ライザー中の同軸三重円管型廃液混焼バーナーによる NO_x 排出特性に及ぼす固体粒子の影響†

大屋 舗卓也^{1††}・野田 直希^{2*}・高見 均^{2**}
板谷 義紀¹・松田 仁樹³・架谷 昌信²

¹名古屋大学大学院工学研究科 分子化学工学専攻, 464-8603 名古屋市千種区不老町

²名古屋大学大学院工学研究科 エネルギー理工学専攻, 464-8603 名古屋市千種区不老町

³名古屋大学 難処理人工物研究センター, 464-8603 名古屋市千種区不老町

同軸三重円管型廃液-メタン混焼バーナーを上向きライザー内に設置した場合の NO_x 排出特性に及ぼす FCC 粒子投入の影響について実験的に検討した。NO_x 生成領域は粒子存在の有無にほとんど依存しなかった。また、投入粒子量の増加に伴い、模擬廃液中の N から NO_x への転換率は低下した。実験値を Fenimore の半理論式と比較した結果、粒子存在下においても fuel-NO_x 生成に関して同式の適用が可能であることが示された。

緒 言

廃液の焼却処理は減容化や熱回収が可能なことに加え、燃焼高温場を利用して、廃液中の有害成分を分解させようと考えられ、汎用性の高い処理プロセスの構築が期待できる。特に、有機分が多く COD の高いもの、塩類を多く含むために生物処理が困難なもの、油分を含むものなどは焼却処理が適しているとされている。

Takami *et al.* (1997) は、メタンを助燃剤とする同軸三重円管型気液混焼バーナーを考案し、これに循環流動層を組み合わせた処理システムを提案した。これまでに、模擬廃液を用いた場合の、同バーナーにおける液滴蒸発挙動、安定燃焼範囲、NO_x 排出特性に関する理論的・実験的検討結果を報告した。Kataoka *et al.* (1994) は、メタンを燃料とする内部ノズル付循環流動層燃焼装置の燃焼特性に関する実験的検討を行い、粒子循環による層温度低減・平準化、熱容量の大きな粒子を用いることによる層内熱輸送促進、内部ノズル流量比の制御による二段燃焼効果・層温度低減などの各効果によって NO_x 生成抑制が可能であることを報告した。このような NO_x 生成抑制効果に加え、循環粒子の種類を適切に選択することで、固気反応による有害生成物の吸収除去も可能になると考えられることから、Takami *et al.* の提案した同軸三重円管型気液混焼バーナーに循環流動層を併用するシステムは、新たな廃液焼却システムとしての可能性を有している。本報では、廃液焼却時に生成する有害ガスの一つである NO_x に着目し、模擬廃液を用いて、循環流動層・同軸三重円管型気液混焼バーナー併用システム構築の基礎となる、固体粒子存在下における同バーナーの NO_x 排出特性について実験的検討を行った。

1. 実 験

実験装置の概略図を Fig. 1 に示す。本装置は円筒型ライザー下部に混焼バーナーを配置した構造を持つ。混焼バーナーは同軸三重円管構造であり、中心軸上には、液体噴霧用二流体ノズルが設置されている。バーナーの内側環状部よりメタンおよび一次空気

の予混合ガスが、外側環状部より燃焼用二次空気が供給される。バーナーポート出口には分散板として 300 mesh/inch の金網が設置されている。ライザー部は内径 7.6×10^{-2} m、高さ 2.61 m のステンレス製である。ライザー上端には粒子の飛散を防ぐため、300 mesh/inch の金網を設置した。ライザー側壁には温度および燃焼ガスサンプリング用タップが、分散板から 0.2, 0.4, 0.65, 0.95, 1.25, 1.55, 1.85, 2.15 m の計 8 ヶ所の高さに設置されている。温度測定には、0.1 mmφ の R 熱電対を用いた。NO_x 濃度は、水冷式ガスサンプリングプローブによって所定の位置のガスを採取し、化学発光式 NO_x 分析計 (Shimadzu, NOA-305) により測定した。流動粒子には NO_x 生成に対して触媒効果のないと考えられる FCC 粒子 (粒径 74–125 μm、密度 760 kg·m⁻³) を用いた。模擬廃液には硫酸アンモニウム 5 wt % - エタノール 10 wt % 水溶液を使用し、噴霧速度は $R = 0.5 \times 10^{-3}$ m³·h⁻¹ とした。実験は、所定の条件において燃焼が安定した後に、ライザー側壁の粒子投入口から所定量の粒子を投入し、定常状態を確認後、各測定を行った。

