

## 接触燃焼法の研究開発

### Research and Development of Catalytic Combustion Technology

福 澤 久<sup>\*</sup>

Hisashi Fukuzawa

石 原 義 己<sup>\*\*</sup>

Yoshimi Ishihara

#### まえがき

ボイラなどの燃焼装置の窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) 低減対策として、二段燃焼などの燃焼方式の改良、低 NO<sub>x</sub> バーナの採用など燃焼設備の改造によって、NO<sub>x</sub> 濃度は重油あるいは石炭の燃焼では 100 ~ 200 ppm, ガス燃焼では 50 ~ 60 ppm まで低減可能となってきた。

接触燃焼法は、通常の炎燃焼と異なり、適当な触媒の存在下で LNG, NGL, LPG, ナフサあるいは灯油など容易に気化し得る燃料を無炎燃焼させる方法であり、新しい低 NO<sub>x</sub> 燃焼技術として近年注目されつつある。

接触燃焼を低・中温度で行なう方法は、既に脱臭装置などに採用されているが、高温度における接触燃焼法の研究開発は、発電用、航空機用、自動車などのガスタービンおよびボイラなどの燃焼装置への適用を目標として、米国の環境保護庁 (EPA), エネルギー省 (DOE) および航空宇宙局 (NASA) などによって近年始められたばかりである。

本稿は、高温接触燃焼法の特性と研究開発の現状について紹介するものである。

#### 1 接触燃焼法の特性

接触燃焼とは、触媒を内蔵した燃焼装置に燃料と空気との予混合気を送入し、触媒の酸化促進作用によって、触媒表面で無炎の完全燃焼をさせる方法である。

通常の炎燃焼と比較して、接触燃焼には、

- (1) 低温度で完全燃焼が可能であること、
- (2) Thermal NO<sub>x</sub> の生成が微量であること、
- (3) 一酸化炭素 (CO) や炭化水素などの未燃分が微量であること、
- (4) 広範囲の燃料と空気の混合比で安定燃焼が可能であり、局部的に高温になることがないこと、などの長所がある。

##### 1.1 燃焼条件と燃焼効率

耐熱性の高い担体に炭化水素酸化反応に活性の高い金属を担持させた触媒層に所定の温度以上に予熱した空気と燃料ガスの予混合気を送入することにより、1000 ~ 1500°C の温度で完全燃焼が可能である。

触媒の担体としてはアルミナなど、活性金属としては白金などが用いられる。予混合気の前熱温度は用いる触媒の性能によって異なるが、当所試作の触媒では約 300°C であった。

燃焼温度は燃料と空気の混合比と前熱温度によって 1000 ~ 1500°C の範囲内に任意に調節することができる。この温度範囲内であれば、予混合気中の燃料濃度は、一般に、可燃限界および爆ごう限界外となるので安全である。

接触燃焼では、燃焼速度が極めて速く、かつ完全燃焼が可能であることなどから高い燃焼効率が期待できる。

NASA は白金系触媒を用いて No. 2 ジェゼル油の燃焼試験を行い、図-1 に示すように、燃焼温度が高く、ガス流速が遅く、圧力が高くなるほど高燃焼効率が得られたと報告している<sup>1)</sup>。

