報 文

都市固形廃棄物の熱分解溶融プロセスの
物質、熱収支モデル

Mass and Heat Balance Model of Pyrolysis and Melting Process

片 柳 健 一* 平 岡 正 勝**

Pyrolysis and melting processes for municipal refuse treatment have been developed as an alternative of incineration process for decreasing several pollution problems caused in the incineration process. The plants of pyrolysis and melting process developed by Nippon Steel Co., Ltd. are already in operation at Ibaraki City and Kamaishi City. The plant based on purox process, one of the pyrolysis and melting process developed by showa Denko Co., Ltd. and Union Carbide Co., Ltd., started operation on November of 1981 at Chichibu City. For evaluating these pyrolysis and melting processes in terms of the alternatives of incineration process, the authors built the mass and heat model covering these processes based on gasification theory by use of experimental data of bench scale pyrolysis equipment and simulated the operation of plant by varying the operating factors. The model proposed by the authors was effective for evaluating the pyrolysis and melting process by comparing the simulation results and the observed operating data.

1. はじめに

現在、都市固形廃棄物（以下、都市廃棄物）の処理プロセスとしては、焼却処理プロセスが主流を占めるに至っている。焼却処理プロセスは、都市廃棄物のような水分を含む有機性物質を主体とする固形廃棄物を短時間に減容、安定化し、熱エネルギーを直接回収するにはすぐれた処理プロセスであるが、焼却に伴う大気汚染、水質汚濁および残渣処理における二次公害の対策に多大なコストがかかるようになってきている。また最近では、都市廃棄物の資源およびエネルギー源としての価値が見直されるようになり、これらの情勢を反映して、種々の焼却処理プロセスの代替プロセスおよび廃棄物再資源化、エネルギー回収プロセスの研究開発がなされている。そのなかで、熱分解処理プロセスは、都市廃棄物を熱分解し、ガス、油および安定な残渣を生成し、生成ガスおよび生成油を貯留可能な燃料として回収するプロセスである。また、処理に伴

う二次公害も低いコストで防止できる可能性があり、エネルギー回収、低公害型の廃棄物処理プロセスとして注目されている。この熱分解処理プロセス実用化の可能性を検討する場合には、プロセスの物質、熱収支を計算できる定量的なモデルを確立し、それを基礎として環境収支、経済収支を計算して評価する必要がある。特に、生成物を燃料として使用することを目的とする場合には、生成物組成についても定量的に把握する必要がある。しかし、現在のところ、各熱分解プロセスのパイロットプラント実験結果が報告されているだけで、プロセスが反応工学および装置工学的に解析され、物質、熱収支の定量的なモデルが確立された段階には至っていない。そこで、本研究では、熱分解処理プロセスのうち、現在、実用化の段階にきている熱分解溶融プロセスを対象として、今日まで行われた基礎的な研究より幾つかの仮定をおいて、物質、熱収支を計算できるモデルを提案した。また、モデルによる物質、熱収支の計算を行い、都市廃棄物組成、操作条件と生成物組成の関係および適切な操作条件について解析を行った。また、計算結果とパイロットプラント実験結果を比較することによりモデルの評価を行った。

* 京都大学環境保全センター Ken-ichi KATAYANAGI

** 京都大学工学部 Masakatsu HIRAOKA

2. 熱分解溶融プロセスの概要

本研究で対象とした熱分解溶融プロセスは、石炭のガス化炉、高炉などに使用される向流式の堅型移動層炉（シャフト炉）を使用するプロセスである。都市廃棄物は炉頂より投入され、炉上部では降下するにしながら高温のガスと向流に接触し、熱交換を行い、乾燥、熱分解反応を起こす。炉底部では生成したチャー、助燃料を燃焼させ、その燃焼熱により都市廃棄物中灰分、不燃性物質を溶融した後、冷却スラグ化して、重金属の溶出しにくい安定な残渣を生成するプロセスである。生成ガスは直接燃焼処理されるか、タールおよび水分を除去した後に、クリーンで蓄積可能な燃料として使用される。現在、熱分解溶融プロセスはNプロセスとSプロセスの2種類が研究開発されている。前者は、都市廃棄物と共に助燃料としてコークスを、また灰分の溶融状態を安定化するために石灰を炉頂より供給し、高純度酸素と空気を混合した熱風を炉底部へ吹き込むプロセスである¹⁾。後者は、都市廃棄物を破碎後、ペレット状に圧縮成型して炉頂より投入し、炉底部に高純度酸素およびガス燃料を吹き込むプロセスである²⁾。本研究では、2つのプロセスを含む一般的な熱分解溶融プロセスの物質、熱収支モデルを提案した。

3. 物質、熱収支モデル

熱分解溶融プロセスにおける都市廃棄物の流動状態は、シャフト炉の研究等からプラグフローに近く³⁾、炉内で降下するにしながら逐次的に乾燥、熱分解、ガス化燃焼すると考えられる。しかし、都市廃棄物は、その性状、形状により乾燥速度および昇温速度が異なるため、水分および温度は不均一に分布し、乾燥段階と熱分解反応段階を明確に分けることはできない。そこで、本研究では図-1に示すようにプロセス炉を乾燥および熱分解反応が主に起こる乾燥・熱分解ゾーンと、ガス化燃焼反応および灰分の溶融が主に起こる燃焼・溶融ゾーンの2つの領域に分け、各ゾーンで定常時に単位時間当りに反応物質がどれだけ生成物に転化したかという Net-Reaction を筆者らの行った基礎実験結果から仮定して各ゾーンにおける単位時間当りの物質、熱収支を計算する部分収支モデルを提案した。

