

(論文)

# 改質褐炭(UBC<sup>®</sup>)と瀝青炭の灰付着性の評価

## Evaluation of Ash Deposition Behavior of Upgraded Brown Coal(UBC<sup>®</sup>) and Bituminous Coal



秋山勝哉\*  
Katsuya AKIYAMA



朴 海洋\*(工博)  
Dr. Haeyang PAK



多田俊哉\*\*  
Toshiya TADA

Ash with low melting point causes slagging and fouling problems in pulverized coal combustion boilers. This study focuses on the relationship between ash deposition characteristics and ash melting characteristics. Upgraded brown coal (UBC) and two types of bituminous coal with different melting temperatures and ash compositions were used as samples. Deposition tests were conducted using a refractory furnace. As a result, the molten slag fraction in ash obtained by chemical equilibrium calculation correlates with the deposition fraction of ash obtained by the experiments even under coal blending conditions. Consequently, the molten slag fraction in ash is one of the useful indices for proper coal blending with UBC to reduce ash deposition.

まえがき＝近年、微粉炭ボイラで利用する石炭種の拡大を目的に、亜瀝青炭(あれきせいたん)や褐炭をはじめとする低品位炭を利用するための技術開発が求められている。なかでも、褐炭は水分が多く発熱量が低いため、微粉炭ボイラでの利用が限られている。そこで当社は褐炭を油中でスラリー脱水し、燃料の発熱量を瀝青炭と同等程度に向上させる改質褐炭(Upgraded Brown Coal, 以下UBCという)プロセスを開発した<sup>1)~3)</sup>。また、インドネシアの褐炭には低N分、低S分のもが多く、インドネシア褐炭を用いて製造したUBCは低NO<sub>x</sub>、低未燃率の良好な燃焼性を有する燃料であることが分かっている<sup>4)</sup>。しかし、一般的に瀝青炭に比べて褐炭の灰の融点は低いため、UBCを微粉炭ボイラで利用するには、スラッキングなどの灰付着トラブルを抑制する観点から瀝青炭との適切な混炭が重要となる。

伝熱管への灰付着挙動は、石炭性状(灰組成、灰融点、ミネラル成分)や雰囲気、灰粒子温度、伝熱管の表面温度、灰粒子の流れなどの影響を受けることが報告されている<sup>5)~13)</sup>。しかしながら、低融点灰の付着挙動や混炭の燃焼時における灰付着挙動については十分に解明されていない。

そこで本稿では、灰中の熔融スラグ量が伝熱管への灰付着性に大きく影響する点に着目し、微粉炭燃焼実験で得られた灰付着性と熱力学平衡計算で算出した灰中の融液割合との関係を、単燃焼時および混炭燃焼時において比較した。

### 1. 実験装置および方法

実験および解析では豪州瀝青炭(以下、RT炭という)、インドネシア瀝青炭(以下、PS炭という)およびUBCを使用した。それぞれの石炭の性状を表1に示す。ま

表1 試験に用いた石炭の性状  
Table 1 Properties of tested coals

Coal sample	RT coal	PS coal	UBC	
Heating value [MJ/kg]	28.89	27.53	27.17	
Proximate analysis [wt%, dry]	Ash	6.23	1.76	
	Volatile matter	43.31	54.76	
	Fixed carbon	50.46	43.55	
Fuel ratio [-]	1.61	1.17	0.80	
Total sulfur [wt%, d.a.f]	0.54	0.75	0.22	
Ultimate analysis [wt%, d.a.f]	Carbon	82.70	79.64	71.15
	Hydrogen	5.30	5.76	5.39
	Nitrogen	1.87	1.83	0.92
	Sulfur	0.50	0.70	0.18
	Oxygen (Balance)	9.61	12.06	22.35
Ash fusion temperature [K] (Oxidizing)	Initial deformation	1,441	1,326	1,452
	Hemispherical	>1,823	1,614	1,687
	Fluid	>1,823	1,687	1,804
Ash compositions [wt%]	SiO <sub>2</sub>	69.80	56.90	40.00
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	20.73	23.00	27.85
	CaO	0.48	2.19	3.70
	TiO <sub>2</sub>	1.03	0.57	0.56
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.95	11.80	19.95
	MgO	0.66	2.27	1.21
	Na <sub>2</sub> O	0.25	0.04	0.14
	K <sub>2</sub> O	0.98	0.44	0.40
	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.20	0.34	0.05
	MnO	0.05	0.03	0.27
	V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.05	0.05	0.05
SO <sub>3</sub>	0.40	1.27	3.80	