また、燃焼速度が速く、高負荷の燃焼が可能であり、図-2 に一例を示したように触媒の単位容積当りの燃焼

\* (財) 電力中央研究所エネルギー・環境技術研究所  
環境化学部

〒201 狛江市岩戸北 2-11-1

\*\* (財) 電力中央研究所立地環境研究総括室

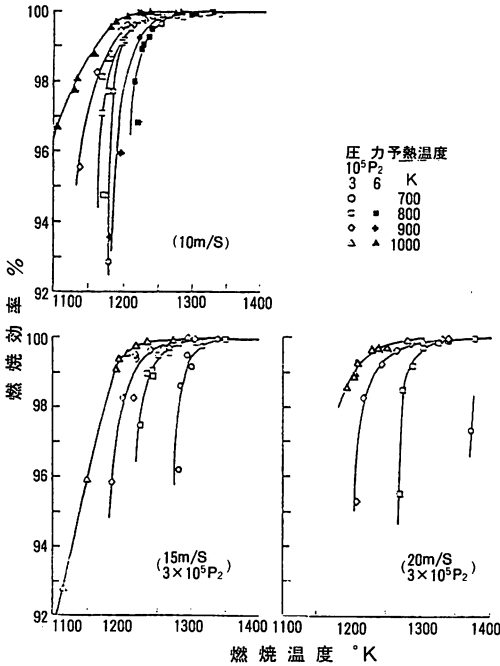


図-1 燃焼効率におよぼす流速、圧力および予熱温度の影響

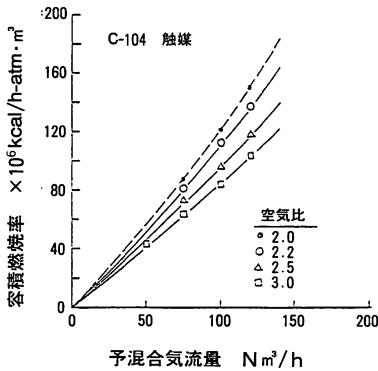


図-2 容積燃焼率と予混合気流量

可能燃料量 (容積燃焼率) は、予混合気の空気比が低いほど、すなわち、燃焼温度が高くなるほど増大した<sup>2)</sup>。同図は、予混合気流量を増加させることにより容積燃焼率をさらに増大させ得る見込みがあることを示している。

1.2 Thermal NO<sub>x</sub>

当所試作の実験装置および触媒を用いて常圧下における接触燃焼実験を行ない、図-3に示したように、燃

焼温度 1000 ~ 1500°C で生成する Thermal NO<sub>x</sub> は約 20 ppm (O<sub>2</sub> 0%換算濃度) 以下であり、かつ完全燃焼が可能であることを明らかにした<sup>2)</sup>。

1.3 Fuel NO<sub>x</sub>

予混合気の燃焼においては、Fuel NO<sub>x</sub> の生成率は 80 ~ 100% と高くなることはすでに多くの燃焼実験で知られている。接触燃焼においても Fuel NO<sub>x</sub> の生成は多くなるので、その生成抑制法についての実験検討が各所でなわれている。Acurex Corp. はアンモニア (NH<sub>3</sub>) 添加燃料を用いて接触燃焼実験を行ない、図-4に示すように、空気率を 100% 以下に低下させると、(NO+NH<sub>3</sub>+HCN) の含量は空気率 65% においては約 10% に低下すること、また、空気率を 100% 以上にすると NH<sub>3</sub> の NO への変化率が急増し、空気率 130% においてはその変化率が 90% に達すること、などを明らかにした<sup>3)</sup>。Energy & Environmental Research Corp. も同様に低カロリーガス燃料に NH<sub>3</sub> を添加して実験を行ない、空気率 80% 程度の場合に Fuel NO<sub>x</sub> の生成が最低になること、さらに、平面火炎燃焼の場合と比較して Fuel NO<sub>x</sub> の生成が少なくなること、などを示した<sup>4)</sup>。さらに Acurex Corp. は、二段接触燃焼による Fuel NO<sub>x</sub> 生成抑制法につい

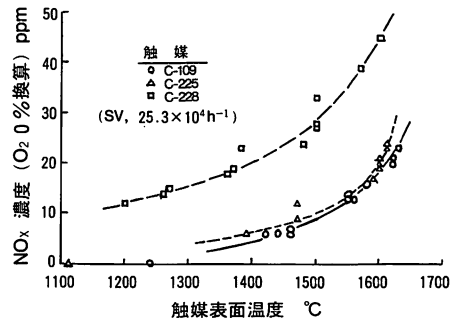


図-3 燃焼温度と Thermal NO<sub>x</sub> の生成

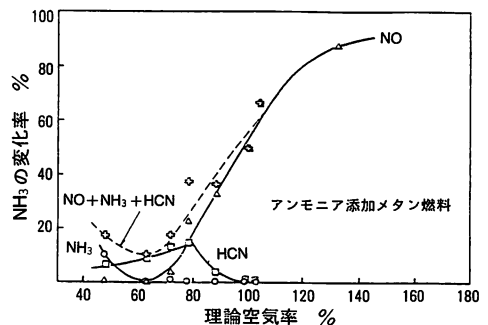


図-4 接触燃焼によって生成する Fuel NO<sub>x</sub>

で実験検討し、図-5に示したように、燃料供給量に対して第一段目の空気率を50%、第二段目の空気率約50%程度にした場合に燃料に添加したNH<sub>3</sub>のN化合物への変化率を約30%程度まで低減できたと報告している<sup>5)</sup>。

