

微粉炭燃焼における 燃焼安定および窒素酸化物生成に対する プラズマ吹き込みの効果

武田 紘一*・日比 政昭*²・竹内 英麿*³・坪井 晴己*⁴・森寺 弘充*⁵・田中 和夫*⁶

Effects of Plasma Injection
on Stability and Nitrogen Oxide Formation in Combustion of Pulverized Coal

Koichi TAKEDA, Masaaki HIBI, Hidemaro TAKEUCHI, Harumi TSUBOI, Hiromitsu MORIDERA and Kazuo TANAKA

Synopsis : The feasibility of the use of a plasma jet was studied for the ignition of pulverized coal combustion and suppression of nitrogen oxide formation. The analyses of the product gases under various experimental conditions led to the following results :

(1) By the assistance of plasma injection, pulverized coal can be ignited without any addition of auxiliary oil or gas. The proportion of plasma energy necessary to maintain stable combustion does not exceed several percentages of heat input of the coal.

(2) Suppression of nitrogen oxide formation can be expected even in the range of high combustion efficiency, if the plasma assisted burner is appropriately designed. Nitrogen plasma plays an important roll to reduce the nitrogen oxide.

Key words : energy ; environmental control ; coal combustion ; plasma ; nitrogen oxide.

1. 緒言

プラズマジェットを燃焼場の中に吹き込むことにより、燃焼反応が促進され、燃焼炎が安定化することが知られている。最初の研究は Harison らによりなされ¹⁾、メタン/空気混合気体にプラズマジェットを吹き込むことにより、空気流量が増え気体流速が高くなっても吹き消え現象が生じ難くなることを見いだしている。とくに、プラズマ作動ガスとして窒素ガスをを用いたときにその効果が大きく、吹き消え限界空気流量が6倍にもなっている。また、Hilliard ら²⁾は、通常の燃焼法では多量のすすの発生が避けられない低品位液体燃料に対して、燃焼場中にプラズマジェットを注入することにより、ほぼ完全な無煙燃焼が可能になること、しかも、この効果を生じさせるための必要電力は、燃焼エネルギーの数%に過ぎないことなどを明らかにしている。さらに、Kimura ら³⁾は、極超音速飛翔体の推進剤として水素ガスをを用いるときに、超音速流中燃焼が不安定になる問題に対し、水素プラズマジェットの吹き込みが有効である

ことを確かめている。

プラズマの燃焼促進効果とともに、窒素プラズマには窒素酸化物を分解無害化する作用があることも見いだされている²⁾。ただしこの効果は雰囲気中の酸素濃度が低い場合のみに限られ、酸素濃度が高い場合は、逆に窒素酸化物の生成反応を促進する⁴⁾ことが知られており、実際の燃焼でプラズマ吹き込みが、窒素酸化物の分解に効果があるか否かは不明である。

燃料が石炭のような固体であると、比較的着火しやすい気体や液体の燃料とは異なり、燃焼のスタートが困難になる。実際、微粉炭/空気混合体は周囲雰囲気常温に近い温度では燃焼反応を安定に維持することができない。したがって、従来より一般に採用されている微粉炭燃焼法は、天然ガスあるいは石油のような気体、液体燃料のパイロット火炎により着火し、周囲壁の温度上昇を待ち、雰囲気温度が高くなった後、補助燃料の供給を止め、石炭専焼に切り替える方法によっている。石炭自身は安価でかつ資源的にも豊富な化石燃料であるが、着火のために、他の気体あ

平成4年3月17日受付 平成5年2月4日受理 (Received on Mar. 17, 1992; Accepted on Feb. 4, 1993)

- * 新日本製鉄(株)先端技術研究所 (Advanced Materials & Technology Research Laboratories, Nippon Steel Corp., 1618 Ida Nakahara-ku Kawasaki 211)
- * 2 新日本製鉄(株)技術開発企画部 (Technical Development Planning Div., Nippon Steel Corp.)
- * 3 新日本製鉄(株)光技術研究部 (Hikari R & D Lab., Nippon Steel Corp.)
- * 4 新日本製鉄(株)エレクトロニクス研究所 (Electronics R & D Lab., Nippon Steel Corp.)
- * 5 新日本製鉄(株)プロセス技術研究所 (Process Technology Research Lab., Nippon Steel Corp.)
- * 6 新日本製鉄(株)光製鉄所 (Hikari Works, Nippon Steel Corp.)

