

氏 名	吉 川 博 文
授 与 学 位	工 学 博 士
学位授与年月日	昭和63年10月12日
学位授与の根拠法規	学位規則第5条第2項
最 終 学 歴	昭和56年3月 東京大学工学部化学工学科卒業
学 位 論 文 題 目	高濃度石炭-水スラリ (CWM) の製造方法に 関する研究
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 斎藤正三郎 東北大学教授 大谷 茂盛 東北大学教授 松本 繁 東北大学教授 新井 邦夫

論 文 内 容 要 旨

第1章 緒 論

石炭のスラリ化燃料は、石炭のハンドリング性を改善する方法としてその実用化が検討されている。石炭のスラリ化燃料のうち、重油との混合燃料である。COM (Coal Oil Mixture) が石油依存率50~60wt%であるのに対し、水との混合燃料であるCWM (Coal and Water Mixture) は、水及び微量の分散剤等のみでスラリ化することで経済的にも優れており現在最も注目を集めている。また、石炭のスラリ化燃料としてはこれ以外に、メタノールや液体CO₂を用いた方式も考えられているが、CWMが経済性の点で実用化に最も近い位置にある。しかし、微粉炭及びCOMの発熱量がそれぞれ7000及び8500kcal/kgであるのに対し、CWMは水を30wt%程度含んでいるためその発熱量は5000kcal/kg程度であり、ボイラ効率の低下も避けられない。このため、なるべく少ない水分で流動性及び安定性の良いCWMを製造しなければならない。また、その製造コストを下げるためには、CWMの性状を保持したまま粉砕動力や分散剤添加量を少なくする必要がある。このような目的を達成するためには、CWMの流動性及び安定性に及ぼす石炭粒子の粒径分布や分散剤の石炭粒子への吸着特性の影響並びに最適な粒径分布を実現するための粉砕条件等を明確にする必要があるが、これらの点についてはまだ十分には解明されていない。

以上のような背景のもとに、より少ない水分で流動性及び安定性に優れたCWMを経済的に製造するプロセスを確立することを目的として、本研究に着手した。

第2章 CWM製造に関する基礎検討

CWMの流動性には、石炭粒子の粒径分布、分散剤及び石炭性状が影響を及ぼすと考えられるが、本章では粉碎性（HGI）の異なる3種類の石炭を用いてCWMの流動性に及ぼすこれらの因子の影響を調べた。

整粒した石炭試料を混合する方法及び粉碎時の石炭濃度（石炭と水の合計質量に対する石炭の質量の割合、以下同様）を変化させる方法で、石炭粒子の粒径分布を次式に示すGaudin-Schuhmann分布式に近似させ、さまざまな分布指数 n を有する試料を調製した。

$$P(X) = (X/X_{\max})^n \times 100 (\%)$$

ただし、 X ：石炭粒子の粒径（ μm ） X_{\max} ：石炭粒子の最大粒径（ μm ）

$P(X)$ ：粒径 X 以下の粒子の割合（wt%） n ：分布指数（-）

これらの試料についてタッピング試験及びCWMを乾燥する方法で粒子間の空隙率を測定し、CWMの粘度との関連性を調べたところ、分布指数 n が0.4の時、粒子間の空隙率が最小、CWMの到達濃度（粘度 $1\text{ Pa}\cdot\text{s}$ での石炭濃度、以下同様）は最大となり、両者の間には良い相関があることが明らかになった。

さらに、粉碎時の石炭濃度が高いほど分布指数及び石炭粒子の形状係数は小さく（球に近く）なり、また形状係数が小さいほど空隙率が小さくなること、及び、石炭のHGIが大きいほど同一粉碎濃度（粉碎時の石炭濃度、以下同様）での分布指数は小さいが、粉碎濃度が高いほど分布指数へ及ぼすHGIの影響が小さくなることが分かった。炭種によって異なるが、到達濃度を最大とする粒径分布に調整するには石炭濃度65～75wt%という従来の湿式粉碎（通常30～50wt%）よりも高い石炭濃度で粉碎する必要がある（以下、これを高濃度粉碎法と呼ぶ）。