2. 結果および考察

Fig. 2 は、投入粒子量 G_s [kg] が $0 \leq G_s \leq 0.05$ の範囲において、模擬廃液を噴霧した場合の NO_x 排出特性を示したものである。横軸はライザー底部からの距離、縦軸は NO_x 濃度を示す。ここで $G_s = 0.05$ kg はホールドアップ量 $1-\varepsilon$ が 6.3×10^{-3} に相当する。粒子を投入しない場合、ライザー出口での NO_x 濃度は約 800 ppm であった。硫酸アンモニウムを含まない同濃度のエタノール水溶液を同一条件下で噴霧し測定された NO_x (thermal-NO_x) の濃度は 26 ppm であったことから (Takami *et al.*, 1997)、硫酸アンモニウム・エタノール水溶液を噴霧した場合に発生する NO_x の 95 % 以上が模擬廃液中の N に由来する NO_x (以下便宜的に fuel-NO_x と呼ぶ) であることが分かる。一方、本実験範囲内では、 G_s の増加に伴い NO_x 濃度の低下傾向が見受けられ、 $G_s = 0.05$ kg の場合、NO_x の低減率は約 40 % となった。しかし、N 分から NO_x への転化反応は、 G_s に関わらずいずれも $z = 1$ m で終了しており、これより上方では NO_x 濃度変化はほとんど認められなかった。ただし、 G_s の増大に伴い、ライザー下部での NO_x 生成速度が上昇しており、粒子の存在により、火炎上流での燃焼促進効

† 1999 年 5 月 7 日受理

†† takuya@mhlab.nuce.nagoya-u.ac.jp

* (財)電力中央研究所

** 東邦ガス(株)

Fig. 1 Experimental Apparatus

Fig. 2 Effect of Gravity of Solid in the Riser on NO_x Concentration along the Center Line of the Riser

果を示唆する結果が見受けられた。

Fig. 3に、模擬廃液中のNからfuel-NO_xへの転換率（以下NO_x転換率と記す）に及ぼすG_sの影響について示す。ここでXは模擬廃液中のNからNO_xへの転換率を表し、Eq.(1)で定義される。

$$X = \frac{[NO_x]_{obs} - [NO_x]_{thermal}}{[NO_x]_{max}} \quad (1)$$

ここで、[NO_x]_{obs}は硫酸・エタノール水溶液を用いた場合のライザー出口におけるNO_x濃度、[NO_x]_{thermal}は硫酸アンモニウムを含まない同濃度のエタノール水溶液を用いて同一噴霧条件下で測定されたNO_x (thermal-NO_x) 濃度、[NO_x]_{max}は模擬廃液中のNが全てNO_xに転換したと仮定した場合の濃度である。本実験の範囲内では、NO_x転換率は粒子を投入しない場合、約0.7となるのに対し、粒子の投入によって約0.4まで低下した。Fig. 4に、G_sの増加に伴う、ライザー中心部におけるノズルからの高さz=0.2 mの位置での温度変化を示す。本図より、粒子の投入によって、ライザー内温度が著しく低下している。一般には、fuel-NO_x抑制には二段燃焼による還元雰囲気気の拡大が効果的であるが、燃

Fig. 3 Relationship between NO_x Conversion and Gravity of Solid in the Riser

Fig. 4 Effect of Gravity of Solid on Temperature in the Riser

Fig. 5 Log Yield of NO_x Fitting to Fenimore's Correlation

焼温度も fuel-N から NO への転換率に大きな影響を与えることから (Bowman, 1992), ここでの NO_x 濃度の低下は、G_sの増加に伴うライザー内温度の低下に起因すると考えられる。

NO_xの生成挙動をさらに詳細に検討するため、Fig. 5に実験値をFenimoreの半理論式と比較した結果を示す。図中には比較のため、燃焼条件同一・粒子なしの場合の実験結果 (Takami *et al.*, 1997) を併せてプロットした。本結果より、本バーナーにおいて、粒子存在の有無に関わりなく fuel-NO_x 濃度を予測するFenimoreの半理論式が適用可能であることが示された。なお、N

