

■ 技術報告 ■

電子ビーム乾式排ガス処理技術の開発

Development of Electron Beam Dry Flue Gas Treatment Process

前 沢 章 彦*

Akihiko Maezawa

1. はじめに

石炭、石油等を燃料源とするボイラ排ガス処理システムは、集塵・脱硝・脱硫技術及びこれらに付属する廃水処理技術の各要素技術から構成されている。

これらの要素技術は、各種の燃料組成によりその計画条件が変わってくる。例えば燃料中の硫黄分の含有量、灰分の含有量、あるいは重金属含有量等により適切な対応が必要になる。しかも単独の要素技術のみでは排ガス処理技術として技術効果及び経済効果を十分に発揮できない為、各要素技術に存在する長所を有機的に結びつけ、最適なシステムを構築する必要がある。

従来の発電用ボイラ排ガス処理システムは、排ガス中の窒素酸化物 (NO_x) の除去に対してアンモニア

と触媒による乾式接触環元法を採用し、硫酸化物 (SO₂) の除去には石灰石膏法に代表される湿式処理法、及びこれに付属する廃水・廃棄物処理システムで運用されている。

しかしながら、これらの要素技術の組合せによる複雑な方式を単純化し、廃水、廃棄物を最小限にする為、乾式による同時処理技術が強く要望され、各社が競って開発に参画し、技術的・経済的效果が見込まれるシステムが追求されている。

荏原製作所は、日本原子力研究所との共同研究により、電子ビーム利用の乾式同時脱硫・脱硝技術の開発を進め、日本が産んだ革新的酸性雨防止技術の1つとして、世界各国の研究者から大きな関心を得ている。排ガス処理技術について開発の歴史、プロセスの内容、

ステップ	I 期 (1971年)	II 期 (1972~1973年)	III 期 (1974~1977年)	IV 期 (1977~1978年)	V 期 (1981~1987年)
	荏原単独	(荏原-原研)共同研究	荏原単独	(荏原-鉄連NO _x 組合)共同研究	P D U
規模	バッチテスト 20ℓ	小形フローテスト 60Nm ³ /h	パイロットプラント1 1,000Nm ³ /h	パイロットプラント2 3,000Nm ³ /h (最大通ガス量 10,000Nm ³ /h)	実証プラント 24,000Nm ³ /h
結果	重油燃焼ガス脱硫効果の確認	重油燃焼ガスの連続同時脱硫・脱硝効果の確認	重油ボイラ排ガスの乾式同時脱硫・脱硝の確認	鉄鋼焼結排ガスの乾式同時脱硫・脱硝の確認	石炭燃焼排ガスの乾式同時脱硫・脱硝の確認
実施場所	第一原子力グループ 横須賀研究所	日本原子力研究所 高崎研究所	荏原製作所 中央研究所(藤沢)	新日本製鉄 八幡製鉄所	米国インディアナ州 IP&I, Co, E, W, STOUT

基礎研究

東京大学 (委託研究 1974-1978年)
東京工業大学 (委託研究 1974-1976年)
日本原子力研究所 (共同研究 1972-1976年)
東京農業大学 (委託研究 1976-)

PDU:

プロセス開発の略名
DOE (米国エネルギー省)を中心とした開発プロジェクト

工業所有権

- ① 国内出願
登録-25件
出願中-23件
- ② 外国出願 アメリカ, 西ドイツ, フランス, イギリス, イタリア, カナダ, オーストラリア, スウェーデン, オランダ, メキシコ, 韓国

