

流動層石炭ガス化技術

Fluidized Bed Coal Gasification Technology

石油代替エネルギーとして石炭への転換が推進され、当面の直接燃焼に加え、将来は流体エネルギーへの変換、すなわちガス化や液化が重要な役割を担うと考えられ、国内外で積極的な技術開発が行なわれている。

石炭ガス化の将来性に着目し、昭和49年以来サンシャイン計画の一環として、炭種の多様化と重質油の有効利用を図るハイブリッドガス化プロセスの開発を進めてきた。要素研究により、操作性に優れガス化効率の高い流動層ガス化炉と、タールを含む生成ガスの顕熱回収に有効な流動層熱交換器を開発し、その成果を基に昭和57年3月に7,000Nm³/dプラントを建設した。既に目標ゲージ圧30kg/cm²でのガス化試験を達成し、順調な運転研究が進められている。

本論文では要素技術の開発内容と、7,000Nm³/dプラントの運転結果の概要について述べる。

中 誠* Makoto Naka
宮谷和夫** Kazuo Miyatani
佐藤重夫*** Shigeo Satô
宮寺 博**** Hiroshi Miyadera

1 緒 言

石炭は世界的に豊富かつ広範に分布する化石燃料であるが、固体で取り扱いが不便なうえ、灰分、窒素、硫黄などによる環境汚染から、1960年代にはエネルギー源としての王座を石油に明け渡した。しかし、1973年から74年の第1次石油危機を契機に高まった石炭見直し気運は、1979年の第2次石油危機により急速な盛り上がりを見せ、我が国でも電力、セメント業界などで石炭への転換が積極的に進められてきている。

このように、石炭は石油代替エネルギーの重要な役割を担っているが、将来は直接燃焼にとどまらず、流体化した新しいエネルギーへの変換、すなわちガス化、液化技術が重要になると考えられる。中でもガス化は、ガスタービン・蒸気タービンによるコンバインドサイクルや燃料電池と組み合わせることによって微粉炭燃焼火力を上回る発電効率が期待されるほか、都市ガス、産業用燃料ガス、化学工業用原料ガス、鉄鋼用還元ガス、更には石油精製や石炭液化用の水素ガスなどの幅広い用途があり、石炭利用の中心技術になると考えられる。

我々は石炭ガス化の将来性に着目し、昭和49年度に発足したサンシャイン計画の一環として、高カロリーガス化技術の開発を進めてきた^{1)~3)}。以下、本技術開発の概要について述べる。

2 石炭ガス化炉の種類と特徴⁴⁾

石炭ガス化とは、基本的には酸素含有ガスによる石炭の部分燃焼で、熱分解や水蒸気・二酸化炭素によるガス化が併発する複雑な反応により、メタン、一酸化炭素、水素に富むガスに変換することである。

これら生成ガスの組成は、主として反応温度に支配される。また、ガス化炉も表1に示すように種々の形式があるため、製品ガスの用途に応じて反応温度及び炉形式を選定する必要がある。同表のうち固定層方式はLurgi炉に代表され、南アフリカ連邦のSASOLで大規模な商業プラントが稼動しているが、炉内の温度差が大きく低温域でタール分が発生しやすい。粉炭や粘結性炭には適用できず、処理量も小さいなどの問題がある。これに対し、流動層方式や噴流層方式は上記の欠点が改善でき、また、有効利用の必要がある石油残渣

油の処理も可能なため、米国、西ドイツを中心に技術開発が進められている。流動層方式は石炭粒子をガス化剤により気泡攪拌状態に維持するため、炉内温度は均一化され、副生タールが少なく、メタン収率が高い特徴をもっている。一方、噴流層方式はガス化剤による気流輸送状態で石炭を高温度でガス化し、石炭中の灰分を溶融スラグとして排出する方式で、気体及び固体の流れ状態は微粉炭燃焼と類似し、高温のためタールやメタンは発生せず、一酸化炭素と水素が主生成ガスである。いずれのガス化炉でも、高効率化と大容量化の要求に対処するため、高温・高圧技術の開発が課題となっている。

我々は発熱量の高い燃料ガスを製造するには流動層方式が適していると考え、また、昭和48年当時の石油需要見通しと環境問題から重質油(減圧残渣油)の有効利用が必要になると想定し、石炭と重質油の混合原料を加圧流動層方式でガス化するプロセス(ハイブリッドガス化プロセス)を提案し、技術開発を推進してきた。

3 石炭・重質油ハイブリッドガス化プロセス

3.1 プロセスの構成

本プロセスの概略フローを図1に示す。粉碎した石炭と重質油を加熱・攪拌してスラリー状態とし、ハイドロホイスト(本特集号の別掲載論文「ハイドロホイストによる石炭スラリー輸送と供給システム」参照)でガス化炉に供給し、熱分解を主とする反応によりガス化する。ここで副生するカーボン状物質(チャー)が下から吹き込まれる酸素、水蒸気により流動化されながらガス化され、この際発生する熱がガスとチャーを媒体として上部の熱分解域に伝達される。発生ガスは流動層熱交換器、冷却・洗浄塔を経てタール、ダスト、未反応水蒸気、二酸化炭素、アンモニア、硫化水素などが除去され、5,000kcal/Nm³以上の発熱量をもつクリーン燃料ガスが得られる。必要に応じてシフト反応、メタン化反応を行なえば、9,000kcal/Nm³以上のSNG(合成天然ガス)が得られる。

3.2 プロセスの特長

本プロセスは下記のような特長をもっている⁵⁾。

(1) 重質油の有効利用と使用炭種の拡大

* 新エネルギー総合開発機構石炭技術開発室 ** 電源開発株式会社技術開発部 *** 日立製作所機電事業本部
**** 日立製作所日立研究所 工学博士

表1 石炭ガス化炉の種類と特徴 3方式のガス化炉の比較と開発状況を示す。

方式	固定層	流動層	噴流層
炉形状			
特徴	処理量 適用炭種 用途(製品) 小(~800t/d) 狭(非粘結炭のみ) 燃料ガス, 化学原料, タール	中(500~2,000t/d) 中(粘結炭要前処理) 燃料ガス, 化学原料, 電力用ガス	大(1,000~3,000t/d) 広(高融点灰分炭不可) 化学原料, H ₂ , 電力用ガス
問題点	大容量化困難, タールトラブル	負荷変動, タールトラブル	信頼性(材料)
開発段階	工業化(Lurgi) Rhur 100	パイロット Winkler	パイロット Texaco
開発プロセス	Slagging Lurgi GE-GAS	HYGAS Synthane WH	C-E KBW Shell

粘結性をもつ石炭でも重質油と混合して炉内に噴霧供給することにより、流動層の凝集トラブルが低減し、また、微粉炭は重質油のバインダ効果により炉内粒子上に付着するため、飛散による効率低下が抑制される。

(2) 原料供給の高信頼性

原料をスラリ化し、ハイドロホイストで輸送することにより、加圧系に安定かつ定量的に供給でき、ポンプの摩耗トラブルが著しく軽減される。

(3) ガス化炉の制御性及びガス化効率の向上

1塔の流動層で原料の熱分解と残留チャーのガス化を行なうことにより、運転制御が容易で高発熱量のガスが高效率で

得られる。

(4) 生成ガスの顕熱回収とコーキング閉そくの低減

高温生成ガスを流動層熱交換器に通すことにより、ガス中に含まれる重質タール分を流動粒子上に捕捉し、伝熱管や生成ガス管路でのコーキングを抑制しながら、ガスの保有顕熱を回収できる。

4 要素技術の研究開発

昭和49年以来、本プロセスの要素技術開発を実施し、その成果を基に7,000Nm³/dプラントを設計した。要素技術としては、石炭・重質油スラリ用ハイドロホイスト⁶⁾、ガス化反応とガス化炉構造、流動層熱交換器について検討した³⁾ほか、ガス化材料の面でも基礎研究と7,000Nm³/dプラントでの実ガステストを行なっている。本論文ではガス化炉と流動層熱交換器について述べる。

4.1 ガス化炉

(1) ガス化炉内の反応⁵⁾

図2に示すように、1段の流動層内で石炭・重質油スラリの熱分解と、そこで副生するチャーの燃焼・ガス化(部分燃焼)を分離して起こさせることにより、メタン生成量とガス化効率の向上を図っている。太平洋炭とイラン系原油減圧残渣油を原料とした基礎試験の結果、図3(a), (b)に示すように、熱分解域の生成ガスは高温・高圧ほどメタンが増大し、副生タールは減少する。一方、チャーのガス化は高温ほど速やかに進むため、全体としてガス化効率^{*})を上げるには高温化する

※) ガス化効率には、カーボンガス化率と冷ガス効率がある。前者は原料中の炭素分がCH₄, CO, CO₂などのガスに転化した割合、後者は生成ガスと原料の発熱量の比である。両方とも高いことが望ましいが、カーボンガス化率が高くてもCO₂の生成量が多ければ冷ガス効率は低くなる。石炭ガス化では、冷ガス効率を上げることが最も重要である。

