

石炭ガス化技術 (ECOPRO[※]) の開発

～パイロットプラント開発成果と実証機への展開～

Development of ECOPRO[※] Coal Gasification process

～Results of pilot plant operation and future development towards demonstration plant～

小菅 克志* Katsushi Kosuge
技術開発研究所プラント商品開発室
シニアマネジャー

小水流 広行 Hiroyuki Kozuru
新日本製鐵株式会社技術開発本部
環境・プロセス研究開発センター
プロセス技術部主任研究員

並木 泰樹 Yasuki Namiki
技術開発研究所プラント商品開発室
シニアマネジャー

武田 卓 Suguru Takeda
事業開発センタークリーンコール事業推進室
シニアマネジャー

糸永真須美 Masumi Itonaga
技術開発研究所プラント商品開発室
マネジャー

抄 録

石炭ガス化技術は、世界中に豊富に存在する石炭を原料として、化学合成や発電等への展開が容易な合成ガスを製造する技術であることから注目されており、国内外で実用化が進められている。当社は、従来の石炭ガス化技術に熱分解技術を組み入れた高効率の噴流層式2室2段型ガス化炉 (ECOPRO) の開発を進め、20t/d 規模のパイロットプラント試験研究にて、①世界最高レベルとなる商用機換算冷ガス効率85%の達成、②プロセスの安定性確認、③褐炭を含む低品位炭への適用性確認、の成果を得て、本規模での開発を完了した。

本稿では、これら石炭ガス化技術開発の成果を報告すると共に、商用化に向けた今後の展開について述べる。

Abstract

Coal gasification is a key technological process to convert coal into synthetic gas, which can easily be used for chemical synthesis and power generation. Since the technology enables to utilize unexploited and globally distributed coal feedstock, it has become more important. The technology has been gradually put into commercialization in Japan and around the world. Nippon Steel Engineering Co., Ltd. integrated conventional coal gasification technology with pyrolysis technology and is developing an efficient two-stage entrained flow gasifier (ECOPRO gasifier) composed of a pyrolyzer and a partial oxidizer. 20t/d pilot plant operational tests were successfully completed. Major outcomes include achievement of the world's highest cold gas efficiency, which is equivalent to 85% at a commercial scale plant, confirmation of the process stability and applicability verification of low rank coal including brown coal.

We report the results of the coal gasification technology development as well as future development towards realization of commercial plants.

1 緒言

石炭は石油や天然ガスなどと比べて、安価で世界中に普遍的に存在し、可採埋蔵量も120年以上と他のエネルギー資源よりも長いことから、将来的にも世界のエネルギー需要の約3割をまかなうと予想される重要な一次エネルギー資源である。一方、CO₂による地球温暖化問題が世界的な課題となっており、熱量あたりのCO₂発生量の大きな石炭は環境負荷を配慮した高効率の利用技術(CCT : Clean Coal Technology)の開発・実用化やCCS (Carbon dioxide Capture and Storage)技術の適用が検討されてきている。

当社は、エネルギー分野の将来の商品拡充に関し、中長期的に石炭利用分野の伸びが期待できること、コーポレートの中核事業である製鉄業で石炭関連技術や利用ノウハウが蓄積されており、その強みも生かせることからCCT技術である石炭ガス化技術に注目した。

石炭ガス化技術は固体の石炭をガス化し、COやH₂を主成分とする合成ガスを製造する技術であり、図1に示すように、従来の石油・天然ガスからのエネルギー・化学原料の製造及び供給チェーン、すなわち、原燃料供給チェーンを代替・補完できる石炭チェーンを確立するためのキーとなる技術である。そこで、可採埋蔵量等から将来の石炭への原料ソースのシフトを想定し、これら化学原料・燃料製造用の石炭ガス化技術として、高効率で合成ガスを製造するECOPRO石炭ガス化技術の開発を進めている。

2 石炭ガス化技術概要

2.1. 噴流層方式石炭ガス化技術

石炭ガス化技術は、世界中で開発・実用化が進められているが、近年は高効率かつ大型化が可能なことから噴流層式ガス化技術が注目されている。

噴流層ガス化技術は、石炭を微粉碎してガス化炉に供給し、高圧下で酸素等により部分酸化させて瞬時に高温の合成ガスを製造する技術である。なお、既存の方式では、ガス化炉を出た1300~1600℃程度の高温合成ガスの顕熱は、合成ガス製造の際の損失エネルギーの大部分を占めるので、プロセスの熱効率の向上のためには、蒸気としてこのガス顕熱を回収(排熱回収)するのが一般的である。

