

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 黒木正章

本論文は、「希薄アンモニア水による石炭ガス脱硫法の研究」と題し、コークス炉ガス(COG)中の硫化水素の除去を効率的かつ無公害に実施するため、希薄アンモニア水洗浄による湿式吸収脱硫プロセスの開発を目的としたもので、8章からなっている。

第1章は序論で、本研究の背景、目的および論文の構成とその概要が述べられている。各種脱硫プロセスに関して体系的に解説し、先進的脱硫技術として評価された湿式酸化法が現在では環境規制に適合し難い状況になっており、それに代わる脱硫技術としてのアンモニア水洗浄法等、湿式吸収法の技術課題について言及している。

第2章では吸収塔の設計等、吸収反応の化工解析に不可欠な基礎物性としての溶解平衡に言及し、COG 酸性ガス成分である H_2S 、 CO_2 および HCN のアンモニア水に対する溶解平衡係数を導出している。これらの酸性ガス成分のうちアンモニア水に対する HCN の吸収特性に関しては文献調査からデータを得られなかったため、溶解平衡実験装置による動の実験を実施してデータの確保を図っている。

第3章では吸収塔の設計ならびにその性能解析において不可欠な総括物質移動係数に触れ、特に化学反応を伴う吸収の場合には物理吸収の液相物質移動係数に対する吸収速度の増大効果を示す指標として反応係数 β の把握が必要になることに言及している。

本研究では NH_3 水溶液に対する H_2S および HCN の吸収のような瞬間反応に関して二重境膜説を適用し、反応係数 β を溶質ガス分圧および溶媒溶質濃度から直接計算する理論式を導出している。

第4章では小型充填式吸収塔（ガス流量： $20\text{Nm}^3/\text{h}$ ）による基礎実験について言及している。この実験の特徴は供試ガスとして COG を直接使用している点であり、これによって成分ガスの反応特性が明確に把握されている。 H_2S および HCN の除去率は水洗浄の場合で 90%以上、希薄アンモニア水の場合には 98%に達している。

本研究では基礎実験ならびに総括容量係数の理論解析から、吸収液 NH_3 の高濃度化が H_2S の吸収性能には殆ど効果的に作用せず、 CO_2 の吸収率を高めて炭酸アンモニウムが多量に生産され、そのために吸収液中の NH_3 が

消耗されるという結論が示されている。

第5章はリッチ液の再生実験に関するものであり、パイロットプラントの設計仕様を確定するために実施されている。

第6章にはパイロットプラント（ガス流量：1,000 Nm³/h）による実用化実験の方法ならびにその結果と考察が示されている。

本実験では吸収塔内部の吸収プロファイル曲線を解析することによって高濃度アンモニア水と希薄アンモニア水との吸収メカニズムの差違を明らかにし、この差違が希薄アンモニア水洗浄法の高効率脱硫の主因と推定している。

既存のアンモニア水洗浄プロセスは20~30g/lの高濃度NH₃水を使用して70~90%の除去率しか得られなかったが、1g/l以下の希薄アンモニア水を使用する本プロセスの除去効率は、H₂SおよびHCNについて98%以上、NH₃について90%以上が見込まれている。

第7章では本研究で開発された希薄アンモニア水洗浄法と現在最も一般的に使用されている湿式酸化法の3プロセスとを経済性ならびに環境適応性について比較し、実用化の可能性を検討している。その結果、希薄アンモニア水洗浄法は精製原単位が他のプロセスの75%程度で経済性に優れていることが確認され、環境適合性については蒸気加熱を要するためLCAによるCO₂原単位が若干劣ることが指摘されている。

第8章は総括で本論文の内容をまとめている。

以上要するに、本論文は環境制約下のCOG脱硫技術として希薄アンモニア水洗浄法が湿式酸化法に勝るものとして評価し実用化の可能性を指摘したもので、吸収理論およびそれに関する化学システム工学に大きな貢献をするものである。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。