3.1 物質収支モデル

物質収支モデルは、各ゾーンで流入、流出する各物質質量を計算するモデルである。図-1に、本研究で考慮

G_i^0 : 都市廃棄物構成物質量(kg/hr)	F_j^k : カス量(kg/hr)
G_{WT}^0 : 都市廃棄物中水分量(kg/hr)	F_{TAR}^1 : タール量(kg/hr)
G_{RESI}^1 : 熱分解残渣量(kg/hr)	F_{DUST}^1 : ダスト量(kg/hr)
G_{SLUG}^2 : スラグ量(kg/hr)	F_{FUEL}^0 : ガス燃料量(kg/hr)
G_{COKE}^k : コークス量(kg/hr)	F_{AIR}^0 : 空気量(kg/hr)
G_{LIME}^k : 石灰、生石灰量(kg/hr)	$F_{O_2}^0$: 高純度酸素量(kg/hr)

図-1 熱分解溶融プロセス概要図

した物質収支項を示す。本研究では、供給物である都市廃棄物を構成する物質として、紙類、繊維類、植物性雑物（植物性厨芥、草）、動物性厨芥、ゴム類、ポリオレフィン系樹脂、ポリスチレン系樹脂、ポリ塩化ビニル系樹脂の8種類の可燃性物質、および金属、ガラス、土砂の3種類の不燃性物質を仮定した。また、コークス組成は炭素85 (wt%)、灰分15 (wt%)、高純度酸素組成は酸素90 (vol%)、窒素5.5 (vol%)、アルゴン4.5 (vol%)、ガス燃料は純プロパンガスとした。

3.1.1 乾燥・熱分解ゾーンの物質収支

このゾーンでの物質収支を計算するには、乾燥により気相へ移行する都市廃棄物中水分の蒸発量および熱分解反応により気相へ移行する都市廃棄物中可燃性物質の熱分解生成物量を計算する必要がある。計算は、以下の仮定をおいて行った。

①都市廃棄物は全てこのゾーンで乾燥、熱分解せず、

一部は未乾燥，未反応のまま燃焼・溶融ゾーンへ移行する

②熱分解反応する都市廃棄物は，8種類の可燃性物質とする。

③熱分解反応生成物は，CO，CO₂，H₂，CH₄，C₂H₄，C₂H₆，C₃H₆，C₄H₈，NH₃，H₂S，HCl のガス，水分，タール，チャーの14種類とする。

④熱分解反応生成物は，8種類の構成物質からの生成物量の和とする。すなわち，生成物については，加成性が成立すると仮定する。

⑤構成物質の熱分解反応生成物組成は，ベンチスケール熱分解炉による実験結果を基礎にして計算する。

⑥石灰 (CaCO₃) は熱分解し，全て生石灰 (CaO) となる。

①の仮定は，都市廃棄物の乾燥速度および熱分解反応速度がその性状，形状，固気間の熱移動速度により影響を受け，都市廃棄物が全てこのゾーンで乾燥，熱分解せず，一部未乾燥，未反応のまま，燃焼・溶融ゾーンへ移行する現象が起こる可能性があるとして導いたものである。本研究では，この仮定により，都市廃棄物のこのゾーンでの未乾燥，未反応率（以下未乾燥率とする） α (kg/kg) を未知のパラメータとして導入し，水分の蒸発量，熱分解生成物量の計算を行った。

②③④の仮定は，都市廃棄物構成物質の熱分解反応生成物特性を解析した結果⁴⁾より導いた。

乾燥による水分の蒸発量 ΔX_{WT}^1 は，①の仮定より次式で計算した。

$$\Delta X_{WT}^1 = (1 - \alpha) \cdot G_{WT}^0 \quad (1)$$

熱分解反応による14種類の生成物量 ΔX_j^1 を計算するために，まず，8種類の構成物質から生成する14種類の生成物量 x_j^i (kg/hr) の計算を行った。計算は，各物質について未知数が14個なので，各物質に含まれるC，H，O，N，S，Cl元素の収支および各元素の生成物への移行率を考慮した14元1次方程式を導き，連立して解いた。ただし，N，S，Cl元素については，物質収支を合わせるために全てNH₃，H₂S，HClガスへ移行すると仮定して計算したが，実際にはこれらのガス生成機構は複雑で，本研究では考察の対象とはしなかった。以下に14個の方程式を示す。

$$\begin{aligned} \text{C収支} \quad & \frac{12}{28} \cdot x_{CO}^i + \frac{12}{44} \cdot x_{CO_2}^i + \frac{12}{16} \cdot x_{CH_4}^i + \frac{24}{28} \cdot x_{C_2H_4}^i + \frac{24}{30} \cdot x_{C_2H_6}^i + \frac{36}{42} \cdot x_{C_3H_6}^i + \frac{48}{56} \cdot x_{C_4H_8}^i \\ & + r_{C-TAR}^i \cdot x_{TAR}^i + r_{C-CHAR}^i \cdot x_{CHAR}^i \end{aligned}$$

$$= (1 - \alpha) \cdot y_C^i \quad (2)$$

$$\text{H収支} \quad x_{H_2}^i + \frac{4}{16} \cdot x_{CH_4}^i + \frac{4}{28} \cdot x_{C_2H_4}^i + \frac{6}{30} \cdot x_{C_2H_6}^i + \frac{6}{42} \cdot x_{C_3H_6}^i + \frac{8}{56} \cdot x_{C_4H_8}^i + \frac{2}{18} \cdot x_{H_2O}^i + r_{H-TAR}^i \cdot x_{TAR}^i + r_{H-CHAR}^i \cdot x_{CHAR}^i$$

$$+ \frac{3}{17} \cdot x_{NH_3}^i + \frac{2}{34} \cdot x_{H_2S}^i + \frac{1}{36.5} \cdot x_{HCl}^i$$