2.2. ECOPRO 石炭ガス化技術

ECOPRO石炭ガス化技術は、合成ガス製造のエネルギー効率をさらに高めるために、従来の噴流層ガス化方式に石炭熱分解反応を組み込んだ新しいコンセプトのガス化技術である。そのコンセプトとは、高温の部分酸化反応ガスの顕熱(排熱)を蒸気として回収するだけでなく、石炭の熱分解反応により石炭を合成ガスに新たに転換させるというものである。すなわち、高温ガスの顕熱を高エクセルギーのガスとして再生する仕組みをプロセスに組み入れることで、従来より高い合成ガス製造効率を持った石炭ガス化プロセスが実現できる。

図2にECOPROの概要を示す。ECOPROガス化炉は、上下2つの反応部(部分酸化部、熱分解部)を持ち、各々に微粉碎した石炭を気流搬送して送入する2室2段型ガス化技術である。下段の部分酸化

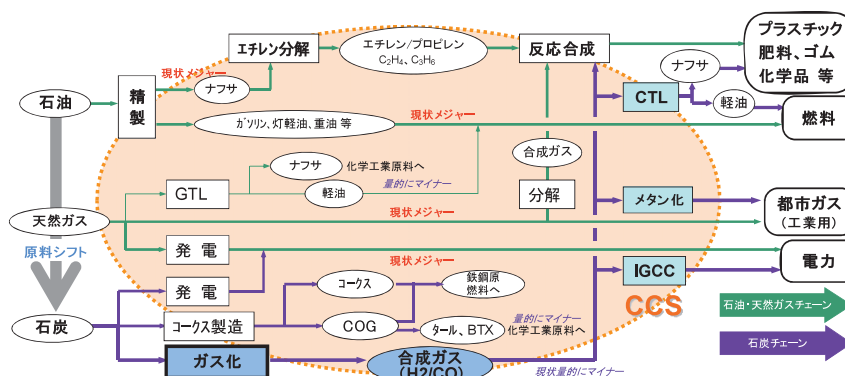


図1 化石エネルギーからの原燃料供給チェーンと原料シフト時の変化
 Fig. 1 Flow diagram from fossil energy resources to products and resource shift

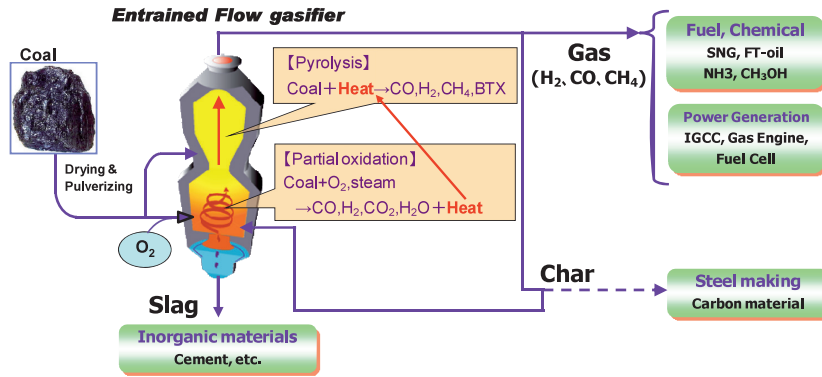


図2 ECOPRO 石炭ガス化プロセスの概要
Fig. 2 The outline of “ECOPRO” coal gasification process

部では、既存の噴流層ガス化技術と同様に微粉炭やリサイクルチャーを酸素等により部分酸化させ、CO と H₂ を主成分とする高温の部分酸化ガスを製造する。また同時に、微粉炭等の灰分を部分酸化部内部で溶融スラグ化させ、反応炉下部にて冷却後にスラグとして排出する。次に、部分酸化部で製造した高温の部分酸化ガスは、上段の熱分解部へと導入される。熱分解部では石炭を上記高温ガスに吹き込むことで熱分解し、同時にガスを冷却する。この熱分解反応によって石炭は CO や H₂ の他に CH₄ を含む熱分解ガスとカーボンを含む固体チャーに分解され、部分酸化ガスと共に炉頂より得られる。以上の2段の反応により、ECOPRO ガス化炉は CO、H₂、CH₄ 等を含む合成ガスとチャーを製造する。製造した合成ガスは、燃料や化学製品の合成原料として利用され、チャーは、主に部分酸化部にリサイクルされる。本 ECOPRO ガス化技術の主な特徴は下記4点となる。

