

平成6年度天然ガス高度
開発有効利用調査等委託
石炭水添ガス化技術開発調査
委託業務報告書

平成7年3月

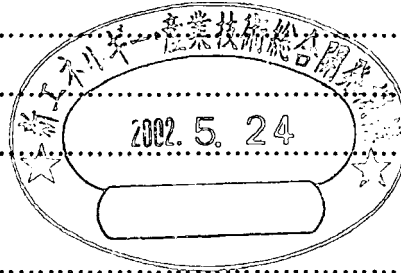
12
88
NEDO 図書・資料室 エネルギー・産業技術総合開発機構



010019800-1

目 次

まえがき	1
業務の実施計画	2
1. 業務の目的	2
2. 業務の内容	2
3. 業務の実施方法	2
4. 業務の実施期間	3
5. 委員会委員および担当者	4
業務成果	6
第1章 石炭水添ガス化技術開発の重要性	6
1. 1 石炭利用SNGの必要性	6
1. 1. 1 原料多様化	6
1. 1. 2 石炭利用SNG工場	19
1. 2 ARCHプロセスの優位性	32
1. 2. 1 経済性	32
1. 2. 2 環境適合性	52
1. 3 まとめ	77
第2章 ARCHプロセスの開発	79
2. 1 ARCHプロセスの基本概念	79
2. 1. 1 石炭水添ガス化法とは	79
2. 1. 2 石炭水添ガス化反応とは	81
2. 1. 3 ARCHプロセスの新規性	82
2. 2 全体開発計画	85
2. 2. 1 反応器のスケールアップ	85
2. 2. 2 全体開発計画	85
2. 2. 3 開発の進め方	91
2. 3 酸素・水素バーナーの開発計画	92
2. 3. 1 開発手法	92



2. 3. 2	バーナーの構造検討	93
2. 3. 3	水素・酸素の着火燃焼特性の把握	100
2. 4	インジェクター開発計画	117
2. 4. 1	水素・酸素バーナー搭載型インジェクター開発	118
2. 4. 2	コールドモデルテスト	121
2. 4. 3	ホットモデルテスト	123
2. 5	液収率向上のためのスタディ	126
2. 5. 1	反応器性能のシミュレーションモデルによる予測	126
2. 6	レーザーシート法による反応器流れの解析	145
2. 6. 1	概要	145
2. 6. 2	高速度ビデオ画像とその補正についての検討	145
2. 6. 3	ARCH反応器内流れの解明	151
2. 6. 4	結論	172
2. 7	チャー流動層伝熱特性の把握	175
2. 7. 1	流動層伝熱試験に関する基本的概念	175
2. 7. 2	伝熱基礎試験	177
2. 8	まとめ	184
第3章	ガス化技術の開発動向と将来展望	188
3. 1	世界の石炭ガス化技術の開発動向	188
3. 2	開発推進と国際協力	197
第4章	5年間の総括	200
4. 1	石炭からの代替天然ガス製造の必要性	201
4. 2	石炭利用代替天然ガス製造技術開発導入の意義	206
4. 3	石炭利用代替天然ガス製造技術開発の重要性	209
4. 4	ARCHプロセスの開発	220
(参考資料)	海外調査報告要旨	227

近年、都市ガス業界においては、原料の天然ガスへの転換が大手都市ガス会社で急速に進み、さらには地方都市ガス会社での天然ガス導入を促進するに及んでいる。我が国では、天然ガスのほとんどを液化天然ガス（LNG）として輸入に依存している。LNGの消費量は着実に増加しており、都市ガス用としても大きな増加が予想されている。

一方、代替天然ガス（SNG）を製造する技術は実用化されているが、LNG価格に対するバネゲーションとなりうるような経済性に優れ、かつ環境面からも受け入れられるSNG製造プロセスはいまだなく、これを確立する必要がある。

石炭は化石燃料の中で埋蔵量が最も豊富で、世界に幅広く分布しているエネルギー源であり、その価格も比較的安定的である。したがって、石炭を原料とした高効率で環境面でも優れたSNG製造プロセスが開発できれば、長期的な都市エネルギーの安定供給に大きく寄与することが期待できる。

「石炭水添ガス化技術開発調査」は、このような背景のもとに、通商産業省資源エネルギー庁からNEDOに委託されたものであり、以下に示す業務の実施計画に従い、調査を行なった。

平成2年度、3年度は、石炭からSNGを製造することの必要性、石炭水添ガス化プロセスを含むSNG製造プロセスの調査、基本的なSNG製造プロセスのフェーズビレイアウト・スタディ、要素技術の調査・評価、開発課題の抽出、パイロットプラントの基本構想、実用化のスケジュール等基本的な事項について検討した。

平成4年度は、さらに調査を継続して石炭水添ガス化の新しいプロセスの開発において液収率向上および顕熱利用に関する可能性を検討し、我が国が開発すべき石炭水添ガス化プロセス（ARCHプロセス）の概念を提言した。

平成5年度は、このプロセスのパイロットプラントを設計・建設するために残されている要素開発項目を抽出し、パイロットプラントの運転研究に至るまでの開発計画について検討した。

平成6年度は、5年間の調査結果をまとめ、スムーズに要素研究に移行するための準備スタディを実施した。

本報告書は平成6年度の業務を報告するものであり、本調査の取りまとめに当たっては、多くの方々にご協力を頂いた。ここに深く感謝申し上げる次第である。

業 務 の 実 施 計 画

1. 業務の目的

近年、都市ガス業界においては、原料の天然ガスへの転換が大手都市ガス会社で急速に進み、さらには地方都市ガス会社での天然ガス導入を促進するに及んでいる。我が国では、天然ガスのほとんどを液化天然ガス（LNG）として輸入に依存している。LNGの消費量は着実に増加しており、都市ガス用としても大きな増加が予想されている。

一方、代替天然ガス（SNG）を製造する技術は実用化されてはいるが、LNG価格に対するバーゲニングパワーとなりうるような経済性に優れ、かつ環境面からも受け入れられるSNG製造プロセスはいまだなく、これを確立する必要がある。

石炭は化石燃料の中で埋蔵量が最も豊富で、世界に幅広く分布しているエネルギー源であり、その価格も比較的安定している。したがって、石炭を原料とした高効率で環境面でも優れたSNG製造プロセスが開発できれば、長期的な都市エネルギーの安定供給に大きく寄与することが期待できる。

最近、開発研究が行われている石炭水添ガス化プロセスは、石炭を水素でガス化してSNG原料となるメタンを主に生産するほか、BTX等の芳香族油を副生するものである。本年度の調査では、5年間の調査結果をまとめ、スムーズに要素研究に移行するための準備スタディとして、新規反応器開発計画を具体化してゆく。

2. 業務の内容

平成6年度は、次のような項目で調査を実施する。

- (1) 石炭水添ガス化技術開発の重要性
- (2) ARCHプロセスの開発
- (3) ガス化技術の開発動向と将来展望
- (4) 5年間の総括

3. 業務の実施方法

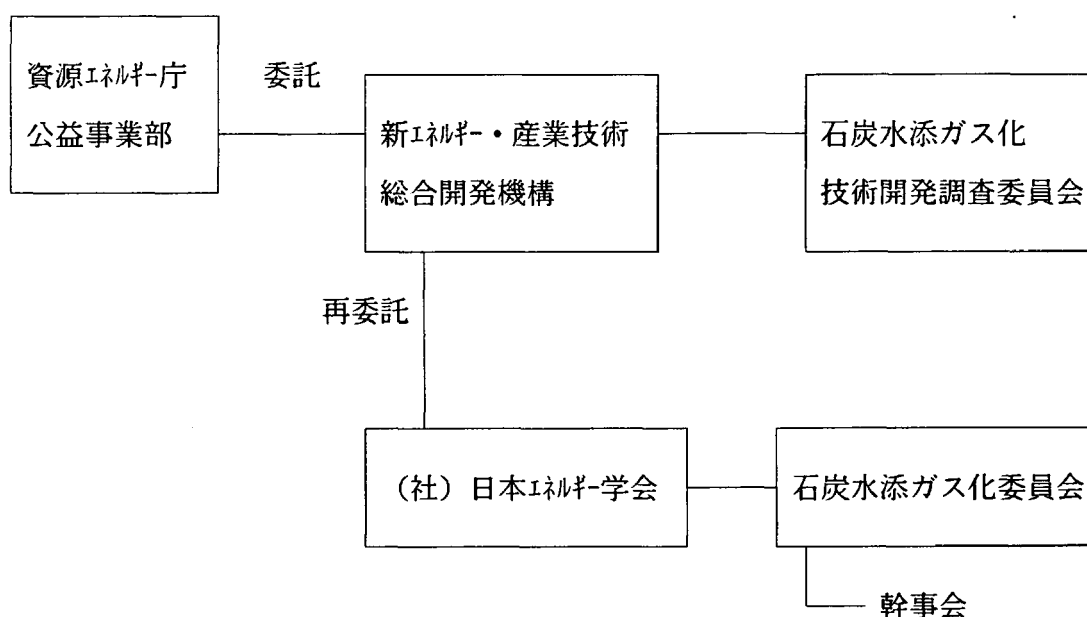
本調査を実施するために、「石炭水添ガス化技術開発調査委員会」をNEDO内に設置した。委員会は以下の役割りを負う。