るいは液体化石燃料供給設備も備えておかねばならないことは実用の制約となっている。小型のプラズマトーチを取り付けるだけで石炭専焼が可能になれば大きな利点となる。

本研究は、固体燃料である微粉炭の燃焼に対して、プラズマジェット注入がどのように作用するかについて調べたものである。微粉炭燃焼に対するプラズマ吹き込みの効果については、いくつかのプラズマトーチメーカーなどでこれまで調査が試みられたようであるが、試験結果の報告は極めて少ない⁵⁾。石炭火力発電の盛んな旧ソ連圏では実用規模でプラズマ吹き込みが行われているらしいが、これらの詳しい報告もなされていない。そこで、筆者らは独自に、プラズマ吹き込みが、微粉炭に対しどの程度の燃焼促進効果があり、補助燃料無しで着火を可能にするにはどれほどの電力量を必要とするか、また、窒素酸化物の発生がとりわけ問題となるこの燃焼において、プラズマ注入がいかなる作用をするのかなどについて実験調査した。方法、結果について以下に報告する。

2. 実験装置

Fig. 1 に実験装置の全体構成を示した。燃焼筒、プラズマ発生制御系統、微粉炭供給系統、冷却水供給系統、燃焼用空気供給系統およびプラズマトーチを含むバーナー部などで構成されている。燃焼筒の概略を Fig. 2 に示す。内径 0.3m、長さ 1.5m で高アルミナキャストを内張りしたもので、側面には、それぞれ、上流側端より 0.15m、0.65m、および 1.15m の位置に、観測のための窓と测温孔が設けられている。微粉炭吹き込みバーナーおよびプラズマトーチは、燃焼筒の上流端面の中心に設置されている。微粉炭の搬送ガスとしては空気をを用いている。プラズマ吹き込みを行わず、軽油と微粉炭の混合燃焼を行わせる予備実験には、Fig. 3 に示す構造のバーナーを用いた。プラズマ吹き込み実験用バーナーは Fig. 4 (A), (B), (C) にそれぞれ示すように、3 種の構造の違ったものを準備した。いずれの構造のバーナーでもプラズマトーチに近い場所に微粉炭を供給し燃焼用空気はその下流側に吹き込むようにしている。バーナー A は、プラズマトーチを中心に配置し、その外側の直径 73mm の円周上に、等間隔に 4 箇所、直径 3mm の微粉炭吹き込み

孔を有している。吹き込み角度はプラズマジェット軸流に対し 45° である。さらにその外側、直径 195mm の円周上に 10

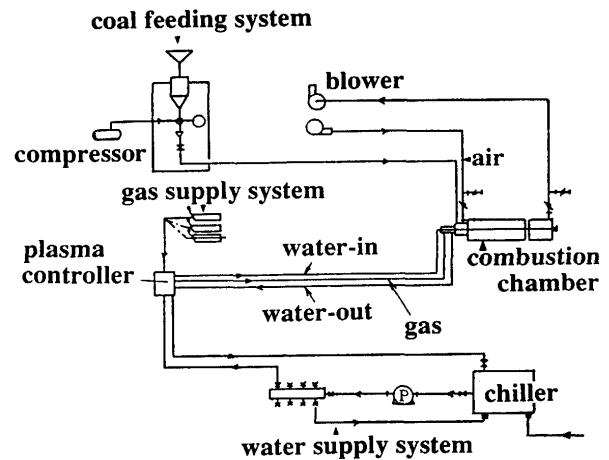


Fig. 1. Experimental arrangement of pulverized coal combustion with a plasma torch.

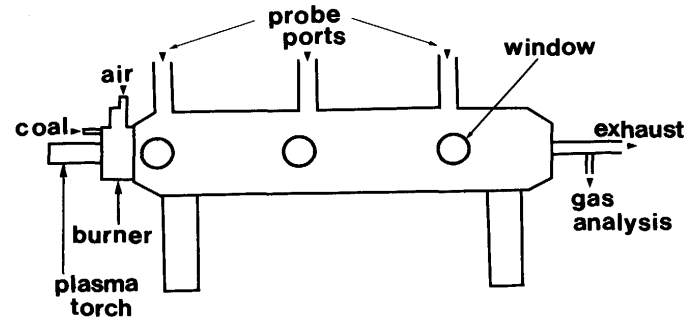


Fig. 2. Combustion chamber with the coal burner assisted by plasma jet.

