石炭ガス化中カロリー燃料用ガスタービン燃焼器*

(第3報, Fuel NO_x/Thermal NO_x 同時低減燃焼技術)

長谷川 武治^{*1}, 佐藤 幹夫^{*1}

Medium-Btu Fueled Gas Turbine Combustor for Use in IGCC (3rd Report, Combustion Technology for Reducing both Fuel-NO_x and Thermal-NO_x Emissions)

Takeharu HASEGAWA^{*2} and Mikio SATO

^{*2} Energy & Mechanical Engineering Department, Central Research Institute of Electric Power Industry,
2-6-1 Nagasaka, Yokosuka-shi, Kanagawa, 240-0196 Japan

In order to improve the thermal efficiency of the oxygen-blown IGCC (Integrated Gasification Combined Cycle) and to meet stricter environmental restrictions among cost-effective options, a hot/dry synthetic gas cleanup is one of the most prospective choices. The flame temperature of medium-Btu gasified fuel used in this system is relatively high, so that NO_x formation by nitrogen fixation increases significantly. Additionally, the gasified fuel contains fuel nitrogen in the form of ammonia mostly and it produces nitrogen oxides, the fuel-NO_x in the case of employing the hot/dry synthetic gas cleanup. Low NO_x combustion technology to reduce both fuel-NO_x and thermal-NO_x emissions has been required to protect the environment and ensure low cost operations for all kinds of oxygen-blown IGCC. In this paper, we have demonstrated effectiveness of two-stage combustion and nitrogen injection technique, and also showed useful engineering guidelines for the low-NO_x combustor design of oxygen-blown gasified, medium-Btu fuels.

Key Words: Gasification, Medium-Btu Gasified Fuel, Gas Turbine Combustor, Fuel-NO_x Emission, Low NO_x Combustion

1. 緒言

長期的に安定供給が期待される石炭を利用するガス化複合発電(IGCC)は、高効率で環境保全性に優れていることから国内外で開発が進められており、わが国では空気吹き噴流床石炭ガス化方式による 250 MW 級 IGCC 実証機計画が進められている⁽¹⁾。一方、欧米では酸素吹き石炭ガス化複合発電を中心に開発が進められており、一部は商用機開発の段階にある⁽²⁾。今後、わが国 IGCC 商用機の本格導入に向けて、各種ガス化複合発電に適用するガス化、ガス精製およびガスタービン技術の開発が重要である。

酸素吹きガス化複合発電では、現在、ほとんどのプラントでガス精製に湿式法が採用されており、本研究ではこれまでに、湿式ガス精製による酸素吹きガス化中カロリー燃料を対象としてプラント余剰窒素(N₂)を燃焼器内に直接噴射する方式を提案し、1300℃(1573 K)級燃焼器として NO_x(16% O₂)排出濃度を約 10 ppm にまで低減できる燃焼器技術確立した^{(3)~(6)}。本方式では、N₂をガス化燃料に予混合

する従来方式に比べて送電端熱効率を約 0.3 % 向上できる⁽⁴⁾。しかしながら、より一層の発電効率の向上およびシステムの簡素化による発電コスト低減のためには乾式ガス精製の採用が不可欠であり、この際、ガス化燃料中のアンモニア(NH₃)は除去されずにガスタービンに供給され、Fuel NO_xの生成源となる。このため、乾式ガス精製による酸素吹きガス化中カロリー燃料を用いるガスタービン燃焼器では、Thermal NO_xと、燃料中 NH₃に起因する Fuel NO_xを同時低減する燃焼技術の確立が重要な課題である⁽⁷⁾⁽⁸⁾。

本論文は、小型バーナによる燃焼実験結果⁽⁷⁾⁽⁸⁾にもとづき、二段燃焼法とプラント余剰 N₂のバーナ直接噴射を採用する Fuel NO_x/Thermal NO_x 同時低減燃焼方式を提案し、1500℃(1773 K)級ガスタービン燃焼器を設計、試作するとともに、酸素吹き石炭ガス化中カロリー燃料の模擬ガスを用いた燃焼試験により燃焼器性能を明らかにする。

記号

C.R.	: 燃料中の NH ₃ から NO _x への転換率 %
HHV	: 高位燃料発熱量 MJ/m ³
LHV	: 低位燃料発熱量 MJ/m ³
Ic	: 燃焼負荷率 W/(m ³ ·Pa)

* 原稿受付 2002 年 11 月 25 日。

*¹ 正員, (財)電力中央研究所(〒240-0196 横須賀市長坂 2-6-1)。

E-mail: takeharu@criepi.denken.or.jp

N_2/Fuel : 窒素と燃料の供給量比率 kg/kg
 $\text{NOx}(16\% \text{O}_2)$: 燃焼ガス中の酸素濃度を 16 % に換算した場合の NOx 排出濃度 ppm
 P : 燃焼器内圧力 MPa
 T_{air} : 供給空気温度 K
 T_{ex} : 燃焼器出口ガス温度 K
 T_{fuel} : 供給燃料温度 K
 T_{N_2} : 供給窒素温度 K
 U_r : 空気の燃焼器内平均断面流速 (0 °C) m/s
 ϕ_{ex} : 燃焼器出口における平均の当量比
 ϕ_p : 二段燃焼における一次燃焼領域の平均当量比
 $\Delta P/q$: 全圧損失率(代表断面:燃焼器ライナ出口)⁽⁹⁾