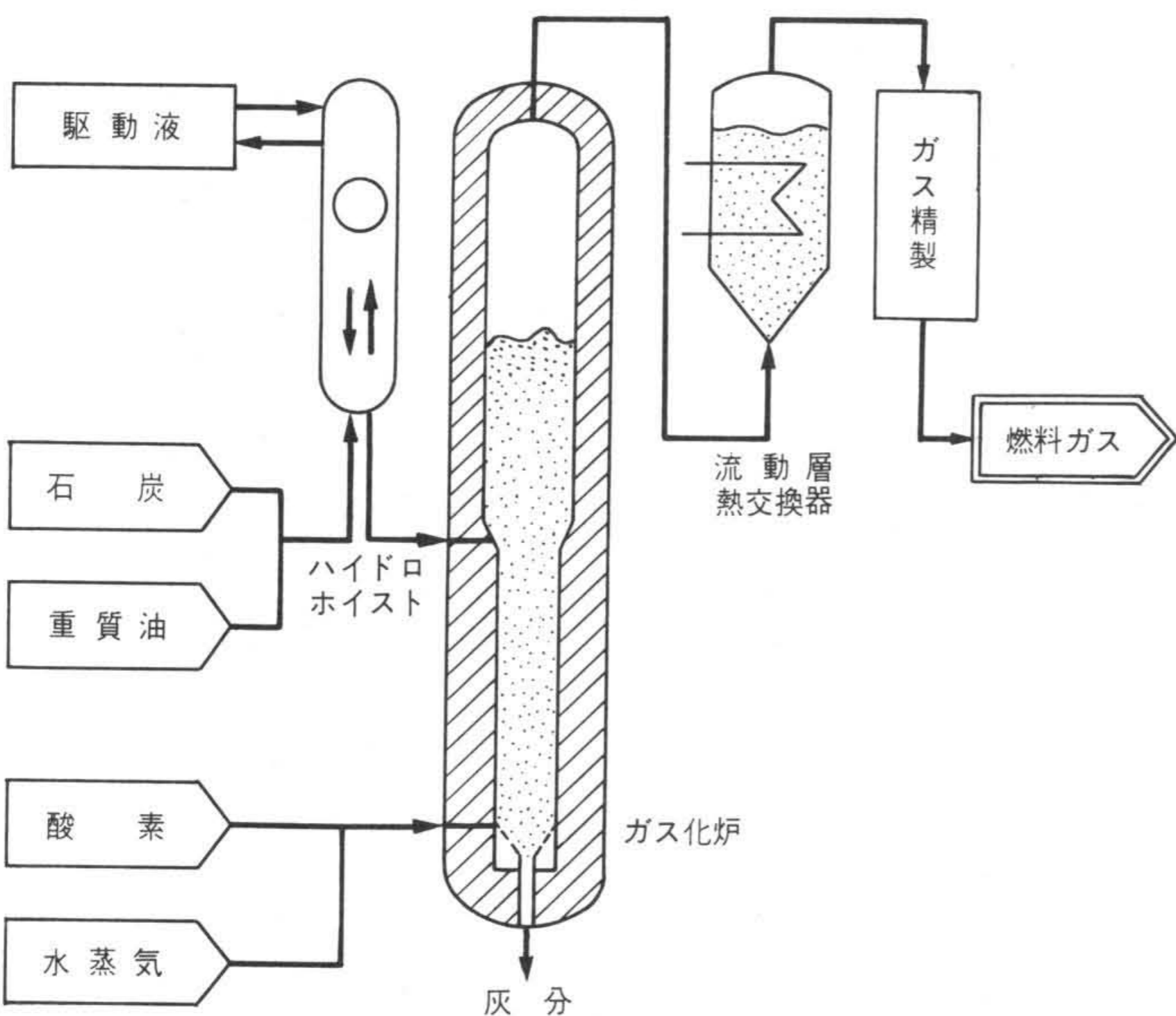


図1 石炭・重質油ハイブリッドガス化プロセス 石炭と重質油のスラリを酸素、水蒸気により高圧流動層ガス化炉で高カロリー燃料ガスに変換するプロセスで、サンシャイン計画により開発を進めてきた。

