

噴流層石炭ガス化技術

Entrained Bed Coal Gasification Technology

石炭の噴流層によるガス化技術は、発電用及び化学原料用石炭ガス発生技術として実用化が期待されている。このため、日立製作所内に加圧噴流層PDUを設置し、噴流層ガス化炉に関する基礎研究を進めている。

現在までに、石炭やガス化剤(酸素又は空気)の供給量、ガス化炉への供給位置などを変えてガス化効率に及ぼす影響を調べるとともに、ガス化炉のスラグ流下条件や環境適合性などについても検討し、噴流層方式が将来の新しい高性能ガス化炉として有望であることを確認した。

今後はPDUによる基礎研究を継続するとともに、スケールアップのための要素研究を行ない、パイロットプラントの実現に向かって、着実な研究開発を進めたい。

小山俊太郎* Shuntarô Koyama

田村善助** Zensuke Tamura

佐藤重夫*** Shigeo Satô

有崎虔治**** Kenji Arisaki

1 緒言

石炭ガスの用途は燃料、化学原料などと幅広く、石油の代替源として有望であり、世界的に各種ガス化技術の開発が進められている。石炭ガス化技術は1930年代に始まるが¹⁾、最近の技術開発では、石炭の高効率ガス化とともに、将来の石炭大量消費時代に向かって大容量化、良環境化、運転性能向上などが主要な課題である。

日立製作所では、通商産業省工業技術院及びNEDO(新エネルギー総合開発機構)から委託を受けて、昭和49年から高カロリーガスの製造を目的とした流動層ガス化炉の開発を進めている。しかし、近年注目されてきた石炭ガス化複合発電への適用や、合成ガス、水素などの製造には、微粉炭を酸素又は空気気流中で石炭灰の溶融温度以上の高温で反応させる噴流層ガス化炉が適していると考えられるようになった。この情勢に対処するため、日立製作所では昭和56年10月、自社内に石炭供給量0.5t/dのPDU(Process Development Unit: 噴流層ガス化基礎試験装置)を設置し、研究開発に着手した。

このガス化炉の開発では、運転制御が容易で高ガス化効率の噴流層ガス化を対象として、ガス化効率、ガス化炉構造、ガス化条件などの研究を実施した。現在までのPDUの延べ運転時間は、約2,200時間である。

本論文では、このPDUによる噴流層石炭ガス化炉の開発概要について述べる。

2 ガス化炉の開発課題

噴流層ガス化炉を実用化するためには、なお多くの課題が残されている。その中で特に重要と思われるものを図1に示す。

まず、ガス化効率が高いことが重要である。ガス化効率には、CO、CO₂などのガスに転化した石炭中カーボンの割合を表わすカーボンガス化率と、生成ガスと石炭の発熱量の比率を表わす冷ガス効率がある。なお、カーボンガス化率と冷ガス効率の差は生成ガスの顕熱の割合とみなすことができる。ガス化炉では、両方の効率を同時に高める必要があるとともに、生成ガスの顕熱をいかに回収し有効に利用するかが、プラント全体の熱効率を向上する上で重要である。

次に運転制御が容易でなければならない。特に発電用ガス

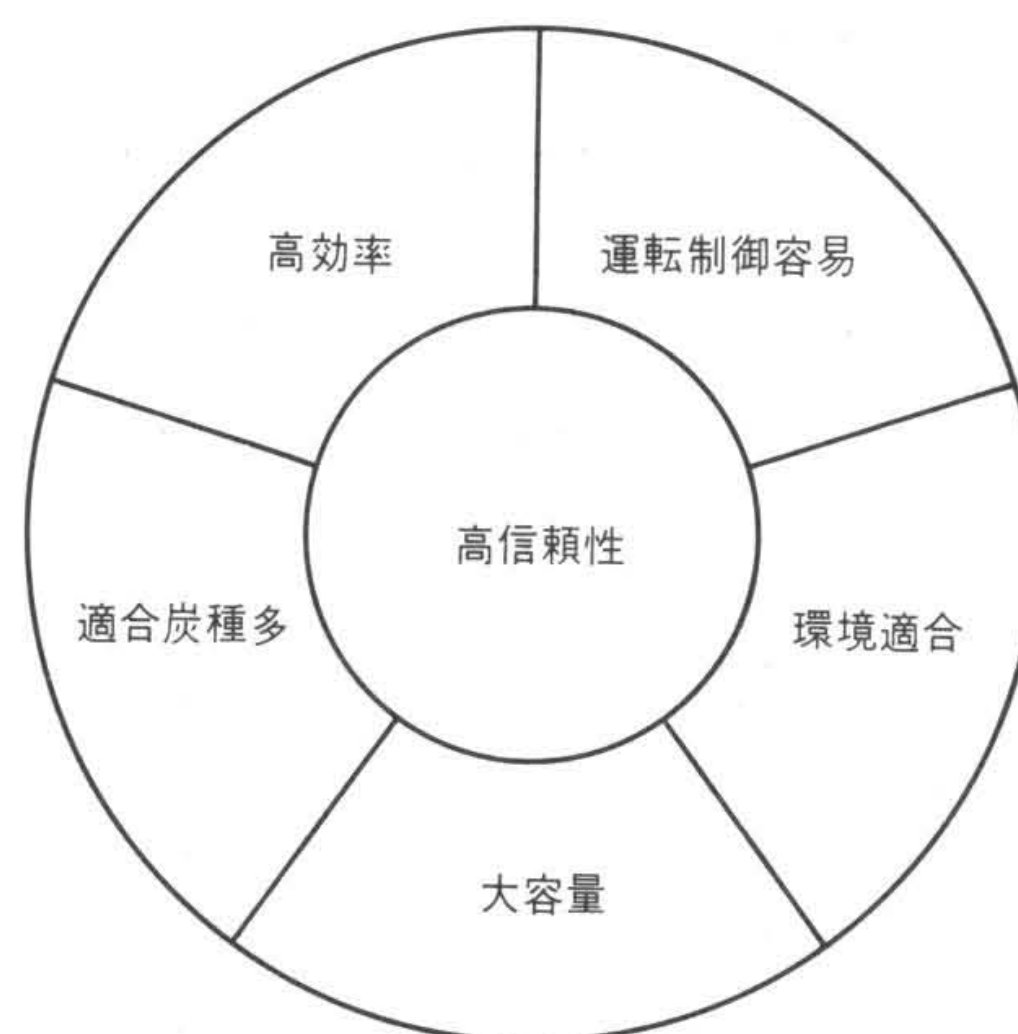


図1 ガス化炉の必要条件 ガス化炉実用化のためには従来以上に幅広く、かつ信頼性の高い技術の開発が必要である。

化炉では起動、停止が頻繁に行なわれ、また負荷変動が容易なことが必要である。噴流層方式ではボイラでの微粉炭燃焼と同じように、微粉炭が気流中で数秒以内に反応するので操作条件の変更に対する応答が速く、運転が容易である。しかし、一方どのような運転状態でも石炭灰を溶解し溶融スラグとして安定に排出する条件は確保する必要がある。

我が国では石炭を海外に頼らねばならぬため、ガス化炉はできるだけ多くの炭種が処理できることが望ましい。石炭の性状はガス化効率、運転性に影響するが、噴流層方式ではスラグの安定流下が必要なことから、特に灰の溶融特性が重要である。噴流層ガス化炉としては、灰の融点が高い石炭でも安定に処理できることが望まれる。

環境への適合性は我が国では特に重要である。噴流層は約1,300℃以上の高温でガス化するため、タール、有機物は大部分分解され、また灰はスラグとして排出されるため環境適合性に優れたガス化炉と言える。

石油から石炭への転換が進展した場合、石炭ガス化プラントは現在の100万kW級火力発電所あるいは1～2万kl/d級石油コンビナート相当の規模が必要と予想され、石炭処理量は1～2万t/dになると考えられる。このような大容量プラント

* 日立製作所日立研究所 ** 日立製作所電力事業本部 工学博士 *** 日立製作所機電事業本部 **** バブコック日立株式会社呉工場

のガス化炉としては、できるだけ単基容量を大きくし、運転、保守及び経済性を向上させねばならない。そのためには、ガス化炉を加圧形として石炭処理量を増大させるとともに、高い熱負荷に耐える炉構造、及び炉材料の開発が必要である。

