

論文の内容の要旨

過熱水蒸気による褐炭粒子の乾燥

桐山 毅

石炭は他の化石燃料と比較して可採年数が長く、生産地が偏っていないため経済性と価格安定性に優れているといった特長がある。しかし、燃焼時の単位発熱量あたりの CO₂ 排出量が最も多いため、地球温暖化対策の面から、より高効率な利用が求められている。また、世界の石炭の確認可採埋蔵量のうち約半分は亜瀝青炭、褐炭といった低品位炭である。品質の良い瀝青炭の需要が増加しており、今後は未利用の低品位炭についても輸入・産業利用できるように高度利用技術の開発に努めていく必要がある。褐炭は石炭の中でも若い石炭であり、揮発分が多く乾燥後の燃焼性が良いこと、および地下浅所に埋没されており、露天掘りの炭鉱が多くコストが安いことが長所として挙げられる。一方、短所としては水分が多く輸送効率が悪いことと、乾燥後には粉化によって自然発火しやすい危険性がある。このため現在は原褐炭・乾燥褐炭ともにほとんど輸出されておらず、主に現地の発電所で乾燥せずに直焚きされている。しかし、褐炭に含まれる水分の蒸発潜熱のために燃焼時の発熱量が低下し、発電所の効率が低下する。オーストラリアの褐炭は水分が 60mass% 以上と多く、石炭の燃焼時のロスが 16% 程度となり、火力発電所の熱効率は 28% 程度である。このため、高効率な乾燥装置の開発が期待されている。オーストラリア褐炭は高揮発分、低灰分、低灰融点、低硫黄分といった性質のため、燃焼性やガス化特性に優れており、安価に乾燥さえできれば、ガス化による高効率複合発電や燃料改質への適用が可能になると考えられている。乾燥装置としては、過熱水蒸気を用いた流動層が有望である。自己熱再生方式を用いれば、乾燥機が高効率となり、さらにガス化複合発電 (IGCC) と組み合わせることにより、熱効率を 42% 程度まで飛躍的に向上させることが可能となる。乾燥機を最適設計するためには褐炭粒子の乾燥を予測するモデルが必要であるが、過熱水蒸気中の褐炭の乾燥挙動については調査が進んでおらず、実験値に基づいた単一粒子の乾燥モデルが提案されていない。本研究では、過熱水蒸気中の褐炭単一粒子の温度変化および重量変化を測定し、乾燥中の挙動について再現性および信頼性のある知見を得ることを目的とした。さらに、実験結果をもとに褐炭単一粒子の乾燥をシミュレートするための数値計算モデルを作成し、粒径分布を有する褐炭粒子群への応用も可能とすることを目指した。

まず、過熱水蒸気中で褐炭粒子の重量、温度および外観の変化を観察するための実験装置を作製し、直径 30 mm の球形の褐炭単一粒子を用いて過熱水蒸気による乾燥実験を行った。実験は 170, 150, 130 および 110°C にて行った。試験初期に、水蒸気が粒子表面に凝縮し、表面からの水滴の落下が 10 回以上確認された。初期重量以下においても水滴の落下が確認され、褐炭内部の水が温度上昇により膨張し、粒子表面へ染み出して滴下してい

ることが示唆された。その後、粒子全体の温度が 100°C となり、乾燥速度が一定となる恒率乾燥期間が観察された。恒率乾燥期間が継続したことから、褐炭粒子内において水が内部から表面に向かって移動していることが示唆された。つづいて、粒子表面の温度が 100°C より上昇し、乾燥速度が減少する減率乾燥期間が見られた。ビデオカメラによる外観の可視化映像からは、乾燥に伴い褐炭粒子表面にクラックが発生し、乾燥が進むとクラックが閉じて収縮が起こることを確認した。過熱水蒸気乾燥のプロセスは、テスト温度 170, 150, 130 および 110°C にてそれぞれ 3, 4.5, 7.5 および 21 h で完了した。過熱水蒸気の温度が高いほど、乾燥後の褐炭の含水率は低くなり、100°C では蒸発しない結合水の存在が確認された。また、3D スキャナーによる試料体積の計測により、収縮率のテスト温度依存性を定量的に評価した。

実験結果をもとに、乾燥プロセスの数値計算モデルを作成した。モデル中で、褐炭粒子は石炭、100°C で蒸発する自由水、および 100°C より高い温度で蒸発する結合水から構成されるものと仮定した。本モデルでは、自由水の移動、平衡含水率、結合水が蒸発する際のエンタルピー変化、凝縮期間における表面の水の挙動（温度上昇時の体積膨張による内部からの染み出し、水蒸気の凝縮および滴下）、および収縮を考慮した。本モデルにより計算した結果は実験結果を良好に再現しており、同程度の粒径の褐炭粒子について、170 - 110°C の範囲にて乾燥速度および乾燥完了時間の予測が可能となった。