$$= (1 - \alpha) \cdot y_H^i \quad (3)$$

$$\text{O収支} \quad \frac{16}{28} \cdot x_{CO}^i + \frac{32}{44} \cdot x_{CO_2}^i + \frac{16}{18} \cdot x_{H_2O}^i + r_{O-TAR}^i \cdot x_{TAR}^i + r_{O-CHAR}^i \cdot x_{CHAR}^i$$

$$= (1 - \alpha) \cdot y_O^i \quad (4)$$

$$\text{N収支} \quad \frac{14}{17} \cdot x_{NH_3}^i = (1 - \alpha) \cdot y_N^i \quad (5)$$

$$\text{S収支} \quad \frac{32}{34} \cdot x_{H_2S}^i = (1 - \alpha) \cdot y_S^i \quad (6)$$

$$\text{Cl収支} \quad \frac{35.5}{36.5} \cdot x_{HCl}^i = (1 - \alpha) \cdot y_{Cl}^i \quad (7)$$

$$\text{水分の生成量} \quad x_{H_2O}^i = \frac{18}{16} \cdot r_{O-H_2O}^i \cdot (1 - \alpha) \cdot y_O^i \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \text{タールの生成量} \quad & x_{TAR}^i = 1/r_{C-TAR}^i \cdot r_{C-TAR}^i \cdot (1 - \alpha) \cdot y_C^i \\ & (1 - \alpha) \cdot y_C^i \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \text{チャーの生成量} \quad & x_{CHAR}^i = 1/r_{C-CHAR}^i \cdot r_{C-CHAR}^i \cdot (1 - \alpha) \cdot y_C^i \\ & (1 - \alpha) \cdot y_C^i \end{aligned} \quad (10)$$

$$\text{CH}_4 \text{の生成量} \quad x_{CH_4}^i = \frac{16}{12} \cdot r_{C-CH_4}^i \cdot (1 - \alpha) \cdot y_C^i \quad (11)$$

$$\text{C}_2\text{H}_4 \text{の生成量} \quad x_{C_2H_4}^i = \frac{28}{24} \cdot r_{C-C_2H_4}^i \cdot (1 - \alpha) \cdot y_C^i \quad (12)$$

$$\text{C}_2\text{H}_6 \text{の生成量} \quad x_{C_2H_6}^i = \frac{30}{24} \cdot r_{C-C_2H_6}^i \cdot (1 - \alpha) \cdot y_C^i \quad (13)$$

$$\text{C}_3\text{H}_6 \text{の生成量} \quad x_{C_3H_6}^i = \frac{42}{36} \cdot r_{C-C_3H_6}^i \cdot (1 - \alpha) \cdot y_C^i \quad (14)$$

$$\text{C}_4\text{H}_8 \text{の生成量} \quad x_{C_4H_8}^i = \frac{56}{48} \cdot r_{C-C_4H_8}^i \cdot (1 - \alpha) \cdot y_C^i \quad (15)$$

x_j^i : i 物質からの j 生成物量 (kg/hr)

r_{i-j}^l : i 物質からの j 生成物中 l 元素の含有率 (kg/kg)

r_{i-j}^l : i 物質中 l 元素の j 生成物への移行率 (kg/kg)

y_l^i : i 物質中 l 元素の含有率 (kg/kg)

ここで、構成物質中 l 元素の含有率を r_l^i (kg/kg)、供給量を G_j^0 (kg/hr) とし、 y_l^i を次式で計算した。

$$y_l^i = r_l^i \cdot G_j^0 \quad (16)$$

各熱分解反応生成物の総生成量 ΔX_j^1 (kg/hr) は、

④の加成性の仮定より次式で計算した

$$\Delta X_j^1 = \sum x_j^i \quad (17)$$

また、 CO_2 生成量 $\Delta X_{\text{CO}_2}^1$ は、石灰の熱分解による CO_2 の生成量も加えて補正した。

このゾーンにおける物質収支の計算は、プロセス炉出口生成物量 F_j^1 については、燃焼・溶融ゾーンから流入する物質量 F_j^2 と上記のごとく計算した水分蒸発量 ΔX_{WT}^1 および各熱分解生成物量 ΔX_j^1 の和 (同物質の和) とした。燃焼・溶融ゾーンへ移行する固体および水分量 G_i^1 は、未反応都市廃棄物中水分および可燃性物質、都市廃棄物中不燃性物質、熱分解残渣、コークス、生石灰の量とした。

3.1.2 燃焼・溶融ゾーンの物質収支

燃焼・溶融ゾーンでは、上部の乾燥・熱分解ゾーンから移行する各物質中の可燃分が、羽口から供給される酸素および雰囲気中の水分と反応して、ガス化、燃焼し、気相へ移行する。また、各物質中の灰分、不燃性物質は、これらの反応熱により溶融し、炉底より排出されて冷却スラグ化される。このように、燃焼・溶融ゾーンでの反応は複雑であるが、灰分を溶融するために炉底部温度は $1,400 \sim 1,700^\circ\text{C}$ に保持されており、各反応速度は非常に速く、反応に関与するガス組成の間には、化学平衡条件が成立していると考えられる^{7) 8)}。そこで、物質収支の計算は、ゾーン出口ガス量 F_j^2 、スラグ生成量 G_{SLUG}^2 について以下の仮定をおいて行った。