* (株)荏原製作所環境プラント事業部環境開発課長

〒108 東京都港区港南1-6-27

図-1 電子ビーム法の開発経緯

米国で進めてきた実証プラントについて以下に述べる。

2. 開発の歴史

本プロセスの開発は、当社のアイデアに基づき、1970年に着手され、その後1971年からは日本原子力研究所との共同研究として進展し、連続処理プロセスとしての基礎を確立した。この共同研究は、プロセスの改善を目的として引続き継続するとともに、1973年には、鉄鋼業窒素酸化物防除技術研究組合と当社との間で新しい共同研究をスタートした。これらの共同研究においてアンモニアの添加照射の効果が明らかとなり、脱硫・脱硝性能を安定化させるとともに、副生物を安定な固体として分離することに成功して、乾式プロセスとしての技術を確立した。

図-1に電子ビーム法の開発経緯を示す。

3. 技術の概要

3.1 プロセス概要

本プロセスの構成は、図-2に示すように排ガスの冷却工程、アンモニア添加工程、電子ビーム照射工程、副産品分離工程よりなる。

約150℃の温度を有する排ガスを、70℃前後に冷却した後、排ガス中のSO₂とNO_xの濃度により定まる微量のアンモニアを添加する。このアンモニアと排ガスの混合ガスを反応器へ導いて、電子ビームを照射すると、排ガス中のSO₂及びNO_xは電子ビームによって生成する強力な酸化活性種によって、極めて短時間（約10万分の1秒）に酸化され、それぞれ硫酸（H₂SO₄）及び硝酸（HNO₃）の分子となり、これがさらに周りのアンモニアと反応して微細な粉体粒子（硫酸と硝酸の混合物）を形成する。

これらの粉体粒子を集塵機により分離除去した後、清浄化されたガスは大気へ放出される。

3.2 脱硫，脱硝の機構

脱硫，脱硝の反応機構は、反応過程において電子ビー

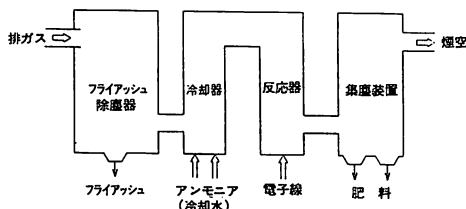


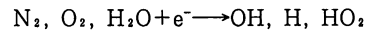
図-2 概略フローシート

ムにより化学反応が促進され、生成された微小粒子の成長過程と相互に重畳および影響を及ぼしあい進行される機構を持っている。

この反応を大きく3つにまとめると以下のようになる。

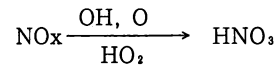
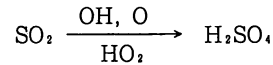
(1) 酸化活性種の生成

電子ビーム発生装置から取り出された高速電子ビームの束を反応器内へ入射させると、このエネルギーに富んだ電子と排ガスの主成分であるN₂、O₂、H₂O分子との衝突が反応開始となって、OH、O、HO₂などの酸化力の強い化学種が生成する。本プロセスの特徴は、酸化活性種を照射空間に最適条件で生成することにある。



(2) SO₂およびNO_xの酸化

生成された酸化活性種によりSO₂、NO_xは酸化され硫酸、硝酸分子のミストになる。



(3) 硫酸および硝酸粒子の生成

前段階で生成した硫酸、硝酸の分子が排ガス中であらかじめ共存しているアンモニアと中和反応をすゝめ、粒子の生成は、同時に2つの過程を持って進行する。

その1つは、ガス相において中和反応による硫酸・硝酸の微少粒子を生成する均一粒子生成過程（オモジニアス・ガス相反応）、他の1つは、生成された微粒子を核に、その粒子表面でガス相に残存する分子との化学反応の継続、更にこれら微少粒子同志、あるいはガス中に混在する他の微少粒子を核に凝集をすゝめ成長してゆく物理的結合、いわゆる反応と結合を併せもつ不均一粒子生成過程（ヘテロジニアス・ガス相反応）をもつ。