2. ガス化中カロリー燃料の燃焼特性

2.1 ガス化中カロリー燃料の特徴

ガス化燃料は、石炭、重質油等の燃料の種類、ガス化剤の種類、ガス化方式ならびにプラントシステムにより組成および発熱量が異なる。各種ガス化燃料の代表的な組成例⁽⁵⁾を表 1 に示す。

酸素吹きガス化中カロリー燃料は、いずれの当量比においても天然ガスの主成分である CH_4 の理論断熱炎温度よりも高くなり、Thermal NOx が多量に発生する⁽⁷⁾⁽⁸⁾。また、プラント熱効率向上を目的に、乾式ガス精製方式を採用した場合、ガス化燃料中の N 化合物 (主に NH_3) は除去されずに燃焼器に供給され、Fuel NOx を発生する。そのため、本研究で対象とする乾式ガス精製による酸素吹きガス化中カロリー燃料用ガスタービン燃焼器では Fuel NOx と Thermal NOx を同時に低減する必要がある。著者らはこれまでに、1) 乾式ガス精製による空気吹きガス化低カロリー燃料用燃焼器⁽¹⁰⁾、2) 湿式ガス精製による酸素吹きガス化中カロリー燃料用燃焼器^{(3)~(6)}の開発を通して、ガス化燃料用低 NOx 燃焼技術について以下のことを明らかにした。

(1) 二段燃焼法はガス化燃料の Fuel NOx 低減に有効である。

(2) ガス化剤である酸素の製造過程で副生されるプラント余剰 N_2 を燃焼器に直接噴射する方式が Thermal NOx 低減に有効である。

これらのことから、中カロリー燃料の Fuel NOx/Thermal NOx の同時低減燃焼方式として N_2 供給を伴う二段燃焼法を提案し、小型バーナを用いた燃焼実験により NOx 低減効果を明らかにするとともに、燃焼器設計指針について検討した。

2.2 小型バーナおよび実験装置

図 1 に、小型の実験装置本体およびバーナの概略を示す。実験装置本体は、内側を耐火材で覆った内径 90 mm、長さ 1000 mm の円筒型の燃焼室、一次空気導入部および燃料噴射弁から成り立っている。燃焼器の軸方向空気配分や二段燃焼(空気二段供給)を模擬するために、燃焼室の側壁には流れ方向に沿って 4 カ所に二次空気口を設けた。二次空気口は直径が 13 mm、一断面について円周方向に 12 カ所設けた。

Fig.1 Combustor and diffusion burner of fundamental experimental device

Table 1 Typical compositions derived from some types of gasifiers

Fuel	Coal						Biomass		Heavy residue	Orimulsion™
Gasifier type	Fixed	Fluidized	Entrained				Entrained		Entrained	Entrain
Coal supply	Dry	Dry	Dry			Slurry				
Developer	BGL	BC	IGC	Shell	HYCOL	Texaco	Tampella		Texaco	CRIEPI
Oxydizer	O ₂	Air	Air	O ₂	O ₂	O ₂	Air	O ₂	O ₂	O ₂
Composition										
CO	56.4%	7.9-14.7%	25.9-27.6%	65.2-69.5%	55.2-59.4%	40.9%	8.0-15.0%	21.9-23.1%	51.7%	43.5%
H ₂	25.6%	13.2-15.0%	10.9- 9.4%	28.8-31.0%	31.1-33.7%	29.9%	8.0-12.0%	12.5-22.4%	43.1%	42.2%
CH ₄	6.6%	1.5- 2.8%	1.4- 0.5%	0.01-0.03%	1.0- 2.0%	0.1%	4.0- 8.0%	2.2%	0.2%	0.4%
CO ₂	2.8%	10.0-12.0%	6.7- 5.4%	1.0- 2.8%	7.6-10.4%	9.5%	13.0-18.0%	20.7-18.6%	3.2%	11.8%
H ₂ O	-(a)	11.5-18.4%	-(a)	-(c)	-(a)	12.3%	7.0-15.0%	40.9-31.5%	-(c)	-(c)
NH ₃	-(a)	500-1000ppm	1000ppm(b)	100- 600ppm	-(a)	-(a)	-(a)	0-200ppm	-(a)	-(a)
H ₂ S+COS	20ppm	-(a)	404-714ppm	0.14- 1.1%	-(a)	-(a)	-(a)	0.285-1.132%	1.6%	1.35%
Others(N ₂ etc)	8.6%	45.9- 47.3%	54.2-56.1%	-(a)	-(a)	7.3%	-(a)	1.800-1.048%	0.2%	0.75%
CO/H ₂ mole ratio	2.2	-(a)	2.4-3.0	2.1- 2.4	1.6-1.9(b)	1.4	-(a)	1.0-1.8	1.2	1.0
HHV[MJ/m ³]	13.0	3.6-4.1	4.9-5.2	12.2-12.5	12.0(b)	9.0	4.0-7.0	5.2-6.6	12.1	11.0