- ①合成ガス (CO, H₂, CH₄) を高エネルギー効率*で製造できる。(商用機規模で85%見込み)；部分酸化ガス顕熱の熱分解反応への利用により効率向上
- ②投入石炭あたりの酸素使用量が2割程度少ない。(同時に CO₂ 発生量も低減)；石炭の熱分解反応を用いることで低酸素量のガス化が可能
- ③揮発分の多い低品位炭(亜瀝青炭や褐炭)が ECOPRO プロセスに適する。；熱分解部では、主に石炭中の揮発分を熱分解してガス化させるため。
- ④代替天然ガス (SNG) 製造においては、他の噴流層ガス化炉より10%程度製造効率が高い。；熱分解反応により合成ガス中に CH₄ を含有する効果

*：エネルギー効率 = 製品熱量 / 石炭熱量

3 ECOPRO 技術開発

3.1. パイロットプラント(PP)試験概要

ECOPRO 技術開発は、1997年からの石炭処理量 1 kg/d 小型試験装置を用いた熱分解反応基礎試験^{1), 2)}、1 t/d プロセス開発試験装置(PDU)による部分酸化・熱分解の2室2段ガス化プロセス研究³⁾を経て、2003年度から2009年度に20t/d のパイロットプラント(PP)を用いた試験研究を実施した(内2008年度までの6年間は日本政府の石炭生産・利用技術振興事業「石炭利用実用化技術開発」として実施)。事業開始から2006年6月までの間にPP試験設備(新日本製鐵株式会社 八幡製鐵所構内に設置：図3)の設計及び建設を完了し、その後2006年9月から2010年3月までの3年半、PPを用いた開発を進めた。

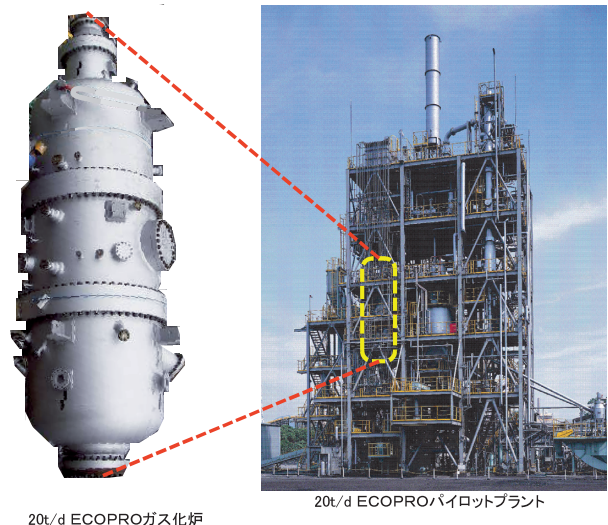


図3 ECOPRO 石炭ガス化パイロットプラント
Fig. 3 The ECOPRO coal gasification pilot plant

図4にPPによる開発の運転推移図を示す。試験は目的毎に大きく分けて3つに区分できる。最初の約1年半はプロセス性能の確認を実施し、その後の9か月は、プロセス安定性の確認、最後は次期実証機設計データ採取を実施した。試験は、褐炭1種類を含む3種類の低品位石炭を用いて合計18回のRUN、運転累計時間3100時間の試験を実施した。また、連続運転時間は1か月超となる908時間を達成、高効率で安定したガス化プロセスであることを実証できた。

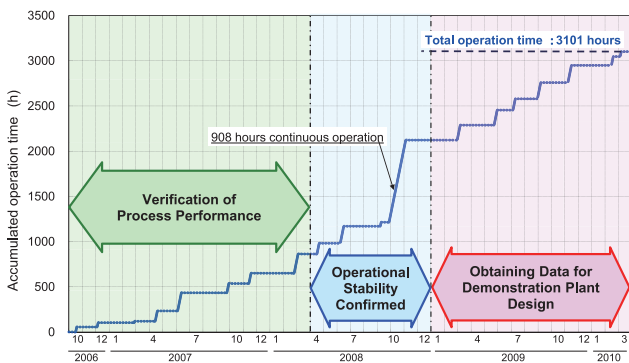


図4 ECOPRO 試験経緯と累積運転時間
Fig. 4 The test RUNs and the accumulated operation time of ECOPRO pilot plant