この2つの段階を通して反応が終結し、集塵機内で数ミクロン～数十ミクロンの粒子になって分離される。以上の反応機構を模式的にまとめ図-3に示す。

3.3. 電子ビーム発生装置

本プロセスの構成機器である電子ビーム発生装置と反応器の関係を図-4に示す。

構成は直流高圧電源と電子加速部よりなり、両者は高電圧ケーブルによって接続されている。高速電子ビーム発生原理は、電子ビームを発生させ電場又は磁場によって必要な角度に曲げ、蛍光面に衝突して輝点を

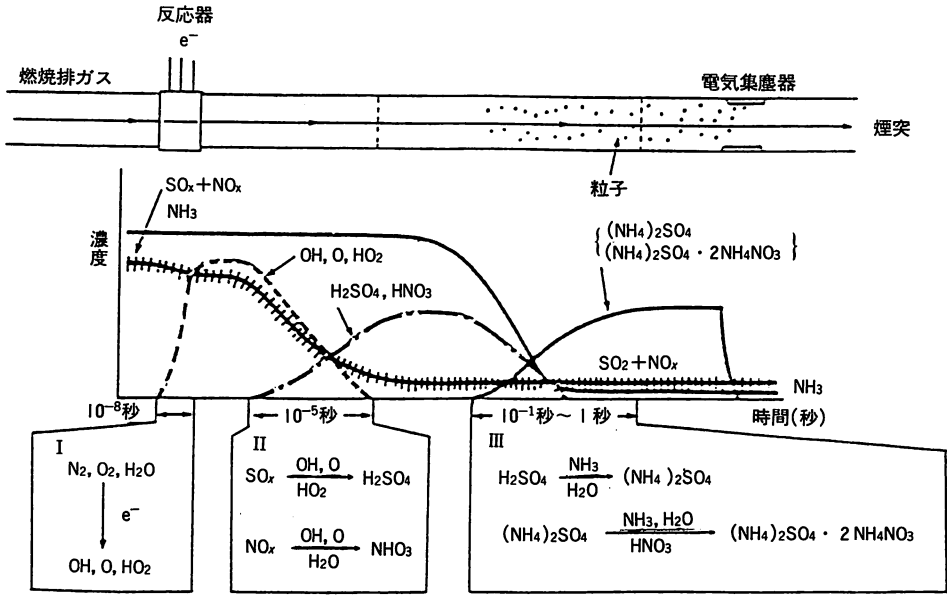


図-3 反応機構模式図

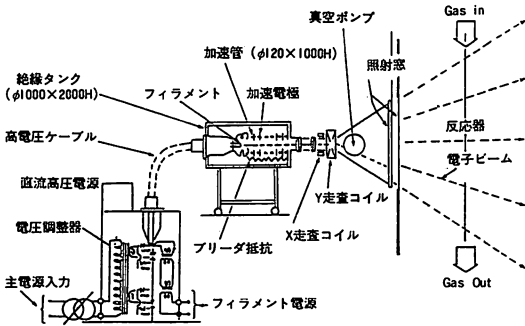


図-4 電子ビーム発生装置

生じ映像を作成するテレビのブラウン管の原理に類似している。

すなわち、高真空中に保持した加速管端部のフィラメントからとび出した熱電子が、高電圧の静電力によって、任意のエネルギーレベルに達するまで加速される。高速電子ビーム束は有効照射空間を拡大するため、磁力によってX、Y方向へ走査しながら照射窓を通して反応器内へ導入される。

3.4. プロセスの特徴

本プロセスの主なる特徴は、下記の通りである。

- (1)高濃度SO₂、NO_xを高効率で同時除去。
石炭燃焼排ガス中の高濃度SO₂、NO_x (実証テストではSO₂ 3000ppm、NO_x 500ppmを確認)を脱除率90%以上、脱硝率80%以上の同時処理。
- (2)乾式法で、廃水がでない。