また、分散剤の必要量の低減に関しては、分割して添加することにより、同一添加量でより低い粘度のCWMが得られることを示した。さらに、石炭の吸水率（石炭粒子内部に吸収される水の量）が低いほど到達濃度は高くなるが、石炭を加熱処理することにより吸水率を低下させ、到達濃度が向上することを確認した。

第3章 高濃度粉碎法に関する検討

第2章で提案した高濃度粉碎法について、その粉碎効率を向上し、粉碎動力を低減する方法を検討した。

まず、1次粉碎速度式に基づいて、高濃度粉碎法における粉碎速度定数に及ぼす石炭粒子径並びにボール径の影響を調べ、粉碎速度定数を最大とする石炭粒子径とボール径の関係を求めた。そして、そのデータに基づいて2室分離型のチューブミルを製作し、HGIの異なる数種類の石炭について粉碎容量や粉碎動力原単位を評価した。また、粉碎効率に及ぼすミル回転数並びにミル内のスラリのホールドアップ量の影響を調べ、粉碎効率を最大とするようなスラリのホールドアップ量を実現させるための、ミルの最適出口開口比を見出し、粉碎動力原単位を約50%低減した。

さらに、ボールミルでの粉砕効率向上のメカニズムをベースにして、リングローラミルを湿式で用いてCWMを製造する方法を提案し、その粉砕特性がボールミルよりも高濃度粉砕法に適しており、リングローラミルで調整したCWMはボールミルの場合よりも到達濃度を高くできることを明らかにした。

第4章 分散剤の吸着特性とCWM性状

分散剤の吸着率はCWM性状に影響を及ぼすと考えられていたが、石炭からの溶出成分により吸着率の測定は正確さを欠いていた。そこで、溶出成分の影響を除去し、CWM中の分散剤吸着率を正確に測定する方法を提案し、この方法で分散剤の吸着特性及び吸着率とCWM性状の関係を調べた。

吸着率の測定に関しては、ブタノールを用いた処理法により石炭からの溶出成分が除去され、スラリー液中の分散剤量を正確に測定できるようになった。この方法を用いて分散剤の吸着率を評価し、分散剤吸着率は粒子外表面積に比例し、攪拌を加えることで増加し、石炭表面の疎水性が強く分散剤の分子量が大きいほど吸着率も高くなることが明らかになった。

さらに、石炭性状及び粒径分布が同一の場合、CWMの粘度は分散剤の吸着率とスラリー液の粘度で決まり、吸着率が高いほど粘度は低くなることが分かった。また、吸着率が高いほど同一見掛け粘度での降状値が大きくなり、流動指数が小さくなる。一方、CWMの流動性と同様、タンクに貯蔵する際のハードパック生成やタンクからの排出性もCWMの重要な性状であるが、これらの点についても検討した。その結果、CWMの流動性や貯蔵性（ハードパック生成量及び排出量）を向上するには攪拌により分散剤の吸着を促進させると良いが、攪拌しすぎると石炭からの溶出成分により逆に貯蔵性が低下すること及び分散剤の分子量はある程度大きい方が貯蔵性の点で好ましいことが分かった。

さらに、分散剤の吸着率や石炭濃度等の調整によりレオロジー特性の異なるCWMを調製し、レオロジー特性と貯蔵性の関係を調べた。炭種によって多少差があるが、貯蔵性から見た最適レオロジー特性は、降状値1～5 Pa・s、流動指数0.7～0.8であり、CWMのレオロジー特性から貯蔵性のある程度予想できた。

第5章 改良型浮選法による脱灰CWM製造法

CWMは水分を約30%含んでいるため質量当たりの発熱量が低下するが、この発熱量を増加させ、かつ燃焼時の灰による弊害を少なくすることを目的として、CWM製造と脱灰の組合せについて検討した。

本章では、捕収剤をガス化して供給することを特徴とする浮遊選鉱法を提案し、脱灰率に及ぼす石炭の表面性状、粒度、パルプpH、泡沫層高さの影響を調べ、その最適条件で本脱灰法と捕収剤を液滴で供給する従来の浮遊選鉱法とを比較した。そして、本脱灰法の方が捕収剤必要量、脱灰率及び脱灰した石炭を用いて調製したCWMの流動性の点で優れていることを明らかにした。