3.2. パイロットプラント試験結果

PPでは、本技術の実用化を念頭に①効率、②安定性、③石炭適用性、の観点から開発目標を設定した。表1に開発目標と達成状況を示す。

まず、効率については、商用機相当で世界最高レベルに相当する85%のエネルギー効率をターゲットに設定した。この高い目標値の達成には、運転で直面したいくつかの技術課題の克服過程で、①部分酸化部の熱損失低減に向けたスラグセルフコーティング(熔融スラグを壁面の断熱材とする)の安定化とスラグ安定排出の両方を満足するスラグ性状の調整ノウハウの獲得、②熱分解部の石炭熱分解反応を適切に制御し、安定的かつ高効率運転が可能となる最適運転条件範囲の把握、といった操業ノウハウ等が獲得できたことが大きな転機となった。これらの獲得によって、図5に示すように、開発初期の破線で示す範囲からプロセス性能を飛躍的に向上させることができた。

次に、安定性については、他社の動向を踏まえて早期に実用レベルの検証を行うために当初の計画(連続200時間)を大幅に超えた908時間の連続運転実証を行った。図6には、長時間運転時の運転温度等

表1 ECOPRO 石炭ガス化技術の開発目標と達成度

Table 1 Development target and achievement state of ECOPRO coal gasification technology

No.	Item	Target	Achievement State	Note
1	Energy Efficiency*	78% (Equal to 85% at CP scale)	79%	The highest efficiency in the world (CP scale)
2	Process Stability	200hrs.	908hrs.	
3	Applicability to Low Rank Coal	3 kinds of sub-bituminous coal ; Total 10 RUNs	▶ 2 kinds of sub-bituminous coal ; 15 RUNs, 2650hrs ▶ 1 kind of brown coal ; 3 RUNs, 450hrs	Total Operation RUN: 18 Operation time : 3101hrs.

*Energy Efficiency=Calorific Value of Products/Calorific Value of Coal

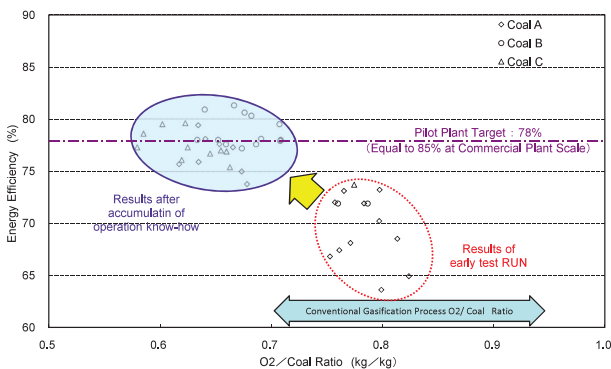


図5 エネルギー効率の向上
Fig. 5 Improvement of energy efficiency in ECOPRO pilot plant

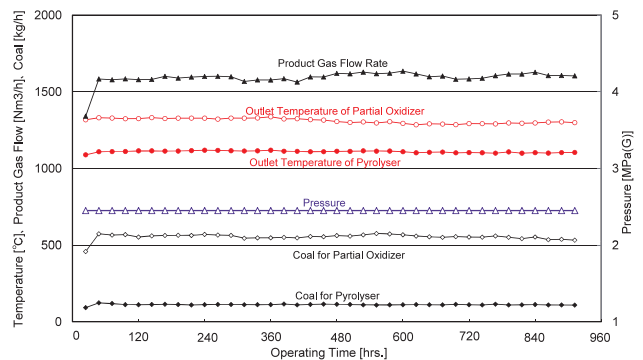


図6 長時間連続運転における運転状況の推移
Fig. 6 Results of long continuous operation

の経時変化(24時間の平均値の推移)を示す。石炭供給量、運転温度・圧力、発生ガス量等、運転2日目にロードアップしてからは安定した運転を行い、プロセスの安定性を確認できた⁵⁾。