プロセス上の廃水は全くない為、廃水処理設備が必要ない。

(3)副生物が肥料として利用でき、廃棄物がでない。

エネルギー源である石炭、石油を使用した燃焼排ガスから、資源として付加価値の高い肥料を回収できる。

(4)設備構成が単純で、運転がきわめて容易。

主要機器はガス冷却器、反応器、集塵機の3点で構成され、非常に単純なプロセスである。又各々の機器に充填材等がないため、メンテナンスは容易である。

ボイラの運轉變動に対してスムーズな追従が可能であり、とりわけスタートアップ、シャットダウンが短時間に容易にできる。これは電子ビーム法の大きな特長である。

(5)建設コスト及び運転コストの評価。

従来法(石灰石膏法+触媒法)との建設コスト及び運転コストの比較は、いろいろな条件(計画条件、環境規制値、ユーティリティ単価、土地のコスト、副産品のマーケット等)により大きく変わってくる為、ここでは電子ビーム法と従来法との主な相違点を表1に示す。

米国での電子ビーム法実証テスト結果にもとづく、従来法との比較は、建設コストで約30%コスト節減、運転コストで約10%節減を見込んでいる。既設ボイラ設備(レトロフィット)の場合は、更に電子ビーム法利用の効果がでてくる。

4. 実証プラントの結果

表1 電子ビームと従来法の比較

	電子ビーム法	従来法
システム	乾式同時処理	触媒脱硫+湿式脱硫+廃水処理
ユーティティ-電力(所内率)	約3%要無	約2.5%要有
用水		
廃水		
触媒(脱硝用触媒)	無	有
薬品	アンモニア	アンモニア 炭酸カルシウム 硫酸 廃水処理薬品
脱硫率	η SO ₂ > 90% η NO _x > 80%	η SO ₂ > 90% η NO _x > 80%
副産品	硫安・硝安	石膏
運転保守	単純	複雑

エネルギー源の多くを石炭・石油等の化石燃料に依存している米国では、国際的環境問題に発展しつつある酸性雨対策に本腰を入れ始め、米国エネルギー省(DOE)が中心に、最も経済的で、革新的な技術の実用化を計る為、1983年に電子ビーム法の実証プロジェクトに着手した。

このプロジェクトは、米国政府とのコスト分担方式により、総額約700万米ドルで、米国政府の他、荏原製作所、インディアナ州政府、電力会社、石炭会社、肥料会社の各々が出資し、インディアナ州インディアナポリス市の石炭火力発電所の敷地内に実証プラントを建設し、稼動中の発電所煙道ガスの一部を導いて、電子線法による実証テストをおこなった。運転は1987年7月に完了し、1988年7月、米国エネルギー省へ実証テスト最終報告書を提出した。テストのフローシート、装置の外形写真、主な脱硫・脱硝率を図-5、写1、図-6に示す。