- (1) 石炭の水添ガス化技術開発に関し、検討すべき課題の調査、選定を行う。

- (2) 選定された課題について技術的、経済的な見地から、国内外の調査を行う。
- (3) これら調査に基づき、水添ガス化技術開発の必要性等について、審議を行う。
- (4) 技術開発の進め方について検討し、パイロットプラントの基本構想および実用化スケジュール等を提案する。

また、技術計算やプロセス評価等の実務的な調査は、外部の機関である（社）日本エネルギー学会に再委託した。（社）日本エネルギー学会は「石炭水添ガス化委員会」を設置し、調査および検討を行った。また、（社）日本エネルギー学会の「石炭水添ガス化委員会」の委員の一部と事務局から構成する幹事会組織を設けて、推進役として調査内容の詳細について調整・検討を行った。

調査体制を下図に示す。



4. 業務の実施期間

平成6年4月1日 から 平成7年3月31日 まで

5. 委員会委員および担当者

5. 1 石炭水添ガス化技術開発調査委員会委員

委員長	橋 本 健 治	京都大学 教授
委 員	生 田 義 明	三菱重工(株) 化学プラント技術センター主管
”	海 保 守	資源環境技術総合研究所 ガス化研究室長
”	加 藤 勝 二 郎	東邦ガス(株) 総合技術研究所総括
”	北 野 邦 尋	北海道工業技術研究所 主任研究官
”	小 林 繁 鋪	東京電力(株) 開発研究所石炭研究室長
”	鈴 木 耕 三	大阪ガス(株) 開発研究所長
”	津 留 義 通	(社)日本エネルギー学会 専務理事
”	富 田 彰	東北大学 教授
”	疋 田 知 士	(社)日本ガス協会 技術開発部担当部長
”	藤 元 薫	東京大学 教授
”	村 上 昌 三	新日本製鉄(株) 生産技術部担当部長
”	持 田 勲	九州大学 教授
”	山 田 猛 雄	出光興産(株) 新燃料部次長

(委員の変更等)

・平成6年4月	東邦ガス(株)	竹中委員 → 加藤委員
・平成6年4月	(財)石炭利用総合センター	志鷹委員 退任
・平成6年7月	大阪ガス(株)	浅岡委員 → 鈴木委員
・平成6年7月	(社)日本ガス協会	北川委員 → 疋田委員

5. 2 石炭水添ガス化委員会委員

委員長	海 保 守	資源環境技術総合研究所 ガス化研究室長
委 員	青 木 猛	東邦ガス(株) 総合技術研究所課長
”	浅 岡 善 清	大阪ガス(株) R & D企画部プロジェクト室長
”	朝 倉 光 雄	三菱重工業(株) 化学プラント技術センターマネージャー
”	河 村 隆 文	新日本製鉄(株) プロセス技術研究所主任研究員
”	武 松 敏 式	岩谷産業(株) 技術保安本部副本部長
”	二 見 英 雄	(社)日本ガス協会 技術開発部マネージャー

委員	橋 本 涼 一	東京ガス(株) 技術企画部副部長
〃	堀 尾 正 毅	東京農工大 教授
〃	松 本 仔 郎	九州工業技術研究所 主任研究官
〃	三 浦 孝 一	京都大学 教授
〃	森 滋 勝	名古屋大学 教授
〃	山 田 理	資源環境技術総合研究所 主任研究官

(委員の変更等)

・平成6年4月	三菱重工業(株)	福田委員	退任
・平成6年4月	東邦ガス(株)	加藤委員	→青木委員
・平成6年7月	資源環境技術総合研究所	牧野委員	→山田委員
・平成6年7月	東京ガス(株)	瀬尾委員	→橋本委員
・平成6年7月	大阪ガス(株)	松井委員	→浅岡委員

5. 3 N E D O担当者

新エネルギー・産業技術総合開発機構 クリーン・コール・テクノロジー・センター技術開発室

野 村 和 夫	主任研究員
小 林 清 孝	主査

第1章 石炭水添ガス化技術開発の重要性

1. 1 石炭利用SNGの必要性

1. 1. 1 原料多様化

(1) 原料多様化の必要性

エネルギーの安定供給の確保という根源的要請、地球環境問題への対応という近年新たに注目をあびている要請に加え、エネルギーの供給の効率化等の要請が高まっている。

こうした状況の下、平成5年12月、総合エネルギー調査会基本政策小委員会ではエネルギー需給安定化対策のあり方やエネルギー供給体制に係わる規制のあり方について検討し、今後のエネルギー政策の基本理念、進むべき方向などについて提言を行っている。また、同調査会都市熱エネルギー部会では平成6年1月、都市ガスの安定供給と保安の確保というガス事業の基本的使命に加え、競争原理の導入や需要家のエネルギー選択肢の拡大に対する要請の高まりをふまえて、今後のガス事業のあり方について審議し、提言を行っている。なお、同調査会需給部会では、平成6年6月に「長期エネルギー需給見通し」の見直しを行っている。

一方、石油審議会開発部会 石油・天然ガス開発小委員会では、LNGをめぐる環境の変化を分析し、天然ガス開発の課題と対応の方向、ならびに我が国における天然ガス安定供給確保のための課題と対応の方向について取りまとめている。

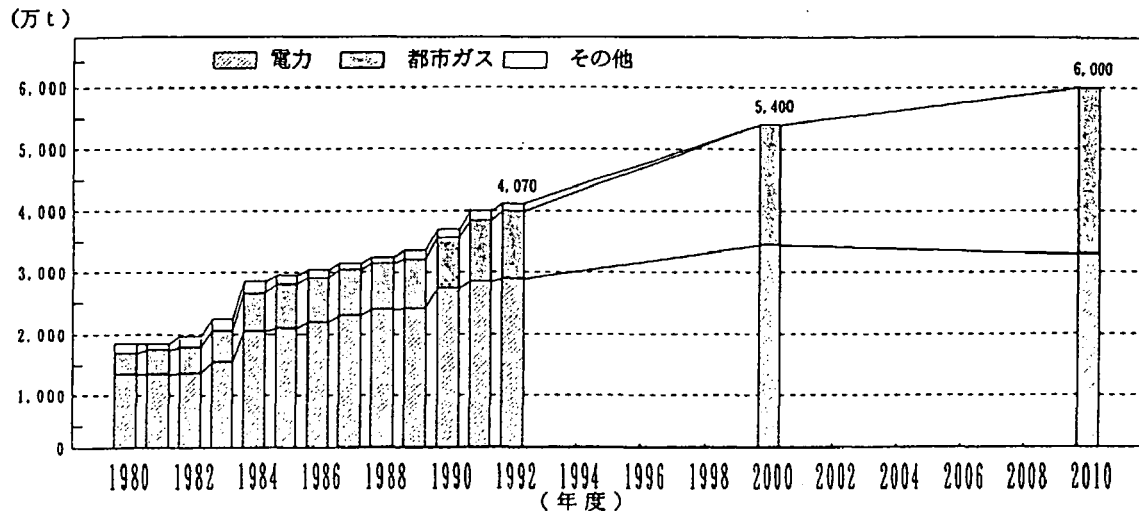
都市ガス原料の天然ガス化の進展にともない、都市ガス原料のLNGへの依存は高まってきており、価格安定やセキュリティ等の観点からの検討が必要となっている。上記の審議会の提言をふまえ、都市ガスをはじめとするガス体燃料の原料としての石炭の長期的位置づけを見通し、石炭から天然ガス相当のガスを製造する技術、即ち石炭利用SNG技術の開発の重要性について検討する。

a) LNGの需要見通し

天然ガスは、燃焼にともない発生するCO₂が少なく、ガス体燃料であることからエネルギー利用効率の向上やNO_xの削減をはかり易く、かつSO_x等の排出のないエネルギーである。地球環境ならびに地域環境の保全の要請にかなうことより、電力用とガス用を中心に我が国のLNG需要は拡大してきている。第1.1.1-1 図に示すように今後とも堅実な需要の伸びが見込まれている。