1.4 未燃炭化水素と一酸化炭素

Engelhard Industries は予熱温度300°Cで低カロリーガスの燃焼試験を行ない、流速30 m/sにおける未燃炭化水素(UHC)濃度は1~2 ppm、一酸化炭素(CO)濃度は120~290 ppm、NO<sub>x</sub>濃度は1 ppm以下であったと報告している<sup>6)</sup>。当所の常圧下における1100°C以上での実験検討ではUHCおよびCOのいずれも検出されなかった<sup>2)</sup>。

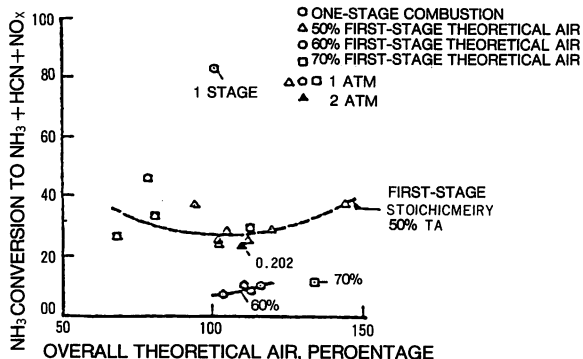


図-5 二段接触燃焼によって生成するFuel NO<sub>x</sub>

2 高温接触燃焼法の研究開発の現状

従来の接触燃焼法は、低温度で完全燃焼が可能である長所を活用して600°C以下の低・中温度域で用いる脱臭装置や暖房器などへの応用に限られていたが、2~3年前より生成NO<sub>x</sub>が微量であり、かつ燃焼速度が極めて速い長所を活用した1000~1500°Cの高温度で用いる発電用ガスタービン、航空機用ガスタービン、自動車用ガスタービンおよび大型ボイラなどの燃焼装置へ応用するための研究開発が表-1に示したように、米国のEPA, DOE, NASA および Air Force などによって積極的に推進されるようになった。

以下に高温接触燃焼法の研究開発の現状について述べる。

2.1 触媒

高温接触燃焼法で最も重要な課題は高性能、高耐久性および安価な触媒の開発である。従来開発されてきた触媒の使用温度は約900°C以下であり、本方法をガスタービン等へ応用するためには1000°C以上の高温で使用可能な触媒の開発が急務となっている。

米国では、当初、触媒の担体材料としてアルミナ、コーディエライト、ムライト、およびシリコンカーバイドなどのハニカム担体を用いられたが、その後、さらに融点の高いジルコニア担体が有望視された。しかし、ジルコニア担体の耐熱衝撃性が低いことが判明して以来、ジルコニア担体にかわってアルミナ系のものが主として使用されている。また、触媒の活性成分と

表 1 米国における高温接触燃焼法の研究開発状況

適用機器	開発者 (スポンサ)	研究開発機関	備考 (研究開発レベル)
発電用ガスタービン	E P A	Acurex Corp. Energy & Envir. Research Corp.	燃焼実験装置 低カロリーガスの燃焼
	D O E	Engelhard Ind.	燃焼実験装置
航空機用 ジェット エンジン	米 国 空 軍 N A S A	General Electric Co. Pratt & Whitney Aircraft Co.	実機試験計画中
		United Technologies Research Centre Stanford Research Inst. Princeton Univ.	基礎的研究
自動車用 ガスタービン	D O E	NASA-Lewis Research Centre	小型実験装置
大型ボイラ	E P A S C E	Acurex Corp. Acurex Corp.	燃焼実験装置 重油の接触燃焼

しては、白金、白金/イリジウム、およびこれらに金属酸化物などを加えたものが用いられている。近年、ニューヨーク州立大学において酸化クロム系触媒の性能についての基礎的研究が進められている<sup>7)</sup>。

EPAの委託を受けているAcurex Corp.では、同一セル寸法の触媒よりもさらにNO<sub>x</sub>生成抑制効果をもつ多段セル触媒を開発した<sup>8)</sup>。