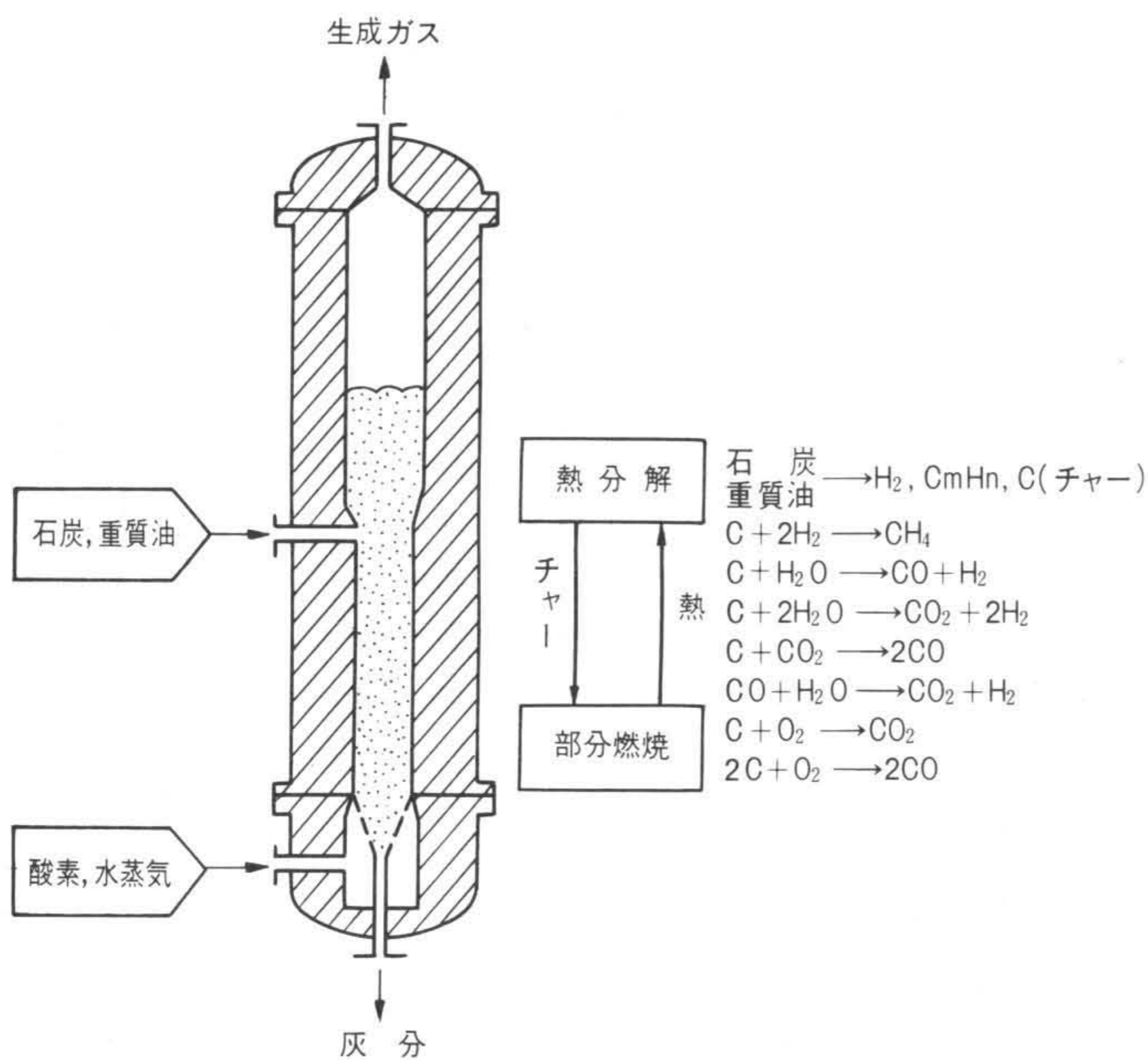
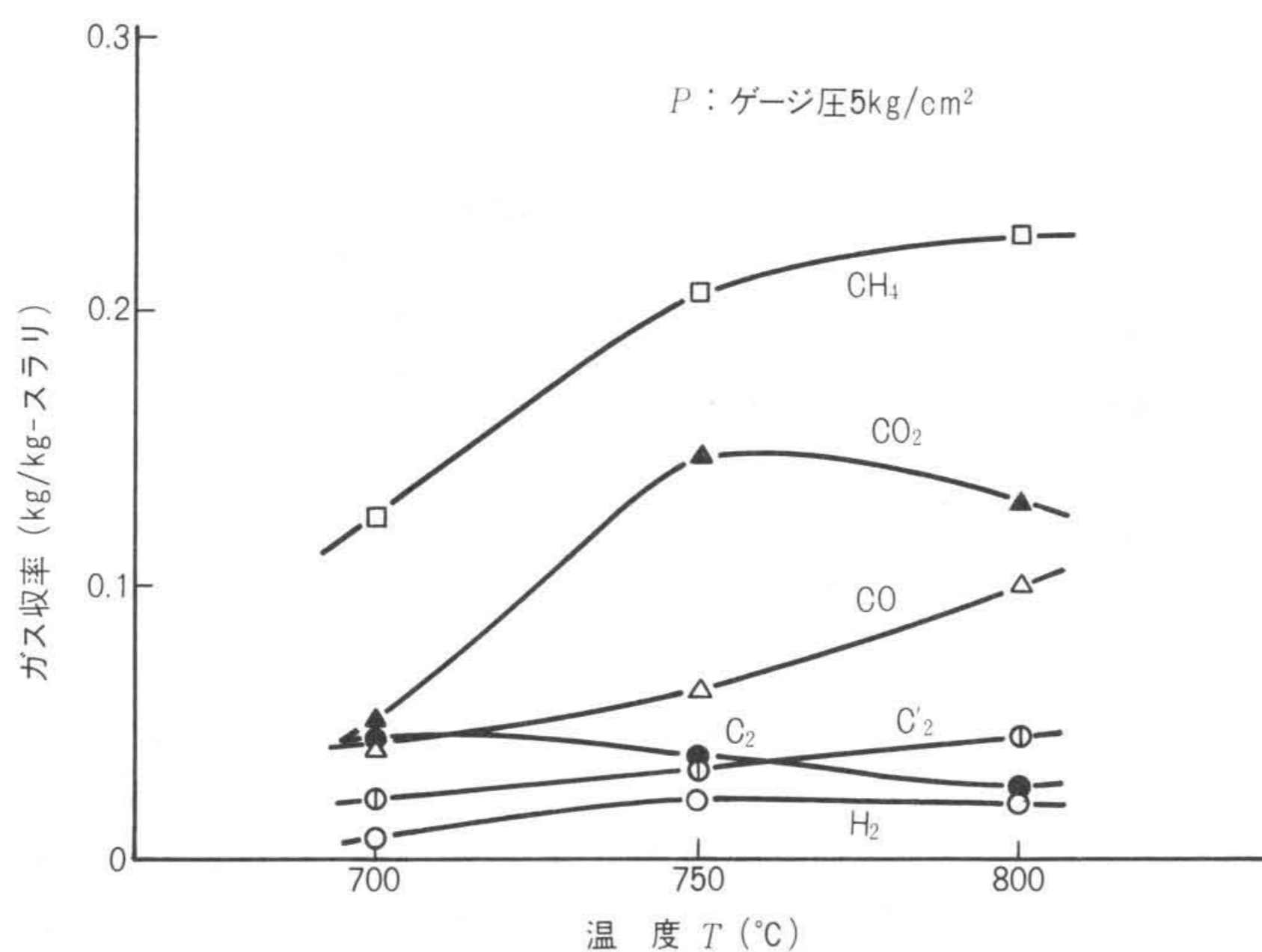
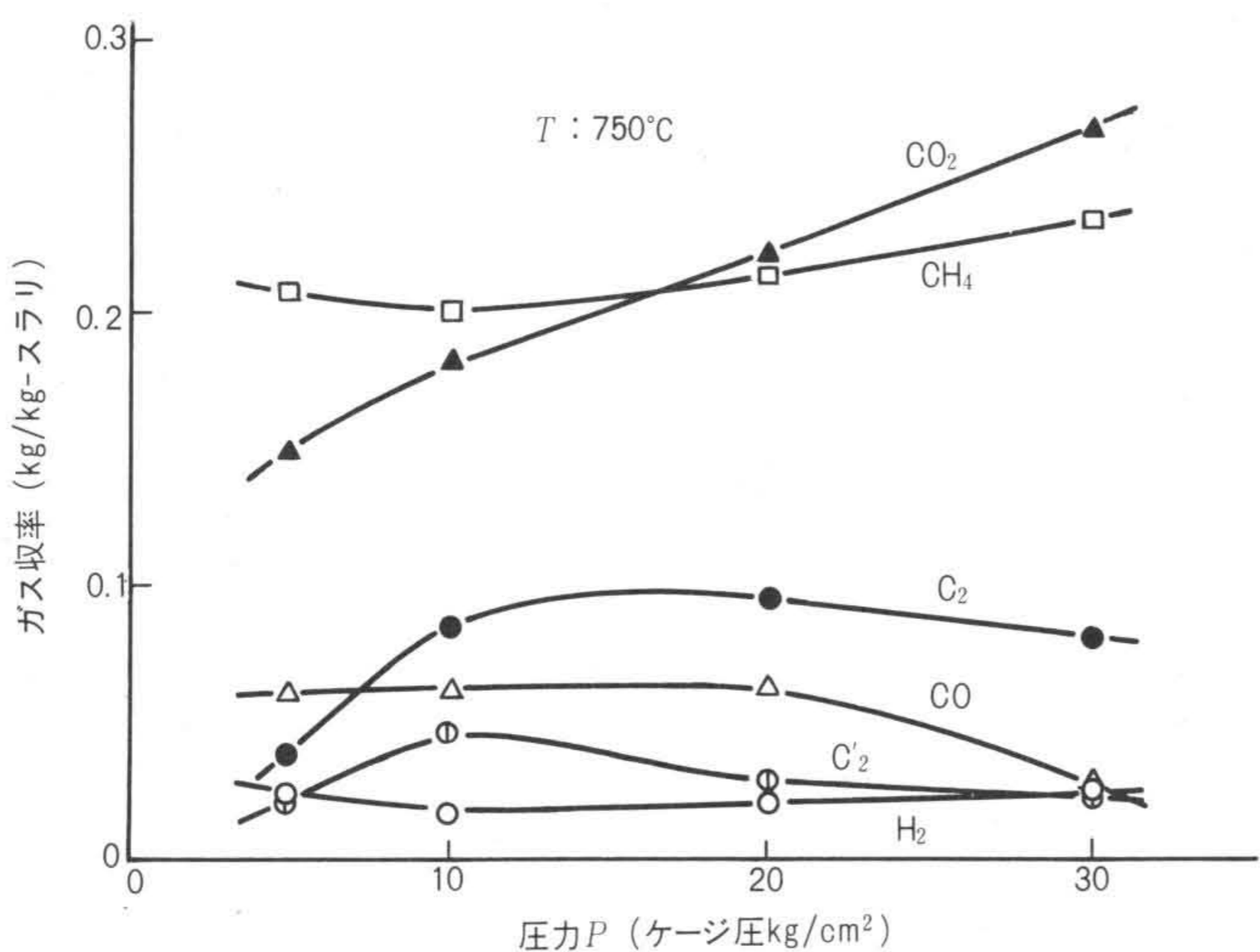


図2 ガス化炉内の反応 流動層ガス化炉内では、上段に吹き込まれた石炭・重質油混合原料が熱分解によりガス、タール、チャーに転換され、そのチャーが酸素、水蒸気、二酸化炭素により流動状態で燃焼、ガス化される。



(a) 温度の影響



(b) 圧力の影響

図3 熱分解ガス収率に及ぼす反応条件の影響 石炭・重質油スラリは、熱分解及び水蒸気分解によりCH₄、CO、CO₂、H₂などを生成するが、高温・高圧ほどCH₄は増大する。

ことが望ましい。

(2) ガス化炉構造⁷⁾

流動層ガス化炉では、酸素を含むガス化剤の吹込口付近でチャーの激しい燃焼反応により灰分の溶融・固化、いわゆるクリンカーの生成が起こりやすく、ガス化炉運転上の重大な障害となる。ガス化効率向上の面からは炉内温度の高温化が好ましいが、クリンカーは生成しやすくなる。

局所高温化によるクリンカー生成を防止するには、過剰の水蒸気を供給すればよいが、冷ガス効率は低下する。この対策としては水蒸気量を抑えガス化剤吹き込み部での粒子混合を激しくして熱の拡散を促進する必要がある。流動層コールドモデル装置により、ガス化剤分散板の形状やガス流速と粒子挙動の相関を調べた結果、ガス流が旋回して吹き込まれるように開孔した頂角120度のコーン形旋回流分散板が、その直上の粒子を激しく動かす作用のあることが明らかになった。

この知見をもとに、内径300mmのガス化炉をもつ小型試験装置(ゲージ圧3 kg/cm²、処理量10~25kg/h)を用い、図4に示す3種の分散板を試作してクリンカー生成挙動を比較検討した。その結果を図5に示す。酸素供給量の増大に伴いチャーの燃焼量が増すため、クリンカー生成を抑えるには水蒸気供給量を増さなければならないが、塔径を絞った120度旋回流形分散板は水蒸気増加割合が最も少なく、ガス化炉の効率化に有効であることが確認された。