(a):No description, (b):Estimated values, (c):Dry Base

本実験では、燃焼室内径を D としたとき燃料噴射弁先端から距離 $3 \times D$ の位置の二次空気口を採用し、燃料噴射弁から二次空気口までの領域を一次燃焼領域、二次空気口より下流を二次燃焼領域としている。

供試バーナは、口径 $1.5 \text{ mm} \times 12$ 、噴口角度 $\theta = 90^\circ$ の燃料噴射ノズルと内径 24.0 mm 、外径 36.4 mm 、旋回角度 $\theta_a = 45^\circ$ の一次空気旋回器から構成されている。小型バーナのスワール数 $S (=2/3 \cdot (1-B^3)/(1-B^2) \cdot \tan \theta_a)$ 、 B :ボス比)は 0.84 である。実験では、燃料中の主要な可燃性成分である CO と H_2 は予め一定の比率 (CO/H_2 モル比率 $=2.33$) で充填されたボンベから供給し、燃料発熱量は N_2 の希釈により調整している。燃料中の CH_4 濃度を変化させる場合には、 CO/H_2 モル比率一定の条件下で、 CO と H_2 の供給量および N_2 希釈量により発熱量を調整した。燃焼ガスは、燃焼室出口ダクト中心軸上に挿入した水冷プローブ (1 点) によりサンプリングし、 CO 、 CO_2 については非分散赤外線吸収法により、 NO_x 、 O_2 、 THC はそれぞれ化学発光法、磁気圧力法、水素炎イオン検出法により濃度を測定した。また、実験はすべて大気圧にて実施した。

2.3 小型バーナによる中カロリー燃料の燃焼特性

中カロリー燃料燃焼時の Fuel NO_x 低減を目的に二段燃焼法を採用する場合、一次当量比の設定が重要な要因となること、また一次当量比の設定条件は燃料中 CH_4 濃度により影響を受けることが知られている⁽⁸⁾。

2.3.1 Thermal NO_x 生成特性

Thermal NO_x 生成特性に及ぼす二段燃焼法および N_2 噴射方法の影響について検討した。図2は、供給空気量および燃料量全体から化学平衡を考慮して算

Fig.2 Effect of nitrogen injection on thermal- NO_x emission characteristics in two-stage combustion, using a small diffusion burner

出される理論断熱火炎温度が $1773 \text{ K} (1500^\circ\text{C})$ で一定となるように当量比を設定し、燃料噴射弁から二次空気導入部までの一次燃焼領域の平均当量比 ϕ_p を変化させた場合の Thermal NO_x 生成濃度 (実濃度) について、 N_2 を燃料または空気に混合して供給した場合と N_2 を供給しない場合について示す。実験では、噴射弁から供給する燃料流速を一定とし、燃焼用空気は一次空気導入部へ供給する一次空気と二次空気とに分けて供給することにより、一次燃焼領域の当量比 ϕ_p が Thermal NO_x 排出特性に及ぼす影響を調べた。また、 N_2 は燃料の 2.1 ($\text{N}_2/\text{Fuel} = 2.1 \text{ kg/kg}$) 倍に相当する量を、燃料またはスワールから供給する一次空気に全量予混合して燃焼室へ供給した。 N_2 混合後の燃焼用空気温度 T_{air} および燃料温度 T_{fuel} は、 N_2 を供給しない場合と等しく、いずれも $503 \text{ K} (230^\circ\text{C})$ としており、また N_2 を燃料に混合した場合の燃料発熱量 HHV は 5.1 MJ/m^3 になる。 N_2 を供給しない場合は一次当量比 ϕ_p が約 1 の時に Thermal NO_x 生成濃度は最大値を示し、 $\phi_p = 2$ で極小値を示し、さらに ϕ_p が上昇すると Thermal NO_x 排出濃度は上昇する。このように、 N_2 により燃焼ガスを希釈しない場合、 ϕ_p の設定値が高すぎると一次燃焼領域での未燃焼成分が二次空気供給後に燃焼し、Thermal NO_x が増加する。一方、 N_2 を燃料または一次空気に混合して供給する場合には、Thermal NO_x 生成濃度は大幅に低下し、一次燃焼領域の平均当量比 ϕ_p を 1.6 以上とすることによりさらに低減する。すなわち、量論比近傍で最高火炎温度が約 2600 K と高温になる中カロリー燃料 ($\text{HHV} = 12.7 \text{ MJ/m}^3$)⁽³⁾ では、 N_2 を燃料または一次空気に予混合して一次燃焼領域に供給し、火炎温度を低下させることにより、Thermal NO_x 生成量を大幅に低減できるとともに、一次燃焼領域の平均当量比を上昇させることが Thermal NO_x 低減に有効であるとわかる。また、 ϕ_p が 1 以下の燃料希薄条件では、 N_2 を一次空気に予混合する場合よりも燃料に予混合する方が Thermal NO_x を低減しており、しかも ϕ_p の上昇に伴い両者の Thermal NO_x の生成量の差が小さくなることがわかる。これは、バーナから供給する燃料と一次空気との体積流量の相違に起因していると考えられる。すなわち、燃料希薄条件では一次空気よりも体積流量の小さい燃料を N_2 で希釈する方が局所的な高温領域の発生が抑制される。一方で、 ϕ_p の上昇に伴い一次空気量が減少し、 ϕ_p が 2 以上では N_2 により一次空気を希釈した場合と燃料を希釈した場合とではほぼ同程度まで Thermal NO_x を低減する。