また、Jet Propulsion Lab.では高温接触燃焼用触媒として具備すべき条件として、

- (1) 点火温度が低いこと、
- (2) 燃焼継続に必要な空気予熱温度が低いこと、
- (3) 触媒表面での燃焼が均一であること、
- (4) 容積燃焼率が高いこと、
- (5) 汚染物質排出量が少ないこと、
- (6) 高温での燃焼に耐えること、
- (7) 多様な燃料が使用可能なこと、
- (8) 長寿命であること、

などの基準を設けて燃焼試験を行なった結果、触媒の活性成分担持量を増加させることによって、点火温度を下げ、燃料供給量を増加させて1100°C用の触媒寿命を延長させることができたと報告している<sup>9)</sup>。しかしながら、触媒担体の耐熱性の問題から米国では1400°C以上での接触燃焼に使用可能な触媒が未だ見出されていないのが現状である。今後、さらに耐熱性に優れた高性能、かつ長寿命な触媒の開発が望まれる。

2.2 ガスタービンへの応用

現在の発電用ガスタービンの入口温度は1100～1200°C程度である。省エネルギーの観点から、総合熱効率を向上させるためにはタービン入口温度を上昇させて廃熱回収ボイラと組合せた複合発電プラントとすることが望ましいと考えられる。この場合、燃焼器に接触燃焼法を用いることにより、Thermal NO<sub>x</sub>生成の著しい抑制などが期待されるので、脱硝装置を省略し得る見込みがある。このような長所があるために、ガスタービンへの応用を目標とした高温接触燃焼法の研究開発が米国および日本で進められている。

米国では、EPAの委託を受けてAcurex Corp.が図-6に示す多段セル触媒を二段に内蔵した燃焼器を用いて燃焼試験を行ない<sup>10)</sup>、Thermal NO<sub>x</sub>およびFuel NO<sub>x</sub>の生成抑制効果が大いことなどを明らかにして、図-7に示したような発電用ガスタービンのための二段燃焼式接触燃焼器および図-8に示すような接触燃焼器を提案している<sup>5)</sup>。Westinghouse Electric Corp.ではガスタービン用燃焼器に接触燃焼触媒を

設置する場合の燃焼器本体の冷却方法について図-9のように検討しており<sup>11)</sup>、また高圧下における接触燃焼試験も行なっている<sup>12)</sup>。