クリンカートラブル対策のほか、ガス化炉内のチャーの性状と飛散量などについてもこの小型試験装置で検討し、流動層高を安定に維持できるガス化炉塔径と運転条件を求めた。

(3) ガス化炉の性能向上対策

上記の結果を基に、7,000Nm³/dプラントのガス化炉を設計したが、小型試験装置による要素研究としては、更にガス化炉の性能向上法を検討している。例えば、冷ガス効率の向上には水蒸気を更に低減する必要があるが、分散板だけの使用では限界があるため、酸素をノズルから多段に吹き込み燃焼領域を拡大し、局所高温化を抑制する方法を開発した。また、国内炭で非粘結性の太平洋炭のほか、ボタン指数1~3の中国炭や南アフリカ炭などの重質油スラリを原料としたガス化試験を実施し、従来の流動層ガス化方式に比べ炭種の適用範囲が広いことを確認した。更に、重質油を含まず、石炭を単独でガス化する技術も確立し、流動層ガス化炉の用途を拡大できる見通しを得ている。

4.2 流動層熱交換器⁷⁾

本プロセスは重質油からのメタン生成量が多いため、石炭単独のガス化に比べ発熱量の高いガスが得られる特徴をもつ

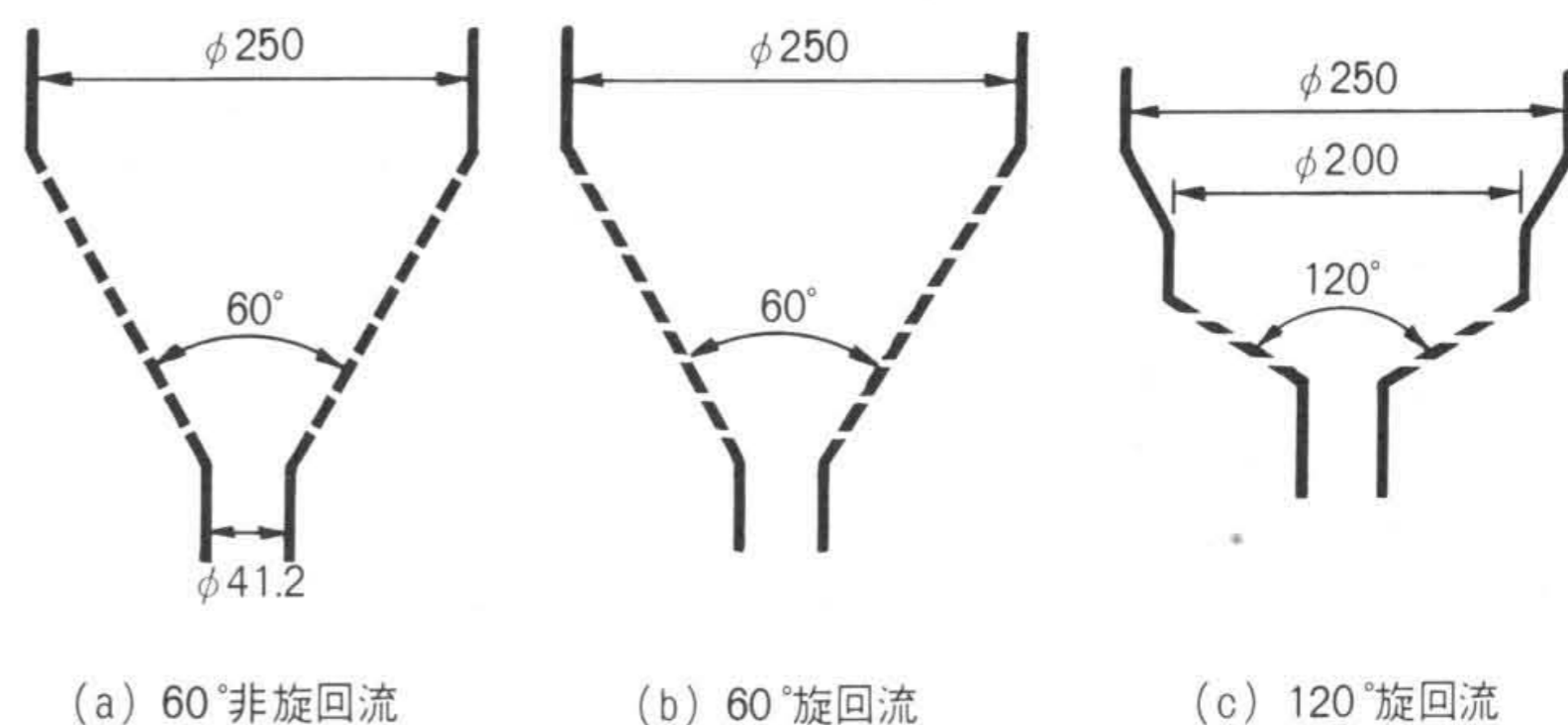


図4 小型試験装置で使用したガス化剤分散板 内径300mmの小型試験装置ガス化炉の底部ガス化剤分散板として、頂角、径、ガス吹込ノズル方向の異なる3種の分散板を試作し、クリンカー生成防止に有効な形状を調べた。

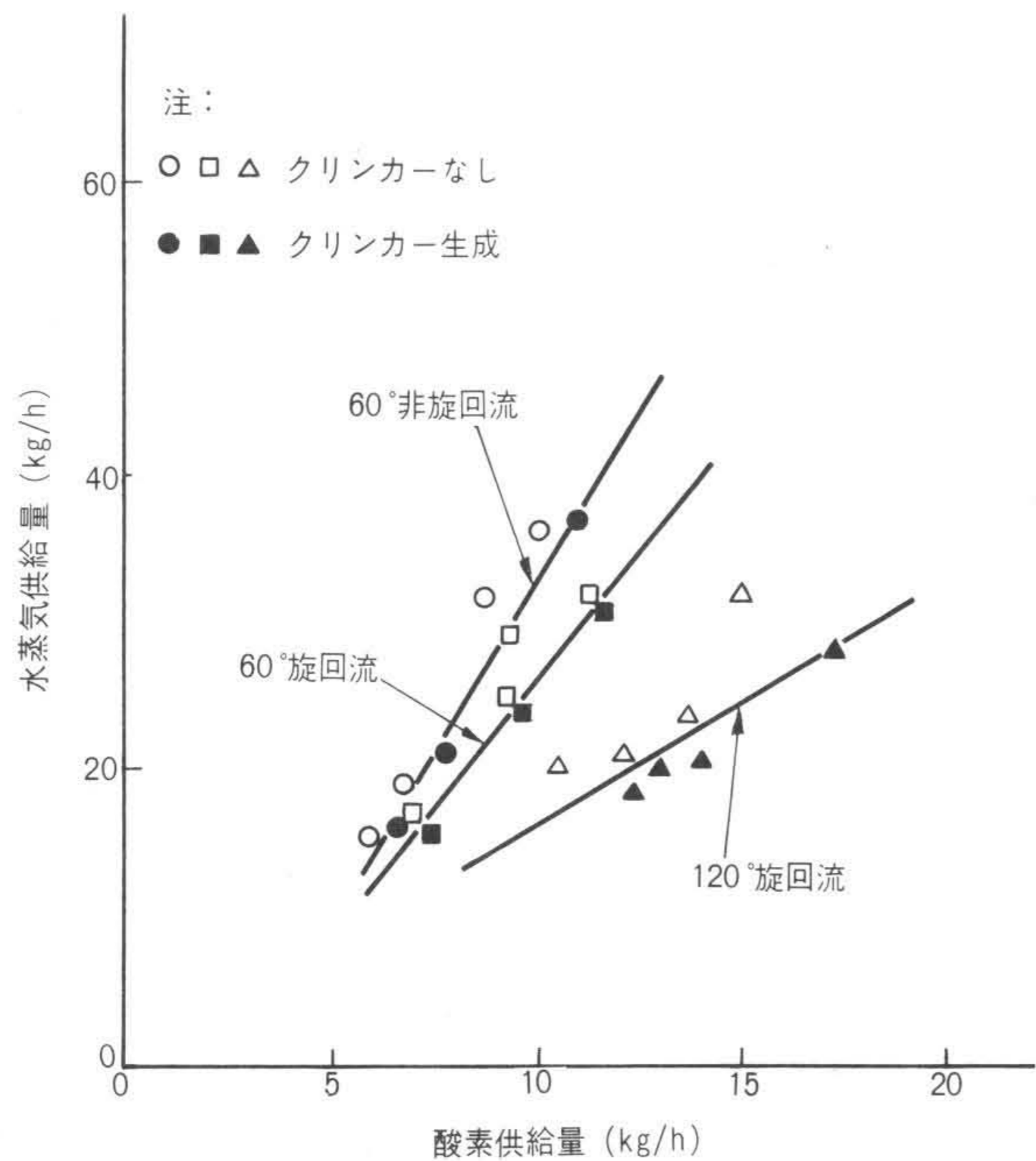


図5 クリンカー生成条件の比較 ガス化剤の酸素を増すほど燃焼による発熱が大きくなるため、水蒸気供給量を増大させる必要があるが、120度旋回流形分散板は、少ない水蒸気でもクリンカーが生成しにくく、クリンカー抑制効果が大きい分散板といえる。

が、タールも副生する。また、ガス化炉から出るガスは800°C以上なのでその顕熱の有効利用が必要であるが、ガス中のタール分が熱交換器の伝熱面に凝縮してコーク化し、ついにはガス流路を閉そくするという問題がある。そこで特定部分に積極的にコークを析出させて、管路や伝熱管への付着を防止しながら熱回収を図る方法として、流動層熱交換器に着目した。