殊にガス用としては、ガスや電力の供給システムに係わる規制の緩和等を受け、工業需

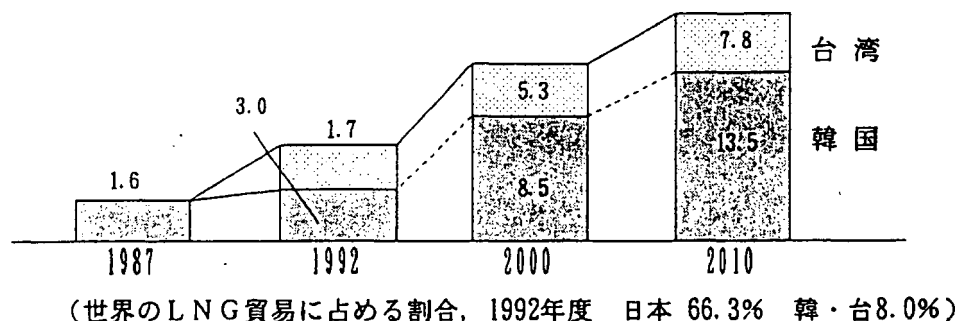
要の拡大はもとより、ガスタービン、ガスエンジン、燃料電池等による分散型発電の新設によるコージェネレーション需要の増大が見込まれる。また、将来天然ガスパイプライン網が実現した時には、更に大幅な天然ガス需要の増大が予想される。



出典：総合エネルギー統計

第1.1.1-1 図 天然ガス需要の見通し

一方、かつて我が国は極東市場において唯一のLNG輸入国であったが、80年代後半より韓国や台湾が輸入国として参入してきており、第1.1.1-2 図のように今後その需要の大幅な伸びが予想されている。すなわち、我が国のエネルギー事情のみを反映しやすかった従来のLNG市場から、韓国や台湾のエネルギー事情や取引行動を反映する市場に変わっていく状況といえる。



出典：石油・天然ガス開発小委員会資料

第1.1.1-2 図 韓国、台湾におけるLNG需要の見通し (単位百万トン)

また、環境問題の世界的な広がりの下、欧州諸国においても、最近発電用燃料として、従来の原子力や石炭に対する天然ガス火力の比率が高まることも予想されており、新規のガス源として、アフリカやロシアに加え、部分的にはカタール、オマーン等の中東に向かうものと予想されている。環太平洋圏のみならず、欧州をも含めた国際市場でのLNGの競合が予測される。

b) LNGの供給見通し（開発環境の変化）

供給サイドの見通しについてみると、今後新たに開発されるガス田は資源としての環境、また投資対象としての環境が悪化する兆しを見せている。

先ず資源環境に関する変化についてみると、第1.1.1-1 表に例示したように、①ガス田が氷海、深海等に存在するといった自然条件の過酷化、②CO₂等の不純物を多く含有するという品質的な条件の低下、③生産井1本当たりの生産性が低いという地質的条件の低下、④港湾等のインフラが未整備、といった環境の悪化が予想される。

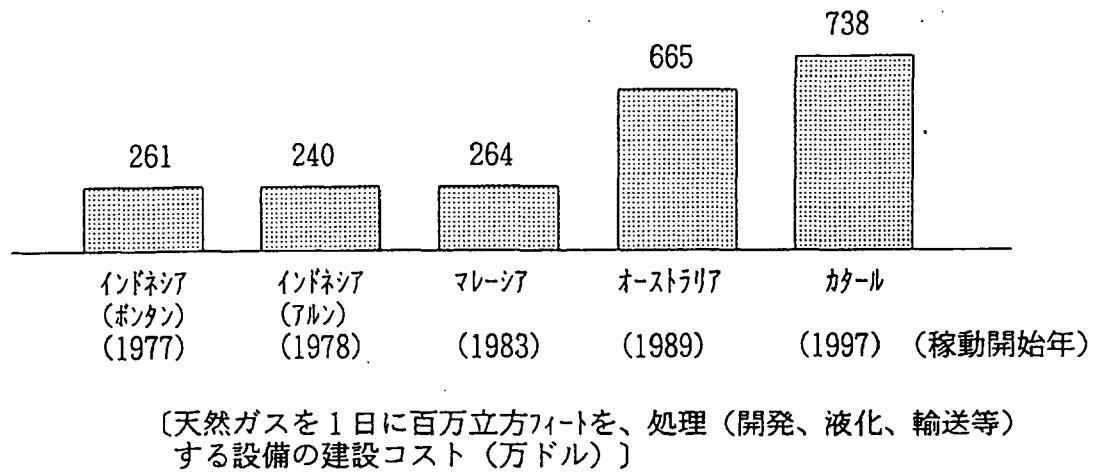
第1.1.1-1 表 予想される新規LNGプロジェクトの問題点

氷海（サハリン）	}	厳しい自然条件
深海（オーストラリア）		
密林地帯（PNG）		
高濃度炭酸ガス（ナツナ）	}	低生産性・低品質
小規模埋蔵量（オーストラリア）		
長距離パイプライン（アラスカ、サハリン、PNG、オマーン）	—	インフラ未整備
長距離海上輸送（オマーン、イエメン、カタール）	—	地理的条件

出典：石油・天然ガス開発小委員会資料

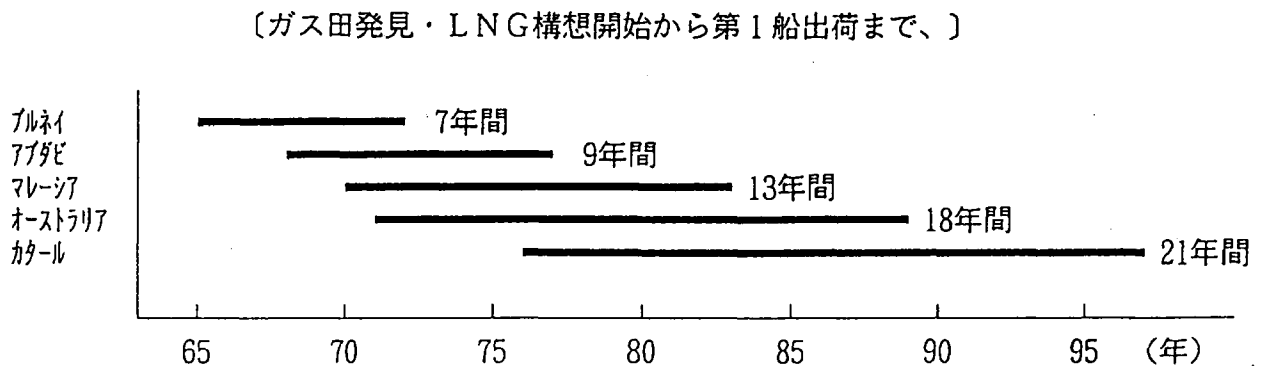
次に、投資環境の変化については、①もとより巨額の資金を要する事業であることに加え、第1.1.1-3 図のようにその所要資金が増加傾向にあること、②ガス田発見、LNG構想開始から第1船出荷までの期間が最近のプロジェクトでは、第1.1.1-4 図に示すように20年程度と長期化してきていること、③アクセスの容易であったアジア太平洋地域の資源環境の悪化に伴い、今後は埋蔵量の大きな中東やロシア等での開発が不可避となることにより、カントリーリスクが増大すること、④資金調達が困難となっていること、等の環境の悪化が見込まれる。

