



Title	木質バイオマス発生炉ガスの改質における非平衡の燃焼過程に関する研究
Author(s)	中塚, 記章
Citation	大阪大学, 2011, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/59243
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

【16】

氏名	なか 塚 記 章
博士の専攻分野の名称	博 士 (工学)
学位記番号	第 24932 号
学位授与年月日	平成23年9月20日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科機械工学専攻
学位論文名	木質バイオマス発生炉ガスの改質における非平衡の燃焼過程に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 赤松 史光 (副査) 教授 武石賢一郎 教授 片岡 勲 准教授 小宮山正治

論文内容の要旨

本研究では、エネルギー密度が低く輸送に不向きな木質バイオマスのエネルギー変換装置として、小型木質バイオマスガス発電システムに着目した。発電システムの小型化に寄与する火花点火ガスエンジンを用いる際に問題となるタールの凝縮に対して、ガス改質器においてタールを含む発生炉ガスに酸化剤を供給してその一部を燃焼させることでタールの改質を行う“部分燃焼方式”に着目した。従来、部分燃焼過程はタールの熱分解のための熱源として認識されており、温度と滞留時間に基づいた平衡論的な解釈がなされてきた。しかしながら、燃焼過程は高い不可逆性を伴って進行する非平衡な化学反応の連鎖過程であり、火炎帯における化学反応素過程の考察なしに現象の理解は不可能である。

そこで本研究では、高温の模擬発生炉ガスを定量供給可能な実験装置を設計・製作し、従来行われなかったガス改質器内の逆拡散火炎の直接観察から、その燃焼形態を詳細に考察した。以下に本研究で得られた知見を示す。

- (1) 加熱された捕集配管と適切な分析カラムから成るガス分析システムを独自に開発し、適切な分析条件の決定と厳密な較正を行うことで、部分燃焼後の模擬発生炉ガス中の軽質ガス成分と凝縮性ガス成分を定量性を保ったまま同時分析することで、軽質の燃料ガスとともにタール成分も含めたエクセルギー収率や炭素原子の物質収支を定量化することを可能とした。
- (2) レーザー誘起赤熱法 (LII 法) により、輻射によって改質器内の温度条件に影響を及ぼす“すす”の体積分率の二次元分布を計測するとともに、レーザー誘起蛍光法 (LIF 法) により、3 環から 6 環の多環芳香族炭化水素 (PAHs) の二次元分布の計測を行った。また、これらの計測手法を同時に適用することで、すすと PAHs の生成領域を非接触で可視化し、逆拡散火炎近傍のすすの体積分率が低下すると PAHs の捕捉が緩慢になることを明らかにした。

- (3) 発生炉ガスのように水蒸気や二酸化炭素によって希釈された燃料を用いた場合に観察される浮き上がり火炎に着目し、自着火過程のヒステリシスを利用することで、付着火炎と浮き上がり火炎を選択的に形成することに成功した。その結果、浮き上がり火炎が形成された場合には、火炎基部の上流で燃料と酸化剤が一部予混合化されることで、その過濃予混合燃焼領域においてすすにまで成長していない炭素含有成分が生成するために、特に発生炉ガスに供給する水蒸気が多い条件においてエクセルギー収率が低下することが分かった。このことから、すすの生成を低減した上で高いエクセルギー収率を得るためには、水蒸気濃度の高い発生炉ガス中で安定した付着火炎を形成する必要があることを明らかにした。

- (4) 反応領域の下流が高温の燃料雰囲気となる部分燃焼方式のガス改質器においてすすの生成を制御するためには、火炎帯での化学反応を制御する必要があるために、酸化剤中にすすの前駆物質である PAHs の重合反応において重要な因子となる水素を添加した。その結果、酸化剤への水素添加が微量 (発生炉ガスの発熱量基準で 0.5 %) であっても、高分子量の PAHs やすすに代表される炭素含有成分の減少に対して効果があり、主に一酸化炭素が増加したことによりガス化発電システム全体で考えると炭素転換率が大きく向上することを明らかにした。

- (5) 逆拡散火炎の火炎帯における化学反応は物質拡散に影響を受けるために、火炎帯中のラジカル (H, OH, O 等) のモル分率のみではなく、その空間分布を考慮できる“対向流拡散火炎モデル”を用いた反応動力学計算を適用して、酸化剤への水素添加の影響を火炎帯における化学反応の観点から考察した。158 化学種 872 素反応式から成る気相反応機構によって模擬タールとして用いたトルエンの重合挙動を解析し、酸化剤への水素添加によって PAHs からすすへの成長が抑制されることを明らかにした。