4.1 目的

電子ビーム法が高硫黄石炭燃焼排ガス処理として、経済的水準で、90%以上の脱硫率、80%以上の脱硝率を達成できるかどうかを確認すること。

4.2. 排ガス条件

排ガス量 24000m³N/h (約8000kW相当)
 入口SO₂ 800~3000ppm
 入口NO_x 250~500ppm

4.3. 実証運転の主な結果

(1) 脱硫・脱硝率

脱硫率は95%以上の成果を得た。これは湿式プロセスの脱硫率に匹敵するもので、乾式法としては極めて良好な結果であった。脱硫率を促進する要因は、排ガ

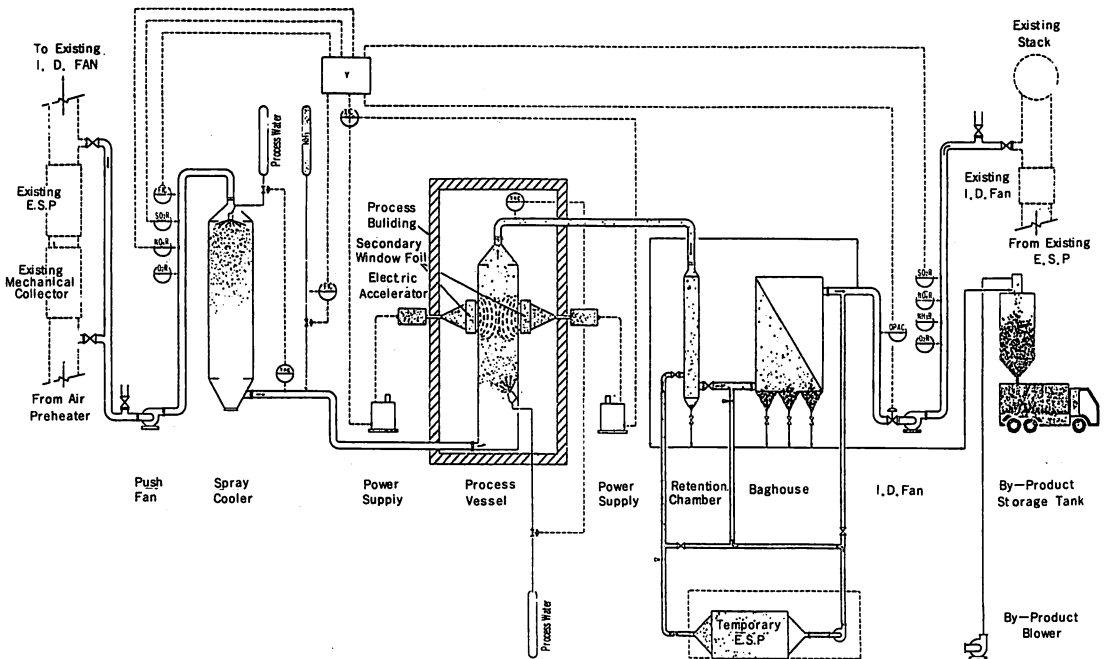
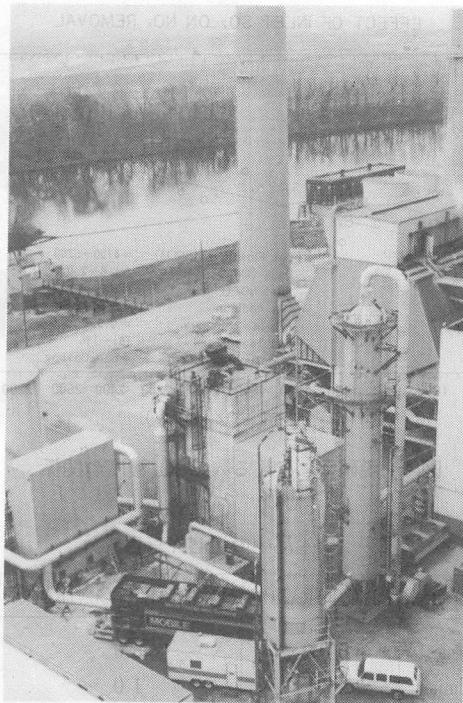


図-5 実証プラントフローシート



写1 Overhead view of PDU Plant

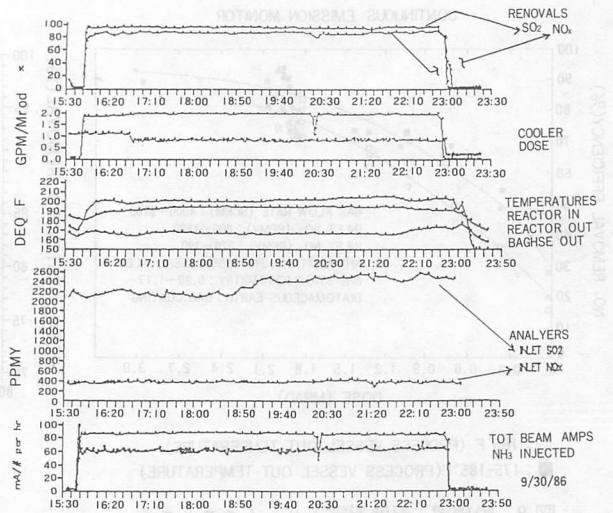


図-6 脱硫脱硝率

スの温度とアンモニアの添加量（アンモニアの化学等量比）が重要で、電子ビームのエネルギーは、予測量より低い結果であった。一方脱硝率も80%以上の成果を得た。脱硝効果を推進する要因は、予測通り電子ビームのエネルギー量に依存していることが確認された。

