微粉炭の着火、燃焼性に及ぼす石炭性状の影響*

檜 戸 清^{*1}, 小豆畑 茂^{*1}
小 林 啓 信^{*1}, 森 田 茂 樹^{*2}

Influence of Coal Quality on Pulverized Coal
Ignition and Combustion Phenomena

Kiyoshi NARATO, Shigeru AZUHATA,
Hironobu KOBAYASHI and Shigeki MORITA

Experiments of the turbulent diffusion pulverized coal flames were performed in a laboratory-scale combustor. Five different coals were burned to examine the influence of coal quality on coal ignition and nitrogen released. Reaction started at a local stoichiometric ratio of 0.35 to 0.4 and this stoichiometry was less dependent on the coal quality. Only fine particles of less than 20 μm reacted early in the combustion process. The nitrogen released from coal was found also to be well correlated to coal burnout and to be less dependent on the particle size.

Key Words: Diffusion Combustion, Combustion Products, Solid Fuel, Pulverized Coal Flame, NO_x Emission, Boiler, Burner

1. ま え が き

微粉炭ボイラでは、運用性拡大を図るために最低負荷を下げる計画がある。微粉炭ボイラの最低負荷を下げるには、バーナに供給する微粉炭量を減少させる必要があり、微粉炭濃度が希薄になるために微粉炭の着火、保炎性が低下し、低負荷時の微粉炭の着火、保炎性の向上が重要課題である。

微粉炭の着火、燃焼性については、Essenhight⁽¹⁾がこれまでの研究をまとめて議論しているように多くの研究が行われている。たとえば、Casselら⁽²⁾による単一石炭粒子の着火温度や、Chenら⁽³⁾、Harkerら⁽⁴⁾、Wallら⁽⁵⁾による粒子群を対象とした着火温度測定実験があり、微粉炭粒子の粒径、揮発分の着火温度に及ぼす影響を明らかにしている。また、Seekerら⁽⁶⁾の衝撃波管を用いた着火遅れ時間、固体表面での酸化速度の検討もあり、微粉炭の着火現象が解明されつつある。しかし、微粉炭ボイラのような実用燃焼炉では、微粉炭の着火は、気体と粒子の混合にも影響され、バーナ近傍での微粉炭と着火用空気の混合解析も重要であ

る。このため、二次元せん断流中の粒子挙動解明なども行われている⁽⁷⁾。著者らは火炎内のガス組成変化や粒子の燃焼率変化を測定することにより、微粉炭火炎の特徴を検討している。

前報⁽⁸⁾においては、揮発分の多い石炭を燃焼させ、火炎内の局所的な空気比を測定し、微粉炭が燃焼を開始する空気比を明らかにした。本報では、引き続き揮発分含有量の異なる5種類の石炭を燃焼させ、微粉炭の着火、燃焼性に及ぼす石炭中揮発分含有量および微粉炭粒径の影響について検討した。

2. 記 号

M : 採取気体中の各分子の体積分率 m^3/m^3

S : 採取気体中の固体粒子の重量分率 kg/m^3

W : 採取気体中の各分子および採取固体中各元素の重量分率 kg/kg

SR : 空気比

FR : 燃料比〔固体炭素(%) / 揮発分(%)〕

添 字

A : 空気

F : 石炭

C : 炭素

$u(\text{H}_2)$: 水素

* 平成2年11月27日、第28回燃焼シンポジウムにおいて講演、原稿受付、平成2年9月28日。

^{*1} 正員、(株)日立製作所日立研究所 (〒312 勝田市堀田832-2)。

^{*2} 正員、パフロック日立(株)呉工場 (〒737 呉市宝町6-9)。

$n(\text{N}_2)$: 窒素 $o(\text{O}_2)$: 酸素 CH_4 : メタン CO : 一酸化炭素 CO_2 : 二酸化炭素 ash : 灰分 R : サンプル g : ガス