最後に石炭適用性に関しては、揮発分の多い亜瀝青炭2種類の試験適用確認後、さらなる未活用低品位炭の適用として褐炭の適用試験も実施し、2種の亜瀝青炭と同様に ECOPRO に適用可能であることを確認し、いずれの炭種においても目標エネルギー効率を達成できる見通しを得た。図7には適用した3種類の石炭を示す。

以上のように、20t/dのパイロットプラントを用

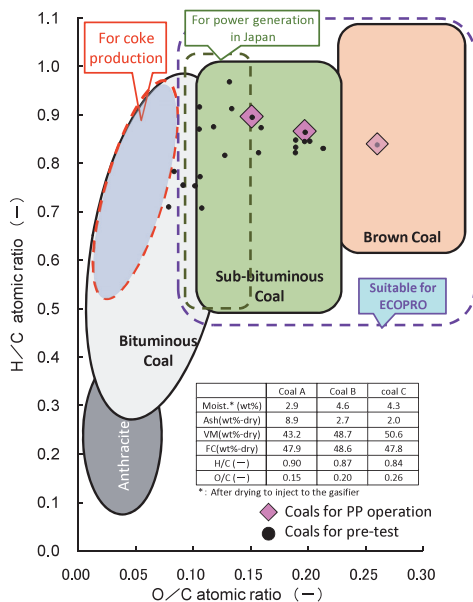


図7 コールバンドと ECOPRO 使用石炭
Fig. 7 Coal used for ECOPRO gasification tests in coal band diagram

いた開発は当初の目標を達成し、実用化に向けた次のステップに進むレベルに到達した。

3.3. スケールアップ技術開発

ECOPRO ガス化技術は、噴流層ガス化炉の特性を生かせる設備規模として、ターゲットとする商用機規模を2000t/d規模に設定し開発を進めている。石炭ガス化プロセスは、高温高压下における反応・伝熱を伴う固気二相流のプロセスであり、複雑な固体流動現象やそれに伴う反応・伝熱を全て確認するのは困難で、大きなスケールアップはリスクが大きい。このため、表2に示すように、本技術のスケールアップ倍率は10倍規模を想定しており、パイロットプラントと商用機の間で200t/d規模の実証機サイズでのスケールアップ技術検証が必要と考え、スケールアップ技術開発もプロセス開発と同時に推進している。

ECOPRO ガス化炉のスケールアップにおいては、効率と安定性の確保が必須であり、必要な反応時間の確保や、部分酸化部における温度分布と流速分布、熱分解部における粒子流動分布の影響評価がkeyとなる。これらの複雑な影響を評価して反応器の性能を予測するには、シミュレーションツールの開発と性能予測精度の検証・向上が不可欠である。図8には、反応器のシミュレーションツールをベースとしたスケールアップ技術確立ステップを示す。シミュレーションモデルの改良や予測精度の検証としては、PP 運転結果の評価のほかに、部分酸化部と熱分解部の流動と伝熱に関する重要な要素の技術

表2 石炭ガス化炉のスケールアップステップ
Table 2 Scale-up steps of ECOPRO coal gasifier

	Basic Research Plant (Lab Scale)	Process Development (PDU)	Pilot Plant (PP)	Demonstration Plant (DP)	Commercial Plant (CP)
scale	1 kg/d	1 t/d	20t/d	150~300t/d	1000~3000t/d
Gasifier	Pyrolyser : Electric heater	Partial oxidizer, Pyrolyser : Refractory	Partial oxidizer: Membrane wall (slag-selfcoating) Pyrolyser : Refractory		
Process Structure Element	• Coal Feed Unit • Gasification Tubes (Pyrolyser)	• Coal Feed Unit • Gasifier (Partial oxidizer+Pyrolyser) • Char Recovery Unit • Gas Cooling Unit	• Coal Pretreatment Unit • Gasifier (Partial oxidizer+Pyrolyser) • Char Recovery Unit • Gas Cooling Unit	• Coal Pretreatment Unit • Gasifier (Partial oxidizer+Pyrolyser) • Char Recovery Unit • Gas Treatment Unit • Chemical synthesis Unit	• Coal Pretreatment Unit • Gasifier (Partial oxidizer+Pyrolyser) • Char Recovery Unit • Gas Treatment Unit • Chemical synthesis Unit...
Development subject	Basic data collection of pyrolysis reaction	Material balance data collection of gasification and pyrolysis sections	• Reaction characteristic validation • Stability verification • Engineering data collection • Simulator development	• Scale-up validation • Stability verification with commercial process • Validation of simulator	