最後に、上記の各機能が低い信頼性をもっていることが必要であり、このため技術の積み重ねと、パイロットプラントによる検証が必要である。

日立グループでは、これまでの石炭ガス化技術、ボイラ技術などを駆使して高性能噴流層ガス化炉を開発するため、PDUによる実験研究を進め、幅広い基礎データの蓄積を図っている。本論文は、PDUによる噴流層ガス化炉の基本特性検討結果について述べたものである。

3 噴流層石炭ガス化試験

3.1 PDU及び試験方法

図2にPDUのフローを、図3にその全景を示す。装置は石炭粉碎、乾燥及びロックホッパなどの石炭前処理・供給装置、ガス化炉、脱塵装置、ガス焼却炉及び制御、測定、データ解析装置から成る。

塊炭は粉碎機で200メッシュ($74\mu\text{m}$)以下70~80wt%にし、常圧ホッパへ輸送する。次に常圧ホッパから加圧ホッパへ送り、フィーダで流量調節し、窒素ガスによる気流輸送でガス化炉へ供給する。ガス化炉は外径0.7m、高さ5.5mで、上部、下部2箇所に設けた旋回バーナにより微粉炭を供給する。また、熔融スラグはガス化炉の底(スラグタップ孔と称する。)から取り出し、水により急冷して、スラグ分離器から排出する。ガス化炉からの生成ガスはサイクロン、バグフィルタを通して除塵し、焼却して大気へ放出する。本装置の石炭処理量は0.5t/dで、最高ゲージ圧 9 kg/cm^2 までの試験が可能である。

起動時にはプロパンバーナにより所定温度まで昇温し、その後石炭とガス化剤を供給する。ガス化試験のデータはすべてマイクロコンピュータに入力し、解析できるようにしている。本装置では、サイクロンで回収したダストを再びガス化炉に供給するダスト循環方式と、供給しない非循環方式の試

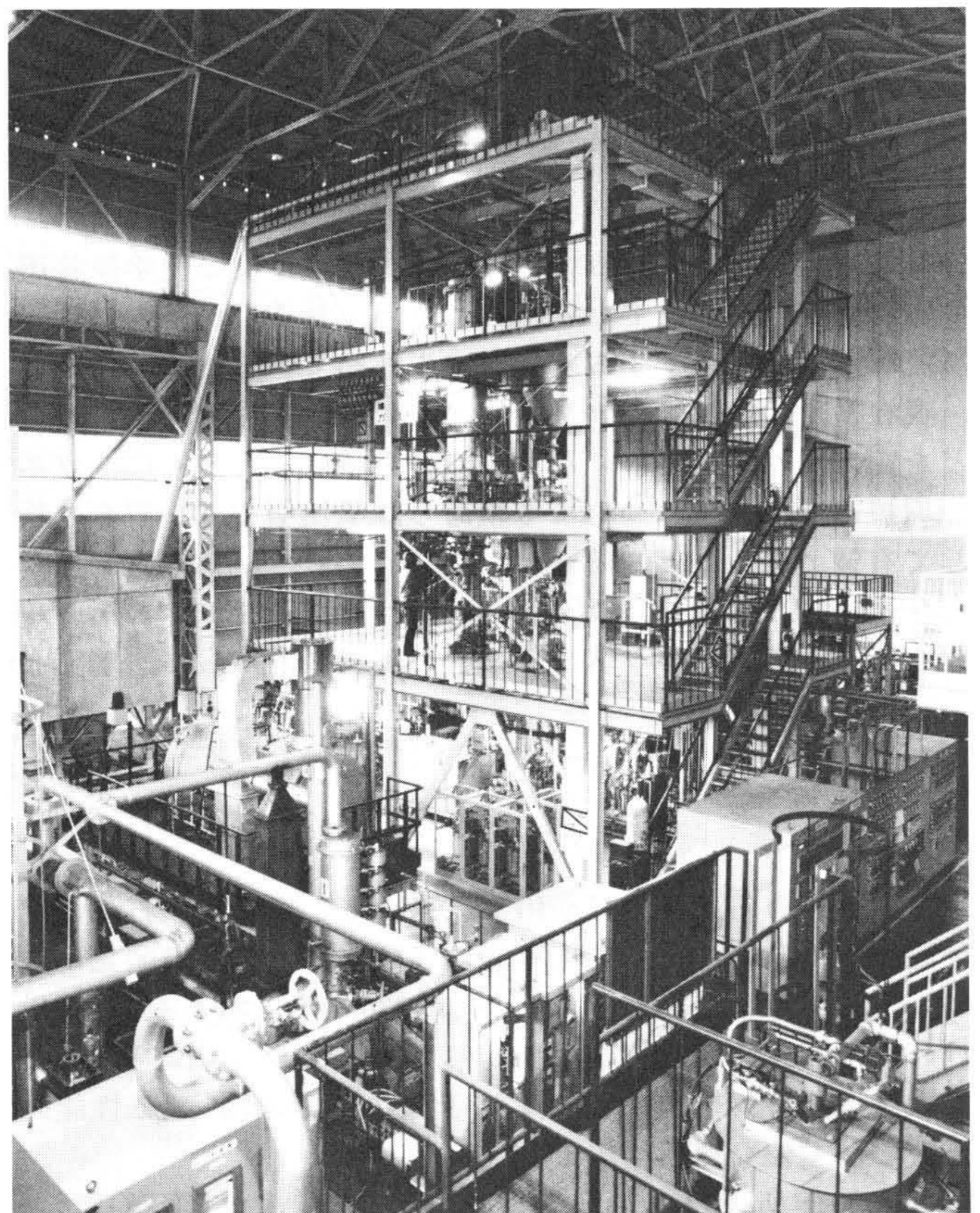


図3 PDUの全景 PDUはデータ処理装置及び石炭前処理装置を除き、幅6m、長さ8m、高さ13mの架台にすべて収められている。

験が可能である。本報では、ガス化炉性能評価の基準となるダスト非循環方式で、ガス化剤、石炭供給量、石炭供給位置などを変え、ガス化特性、スラグ流下特性を調べた結果について述べる。なお、石炭は国内の太平洋炭を使用した。その性状を表1に示す。