常圧の小型流動層試験装置(内径200mm)に流動粒子としてケイ砂を入れ、別に設けたガス化炉からのタール含有ガスを導入し、ケイ砂上に付着したコーク量を示したのが図6(a)である。ケイ砂上には着実にコークが付着し、層温度の影響は少ないが、430°C以下では粒子と粒子の凝集による流動悪化が認められた。これは粒子上に凝縮した重質タールが低温では速やかにコーク化しないため、450°C程度が適正温度である。同図(b)は重質タール捕集率と流動層高の関係を示したもので、本試験装置では層高を1mとれば沸点450°C以上の重質タールの

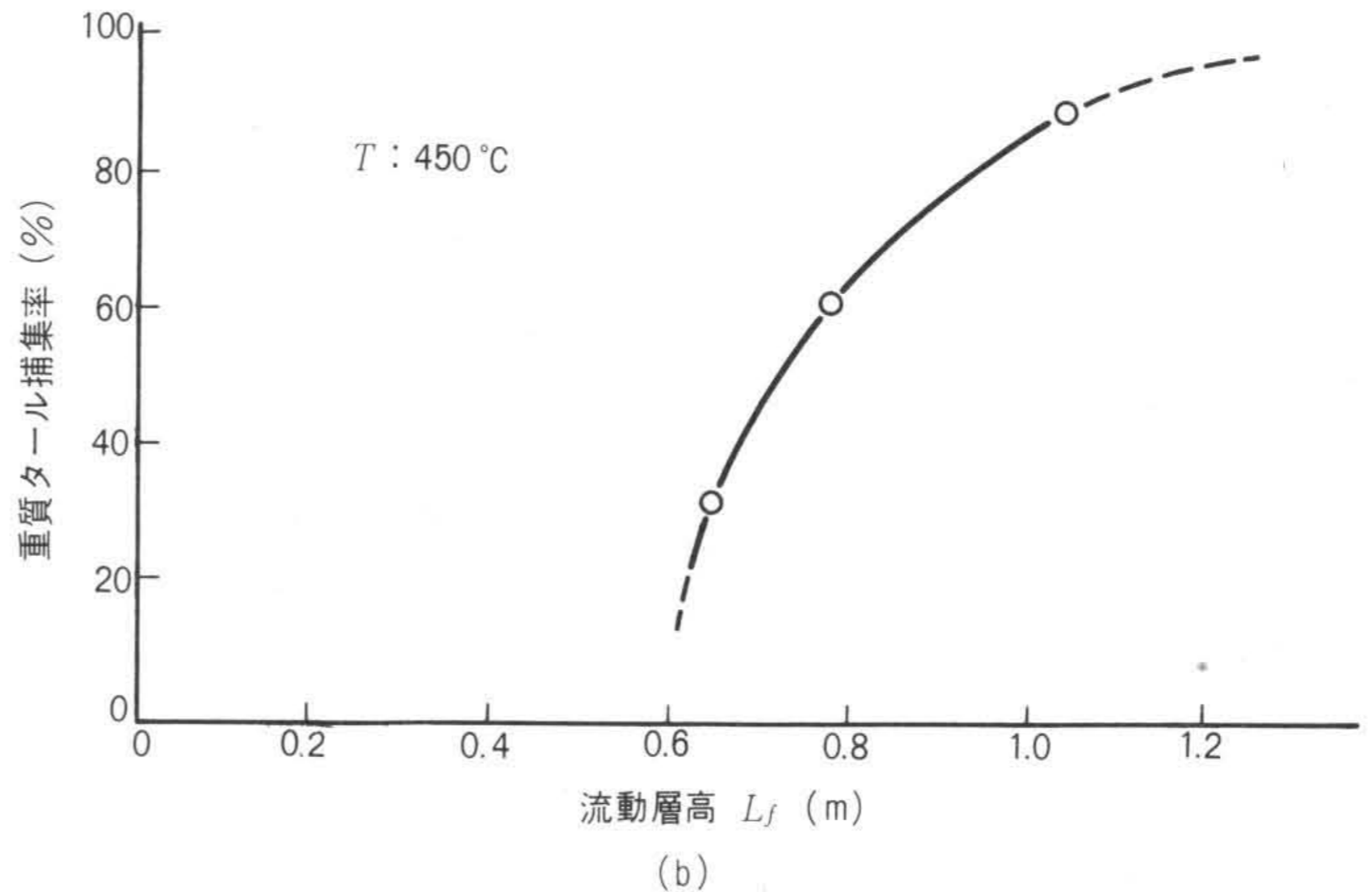
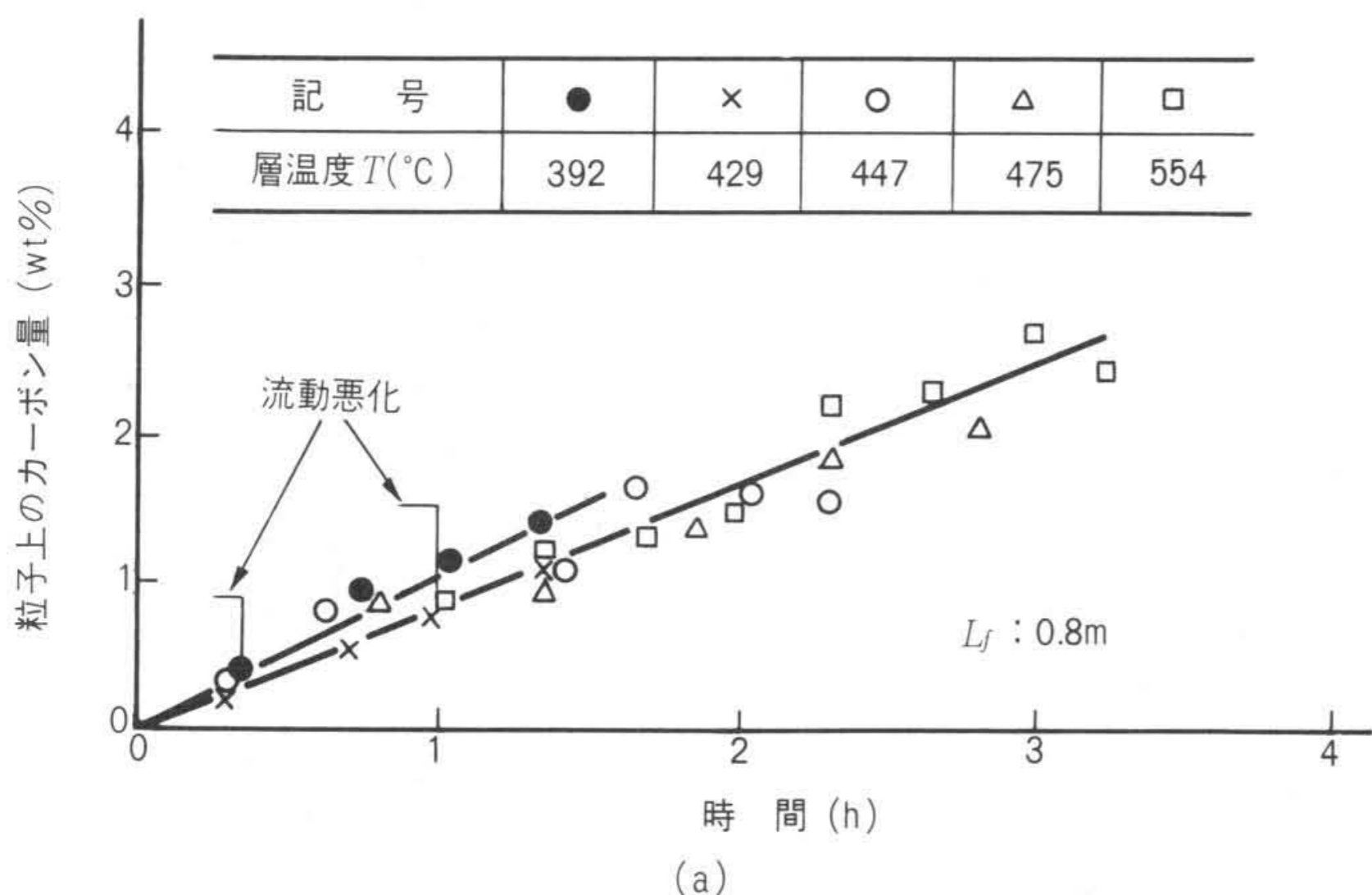


図6 流動層熱交換器のタール捕集性能 (a) ケイ砂の流動層中にガス化炉で生成したタール含有ガスを通すことにより、重質タール分がケイ砂上に付着しコークとなるが、層温度が低いと凝集現象が起こる。(b) 流動層高を増すとタール捕集率は増大する。