①ゾーン出口ガスは、 CO 、 CO_2 、 H_2 、 H_2O 、 O_2 、 N_2 、 NO 、 SO_2 、 HCl 、 Ar の10種類とする。

②可燃分、水分は全て気相へ移行する。

③S元素およびCl元素は、全て SO_2 、 HCl に移行する。

④ゾーン出口ガス組成は、化学平衡に達している。

⑤生成スラグ量は、廃棄物中灰分、不燃性物質、コークス中灰分、生石灰の合計量とする。

ゾーン出口における10種類のガス量は、①～④の仮

定により、各元素の収支式および化学平衡式から計算した。各ガス成分の分圧 P_j はモル濃度に比例するので、混合気に含まれる各元素のkg原子数 η_{C} 、 η_{H} 、 η_{N} 、 η_{S} 、 η_{Cl} 、 η_{Ar} と分圧 P_j の間には次の関係がある。

$$\eta_{\text{C}} \propto P_{\text{CO}} + P_{\text{CO}_2} \quad (18)$$

$$\eta_{\text{H}} \propto 2 P_{\text{H}_2} + 2 P_{\text{H}_2\text{O}} + P_{\text{HCl}} \quad (19)$$

$$\eta_{\text{O}} \propto P_{\text{CO}} + 2 P_{\text{CO}_2} + P_{\text{H}_2\text{O}} + 2 P_{\text{O}_2} + P_{\text{NO}} + 2 P_{\text{SO}_2} \quad (20)$$

$$\eta_{\text{N}} \propto 2 P_{\text{N}_2} + P_{\text{NO}} \quad (21)$$

$$\eta_{\text{S}} \propto P_{\text{SO}_2} \quad (22)$$

$$\eta_{\text{Cl}} \propto P_{\text{HCl}} \quad (23)$$

$$\eta_{\text{Ar}} \propto P_{\text{Ar}} \quad (24)$$

各元素の炭素元素に対するkg原子数の比を各々

$a = \eta_{\text{H}} / \eta_{\text{C}}$ 、 $b = \eta_{\text{O}} / \eta_{\text{C}}$ 、 $c = \eta_{\text{N}} / \eta_{\text{C}}$ 、 $d = \eta_{\text{S}} / \eta_{\text{C}}$ 、

$e = \eta_{\text{Cl}} / \eta_{\text{C}}$ 、 $f = \eta_{\text{Ar}} / \eta_{\text{C}}$ とし、これらの式に(18)～(24)

の関係を代入して $\epsilon = P_{\text{CO}} + P_{\text{CO}_2}$ とすると

$$P_{\text{CO}} + P_{\text{CO}_2} = \epsilon \quad (25)$$

$$2 P_{\text{H}_2} + 2 P_{\text{H}_2\text{O}} + P_{\text{HCl}} = a\epsilon \quad (26)$$

$$P_{\text{CO}} + 2 P_{\text{CO}_2} + P_{\text{H}_2\text{O}} + 2 P_{\text{O}_2} + P_{\text{NO}} + 2 P_{\text{SO}_2} = b\epsilon \quad (27)$$

$$2 P_{\text{N}_2} + P_{\text{NO}} = c\epsilon \quad (28)$$

$$P_{\text{SO}_2} = d\epsilon \quad (29)$$

$$P_{\text{HCl}} = e\epsilon \quad (30)$$

$$P_{\text{Ar}} = f\epsilon \quad (31)$$

また、全圧は約1気圧と考えられるので、全圧と分圧の関係より

$$P_{\text{CO}} + P_{\text{CO}_2} + P_{\text{H}_2} + P_{\text{H}_2\text{O}} + P_{\text{O}_2} + P_{\text{N}_2} + P_{\text{NO}} + P_{\text{SO}_2} + P_{\text{HCl}} + P_{\text{Ar}} = 1.0 \quad (32)$$

ここで、互いに独立な3種類の化学反応の平衡条件を与える。

$$P_{\text{CO}_2} / (P_{\text{CO}} \cdot P_{\text{O}_2}^{1/2}) = K_1$$

$$(\text{CO} + \frac{1}{2} \text{O}_2 \rightleftharpoons \text{CO}_2) \quad (33)$$

$$(P_{\text{CO}_2} \cdot P_{\text{H}_2}) / (P_{\text{CO}} \cdot P_{\text{H}_2\text{O}}) = K_2$$

$$(\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{CO}_2 + \text{H}_2) \quad (34)$$

$$P_{\text{NO}} / (P_{\text{N}_2}^{1/2} \cdot P_{\text{O}_2}^{1/2}) = K_3$$

$$(\frac{1}{2} \text{N}_2 + \frac{1}{2} \text{O}_2 \rightleftharpoons \text{NO}) \quad (35)$$

以上の(25)～(35)の11元非線形連立方程式をブレンド法により解き、 P_j 、 ϵ の11個の未知数を計算した。各ガス量 F_j^2 は、計算した分圧 P_j より次式で計算した。

$$F_{CO}^2 = 28 \cdot \eta_C \cdot P_{CO} / (P_{CO} + P_{CO2}) \tag{36}$$

$$F_j^2 = M_j / 28 \cdot P_j / P_{CO} \cdot F_{CO}^2 \tag{37}$$

F_j^2 : CO 以外の j ガス量 (kg/hr)

M_j : j ガスの分子量

以上の計算に必要な各元素のkg原子数 η_i は、乾燥・熱分解ゾーンから移行する物質、吹き込み助燃料ガス、吹き込み空気、高純度酸素に含まれる各元素量から計算した。スラグ生成量 G_{SLUG}^2 (kg/hr) は⑥の仮定より計算した。

3.2 熱収支モデル

熱収支モデルは、各ゾーンで出入する物質の顕熱、潜熱および反応熱、灰分融解熱、炉放熱による熱損失を考慮して各ゾーンの熱収支をとり、入熱＝出熱の収支式より各ゾーン出口ガス温度 T_F^k を計算するものである。収支式における反応熱は入熱と仮定し、各ゾーンにおける物質収支モデルから計算した流入物と流出物の高位発熱量の差とした。また、燃焼・溶融ゾーンにおける灰分融解熱は、都市廃棄物の灰分、コークスの灰分、ガラスおよび土砂の成分を SiO_2 、金属を Fe_2O_3 と仮定して、それらの融解熱から計算した。炉放熱による熱損失は、シャフト炉のデータから、全入