続いて、乾燥挙動における粒径の影響を確認するため、直径 10, 5, 2.5 mm の褐炭単一粒子を、170, 150, 130, 110°C の過熱水蒸気中で乾燥し、乾燥速度と温度を測定した。粒径 10 mm 未満の単一粒子の測定についてはこれまで報告されていないが、今回の試験において再現性のある測定結果が得られた。直径 30 mm の試料では初期の凝縮期間において水滴の落下が複数回見られたが、直径 10 mm の試料ではテスト温度 110°C のみにおいて一回の水滴落下が見られた。また、ビデオカメラの映像から、クラックの発生数が粒径およびテスト温度に依存することが確認された。重量および温度の測定結果は、直径 30 mm の実験結果と同様に、全ての試験において恒率乾燥期間と減率乾燥期間を示した。乾燥速度のテスト温度および試料粒径への依存性について考察し、粒径範囲 30 - 2.5 mm, テスト温度 170 - 110°C における乾燥速度および乾燥完了時間を簡易的に予測可能とした。以上の実験結果をもとに、直径 30 mm に対して作成した数値計算モデルを修正し、より粒径の小さい褐炭粒子にも適用可能とした。褐炭粒子表面への熱伝達率を粒径の関数とするとともに、凝縮期間において表面に形成される水滴が落下する条件についても粒径依存性を考慮し、粒径範囲 30 - 2.5 mm, テスト温度 170 - 110°C の範囲における乾燥挙動をシミュレーションすることに成功した。

作成した数値計算モデルを用い、粒径分布を有する褐炭粒子群の乾燥速度を予測した。Rosin-Rammler 分布に従う粒径分布をもつ粒子群を想定し、これらの最大粒径を 100, 50 および 6 mm とした場合の乾燥速度を計算した。それぞれの粒子群を粒径にしたがって重量割合の等しい 10 のサブグループに分け、それぞれのサブグループの代表径を定めた。

各代表径の単一粒子について数値計算モデルを用い、170 および 110°C のテスト温度における含水率および乾燥速度の計算を行った。各代表径の含水率および乾燥速度を加重平均することにより、粒子群全体としての含水率と乾燥速度を得た。計算はおもに本実験で得た単一粒子の熱伝達率を用いたが、最大粒径 6 mm の粒子群については、110°C の流動層内の熱伝達率として報告されている値を用いた計算も行った。粒子群の乾燥時には、小さな粒子から乾燥が進み、減率乾燥期間に順次移行するため、全体の乾燥速度からは恒率乾燥期間は見られなかった。さらに乾燥を進めると、小さい粒子から順番に平衡含水率に達し乾燥が終了する。過熱水蒸気温度が低いほど平衡含水率は大きいため、粒子全体の含水率をある目標値まで下げようとするとき、低温であるほど大きい粒子も低い含水率まで乾燥させることが必要となる。したがって、粒子群を低温で乾燥する際にはより長い時間を要する。また、最大粒径 6 mm の粒子群においては初期に水滴の落下が起こらず、凝縮によって含水率が増加したことから、乾燥の必要時間に大きな粒子がより大きく影響することが示された。目標含水率を 0.18 (水分 15mass%) とし、単一粒子の熱伝達率を用いた場合のテスト温度 170 および 110°C の乾燥時間は、最大粒径 100, 50 および 6 mm の粒子群において、それぞれ 105, 44 および 2.7 min (170°C), 915, 413 および 30 min (110°C) となった。最大粒径 6 mm の粒子群について、報告されている流動層の熱伝達率を用いた計算では、乾燥時間の粒径依存性が単一粒子の熱伝達率を用いた場合より小さくなり、初期に恒率乾燥期間が確認された。目標含水率を 0.18 (水分 15mass%) とした場合の乾燥時間は 27 min となり、実際の乾燥機で報告された滞留時間と近い値となった。それぞれの粒子群について、粒径の大きなサブグループを篩分けしたケースを検討した。単一粒子の熱伝達率を用いた計算では、粒径の大きい方から重量割合で 3 割を除外することができれば、乾燥時間を 6 割から 8 割短縮することができ、メディアン径の単一粒子と同様の乾燥時間になることがわかった。実用上、粒径の大きな粒子をスクリーン等で除外できれば、乾燥時間の大幅な短縮につながると考えられる。流動層の熱伝達率を用いた計算においても、粒径の大きい方から重量割合で 3 割を除外することができれば、乾燥時間を 4 割程度短縮することができ、メディアン径の単一粒子と同等の乾燥時間になることがわかった。

以上のように本研究では、過熱水蒸気を用いた褐炭粒子の乾燥挙動を実験により明らかにし、この結果にもとづいて単一粒子の乾燥を予測するための数値計算モデルを確立した。また、このモデルを用いて粒径分布を持つ褐炭粒子群の乾燥速度を予測し、乾燥時間の把握および短縮につながる提案を行った。本成果は実際の褐炭の乾燥方法の開発において、乾燥中の粒子群の挙動を予測する上で重要な情報を提供している。