

# 石炭ガス化技術(ECOPRO<sup>®</sup>)の開発

## ～高効率石炭熱分解ガス化技術の開発成果～

Development of ECOPRO<sup>®</sup> coal gasification process :  
～High efficiency coal gasification technology applicable  
to low-rank coals～

武田 卓 Suguru TAKEDA  
戦略企画センター  
エネルギー・クリーンコール事業推進部  
シニアマネジャー

小菅 克志 Katsushi KOSUGE  
技術開発第二研究所 石炭技術開発室  
シニアマネジャー

糸永真須美 Masumi ITONAGA  
技術開発第二研究所 石炭技術開発室  
マネジャー

加藤 健次 Kenji KATO  
技術開発第二研究所長

### 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。現在その実用化が世界的に進められている。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な噴流床式2室2段ガス化炉(ECOPRO<sup>®</sup>)を開発し、石炭処理量20t/d規模のパイロットプラント試験を実施した。その結果、ECOPRO<sup>®</sup>プロセスは褐炭を含む低品位炭に対する適用性が高く、安定的な操業が可能であることがわかった。

本論文では、ECOPRO<sup>®</sup>石炭ガス化技術および褐炭、亜瀝青炭を対象とした試験操業結果について述べる。

### Abstract

Coal gasification is a key technology for converting coal into synthesis gas(SNG), the common feedstock for synthesis of chemicals and electricity generation. Now, the development of coal gasification technologies are conducted for commercialization all over the world.

Nippon Steel & Sumikin Engineering Co., Ltd. developed the innovative coal gasification technology using the high efficient two-stage entrained flow gasifier (ECOPRO<sup>®</sup>), and testing has been completed at the pilot plant with a coal feed of 20t/d, verifying applicability of the process to low-rank coals including brown coal and its operating stability.

This paper reports on the development experience of ECOPRO<sup>®</sup> and operating results of the pilot plant using brown coal and other low-rank coals as feedstocks.

## 1 緒言

石炭は経済的に採掘可能な埋蔵量(可採埋蔵量)が約8474億t多量に存在しており、貴重なエネルギー源である。また、石炭は世界的に広く分布していることから、多くの国々で生産・使用されている。石炭は有機物と無機物から形成されている異物質の集合体であり、石油に比べて地域的な遍在性が少なく、埋蔵量が多い<sup>1)~3)</sup>。石炭の有機物は、植物が湿地帯で微生物などによる様々な腐朽分解を受けた後に地中に埋没し、地層中に堆積層を形成した後に長い年月をかけて物理的(地圧)あるいは化学的(地熱)変化を受けて、生成したものである。根源植物が石炭に変化する過程は石炭化作用と名付けられている。一般に、石炭化度の高いものから順に、無煙炭、瀝青炭、亜瀝青炭、褐炭などに分類される。別の分類方法として、石炭は用途によって原料炭、一般炭、無煙炭に分類される。原料炭はコークス製造に用いられるものであり、現在の日本ではほとんどが製鉄用コークスとして利用されている。一般炭は、ほとんどがボイラ燃料であり、主に発電用に用いられている。無煙炭は、主に練炭、豆炭製造などに用いられているが、量的には少ない。

2010年における世界中の石炭使用量は合計で74億7400万tである。石炭資源のうち、半分以上は低品位な石炭であり、従来の技術では効率的に使用することができない。石炭は、水分と灰分量を除いた条件(無水無灰ベース)では約25~34MJ/kgの熱量を有するが、石炭の中には多量の水分や灰分または多量の硫黄分などの不純物を含むために利用できない石炭が多量に存在する。このような石炭は低品位炭と定義されており、有効に利用するためのクリーンコール技術の開発が世界的に行われている<sup>4)</sup>。

石炭ガス化技術は化学合成や発電等への展開が容易な一酸化炭素(CO)や水素(H<sub>2</sub>)を主成分とする合成ガスを製造する技術である<sup>5)</sup>。従来の石油や天然ガスを主体とするエネルギー、化学原料供給チェーンを代替、補完できる石炭チェーンを構築するための重要な技術と考えられており、現在、低品位炭を高効率に利用する石炭ガス化技術の開発が盛んに行われている<sup>4) 5)</sup>。

本稿では、当社独自技術である ECOPRO<sup>®</sup>石炭

ガス化技術(ECOPRO<sup>®</sup>: Efficient Co-Production with Coal Flash Partial Hydro-pyrolysis Technology)<sup>6)~9)</sup>による褐炭、亜瀝青炭などの石炭ガス化技術開発状況と今後の課題について述べる。

## 2 石炭ガス化技術の概要

はじめに石炭ガス化技術の概要を述べる。石炭ガス化は、石炭にガス化剤として空気または酸素と水蒸気を用いて、高温で水素(H<sub>2</sub>)、一酸化炭素(CO)、メタン(CH<sub>4</sub>)などの気体に変換する技術である。図1に石炭ガス化の反応式を示す。石炭ガス化により生成したガス成分は、都市ガスの代替、化学製品を製造するための原料、発電用のクリーンガスとして使用される。これらの用途によって、対応する製品ガスは以下の3つに区分される。(1)メタンを主成分とする高カロリーガス、(2)水素、一酸化炭素を主成分とする中カロリーガス、(3)製品中に窒素を含んだ低カロリーガスの3種類である。

### ① 熱分解

石炭 → ガス成分, タール, 重質油成分, チャー(C), 灰分

### ② 酸素との反応

$C + O_2 \rightarrow CO_2 + 393 \text{ kJ/mol}$ ,  $C + 1/2 O_2 \rightarrow CO + 111 \text{ kJ/mol}$

