



石炭燃料及び石炭灰中に存在する Se の状態研究

八木伸也¹ 小川智史² 大月健太² 塚田千恵³

1 名古屋大学 未来材料・システム研究所 2 名古屋大学大学院工学研究科

3 名古屋大学 シンクロトロン光センター

キーワード : 石炭燃料、石炭灰、Se 化合物

1. 測定実施日

2017年11月16日 BL5S1 (2シフト)

2. 研究背景と目的

2011年3月の東北震災以後、電力需要を満足するために火力発電所の存在は非常に大きなものとなっている。しかしながら、火力燃料で使用されている石炭燃料が燃焼する際に発生する排気ガス中に含まれる微量なガス状もしくは微粒子状の化合物により、排気ガスを無害化する触媒の劣化反応が報告されている。また、環境に対して大きな付加を与えるセレン(Se)もしくはその化合物が環境中に拡散することは、Seの化学状態分析を通してその不拡散対策にフィードバックをかける必要もある。さらにSeは、周期律表中で「カルコゲン」に分類されており、Se単体もしくはその化合物と反応することで多くの触媒材料が被毒を受けることが予想される。

本研究ではまず、石炭燃料中と燃焼後の石炭灰中に存在するSeの化学状態(価数変化)をSe K吸収端(12.65 KeV)近傍のNEXAFS領域を蛍光収量法で分析することを目的とする。

3. 実験について

試料はセレンの標準物質(SeO_2 、 H_2SeO_4 、 NH_4SeO_3)そして石炭粉末(燃焼前: merge と表記)の4つで、それらに対して蛍光収量法でSeのK吸収端XAFS測定を実施した。Se濃度が高い場合は透過法でXAFSスペクトルを得ることが好ましかったが、実際の石炭粉末試料や石炭灰粉末試料のSe濃度はそれほど高くなかったため、SDDを用いて測定した。

3. 結果および考察

Fig.1にSeを含む4つの試料に対するのSeのK吸収端NEXAFSスペクトルをまとめたものを示す。先述したように、石炭粉末試料中に含まれるSe濃度は高くは無いいため、何度か繰り返し測定を行い、平均(merge)したスペクトルを表示している。また、全てのスペクトルは12690 eV付近のedge-jump値で規格化している。

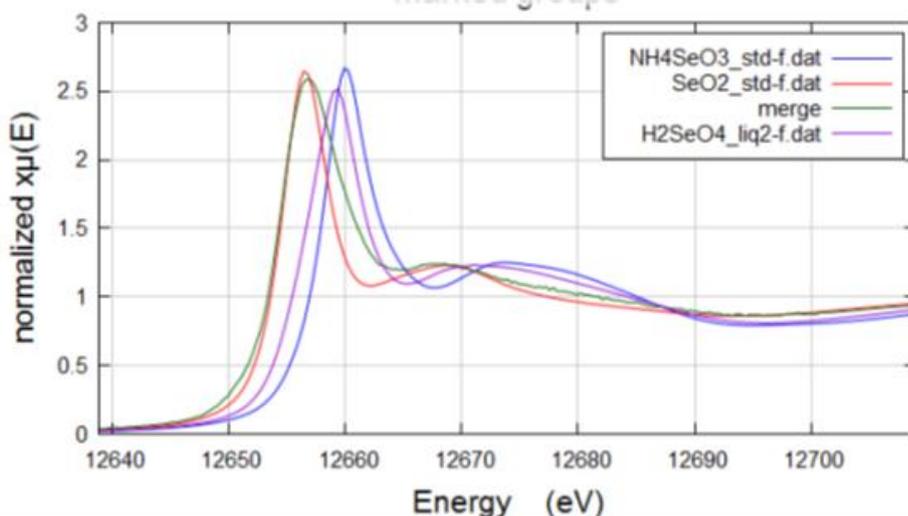


Fig. 1 SeのK吸収端 NEXAFS スペクトル

3つの標準スペクトルと比較すると、石炭粉末中に存在する Se は SeO_2 (セレン酸)のスペクトルとほぼ同じ位置にピークをもつため、Se の価数は概ね「+4 価」であると結論づけられる。しかしながら、スペクトルを良く見てみると、12660 eV 付近にかけてピークが裾を広げたように見える。これは、ピークの非対称性、すなわち 1 つの化学状態成分から成っているのではなく、他にも高エネルギー側にピークを有する化学状態成分も存在すると結論づけることが必要である。このエネルギー近辺にピークを持つ物質は「+6 価」の状態にある Se も存在していると考えの方が妥当であると思われる。

しかし、12670-12680 eV 付近のスペクトル中に見られる振動成分は、多くは含んでおらず大部分の成分は「+4 価」であると考えられる。これをよりはっきりさせるために数種類のスペクトルの成分割合の足し算で得られたスペクトルの再現を試みたが、満足できる結果は得られなかった。

4. 今後

今回の測定では、石炭粉末中に含まれる Se の濃度が XAFS 測定可能かどうかと、スペクトルの取得が可能であった場合には、大まかな Se の価数についての知見を得ることを目指していた。そういう意味では十分な成果が得られたと考えている。しかし、今後については燃焼前後のみならず燃焼によって生じた排気ガス中におけるガス成分中に含まれる Se 化合物の同定など、多くの研究課題が存在する。よって、今後は燃焼条件、石炭粉末の採掘環境(場所)、燃焼後の灰および発生ガス成分など、系統的に各条件の組み合わせを変えて XAFS 測定を行うことを予定している。