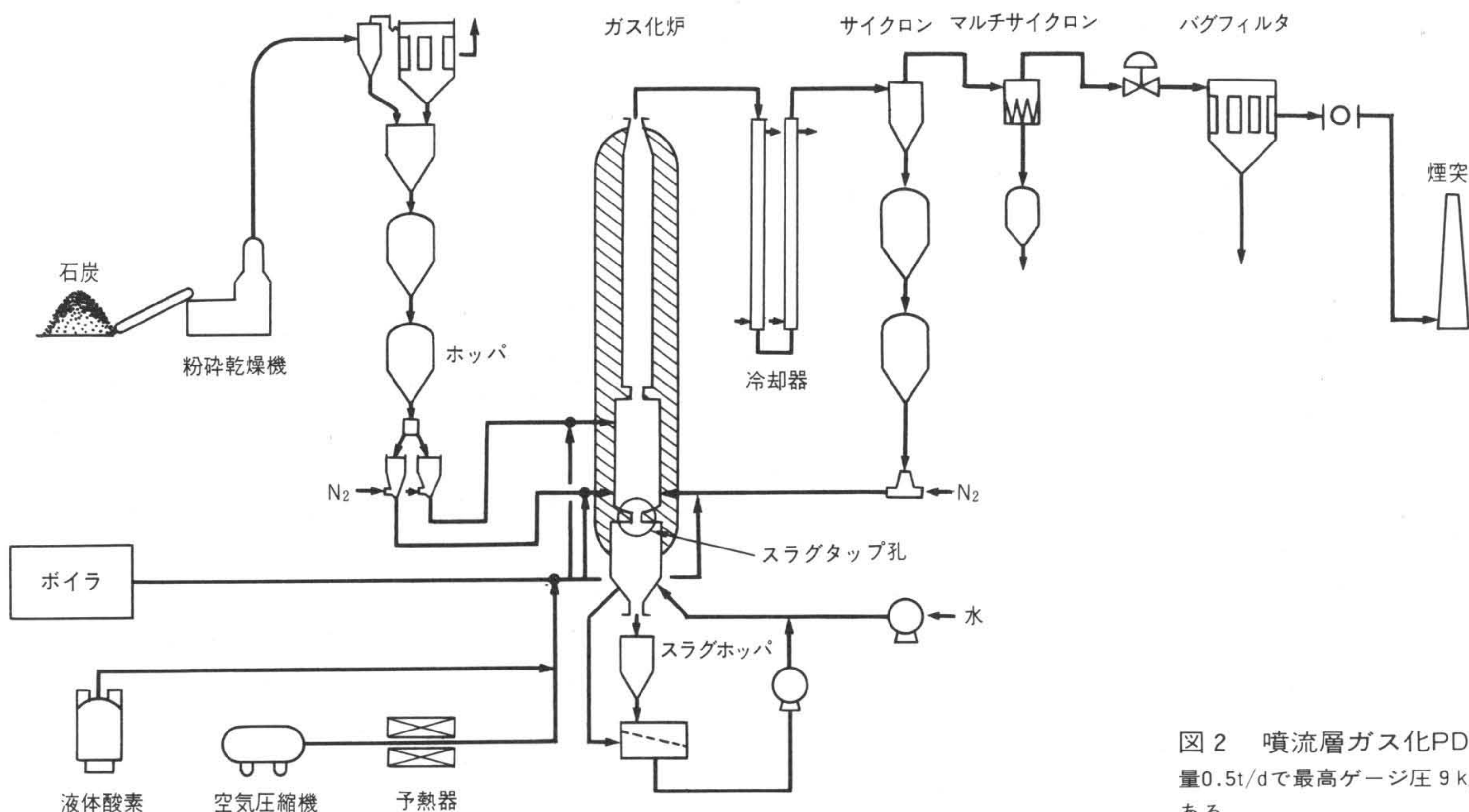


図2 噴流層ガス化PDUのフロー 石炭処理量0.5t/dで最高ゲージ圧 9 kg/cm^2 までの試験が可能である。

表1 太平洋炭の性状 ガス化試験に用いた石炭の性状を示す。

項 目	性 状
工業分析値 (wt%)	水 分：5.3 揮 発 分：40.8 固定炭素：39.5 灰 分：14.4
元素分析値 d.a.f(wt%)	C：77.3 H： 6.1 N： 1.4 O：14.9 S： 0.3
灰熔融温度 還元雰囲気 (℃)	軟 化 点：1,170 溶 融 点：1,290 流 動 点：1,350

3.2 ガス化特性

3.2.1 酸素比の影響

噴流層ガス化炉では、石炭は部分燃焼反応によってH₂、COに転化すると同時に、発生する熱によって高温となり、石炭中の灰分が溶融してスラグとなる。この過程で、生成ガス量やガス化温度に最も強く影響する因子は、酸素供給量とされている²⁾。このようなガス化の基本特性を把握するため、まず、PDUの下部バーナだけから原料を供給して実験した。一般にガス化炉の1箇所から原料を供給してガス化する方法を、1段ガス化法と呼ぶ。

図4に、ガス化炉温度及びガス化効率に及ぼす酸素供給量と石炭供給量の比(以下、酸素比と称する。)の影響を示す。酸素比を大きくするとガス化炉温度は上昇する。カーボンガ

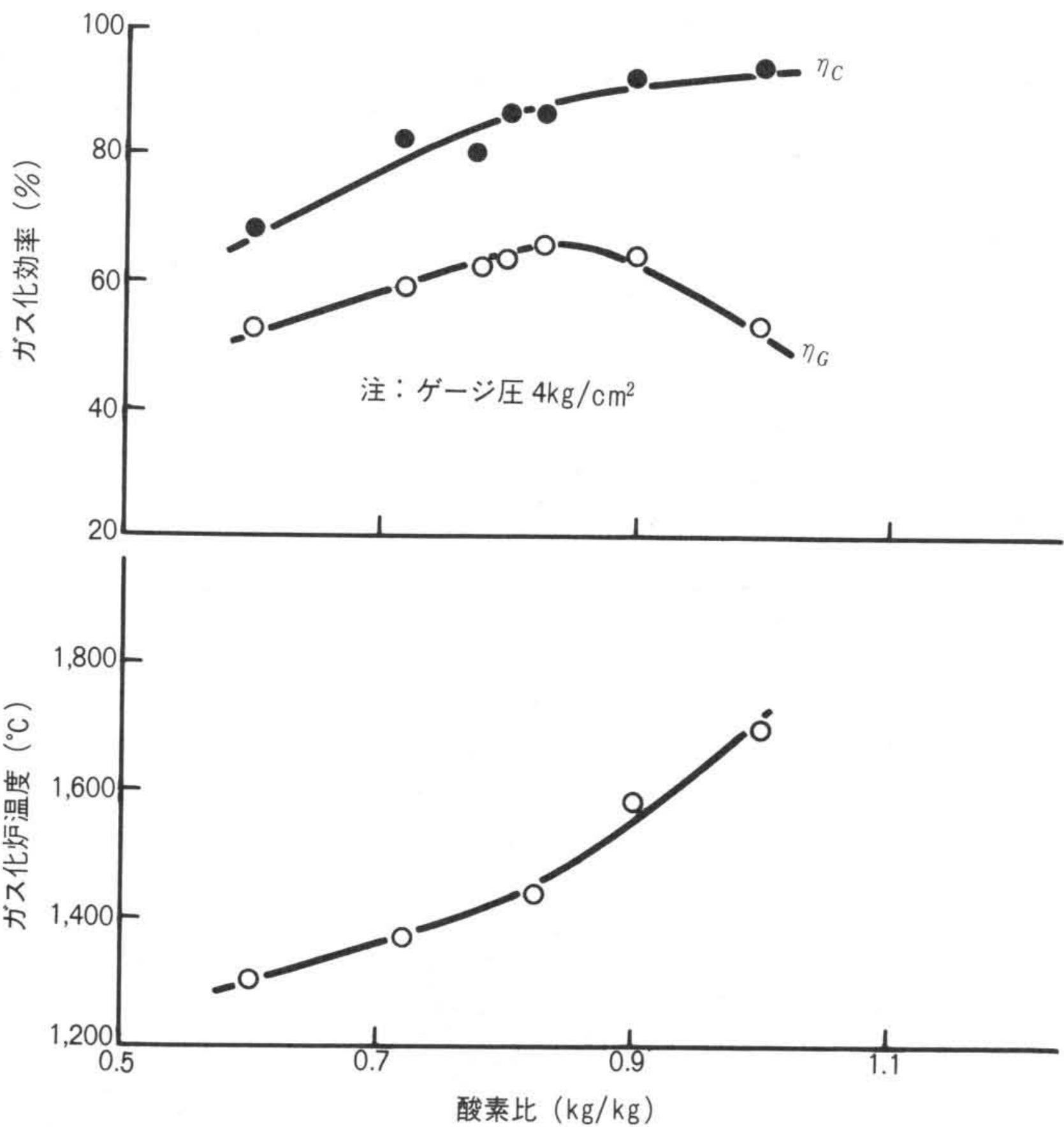


図4 ガス化特性に及ぼす酸素比の影響(1段ガス化法) 冷ガス効率η_Gを最大にする酸素比が存在する。効率的にはこの条件が最適である。

ス化率η_Cも増大するが、冷ガス効率η_Gは酸素比=0.81kg/kg付近から低下する。これはある酸素比から、生成ガス中のCO₂濃度が増大し、ガス発熱量が低下するためである。ガス化炉の温度は高いほど石炭灰を溶融しやすく、またスラグを流しやすい。したがって、スラグ安定流下とη_C向上の面からは酸素比は大きいほどよいが、反面η_Gが低下するという問題がある。また酸素比を大きくすることはユーティリティコストの増大にもなる。このように1段ガス化法では、スラグ安定流下と高ガス化効率を同時に達成できない場合を生じる。

3.2.2 石炭分配比の影響

以上の結果から、噴流層ガス化炉では酸素比を小さくして冷ガス効率η_Gを高く、しかもスラグを安定に流すことが最も望ましいと言える。そのためには、酸素比をある値に抑えても、スラグが流れにくくなる部分だけ高温に保つことができればよい。そこで、ガス化炉下部には石炭、酸素の一部を、酸素比が高くなるように供給し、スラグが冷えて流れにくくなるスラグタップ孔付近を局部的に高温にし、残りの石炭、酸素はそれより上部に供給する方式について検討した。このような方式で、ガス化効率も1段ガス化法を上回ることができれば、望ましい噴流層ガス化炉に近づくことになる。