評価を目的として、PP 及び実証機サイズのアクリル製の炉を用いたコールドモデル試験(図9)、PP 及び実証機サイズの部分酸化バーナーを用いたバーナー燃焼試験(図10)を実施している。以下に、スケールアップ開発の柱となるシミュレーションツール開発について述べる。

20t/dのパイロットプラント試験研究では、ECOPRO ガス化炉のスケールアップ手法検討とあわせて反応器シミュレーションツールの開発がおこなわれてきた。開発したシミュレーションツールは、汎用流動解析ソフト「FLUENT」をベースに炉内流動、石炭粒子挙動、伝熱、反応現象をモデリングしたものである。図11には、反応現象のモデリング概要を示す。反応モデルの特徴としては、熱分解反応において活性チャーの生成を考慮したモデル

(Rapid Carbon Model⁴⁾)を用いた点にある。このようにして開発したシミュレーションツールを1 kg/d 基礎試験や1 t/dPPU 試験結果の検証を経て、20t/dPP 試験結果の計算に適用した。その結果、図12の比較例に示すように計算結果と実測値は概ね整合する結果が得られ、20t/d 規模での計算モデルの有効性は確認できた。さらに、実証機サイズのコールドモデル試験やバーナー燃焼試験で得られた知見をもとに、ガス化炉の実証機サイズへのスケールアップに関する精度検証を進め、実証機の仕様決定の際の性能予測のツールとして活用を図っている。今後は、実証試験でのシミュレーションの性能予測精度のブラッシュアップを図り、実機設計の性能予測ツールにしていく予定である。

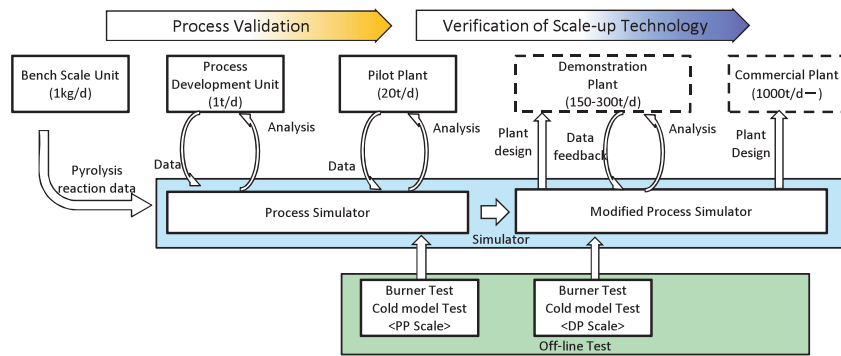
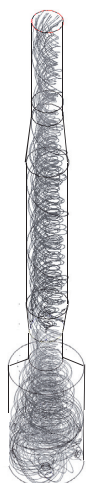


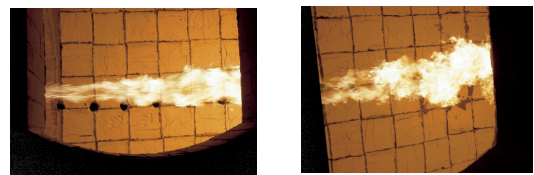
図8 シミュレーションツールをベースとしたスケールアップ技術確立ステップ
Fig. 8 Verification steps for gasifier scale-up based on simulation technology



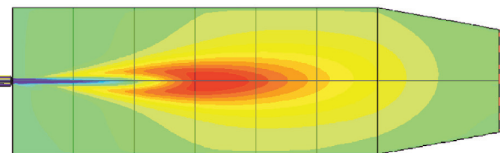
実証機サイズコールドモデル試験装置 シミュレーション流動解析例

図9 実証機サイズコールドモデル試験装置とシミュレーション流動解析例

Fig. 9 Real-size flow test facility of demonstration plant gasifier and example of computer flow simulation



部分酸化バーナー燃焼試験



部分酸化バーナー燃焼シミュレーション例

図10 バーナー燃焼試験と燃焼シミュレーション例
Fig. 10 Combustion test of partial oxidation burners and example of computer combustion simulation