分増加に対する生成 NO_x 濃度の飽和値 $[\text{NO}_x]_{\text{sat}}$ は、 $G_s=0 \text{ kg}$ のとき 800 ppm であるのに対して、 $G_s=0.03 \text{ kg}$ のとき 490 ppm であった。

結 言

同軸三重円管型気液混焼バーナーの NO_x 排出特性に及ぼす固体粒子の影響を明らかにするため、投入粒子量が NO_x 排出濃度・転換率に及ぼす影響について実験的検討を行った。その結果、以下の結論を得た。

(1) 粒子投入によって、ライザー内温度が低下した結果、 NO_x の生成が抑制された。

(2) 固体粒子存在下における本バーナーの fuel- NO_x 排出濃度に対して Fenimore の半理論式が適用可能であることが示された。

[謝 辞] 本研究は、平成 10 年度「谷川熱技術振興基金」の研究助成を受けた。ここに記して謝意を表す。

Nomenclature

G_s = gravity of solid in the riser [kg]
 $[\text{NO}_x]_{\text{max}}$ = NO_x concentration if all N in the model waste liquid is converted to NO_x [ppm]
 $[\text{NO}_x]_{\text{obs}}$ = concentration of NO_x observed in burnt gas [ppm]
 $[\text{NO}_x]_{\text{sat}}$ = maximum NO_x formed when $[\text{NO}_x]_{\text{obs}}$ becomes in-

dependent of added nitrogen [ppm]
 $[\text{NO}_x]_{\text{thermal}}$ = concentration of thermal- NO_x [ppm]
 Q = load input of CH_4 [kW]
 R = atomization rate [$\text{m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$]
 T = temperature at the center of the riser [K]
 X = NO_x conversion [—]
 z = height from the bottom of the riser [m]
 ϵ = voidage [—]
 λ_{total} = total air ratio [—]
 λ_1 = primary air ratio [—]

Literature cited

- Bowman, C. T.; "Control of Combustion-Generated Nitrogen Oxide Emissions: Technology Driven by Regulation," 24 th Symposium (International) on Combustion/The Combustion Institute, p. 859-878, Sydney, Australia (1992)
 Fenimore, C. P.; "Formation of Nitric Oxide from Fuel Nitrogen in Ethylene Flames," *Combustion and Flame*, **19**, 289-296 (1972)
 Kataoka, A., T. Ihara, W. Nowak, H. Matsuda and M. Hasatani; "Combustion Characteristics of a Circulating Fluidized Bed Gas Combustor with an Internal Nozzle," *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **20**, 827-833 (1994)
 Takami, H., N. Noda, Y. Itaya, H. Matsuda and M. Hasatani; "Incineration Behavior of Wasted Liquids Droplets and NO_x Emission with Combustion of Methane in a Riser," *J. of Chem. Eng. of Japan*, **30**, 1059-1064 (1997)

Effect of Particles on NO_x Emission of Triple Coaxial Tube Burner in a Riser for Waste Liquid Incineration

TAKUYA OYASHIKI¹, NAOKI NODA^{2*}, HITOSHI TAKAMI^{2**}, YOSHINORI ITAYA¹, HITOKI MATSUDA³ and MASANOBU HASATANI²

¹Department of Chemical Engineering, Nagoya University, Nagoya 464-8603

²Department of Energy Engineering & Science, Nagoya University, Nagoya 464-8603

³Research Center for Advanced Waste and Emission Management, Nagoya University, Nagoya 464-8603

Key words: waste liquid, incineration, NO_x emission, Fenimore's correlation.

Waste liquid incineration using a triple coaxial tube burner in a riser with upper stream is proposed. The effect of hold up of FCC particles on NO_x concentration in the burnt gas and conversion of nitrogen in the model waste liquid into NO_x is experimentally studied.

The experimental results show that the region in which NO_x is generated is almost independent of the existence of the particles. However, a rise in the hold up of the particles reduces NO_x emission in the exhaust gas. The behavior of the NO_x emission can be summarized by applying Fenimore's correlation.

* Central Research Institute of Electric Power Industry

** Toho Gas Co., LTD.