

(第6号様式)

学位論文審査の結果の要旨

氏名	Arman
審査委員	主査 武部 博倫 副査 田中 寿郎 副査 青野 宏通 副査 斎藤 全

論文名

Viscosity, Density, and Surface Tension of Gasified Coal and Synthesized Slag Melts for Next Generation IGCC

審査結果の要旨

CO₂回収型の次世代石炭ガス化複合発電 (Integrated Gasification Combined Cycle, IGCC) は高効率 (変換効率 $\geq 42\%$) と比較的低いCO₂排出量の特徴を兼ね備え、世界中で今後その適用の拡大が見込まれている。IGCC プロセスにおいて、石炭はガス化炉で燃焼される一方で、無機成分は灰化・溶融され、スラグ融体としてガス化炉下部から排出される。安定にかつ連続的に石炭ガス化炉を操業するためには、多様な組成を有する石炭スラグ融体について、高温物性の温度および組成依存性を理解することが重要かつ必須の課題である。しかしながら、石炭スラグ融体の高温物性について、系統的かつ高い信頼性の実測データが不足しているのが現状である。

本研究は、IGCC で用いる石炭スラグおよび主要な成分を含有し系統的に組成を変化させた合成スラグ融体 (以下では単にスラグ融体と記す) について、1500°C前後の高温にて粘度、密度および表面張力を測定する装置を自作し、これらの物性値の温度および組成依存性を明らかにするとともに、化学組成から融体物性を予測するための組成パラメータを提案したものである。粘度はスラグ融体の流動性を決定し、温度に対して桁違いに変化する物性値である。密度は融体の体積を決定し、表面張力に関連している。表面張力は、ガス化炉の内壁および排出口の耐火物との濡れや液滴の形状を決定する物性値である。本論文で得られた主な成果は以下のとおりである。

第1章では、背景としてIGCCプロセスと石炭スラグ融体の物性に関する過去の研究を調査し、本研究の目的を述べている。中国、米国、オーストラリア、インドネシアおよびロシアでの石炭スラグ約130種類の化学組成を調べ、主要成分がCaO, MgO, FeO, Fe₂O₃, Al₂O₃およびSiO₂であることを見出している。

第2章では、試料としてIGCC小型パイロットプラントから排出された石炭スラグのCoal Valley (CV), Tanito Harum (TH), Malinau (MA)およびAdaro (AD)について、蛍光X線分析およびキレート滴定によるFeの価数の評価から、化学組成を評価している。少量 (3-5 mg) の粉

末試料を熱電対に担持させ熔融状態を直接観察可能なホットサーモカップル法と、FactSage ソフトウェアによる熱力学平衡計算を併用し、種々の組成のスラグについて、均一融体形成温度を決定している。共軸内筒回転法を用い、スラグ融体について、均一融体形成温度より高い温度領域の 1250–1650°Cにおいて粘度の温度依存性を評価している。石炭スラグ融体の粘度は、SiO₂ 含有量に依存し、CV>TH>MA>AD の序列であることを明らかにしている。また Fe₂O₃ 含有量が約 8 mol%と比較的多い AD スラグ融体では、≤1350°Cで結晶化により急激に粘度が上昇することを見出している。合成スラグ融体の結果から、CaO, MgO, FeO および Fe₂O₃ はネットワークモディファイヤー (NWM)として粘度の低下に寄与し、Al₂O₃ および SiO₂ はネットワークフォーマー (NWF)として粘度の上昇に寄与することを明らかにしている。NWM と NWF の含有量から組成パラメータを設定するとともに、粘度と組成の関係から経験則に基づく組成パラメータを提案している。

第 4 章では、アルキメデス 2 球法を用い、スラグ融体について、1350–1600°Cでの密度の温度依存性を明らかにしている。密度から算出した分子容と体積膨張係数は、Al₂O₃ 含有量に対し短調に増加するのに対し、Fe₂O₃ 含有量に対しては約 8 mol%を境に不連続に変化し、スラグ融体の微視的な構造がこれらの組成域で変化している可能性を指摘している。また密度と各成分の含有量の関係から組成パラメータを設定しその相関性を評価している。

第 5 章では、最大泡圧法を用い、合成スラグ融体について、1200–1600°Cでの表面張力の温度依存性を明らかにするとともに、表面張力と各成分の含有量の関係から組成パラメータを設定しその相関性を評価している。

第 6 章では、本研究の主要な結論をまとめている。特に粘度の結果を基にして、本研究での石炭スラグおよび合成スラグを含む、130 種類以上の石炭スラグについて、Hard, Moderate, Soft の 3 つのタイプに大別可能であることを見出している。またこれらの分類が化学組成から算出したスラグの塩基度と関連性があることを明らかにしている。

本論文の公聴会は平成 28 年 8 月 17 日に工学部講義棟 EL16 講義室において行われ、論文の発表と質疑が行われた。続いて、同講義室にて学位論文の審査会が行われた。審査の結果、本研究はスラグ融体について、粘度、密度および表面張力を高温にて測定する方法を確立し、その温度および組成依存性を明らかにするとともに、石炭スラグの分類を融体物性の視点から新たに提案したものであり、優れた発想に基づいた学術的に価値の高い業績と認められ、高温物理化学ならびに高温融体物性学およびエネルギー工学に寄与するところが大きい。従って、審査員全員一致して本論文は博士（工学）の学位論文に価するものと判断した。