$C + CO_2 \rightarrow 2CO - 171 \text{ kJ/mol}$

### ③ 水蒸気との反応

$C + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2 - 131 \text{ kJ/mol}$ ,  $C + 2H_2O \rightarrow CO_2 + 2H_2 - 76 \text{ kJ/mol}$

$CO + H_2O \rightarrow CO_2 + 41 \text{ kJ/mol}$

### ④ 水素との反応

$C + 2H_2 \rightarrow CH_4 + 75 \text{ kJ/mol}$ ,  $CO + 3H_2 \rightarrow CH_4 + H_2O + 206 \text{ kJ/mol}$

図1 石炭ガス化反応

Fig. 1 Reaction formula of coal gasification

図2に石炭ガス化技術発展の歴史を示す。ドイツで開発されたルルギ(Lurgi)炉は、世界的に最も多くの実績がある加圧固定床形式の炉である。石炭は上部から投入され、順次、熱分解反応を経てガス化、部分燃焼される。ガスの顕熱が乾燥と熱分解に利用されることから熱効率が高いが、大型化が困難などの欠点がある。1926年にドイツで開発されたウインクラー(Winkler)炉は、約1000℃の流動床形式である。ガス化炉内に粒度約2~6mmの非粘結炭やコークスなどの原料と酸素、水蒸気を炉下部から吹込み、約1,000℃の粉炭の流動床を形成させる。生成したガスはアンモニア合成用の原料ガス製造などに用いられ、1930年代にわが国にも導入された。

この炉の欠点としては、炭素利用率が低いことであつた。

1970年代の第一次石油ショック以降、石炭が工業原料として見直され、新たなガス化炉の開発が進められた。ルurgi炉は大型化が図られ、ウインクラー炉では運転圧力を10atmとした加圧型炉が開発された。低温ガス化の為1000t/d/基程度までしか大型化できないが、灰を溶融しないことから高灰分・高灰融点炭に適する、タールを副生する等の特徴があり現在も利用されている。噴流床のGE炉は、テキサコ(Texaco)により重質油のガス化用に開発された炉を石炭用に改良発展させたものであり、微粉炭を高温・高圧でガス化する為反応速度が速く、熱効率と一基当たりの処理能力が向上した。現在世界各地でアンモニア、メタノール製造などに使用されている。GE炉は石炭を水スラリーにするため、高圧系への供給が容易である反面、水の蒸発に要する熱を供給するために酸素を多く必要とすることから、熱効率が低下する欠点がある。これに対して、Shell炉は乾式で石炭を供給するため、熱効率が高い特徴がある。

当社は更に高効率な石炭ガス化技術としてECOPRO®の開発を行っている。この技術は、大型化に適した噴流床方式を採用し、石炭のガス化(部分酸化反応)に石炭熱分解反応を付加した技術であり、部分酸化反応で生成した高温ガス顕熱を熱分解反応の熱源とすることで熱の有効利用が図れることが特徴である。

技術動向： 間欠式・固定式 ⇒ 連続化・大型化・高効率化・低品位炭(高水分)適用

概要	固定床・流動床	噴流床型		
		湿式	乾式	乾式+熱分解(開発中)
【石炭】塊炭 高水分炭不向き 【ガス化】低温(～1000℃) 高灰分・高灰融点炭適 【製品】H <sub>2</sub> , CO 炭化水素、タール 【実績規模】～1000t/d/基	【石炭】微粉炭+水スラリー 高水分炭不向き 【ガス化】高温(～1300℃) 高圧化が容易 【製品】H <sub>2</sub> , CO 【実績規模】～2500t/d/基	【石炭】微粉炭+搬送ガス 高水分炭適 【ガス化】高温(～1500℃) 旋回/対向吹込 【製品】H <sub>2</sub> , CO 【実績規模】～3000t/d/基	【石炭】微粉炭+搬送ガス 高水分・高揮発分炭適 【ガス化】高温(～1500℃) 旋回吹込 【熱分解】中温(1000℃) 【製品】H <sub>2</sub> , CO, CH <sub>4</sub> 【予定規模】～3000t/d/基	
冷ガス効率(推定)	50～65%	70～75%	75～82%	約85%
代表技術	Lurgi炉 Winkler炉	GE炉	Shell炉	ECOPRO®

図2 石炭ガス化技術の分類  
Fig. 2 Advance and categorization of coal gasification technologies

### 3 ECOPRO®による石炭ガス化

#### 3.1 ECOPRO®概要

次にECOPRO®石炭ガス化技術の概要を述べる<sup>6)～8)</sup>。

ECOPRO®の石炭ガス化炉は、上下二室二段式の噴流床ガス化炉である(図3)。この上下二室二段炉は、下段が部分酸化部、上段が熱分解部として構成され、各々に微粉砕した石炭を気流搬送して装入する。

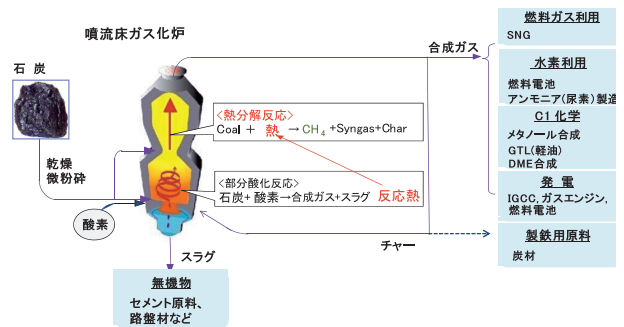


図3 ECOPRO®プロセスの概要  
Fig. 3 Features of ECOPRO® technology

まず、下段の部分酸化部では、微粉炭およびチャーをリサイクルして酸素等により部分酸化させて、一酸化炭素(CO)および水素(H<sub>2</sub>)を主成分とする高温の部分酸化ガスを製造する。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、ガス化炉下部にて冷却後にスラグとして排出する。ガス化炉下段の部分酸化部で製造された高温の部分酸化ガスは、上段の熱分解部に導入される。