図5に石炭、酸素をガス化炉の上部と下部に分配して供給した場合のガス化効率を示す。同図の横軸は石炭の全供給量に対する上部供給量の割合(石炭分配比と称する。)を表わす。石炭分配比=0は下部だけに石炭を供給した結果で1段ガス化法に相当する。上部、下部合わせたときの酸素比を0.8kg/kg一定とし、上部の酸素比を小さく、下部の酸素比を大きくするように調節しながら石炭分配比を増大すると、カーボンガス化率η_C、冷ガス効率η_Gとも増加し、石炭分配比=0.5の場合最大となった。このとき、η_C=93%、η_G=70%で、1段ガス化法に比べて、カーボンガス化率及び冷ガス効率共に7%向上した。このように酸素、石炭の分配比を適切にすると、酸素比が一定でもガス化効率が向上することを確認した。表2にガス化効率が最大になった場合の生成ガス組成を示す。

一方、図6にスラグの流下状態を示したが、酸素、石炭を分割した条件では、このような安定な流下が可能であった。これは下部の酸素比を大きくすることによって、スラグタップ孔付近を1,400℃以上に保つことができたためである。

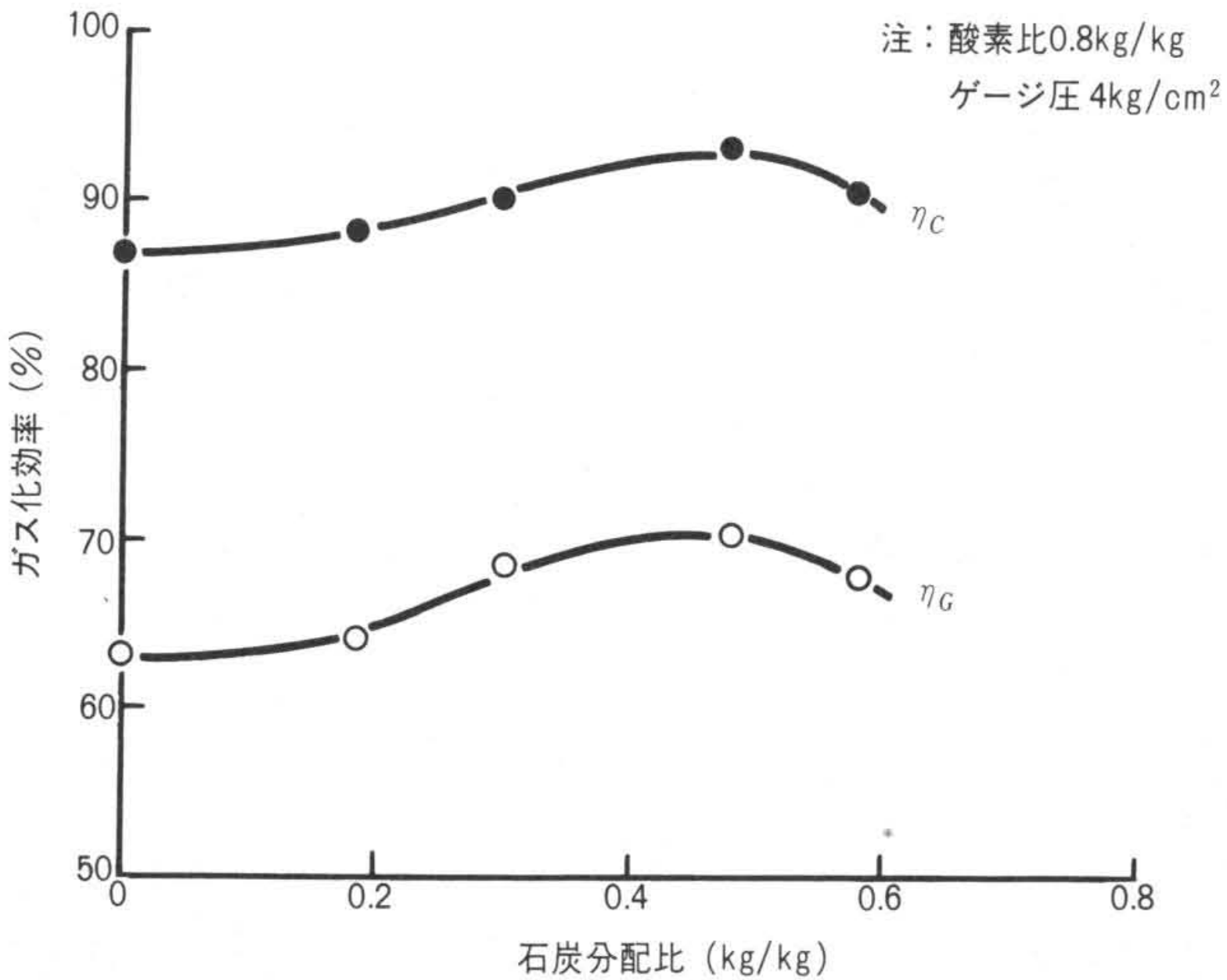


図5 ガス化効率に及ぼす石炭分配比の影響 石炭を上部和下部にほぼ等量分配したとき、ガス化効率は最大となり、2段反応形は1段反応形(分配比=0)よりも効率的に優れる。