また、既存および新設の発電用ガスタービンへの応

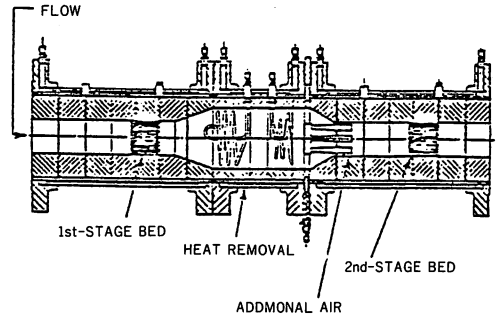


図-6 二段燃焼方式接触燃焼器

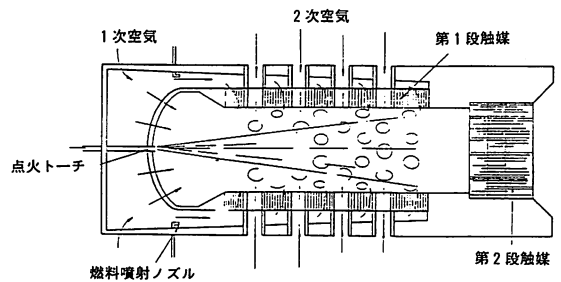


図-7 ガスタービン用二段燃焼方式接触燃焼器

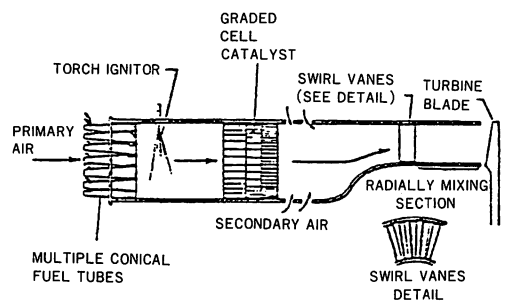


図-8 ガスタービン用接触燃焼器

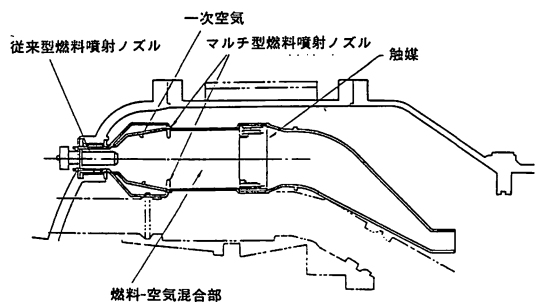


図-9 接触燃焼法を応用したガスタービン燃焼器

用を目的とした米国電力研究所（EPRI）の研究開発は1980年から4～5年間の計画で始められ、触媒の耐久性試験、燃焼試験はもとより接触燃焼システムの完成を目指している<sup>13)</sup>。さらに、燃料の多様化を考慮したモデル燃焼試験は、低・中カロリーガスについてはEnergy & Environmental Research Corp.<sup>14)</sup>およびEngelhard Industries<sup>15)</sup>によって、重油についてはUnited Technologies Research Center<sup>16)</sup>によって、また石炭液化油についてはAcurex Corp.<sup>17)</sup>によってそれぞれ行なわれている。

接触燃焼法では、燃料と空気との混合気の均一化調整が重要になるために、NASAにおいて種々のコンカル型およびベンチュリー型の燃料ノズルを用いた燃料調整システムについての検討が行なわれている<sup>18)</sup>。

接触燃焼法をガスタービンへ応用する場合の今後の研究課題としては、予混合気調整方法、起動時における点火方法、触媒寿命、Fuel NO<sub>x</sub>低減方法、燃焼器の冷却方法、ガスタービン運転に対する追従性などがあげられよう。

航空機用ジェットエンジンへの応用を目的とした研究開発についてはNASAの委託を受けてGeneral Electric Co.とPratt & Whitney Aircraft Co.によって、1978年はデザイン研究、1979～1980年は触媒のスクリーニングテスト、1980～1981年には燃焼器による試験が進められている<sup>19)</sup>。米国では航空機用ジェットエンジンからのNO<sub>x</sub>排出規制が強化されようとしており、この規制の達成を目標に研究開発が進められている。他方、接触燃焼によれば、燃焼の安定化、燃料消費量の低減、燃焼ガス温度の均一化によるタービンブレードの寿命延長などの効果が期待されている。現在、ガスタービンへの応用を目標とした研究開発はハードウェアに重点を置いて、積極的に推進されている。

### 2.3 ボイラへの応用

現在の事業用ボイラはほとんど全て放射型ボイラであり、ボイラ本体の効率は95～98%と高い。しかしながら、ボイラ火炉内の火炎温度は1600～1700℃と非常に高いため、窒素分をほとんど含まない燃料を燃焼させても数100ppmのNO<sub>x</sub>を生成することから、近年では、低NO<sub>x</sub>バーナ、二段燃焼、排ガス再循環などの燃焼方式によるNO<sub>x</sub>低減対策を実施している。

この燃焼温度を1000～1200℃程度に低下させればThermal NO<sub>x</sub>はほとんど生成しないが、現在一般に用いられている炎燃焼方式のボイラを用いる限り不可

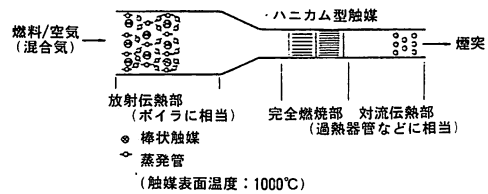


図-10 ボイラを想定した接触燃焼実験

能である。

発電用ボイラへの応用を目的とした研究は米国ではEPAの委託を受けてAcurex Corp.が研究開発を進めており<sup>8)</sup>、我国では当所が実験研究に着手している。Acurex Corp.は、ボイラ用接触燃焼器として、図-10および図-6に示したような放射伝熱式棒状触媒/蒸発管システムと二段接触燃焼システムを開発し、研究を推進している<sup>5)</sup>。

放射伝熱式棒状触媒/蒸発管システムは、図-10に示したように放射伝熱部、完全燃焼部、そして対流伝熱部より成る。

ボイラ火炉に相当する放射伝熱部では、棒状触媒と蒸発管を混在させ、熱回収と同時に触媒表面を冷却するため、過剰空気を低減させた燃焼が可能となる。未燃分は後置したハニカム触媒層で完全燃焼させ、その熱を対流伝熱部で回収する。棒状触媒触媒表面温度は1044℃で、NO<sub>x</sub>濃度は2 ppm (O<sub>2</sub> 0%換算)である。