こうしたLNGの開発に関わる環境の悪化は、価格上昇や供給不安定の引き金となることが予測される。



出典：石油・天然ガス開発小委員会資料

第1.1.1-3 図 LNGプラント建設コストの比較



出典：石油・天然ガス開発小委員会資料

第1.1.1-4 図 既存のLNGプロジェクトのリードタイム

c) 都市ガス原料のLNG依存

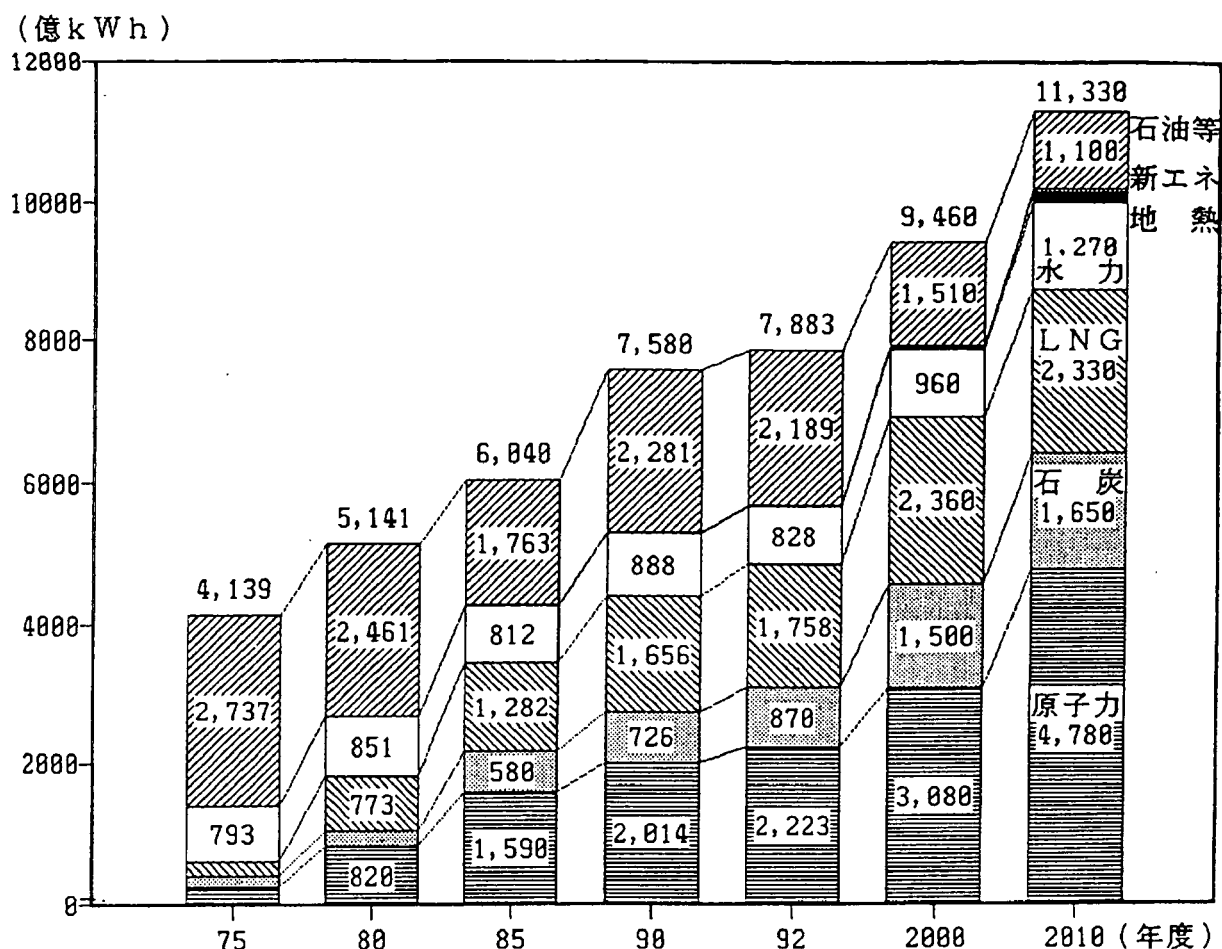
都市ガス原料としてLNGを利用してから既に20余年を経て、天然ガス系のものが原料に占める割合は、第1.1.1-2表に示すように93年度で79.2%、LNGとしては73.6%に達している。産業用やコージェネの分野を中心とした需要の伸びとともに、その比率はさらに高まることが見込まれる。

第1.1.1-2 表 都市ガスの原料構成の推移

年 度	'70	'75	'80	'85	'90	'92	'93
ガス生産・購入量 (百万 m^3 ($10^4\text{kcal}/\text{m}^3$))	5,189	7,860	10,065	12,726	15,878	18,220	19,615
天然ガス系 %	15	34	52	66	76	78	79
石 油 系 %	48	44	35	25	21	20	19
石 炭 系 %	37	22	13	9	3	2	2
(参考) LNG購入量 (万 t)	24	159	342	557	806	950	1,040

出典：ガス事業統計年報

一方、電力業界においては、第1.1.1-5 図に見るように原子力を中心とし、石油、石炭、LNGといった化石燃料、その他をバランス良く配分した原料構成をとり、価格交渉力の確保やセキュリティ対策、あるいはCO₂原単位の調整等に努めている。こうした電力業界の電源構成を見るまでもなく、都市ガス原料調達の改善の必要性は否めない。



出典：電事審需給部会資料

第1.1.1-5 図 電源別発電電力量の構成比（9電力、他社受電含む）

d) セキュリティ対策等の必要性

環太平洋圏のみならず、欧州をも巻き込んだ世界的なLNG市場での競合が予想される一方、供給サイドの環境悪化が見込まれるなかで、国内の天然ガス需要の増大に対し価格ならびに供給の安定確保に努めることは、我が国のエネルギー政策の推進に貢献することとなろう。従って、都市エネルギーの中核を担う都市ガスのLNG依存の増大については速やかに改善を図る必要があり、石油依存度の低減に努めながら、化石燃料の供給オプションの多様化に努めることが重要である。

即ち、産ガス国等との価格交渉力ならびにセキュリティの確保のため、原料の多様化を図るための技術を確保し、その実用化を推進することが肝要である。

e) 石炭の供給拡大の重要性

化石燃料の供給オプションの多様化策としては、第1.1.1-3 表に見るように可採年数が

219 年と長く資源埋蔵量が最も多い、既存地域の政情が比較的安定した、また開発のリードタイムが2～3年と短い、石炭の拡大が最も有望である。

しかしながら、第1.1.1-4 表の1次エネルギーの長期供給見通しに示すように、石炭については、その利用にあたっての環境対策の負担等から供給量の伸びは十分とは云い難く、石炭利用を促進するため、環境負荷の少ないプロセス開発のための技術開発をなお一層推進することが重要である。

第1.1.1-3 表 世界のエネルギー資源確認可採埋蔵量

	資 源 量	可採年数
石 油	9,970億バーレル	45年
天然ガス	138兆m ³	64年
石 炭	10,392億トン	219年
ウ ラ ン *	200万トン	74年

(* 共産圏を除く)

出典：第15回世界エネルギー会議資料

第1.1.1-4 表 1次エネルギー供給の見通し

年 度	1992	2000		2010	
		現行施策織り込みケース	新規施策追加ケース	現行施策織り込みケース	新規施策追加ケース
一次エネルギー総供給 (百万kl)	541	589	582	660	635
石 油 (百万kl)	315 58.2%	315 53.5%	309 53.1%	331 50.1%	302 47.7%
石 炭 (万トン)	11,630 16.1%	13,400 16.6%	13,000 16.5%	14,000 15.4%	13,400 15.3%
天 然 ガ ス (万トン)	4,070 10.6%	5,400 12.8%	5,320 12.8%	6,000 12.8%	5,800 12.8%
原子力、水力(億kWh)	3,020 13.8%	3,960 15.2%	3,960 15.4%	5,850 19.4%	5,850 20.2%
地熱、新エネルギー等 (万kl)	725 1.3%	980 1.7%	1,240 2.2%	1,470 2.2%	2,460 3.9%