又、この脱硝率は、入口SO₂を800ppmから3000ppmまで変化させたとき、SO₂の濃度が上昇するに従い、良化する新しい結果を得た。

以上のことから日本で使用されている1%以下の低硫黄石炭のみならず3~4%の高硫黄石炭の排ガス処理技術に電子ビーム法の適用が可能である見通しがあったのみならず、高硫黄の石炭ほど、電子線の消費エネルギーを小さくして、同等の脱硝率を達成できることが判明した。

図-7, 8, 9, に上記の関係を示す。

(2) 副生物回収

ガス相から生成される微小粒子を分離する集塵設備の選定は、本プロセスの中でも重要なポイントになる。日本でのパイロットプラントでは、電気集塵機による成果を得ていたため米国の実証プラントでは、バグフィルターを主設備に採用し、電気集塵機をスタンバイとして配置した。バグフィルターの集塵効率は充分満足すべき値が得られたが、フィルター表面で、微粒

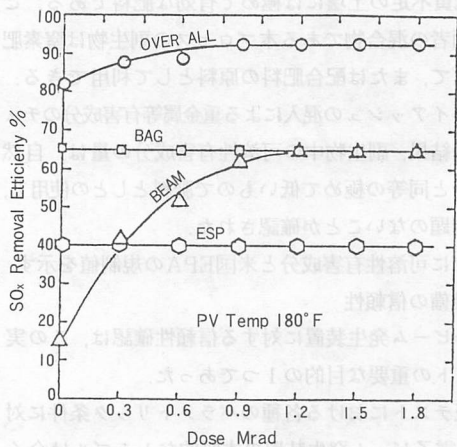
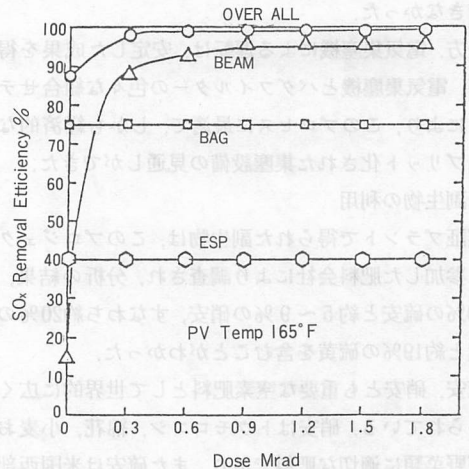


図-7 脱硫率、温度対電子ビームエネルギー

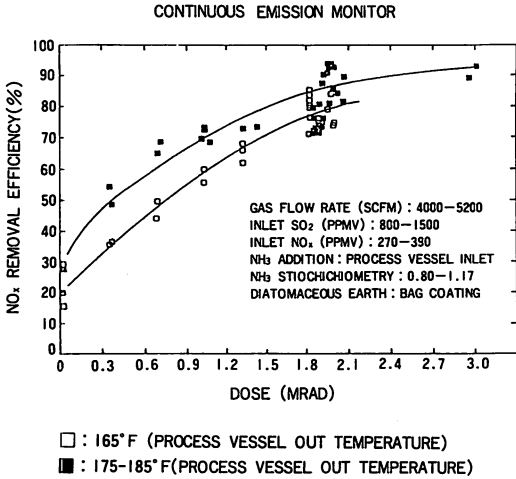


図-8 脱硝率，温度対電子ビームエネルギー

子の凝集作用が強く，分離された副生物の離脱が困難でフィルターの汙過圧が上昇し，安定な連続運転が達成できなかった。

一方，電気集塵機による運転は，安定した成果を得たが，電気集塵機とバグフィルターの色々な組合せテストにより，このプロセスに最適で，しかも経済的なハイブリット化された集塵設備の見通しができた。