次に、ガス化炉上段の熱分解部では、下段からの高温の部分酸化ガスに石炭を吹き込むことによって、石炭が熱分解すると同時に発生ガスが冷却される。この熱分解反応によって、石炭はCOやH<sub>2</sub>の他にCH<sub>4</sub>を含む熱分解ガス(気体)とカーบอนを主体とするチャー(固体)に分解され、部分酸化ガスとともに、炉頂部からガス化炉の系外に排出される。ここで上段石炭中の揮発分が多い程熱分解ガス量が増加することから、褐炭等揮発分が多い石炭はより効率を向上することができる。ECOPRO®は、以上の2段の反応によって、CO、H<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>等を含む合成ガスとチャーを製造するプロセスである。

図4にECOPRO®と他プロセスのガス化効率の

比較を示す<sup>7) 10)</sup>。石炭ガス化プロセスでは、ガス化炉内での石炭部分酸化反応において1300~1500℃程度の高温合成ガスが生成する。この生成ガスが有する顕熱を有効に利用する方法として、従来の噴流床ガス化技術では蒸気として熱回収するのが一般的である。これに対して、ECOPRO<sup>®</sup>石炭ガス化技術は、従来の噴流床ガス化技術に石炭熱分解反応を組み込むことにより、合成ガスの回収効率向上を可能とする新しい技術である。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工程をプロセスに組み入れることにより、従来よりも合成ガス製造効率(冷ガス効率)が高い石炭ガス化技術を実現した。ここで、冷ガス効率とは、石炭の低位発熱量(LHV)を熱量基準として以下の

冷ガス効率 = 製品ガスの熱量 / 投入石炭の熱量  
で表わされる値である。

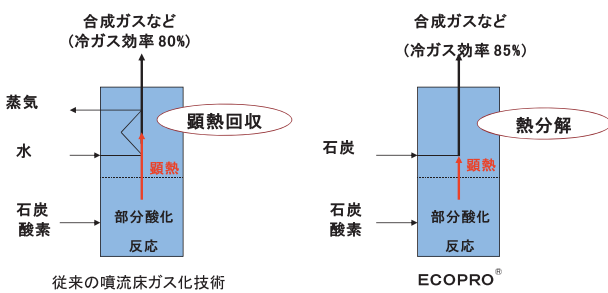


図4 ECOPRO<sup>®</sup>と従来技術の冷ガス効率の比較  
Fig. 4 Comparison of cold gas efficiency of ECOPRO<sup>®</sup> and conventional technology

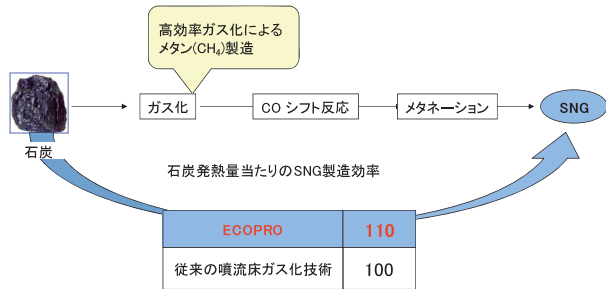


図5 ECOPRO<sup>®</sup>と従来技術のSNG製造効率の比較  
Fig. 5 Comparison of SNG production between ECOPRO<sup>®</sup> and conventional technology

図5に、ECOPRO<sup>®</sup>と従来の噴流床石炭ガス化プロセスによる合成天然ガス(Synthetic Natural Gas: SNG)の製造効率の比較を示す<sup>7) 10)</sup>。従来の噴流床ガス化方式では、石炭をガス化して、COおよびH<sub>2</sub>を含有する合成ガスを製造する場合の冷ガス効率は80%である<sup>10)</sup>。これに対して、ECOPRO<sup>®</sup>では85%

の高い冷ガス効率で合成ガスを製造できる。さらに、ECOPRO<sup>®</sup>の特徴として熱分解反応による合成ガス中のCH<sub>4</sub>含有量が多いことから、発熱反応である後段のCOシフト反応(CO+H<sub>2</sub>O→CO<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>)によるCO/H<sub>2</sub>のモル数比率調整のためのH<sub>2</sub>製造量やメタネーション反応(CO+3H<sub>2</sub>→CH<sub>4</sub>+H<sub>2</sub>O)によるCH<sub>4</sub>製造量が少なく済む。その結果、合成ガスの生成過程におけるSNG(CH<sub>4</sub>)の製造効率(石炭からのガス転換率)が、従来法より約10%高い特徴を有する。

ECOPRO<sup>®</sup>ガス化技術の特徴をまとめると、以下の通り。

- ① 合成ガス(CO、H<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>)を高効率で製造できる。商用規模での冷ガス効率は85%と推算される。
- ② 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、揮発分が多い低品位炭(亜瀝青炭および褐炭)がECOPRO<sup>®</sup>の原料炭として適する。
- ③ 合成天然ガス(SNG)製造においては、他の噴流床ガス化炉に比べて約10%製造効率(石炭からのガス転換率)が高い。