2.3.2 Fuel NO_x 生成特性

図3は、図2と同じ条件下での、一次燃焼領域の当量比 ϕ_p と燃料中のNH₃がNO_xに転換する割合(以下、転換率(C.R.)という)の関係について、N₂を燃料または一次空気に混合して供給した場合とN₂を供給しない場合について示す。転換率C.R.は以下

$$C.R. = \frac{([NO_x] - [NO_{x_{th}}]) \times \text{排ガス体積流量}}{[NH_3] \times \text{燃料体積流量}}$$

の式で示される。実験では、燃料中にNH₃を1000 ppm含む条件および含まない条件で全NO_x排出濃度([NO_x])、Thermal NO_x排出濃度([NO_{x_{th}])をそれぞれ計測して、その差からFuel NO_x排出濃度を求めている。本条件下では、すべてのNH₃がNO_xに酸化した場合、Fuel NO_xは約170 ppm生成される。燃焼室の二次空気口の開口面積は一定としており、二次空気の流入速度の変化によるFuel NO_xとThermal NO_xの生成反応凍結への影響については考慮していない。一次燃焼領域の平均当量比 ϕ_p に対するC.R.は、いずれの場合もほぼ同様な傾向を示し、一次当量比 ϕ_p を1以上の燃料過濃条件とすることによりC.R.を低減できることがわかる。また、一次当量比 ϕ_p が1以下ではN₂を供給することによりC.R.が上昇し、特に、燃料に混合した場合が最も高いC.R.を示した。Fuel N分を不活性ガスで希釈するほどC.R.は上昇することが知られており⁽¹¹⁾、本現象はこれと類似している。すなわち、N₂を燃料または一次空気に混合して供給することにより一次燃焼領域のNH₃濃度が相対的に減少して、C.R.が上昇したものと考えられる。また、N₂を燃料に混合した方が一次空気に混合する場合よりもC.R.が高くなる傾向を示したのは、燃料の体積流量が一次空気の場合よりも小さ}

く、希釈の影響が相対的に大きいと推察される。

一方で、 ϕ_p が1以上の燃料過濃条件では、N₂を燃料に混合した場合が最も低い ϕ_p でC.R.の最小値を示した。また、N₂を一次空気に予混合した場合には、二段燃焼法によるC.R.の低減効果が若干低下する。

COやH₂などの非炭化水素系燃料とCH₄などの炭化水素系燃料ではThermal NO_x生成特性が異なることが知られている。主なガス化中カロリー燃料では燃料中のCH₄濃度は3%以下であり、Thermal NO_x生成量に及ぼす燃料中CH₄濃度の影響は小さいものの、微量のCH₄がFuel NO_x生成特性に大きく影響することが著者らの検討からわかってきた⁽⁷⁾⁽⁸⁾。図4に、二段燃焼時のC.R.に及ぼす燃料中のCH₄濃度の影響について調べた結果を示す。中カロリー燃料中にCH₄を含まない場合は、一次燃焼領域の平均当量比 ϕ_p が高いほどC.R.が低下する傾向を示す。一方で、燃料中にCH₄を含む場合にはC.R.を極小とする一次当量比が存在することがわかる。さらに、燃料中CH₄濃度の増加に伴いC.R.を極小とする最適一次当量比が低下するとともに、C.R.の最小値が上昇する。燃料中にCH₄とNH₃を含む場合、燃料過濃となる反応領域で反応($R-CH+NH_3 \rightleftharpoons HCN+R-H$, R:-アルキル基)によりHCNを生成し⁽¹²⁾、これが燃料希薄な領域でNOに酸化される。燃料中CH₄濃度が高いほど火炎内でNH₃に起因して生成するHCNの生成量が増加し、空気過剰な二次燃焼領域にて生成するNO_x量が増加して、C.R.が低下すると考えられる。

また、燃料発熱量が11.4 MJ/m³程度の中カロリー燃料の場合、いずれのCH₄濃度の場合においても、一次当量比 ϕ_p が2.5以上では、一次当量比のC.R.への影響は顕著でないことがわかる。

Fig.3 Effect of nitrogen injection on the conversion rate of NH₃ in fuel to NO_x in two-stage combustion, using a small diffusion burner

Fig.4 Effect of CH₄ concentration in fuel on the conversion rate of NH₃ in fuel to NO_x in two-stage combustion, using a small diffusion burner

以上のことから、中カロリー燃料の Fuel NO_x と Thermal NO_x を同時低減する燃焼法として二段燃焼法は有効であり、一次当量比 ϕ_p を 1.6 以上の燃料過濃条件で、かつ燃料中 CH₄ 濃度に応じて設定するとともに、プラント余剰 N₂ は一次燃焼領域へ供給することが重要であるとわかる。