(3) 副生物の利用

実証プラントで得られた副生物は，このプロジェクトに参加した肥料会社により調査され，分析の結果，約80%の硫安と約5～9%の硝安，すなわち約20%の窒素と約19%の硫黄を含むことがわかった。

硫安，硝安とも重要な窒素肥料として世界的に広く用いられている。硝安はトウモロコシ，綿花，小麦および野菜類に適切な肥料であり，また硫安は米国西部等，硫黄不足の土壌には極めて有効な肥料である。これら両者の混合物である本プロセスの副生物は窒素肥料として，または配合肥料の原料として利用できる。又フライアッシュの混入による重金属等有害成分のチェックの結果，副生物中の可溶性有害成分の量は，自然レベルと同等の極めて低いもので肥料としての使用上，全く問題のないことが確認された。

表2に可溶性有害成分と米国EPAの規制値を示す。

(4) 設備の信頼性

電子ビーム発生装置に対する信頼性確認は，この実証テストの重要な目的の1つであった。

実証テストにおける各種のパラメトリック条件に対して，電子ビーム発生装置の本質的なトラブルは全くなかった。排ガス処理プロセスのような24時間連続安

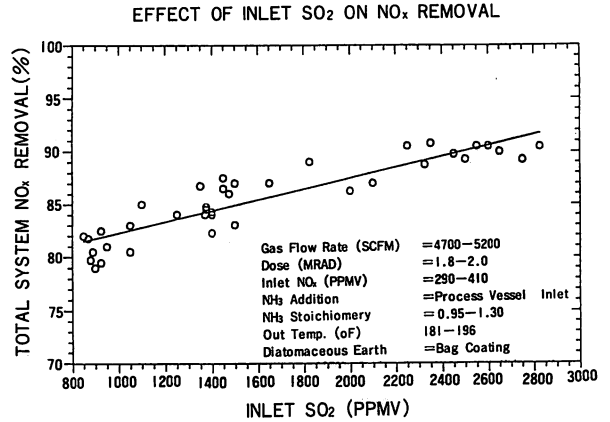


図-9 脱硝率に与える入口SO₂濃度の関係

表2 副生品中の可溶性有害成分

ELEMENT	CONCENTRATION	MAXIMUM CONCENTRATION*
Arsenic	0.04	5.0
Cadmium	0.10	1.0
Chromium	0.79	5.0
Mercury	0.0004	0.2
Lead	0.15	5.0
Selenium	< 0.001	1.0
Silver	< 0.02	5.0
Cyanide	< 0.005	-

* Federal Register, Vol 45, No. 98, P33122, 19Mag. 1980
Rules for solid waste disposal by U.S. EPA. Under Resource Conservation and Recovery Act (RCRA)

定運転を必要とする厳しい条件のもとでの実績は，過去の荏原製作所のパイロットプラントでの実績をのぞいては，一般の電子ビームプロセスにはなかった。

従来，この電子ビーム発生装置は，ポリエチレン電線の被覆材，自動車タイヤゴム等の強化用として巾広く実績を持っている。しかしながら，これらの商用化設備は，連続運転時間が短かく，出力も少量のものが多かった。実証テストでは1台あたり80kWと比較的大容量化のものを採用し，順調に運転できたことは大きな成果であり，今後更に大容量化の推進と信頼性の向上に見通しをたてた。