熱（都市廃棄物高位発熱量＋助燃料高位発熱量＋熱風顕熱）の5～10%とした。

3.3 熱分解基礎実験に基づく熱分解反応生成物計算

パラメータの推定

3.1.1 に示した熱分解反応生成物 x_j^i の計算に必要な都市廃棄物構成物質の各元素および灰分の含有率 r_i^i は、都市廃棄物から採取した物質の元素分析および灰分量測定値から求めた。その結果を表1に示す。また、生成物（タール、チャー）中の各元素含有率 r_{i-j}^i 、および各元素の生成物への移行率を示すパラメータ r_{i-j}^i はベンチスケール炉における熱分解基礎実験結果^{4) 5) 6)} を整理して求めた。表2、表3に各元素含有率 r_{i-j}^i を、表4に各元素の生成物への移行率 r_{i-j}^i を示す。

3.4 計算手順

上記の各ゾーンの物質熱収支モデルにより、単位時間当りに供給される各都市廃棄物構成物質質量 G_i^0 、廃棄物中水分量 G_{WT}^0 の都市廃棄物組成条件、および助燃料供給量 G_{COKE}^0 、 F_{FUEL}^0 、空気供給量 F_{AIR}^0 、高純度酸素供給量 F_{O2}^0 の運転条件を与え、各ゾーンで出入する物質質量 F_j^k 、 G_i^k 、顕熱、潜熱、ゾーン出口ガス温度 T_F^k を計算した。ただし、計算に必要な各物質の比熱、化学

表1 都市廃棄物構成物質の元素分析結果（乾基準 wt %）

	C	H	O	N	S	Cl	灰分
紙 類	39.77	6.16	43.79	1.33	0.08	0.67	8.20
織 維 類	48.38	7.28	28.65	8.25	0.02	0.52	6.90
植 物 性 雑 物	44.29	5.54	42.58	0.91	0.02	0.30	6.36
動 物 性 厨 芥	41.84	6.62	29.52	8.10	0.02	0.30	13.60
ゴ ム 類	58.73	7.48	7.97	1.05	0.55	9.52	14.70
ポリオレフィン系樹脂	79.49	12.13	0.00	0.84	0.14	0.00	7.40
ポリスチレン系樹脂	84.39	7.34	0.00	0.73	0.14	0.00	7.40
塩化ビニル系樹脂	37.20	4.63	0.00	0.18	0.14	50.45	7.40

表2 チャー中C, H, O元素含有率 r_i^i -CHAR

	C	H	O
紙 類	0.9508	0.0064	0.0428
織 維 類	0.9564	0.0077	0.0359
植 物 性 雑 物	0.9420	0.0026	0.0554
動 物 性 厨 芥	0.9642	0.0105	0.0253
ゴ ム 類	0.9654	0.0114	0.0232
ポリオレフィン系樹脂	0.9556	0.0044	0.00
ポリスチレン系樹脂	0.9910	0.0090	0.00
塩化ビニル系樹脂	0.9934	0.0064	0.00

表3 タール中C, H, O元素含有率 r_i^i -TAR

	C	H	O
紙 類	0.7093	0.0520	0.2382
織 維 類	0.7396	0.0670	0.1934
植 物 性 雑 物	0.7152	0.0650	0.2194
動 物 性 厨 芥	0.7090	0.0515	0.2395
ゴ ム 類	0.8176	0.0543	0.1281
ポリオレフィン系樹脂	0.8571	0.1429	0.0000
ポリスチレン系樹脂	0.9231	0.0769	0.0000
塩化ビニル系樹脂	0.9231	0.0769	0.0000

表 4 都市廃棄物構成物質中C，O元素の生成物への移行率 r_{i-j}^i

	r_{C-CHAR}^i	r_{C-TAR}^i	$r_{C-CH_4}^i$	$r_{C-C_2H_4}^i$	$r_{C-C_2H_6}^i$	$r_{C-C_3H_6}^i$	$r_{C-C_4H_8}^i$	$r_{O-H_2O}^i$
紙 類	0.4502	0.1788	0.0291	0.0291	0.0048	0.0050	0.0000	0.3500
織 維 類	0.2841	0.4099	0.0436	0.0601	0.0100	0.0122	0.0000	0.3500
植 物 性 雑 物	0.4825	0.1615	0.0286	0.0344	0.0035	0.0035	0.0000	0.3500
動 物 性 厨 芥	0.1580	0.4300	0.0687	0.1210	0.0218	0.2246	0.0000	0.3500
ゴ ム 類	0.2451	0.6369	0.0497	0.0405	0.0063	0.0066	0.0000	0.0000
ポリオレフィン系樹脂	0.3693	0.3007	0.0759	0.0973	0.0237	0.0600	0.0731	0.0000
ポリスチレン系樹脂	0.4041	0.4279	0.1056	0.0519	0.0076	0.0003	0.0000	0.0000
塩 化 ビ ニ ル 系 樹 脂	0.3062	0.6478	0.0167	0.0151	0.0081	0.0061	0.0000	0.0000

表 5 プロセスの操作条件

操作条件	N プロセス	S プロセス
助 燃 料	コークス	プロパンガス
助燃料供給量	60～140(kg/t-R)	15～45(kg/t-R)
酸素濃度	25～40(vol%)	90 (vol%)
酸素供給量	200～400(kg/t-R)	200～400(kg/t-R)

t-R：トン廃棄物

平衡定数は温度の関数(JANAF 熱化学データを参照)となる。そこで、乾燥・熱分解ゾーン、燃焼・溶融ゾーンの物質、熱収支の計算は、出口温度 $T_F^{1'}$ 、 $T_F^{2'}$ を仮定して仮定した温度に対応する各定数値を使用して計算し、その結果得られた出口ガス温度 T_F^1 、 T_F^2 が仮定値と等しくなるまで繰り返し計算を行った。