3. 実験方法

3.1 微粉炭燃焼装置 微粉炭の燃焼実験は、既報⁽⁸⁾⁽⁹⁾と同様の燃焼装置とバーナを用いて行った。燃焼炉は内径が600 mm 角、長さが6 mの堅形燃焼炉であり、バーナは同心円筒形の構造である。微粉炭はホッパに貯蔵後、気流搬送により燃焼炉上部に設置したバーナから炉内に噴出した。燃焼用空気は、微粉炭搬送用の一次空気のほかに二次および三次空気に分割して投入した。微粉炭と一次空気の予混合気は空気比が0.13~0.20の条件に設定して直進流で噴出した。二次および三次空気は旋回流としてバーナから噴出した。また、石炭燃焼量は25 kg/h、燃焼用空気温度は、一次空気を320 K、二次空気を380 Kおよび三次空気を570 Kに設定し、燃焼炉出口酸素濃度が2%の条件に設定して実験を行った。

3.2 石炭性状 表1に、実験に使用した5種類の石炭の分析値を示す。本報では、燃焼性に及ぼす石炭組成の影響を考察するために、亜歴青炭から無煙炭に至る揮発分含有量が大幅に異なる石炭を使用した。また、 NO_x 発生源となる石炭中窒素分(N分)は、炭種によって異なり、たとえば、無煙炭であるCoal EのN分含有量は他の石炭の1/4~1/5である。

3.3 気体および固体の分析法 燃焼炉内からの気体および固体(チャー)の採取は、採取する過程で反応を停止させるために既報⁽⁸⁾⁽⁹⁾と同様に管内に水を噴射し、気体および固体を急冷できるサンプル管を使用した。多量の水を含むサンプルは、固体と水からなるスラリーと気体成分とに分離し、さらにスラリーはろ過することにより固体と溶液に分離した。 O_2 、 CO 、 CO_2 、 CH_4 、 H_2 および N_2 はガスクロマトグラフ(島津GC 8 A形、日立256形)を用いて測定した。また、 O_2 、 CO は連続分析計(堀場ENDA 200形)でも測定した。固体は、溶液と分離後、乾燥秤量して重量を測定し、吸引ガス量とから固体の重量濃度を求めた。固体中のC、H、Nなどの元素は、元素分析計(Perkin Elmer 240 B形)を用いて分析した。

3.4 火災内空気比、燃焼率および窒素分放出率の

評価法 火災内の局所的な空気比 SR_L は、炉内より採取した気体、固体の分析値および固体粒子の重量濃度の分析値をもとに式(1)を用いて算出した。

Coal A, BおよびEの3炭種については、原炭と炉内より採取した固体粒子とを湿式分級により20 μm 以下、20~37 μm 、37~53 μm 、53~74 μm 、74~105 μm および105 μm 以上の六つの粒径範囲に分級し、各粒径ごとに灰分と窒素分を分析した。図1に、原炭中の灰分と窒素分の分析結果を示す。灰分および窒素分の含有率は、粒径により異なる。灰分は3炭種ともに20 μm 以下の粒子に多く含有され、粗粒子は含有量が少ない。窒素分はCoal Eでは37 μm 以下の微粒子に多く含有されるが、Coal AおよびCoal Bは、粒径による差は少ない。

各粒径ごとの燃焼率は、この原炭と炉内から採取した固体粒子中の灰分量をもとに式(2)を用いて算出した。

$$SR_L = \frac{M_0^d}{2M_C + (1/2)M_H - M_0^{CH}} \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$= 2M_{N_2}(0.21/0.79)/22.4/S_{CH}[(W_C/6) + (W_H/2) - (W_O/16)] + [M_{CO} + 4M_{CH_4} + M_{H_2} - 2M_{O_2} + 2M_{N_2}(0.21/0.79)]/22.4$$

$$\text{燃焼率} = \frac{100(W_{ash}^{CH} - W_{ash}^F)}{W_{ash}^{CH}(100 - W_{ash}^F)} \times 100(\%) \quad \dots\dots\dots (2)$$

また、石炭中窒素分の放出率は、原炭および炉内より採取した固体粒子中の各粒径ごとの窒素分と灰分の分析結果をもとに既報⁽¹⁰⁾と同様に式(3)により算出した。

$$\text{窒素分放出率} = \left(1 - \frac{W_N^{CH}}{W_N^F} \frac{W_{ash}^F}{W_{ash}^{CH}}\right) \times 100(\%) \quad (3)$$