また、脱灰によってCWMの流動性がどう影響されるかを調べたところ、脱灰することにより石

炭によっては到達濃度が高くなり分散剤の必要量も少なくなるが、CWMの流動性が悪くなる石炭は認められなかった。さらに、脱灰前後の灰分の元素分析から灰による摩耗性や付着性を評価し、特に摩耗性が改善されることが分かった。

第6章 ミルのスケールアップ

発電容量100万kW程度の発電所にCWMを供給するための製造装置の実用機は、その粉碎容量が数十t/h程度になると考えられる。そこで、本章ではミルのスケールアップ方法及びそれに伴うCWM性状の変化を調べた。

スケールアップに関しては、石炭が決まればミルの大きさに関係なく、粉碎動力原単位は一定という条件及びミル寸法、操作条件と所要動力は従来の湿式ミルの関係式を用い、小型ミルのデータをもとに大型ミルを設計し、CWM製造容量で15t/hのミルまで計画値通りの性能が得られた。また、得られたCWMの粒径分布及び粘度も小型ミルと同一であり、スケールアップによりCWM性状の変化は認められなかった。

第7章 総 括

以上の結果を総括した。

審査結果の要旨

高濃度石炭-水スラリー（CWM）は、微粉碎した石炭を水及び微量の分散剤でスラリー化するもので、石炭の輸送、貯蔵や燃焼の際のハンドリング性を改善する方法として注目されている。しかし、燃焼効率や輸送・貯蔵効率の点から、燃焼に寄与しない水を極力少なくし、かつ流動性に優れたスラリーを製造する必要がある。また、工業化のためには粉碎動力及び分散剤量を低減し、経済的にCWMを製造する技術の確立が望まれている。

本論文は、上記目的を達成するため、CWMの製造条件及び製造方法を研究したもので、全7章からなる。

第1章は、序論で、本研究の目的と既往の研究について述べた。

第2章では、CWMの高濃度化のための基礎研究として、微粉炭の粒径分布、粒子形状、分散剤及び石炭性状の影響を調べ、高濃度CWM製造に最適な条件を明らかにした。特に、粒径分布については、Gaudin-Schuhmann分布で近似して、最適な分布指数を見いだした。さらに、そのような粒径分布に調整するための粉碎条件を検討し、粉碎時の石炭濃度及び石炭の粉碎性が支配的であることを明らかにした。

第3章では、一次粉碎速度式に基づいて粉碎速度定数とボール径の関係を調べ、その結果をもとに2室分離型のチューブミルを用いた連続式の製造装置を製作した。また、粉碎効率に及ぼすミル回転数及びミル内のスラリーのホールドアップ量の影響を調べ、ミル出口径の最適値を見いだした。さらに、湿式リングローラミルによるCWM製造法を提案し、その粉碎特性がボールミルよりも優れていることをあきらかにした。

第4章では、CWM中の分散剤吸着率測定法を提案し、この方法で分散剤の吸着率に及ぼす諸因子の影響を調べた。さらに、分散剤の吸着率とCWM性状（流動性及び貯蔵安定性）の関係を調べ、レオロジー特性により貯蔵安定性が予測可能なことを示した。

第5章では、捕収剤をガス化供給することを特徴とする浮選法を提案し、従来の液滴で供給する方法と比較して、脱灰率及びCWMの性状の点で有利であることを明らかにした。また、脱灰によりCWMの流動性及び灰による摩耗性や付着性が改善されることを見いだした。

第6章では、小型ミルの実験結果をもとに、粉碎動力原単位一定という条件及びミル寸法と所要動力の従来の関係式を用いてスケールアップし、計画値通りの粉碎性能が得られた。また、得られたCWMの性状も小型ミルと同一であった。

第7章は結論である。

以上要するに本論文は、高濃度CWMの製造に最適な石炭粒子の粒径分布を見だし、そのような粒径分布を達成するための粉碎条件を明らかにすると共に、新たに提案した製造方法を大型装置を用いて実証したもので、化学工学の発展に寄与するところ少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。