4 モデルによる計算

本研究では、提案したモデルにより単位都市廃棄物 (ton) 当りの都市廃棄物組成、操作条件を変化させて計算を行い、熱分解溶融プロセスにおけるこれらの条件と生成物組成の関係を解析した。また、パイロットプラント実験と計算結果を比較して、モデルの評価、プロセス内で起きている現象を推定した。

4.1 計算条件

4.1.1 操作条件

計算における操作条件は、パイロットプラント実験結果と比較する意味からも、NプロセスおよびSプロセスの操作条件より、表5に示す条件を与えた。実際には、これらの条件より助燃料供給量 G_{COKE}^0 、 F_{FUEL}^0 、空気供給量 F_{AIR}^0 、高純度酸素供給量 $F_{O_2}^0$ を計算条件として与え、計算を行った。

4.1.2 都市廃棄物組成条件

都市廃棄物組成の条件としては、3成分(可燃分、

表 6 都市廃棄物 3 成分条件 (湿基準 wt%)

	基準廃棄物	低含水廃棄物	高含水廃棄物
可燃分率	30	40	20
灰分率	15	20	10
含水率	55	40	70

灰分、水分)の異なる代表的な3つのタイプの組成条件を与えた。それぞれ基準廃棄物、低含水廃棄物、高含水廃棄物と呼び、表6に示す組成条件を与えた。また、3成分条件の影響を明確にするために、乾基準の都市廃棄物構成物質の組成はどのタイプも等しく、我国における平均的な組成である表7に示す条件を与えた。実際には、これらの条件より都市廃棄物構成物質質量 G_i^0 、都市廃棄物中水分量 G_{WT}^0 を計算条件として与え、計算を行った。

図-2 コークス供給量と酸素供給量

表7 都市廃棄物構成物質組成条件(乾基準 wt %)

	組 成 百 分 率
紙 類	37.8
織 維 類	3.5
植 物 性 雑 物	20.0
動 物 性 厨 芥	3.1
ゴ ム 類	0.2
ポリオレフィン系樹脂	9.1
ポリスチレン系樹脂	1.2
塩 化 ビ ニ ル 系 樹 脂	1.2
金 属	5.7
ガ ラ ス	12.2
土 砂	6.0

4.1.3 熱損失, 未乾燥率条件

炉放熱は全入熱の5%として計算を行ったが, 10%の条件についても計算し, その影響を検討した. 乾燥・熱分解ゾーンにおける都市廃棄物の未乾燥率 α は, 乾燥速度に影響を受ける未知のパラメータなので, 値を変化させて計算を行った.

4.2 計算結果

4.2.1 Nプロセスの計算結果

(1) 操作条件の影響

図-2に基準廃棄物条件を与え, 燃焼・溶融ゾーン出口ガス温度の計算値が1,600~1,650℃となる場合の酸素濃度(vol%), コークス供給量(kg/t-R), 酸素供給量(kg/t-R)等の操作条件の関係および熱損失の影響を示す. 燃焼・溶融ゾーン出口ガス温度を1,600~1,650℃としたのは, Nプロセスでは灰分の溶融温度を1,450℃に保って運転しているので, 気相温度は石炭のガス化溶融プロセス, 高炉に関する研究から, それより150~200℃高くなると考えられるからである. 図-2と同じ廃棄物組成, 操作条件における生成ガス高位

表8 Nプロセスの操作条件および生成物量

	基準廃棄物	低含水廃棄物	高含水廃棄物
コークス量(kg/t-R)	90~110	70~90	110~130
酸素量(kg/t-R)	270~290	270~290	270~290
生成ガス量(kg/t-R)	1110~1196	1167~1245	1064~1150
生成ガス量(Nm ³ /t-R)	903~974	988~1036	834~908
タール・グスト量(kg/t-R)	59	81	38
水分量(kg/t-R)	611~615	472~475	743~748
スラグ量(kg/t-R)	216~219	280~283	152~155
生成ガス発熱量(kcal/Nm ³)	1205~1226	1369~1382	994~1031
ガス化効率(%)	48.5~49.9	50.2~51.5	44.6~46.8
未乾燥率 α (kg/kg)	0.150	0.125	0.175

発熱量(kcal/Nm³)を, コークス供給量との関係に整理して, 図-3に示す.

図-2の結果より, 炉底部を灰分の溶融に適した温度に保つ条件は, 酸素濃度を決めれば, 一定のコークス量と酸素量の関係で決まると考えられる. しかし, 高酸素濃度条件(40 vol%)では, 必要コークス量の下限値はかえって高くなる. これは, 廃棄物の乾燥は燃焼ガスの持つ顕熱を利用するので, 熱風の酸素濃度が高すぎると燃焼ガス量が減少し, その総顕熱量が低下するため, 不足分を補う必要があるからである. この結果は高炉における富酸素系操業において, 助燃料量が增加する結果⁹⁾と一致している. 図-3の結果より, コークス供給量が増加するほど, また, 酸素濃度が高くなるほど生成ガス発熱量は高くなることがわかる. 特に酸素濃度の影響は大きく, 低酸素濃度(25 vol%)条件では, コークス量が100(kg/t-R)の条件においても, 生成ガス発熱量は1,000(Kcal/Nm³)以下となる.

以上の結果から, Nプロセスでは溶融条件, 乾燥条件, 適切な生成ガス発熱量条件を満たすためには, 酸素濃度30~35(vol%)の条件で運転すべきであると考えられる.