二段接触燃焼システムは、図-6に示したように、前段と後段の触媒部と中間の熱回収部より成る。


二段燃焼システムは、前段で燃料過剰で反応させるためFuel NO<sub>x</sub>を減少させることができる。また、空気過剰率を低減させることができるので、排煙にともなう熱損失を減少させることができる。

接触燃焼法による新しいタイプのボイラ開発は未だ緒についたばかりであり、今後の研究開発が望まれる。

### 参 考 文 献

- 1) D.N.Anderson : 3rd Workshop on Catalytic Combustion における発表, Asheville, N.C, Oct 3-4 1978
- 2) 福澤, 石原, 浅川 : 火力原子力発電 32(3) 235-8 (1981)
- 3) E.K.Chu, J.P.Kesselring : 3rd Workshop on Catalytic Combustion における発表, Asheville, N.C, Oct 3-4 1978
- 4) B.A.Folsom, C.W.Courteny, M.P.Heap : 3rd Workshop on Catalytic Combustion における発表, Asheville, N.C, Oct 3-4 1978
- 5) W.V.Krill, J.P.Kesselring, E.K.Chu, R.M.Kendall :

- Mechanical Engineering 28-33 August (1980)
- 6) R.Carruba : 3rd Workshop on Catalytic Combustion  
における発表, Asheville, N.C, Oct 3-4, 1978
  - 7) R.Prasad, L.A.Kennedy, E.Ruckenstein : Combustion  
Science and Technology 22 271-280 (1980)
  - 8) J.P.Kesselring, W.V.Krill, R.M.Kendall : Proc. 2nd  
Stationary Source Combustion Symposium, Vol.Ⅲ.  
EPA-600/7-77-073c, 193-228 (1977)
  - 9) G.E.Voecks : 3rd Workshop on Catalytic  
Combustion における発表, Asheville, N.C, Oct 3-4,  
1978
  - 10) W.V.Krill, J.P.Kesselring : 3rd Workshop on Catalytic  
Combustion における発表, Asheville, N.C, Oct 3-4,  
1978
  - 11) S.M.Decorso : 3rd Workshop on Catalytic  
Combustion における発表, Asheville, N.C, Oct 3-4,  
1978
  - 12) D.E.Carl : 4th Workshop on Catalytic Combustion  
における発表, Ohio, May 14-15, 1980
  - 13) L.C.Angello : 4th Workshop on Catalytic  
Combustion における発表, Ohio, May 14-15, 1980
  - 14) B.A.Folsom, C.W.Courteny, M.P.Hearp : 4th  
Workshop on Catalytic Combustion における発表,  
Ohio, May 14-15, 1980
  - 15) H.C.Lee : 4th Workshop on Catalytic Combustion  
における発表, Ohio, May 14-15, 1980
  - 16) T.J.Rosfjord : 4th Workshop on Catalytic  
Combustion における発表, Ohio, May 14-15 1980
  - 17) H.Tong : 4th Workshop on Catalytic Combustion  
における発表, Ohio, May 14-15, 1980
  - 18) R.R.Tacina : NASA Conference Publication 2078  
(1978)
  - 19) A.J.Szaniszlo : The Advanced Low Emissions  
Catalytic Combustion Program : Phasel-Discription  
and Status, Gas Turbine Conference & Exhibit &  
Solar Energy Conference 発表論文, San Diego,  
Calif., March 12-15, 1979



話の泉

“科学万博”

科学技術庁

8 月中に原案決定

科学技術庁，国際科学技術博覧会協会は，1985  
年に開催する“科学万博”の基本構想が正式決定  
されたことを受けて，博覧会の会場計画の青写真  
作りの作業に着手した。

現在 出展館を一カ所にまとめる中央集中方式  
あるいは分散方式などが検討されており，8月中

にまず原案をとりまとめ，今年中に最終案を決定  
する予定で作業が進められている。この会場計画  
が決まると，科学万博のイメージが明確となり，外  
国政府，民間企業の出展の参加申し込みも本格化  
するものと思われる。

(N)