### 3.2 ECOPRO<sup>®</sup>開発経緯

図6にECOPRO<sup>®</sup>石炭ガス化技術の開発経緯を示す<sup>6) 7)</sup>。ECOPRO<sup>®</sup>石炭ガス化技術は、1992年に基礎研究を開始し、1997年には石炭処理量1kg/日規模の小型試験装置(ベンチスケール試験装置)を用いた熱分解反応基礎試験を開始した。その後、1999年よりの1t/日プロセス開発装置(PDU: Process Development Unit)による部分酸化・熱分解の2室2段ガス化プロセス研究を経て、20t/日のパイロットプラントを用いた試験研究を実施し

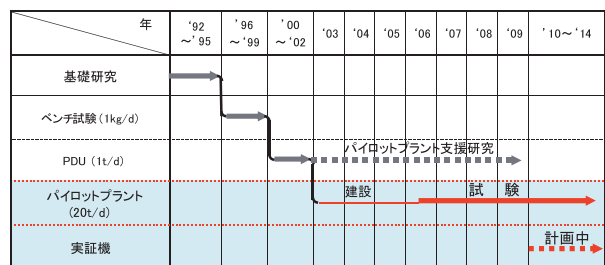


図6 ECOPRO<sup>®</sup>の開発経緯  
Fig. 6 Development experience of ECOPRO<sup>®</sup> technology



た。2006年6月にパイロットプラント試験設備を新日鐵住金(株)八幡製鐵所構内に設置して、2006年9月から2010年3月までの3年半の間、パイロットプラントを使用した開発を行なった。

図7にECOPRO®の開発に使用した試験装置であるベンチスケール試験装置(1kg/d)、PDU(1t/d)、パイロットプラント(20t/d)の外観を各々示す<sup>6)</sup>。現時点では、ECOPRO®石炭ガス化技術の開発は、石炭処理量20t/dのパイロットプラント規模でのプロセス開発を完了し、次期のスケールアップ実証の準備段階にある。

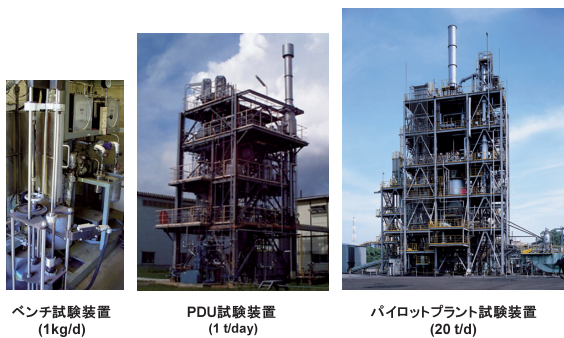


図7 ECOPRO®開発の実験装置(写真)  
Fig. 7 Setups for ECOPRO® development (Photo)

### 3.3 褐炭および亜瀝青炭を用いたガス化試験研究

#### 3.3.1 試験方法

ECOPRO®の低品位炭適用性を検証する為、パイロットプラントにおける試験研究では、褐炭および亜瀝青炭を対象として石炭ガス化試験を行った。パイロットプラントの概要とパイロットプラントで用いた石炭性状を以下に述べる。

図8にECOPRO®パイロットプラントのプロセスフローを示す<sup>6)7)</sup>。パイロットプラントは、石炭の受入からガス精製前の合成ガス製造までを設備範囲とし、石炭受入・粉碎設備、微粉炭供給設備、石炭ガス化設備、チャー回収設備およびガス冷却設備の5つの設備より構成されている。

石炭受入・粉碎設備では、受け入れた石炭にフラックス(融点調整材)を添加した後、粉碎機にて粉碎・乾燥して平均50 $\mu$ m程度の乾燥微粉炭を製造し、微粉炭供給設備に搬送する。次に、微粉炭供給設備では、乾燥微粉炭をロックホッパー方式にて供給ホッパーから連続的にガス化炉の部分酸化部(下段、水冷壁構造)と熱分解部(上段)に各々定量供給

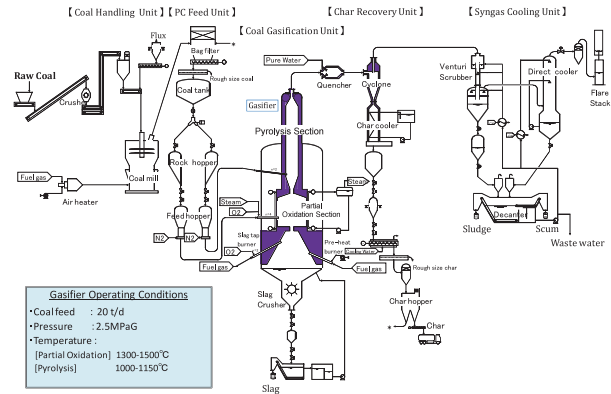


図8 ECOPRO®パイロットプラントのフロー図  
Fig. 8 Process flow diagram of ECOPRO® pilot plant

する。石炭ガス化設備では、ガス化炉は2.5MPaGの圧力条件で、部分酸化部は出口温度1300~1500°Cで、熱分解部は出口温度1000~1150°Cとなるように操作して石炭をガス化する。ここで部分酸化部(下段)の温度・冷ガス効率に影響する操作因子は、下段石炭供給熱量、酸素供給量、融点調整後石炭灰分量と灰分組成(石炭灰分量を操作し水冷壁セルフコーティング層形成による断熱性確保。石炭灰分組成を操作しスラグ排出性を確保。)、熱分解部(上段)の温度・冷ガス効率に影響する操作因子は上段石炭量である。

