還元反応に関する素反応の速度定数である。

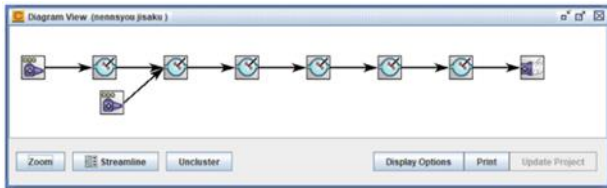


Fig.3 The reactor network model for the tube furnace.

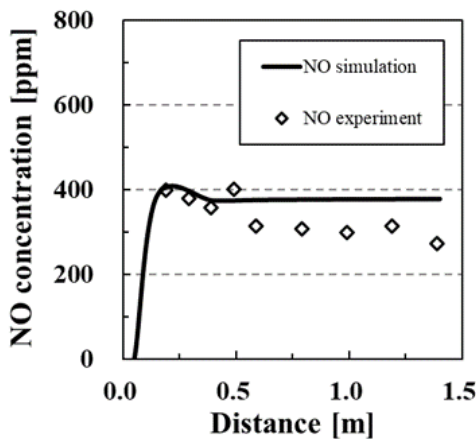


Fig. 4 Comparison between experimental data and simulation results for the tube furnace.

3.2 乱流炉

乱流炉の詳細は文献10にある。乱流炉内の流れの様子を予想し、Fig.2の考え方で複数のPSRでリアクターネットワークモデルを構成した。NO_x生成挙動はPSRの構成と空気流入の設定および空気流入割合に大きく影響された。

Fig.5は乱流炉を模擬したネットワークモデルでNO_x生成・消滅挙動をCoal Aについてシミュレーションした結果である。概ね実験値とシミュレーション値は一致したが、NO_xの立ち上がり領域(バーナーから0~0.2 m)およびNO_xがピークに達した後の挙動(バーナーから0.6 m以降)に差異が生じている。これらの原因は、Fig.4で述べた要因によるものと考えられ、今後、さらに検討を続ける必要がある。

3.3 炭種の影響

NO_x立ち上がりと還元領域に課題があるものの、HCNとNH₃量で炭種の違いを表現できるかシミュレーションを行った。Fig.6はCoal Bについての計算結果と実験結果の比較である。Coal BはCoal Aに比較してVolatile Nが多く、HCN, NH₃量ともにCoal Aよりも多い(Table 1)。そのためCoal BのNO_xピーク値はCoal Aよりも高くなり、実験値とも一致する結果となった。ただし、ピーク後の還元領域においては実験値と計算値の乖離が大きく、NO_x還元反応に関する素反応の速度定数の検討が必要であると思われる。

4. 結言

炭種の影響を考慮したNO_x濃度予測ツール(1D CAE ツール)

を開発することを目的に、素反応モデルと反応器モデルについて検討を行った。リアクターネットワークモデルの構成によって、NO_x生成プロファイルは大きく変化することがわかった。最適なリアクターネットワークモデル構成法の確立および還元領域の速度定数の検討が課題である。

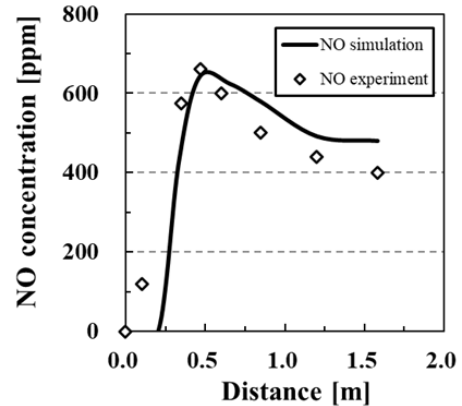


Fig.5 Comparison between experimental data and simulation results for coal A in the turbulent flow furnace.

Table 1. The amount of HCN and NH₃ for coal A and B. (Unit is mole fraction. Total mole fraction is 1.0.)

Coal	HCN	NH ₃
A	0.00129	0.000274
B	0.00219	0.000553

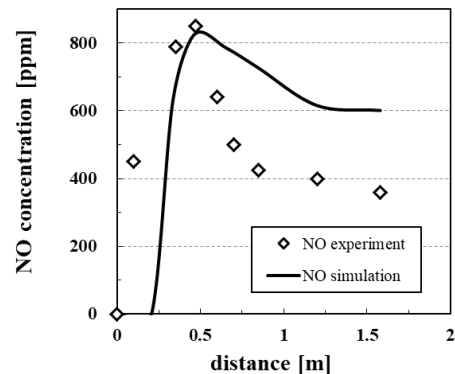


Fig.6 Comparison between experimental data and simulation results for coal B in the turbulent flow furnace.

参考文献

1. Javeda MT, Irfana N, Gibbs BM., J. Environment Manage., 83, 251-289, 2007.
2. Fenimore, C.P., Combust. Flame, 26, 249, 1976.
3. 神原信志, 宝田恭之, 中川紳好, 加藤邦夫, 化学工学論文集, 18(6), pp.920-927, 1992.
4. 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), pp.496-504, 1993.
5. Miller, J.A., Bowman, C.T., Prog. Energy Combust. Sci., 15: 287-337 (1989).
6. Glarborg, P., Alzueta, M.U., Dam-Johansen, K., Miller, J.A., Combust. Flame, 115:1-27 (1998).
7. Skreiberg, Ø., Kilpinen, P., Glarborg, P., Combust. Flame, 136:501-518 (2004).
8. Glarborg, P., Miller, J.A., Ruscic, B., Klippenstein, S.J., Progress in Energy and Combustion Science, 67, 31-68 (2018).
9. 後藤ゆき乃, 神原信志, 第56回燃焼シンポジウム講演論文集, B312, 大阪 (2018).
10. S. Kambara, T. Takarada, M. Toyoshima, K. Kato, Fuel, 74(9), pp.1247-1253, 1995.
11. Outline of CHEMKIN-Pro, Ryoka Systems Inc., 2012.