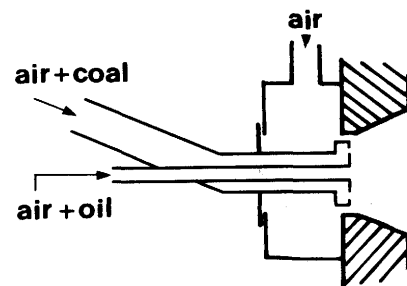


Fig. 3. Coal burner with an oil injection lance.

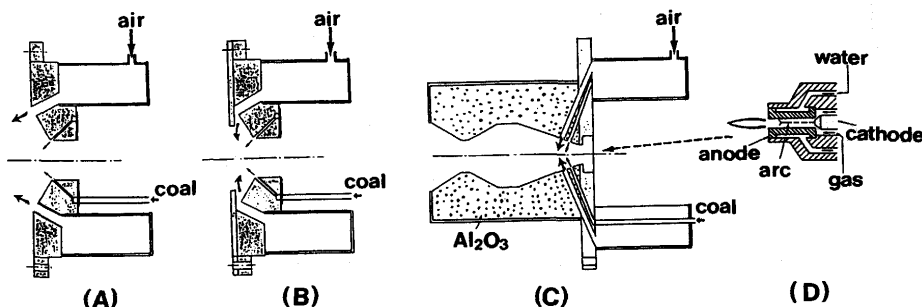


Fig. 4. Three types of coal burners (A), (B) and (C) with a plasma torch (D).

個の空気吹き込み孔があり、吹き出し空気の流れがプラズマジェット軸に対し30°、正面からみて51°の角度をもった旋回流になるように設計されている。バーナーBは、微粉炭と燃焼空気の混合を強化するため、空気供給孔出口直後に邪魔板を設置したものである。微粉炭、空気供給孔の位置、角度はバーナーAと同じである。バーナーCは専用の混合室を設けたものである。図に示すように吹き込み孔の位置、角度もA、Bタイプと変えてあり、微粉炭、空気吹き込み角度は共に70°、空気の旋回角度は36°である。

プラズマトーチは Fig. 4 (D) に示すように、タングステン陰極と水冷銅ノズル陽極を有する非移行型タイプである。プラズマトーチは微粉炭および燃焼用空気吹き込み口の背部に取り付けられる。プラズマ発生システムは、直流電源、高周波発振プラズマスターター、プラズマガス供給装置、および冷却水供給装置などから構成されている。

3. 実験方法

使用した微粉炭の粒度、諸特性を Table 1 にまとめて示した。粒度は-200メッシュ (44μm以下)、組成は乾燥重量比で、炭素71.3%、硫黄0.45%、窒素1.59%、酸素9.04%である。灰分は13.33%であり、揮発成分は30%である。また、発熱量および燃焼のための当量空気量は、石炭1kgあたり、それぞれ、25000kJ (低位発熱量) および7.24Nm³である。

この石炭に対して、プラズマジェット吹き込み無しの状態では安定着火できる条件をまず調べた。石炭と空気のみでは持続的な燃焼状態が得られないので、軽油を混合吹き込みして着火している。必要な軽油の混合割合は燃焼筒内壁温度により異なる。内壁温度と着火に必要な軽油混合割合の関係を調べた結果を Fig. 5 に示した。この実験により、今回使用した微粉炭に対しては、常温での安定着火のためには90%以上の軽油混合が必要であること、および、軽油の混合無しに微粉炭専焼が可能になるのは燃焼筒の壁温が900℃以上でなければならないことなどがわかった。

これらの予備実験結果をふまえ、プラズマ吹き込み実験を行った。主な実験条件は Table 2 にまとめて示している。微粉炭供給速度は毎分0.15kgである。プラズマ吹き込み実験では、石炭以外、軽油その他の化石燃料の混合は行っていない。

Table 1. Chemical composition of the coal and its specifications.