(注) 各欄右側の数値は、各エネルギーが一次エネルギー総供給に占めるウェイト

出典：総合エネ調需給部会資料

f) 石炭利用 SNG 技術開発への取り組み

総合エネルギー調査会基本政策小委員会、ならびに都市熱エネルギー部会では、利用可能なエネルギーの範囲を拡大し多様化に取組み、都市ガスの安定供給を確保するために、「石炭水添ガス化等の新規技術開発に取組んでいくことが必要」と提言している。

増大する天然ガスの需要に応えながら、国のエネルギー需要構造の改善ならびにセキュリティ対策に呼応し、また事業者責任として価格安定と安定供給に努める意味からも、安価な原料を安定して調達しながら原料構成の改善に努めることが、都市ガス事業者には望まれる。

したがって、熱効率の高い、環境に十分配慮した、石炭から天然ガス同等のガスを製造するプロセスの開発を、石炭利用水素製造技術（HYCOL 技術）や、都市ガス業界をはじめとする関連業界の技術を活用して、官民一体となって推進することが重要である。

(2) その他の原料

前節において、石炭利用 SNG 製造技術の重要性を検討したが、ここでは、その他の原料として、天然ガスに比肩しうる資源量が推算されている非在来型天然ガスとしてコールベッドメタンおよびメタンハイドレートについて、また、重質炭化水素資源としてベネズエラに産するオリマルジョンについて調査した結果を記す。

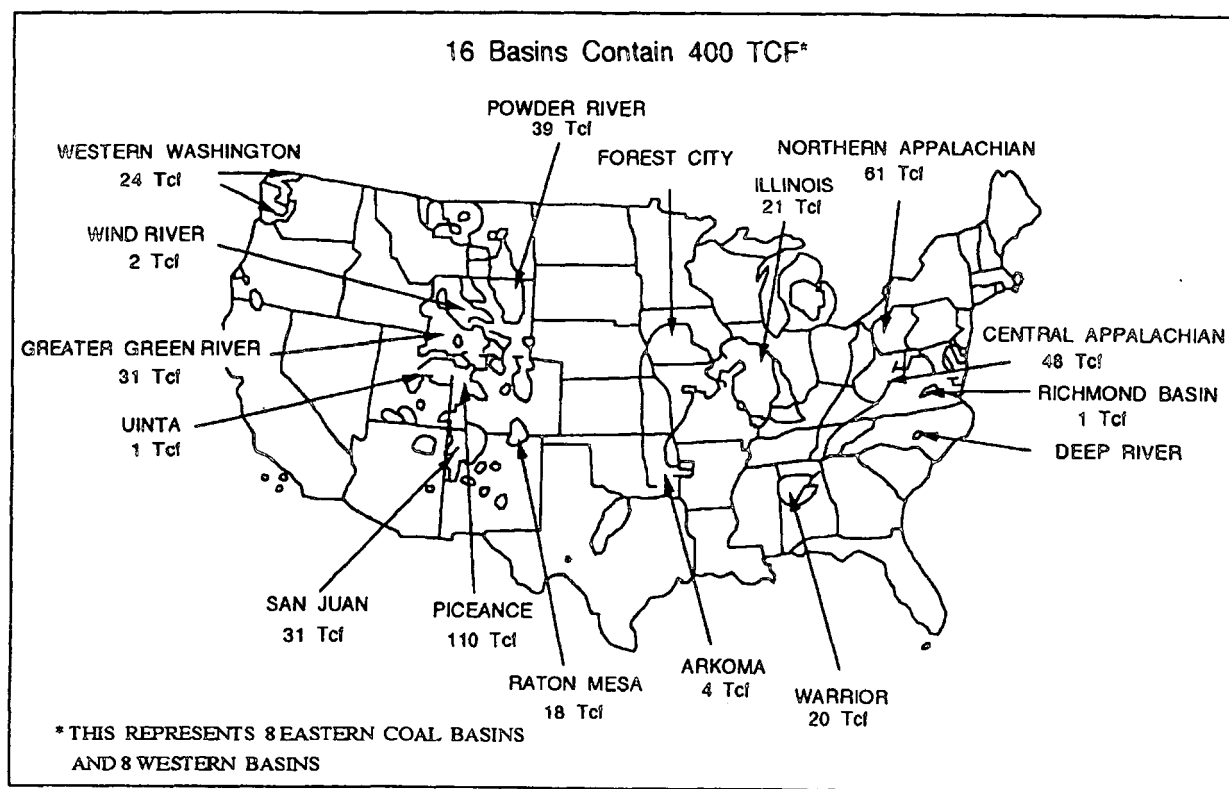
a) コールベッドメタン

石炭に吸着あるいは石炭の孔隙や割れ目中を満たす状態で石炭層中に存在するメタンを主成分とするガスである。いくつかの国について石炭の埋蔵量等から一定の仮定に基づいて算出されたコールベッドメタン資源量を第1.1.1-5 表に示した。

現在までにコールベッドメタンの開発が実際に行われているのは米国においてのみである。第1.1.1-6 図に米国のコールベッドメタン資源の賦存状況を示した。1977 年から10年計画で基礎研究からフィールドテストを実施し、1989年までに San Juan 炭田だけでも 400 にのぼるコールベッドメタン井が

第1.1.1-5 表 コールベッドメタンの推定資源量

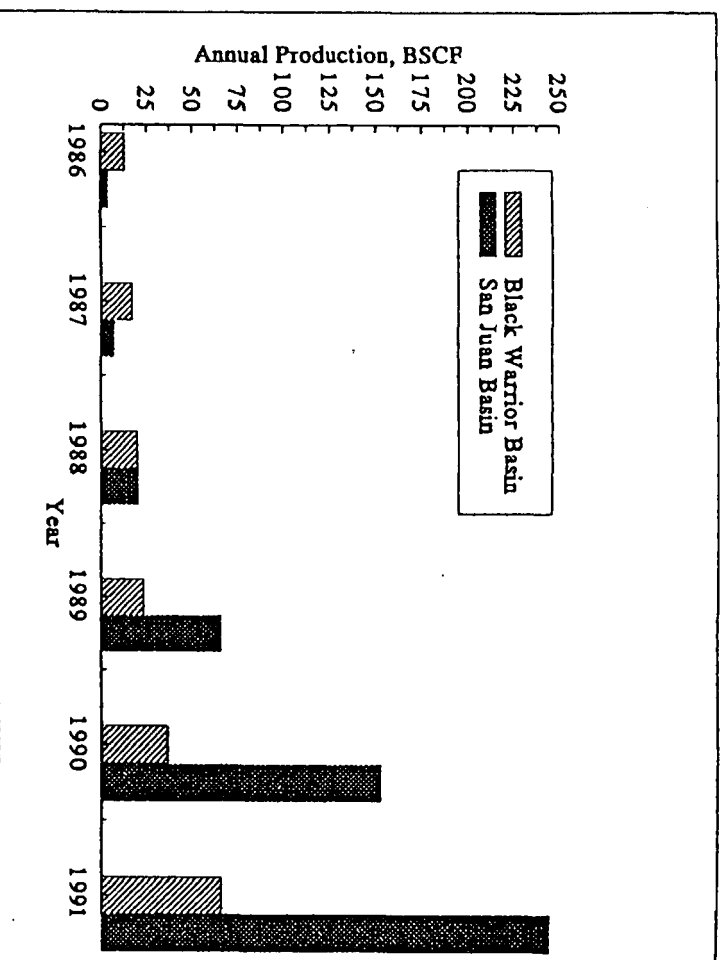
米 国	$10.1 \times 10^{13} \text{ m}^3$ (生産データあり)
カナダ	0.6×10^{13}
中 国	6.4×10^{13}
豪 州	6.2×10^{13}
日 本	0.2×10^{13} (メタン排気量から算出)



第1.1.1-6 図 米国のコールベッドメタン資源

掘られた。その結果、東部の8、西部の8計16炭田を合わせ400TCF（約11兆 m^3 ）の資源量が見込まれ、特に有望なコロラド州、ニューメキシコ州のSan Juan炭田とアラバマ州のBlack Warrior 炭田では、税制優遇措置もあって、現在では3,500本以上の生産井が掘られ、第1.1.1-7 図に示すように生産量は年々大きく増加している。