た、図1に本実験装置の概略図を示す。燃焼実験では、円筒縦型耐火物燃焼炉(内径φ400×高さ3,650mm)を用いた。炉頂に設けたバーナに微粉炭と燃焼空気に加えて少量の都市ガスを供給して燃焼させ、灰粒子の温度を約2,000Kに上昇させた。バーナタイルから1.9m下方の1,573Kの雰囲気下にSUS製プローブを100分間挿入し、プローブに付着した灰の重量から灰付着率を算出した。このプローブは伝熱管を模擬しており、冷却水によって表面温度を773Kに調整した。燃焼炉へ投入する熱量は149kW、炉出口O<sub>2</sub>濃度は1%でそれぞれ一定とした。プローブ周りの雰囲気は、実炉ボイラのバーナと2段燃焼

\*技術開発本部 機械研究所 \*\*技術開発本部 石炭エネルギー技術開発部

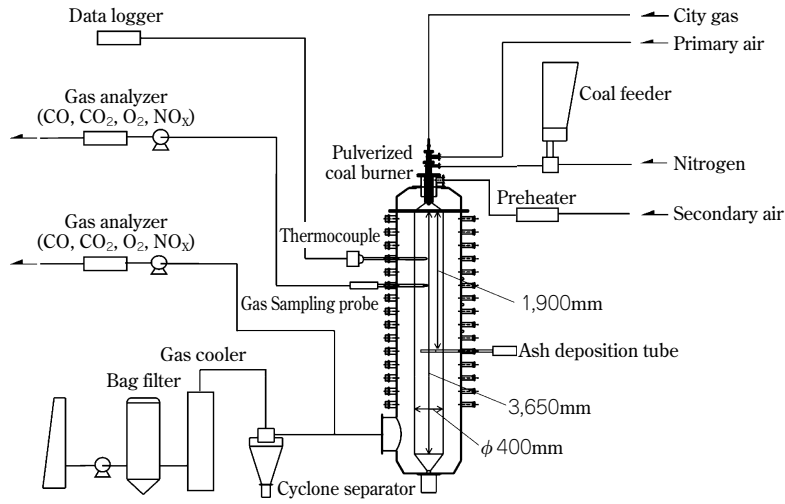


図1 石炭燃焼炉の概略図  
Fig. 1 Schematic diagram of coal combustion furnace

空気ポートの間の雰囲気気を想定し、 $O_2$ : 1.0%,  $CO_2$ : 19.0%,  $N_2$ : 80.0%とした。

## 2. 結果と考察

### 2.1 灰付着挙動

図2に3種の石炭の単味燃焼時における伝熱管への灰付着状況を示す。プローブ挿入時間は100minである。RT炭の場合、灰色の粒子が主に伝熱管上部（上流側）に付着しており、一部の灰粒子は焼結している。PS炭の場合は、褐色の灰粒子が伝熱管表面に付着しており、一部の灰粒子は溶融している。一方、UBCの場合は、ほぼ溶融状態の灰が伝熱管表面の全面に付着しており、薄い溶融スラグ層が形成されている。このように、灰組成によって灰付着形態が大きく異なることが分かった。

図3に単味燃焼時におけるプローブ挿入時間に対する灰付着率を示す。灰付着率 ( $\phi_{ash}$ ) は式(1)、式(2)で定義した。 $D_{ash}$ は灰付着量を、 $t$ はプローブ挿入時間を、 $F_{ash-probe}$ 、 $F_{ash-furnace}$ はそれぞれプローブ、燃焼炉の水平断面の面積 ( $A_p$ )、( $A_f$ ) を通過する灰の流量割合を示す。

$$\phi_{ash} = \frac{D_{ash}}{F_{ash-probe} \cdot t} \quad \dots \dots \dots (1)$$

$$F_{ash-probe} = \frac{A_p}{A_f} F_{ash-furnace} \quad \dots \dots \dots (2)$$

本図より、灰付着率は炭種によらず挿入初期に高い値を示し、プローブ挿入時間が長くなるにつれて一定値に近づくことが分る。挿入時間が100minにおける灰付着率はUBCが最も高く、PS炭、RT炭の順に低くなる結果が得られた。これは、UBCの灰融点が低く灰粒子が溶融状態にあることから、灰分含有率が少なくても付着率が増加したものと考えられる。