以上のように、本研究では小型木質バイオマスガス化発電システムにおける炭素転換率やガス改質器内の温度分布に影響を及ぼす“すす”の生成に対して、逆拡散火炎の燃焼形態と火炎帯での詳細化学反応という2つの制御手法の有用性を示した。

論文審査の結果の要旨

木質バイオマスのエネルギー変換システムとして有力視されている“木質バイオマスガス化発電システム”において、システムの小型化に寄与する火花点火ガスエンジンを用いる際にタールの凝縮が問題となる。本研究では、ガス改質器においてタールを含む発生炉ガスに酸化剤を供給してその一部を燃焼させることでタールの改質を行う“部分燃焼方式”に着目した。従来、部分燃焼過程はタールの熱分解のための熱源として認識されており、温度と滞留時間に基づいた平衡論的な解釈がなされてきたが、燃焼過程は高い不可逆性を伴って進行する非平衡な化学反応素過程から成り、火炎帯における化学反応素過程の考察なしに現象の理解は不可能である。そこで本研究では、高温の模擬発生炉ガスを定量供給可能な実験装置を設計・製作し、従来行われなかったガス改質器内の逆拡散火炎に対する直接観察と光学計測の適用、ならびに、化学反応素過程を考察することによって、すす生成の抑制・制御手法を確立することを目的とした。以下に本研究で得られた知見を示す。

- (1) 部分燃焼後の模擬発生炉ガス中の軽質ガス成分と凝縮性ガス成分を、定量性を保ったまま分析可能なガス分析システムを独自に開発し、適切な分析条件の決定と厳密な較正を行うことで、軽質の燃料ガスとともにタール成分も含めたエクセルギー収率や炭素原子の物質収支を定量化することを可能とした。
- (2) レーザー誘起赤熱法 (LII 法) により、すすの体積分率の二次元分布を計測するとともに、レーザー誘起蛍光法 (LIF 法) により、3 環から 6 環の多環芳香族炭化水素 (PAHs) の二次元分布の計測を行った。また、これらの計測手法を同時に適用することで、すすと PAHs の生成領域を非接触で可視化し、逆拡散火炎近傍のすすの体積分率が低下すると PAHs の捕捉が緩慢になることを明らかにした。
- (3) 発生炉ガスのように水蒸気や二酸化炭素によって希釈された燃料を用いた場合に観察される浮き上がり火炎に着目し、自着火過程のヒステリシスを利用することで、付着火炎と浮き上がり火炎を選択的に形成した。その結果、浮き上がり火炎が形成された場合には、火炎基部の上流で燃料と酸化剤が一部予混合化されることで、その過濃予混合燃焼領域においてすすにまで成長していない炭素含有成分が生成するために、エクセルギー収率が低下することが分かった。このことから、すすの生成を低減した上で高いエクセルギー収率を得るためには、水蒸気濃度の高い発生炉ガス中で安定した付着火

炎を形成する必要があることを明らかにした。

- (4) 反応領域の下流が高温の燃料雰囲気となる部分燃焼方式のガス改質器においてすすの生成を制御するための手法として、非平衡な素反応の起こる火炎帯にすすの前駆物質である PAHs の重合反応において重要な因子となる水素を添加することを目的として、酸化剤中水素を添加する実験を行った。その結果、酸化剤への微量の水素添加（発生炉ガスの発熱量基準で 0.5 %）が高分子量の PAHs やすすに代表される炭素含有成分の減少に対して効果があり、主に一酸化炭素が増加したことにより、ガス化発電システム全体で考えると炭素転換率が大きく向上することを明らかにした。
- (5) 対向流拡散火炎モデルを用いた反応動力学計算を適用して、酸化剤への水素添加の影響を火炎帯における化学反応の観点から考察した。158 化学種・872 素反応式から成る気相反応機構によってトルエンの重合挙動を解析し、酸化剤への水素添加による PAHs の重合反応の抑制効果を明らかにした。

以上のように、本研究では小型木質バイオマスガス化発電システムにおける炭素転換率やガス改質器内の温度分布に影響を及ぼす“すす”の生成に対して、逆拡散火炎の燃焼形態と火炎帯での詳細化学反応の制御という 2 つの制御手法の有用性を提示しており、燃焼工学の進展ならびに実用燃焼機器の設計・開発に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値のあるものと認める。