オーストラリアではクィーンズランド州のBowen炭田で調査が行われており、欧州ではG d F（フランスガス公社）閉山炭鉱からメタンガス採取や、B C C（英国石炭公社）の、米国の技術によるプリドレインドガスの採取および利用方法の研究が行われている。しかしながら、コールベッドメタンに関する体系的な資源量調査は、米国を除いてまだ行われておらず、世界のコールベッドメタン量は不明というのが現状である。一般に石炭化度、温度、圧力の大きいほどメタン吸着量が増加するため、瀝青炭および無煙炭1 tあたりメタン10～15 m^3 が包蔵されていると仮定して世界の確認石炭資源に相当するコールベッドメタン資源量を10～17兆 m^3 との計算が示されたりしているが定かではなく、資源量や貯留機構の研究は緒についたばかりである。実際に開発されているコールベッドメタン井であっても天然ガスと同等の品質が生産の推移と共に維持できるかどうか未知部分が多い。



第1.1.1-7 図 米国San Juan炭田およびBlack Warrior 炭田における
コールベックメタン生産推移

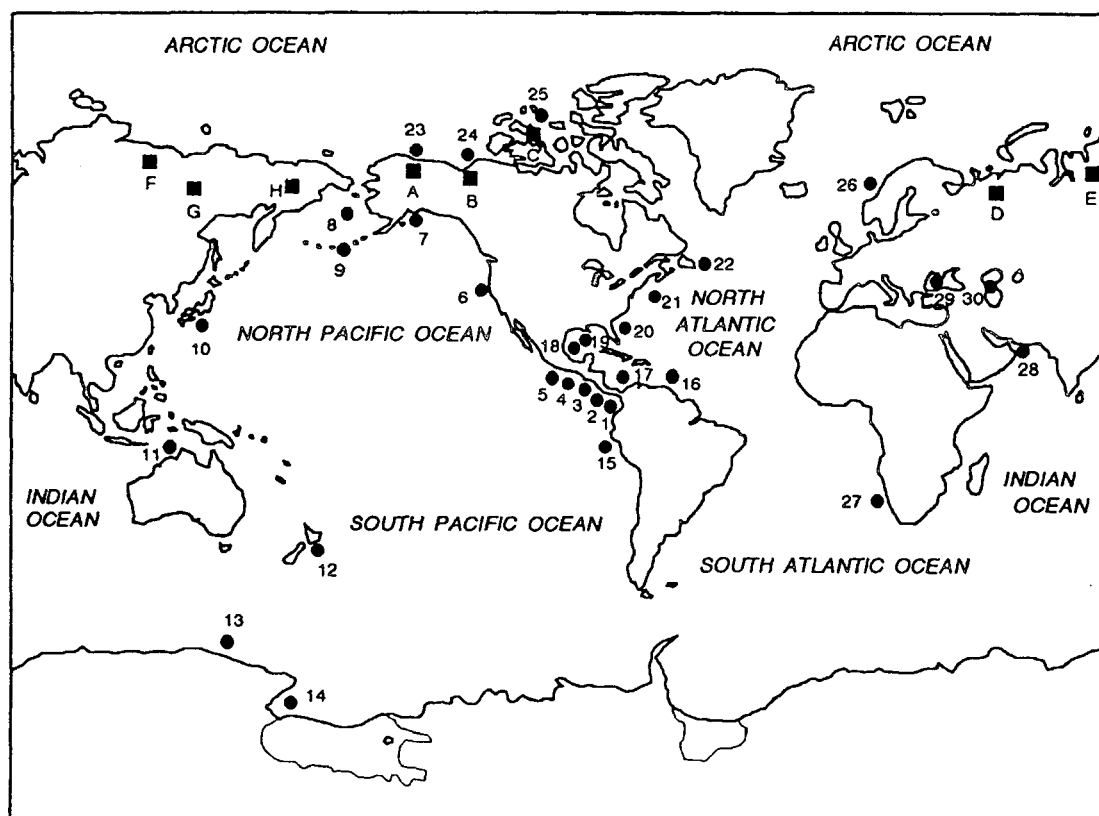
b) メタンハイドレート

メタンハイドレートとは、海底や永久凍土地帯など特定の温度、圧力条件を満たす場所でシャープット状のガス水和物の形で存在するメタンガスのことである。メタンハイドレートの資源量評価の方法に関しては、現段階では世界的に精度の高い手法は存在しない。しかし、既に発見され生産が行われているシベリア陸上の MessoiakhやVilyuiガス田、カナダのBeaufortガス田等における生産データを参考にすると、メタンハイドレート資源量の総括的な試算が旧ソ連や米国で行われた例があり、代表的なものをいくつか第1.1.1-6表に示した。また、世界のメタンハイドレートの分布を第1.1.1-8図に示した。在来型では天然ガス資源量が 10^{15} m³オーダーであることから、膨大な資源量と考えられるが、海域では大陸縁辺部に、陸域では永久凍土域に分布が限られている。また、ガスハイドレートの特性上、純粋なメタンより、二酸化炭素等の混合気体が存在した方が低压条件でもハイドレート生成が起りやすくなるため、純度の高いメタンがどの程度安定的に採取可能かが問題であろう。旧ソ連の実績では、純度93%以上の比較的高品質のものが生産されているとのことであるが、メタンハイドレートの生成条件や保持貯留機構については研究課題

が山積しており不明な点が多い。既に開発されているような陸域の一部を除き、開発は困難であるか、相当のリードタイムが必要であろう。

第1.1.1-6 表 主要なメタンハイドレートの広域資源量評価 (単位: m^3)

	陸 域	海 域	全 域
Trofimuk et al. (1977)	5.7×10^{13}	$(5-25) \times 10^{15}$	2.01×10^{16}
McIver (1981)	3.1×10^{13}	3.1×10^{15}	
Meyer (1981)	1.4×10^{13}		
Dobrynin et al. (1981)	3.4×10^{16}	7.6×10^{18}	
Kvenvolden (1988)			
Kvenvolden and Claypool (1988)		2.91×10^{16}	