90%が粒子上に捕捉される。

一方、流動層内の温度制御に重要な総括伝熱係数は、上記装置の流動層内に挿入したU字形伝熱管の内部に流す水の量とその温度差から求めた。流動粒子の性状によっても異なるが、ガス相との総括伝熱係数の5~10倍(200~500kcal/m²·h·°C)の値が得られ、熱交換器として優れた特性をもっていることが明らかになった。

これらの基礎データを基に、先の小型試験装置用の流動層熱交換器を製作してガス化試験を行ない、冷却洗浄工程で回収したタールの性状を調べた結果、重質成分が流動層熱交換器で捕集・除去されていることが確認された。また、試験終了後の解放・点検により、従来激しかった水洗浄塔入口部のコーキングが著しく低減され、伝熱管表面にもコークはほとんど付着しておらず、流動層熱交換器の有効性が実証された。

5 7,000Nm³/dプラント⁸⁾

5.1 プラントの概要

以上の要素研究成果を集約して、昭和54年度から福島県いわき市に7,000Nm³/dプラントを建設した。プラントのフローを図7に、外観を図8に示す。本設備は石炭前処理工程、原料湿式供給工程、ガス化・冷却熱回収工程、水・油状物分離工程、ガス精製工程、媒体再生・水蒸気回収工程、ユーティリティ設備などから構成される。ゲージ圧30kg/cm²で12t/dの石炭・重質油スラリをガス化し、5,000kcal/Nm³以上の発熱量の精製ガスをメタン換算で約7,000Nm³/d製造し、冷ガス効率70%を目標としている。本プラントのガス化炉と流動層熱交換器を図9に示す。

5.2 運転研究状況と試験結果

昭和57年3月のプラント完成後、予備運転を経て8月にゲージ圧10kg/cm²で初のスラリガス化試験を実施した。懸念されたガス化炉内でのクリンカー生成や、ガス化炉以降のコーキング閉そくの問題もなく、72時間の連続運転を達成できた。10月以降は目標ゲージ圧30kg/cm²、処理量12t/dでのガス化試験に入り、当初原料供給ノズルの対向壁にコーク塊が生成するなどの諸問題が発生したが、原料スラリの分割供給など逐次対策を講じ、58年8月の時点で目標70%に近い冷ガス効率を得ている。以下、試験結果の概要について述べる。

(1) 炉内温度

ガス化炉内の温度は、流動層の上下で予想に反して非常にその差が小さい。上部では熱分解を主とする吸熱反応、下部

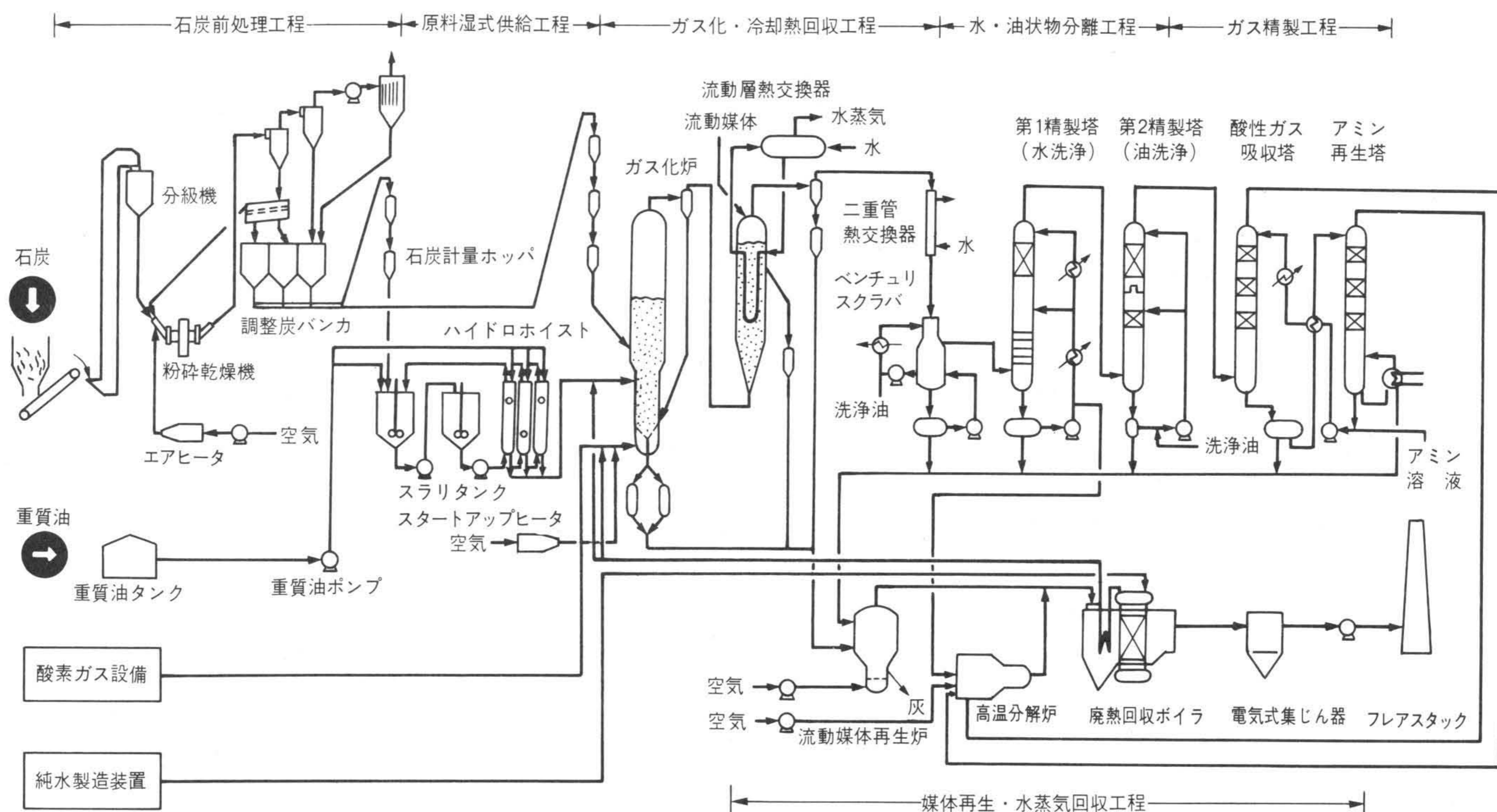


図7 7,000Nm³/dプラントのフロー 要素研究をもとに設計、製作した7,000Nm³/dプラントは、石炭前処理工程、原料湿式供給工程、ガス化・冷却熱回収工程、水・油状物分離工程、ガス精製工程、媒体再生・水蒸気回収工程などから成り、スラリー12t/dをガス化し、メタン換算7,000Nm³/dのガスを製造する設備である。

ではチャーの燃焼による発熱反応が起こっているにもかかわらず温度差が小さいのは、チャーの層内循環が活発で流動層の温度均一効果が優れていることを示している。また熱分解域が高温化しやすいため、タール副生量が減少し、コーキング問題の低減にも有効であることが確認されている。

(2) 生成ガスとガス化効率

図10に示すように、酸素供給量を増すほど炉内温度が上昇し、水素、一酸化炭素、二酸化炭素が増大するが、熱分解で生成するメタン量の変化は少ない。また、ガス化効率はカーボンガス化率も冷ガス効率も高温ほど上昇する。しかも、こ