ガス化炉内で生成した合成ガスおよびチャーはガス化炉上部より排出され、クエンチャーにて700~850°Cまで冷却後、チャー回収設備に送られる。一方、石炭中の灰分は部分酸化部で溶融してスラグとなり、部分酸化部下部のスラグタップより排出、水砕される。その後、スラグはスラグクラッシャーで破碎された後、ロックホッパーを介して大気圧条件のスラグホッパーに排出される。チャー回収設備では、サイクロンにて合成ガスからチャーを分離し、合成ガスはガス冷却設備へと排出される。分離回収されたチャーは、チャークーラーにて250°C以下まで冷却された後、チャーロックホッパーを介して大気圧下まで脱圧し、その後さらに常温まで冷却した後に、チャーホッパーを介して微粉炭供給設備へとリサイクルされる、または外部へ排出される。ガス冷却設備では、微粉チャーが混入している合成ガスをベンチュリースクラバーにて150°C程度まで除塵冷却した後、ダイレクターにて常温まで冷却

し、その後、フレアスタックにて燃焼放散される。一方、ベンチュリースクラバーにて分離された微粉チャーは、デカンターにて沈降分離されて主にスラッジとして排出される。

パイロットプラントでは豪州ビクトリア州産褐炭(A炭)およびインドネシア産の亜瀝青炭(B炭、C炭)を使用した。実験に使用した3炭種の石炭性状を表1に示す。

表1 石炭性状の分析結果  
Table 1 Coal analysis result

			石炭 A		石炭 B (微粉碎後)	石炭 C (微粉碎後)
			原炭	微粉碎後		
工業 分析値	水分	mass%	11.0	4.8	3.5	3.8
	灰分	mass%-dry	1.5	2.0	8.9	3.6
	VM	mass%-dry	50.7	50.6	43.2	48.1
	FC	mass%-dry	47.8	47.4	47.9	48.3
元素 分析値	C	mass%-dry	68.8	68.4	67.8	71.1
	H	mass%-dry	4.8	4.8	4.7	5.2
	N	mass%-dry	0.7	0.7	1.6	1.1
	S	mass%-dry	0.2	0.1	0.9	0.03
	O(差分)	mass%-dry	24.0	24.0	16.2	19.0
	H/C比	mol/mol	0.83	0.84	0.83	0.87
発熱量(HHV/LHV)	MJ/kg(dry)	26.53/24.78	25.5/24.75	28.01/25.66	26.80/26.35	

豪州産の褐炭であるA炭は、事前処理工程で水分を約10%に調整して押出成型により塊化した試料を受入れ、インドネシア産の亜瀝青炭(B炭、C炭)の試料は輸入炭をそのまま受入れた。受け入れた試料はパイロットプラントの石炭ミルを用いて乾燥・粉碎して試験に用いた。

粉碎後の試料の性状から、豪州産の褐炭A炭は、インドネシア産の亜瀝青炭C炭と同様に、揮発分が約50mass%-dryと多いことから熱分解を用いるECOPRO®に適した石炭に分類される。

一方で、冷ガス効率に影響する乾燥炭基準の低位発熱量を比べると、A炭は24.78MJ/kg-dryであり、B炭(25.66MJ/kg-dry)およびC炭(26.35MJ/kg-dry)に比べて低くなっている。これは、A炭の酸素量が24.0mass%-dryで、B炭(16.2mass%-dry)およびC炭(19.0mass%-dry)に比べて多いことに起因している。このため、A炭の試験においては石炭供給熱量(石炭供給量×石炭低位発熱量)の冷ガス効率への影響を確認する計画とした。

石炭中の灰分は、石炭ガス化の運転に大きく影響を与える因子である。まず、灰分量に関してA炭とB炭およびC炭を比較すると、A炭は2.0mass%

-dryとB炭(8.9mass%-dry)およびC炭(3.6mass%-dry)に比べて少ない。このため、A炭では、部分酸化部内でスラグによるセルフコーティング層の安定形成が困難であると推察された。部分酸化部内でのスラグコーティングが十分に形成されない場合は、炉からの熱損失が大きくなり、熱効率の低下が懸念されるため、試験においては、A炭試験時は予めフラックス(融点調整材)を添加し、灰分量を増量した。

各石炭試料の灰分組成の分析値を表2に、各組成における液相と固相の遷移温度を図9に示す。石炭ガス化時に生成するスラグのガス化炉からの排出性に影響を及ぼす因子として、灰分組成がある。灰分組成によってスラグの融点が決定されるので、部分酸化部における運転温度設定のための重要な指標である。そこで、各石炭の粉碎後試料のスラグ融点に関係する主な3つの灰分組成の分析結果を比較すると、SiO<sub>2</sub>成分量では、B炭(50.2mass%)>C炭(32.1mass%)>A炭(29.3mass%)の順でA炭が最も少なく、また、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>成分量もB炭(25.0mass%)>C炭(13.5mass%)>A炭(10.3mass%)の順でA炭が最も少ない。最後のCaO成分量は、C炭(17.3mass%)>A炭(10.0mass%)>B炭(4.2mass%)の順に多い。このように、A炭とB炭およびC炭の灰分組成に差があるため、各石炭の灰分融点も、A炭1215℃、B炭1345℃、C炭1120℃と差がある。このような石炭を用いて石炭ガス化時に生成するスラグをガス化炉から系外に安定的に排出するために

表2 石炭試料灰分の分析結果  
Table 2 Ash analysis result

		石炭 A	石炭 B	石炭 C	
SiO <sub>2</sub>	mass/%	29.3	50.2	32.1	
CaO	mass/%	10.0	4.2	17.3	
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	mass/%	7.1	9.0	15.6	
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	mass/%	10.3	25.0	13.5	
MnO	mass/%	0.1	0.0	0.2	
MgO	mass/%	8.7	1.9	7.3	
TiO <sub>2</sub>	mass/%	0.6	1.0	0.7	
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	mass/%	1.0	0.1	0.4	
SO <sub>3</sub>	mass/%	14.3	2.0	3.0	
K <sub>2</sub> O	mass/%	5.0	2.0	1.1	
Na <sub>2</sub> O	mass/%	5.7	0.8	0.5	
灰分の 溶流温度	Defomation	℃	1165	1245	1115
	Softening	℃	1215	1345	1120
	Flow	℃	1225	1360	1125