Composition	(total) C : 71.3% N : 1.6% O : 9.0% S : 0.45% volatile : 30% ash : 13.3%
Calorific value	25000kJ/kg-coal
Equivalent air for burning	7.24Nm ³ /kg-coal
Size	-200 mesh

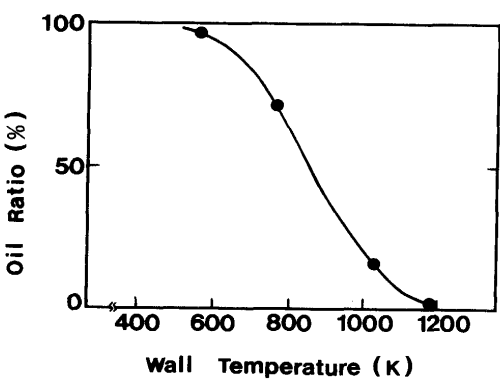


Fig. 5. Minimum ratio of oil necessary for the ignition of pulverized coal.

Table 2. Summary of experimental conditions.

Plasma current	100-300 A
Plasma power	6-18 kW
Plasma gas	N ₂
Plasma gas flow rate	10 Nl/min
Coal feeding rate	150 g/min
Air-fuel ratio	0.8-1.5
Burners	3 types

ない。プラズマ電力は6-18kWの範囲で、空気比は0.8-1.5の範囲で変えている。プラズマガスとしては窒素を用い、そのガス流量は10Nl/min一定とした。

プラズマジェット吹き込みにより、微粉炭の安定燃焼が達成されているか否かの判定は、燃焼炎状態を燃焼筒側面の窓から観察した。また、燃焼筒からの排ガス中のCO₂、CO、O₂、およびNO濃度の測定を行っている。測定する排ガスは温度を室温付近まで冷却した後に行われるので、H₂Oの濃度分析はしていない。ガス分析法としては、O₂は磁気方式、COおよびCO₂は赤外線分析法、NOは化学発光法を採用している。

燃焼効率の測定を行っているが、効率の決定法としては、供給空気量の測定値および排ガス中の酸素濃度値から、酸素消費量を計算し、当量空気量に相当する酸素の消費量が あった場合を100%として、これに対する比として燃焼効率を求めている。

4. 実験結果および討論

4・1 プラズマによる微粉炭燃焼の促進

Fig. 6 はバーナータイプA、BおよびCに対し、それぞれ、空気比を変えて燃焼効率を測定した結果である。微粉炭の燃焼による理論発熱量に対して、約8%の電力をプラズマトーチに投入して、熱エネルギー補助を行った。いずれのバーナーを用いた場合でも、この電力で作られたプラズマジェットの注入により、微粉炭は着火し、安定に燃焼し続けた。バーナーAでは、空気比を1.03から1.30まで変化させているが燃焼効率は60から80%であり、良好な燃焼効率が

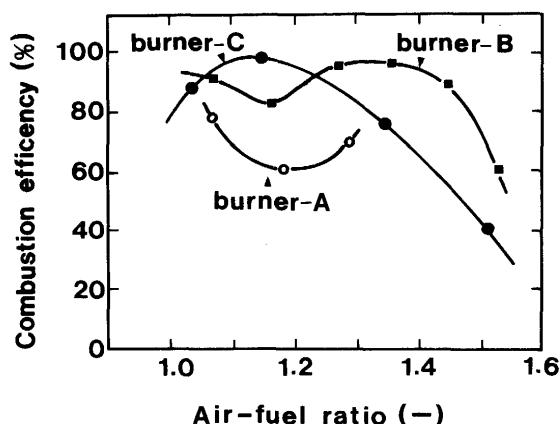


Fig. 6. Variations of combustion efficiency with air fuel ratio for various types of burners.

得られてはいない。バーナーBでは、微粉炭と空気との混合が強化されることにより燃焼効率がバーナーAに較べ向上し、90から100%近い値が得られた。混合・燃焼室を設けたバーナーCでは、空気比の低い1.15付近で燃焼効率100%に近い値が得られている。

つぎに、バーナーCを用い、空気比を1.17に固定して、プラズマ電力を変化させて、燃焼効率の変化を測定した。いずれのプラズマ電力条件でも、炉壁温度が室温に近い状態で燃焼をスタートさせている。結果をFig. 7に示した。プラズマ電力を微粉炭の理論燃焼発熱量の5%にした場合、持続的な燃焼が可能であったが、燃焼効率は70%であった。電力を6%以上にするとはほぼ完全燃焼状態が得られている。電力条件設定に制約があり、5%未満の電力割合にすることが不可能だったのでこれ以下のプラズマ助燃で微粉炭専焼が可能か否かの確認ができていない。Fig. 7の低電力割合の領域での燃焼効率の急峻な落ち込みから、このタイプのバーナーでは2～3%以下での燃焼維持は難しいと予想される。