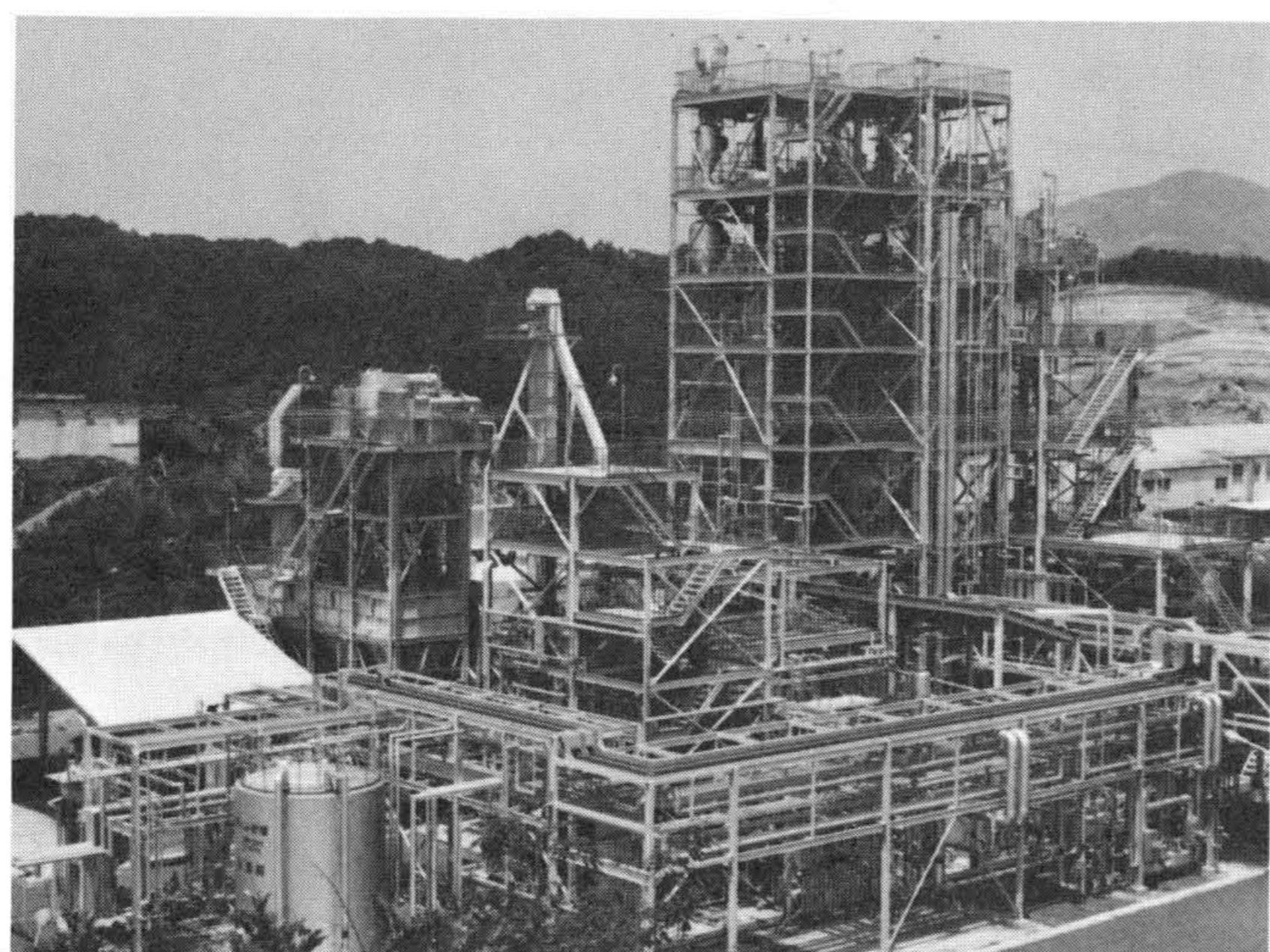


図8 7,000Nm³/dプラントの外観 福島県いわき市で稼働中の7,000Nm³/dプラントの外観を示す。中央の40mの架台に、ガス化炉と流動層熱交換器が設置されている。新エネルギー総合開発機構の委託で、電源開発株式会社が主体となり、日立グループが支援する体制で運転研究が進められている。

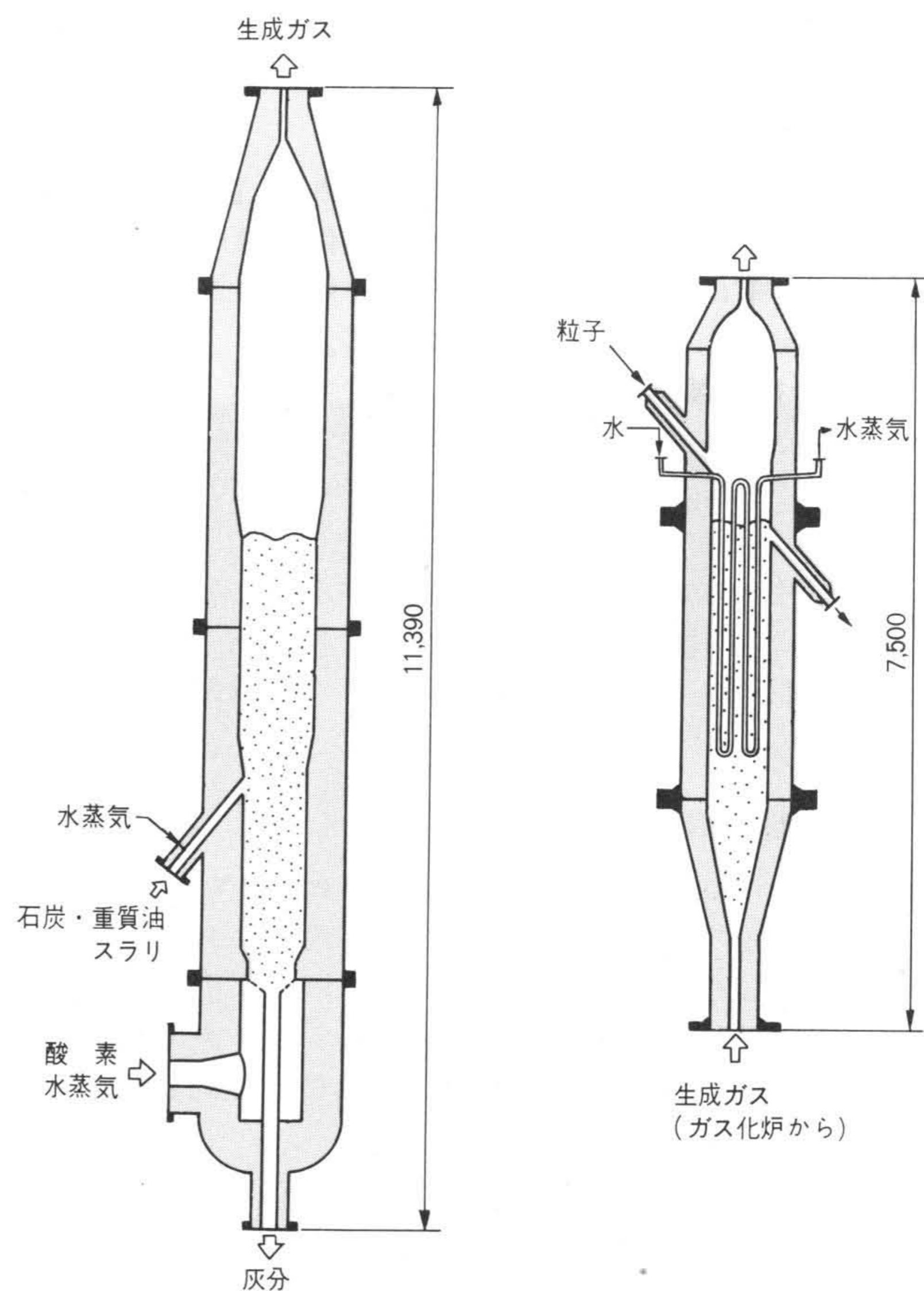


図9 7,000Nm³/dプラントのガス化炉と流動層熱交換器 ガス化炉は高さ11mで、下部に対して上部ほど内径を拡大し、クリーナーの生成と粒子の飛散を抑制している。底部には120度旋回流形分散板を設置している。流動層熱交換器は高さ7.5mで内部にU字形伝熱管をもっている。