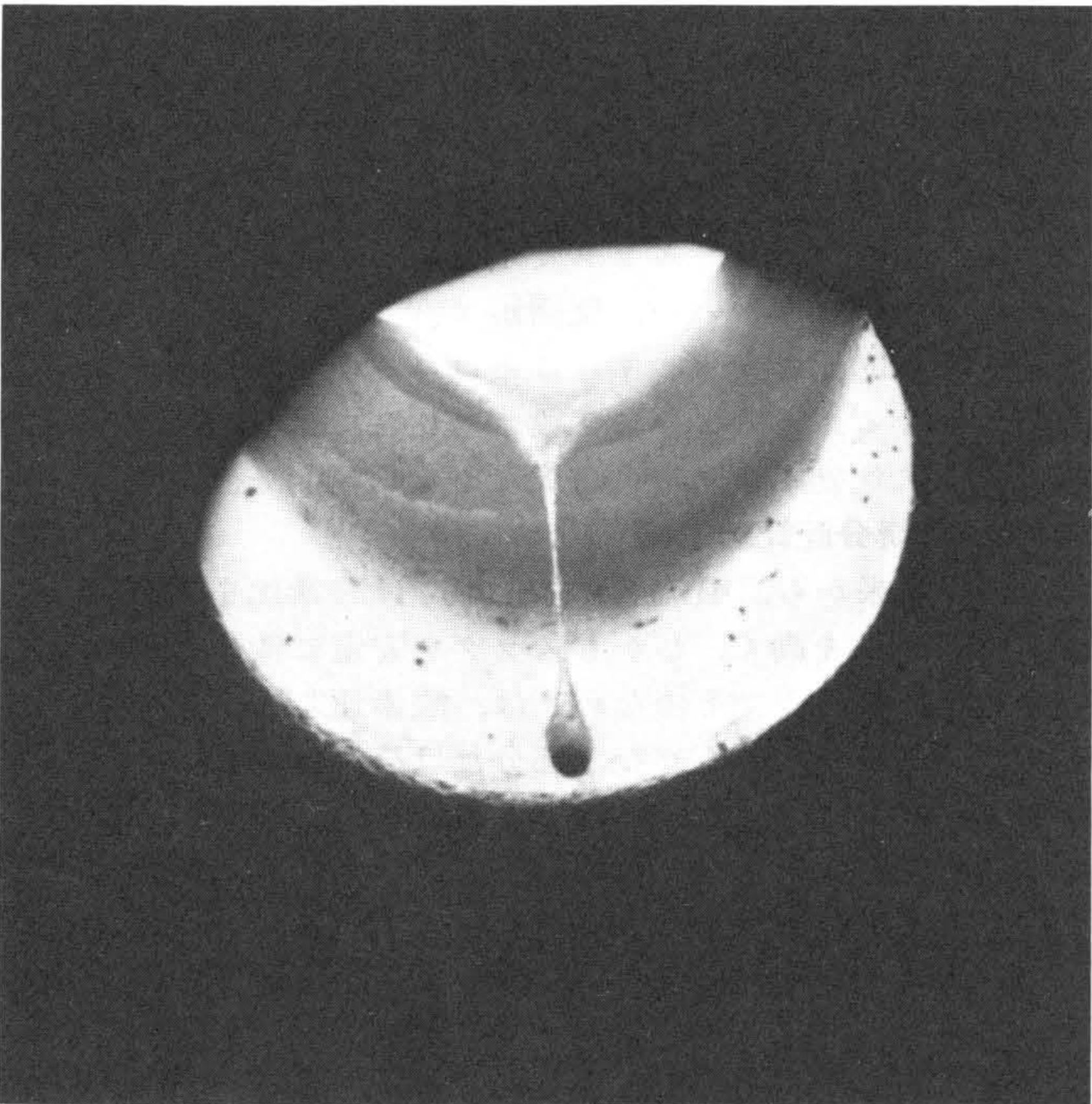


図6 スラグ流下状況 ガス化炉下部を局部的に高温にして、スラグの安定な流下を可能にした。

表2 ガス化試験結果例 発熱量2,600kcal/Nm³以上のガスが93%の効率で得られる。

石 炭 供 給 量		20.2kg/h
酸 素 供 給 量		16.1kg/h
生成ガス組成 (dry, vol%)	H ₂	32.3
	CO	55.0
	CO ₂	12.4
	CH ₄	0.2
	H ₂ S	0.05
カーボンガス化率		93.0%
冷 ガ ス 効 率		70.4%

3.2.3 高効率ガス化法

石炭、酸素をガス化炉の上部と下部に適切に分配すると、高効率を得られることを実験的に明らかにしたが、その機構について考察した結果を図7に示す。まず、ガス化炉の上部へは酸素比が小さく、下部へは大きくなるように石炭、酸素を供給する。したがって、下部は高温となりスラグが流れやすくなる。また、石炭は短時間にほとんど完全に反応し、CO₂、H₂Oに富む高温ガスが生成する。一方、上部では酸素が少ないため未反応のカーボン粒子(チャー)が生成する。このチャーは更にガス化しなければならないが、このときチャーの性状が反応性に強く影響する³⁾。ガス化過程にあるチャーを採取し、その性状を調べた結果の一例を図8に示す。同図(a)は酸素比0.4kg/kg、1,200℃でガス化したときのチャーであり、多孔質になっている。同図(b)は0.8kg/kg、1,600℃でガス化したときのチャーであり、緻密になっている。これらのチャーと水蒸気を反応させると、同図(a)のように酸素比の小さい条件で生成したチャーのほうが同図(b)よりもガス化が進み、より反応性が高いことが分かった。したがって、上部に供給する石炭は低酸素比でガス化するのが好ましい。このような活性なチャーが下部で生成した高温ガスと反応し、H₂、

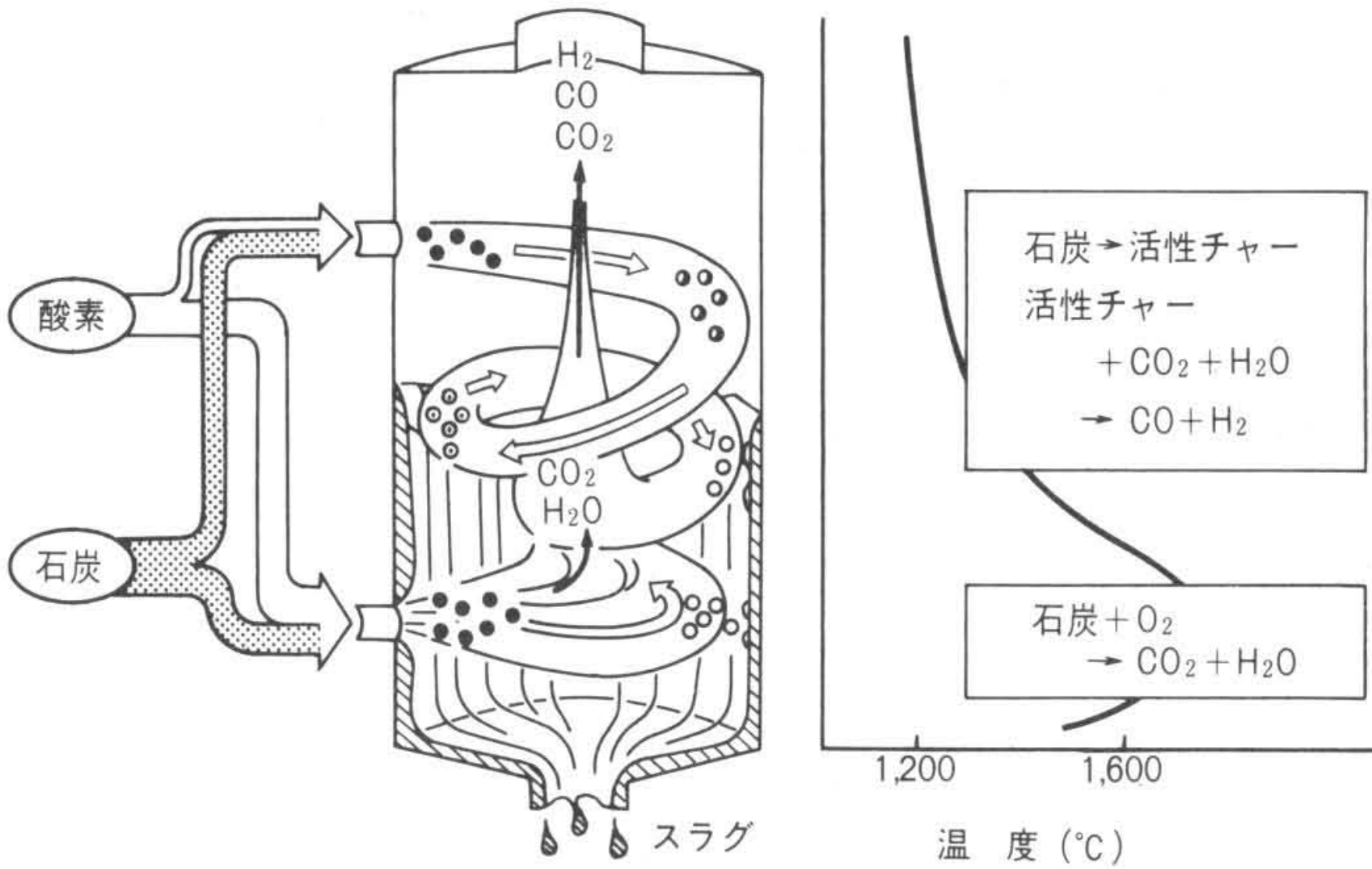
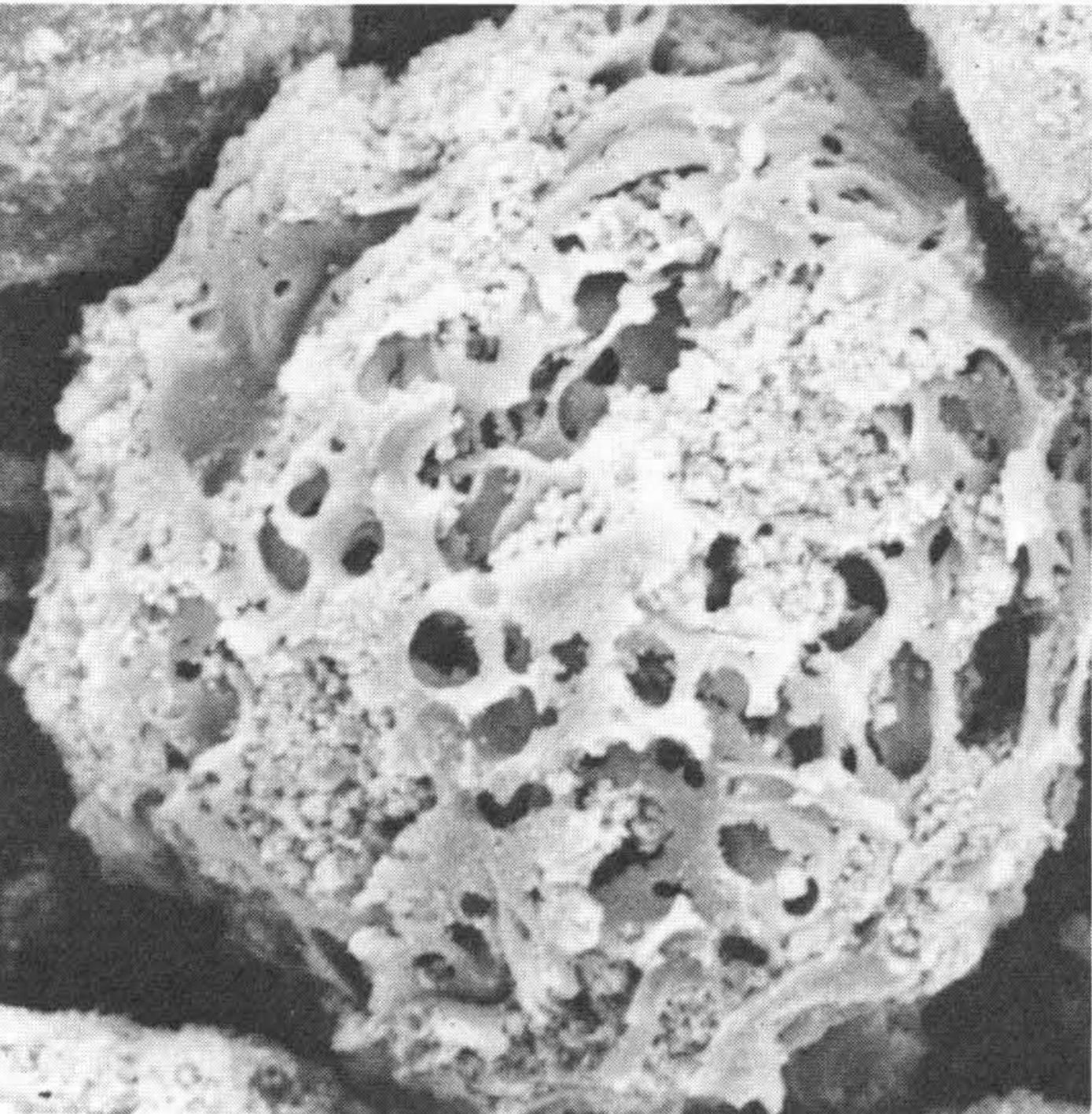