4. 実験結果と考察

揮発分含有量の異なる5種類の石炭を燃焼したときに、バーナ面から0.1~2.4 m下流の位置で37の地点

表1 石炭組成

		Coal A	Coal B	Coal C	Coal D	Coal E
Proximate analysis (%, dry)	V.M.	44.9	28.2	14.3	11.7	7.3
	F.C.	40.8	55.9	69.3	76.0	79.1
	Ash	14.3	15.9	16.4	12.3	13.6
	F.R.	0.9	2.0	4.5	6.5	10.9
Ultimate analysis (%, d.a.f.)	C	76.3	82.0	86.6	88.6	91.8
	H	6.4	5.6	4.2	3.5	0.9
	N	1.3	2.1	1.8	1.8	0.3
	O	15.3	9.8	6.3	4.6	6.8
	S	0.7	0.5	1.1	1.5	0.2

図 1 粒径別の灰分および窒素含有量

より気体と固体粒子を採取し、これらの気体および固体粒子の分析値より求めた火炎内の局所的な空気比と主要気体成分の濃度の関係について検討した。図 2 に実験結果を示す。本報で取扱う火炎は乱流拡散火炎であり、燃焼反応が拡散律速で進行するため、火炎内の主要気体成分濃度は空気比と良い相関があり、主要気体成分濃度は空気比によってほぼ決定される。酸素以外の主要気体成分は、空気比が 1 以下の低酸素濃度領域で炭種によりその濃度が異なる。これは、石炭中の揮発分と炭素の含有量の相違による。主要気体成分の濃度の変化が始まる空気比、すなわち燃焼が開始する空気比は、5 炭種ともに既報⁽⁸⁾と同じ 0.35~0.4 であり、揮発分含有量が 7.3~44.9 (% daf) と大幅に異なっても同じ空気比から燃焼を開始する。

気体濃度変化の始まる、0.35~0.4 の空気比付近では酸素濃度の減少にともない CO_2 濃度が増加する。この空気比付近では CO , H_2 , および CH_4 などの可燃性気体は検出されない。炭素(C)からの CO_2 の生成機構は多くの議論がある。たとえば、Mitchell⁽¹¹⁾ は、層流反応器を用いてチャー表面での CO_2 の生成反応を検討し、1600~1700 K の粒子温度では炭素のほとんどが CO_2 に転換され、より高温の 1800 K では CO_2 の生成は無視できるとしている。Ayling ら⁽¹²⁾ は CO と CO_2 の生成比率を検討し、高温になるほど CO の生成量が多くなり、 CO_2 生成量は減少することを報告している。既報⁽⁸⁾ では火炎内の局所的な空気比と火炎温度の関係を測定し、燃焼初期の火炎温度は 1200~1400

図 2 火炎内空気比と主要気体成分濃度の関係

K と低く、燃焼が進行した空気比が 1 以下の領域で火炎温度が 1 600 K と高くなることを述べた。粒子の温度は、通常気体より数百度高いとされるが⁽⁶⁾、0.35~0.4 の空気比付近では、まだ CO の生成が顕著になる温度に至っていないと思われる。あるいは、CO が生成されても、燃焼初期には酸素濃度が高く、急速に酸化されるため CO は検出されないと考えられる。CO、H₂ および CH₄ は、着火後の燃焼率が急激に上昇する空気比が 0.5 付近から検出される。

次に、Coal A、B および E の 3 炭種について着火、燃焼性に及ぼす粒径依存性について検討した。図 3 に、揮発分含有量の異なる 3 種類の石炭を燃焼したときのバーナ面から 0.1 m 下流のバーナ近傍における火炎内の局所的な空気比と粒径ごとの燃焼率の関係を示す。揮発分の多い Coal A の火炎では、気体成分の濃度変化の始まる 0.35~0.4 の空気比では、20 μm 以下の微粒子から 105 μm の粗粒子に至るまで燃焼を開始するが、燃焼率は粒径により異なり、この空気比付近では微粒子ほど燃焼率が高い。Coal A に比べて揮発分の少