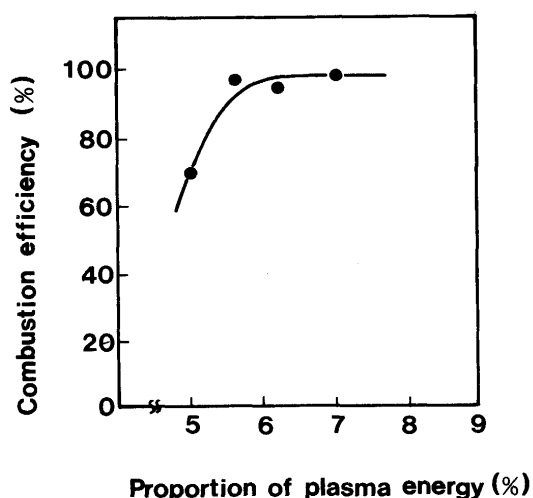


Fig. 7. Variation of combustion efficiency with plasma energy input.

これらの実験から、プラズマ吹き込みは低温雰囲気からの石炭単独着火を可能にすることが明らかになった。プラズマ吹き込みが有効な理由として、プラズマの高温により微粉炭中の揮発分が気化して、気体燃料が燃焼領域に多量に存在し、固体単独の状態ではなくなっていること、揮発分の急速な気化の際、微粉炭がより微小な粒子に細化すること、プラズマ中で活性化した酸素その他のラジカル種が燃焼速度を高めることなどが考えられるが、今回の実験のみからは、プラズマ吹き込み効果の理由を明確にすることはできなかった。

4・2 プラズマによる窒素酸化物の生成抑制

Fig. 8に、それぞれのバーナーでの窒素酸化物発生率の測定結果をまとめて示している。バーナーAおよびBでは窒素酸化物が高い濃度で発生しているが、バーナーCでは窒素酸化物濃度が極端に低くなる領域があり、最低値60ppmを記録している。しかも、窒素酸化物低濃度が得られるのは燃焼効率が最大になる条件に近いところである。燃焼効率を犠牲にすることなく窒素酸化物抑制ができ得るということは興味ある結果である。

Fig. 8を考察する前に、まず、熱力学平衡論から石炭燃焼時の窒素酸化物の濃度を計算してみた。平衡計算は、B. Sundmanらが開発したTHERMO-CALC Data-Bank system⁹⁾を用いている。Fig. 9, Fig. 10はその計算結果を示している。前述のTable 1で示した微粉炭組成（ただし揮発性部分を含め全体のC:Hは1.0:0.75と仮定した）に対し、当量空気を吹き込んで燃焼させたときの発生ガス組成の温度依存性を予測したものがFig. 9である。縦軸目盛りはモル比を対数でとっている。この図より、窒素酸化物の主要な成分はNOであり、燃焼温度が高くなるほど多量に発生することがわかる。なお硫酸化物SO₂の発生は温度にあまり依存せず100ppmのオーダーである。Fig. 10は燃焼温

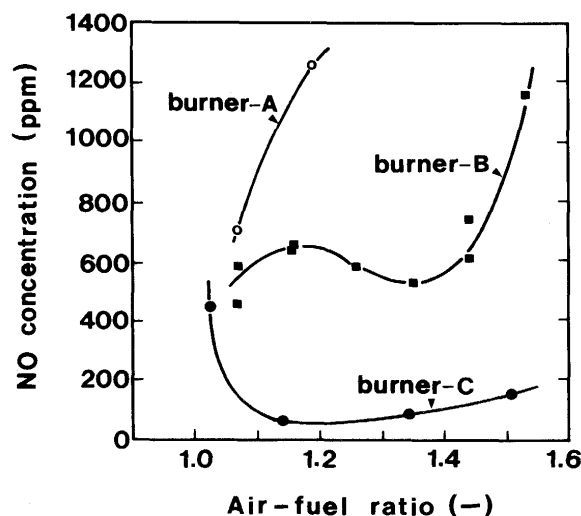


Fig. 8. Variations of nitrogen oxide concentration with air fuel ratio for various types of burners.