図4に混炭燃焼時における灰付着率の実験結果を示す。プローブ挿入時間はいずれも100minである。石炭Aに石炭Bを混合するとした場合、横軸は石炭Bの灰の混合割合  $MR_{ash-B}$  を示し、各石炭の重量と灰分含有率を用い式(3)に基づいて算出した。ここで、石炭Aおよび石炭Bのドライベースの重量をそれぞれ  $M_{coal-A}$ 、 $M_{coal-B}$ 、灰分含有率をそれぞれ  $Ash_A$ 、 $Ash_B$  とする。本図による

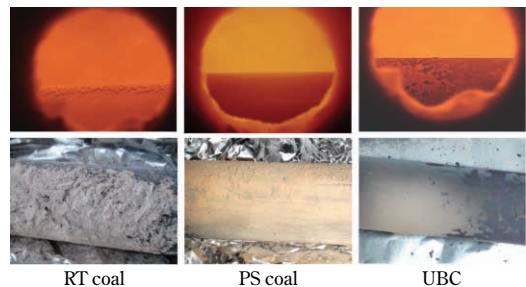


図2 3種の石炭の単味燃焼時における伝熱管への灰付着状況の写真（暴露時間100分）

Fig. 2 Photos of ash deposition on tube surface for three types of coal after 100min

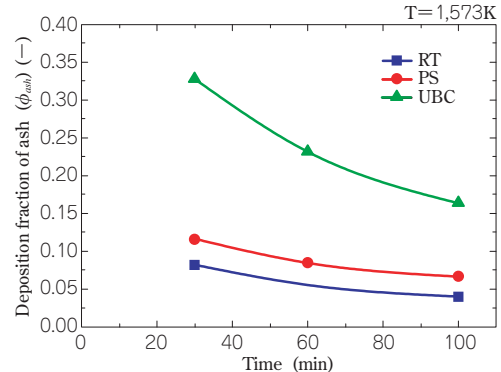


図3 単味燃焼時におけるプローブ挿入時間に対する灰付着率の実験結果

Fig. 3 Time dependence of deposition fraction of ash for the three types of coal

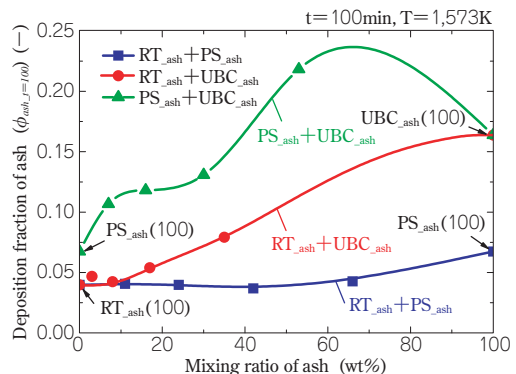


図4 混炭燃焼時における灰付着率の実験結果

Fig. 4 Experimental results of deposition fraction of ash under coal blending conditions

と、RT 炭と PS 炭の混炭時の灰付着率はほぼ線形の関係が成立つが、UBC を混炭した場合には灰付着率が最大値を有する非線形の関係をもつことが分った。とくに、PS 炭と UBC の混炭では、UBC の灰混合率が 60% 付近で灰付着率が最大値をとることが分った。本測定結果から、混炭燃焼時の灰付着率は、混合灰の組成に基づいた灰の熔融状態が大きく影響しているものと考えられる。

$$MR_{ash,B} = \frac{M_{coal,B} \cdot Ash_B}{M_{coal,A} \cdot Ash_A + M_{coal,B} \cdot Ash_B} \times 100 \quad \dots\dots (3)$$

## 2.2 熱力学平衡計算

図 5 に伝熱管への灰付着メカニズムを示す。伝熱管の表面には  $3 \mu\text{m}$  以下の小粒径の灰粒子が初期付着層を形成することが報告されている<sup>10)</sup>。初期付着層の上層への灰付着については、灰粒子が熔融状態にあるほど、つまり灰中の融液割合が多いほど灰付着しやすいと推定されている<sup>14)</sup>。

そこで、温度、雰囲気に対応した灰中の融液割合を求めて実験結果と比較する。灰中の融液割合は、熱力学平衡計算ソフト Fact Sage Ver.5.5 を用いて解析を行った。本ソフトは、ある条件の温度、雰囲気ガス組成において熱力学的に最も安定する、つまりギブスの自由エネルギー ( $\Delta G$ ) がゼロになる状態の相 (気・固・液) およびその組成を求めることができる。ここでは、実験で挿入したプローブ周りの雰囲気条件 ( $\text{O}_2$ : 1.0%,  $\text{CO}_2$ : 19.0%,  $\text{N}_2$ : 80.0%) において 1,273K から 2,073K まで 50K ごとに解析を実施した。ここで、全灰量 (固相) に対する熱力学的平衡時の熔融スラグ (液相) の重量割合を灰中融液割合と定義する。