(2) 都市廃棄物組成の影響

表8に, 酸素濃度30(vol%)の条件における3つのタイプの都市廃棄物に対する適切な操作条件, 生成物量, 生成ガス発熱量, ガス化効率(生成ガス高位発

図-3 Nプロセスの生成ガス発熱量

図-4 都市廃棄物低位発熱量と生成ガス発熱量
(Nプロセス)

熱総量の全入熱に対する割合)の計算例を示す。

この結果、含水率が高い都市廃棄物ほど必要コーク量の下限値は高くなり、一方、酸素供給量は、都市廃棄物のタイプによらず、ほぼ一定となる。生成ガスの量および質は、含水率が低く可燃分率の高い都市廃棄物ほど生成ガス量が多く、生成ガス中のCO、H₂、炭化水素系ガス濃度が高くなるために発熱量も高くなる。また、水蒸気の持ち出す潜熱による熱損失も少なくなるためにガス化効率も高くなる結果を得た。この結果を明確にするために、水分を含んだ都市廃棄物の持つ熱量を示す1つの指標である都市廃棄物低位発熱量と生成ガス発熱量の関係を整理し、後述するパイロットプラント実験結果と合わせて図-4に示す。

(3) 未乾燥率 α の影響

本研究では、未乾燥率 α が未知数なので、 α を変化させて計算を行った。表8に、各タイプの都市廃棄物を対象として行った計算における α の値を示す。 α がこれ以下の値では、燃焼・溶融ゾーン出口ガス温度が1,900～2,000℃の高温となり、不合理である。一方、これ以上の α の値では、燃焼・溶融ゾーン出口ガス温度が1,600～1,650℃の条件においては、炉出口ガス温度は500℃以上の高温となり、必要酸素量も増加して、いわゆる吹き抜け現象を表わすこととなる。以上の結果から、Nプロセスでは炉内における固気間の熱交換の不均一性により、都市廃棄物の約15%は炉底部まで未乾燥の状態で降下し、直接乾燥、ガス化燃焼すると推定される。

4.2.2 Sプロセスの計算結果

(1) 操作条件、都市廃棄物組成の影響

表6に示した3つのタイプの都市廃棄物組成条件を与え計算を行った。図-5に、燃焼・溶融ゾーン出口ガス温度の計算値が1,800～1,850℃(Sプロセスの溶融温度条件1,650℃より150～200℃高い値)の条件における助燃料供給量(kg/t-R)、酸素供給量(kg/t-R)の関係を示す。図-6に、同じ都市廃棄物、操作条件における生成ガス高位発熱量を助燃料供給量との関係に整理して示す。表9に、3つのタイプの都市廃棄物に対する適切な操作条件、生成物量、生成ガス発熱量およびガス化効率の計算値を示す。

これらの結果、Nプロセスと同様に、都市廃棄物の含水率が高いほど必要助燃料量の下限値は高くなり、一方、酸素供給量は都市廃棄物のタイプによらずほぼ一定となる。また、含水率が低く可燃分率の高い都市廃棄物ほど、また、助燃料供給量が多いほど生成ガス量は増加し、生成ガス発熱量、ガス化効率も高くなる。しかし、一定の酸素濃度(90 vol%)で運転し、助燃料供給量も少ないほど有利であることから、生成ガスの量および発熱量はほぼ都市廃棄物組成で決まると考えられる。また、Nプロセスと比較すると生成ガス量は少ないが、発熱量は窒素ガス濃度が低く、7～8割高くなっている。これらの結果をより明確にするために、都市廃棄物低位発熱量と生成ガス高位発熱量の関係を整理し、Sプロセスのパイロットプラント実験結果も合わせて図-7に示す。

図-5 助燃料供給量と酸素供給量

図-6 Sプロセスの生成ガス発熱量

(2) 未乾燥率 α の影響

表9に、各タイプの都市廃棄物を対象として行った計算における α の値を示す。 α がこれ以下の値では、燃焼・溶融ゾーン出口ガス温度は2,500℃以上の高温となり、炉の熱耐久性から考えても妥当な値ではない。これは、Sプロセスでは酸素濃度90(vol%)の条件で運転しているので、燃焼・溶融ゾーン出口ガス量が少なく、乾燥ゾーンで都市廃棄物が全て乾燥するとした場合に、その乾燥に必要な熱を顕熱として持ち出すには、理論上これほどの高温条件を満たす必要があるからである。しかし、Sプロセスでは都市廃棄物を破碎した後、圧縮成型して投入しているので、乾燥速度は遅く、中心部が未乾燥のまま炉底部まで降下し、直接乾燥、ガス化燃焼すると推定される。したがって、

表9 Sプロセスの操作条件および生成物量

	基準廃棄物	低含水廃棄物	高含水廃棄物
プロパン量(kg/t-R)	15~25	5~15	25~35
酸素量(kg/t-R)	230~245	215~230	245~260
生成ガス量(kg/t-R)	432~456	503~526	364~386
生成ガス量(Nm³/t-R)	347~379	450~479	246~275
タール・ダスト量(kg/t-R)	49	61	30
水分量(kg/t-R)	646~650	479~484	808~813
スラグ量(kg/t-R)	172	220	124
生成ガス発熱量(kcal/Nm³)	2122~2178	2417~2460	1478~1634
ガス化効率(%)	41.9~44.0	50.4~51.6	26.8~30.5
未乾燥率 α (kg/kg)	0.30	0.25	0.35

図-7 都市廃棄物低位発熱量と生成ガス発熱量
(Sプロセス)

炉底部では乾燥により熱が奪われ、適切な温度を確保できると考えられる。一方、表に示した値より大きな α の値では、炉出口ガス温度が上昇し、必要酸素量が増加する計算結果となり、吹き抜け現象を表わすこととなる。