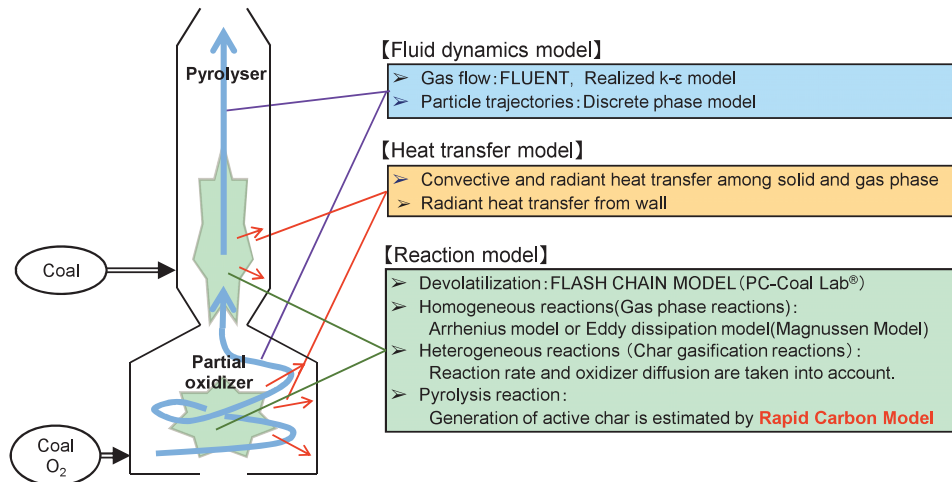


図11 ECOPRO 石炭ガス化シミュレーターの概要
Fig. 11 The outline of ECOPRO coal gasification simulator

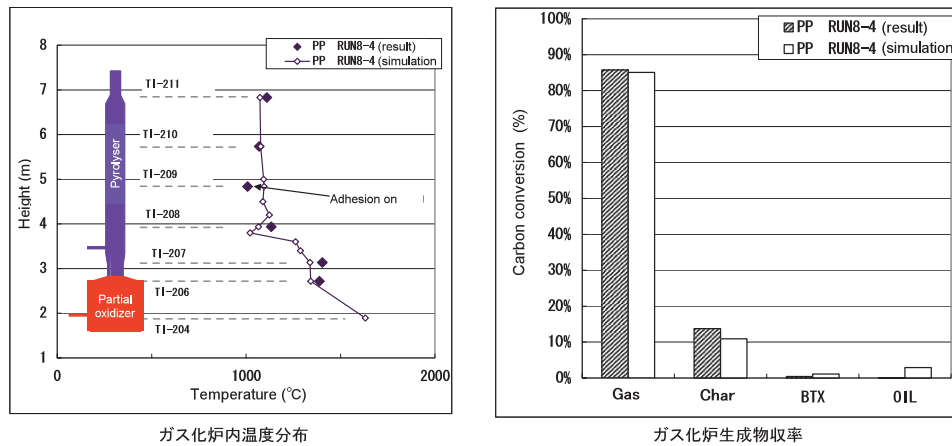


図12 実験結果とシミュレーション結果との比較
Fig. 12 Comparison of actual test RUN results and computer simulation outcome

4 今後の展開

当社は、輸送制約により未活用となっている褐炭(低品位炭)にECOPROガス化技術を適用し、商業化を図る構想を検討してきた。そして、図13に示すような産炭国内で褐炭をガス化して原燃料へと転換し、日本に輸入することで、産炭国の事業創出と日本のエネルギーの安定化を両立させるスキームを提案した。既にECOPROガス化技術の20t/d規模の開発は完了し、次ステップである200t/d規模の実証に進む準備が整っており、今後は、大量の褐炭資源を有する豪州ビクトリア州で提案スキームを検証するための一貫プロセス実証事業の実現を目指していく。本年度はその第一ステップとして、提案スキームの経済性検討(豪州連邦政府とビクトリア州政府支援確定、日本政府へは提案中)を実施する予定である。

5 結言

本稿では、ECOPRO 石炭ガス化技術開発における20t/d 規模のパイロットプラント試験研究の成果と次の実証のステップに進むためのスケールアップ開発を中心に述べた。ECOPRO ガス化技術は、安価で豊富にある未活用の褐炭をはじめとする低品位炭を効率よくガス化できる独自の技術であり、産炭国への技術支援等を通しての事業創出と日本のエネルギー安定供給に貢献できるものと考えている。