図 6 に 3 炭種の単灰組成における灰中融液割合の計算結果を示す。3 炭種とも 1,473K から 1,773K の間で灰中の融液割合が大きく変化しているが、その挙動はそれ

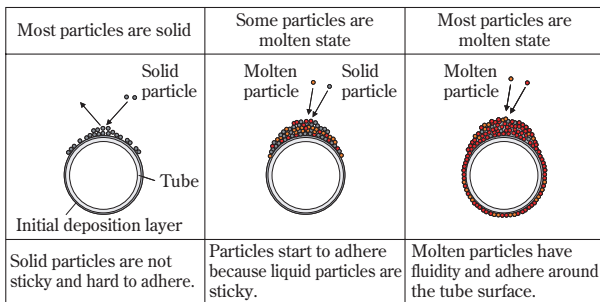


図 5 伝熱管への灰付着のメカニズム  
Fig. 5 Mechanism of ash deposition on tube

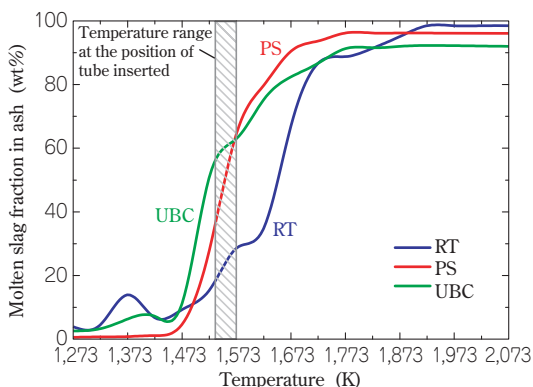


図 6 3 炭種の単灰組成における灰中融液割合の計算結果  
Fig. 6 Distribution of molten slag fraction in ash for three types of coal ash

ぞれの炭種によって異なっている。UBC 灰は、1,473K から 1,523K の間で灰中融液割合は急激に増加しているが、1,523K 以降の増加率は緩やかになる。一方 PS 炭灰は、1,473K から灰中融液割合は急激に増加するが、UBC 灰の挙動と異なり、途中で増加率が低下する傾向は見られない。また RT 炭灰は、1,623K まで灰中融液割合は緩やかに増加し、それ以降で急増する。図中に示した斜線領域は、実験で灰付着プローブを挿入した雰囲気温度の測定範囲を示しており、この領域においては UBC の灰中融液割合が最も高く、PS 炭、RT 炭の順に低くなっている。本計算結果は、図 3 に示した実験結果と傾向がよく一致しており、灰中融液割合が高いほど灰付着率が高くなることが明らかとなった。

3 炭種の混炭灰組成における 1,573K での灰中融液割合の計算結果を図 7 に示す。本計算結果から、RT 炭灰と PS 炭灰混合時の灰中融液割合はほぼ線形の関係が成立つが、UBC 灰を混合した場合には灰中融液割合が最大値を有する非線形の関係をもつことが分った。とくに、PS 炭灰と UBC 灰の混合では、UBC の灰混合率が 60% 付近で灰中融液割合が最大値を示している。本計算結果は、図 4 に示した混炭燃焼時における灰付着率の実験結果と傾向がよく一致しており、灰中融液割合と灰付着率の関係は、複数の石炭の混炭燃焼時においても成立つことが明らかとなった。

計算で求めた灰中融液割合と実験で得られた灰付着率の関係を図 8 に示す。灰中融液割合が増加するにしたが

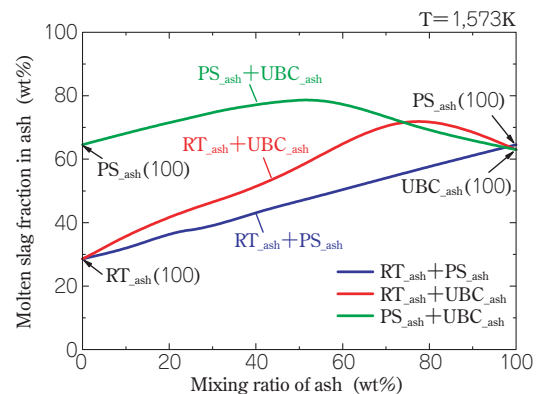


図 7 3 炭種の混炭灰組成における 1,573K における灰中融液割合の計算結果  
Fig. 7 Calculated results of molten slag fraction in ash under coal blending conditions