ない Coal B ではこの 0.35~0.4 の空気比では 37 μm 以下の微粒子のみが燃焼を開始する。37 μm より大きな粒子は 0.4 以上の空気比から燃焼が始まり、揮発分が少なくなると粗粒子は燃焼しにくい。揮発分の極めて少ない Coal E では粒径の影響がより顕著に現れ、粒径ごとに燃焼の始まる空気比が異なる。

図 4 は、上記 3 炭種のうち、20 μm 以下の微粒子についてのみ火炎内の局所的な空気比と燃焼率を比較した結果を示す。いずれの石炭でも 20 μm 以下の微粒子は、0.35~0.4 の空気比で燃焼を開始し、燃焼開始直後の燃焼率はほぼ同程度である。ふく射と対流伝熱により粒子が加熱されるとして粒子の昇温速度を求めると、20 μm 以下の微粒子の昇温速度は粗粒子に比べて極めて大きい⁽¹³⁾。また、Chen ら⁽³⁾によれば、微細な粒子ほど着火温度が低い。したがって、微粒子は着火温度が低いことと昇温速度が大きいことの二つの理由から、炉内に噴出されると即座に燃焼し、着火直後の燃焼率は炭種の影響が現れないと考える。また、Essenhigh⁽⁴⁾によれば、熱分解の起きる前に微粒子は着火される。この指摘が正しければ、高温下での微粒子の着火は揮発分含有量の影響を受けにくいと思われる。また、着火後の燃焼が進行した 0.5 以上の空気比領域では、炭種により燃焼率に顕著な差が現れる。揮発分が多く含まれる石炭ほど燃焼率は高く、揮発分の少ない石炭の燃焼率は低い。

次に、図 5 に 105 μm 以上の粗粒子の燃焼率を比較した結果を示す。105 μm 以上の粗粒子は 20 μm 以下の微粒子に比べて着火特性は大きく異なる。揮発分の多い石炭と揮発分の少ない石炭とでは、燃焼を開始する空気比が異なる。粗粒子は昇温速度が遅く⁽¹³⁾、熱分解、揮発分燃焼、固体粒子の燃焼と段階的に燃焼反応が進行しやすいと考える。また、揮発分放出後に固体粒子の細孔比表面積が増加し^{(15)~(17)}、揮発分量の多い石炭のチャーほど細孔比表面積が大きくなり、燃焼性が高まることも一因と考えられる。以上の図 3 から図

図 3 火炎内空気比と粒径別燃焼率の関係
(バーナ面より 0.1 m 下流)

図 4 20 μm 以下の微粒子の燃焼率比較

図 5 105 μm 以上の粗粒子の燃焼率比較

5の結果より、微粉炭の燃焼は微粒子の着火に始まり、次いで粗粒子の着火、燃焼と進行し、微細な粒子の着火は揮発分含有量の影響は小さいが、燃焼する過程で揮発分の影響が現れることがわかる。

次に、微粉炭火炎で生成される NO_x の80%以上が Fuel NO であるため⁽¹⁸⁾、火炎内の NO_x の挙動に影響を及ぼす石炭中窒素分(N分)の放出率についても検討した。石炭中窒素分の放出については、すでに Pohl ら⁽¹⁹⁾、Badzioch ら⁽²⁰⁾ および Smoot⁽²¹⁾ らにより検討されている。たとえば Pohl ら⁽¹⁹⁾ は、石炭の熱分解時の窒素分の放出過程を検討し、窒素分の放出開始温度は揮発分の放出開始温度と一致すること、揮発分の含有量が多くなると、固体粒子中に残留する窒素分量が少なくなることを報告している。また、Smoot⁽²¹⁾ は窒素分の放出率を石炭燃焼率と関連づけて整理している。本報では粒径ごとに窒素分放出率を求め、Smoot⁽²¹⁾ と同様に石炭燃焼率と窒素分放出率の関連性を検討した。図6に、Coal A、Coal B および Coal E を燃焼したときの火炎内の各粒径ごとの燃焼率と石炭中窒素分の放出率の関係を示す。3炭種ともに窒素分放出率と石炭の燃焼率はほぼ1:1の関係にあり、窒素分放出率は燃焼率により決定される。実用燃焼に近い本報の結果は、Pohl ら⁽¹⁹⁾ および Badzioch ら⁽²⁰⁾ の熱分解時の挙動とは異なり、揮発分含有量が7.3~44.9(%、daf)と大幅に異なっても窒素分放出率は揮発分量の影響をうけにくく、粒径の影響も極めて小さいことがわかる。これらの窒素分放出率の結果から、微粉炭ノズル近傍の燃焼初期領域では、微粒子ほど燃焼率が高いために窒素分の放出は多くなり、火炎後流で発生する NO_x は、燃焼の遅い粗粒子からの窒素分に起因すると推測される。