3. ガス化中カロリー燃料用燃焼器

3.1 燃焼器設計

プラントシステム解析⁽⁴⁾および小型バーナを用いた燃焼実験の結果をもとに、N₂ 供給を伴う中カロリー燃料用ガスタービン低 NO_x 燃焼器について以下の設計指針を明らかにした。

- (1) プラント余剰 N₂ は、昇圧動力を低減するように燃焼器へ直接、または燃焼用空気に予混合して供給し、所内動力を低減してプラント送電端熱効率を高く維持する⁽⁴⁾。
- (2) プラント余剰 N₂ をバーナから供給して燃焼温度を低下させ、Thermal NO_x を抑制する。
- (3) 二段燃焼法を適用し、一次燃焼領域の平均当量比 ϕ_p を 1.6 以上の燃料過剰条件で、燃料中 CH₄ 濃度に応じて調整することにより、Fuel NO_x を低減すると同時に、さらに Thermal NO_x も低減する。

以上の設計指針をもとに、設計、試作した燃焼器の概略を図 5 に、定格時における各軸方向断面の平均当量比分布を図 6 に示す。供試燃焼器は多缶型燃焼器の一缶に相当し、内径は 175 mm、尾筒を含まないライナ部の全長は 445 mm である。本燃焼器では、副燃焼室を設け、図 6 に示すように定格時における副燃焼室の平均当量比を 2.4 として、ガスタービン部分負荷を含む全負荷帯にわたり保安性能の向上を図っている。また、副燃焼室出口外周に主バーナを配置するとともに、主バーナの燃料と空気口の間に N₂ 噴射口を設けて、燃焼器内で燃料と空気がそれぞれ N₂ と混合する構造とした。燃料、空気および

N₂ の噴射口の旋回角は副燃焼室バーナおよび主バーナ共に 30°、内向角は主バーナのみ 15° とした。バーナへ供給する燃料、空気および N₂ 流量は定格条件で、それぞれ 0.77 kg/s、0.28 kg/s および 0.55 kg/s とした。

燃焼器ライナには、現用ガスタービン燃焼器の寸法の制約から二次空気口を軸方向にバーナ端から距離 350 mm 下流で、円周方向に 8 カ所設けた。Fuel NO_x 低減に重要となるバーナ出口から二次空気口までの一次燃焼領域の平均当量比 ϕ_p については、試験設備で供給する模擬ガス燃料中の CH₄ 濃度が 3% であることから、小型バーナを用いた燃焼実験結果にもとづき 1.9 とした。なお、開口部面積はすべて一定としており、平均当量比は開口面積比から算出した。

燃焼器尾筒については、二重構造として冷却空気による衝突・対流冷却方式を採用し、尾筒で用いた冷却空気を燃焼器壁面の冷却および燃焼用空気として再利用している。また、燃焼器ライナが高温になると予想される二次空気口近傍には、フローズスリーブからの空気を衝突噴流で供給する構造を採用し、冷却性能を向上させた。

Fig.6 Axial distribution of equivalence ratio at the rated load condition

Fig.5 Design concepts of a medium-Btu fueled gas turbine combustor

3・2 試験設備および方法

ガスタービン燃焼器の試験設備の系統を図7に示す。供試燃料は酸素吹きガス化炉で生成される燃料とほぼ同組成になるように、原料のプロパンを水蒸気改質した後、水素分離膜と N_2 添加により成分が調整される。燃焼器に供給する空気は、駆動機出力 2.8 MW の四段遠心型圧縮機で 2.0 MPa まで昇圧された後、所定の圧力まで減圧して用いられる。供試燃料と空気は、それぞれ予熱器により所定の温度まで加熱され、燃焼器に供給される。燃焼器試験では、300 MW 級多缶型ガスタービン燃焼器の 1/2 サイズ燃焼器 1 缶の高圧燃焼試験（最大 1.5 MPa）が可能である。なお、本設備では N_2 を燃焼器に直接供給するための N_2 供給ラインが設けられている。

Fig.7 Schematic diagram of experimental facility

Table 2 Typical compositions of supplied fuel and actual gasified fuel

		supplied fuel	actual gas
Composition	CO	31.4%	40.9%
	H ₂	28.6%	29.9%
	CH ₄	3.0%	0.1%
	CO ₂	32.0%	9.5%
	H ₂ O	—	12.3%
	N ₂	5.0%	7.3%
	NH ₃	0 ~	3000ppm
	HHV	8.8 MJ/m ³	9.0 MJ/m ³
	LHV	8.1 MJ/m ³	8.2 MJ/m ³

Table 3 Standard test conditions

T _{air}	:	603 K (330°C)
T _{fuel}	:	583 K (310°C)
T _{N₂}	:	333 K (60°C)
N ₂ /Fuel	:	0.70 kg/kg
T _{ex}	:	1773 K (1500°C)
P	:	1.2 MPa
φ _{ex}	:	0.66
I _c	:	4.0x10 ² W/(m ³ ·Pa)
U _r	:	5.6 m/s
ΔP/q	:	1.64x10 ²