5. 展望

先にも記述したように本プロセスは，荏原製作所と日本原子力研究所との共同開発によるプロセスで，漸新かつ，魅力的なプロセスと評価され，最近，きわめ

て顕著な国際的関心を受け始めている。その為、電子ビーム利用の基本的な考え方を示した、開発の動きが世界中に広がりつつある。

世界各国での調査研究及び開発の動きは、このプロセスが酸性雨問題を経済的な解決に導ける、見通しを持った漸新な技術であることを示唆している。

事実、米国での実証プラントにより、電子ビーム法は既に確立されている従来方式と比較して、技術的に見て、きわめて革新的なものであることを実証し、そ

の実証にもとづくフィージビリティスタディーにより経済的優位性を見通しを得た。しかしながら従来法は既に300MWクラスから700MWクラスに及ぶ範囲で多くの実績と信頼性を得るブシュアップがされている。

電子線法も、更に、今後大型プラントにおいて、これらの信頼性と経済効果を実証する為に、引き続き米国において100MWクラスの実証プラントの建設を計画している。

共催行事あない

資源リサイクリングセミナー

この度、(社)資源・素材学会 資源リサイクリング部門委員会では、下記要領でセミナーを開催いたします。奮ってご参加下さるようお願い申し上げます。

記

1. 日時：昭和63年11月21日(月) 9時30分～17時00分
2. 場所：東京農林年金会館バストラル5階菊の間 Tel. 03-432-7261
地下鉄日比谷線「神谷町」下車、徒歩2分
3. 主催：(社)資源・素材学会資源リサイクリング部門委員会
4. 共催(予定)：エネルギー・資源研究会、クリーン・ジャパン・センター、
その他関連学協会
5. 参加費：会員10,000円、非会員12,000円、学生会員 4,000円
共催団体の会員、学生会員については、会員または学生会員の参加費を適用する。
6. セミナー内容：

* 開会挨拶 (9:30～9:40) *

- 1) 資源リサイクリングの展望……………早稲田大学理工学部・原田種臣 (9:40～10:15)
- 2) 資源リサイクリングにおけるマテリアル・フロー……………国立公衆衛生院・松村治夫 (10:15～10:50)

* 休憩 (10:50～11:00) *

- 3) 再資源化技術の開発と調査の推移……………(財)クリーンジャパンセンター・元田欽也 (11:00～11:35)
- 4) 都市ごみのリサイクリング……………東京都清掃局作業部・美山俊久 (11:35～12:10)

* 昼食 (12:10～13:00) *

- 5) 資源リサイクリング技術の概要とその適用方法……………東京大学工学部・岡野靖彦 (13:00～13:35)
- 6) 家電製品のリサイクリング……………三井金属鉱業(株)・未定 (13:35～14:10)
- 7) 触媒、オイル・アッシュ、石炭灰のリサイクリング……………公害資源研究所・浜田善久 (14:10～14:45)

* 休憩 (14:45～14:55) *

- 8) めっき・スラッジのリサイクリング……………北海道大学工学部・木内弘道 (14:55～15:30)
- 9) 金属リサイクリングの将来—高品質レアメタルの事例……………東北大学選鉱製錬研究所・南條道夫 (15:30～16:05)
- 10) 総括討議…………… (16:05～16:50)

* 閉会挨拶 (16:50～17:00) *

7. 募集定員：80名
8. 参加費に含まれるもの：セミナーテキスト(A4版、約120頁)、昼食・コーヒー代
9. 参加申込方法：参加希望の方は、現金書留にて参加費同封の上、1) 氏名、2) 勤務先、3) 電話番号、4) 連絡先、5) 所属団体(会員・学生会員参加費の場合)、を明記して下記宛お申し込み下さい。

〒107 東京都港区赤坂9-6-41 乃木坂ビル (Tel 03-402-0541)

社団法人資源・素材学会 資源リサイクリングセミナー係宛

10. 申込締切日：昭和63年11月10日(火)
11. 申込受付後、参加証をお送りいたしますので、連絡先は正確に記載して下さい。