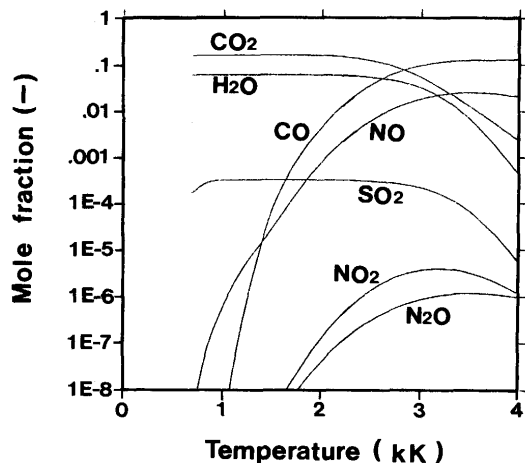


Fig. 9. Equilibrium composition of the combustion gas under the condition of air fuel ratio=1.

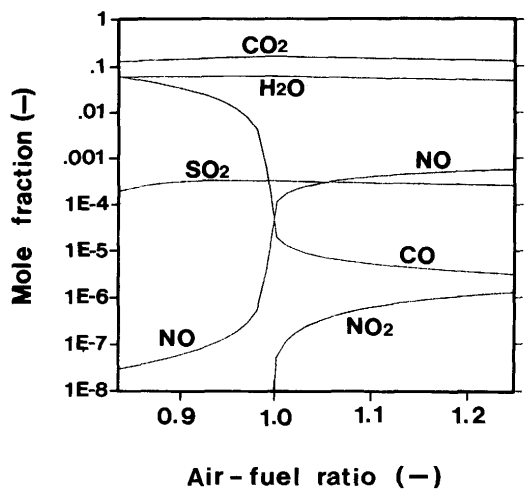
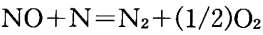


Fig. 10. Equilibrium composition of the combustion gas at 1800K.

度を1500℃とし、空気比を1.0を中心に前後に振ったときの組成変化を予測したものである。当然ながら、一酸化炭素の濃度は空気比1.0を境に、1.0より小さいときには高濃度であるが1.0以上になると急激に減少する。反対に一酸化窒素は空気比1.0以下では低い濃度に抑えられているが、1.0を超えると急激に増加する。この平衡計算結果からみて、窒素酸化物の発生を抑えるためには、燃焼温度を低くすること、および空気比をできるだけ低く抑えることが重要である。

一方、プラズマ吹き込み燃焼で起きることを考えてみる。まず、石炭燃焼で得られる温度よりは極端に高いプラズマジェットが吹き込まれることから、燃焼場に局所的な高温領域ができるであろう。また燃焼反応が促進されることから、低空気比でも効率的な燃焼が可能になるであろう。温度の上昇は窒素酸化物の発生を加速し、低空気比はそれを抑制する。相反するどちらの効果が優勢かにより、窒素酸化物濃度が高くなるか低くなるかが決まる。しかしながら、いずれにしろ、平衡計算からは、空気比が1を超えている

この実験条件下で、60ppmというような低濃度は予想されない。熱平衡論のみからは説明できない結果であり、Hillardらが報告しているように、プラズマトーチで作られた高温により窒素分子が解離窒素になり、この解離窒素により窒素酸化物が還元される反応が起きていると考えられる²⁾。すなわち、次の非平衡反応が起こっているであろう。



プラズマの脱硝効果を調べるために、Fig. 11 に示す装置を用い、さらに実験を行ってみた。ここでは化石燃料の燃焼は行っていない。雰囲気ガスとして、一酸化窒素濃度を800ppmに調整した窒素混合ガスを20Nl/minの流量で供給し、プラズマガスとして3種類の異なるガスを用いた。80%アルゴン/20%窒素混合ガス、80%アルゴン/20%水素混合ガスおよび純アルゴンガスである。まず、雰囲気ガスに酸素ガスを含まない場合で窒素酸化物濃度がプラズマガスの種類によりどう変化するかを調べている。プラズマトーチへの電力供給量は、プラズマガスを変えても、アーク電流を調整することにより3.6kW一定にしている。窒素酸化物の濃度変化は排ガス系に接続された質量分析計で行った。結果を Fig. 12 に示す。図から明らかなように、窒素酸化物の減少効果が現われるのは、プラズマガスとして窒素ガスが含まれる場合だけであり、水素やアルゴンでは減少効果がなかった。このことより、窒素酸化物の減少は、Hillardらが報告しているように、窒素プラズマ独特の効果であることが確認された。