図7 高効率ガス化炉 石炭、酸素をガス化炉の上部、下部に分割して供給した後、チャーと高温ガスを適切に接触させると、高いガス化効率を得られる。



(a) 酸素比：0.4kg/kg、気孔率：38%



(b) 酸素比：0.8kg/kg、気孔率：26%

図8 チャーの性状
酸素比により反応過程のチャー性状が異なる。低酸素比の場合、活性なチャーが生成する。

COに富むガスが生成する。この場合、上部で生成したチャーは図7に示すようにある位置まで下降してから上昇することが認められた。このため、高温ガスとの接触が極めて良好に行なわれる。

以上述べた一つの反応室内に、石炭及び酸素を分割して供給し、ガス化する方法を1室2段反応形と呼ぶこととし、高性能ガス化炉としての可能性を更に追求している。

3.2.4 石炭中の灰分、硫黄及び窒素の挙動

図9は噴流層ガス化炉での石炭中の灰分、硫黄及び窒素収支を、ダスト非循環方式で調べた結果の一例である。灰分は55%が熔融スラグになり、ガス化炉から排出された。このスラグは図10に示したように未反応カーボンが0.5%以下の透明なガラス状で、そのまま廃棄しても差し支えないと考えられる。

石炭中の硫黄は大部分 H_2S 、 COS に転化した。これらの濃度は炭種、ガス化温度によって変化するが、ほとんどの場合既存の脱硫技術で十分除去可能である。

窒素は大部分 N_2 に転化した。 NH_3 の生成は炭種やガス化温度によって変化した。いずれの場合もごく微量であった。

飛散ダスト中には灰分、硫黄及び窒素が含まれるが、これらはダスト循環方式によって処理すれば、大部分熔融スラグやガスに転化する。

なお、生成ガス中にはタールは全く認められなかった。

3.2.5 ガス化剤の影響

石炭のガス化剤としては、酸素、空気いずれも考えられる。

両方式をガス化温度と生成ガス発熱量の関係で比較し、図11に示す。同一酸素比の場合、空気ガス化では空気の加熱に熱が使われ、ガス化温度は酸素ガス化よりも低い。温度を高くするため空気量を増大すると過大な酸素比になり、3.2.1で説明したようにガス発熱量は低下する。しかし、同一空気量の場合、1室2段反応形ガス化法では1段ガス化法に比べてガス化反応が促進され生成ガス中の CO_2 濃度が低くなるのでガス発熱量は高くできる。いずれの方式でも、ガス化炉温度をスラグの安定流下温度以上に保つ必要があり、この条件から生成ガスの発熱量が定まる。

3.2.6 高効率ガス化法の特徴

以上、PDUの試験結果を説明したが、1室2段反応形ガス化炉の特徴をまとめると次のようである。

- (1) 2段反応形であるため、酸素量を増大しなくてもスラグの流下が容易である。
- (2) 低酸素、高酸素二つの反応領域を一つのガス化室内で形成させるため、ガスと石炭の接触が良好となり、ガス化効率を向上できる。

4 今後の課題と展望

PDUによる噴流層ガス化炉の基本特性について述べたが、今後は更に炭種の影響について調べていきたい。また、PDUにガス精製系及びガスタービン燃焼器基礎試験装置などを設け、ガス化炉と合わせた総合試験により、要素機器の開発を