当社は、ECOPRO 技術をさらに競争力のある技術に発展させるとともに、開発パートナーの千代田化工建設株式会社殿との連携を強化していくことで、200t/d 規模の ECOPRO 実証を早期に実現させ、商業機へとつなげていきたい。

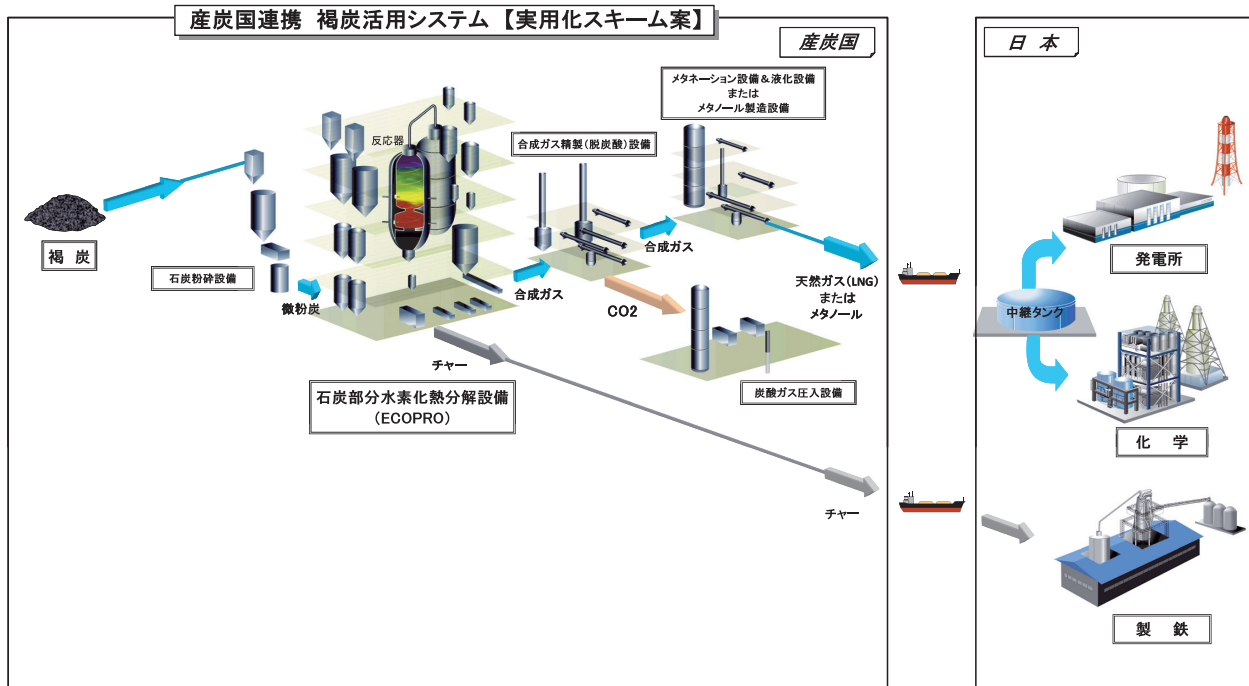


図13 ECOPROの商用化スキーム案－産炭国連携－
Fig. 13 Proposed scheme for ECOPRO commercialization

謝辞

20t/dパイロットプラントの開発遂行にあたり、多大なる御支援、御指導を頂いた経済産業省資源エネルギー庁、技術検討委員の関係各位、および共同研究者である(財)石炭エネルギーセンター(JCOAL)、(独)産業技術総合研究所(AIST)、パブコック日立株、三菱化学株、新日本製鐵株の関係各位に厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 下田博己ほか：第10回石炭利用技術会議講演集、269(2000)
- 2) Yabe, H. et al : Proc 7th China-Japan Symposium on Coal and C1 Chemistry, 199(2001)
- 3) Yabe, H. et al : Proc 21st Ann Int Pittsburgh Coal Conf, S32-1(2004)
- 4) 三浦孝一ほか：日本エネルギー学会石炭科学会議発表論文集、p275(1999)
- 5) 小水流広行：AIST粒子流体プロセス技術コース、(2009)