ついで、プラズマ中窒素の効果が、雰囲気に酸素がある場合にどうなるのかについて調べた。80%アルゴン/20%窒素混合ガスをプラズマガスとして使い、雰囲気ガスの中の初期一酸化窒素濃度を800ppmと一定にし、雰囲気酸素濃

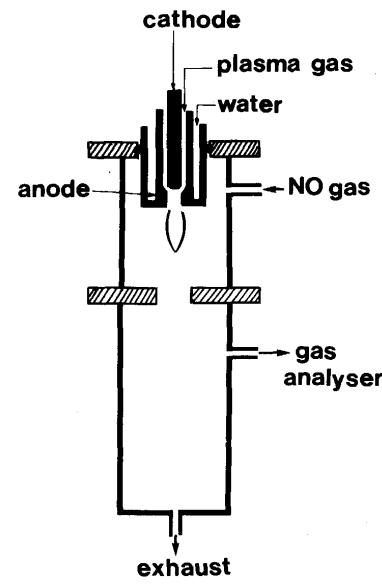


Fig. 11. Experimental arrangement for the study on reduction of NO by plasma jet.

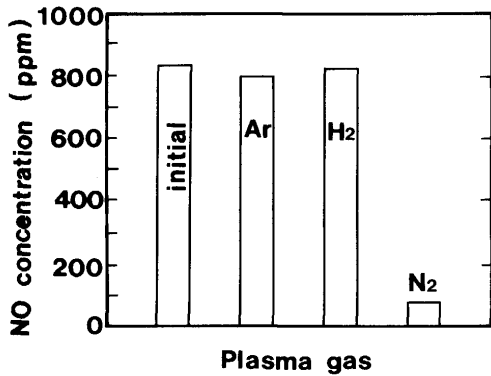


Fig. 12. Reduction of NO by various plasma gases.

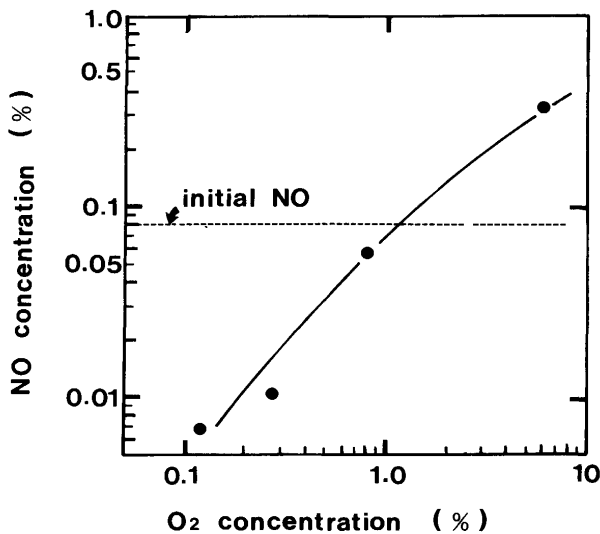


Fig. 13. Change of NO concentration with O₂ concentration.

度の変化に対して、窒素酸化物濃度の変化を測定した。Fig. 13 に結果を示している。この結果より、雰囲気中に酸素が存在する場合は、解離窒素は窒素酸化物の還元と、酸素との反応による窒素酸化物生成との両方に関係し、両反応の競合結果により濃度が決まることがわかる。この図に示すように酸素濃度 1 % 以上では 800ppm の一酸化窒素を減少させる効果はなく、むしろ新たな発生源として窒素プラズマが作用している。このことより窒素プラズマの吹き込みを行うといえども、雰囲気酸素濃度を抑えないと窒素酸化物の減少効果は期待できないことがわかる。類似の予測を Hillard らも行っているが、本微粉炭燃焼実験との比較で言えば、バーナー C タイプでは空気比 1.1 から 1.5 の間で NO 濃度の低下が見られており、この場合の雰囲気過剰酸素濃度は 2 % 以上である。この差についての説明がなされねばならない。

ここで、バーナー A、B および C のタイプの違いにより生じた発生窒素酸化物濃度の差、および C タイプで低濃度が実現された理由について推測してみる。バーナー A は、微粉炭と空気の会合点がプラズマトーチ出口から離れたところにある。解離状態にある窒素原子を含むプラズマジェットは、