は、スラグの融点を部分酸化部(下段)運転温度以下に調整することが重要である。そのため、ガス化により生成するスラグを安定的に系外に排出することを考慮して、灰融点の高いB炭については、灰分の融点調整としてフラックス(融点調整材)を添加し、灰融点を低下させた。

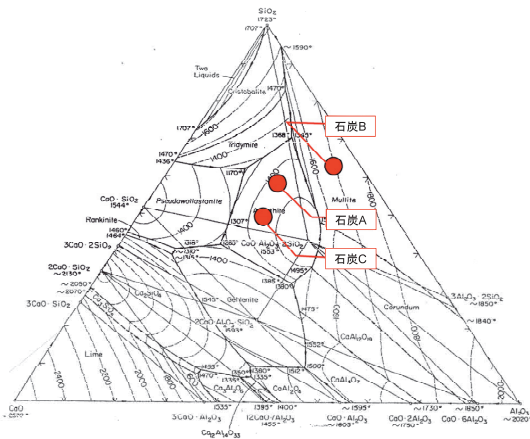


図9 灰分の組成(CaO-SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>三成分系相図)  
Fig. 9 Ash component ((CaO-SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> diagram)

### 3.3.2 パイロットプラント試験結果

パイロットプラント試験では、インドネシア産の亜瀝青炭(B炭およびC炭)を用いて、合計で15回の試験操業を行った。亜瀝青炭を用いた試験操業期間の累計時間は2658hである。また、豪州ビクトリア州産の褐炭(A炭)を用いて3回の試験操業により、合計で443hの試験操業を行った。これらの亜瀝青および褐炭を用いた試験操業は合計で18回であり、試験時間の合計は3101hである。この18回の試験のうち1回は、1ヶ月超となる908時間の連続運転試験をおこなった。これらの試験操業の結果、ECOPRO<sup>®</sup>では褐炭および亜瀝青炭を使用することにより、安定的な運転を実行できることが確認された。

各試験操業時の冷ガス効率について述べる。ECOPRO<sup>®</sup>の実機規模での冷ガス効率は、85%を目標とした。パイロットプラントと実機のガス化炉は反応器の寸法が異なるため、反応器表面からの放散熱に差がある。そこで、パイロットプラントと実機の反応器の表面積の差による放散熱量割合の増加による効率低下(約5%、図10と図11の“熱損失”に該当)と、この放散熱量増によって生じる部分酸化ガ

スの顕熱割合低下に起因する熱分解石炭投入割合の減少による効率低下(約2%、図10と図11の“ガス顕熱”に該当)を実機目標値より差し引いて、パイロットプラントにおける冷ガス効率の目標値を78%に設定した。

表3に、パイロットプラントを使用して各石炭試料をガス化した試験結果を示す。

表3 操業条件が冷ガス効率に及ぼす影響  
Table 3 Effect of cold gas efficiency on operating conditions in coal gasification

	石炭 A		石炭 B	石炭 C
反応圧力 (Mpa(G))	2.5		2.5	2.5
部分酸化部への石炭供給量 (kg/h)	570	625	680	597
熱分解部への石炭供給量 (kg/h)	147	181	158	146
ガス化炉への石炭供給量：合計量 (kg/h)	717	811	838	743
冷ガス効率 (%)	76.9	78.6	79.6	81.3

褐炭であるA炭の試験結果をみると、ガス化炉に供給する石炭量を717kg/hから811kg/h、838kg/hに増加させることにより、冷ガス効率が76.9%から78.6%、79.6%と向上する。この結果、パイロットプラントにてA炭をガス化する場合、供給石炭量800kg/h以上で、目標冷ガス効率78%以上を達成できることがわかった。亜瀝青炭であるB炭およびC炭の場合、石炭供給量が743kg/hまたは707kg/hの条件で、冷ガス効率は各々79.2%および81.3%である。A炭は発熱量が他石炭に比べ低いことから、部分酸化部への石炭供給量をB炭・C炭より1割程度多くすることで冷ガス効率をB炭・C炭と同等とすることができた。

A炭をガス化する場合、B炭やC炭と同等の冷ガス効率を得るためには、ガス化炉表面からの放散熱および炉外へ排出されるガス及びスラグの顕熱が同レベルであると仮定すると、ガス化炉内に投入する石炭供給熱量を同等にすることにより、同様のガス化炉のエネルギーバランスが得られ、その結果、同等の冷ガス効率を達成できるのではないかと推察した。そこで、図10と図11にA炭とB炭のガス化試験におけるエネルギーバランスの計算結果を各々示す。この結果から、ガス化炉内に装入する石炭供給熱量を16×10<sup>3</sup>MJ/hまで増やすことで、ガス化炉のエネルギーバランス、冷ガス効率も同等となるこ