燃焼器試験では、高温の燃焼ガスは尾筒を通過した後、計測ダクトにてガス成分とガス温度を計測する。燃焼ガスについては、燃焼器出口ダクトに挿入した水冷プローブ(2点)によりサンプリングし、露点以上を維持して自動ガス分析計に送り、小型バーナによる実験と同様に各種成分濃度を測定した。燃焼器出口ガス温度分布は、計測ダクトに挿入した 15 点(=3 本×5 点)の輻射遮蔽を施す R 型シース熱電対により計測した。燃焼器壁面温度は燃焼器ライナおよび尾筒の外壁面にステンレス箔により固定された約 40 本のシース外径 1 mm の K 型熱電対により計測した。

表 2 および表 3 は、それぞれ供試燃料の標準条件と本研究で対象とする中カロリー燃料の組成例の比較、および 1773 K (1500 °C) 級燃焼器の定格相当での試験条件を示す。供試燃料は、実際のプラントのガス化燃料に比較して CO₂ を多く含み、密度が比較的大きく、かつ N₂ の供給温度が実プラントの場合(423 ~ 603 K)よりも低いことからバーナ近傍での火炎温度が低いと考えられる。燃焼器の燃焼特性は、バーナ近傍の火炎温度に影響されることから、バーナ近傍の火炎温度を実際と同等とするため、試験条件における燃焼器への N₂/Fuel 供給量比率(実機では、1.0 ~ 1.2 kg/kg)を 0.7 kg/kg とした⁽³⁾。なお、供試燃料に 0.7 kg/kg 倍の N₂ を混合した場合、燃料発熱量は約 5 MJ/m³ となる。これは、小型バーナ実験で用いた燃料に N₂ を予混合した際の発熱量と同等になる。

また、燃料中 NH₃ 濃度は石炭等燃料の種類、ガス化方式、ガス化剤の純度等により異なる。著者ら⁽¹³⁾ は、小型バーナを用いた燃焼実験で燃料中 NH₃ 濃度を 1000 ppm として Fuel NO_x 生成特性に及ぼす燃料発熱量や組成など各種因子の影響について検討してきたが、本論文で対象とするガス化中カロリー燃料では NH₃ 濃度が 500 ppm になるため、燃焼器試験ではこれを標準条件と設定し、NH₃ 濃度の影響について 3000 ppm までの範囲で検討した。燃焼器内圧力 P は定格で 1.8 MPa であるが、燃焼器試験では 1.2 MPa を標準試験条件とし、中～高圧条件下の燃焼試験により圧力特性を評価し、実機条件での燃焼器性能を予測した。

3・3 試験結果および考察

供試燃焼器について、燃焼特性に及ぼす燃焼器出口ガス温度 T_{ex}、N₂ 供給量、燃料中 NH₃ 濃度および CH₄ 濃度の影響を検討し、性能を確認した。

図 8 は、空気流量を 1.9 kg/s、N₂ 供給量を燃料の

0.7 倍 (N_2/Fuel 供給量比率 = 0.7 kg/kg) で一定とする条件下で、燃料流量を変化させることにより燃焼器出口ガス温度 T_{ex} を変化させた場合の燃料中 NH_3 から NO_x への転換率 (C.R.), Thermal NO_x および全 NO_x 排出濃度を示す。 NO_x 排出濃度については燃焼ガス中酸素濃度を 16 % に換算した値で示している。試験では燃料発熱量 HHV を 8.8 MJ/m^3 , 燃料中 NH_3 濃度を 500 ppm, 燃料中 CH_4 濃度を 3 %, 燃焼器内圧力 P を 1.2 MPa で一定とし, N_2 は燃料ノズルから燃焼器内に直接噴射した。また, C.R. は, 燃料中に NH_3 を含む条件および含まない条件で全 NO_x 排出量, Thermal NO_x 排出量をそれぞれ計測して, その差から求めた。 T_{ex} が 1173 K (900 °C) 以上の条件で燃焼器出口ガス温度の上昇に伴い C.R. および NO_x 排出濃度は上昇する傾向を示す。この場合, 定格温度条件である $T_{ex} = 1773 \text{ K}$ (1500 °C) では NO_x 排出濃度は約 34 ppm (16 % O_2 換算濃度) であった。さらに,

Fig.8 Effect of combustor exit gas temperature on NO_x emission characteristics

Fig.9 Combustor wall temperature distribution using gas turbine combustor exit temperature as a parameter

燃焼器出口ガス温度 T_{ex} が 1873 K (1600 °C) まで上昇しても NO_x 排出濃度は 40 ppm 以下と低い値であった。特に, Thermal NO_x 排出濃度については, 1173 K ~ 1873 K の範囲で 10 ppm 以下と低い値であった。一方, CO 排出濃度は 20 ppm 以下にまで抑制し, 未燃炭化水素成分は検出されないことから, 良好な燃焼性を示しているものと推察される。また, 燃焼効率としては 99.9 % 以上であった。

図 9 は, 図 8 と同じ条件下での燃焼器壁面温度分布を, 燃焼器出口ガス温度 T_{ex} をパラメータにして示す。燃焼器出口ガス温度の上昇に伴い, 壁面温度は上昇する傾向を示すものの, 燃焼器出口ガス温度が 1881 K (1600 °C 以上) に上昇しても壁面温度は概ね材料の耐熱許容温度である 1123 K (850 °C) 以下であり, 良好な壁面冷却性能を示した。