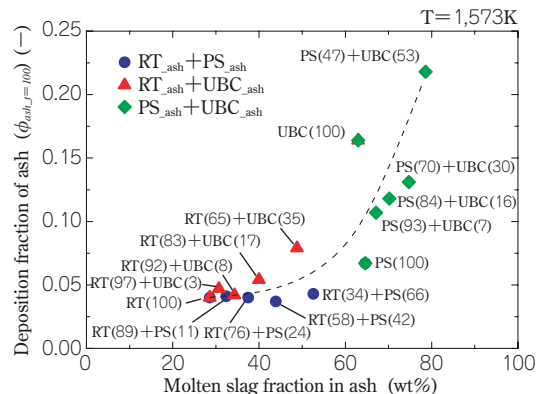


図 8 灰中融液割合と灰付着率の関係  
Fig. 8 Relationship between molten slag fraction in ash and deposition fraction of ash

って灰付着率が増加し、灰中融液割合が60%以上で灰付着率が急激に増大することが明らかになった。

以上より、微粉炭燃焼時の灰付着率の評価には、熱力学平衡計算で求めた灰中融液割合で評価する手法が有効であることが分った。また、低融点灰を有する褐炭と瀝青炭を混炭燃焼した場合にも本手法が適用可能であることが分った。これらの結果から、本灰付着性評価指標は灰付着率を低減するための適切な混炭条件を決定する有用な指標になると考えられる。

**むすび**＝燃焼炉を用いた灰付着実験と熱力学平衡計算を実施して2種の瀝青炭およびUBCの灰付着挙動を調べた。その結果、以下のことが明らかとなった。

- 1) 伝熱管への灰付着性は灰の溶融特性と密接な関係があることが分った。また、伝熱管への灰付着挙動の理論が実験と解析によって立証された。
- 2) 微粉炭燃焼時の伝熱管への灰付着率は、熱力学平衡計算で算出した灰中の融液割合と良い相関関係があり、灰中融液割合が多いほど灰付着率が高いことが明らかとなった。また、混炭燃焼時においてもその関係が成立つことが分った。
- 3) 褐炭をはじめとする灰融点の低い石炭は、灰中の融液割合を低減させる適切な混炭によって灰付着によるトラブル抑制が可能となることが示唆された。

なお、本研究で使用したUBCは(財)石炭エネルギーセンター(JCOAL)の支援を受けて製造された。また、本技術は名古屋大学教授成瀬一郎先生との共同研究で開発した。ここに記して感謝の意を表す。

## 参 考 文 献

- 1) Sugita, S. et al. : "Demonstration of UBC Process in Indonesia", Upgrading of Low Rank Coal, ICCS&T, Okinawa, Japan, Oct. (2005).
- 2) 杉田 哲ほか : R&D 神戸製鋼技報, Vol.56, No.2, (2006), pp.23-26.
- 3) Yamamoto, S. et al. : Development of Upgraded Brown Coal Process, IBA, Savannah, GA, USA, Oct. (2007).
- 4) Akiyama, K. et al. : Proc. of 6th International Symposium on Coal Combustion, China, (2007), pp.527-532.
- 5) Rassk, E. : Mineral impurities in coal combustion, Hemisphere Publishing Corporation, (1985), pp.169-189.
- 6) Walsh, P, et al. : Prog. Energy Combust. Sci., Vol.16, (1990), pp.327-346.
- 7) Baxter, L, L. : Fuel Processing Tech., Vol.56, (1998), pp.81-83.
- 8) Beer, J, M. et al. : Inorganic transformations and ash deposition during combustion, Engineering Foundation, ASME, New York, (1992).
- 9) Benson, S, A. et al. : Fundamentals of coal combustion, Elsevier Science, (1993), p.299.
- 10) Naruse, I. et al. : Fuel, Vol.84, (2005), pp.405-410.
- 11) Harb, J, N., et al. : Energy and Fuels, 7-2, (1993), pp.208-214.
- 12) Hansen, L, A., et al. : Ash fusion quantification by means of thermal analysis, An Engineering Foundation Conference on Impact of Mineral Impurities in Solid Fuel Combustion, Kona, Hawaii, 2-7, Nov., (1997).
- 13) Ichikawa, K. et al. : Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B, 67, (2001), pp.144-150.
- 14) Akiyama, K. et al. : Characteristics of Ash Deposition Behavior of Upgraded Brown Coal (UBC) and Bituminous Coal, Proceedings of The 6th Mediterranean Combustion Symposium, Ajaccio, Corsica, France, June.7-11, (2009).