とがわかった。

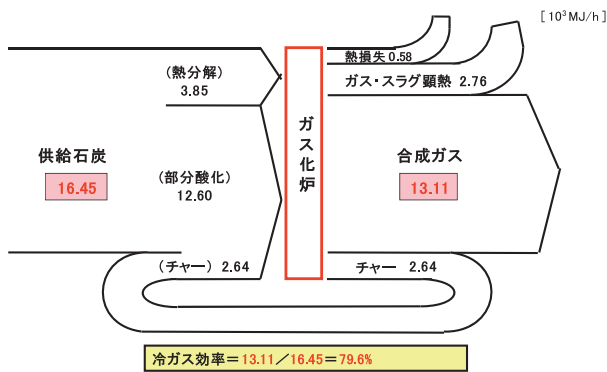


図10 A炭ガス化時のエネルギー収支  
Fig. 10 Energy balance during coal A gasification test

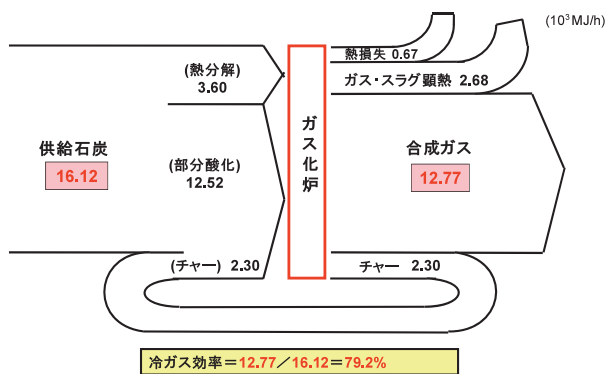


図11 B炭ガス化時のエネルギー収支  
Fig. 11 Energy balance during coal B gasification test

表4 生成ガスの組成  
Table 4 Composition of generated gas  
[Vol.%, N<sub>2</sub> free dry ベース]

	石炭 A	石炭 B	石炭 C
H <sub>2</sub>	27.7	26.8	29.0
CO	54.4	54.5	57.5
CO <sub>2</sub>	14.8	16.0	10.4
CH <sub>4</sub>	3.1	2.7	3.2
H <sub>2</sub> /CO 比率	0.51	0.49	0.50
CO <sub>2</sub> /CO 比率	0.27	0.29	0.18

表4には、各炭種を用いてガス化した場合の生成ガスの組成を示す。分析値はガス化炉内に吹きこむ窒素(N<sub>2</sub>)の影響および生成水の影響を除くために、N<sub>2</sub>と水分を除いた値で示す。A炭の生成ガス組成は、表3における冷ガス効率78%以上を達成した2つの運転条件(石炭供給量811kg/h、838kg/h)における生成ガスの測定値を各々示す。パイロットプラントによるガス化で得られる生成ガスには、3つの特徴がある。1点目は、各炭種において水素と一酸化炭素の容量の比率(H<sub>2</sub>/CO)が概ね0.5となること

である。すなわち、COがH<sub>2</sub>の約2倍の容量生成することとなる。これは各石炭のH/C比(水素と炭素のモル当量比)がほぼ同じことが主たる要因である(表1)。2点目は、CH<sub>4</sub>が概ね3 vol%となることである。CH<sub>4</sub>の濃度については、同じ石炭であれば全投入石炭に対して、熱分解石炭量の投入比率が多いほど多くなる傾向があると考えられる。実機規模では、パイロットプラント規模と比べて炉容積当りの表面積が小さくなるため熱損失割合が減少し部分酸化部出口ガスの顕熱割合が増えることから、熱分解部(上段)石炭量を相対的に増やすことができ、CH<sub>4</sub>の濃度は5 vol%程度になると推算される。3点目は二酸化炭素と一酸化炭素の容量比(CO<sub>2</sub>/CO)は炭種によって異なることである。A炭の試験結果をみると、CO<sub>2</sub>/COは0.27~0.29であり、B炭(0.18)およびC炭(0.19)に比べて約1.5倍高い。この原因は、A炭は石炭に含まれる酸素濃度が高いことによるものと推察される。

図12に、各石炭ガス化時の冷ガス効率と酸素/石炭の質量比(O<sub>2</sub>/Coal)の関係を示す。

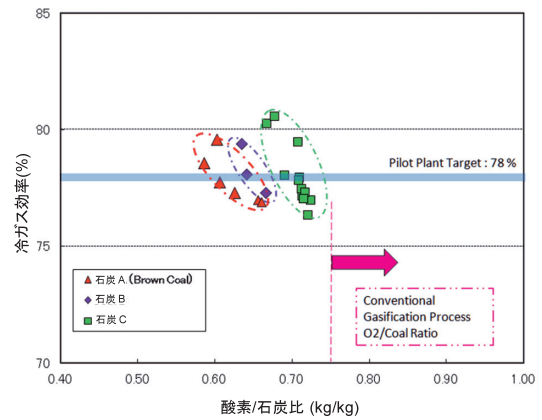


図12 石炭ガス化時の酸素/石炭比と冷ガス効率の関係  
Fig. 12 Effects of cold gas efficiency on O<sub>2</sub>/coal ratio in coal gasification

石炭ガス化においては、一般的にガス化反応率(石炭中カーボンのガスへの転換率)が低下しない範囲において、酸素/石炭比が低くなるほど冷ガス効率が高くなる。

ECOPRO<sup>®</sup>石炭ガス化技術は、ガス化炉下段の部分酸化部に加えて、ガス化炉上段において無酸素条件で石炭を熱分解するプロセスを有しているため、従来の噴流床ガス化技術と比べて、酸素/石炭比



(部分酸化部と改質部の全投入石炭ベース)が従来技術の標準である0.75より低い条件でも安定的なガス化反応が可能である。褐炭 A 炭を使用した実験の結果、酸素/石炭の質量比≒0.6にて目標エネルギー効率78%が達成できることが確認された。