燃焼器出口ガス温度 T_{ex} を 1773 K (1500 °C), N_2/Fuel 供給量比率を 0.7 kg/kg で一定とする場合の出口断面におけるガス温度分布を, ガス温度計測用の熱電対の位置 (15 点 = 3 本 $\times$ 5 点) とともに図 10 に示す。図中の寸法は単位 mm で示している。燃焼器出口での, 燃焼ガス最高温度と平均温度の差 ($T_{max} - T_{ex}$) は 80 K であり, 出口ガス温度分布の不均一性を示す指標であるパターンファクター P.F. ($= (T_{max} - T_{ex}) / (T_{ex} - T_{air})$) は 7 % (設計条件は 15 % 以下) と良好な結果を示した。

図 11 は, 燃焼器出口ガス温度 T_{ex} を 1773 K で一定とする条件下で, 燃焼器への N_2 供給量 (N_2/Fuel 供給量比率) を変化させた場合の C.R., Thermal NO_x 排出濃度および全 NO_x 排出濃度を示す。試験では, 燃料組成, 燃焼器内圧力を図 8 の場合と同じ条件とした。C.R. は N_2/Fuel 供給量比率の影響を受け, N_2/Fuel 供給量比率が 0.7 kg/kg までは C.R. は上昇し, N_2/Fuel 供給量比率 = 0.7 kg/kg 以上ではほぼ一定の C.R. を示した。

一方で, NO_x 排出濃度については, N_2/Fuel 供給量比率 = 0.4 ~ 1.0 kg/kg の範囲で, N_2/Fuel 供給量比率

Fig.10 Combustor exit gas temperature distribution

の上昇に伴い, Thermal NO_x の生成が抑制され, Fuel NO_x を含む全 NO_x 排出濃度は緩やかに低下する傾向を示した. なお, N₂/Fuel 供給量比率が 1.0 kg/kg にまで上昇しても CO 排出濃度は 20 ppm 以下であり, 良好な燃焼性を示した.

図12は, 燃焼器出口ガス温度 T_{ex} を 1773 K (1500°C), N₂/Fuel 供給量比率を 0.7 kg/kg で一定とする条件下で, 燃料中 NH₃ 濃度を变化させた場合の C.R. および全 NO_x 排出濃度を示す. 試験では, 燃料発熱量 HHV を 8.8 MJ/m³, CH₄ 濃度を 3%, 燃焼器内圧力 P を 1.2 MPa で一定とした. 燃料中の NH₃ 濃度の増加に伴い NO_x 排出濃度は上昇するものの, C.R. は低下する傾向を示した. 一般に, 燃料中のフュエル N 分濃度の増加に伴い転換率は低下する⁽¹⁾と言われており, 中カロリー燃料においても同様な傾向を示した.

試験設備では製造できるガス組成および供給量の

Fig.11 Effect of nitrogen injection flow rate from the burner on NO_x emission characteristics

Fig.12 Effect of NH₃ concentration in fuel on NO_x emission characteristics

制約から, 模擬ガス燃料の組成が実機ガス化燃料と異なるとともに, 燃焼器試験における圧力条件が低い. 供試燃焼器による高圧燃焼試験で, 実際の圧力条件における燃焼特性を予測するには, 燃焼特性に及ぼす燃料組成の影響や圧力特性について調べ, 実機ガス燃焼時の燃焼特性を予測する必要がある. 図13は, 燃焼器内圧力 $P=1.2$ MPa 一定とする条件下で模擬ガス燃料中の CH₄ 濃度を約 1.5~5% まで变化させた場合, および CH₄ 濃度を 3%, 燃焼器内燃焼ガス滞留時間を一定とする条件下で燃焼器内圧力を变化させた場合の NO_x 排出濃度 (16% O₂ 濃度換算) に関する試験結果と, 定格条件における実機ガス燃焼時の NO_x 排出濃度の予測値を示す. 試験条件としては, 燃焼器出口ガス温度 $T_{ex}=1773$ K (1500°C), N₂/Fuel 供給量比率 = 0.7 kg/kg, 燃料中 NH₃ 濃度 = 500 ppm で一定とした. 供試燃焼器では, N₂/Fuel 供給量比率が 0.7 kg/kg の場合, 全 NO_x 排出濃度は圧力の約 0.13 乗に比例して, また図示していないが Thermal NO_x 排出濃度は圧力の約 0.37 乗に比例して増加し, さらに, 燃料中 CH₄ 濃度の低下に伴い全 NO_x 排出濃度は緩やかに低下する傾向を示した. これらの傾向から, 実機ガス燃焼時の全 NO_x 排出濃度は, 定格条件で約 34 ppm (16% O₂ 濃度換算) になると予想された.