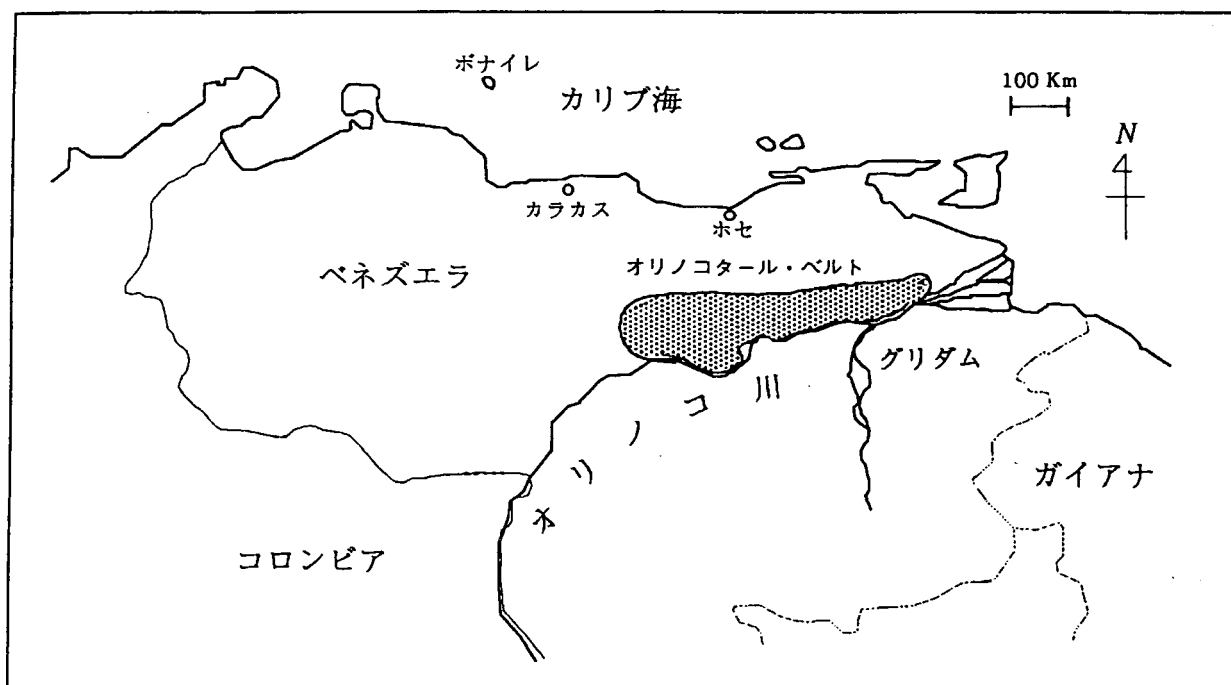


第1.1.1-8 図 世界のメタンハイドレートの分布

c) オリマルジョン

超重質炭化水素であるオリノコータル70%に水30%と微量の界面活性剤を加えてエマルジョン化したもので、高粘度のオリノコータルがC重油なみの取り扱いが可能となる。

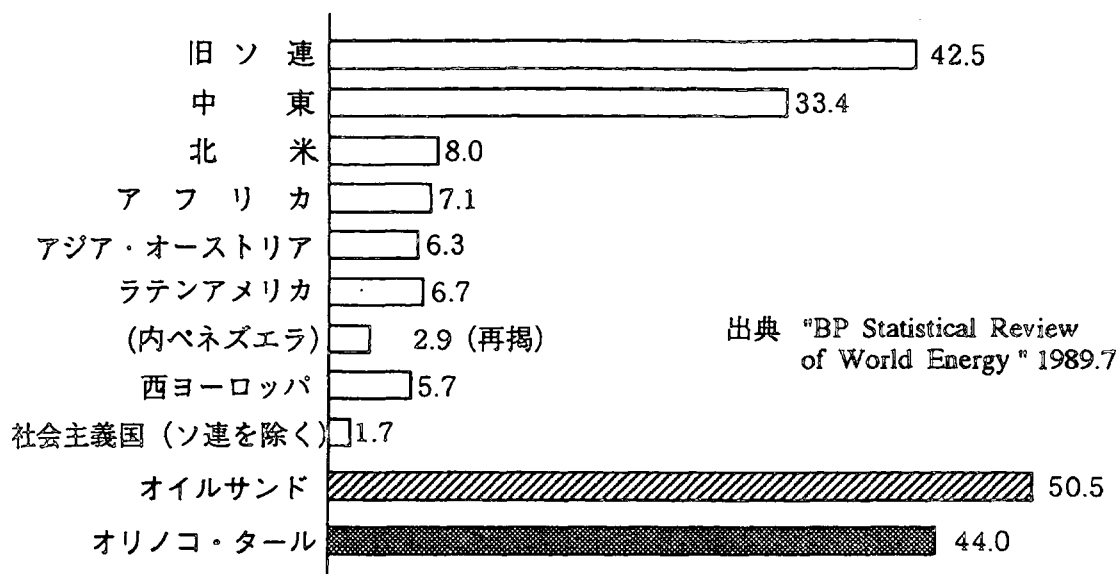
オリノコータルは第1.1.1-9 図に示すようにベネズエラオリノコ川北岸流域約5万㎢にわたって広がるオリノコータルベルトに原始埋蔵量約1兆2,000億バレルを有すると言われ、現在の採取技術による可採埋蔵量は約2,670億バレル(424億トン)と推定される。



第1.1.1-9 図 オリノコ川とオリノコータルベルトの位置

第1.1.1-10図に天然ガス埋蔵量とオリノコータル埋蔵量の比較を示した。オリノコータルとよく比較されるカナダのオイルサンドは確認埋蔵量3,100億バレルとも言われ、それに次ぐ埋蔵量を有する。

ベネズエラの政情は比較的安定しており、1992年のオリマルジョンの生産能力は年間約600万トンである。ベネズエラはオリマルジョンを非石油扱いとすることにより原油生産とは別枠で増産可能とした。英国、日本などで火力発電での直焚き用に商業導入されている。



第1.1.1-10図 地域別天然ガス埋蔵量とオリノコタール、オイルサンドの埋蔵量比較 (天然ガス採算、兆 m³)

第1.1.1-7 表にオリマルジョンと他の化石燃料との標準的な性状比較を示した。オリマルジョンは資源量膨大で、直ちに利用可能であるものの、地域が限定されること、重油に比べ煤塵、NO_x、SO_xの発生量が多く電気集塵機、脱硝、脱硫設備が必要であり、重金属 (バナジウム)、塩類、排水の問題など、環境対策が不可欠なこと、また水を含有するため転換反応には不利であることが問題点としてあげられよう。

第1.1.1-7 表 オリマルジョンと他の化石燃料との標準的な性状比較

	オリマルジョン*	石炭	C 重油
硫黄分 (wt%)	2.4~2.9	0.5~2.9	0.2~3.0
灰分 (wt%)	0.04~0.25	10.0~17.0	0.02
バナジウム (ppm)	280~360	—	2~40
発熱量 (kcal/kg)	7050	6300	10500

*オリマルジョンの長期安定性維持のためマグネシウム系添加剤を混入
(高温腐食防止効果あり)
(出所*: MC BITOR社パンフレット)

参考文献

- 1) 日本エネルギー総合研究所、非在来型天然ガスに関する調査 (1992) .
- 2) 吉江他、第11回エネルギー総合工学シンポジウム (1992) .
- 3) Whitney, E. M., 日本エネルギー学会誌, 73(3), 156 (1994).

1. 1. 2 石炭利用 SNG 工場

(1) 石炭 SNG 工場の立地の条件

- 石炭利用 SNG 工場の立地を考える場合、基本的な要件として下記の 4 つが必要である。
- a. 原料用海外炭の荷揚げ、貯蔵、取扱いの可能な、港湾の土地を確保できるか、もしくは上記インフラ設備の整った既設工場に隣接して土地を確保できること。
 - b. 製品 SNG・BTX 類を輸送するための、道路、パイプライン等の既設インフラ設備が近接していること。
 - c. 石炭 SNG 製造に必要な、用役類が容易に入手できること。
 - d. 法的規制 (排水処理、灰処理等の環境対策を含む) に無理なく対応できること。

すなわち石炭 SNG のエネルギーローの最上流と最下流部分は、既設インフラ設備を利用する等として、投資を極力ガス化プラントに集中させることが望ましい。

(2) 石炭 SNG 工場の立地の可能性

(1) で述べた基本要件をある程度満足する地点の中から、具体的な候補地を絞り込む段になると、石炭 SNG 工場が単独で立地するのか、それとも複数の企業や他のプロジェクトと共同で立地するのか、によって立地場所が大きく異なってくる。

すなわち下記の 4 ケースが考えられる。

- a. 石炭 SNG 工場が単独で立地する場合。
- b. 石炭 SNG 工場が複数企業の共同プロジェクトにより、エネルギーコンビナートを形成して立地する場合。
- c. 石炭 SNG 工場が、国土縦貫天然ガスパイプライン構想と絡めて立地する場合。
- d. 石炭 SNG 工場が、海外で国際共同プロジェクトとして立地する場合。

石炭 SNG 工場の基本仕様を、SNG 製造量 300 万 Nm^3 /日、原料炭処理量 6,000 トン/日、必要貯炭量 20 万トン (30 日分)、必要敷地面積 15 万 m^2 、として各ケース毎に検討してみる。

a. 石炭SNG工場の単独立地

石炭SNG工場が単独で立地する場合は、基本的要件を満たせば、他の立地上の制約は比較的少ない。

しかし、消費地近郊では、原料炭の貯蔵、取扱いの可能な、まとまった土地を新たに入手することが困難なため、消費地からやや離れた臨海部に立地するか、消費地近郊の既設の原料炭貯蔵、取扱い設備を一部転用するしかない。前者は、まとまった土地は確保できるものの、原料炭貯蔵、取扱い設備の新設、SNG輸送用連絡パイプラインの新設等に投資がかさむ難点がある。後者は、土地の面積、荷役設備等に制限があるものの、原料炭、SNG関連の設備投資額は比較的安く抑えられ、消費地に近い利点があるため、こちらの方がより現実的であろう。

既設の原料炭貯蔵、取扱い設備としては第1.1.2-1 表のように、独立のコールセンターが全国に点在しており、このうち貯炭量20万トン以上で敷地に余裕があり、かつ消費地へのパイプラインが近接している地域が有望である。