まず微粉炭の流れにあたり、温度が低下する。したがって、解離窒素は空気会合点前で分子状窒素に戻る。主燃焼場では窒素は分子状態になっているので発生窒素酸化物を分解する能力がない。バーナー B ではプラズマジェットと微粉炭と空気の会合は同一領域で起きる。プラズマジェットより解離窒素は効率よく供給されるであろうが、空気の供給も邪魔板の存在により激しく乱流的に行われるので、燃焼場のあらゆる領域で酸素濃度が高いと予想される。酸素が十分供給されると窒素酸化物の濃度は下がらない。一方、バーナー C では、プラズマトーチ出口により近いところで、微粉炭と空気とが会合する。それだけ解離窒素の供給は効率的に行われている。しかも、空気の供給は円周方向の速度成分をもって旋回しながら行われているので、空気の全量がそのまま中心に到達してはおらず、石炭燃焼が起きている中心部の空気比は設定空気比より低いと予想される。中心部での燃焼で発生した窒素酸化物は、低い酸素濃度下では効率的に解離窒素により分解される。空気比が低いため炭素はまず CO となり、その後の酸素との反応で完全燃焼状態になる。激しい発熱にならないなら、窒素酸化物のその後の発生は抑制される。

以上の考察から窒素酸化物の発生を抑制できるための条件は以下のようにまとめられるであろう。

- (1) プラズマガスとして窒素を含むガスを用いること。
- (2) 解離窒素の窒素酸化物分解反応を効率的に利用できるようにすること。このためには、燃焼反応はできるだけトーチ出口に近いところで起こるようにして、解離窒素が再結合し窒素分子に戻る前に、燃焼に付随して発生する窒素酸化物に作用できるようにする。
- (3) 解離窒素の存在領域をできるだけ広くする。解離状態が安定なのは、常圧では 5000K 以上の温度である。プラズマジェットが乱流になると周囲の冷たいガスを巻き込みプラズマジェットの高温を維持できなくなり、窒素は再結合して分子状窒素に戻る。
- (4) 解離窒素が存在する領域の酸素濃度は低く抑える。酸素濃度が高いと窒素酸化物が多量に発生する。したがってこの領域での空気比はできる限り低くすることが望ましい。空気吹き込みは微粉炭吹き込みの下流側にする。
- (5) プラズマトーチ出口近傍での不完全燃焼は下流でゆっくりと完全燃焼にもっていき、下流部燃焼での窒素酸化物の生成を抑えるようにする。

5. 結論

微粉炭燃焼時にプラズマ吹き込みを行い、プラズマの効果について調べた。実験より明らかになった効果は以下の通りである。

- (1) 微粉炭は雰囲気温度が数百℃以上でないと着火・燃焼維持ができないが、プラズマジェットの吹き込みにより、

室温雰囲気でも石炭専焼が可能になる。

(2) 石炭専焼を可能にするプラズマ電力は、微粉炭の理論発熱量に対して数%以下で良い。

(3) 窒素ガスをプラズマ作動ガスにすることにより、窒素酸化物の発生を低く抑えることが可能である。水素プラズマ、アルゴンプラズマにはこの効果はない。

(4) 窒素ガスによる窒素酸化物の低減効果は、微粉炭の完全燃焼が起きる条件で達成できる。このためには石炭吹き込み、燃焼空気吹き込みの位置、角度などを適当に調整することが必要である。

石炭は安価でかつ埋蔵量の多い化石燃料であるが、煤塵や窒素酸化物の発生があり、環境汚染を引き起こし易い。今回の実験により、プラズマ助燃を行うことによりこれらの問題を軽減する可能性が確認できた。しかしながら、最

適なプラズマ助燃のあり方を決定するには、なおプラズマの燃焼促進効果、脱硝機構についての詳細な説明が必要である。

最後に、本研究の熱力学平衡計算で新日本製鉄(株)先端技術研究所山田亘主任研究員に多くの助言を頂いたことに感謝いたします。

文 献

- 1) A. J. Harison and F. J. Weinberger: Proc. Roy. Soc., **A321**(1971), p. 95
- 2) J. C. Hilliard and F. J. Weinberger: Nature, **259**(1976), p. 556
- 3) I. Kimura, H. Aoki and M. Kato: Combustion and Flame, **42**(1981), p. 297
- 4) 関口秀俊, 神沢 淳, 本多卓也: 化学工学論文集, **16**(1990), p. 368
- 5) 日本公開特許公報, 昭54-149953
- 6) B. Sundman, B. Jansson and J. O. Andersson: CALPHAD **9**, (1985), p. 153