一方, 未燃焼成分濃度については, ガスタービン無負荷相当条件 (T_{ex} = 約 900 K) まで CO 排出濃度は 20 ppm 以下, 炭化水素成分は検出されないことから, 良好な燃焼性を示しているものと推察される. また, 中カロリー燃料用燃焼器では CO 排出濃度は圧力の上昇に伴い低下する傾向を示し⁽³⁾⁽⁴⁾, かつ実験条件の範囲で特異な不安定燃焼を示すことが無いことから, 燃焼効率については模擬ガス燃料による燃焼実験で

Fig.13 Estimations of NO_x emissions with actual gasified fuel operations

Fig.14 Combustion emission characteristics with actual gas turbine load operations

十分に評価できると考えられる。

図 13 に示す予測手法にもとづき、IGCC 用 1773 K (1500 °C) 級ガスタービン運転条件における実機ガス燃焼時の燃焼器性能を予測した結果を図 14 に示す。中カロリー燃料の専焼となるガスタービン負荷約 25 % 以上で、Thermal NOx は 7 ppm (16 % O₂ 濃度換算) 以下、Fuel NOx を含む全 NOx 排出濃度は実機換算 (燃料中 CH₄ 濃度 = 0.1 %, NH₃ 濃度 = 500 ppm) で 34 ppm (16 % O₂ 濃度換算) 以下、燃焼効率 η は 99.9 % 以上を達成できると予測された。

また、本論文で提案する燃焼方式によりフュエル NOx の低減が最も難しいと予想される酸素吹き固定床ガス化方式による石炭ガス化燃料 (表 1 参照, 燃料中 CH₄ 濃度 = 6.6 %, HHV = 13 MJ/m³) について、NOx 排出濃度を予測した。その結果、燃料発熱量が高いことによる火炎温度の上昇に伴い Thermal NOx 排出濃度 (16 % O₂ 濃度換算) は定格負荷条件の下で約 27 ppm と大幅に増加する。一方で、CH₄ 濃度の上昇に起因してフュエル NOx は若干増加する傾向を示し、燃料中 NH₃ 濃度を 500 ppm とした場合で、全 NOx 排出濃度としては約 60 ppm (16 % O₂ 濃度換算) になると予測された。このことから、提案する燃焼方式を各種ガス化燃料に適用した場合、同じ NH₃ 濃度で比較すると NOx 排出濃度は 34 ~ 60 ppm 程度にまで低減できることが分かる。ただし、固定床ガス化方式の場合、燃料中 NH₃ 濃度は 500 ppm よりも高くなる傾向があり、その場合にはフュエル NOx 排出濃度は増加するものの、図 12 に示す様に燃料中 NH₃ からフュエル NOx への転換率は低下する。

4. 結 言

小型バーナを用いた燃焼実験結果にもとづき、乾式ガス精製を採用する酸素吹きガス化中カロリー燃料の Fuel NOx と Thermal NOx を同時低減する燃焼方式として N₂ の燃焼器への直接噴射と二段燃焼法を組み合わせた燃焼方式を提案するとともに、中カロリー燃料用 300 MW, 1773 K (1500 °C) 級ガスタービンの 1/2 サイズ燃焼器を設計、製作し、模擬ガス燃料を用いた燃焼試験により実機条件での燃焼器性能を予測した。その結果、燃焼器バーナに副燃焼室を設けて広いガスタービン負荷帯にわたり良好な保炎性能を維持しつつ、バーナ近傍の燃料過濃領域を最適な状態にすることにより、ガスタービン負荷約 25 % 以上で燃焼安定性が確保されるとともに、燃料中 CH₄ 濃度 = 0.1 %, NH₃ 濃度 = 500 ppm の場合に、Fuel NOx を含む全 NOx 排出濃度を 34 ppm (16 % O₂ 濃度換算) 以下、燃焼効率は 99.9 % 以上を達成できる見通しを得た。また、本燃焼方式では、各種ガス化燃料の組成に応じて二段燃焼条件を設定する必要があり、特に、燃料中 CH₄ 濃度により適正化することが重要である。

謝辞

研究の実施に際し、(財)電力中央研究所 川島氏、香坂氏、(株)テクノサービス 鈴木氏、瀬崎氏、寺田氏のご協力を得た。ここに記して、感謝の意を表する。

文 献

- (1) (財)電力中央研究所, 電中研レビュー No.44, (2001), 20-25.
- (2) 水谷, 火力原子力発電, **46**-469, (1995), 1198-1222.
- (3) 長谷川, 他 5 名, 機論, **69**-682, B(2003), 1548-1556.
- (4) 長谷川, 他 5 名, 機論, **69**-686, B(2003), 2337-2345.
- (5) 長谷川, 他 5 名, 電中研報告書 W99026 (2000).
- (6) 長谷川, 他 5 名, 電中研報告書 W00011 (2001).
- (7) 長谷川, 佐藤, 電中研報告書 W01005 (2002).
- (8) 長谷川, 佐藤, 機論, **63**-613, B(1997), 3123-3130.
- (9) 田丸, 航技研資料 NAL TM-676 (1995).
- (10) 長谷川, 他 4 名, 電中研報告書 W95017 (1996).
- (11) Fenimore, C.P., *Proc. 16th Symp. (Int.) on Comb./The Comb. Institute.*, (1976), 1065-1071.
- (12) 加藤, 他 3 名, 機論, **43**-365, (1977), 280-289.
- (13) Hasegawa, T., et al., *Trans. ASME, J. Eng. Gas Turbines Power*, Vol. 123, Issue 1, (2001), 22-32.