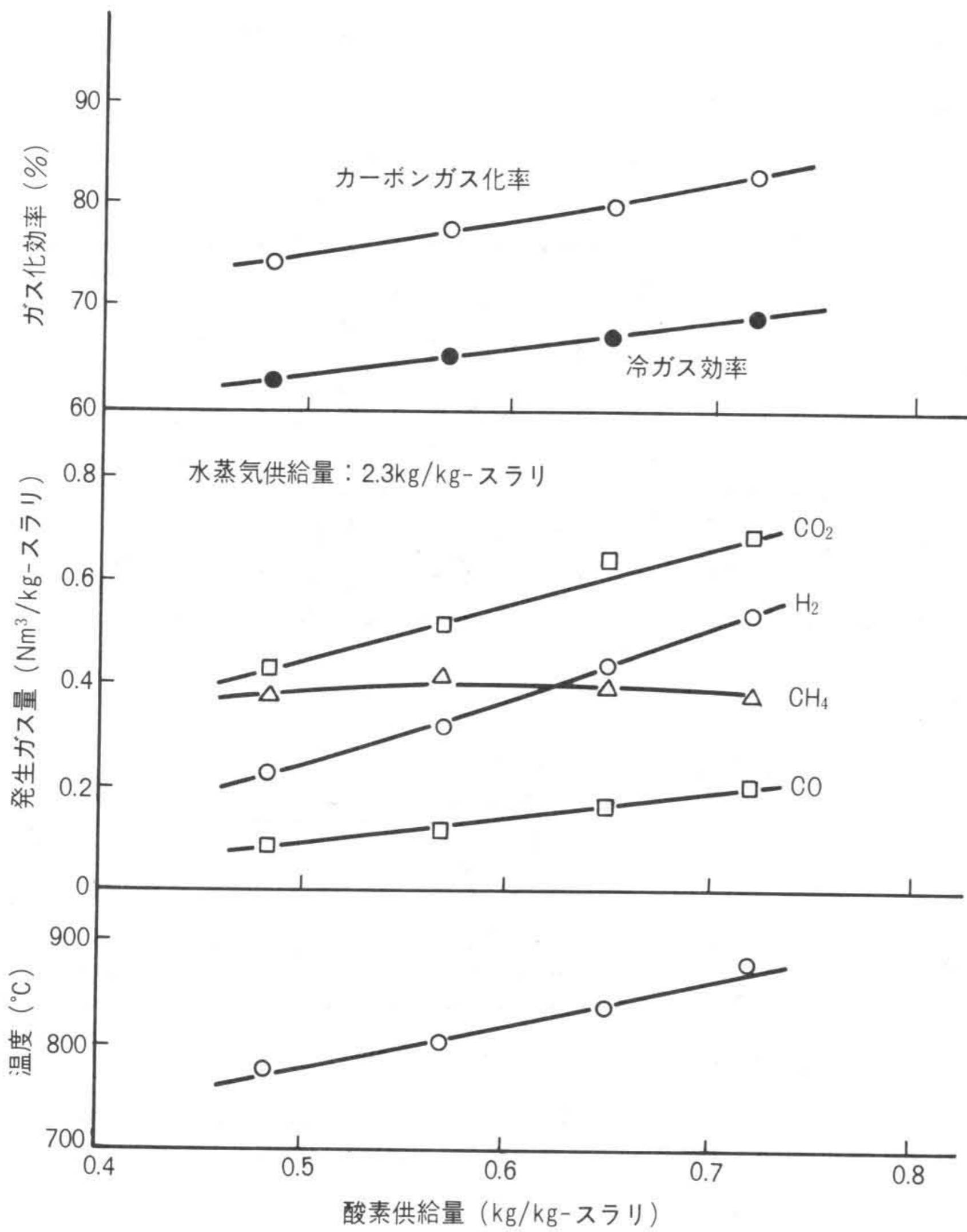


図10 ガス化に及ぼす酸素供給量の影響 酸素供給量を増大させると炉内温度は上昇し、H₂、CO、CO₂の生成量が増すがCH₄の変動は少ない。ガス化効率は温度とともに増大する。

のガス化効率は水蒸気供給量に影響され、図11に示すように、同一のカーボンガス化率でも水蒸気供給量が少ない条件ほど冷ガス効率は高く、過剰な水蒸気を用いるとガスの顕熱となる熱量が多くなることを示している。

5.3 今後の展開

7,000Nm³/dプラントは昭和60年度まで運転研究が続けられる予定である。この間、(1)水蒸気量の低減と炉内の高温化によるガス化効率の向上及びユーティリティコストの低減、(2)長時間連続運転の達成による機器信頼性の実証、(3)原料種の多様化など適用範囲の拡大、などを検討し、流動層ガス化炉の高性能化とスケールアップデータの蓄積を図ることになっている。

6 今後の課題と展望

本論文でこれまで述べてきたように、流動層ガス化技術は基礎開発を完了し、スケールアップ段階にある。7,000Nm³/dプラント試験も2年目で目標に近い成績が得られ、これをベースに35万Nm³/dプラントのフィージビリティスタディを実施しており、技術的には実用化可能な段階に着実に近づいている。

なお、流動層石炭ガス化技術は高カロリー燃料ガスの製造にとどまらず、合成ガス製造への展開も可能である。一般にこれらの分野には噴流層が適していると言われ、本特集号に取り上げているように、噴流層ガス化炉の開発も進めている。しかし、高融点灰分炭では灰分の熔融スラグ化が極めて困難になるため、この場合は流動層ガス化炉を適用できるように、これら分野にも対応可能な技術開発を進める予定である。

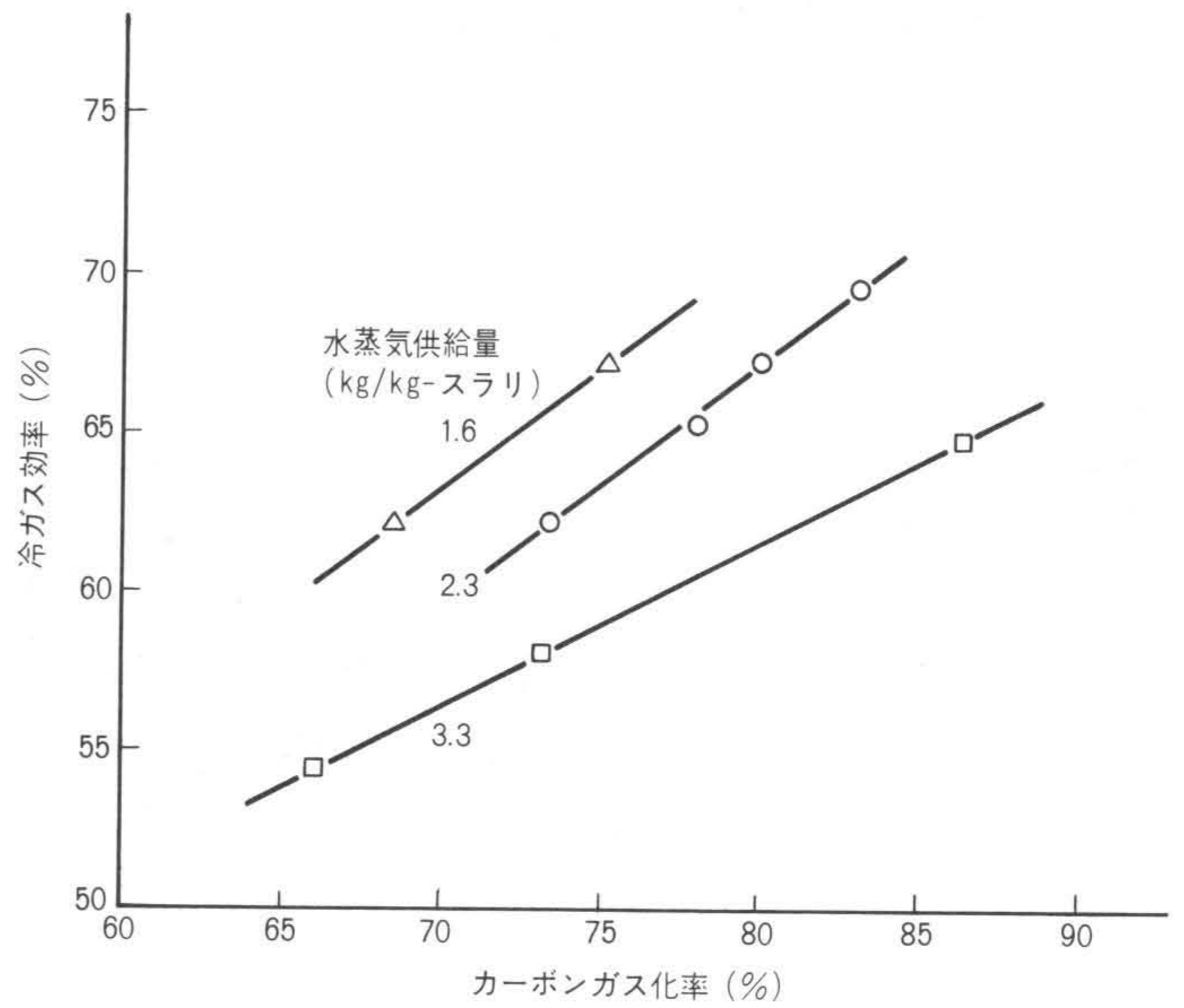


図11 ガス化効率に及ぼす水蒸気供給量の影響 カーボンガス化率を上げれば冷ガス効率も増大するが、同一のカーボンガス化率でも水蒸気供給量が少ないほど冷ガス効率は高い。冷ガス効率を上げるには、水蒸気の供給量を低減することが重要である。

7 結 言

以上、流動層石炭ガス化の要素技術開発の概要と、それらの成果を基に建設した7,000Nm³/dプラントの運転状況について述べた。7,000Nm³/dプラントは、当初の課題であったゲージ圧30kg/cm²での高圧ガス化試験を達成し、冷ガス効率も目標の70%に近づいており、開発促進の見通しが得られた段階である。今後も更にガス化効率を向上させるとともに信頼性の向上及び用途拡大を目的とした運転研究を継続し、実用化技術の確立を図る予定である。

終わりに、本研究開発に御指導、御支援をいただき、また本論文の発表を御承認いただいた通商産業省工業技術院の寺西研究開発官に対し厚く御礼申し上げる。

参考文献

- 1) 石炭利用・発電プラント技術総合資料集：フジテクノシステム、p. 288(昭55-5)
- 2) 平戸、外：石炭利用新技術(流動層ボイラと石炭ガス化)、日立評論、62、4、307~312(昭55-4)
- 3) H. Miyadera, et al.: The Development of High Btu Gasification Plant in Japan — Hybrid Gasification, ICCR Conference (Oct. 1982)
- 4) 平戸：石炭ガス化技術の展望、省エネルギー、33、1~8(昭56-3)
- 5) 宮寺、外：石炭・重質油混合原料の加圧流動ガス化特性、日誌、1980、990~998(昭55-6)
- 6) 奥沢、外：石炭・重質油スラリーの流動特性、ターボ機械、8、707~714(昭55-12)
- 7) 宮寺、外：石炭・重質油ハイブリッドガス化プラントの開発、エネルギー・資源第2回研究発表会講演論文集、106~111(昭58-4)
- 8) 津留、外：石炭・重質油ハイブリッドガス化プラントの運転研究、化学工学協会室蘭大会研究発表講演要旨集、49~50(昭58-7)