

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 多谷 淳

本論文は「湿式石灰石膏法における SO_2 の吸収酸化反応機構に関する研究」と題し、安価で豊富な石灰石を吸収剤とし環境汚染問題がない有用な石膏を回収する大規模排煙を対象とする硫黄酸化物除去技術の基礎と実用化の要素に関する研究を纏めたものである。すなわち、排煙脱硫の気・液・固系 SO_2 吸収酸化反応機構を明らかにし、これを基に、有効気液接触面積密度の高い竪型ハニカム状のグリッド充填塔における SO_2 吸収反応と酸素吸収効率の高いスパージャーを組み入れた吸収塔タンクでの酸化反応を主反応とする排煙脱硫装置の実用開発に関する研究を纏めたもので6章からなる。

第1章は序論であり、湿式脱硫プロセスに関する既往の研究および技術のレビューを行なうと共に、本研究の目的を述べている。

第2章は別置酸化脱硫プロセスにおいて高度脱硫を可能にする機構を実験的に調べ、固形 $\text{CaSO}_3 \cdot 1/2\text{H}_2\text{O}$ の存在が SO_2 吸収速度を高めていることを実験的および平衡論的に明らかにしている。更にこの結果を組み込んだグリッド充填塔内ガス吸収、液相反応シミュレーションにより、タンク酸化脱硫プロセスでは吸収塔タンク内での亜硫酸イオンの石膏への酸化と析出が脱硫性能に重要な影響を与えることを明らかにし、高性能プロセスの精密設計を可能とする SO_2 の吸収酸化性能解析手法を述べている。

第3章は亜硫酸イオンの酸化に不可欠な触媒であるマンガン化合物が吸収塔タンク内で生成する亜硫酸カルシウム結晶に取り込まれ、スラリー中の溶存 Mn^{2+} が消失する現象を初めて見いだしている。酸化反応の触媒となるマンガン化合物が吸収剤である石灰石に含まれており、このマンガンを経過促進の触媒として有効利用することが重要であるが、溶存 Mn^{2+} 濃度が高い場合は一定の割合で、溶存 Mn^{2+} 濃度が低い場合には溶存 Mn^{2+} 濃度に比例して亜硫酸カルシウムの結晶に取り込まれることを明らかにし、酸化触媒として重要な Mn^{2+} イオン濃度を予測可能としている。

第4章は脱硫性能に大きな影響を与える因子である吸収スラリーの SO_2 平衡分圧を支配する亜硫酸イオン濃度が酸化反応によって変化する状態を把握するため、亜硫酸イオンの酸化反応で最も重要な溶存 Mn^{2+} の酸化触媒効果について詳細な検討を行っている。石灰石スラリー中の5 ppm程度の低濃度 Mn^{2+} による酸化反応速度を10秒弱のグリッド充填塔内流下時間範囲で実験的に解析し、亜硫酸イオンの液相酸化反応速度を向上させる機構を明ら

かにすると共に、グリッド充填塔及び吸収塔タンクのそれぞれにおいて酸素ガス拡散速度と液相酸化反応速度が拮抗する領域にあることを指摘し、いままで複雑とされていた亜硫酸イオンの酸化反応機構を解明している。

第 5 章は吸収塔タンクで亜硫酸イオンを完全に酸化するための効率的な気泡分散装置条件を述べている。石灰石に微量含まれるマンガン化合物を酸化触媒とした亜硫酸イオンの空気酸化実験を行い、気泡からの酸素吸収速度が亜硫酸イオンの酸化反応に及ぼす影響を明らかにし、更に液深に比べてタンク径が 5 倍程度大きい形状となる吸収塔タンクで吸収スラリー中に空気気泡を効果的に分散させる方法として、回転式アームによって微細気泡を分散させるエアロータリスパージャ (ARS) を発案し、攪拌動力と通気動力が酸素ガスの物質移動係数に及ぼす影響を明らかにしている。

第 6 章は本論文の要点を総括するとともに、本研究結果が実際の湿式石灰石膏法排煙脱硫装置の基礎になっており、さらに、高性能化の促進に寄与しつつあることを示している。

以上要するに、本論文は実際の排煙と天然の石灰石を用いた気・液・固相からなる SO_2 の吸収酸化反応機構を実験、理論面から綿密に解析し、反応の精密な予測法を確立すると同時に世界的に普及が進んでいる湿式石灰石膏法排煙脱硫装置の合理性を高めるための脱硫性能解析手法を提示したものであり、化学システム工学の発展に寄与するのみならず、地球規模の環境保全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。