5. ま と め

石炭燃焼量が25 kg/hの実験室規模の燃焼装置を用いて、揮発分含有量の異なる5種類の石炭を燃焼し、

図 6 石炭燃焼率と窒素分放出率の関係

おのおのの火炎内ガス組成変化と粒径ごとの燃焼率および窒素分放出率を測定することにより、次のことが明らかになった。

- (1) 20 μm 以下の微粒子は、揮発分含有量が異なっても本報で使用した燃焼装置では、0.35~0.4の空気比で燃焼を開始する。また、燃焼開始後は、揮発分の多い石炭ほど燃焼率は高い。
- (2) 揮発分の多い微粉炭は、20 μm 以下の微粒子から105 μm 以上の粗粒子に至るまでほぼ同じ空気比で燃焼を開始するが、揮発分の少ない微粉炭は粒径によって燃焼を開始する空気比が異なる。
- (3) 石炭中窒素分の放出率は、燃焼率とほぼ一致し、窒素分放出率と燃焼率の関係に対しては、揮発分含有量および粒径の影響は極めて小さい。

文 献

- (1) Essenhigh, R. H., *Chemistry Coal Utilization*, 2nd

- Suppl. Vol., (1981), 1153-1312. NAS-NRC Committee on chemistry of Coal.
- (2) Cassel, H. M. and Liebmann, I., *Combust. Flame*, **7** (1963), 79-81.
- (3) Chen, M. R., ほか2名, *Proc. 21st Symp. (Int.) Combust.*, (1986), 1513-1521.
- (4) Wall T. F., ほか1名, *Combust. Flame*, **66**(1986), 151-157.
- (5) Harker, J. H. and Meller, N. S., *J. Inst. Energy*, (1986), 154-159.
- (6) Seeker, W. R., ほか2名, *Proc. 17th Symp. (Int.) Combust.*, (1978), 155-166.
- (7) 小林・ほか3名, 機論, **56**-517, B(1990), 2198-2205.
- (8) 櫛戸・ほか3名, 機論, **55**-528, B(1989), 2787-2794.
- (9) Azuhata, S., ほか5名, *Proc. 21st Symp. (Int.) Combust.*, (1986), 1199-1206.
- (10) 櫛戸・ほか5名, 第21回燃焼シンポジウム講演論文集, (1983), 188-190.
- (11) Mitchell, R. E., *Proc. 22nd Symp. (Int.) Combust.*, (1988), 69-78.
- (12) Ayling, A. B. and Smith, I. W., *Combust. Flame*, **18** (1972), 173.
- (13) Masutani, S. M., ほか3名, *Proc. AIAA 25th Aerosp. Sci. Meet.*, AIAA-87-0299, (1987).
- (14) Essenhigh, R. H. and Csaba, J., *Proc. 19th Symp. (Int.) Combust.*, (1982), 111-124.
- (15) Tsai, C. Y. and Scaroni, A. W., *Fuel*, **166**(1987), 200-206.
- (16) Smith I. W., *Proc. 19th Symp. (Int.) Combust.*, (1982), 1045-1065.
- (17) 藤原・ほか3名, 第25回燃焼シンポジウム講演論文集, (1987), 121-123.
- (18) Pershing, D. S. and Wendt, J. O. L., *Proc. 16th Symp. (Int.) Combust.*, (1976), 661-670.
- (19) Pohl, J. H. and Sarofim, A. W., *Proc. 16th Symp. (Int.) Combust.*, (1976), 491-501.
- (20) Badzioch, S. and Hawksley, P. G. W., *Ind. Eng. Chem. Process Des. Develop.*, (1970).
- (21) Smoot, L. D., *Proc. 18th Symp. (Int.) Combust.*, (1980), 1185-1202.