4.3 計算結果とパイロット実験結果の比較

Nプロセス、Sプロセスでは種々の組成を持つ都市廃棄物を対象としてパイロットプラント実験が行われている。そこで、本研究では公表されている実験データの都市廃棄物組成、操作条件を与えてモデルによる計算を行い、計算結果と実験結果を比較検討した。表10、表11に生成ガス組成の比較結果を示す。図-4、図-7に実験に使用した都市廃棄物の低位発熱量と生成ガス高位発熱量の関係を示す。以上の結果より計算結果と実験結果はよく一致しており、本研究で提案したモデルは、都市廃棄物組成、操作条件に対応する物質、熱収支の予測を行うには有効なモデルであると考えられる。

5 結 論

本研究では、都市廃棄物の熱分解溶融プロセスの物質、熱収支モデルを提案し、種々の都市廃棄物組成条件、操作条件を与えてモデルによる計算を行ない、これらの条件と生成物組成の関係および適切な操作条件の解析を行った。また、計算結果とパイロットプラント実験結果の比較を行い、モデルの有効性を評価した。その結果、以下のような知見を得た。

表10 Nプロセスの実験結果と計算結果

		基準廃棄物		分別廃棄物	
廃棄物可燃分(%)		33.2		33.8	
廃棄物灰分(%)		18.6		47.6	
廃棄物水分(%)		48.2		18.6	
コークス量(kg/t-R)		80		80	
酸素量(kg/t-R)		280		260	
酸素濃度(vol%)		33.0		30.0	
		実験値	計算値	実験値	計算値
生成ガス組成(vol%)	CO	21.3	21.1	23.7	22.5
	CO ₂	18.8	18.2	14.2	15.4
	H ₂	10.3	10.0	9.4	9.6
	CH ₄	1.6	1.6	2.2	2.4
	C ₂ H ₄	0.7	0.9	1.6	1.5
	C ₂ H ₆	—	0.2	—	0.3
	C ₃ H ₆	—	0.3	—	0.5
	C ₄ H ₈	—	0.3	—	0.5
その他		47.3	47.4	48.9	47.3

①熱分解溶融プロセスの操作条件は、都市廃棄物の乾燥条件および灰分、不燃物質の溶融条件を共に満たすように決定すべきであり、それは、一定の助燃料供給量と酸素供給量の関係(図-2、図-5参照)で示される。

②Nプロセスの熱風酸素濃度は可変であるが、適切な濃度条件は30～35(Vol%)である。

③都市廃棄物の含水率が高いと、必要助燃料量の下限値は高くなる。

④生成ガス量および発熱量は、酸素濃度条件および都市廃棄物組成条件によりほぼ決定される。

⑤Sプロセスでは、炉底部の温度を適切に保つためには、都市廃棄物の炉底部到達時における含水率条件が重要である。

⑥計算結果とパイロットプラント実験結果はよく一致しており、本研究で提案したモデルは、熱分解溶融プロセスの基本的な運転条件の決定および物質、熱収支の予測を行うには有効なモデルである。

したがって、本研究で提案したモデルは、熱分解溶融プロセスを実用化する場合における都市廃棄物組成の地域特性、季節変動に対する生成物組成の予測、適切な操作条件の決定、熱分解溶融プロセスを中心としたエネルギー回収システムの評価等に応用できると考えられる。しかし、本研究で仮定した溶融温度と炉底部ガス温度の関係、炉放熱による熱損失、室内実験結果より導入した熱分解生成物計算パラメータおよび未

表11 Sプロセスの実験結果と計算結果

		基準廃棄物		低含水廃棄物		高含水廃棄物	
廃棄物可燃分(%)		31.9		40.0		25.0	
廃棄物灰分(%)		13.8		20.0		6.0	
廃棄物水分(%)		54.3		40.0		68.5	
プロパン量(kg/t-R)		15.0		5.0		25.0	
酸素量(kg/t-R)		230		220		250.0	
酸素濃度(vol%)		90.0		90.0		90.0	
		実験値	計算値	実験値	計算値	実験値	計算値
生成ガス組成(vol%)	CO	30.1	26.9	28.6	26.8	16.0	15.3
	CO ₂	38.9	37.3	36.4	32.4	58.9	52.1
	H ₂	24.2	23.4	25.7	25.8	18.4	16.6
	CH ₄	2.5	2.4	3.8	3.7	3.0	2.5
	C ₂ H ₄	2.3	1.4	3.9	2.1	2.3	1.5
	C ₂ H ₆		0.3		0.5		0.3
	C ₃ H ₆		0.3		0.6		0.3
	C ₄ H ₈		0.2		0.5		0.3
	その他	2.0	7.8	1.6	7.6	1.4	11.1

乾燥率 α 等は、理論的に解析する余地があり、プロセスの設計に必要な乾燥および各反応速度の解析も含めて、今後の課題とする。

参 考 文 献

- 1) M. Onozawa 「Development of Solid Waste Disposal System with Pyrolysis and Melting」 ACS Symposium Ser., 130, 603 (1980)
- 2) T. Masuda 「Purox System Demonstration Test on Simulated Japanese Refuse」 ACS., Symposium Ser. 130, 573 (1980)
- 3) 杉山幸男他「固体反応プロセス工学」化学工学協会編、楳書店
- 4) 平岡正勝他「都市ごみの熱分解生成物特性に関する研究」土木学会第34回年次学術講演会講演概要集(1979)
- 5) E. R. Kaiser, S. B. Friedman 「The Pyrolysis of Refuse Components」 Combustion, May, p. 31 (1968)
- 6) 山口深他「都市固形廃棄物の固定床熱分解技術の研究」公害資源研究所彙報第6巻第2号、昭和51年
- 7) 国井大蔵「炉と燃焼装置」科学技術社
- 8) H. Yoon, J. Wei & M. M. Denn 「A Model for Moving-Bed Coal Gasification Reactors」 AIChE Journal, 24, p. 885 (1978)
- 9) 若林敬一他「高圧操作および酸素富化操業の理論的解析」鉄と鋼, 55, 10, p. 867 (1969)