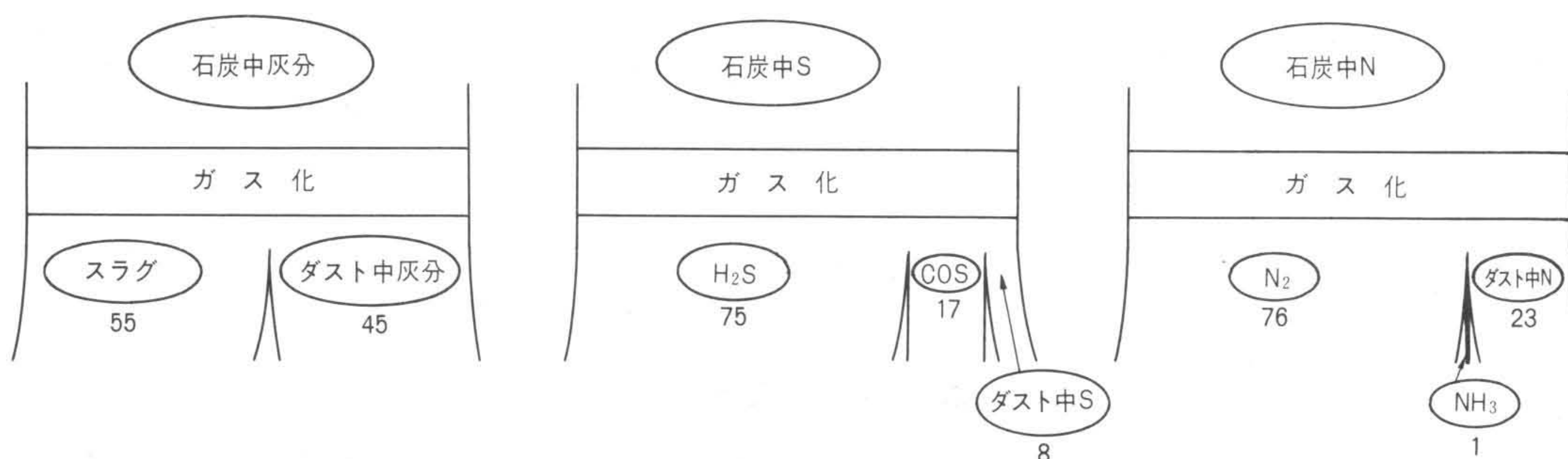


図9 石炭中灰分、S、Nの挙動 石炭中の灰分、S、Nはガス化によって、スラグや容易に除去できるガスに転化する。

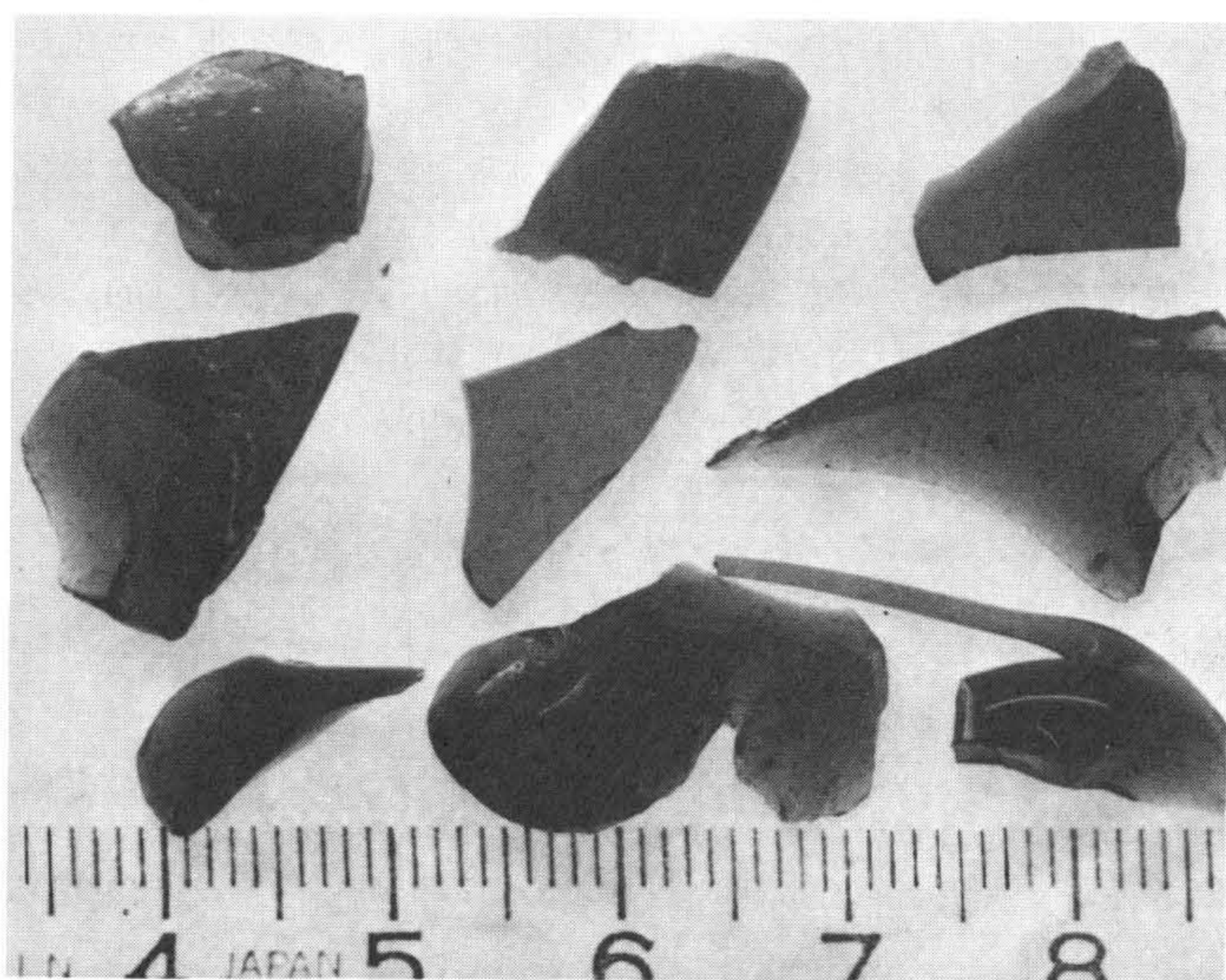


図10 石炭灰熔融スラグ ガス化炉から排出した熔融スラグは、未燃カーボンが0.5%以下で、透明なガラス状であり、そのまま廃棄して問題はないと思われる。

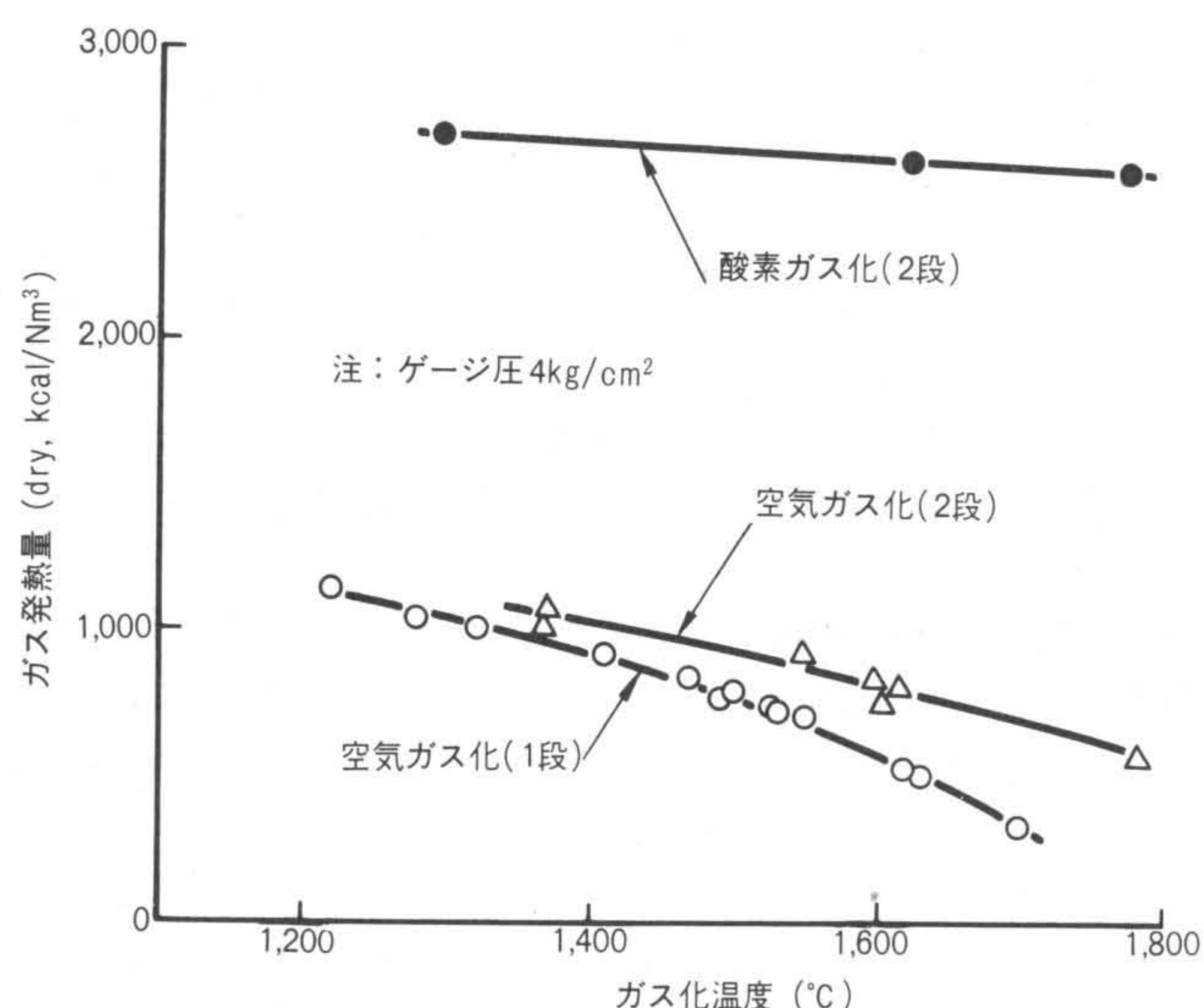
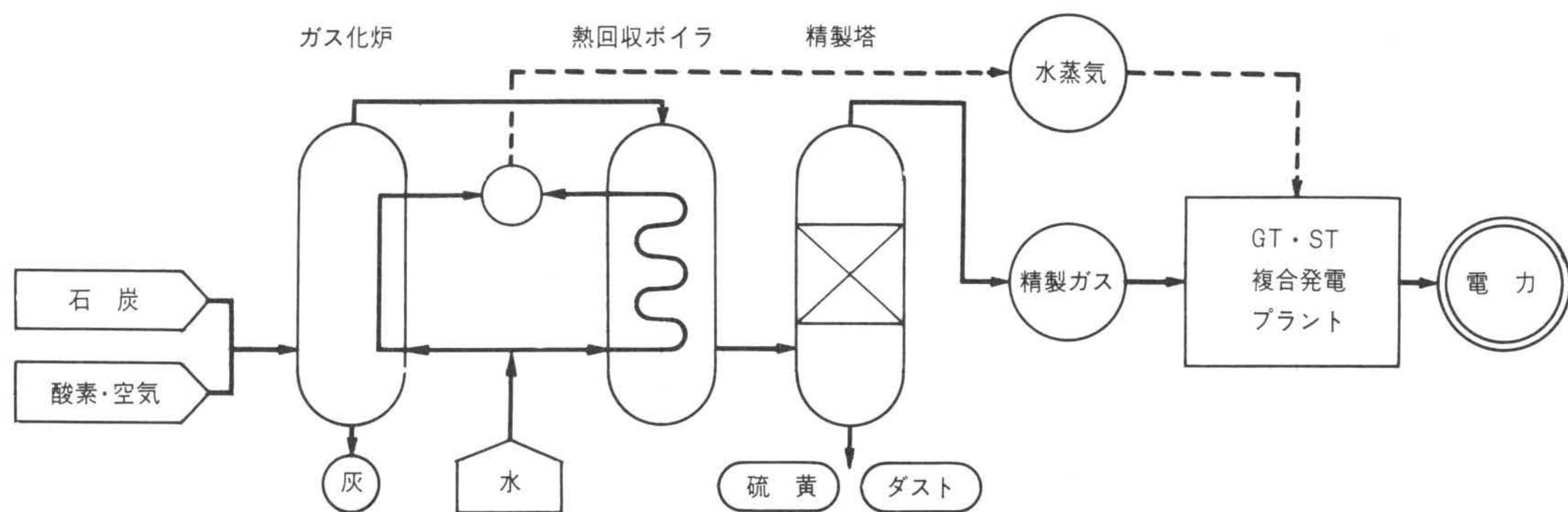