以上のパイロットプラントによる試験操業の結果、適用できる石炭の炭種拡大が可能になった。図13は、ECOPRO<sup>®</sup>プロセスに適用可能な炭種をコールバンドで示した図である<sup>7)</sup>。ECOPRO<sup>®</sup>は褐炭、亜瀝青炭を含む幅広い低石炭化度炭のガス化において、高い冷ガス効率で、安定的な操業を実行できることが検証された。

今後は、数百 t/d 規模の実証機ステージを経て、1,000～3,000t/d 規模の商用機の前段としてスケールアップ実証を計画している。

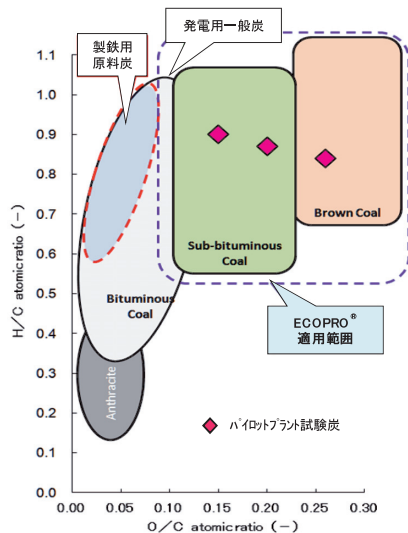


図13 ECOPRO<sup>®</sup>に適用可能な石炭範囲  
Fig. 13 Raw coals for ECOPRO<sup>®</sup> process

### 3.4 今後のスケールアップ実証、商業化について

今後のスケールアップ～実証機の建設に向けた検討課題として、ガス化炉内での流動および石炭粒子挙動の把握、炉内伝熱の予測、部分酸化および熱分解反応の把握などがある。これらの課題について、実証機サイズの亚克力製試験装置を用いたコールドモデル試験、部分酸化バーナー燃焼試験、および、シミュレーションモデルの構築ならびにシミュレーション解析を実施した内容については、既報の論文<sup>7)</sup>を参照頂きたい。現在スケールアップ実証サイトを検討中である。

商業段階において ECOPRO<sup>®</sup>をマーケットに投入するためには生成ガス有効利用が必要であり、その一例として石炭ガス化を核とする多様なクリーンコールテクノロジーモデルの概要を図14に示す。この図は、石炭ガス化を中心に各産業間で連携して多様なクリーンコール技術を利用するコンセプトを表したものである。石炭をクリーン・高効率に各種用途に転換する為のコア技術として、かつ将来 CO<sub>2</sub>固定化用として高圧下で効率よく CO<sub>2</sub>を分離・回収する為の排出源としても、石炭ガス化技術の進歩は重要である。今後、さらに詳細な検討を進め、幅広い炭種に対応可能な新しい石炭ガス化技術を開発する予定である。

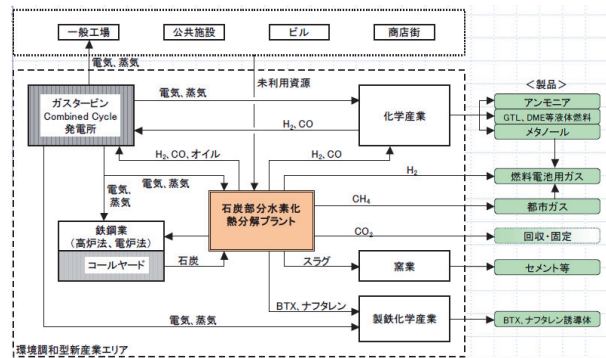


図14 石炭ガス化を核とする多様なクリーンコールテクノロジーモデル  
Fig. 14 Diversified project modeling of clean coal technology with a core of coal gasification

## 4 結言

本論文では、当社石炭ガス化技術(ECOPRO<sup>®</sup>)による褐炭および亜瀝青炭などの石炭ガス技術開発の内容を紹介した。ECOPRO<sup>®</sup>は低品位炭に適用可能な高効率ガス化炉であり、今後はその実証・商業化を推進することで、石炭利用における重要な課題である低品位炭利用と環境問題解決に貢献できるものとする。また、ECOPRO<sup>®</sup>を含め製鉄業で蓄積してきた石炭関連技術(乾燥、乾留、熱分解、水素化、燃焼、成型等)を応用し、従来使用不可能な石炭を有効利用する技術開発、環境汚染防止、および省エネルギー技術を強力に推進するとともに、石炭性状を適切に評価した上で、その石炭に最も適した使い方をユーザーに提案していきたい。

参考文献

- 1) D. W. Krevelen, Coal, Elsevier, pp. 111–119, 1981
- 2) 木村英雄, 藤井修治, 石炭 化学と工業, 三共出版, pp. 1–4, 1984
- 3) 鈴木庸一, 真下清, 山口達明, 有機資源化学, 三共出版, pp. 2–7, 2005
- 4) 持田勲編著, クリーン・コールテクノロジー, 工業調査会, pp. 37–42, 2008
- 5) 野村正勝, 三浦孝一, 鈴木俊光, 薄井洋基: “21世紀を担うクリーンコールテクノロジー”, 大阪大学出版会, (2004)
- 6) 並木泰樹, 石炭利用の最新技術と展望, シーエムシー出版, pp. 157–166, 2009
- 7) 小菅克志, 糸永真須美, 武田卓, 小水流広行, 並木泰樹, 日エネ誌, 90, 404–410 (2011)
- 8) 小菅克志, 糸永真須美, 武田卓, 小水流広行, 並木泰樹: 新日鉄エンジニアリング技報, (2011)
- 9) 加藤健次, 粉体技術, 6, 289–294, 2014
- 10) DOE/NETL, “Cost and Performance baseline for Fossil Energy Plants vol. 3a: Low Rank Coal to Electricity: IGCC Gas”, pp. 99–100, 2011