図11 酸素ガス化と空気ガス化の特性比較 空気ガス化では N_2 が60～70%含まれるため、ガスの発熱量は低い。なお空気は150℃、酸素は20℃でガス化炉に供給した。



注：略語説明 GT・ST(ガスタービン・蒸気タービン)

図12 石炭ガス化複合発電システムのフロー ガス化発電技術では、高効率ガス化炉、高温ガスタービン及び全システムの運転制御技術が主要な開発課題である。

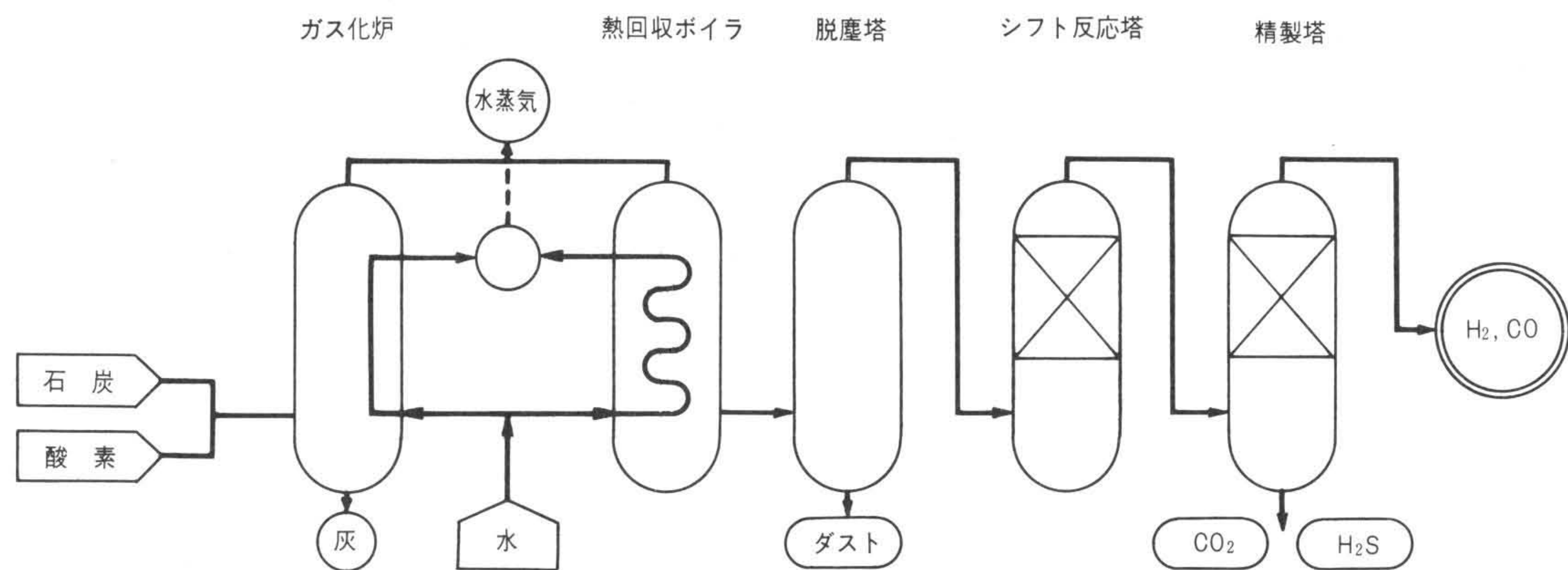


図13 合成ガス製造プラントのフロー ガス化炉は基本的に発電用と同じ機能、性能が要求される。目的とするガスに応じた、システムの最適化が重要である。

行なうとともに、全体がバランスのとれたシステムを開発する予定である。今後、これらの基礎研究を噴流層ガス化技術を中心とした、次に述べる分野で活用したいと考えている。

4.1 石炭ガス化複合発電技術

図12は現在考えているガス化発電システムのフローである。石炭はゲージ圧25～30kg/cm²、温度1,600℃以上でガス化し、生成ガスの顕熱はガス化炉内の伝熱管及び排熱回収ボイラで水蒸気として回収する。ガス化炉で生成したガスは脱塵及び脱硫装置によって生成ガス中のダスト、硫黄化合物を除去する。精製ガスはガスタービン燃焼器に導入し、ガスタービン・蒸気タービン複合発電プラントによって電力を発生させる。本システムを実用化するには、高性能噴流層ガス化炉、高温ガスタービンの開発とともに、発電所の運用に適合した最適システム、及び運転制御技術の開発が重要である。このため、パイロットプラントによって要素機器の基本性能を確認し、実証プラントで全体システムの信頼性を確認する開発ステップが必要と考えている。

4.2 合成ガス製造技術

図13は合成ガス製造プラントフローの一例である。H₂、COガスを多量に得るためガス化剤には酸素を用いる。石炭は高温、高圧下でガス化し、生成ガスから熱回収した後、ガスの変性、精製を行ないH₂、COガスを製造する。ガス化炉は基本的には発電用と同様に、高効率かつ運転が容易でなければならない。その他の要素技術は既存技術の改良で対応できると考えられるが、水素製造用あるいはメタノール合成用など、目的に応じたプラントの最適システム化が重要である。実用

化のためには基礎研究、パイロットプラント、更に実証プラントによって開発を進める必要がある。

5 結 言

石炭ガス化発電や合成ガス製造用に期待される噴流層ガス化の基本特性を把握するため、0.5t/dのガス化炉による試験を進め、1室2段反応形ガス化法が高効率化に有効であることを見いだした。また、ガス化特性に及ぼすガス化剤の影響を把握し、噴流層ガス化炉が基本的に新しい高性能ガス化炉として有望であることを確認した。

今後は、更に基礎技術の蓄積を図るとともに、このガス化技術を複合発電あるいは合成ガス製造のパイロットプラントに展開していきたい。合成ガス製造については、NEDOの多目的高温ガス化技術の研究開発計画に採用され、ガス化炉スケールアップのための要素研究を、昭和58年度から実施している。

参考文献

- 1) 国井：これからのガス化技術を探る，化学工学，38，10，697～705(1974)
- 2) 池田：石炭から合成用原料ガスの製造，燃料協会誌，60，645(1981)
- 3) S. Koyama, et al.: Effect of Temperature on Coal Gasification Near the Ash Melting Point, The 18th IECEC (Aug. 1983)