第1.1.2-1 表 全国コールセンター概要

コールセンター名	事業者	所在地	貯炭能力	年間取扱い能力
苫東コールセンター	苫東コールセンター(株)	苫小牧市	22ha、35万t	200万t
祝津埠頭海外炭中継基地	室蘭開発(株)	室蘭市	6ha、20万t	100万t
釧路西港海外炭中継基地	太平洋興発(株)	釧路市	8ha、20万t	60～80万t
小名浜海岸炭中継基地	小名浜埠頭(株)	いわき市	14ha、43万t	130万t(実績)
鹿島海外炭中継基地	住友金属(株)	鹿島市	3ha、10万t	15～20万t(実績)
出光千葉バルクターミナル	出光バルクターミナル(株)	袖ヶ浦市	5ha、20万t	80万t(実績)
東洋埠頭	東洋埠頭(株)	東京都江東区 川崎市	約2ha 約2.5ha、15万t	32万t(実績) 66万t(実績)
三井埠頭	三井埠頭(株)	川崎市	6ha、40万t	140万t
御前崎エネルギーセンター	鈴与(株)	静岡県御前崎	3万t	5万t(実績)
中部コールセンター	中部コールセンター(株)	四日市市	16ha、100万t	120万t(実績)
大阪北港埠頭	大阪北港埠頭(株)	大阪市	5ha、20万t	120万t
桜島埠頭	桜島埠頭(株)	大阪市	5ha、20万t	約30万t(実績)
水島海外炭中継基地	川鉄運輸(株)	倉敷市	4ha、15～20万t	65万t
広畑海外炭中継基地	広畑海運(株)	姫路市	7ha、32万t	約50万t(実績)
エヌケーコールセンター	エヌケーコールセンター(株)	福山市	23ha、100万t	約200万t(実績)
沖の山コールセンター	宇部興産(株)	宇部市	40ha、200万t	約500万t(実績)
新居浜コールセンター	新居浜コールセンター(株)	新居浜市	6ha、23万t	約90万t(実績)
ひびきコールセンター	ひびきコールセンター(株)	北九州市	55万t	300万t

SNGの利用形態としては、平成2年度報告書に記載されているように、全量パイプラインを通して消費地に送り、燃料電池を利用した分散型発電システムに使うのが、熱効率上最も得策である。

b. 複数企業の共同プロジェクトによる立地

石炭SNG工場が、複数企業の共同プロジェクトにより立地する場合、消費地近郊にまとまった土地および原料炭貯蔵、取扱い設備を有する、鉄鋼業との共同プロジェクトにより立地することが、投資効率の上から適当と考えられる。

近年、鉄鋼業界では、エネルギーコストの低減や環境負荷の低減を狙いとして、高炉への微粉炭多量吹き込み（PCI）やスクラップ使用比率の増大化技術の開発を進めており、将来的にはコークスの使用量が減る傾向にある。それに伴って、これまで製鉄所のエネルギーの相当量を占めていたコークス炉ガス（COG）も減少し、エネルギーバランス上、新たなエネルギー源の導入が必要となってくる。さらに、製鉄所周辺に石炭から製造した安価なガスを供給することも考えられ、低コスト、高効率な産業用ガスエネルギー製造プラントのニーズがある。

従って、製鉄所内の原料炭貯蔵、取扱い設備に余力がある所では、その設備を利用した石炭SNG工場を立地させ、製品SNGを所内燃料として消費すると共に、既設パイプラインを利用して周辺需要家への供給を行なう、エネルギーコンビナートシステムがかなりフィージブルと考えられる。

全国の製鉄所の原料炭貯蔵、取扱い能力は第1.1.2-2 表の通りである。この中で能力に余力があり、パイプライン等の条件を満たしている地域では立地の可能性がある。

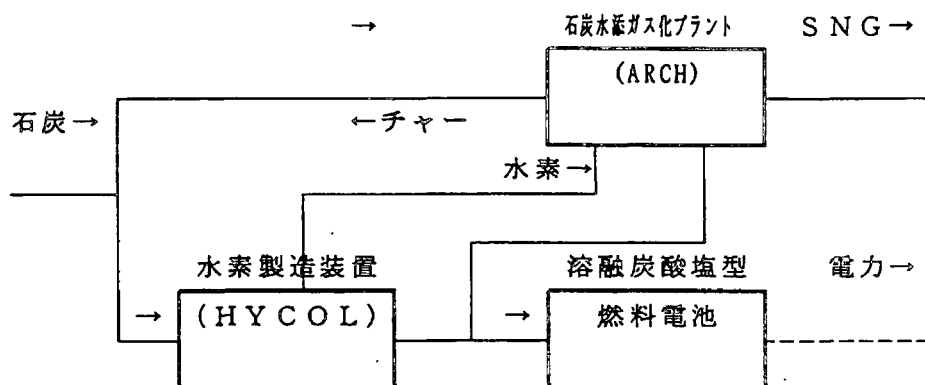
一方、エネルギーのベストミックスを志向している電力業界では、将来的に石炭火力の比率を高めていく傾向にある。当面は既存技術で高効率発電を狙って、微粉炭燃焼（PCF）による発電所を建設していくであろうが、より高い効率が期待できる石炭ガス化溶融炭酸塩型燃料電池発電（IGMCFC）が実用化した暁には、その燃料製造装置（HYCOL）とドッキングし、電力とSNGを併産するデュアルエネルギーシステムが考えられる。（第1.1.2-1 図）

この場合、電力業界との共同プロジェクトとして、石炭SNG工場を石炭火力発電所構内に立地させ、発電所内の原料炭貯蔵、取扱い設備を共用することが可能ならば、コールヤードについてスケールメリットが生じると共に、電力のオフピーク期に石炭SNGの稼働を上げることにより稼働率を上げられる、というメリットも期待できる。

第1.1.2-2 表 主要製鉄所における貯炭場設備能力

製鉄所	所在地	製鉄所敷地面積	貯炭場設備		
			受入れ設備能力	貯炭場面積	貯炭能力
室蘭（新日鉄）	室蘭市		38,000 t / d	81,875 m ²	181,000 t
君津（新日鉄）	君津市		168,000 t / d	240,400 m ²	710,000 t
名古屋（新日鉄）	東海市		144,000 t / d	147,580 m ²	453,500 t
広畑（新日鉄）	姫路市		37,800 t / d	87,560 m ²	184,400 t
八幡（新日鉄）	北九州市		88,000 t / d	191,750 m ²	546,300 t
大分（新日鉄）	大分市		150,000 t / d	148,500 m ²	554,800 t
京浜（日本鋼管）	川崎市		61,880 t / d	162,900 m ²	580,000 t
福山（日本鋼管）	福山市		137,700 t / d	271,500 m ²	1,086,000 t
千葉（川崎製鉄）	千葉市			89,700 m ²	400,000 t
水島（川崎製鉄）	倉敷市		86,400 t / d	254,200 m ²	750,000 t
和歌山（住友金属）	和歌山市		20,000 t / d	111,900 m ²	340,000 t
鹿島（住友金属）	鹿島市		96,000 t / d	172,800 m ²	580,000 t
加古川（神戸製鋼）	加古川市		134,000 t / d	184,100 m ²	580,000 t

（出典：コークス設備集、燃料協会コークス部会、1980）



第1.1.2-1 図 電力・SNGデュアルエネルギーシステム

c. 国土縦貫天然ガスパイプライン構想と絡めた立地

平田賢東大名誉教授を座長とする、「広域天然ガスパイプライン研究会」は、1991年12月に「国土縦貫天然ガスパイプライン構想」を発表した。（第1.1.2-2 図）

これは、現在使用する用途・地域が限定されているLNGによる、天然ガスの供給形態を改善するため、北海道から九州に至る全国縦貫天然ガスパイプラインを整備し、欧米なみに天然ガスの供給地域・用途の拡大を図る、という構想である。そして2005年に、第一

フェーズとして、稚内から鹿児島に委託全長約 3,200km、管径 1 mのパイプラインを敷設し、70気圧程度の天然ガスを供給する計画がある。



図1.1.2-2 図 国土縦貫天然ガスパイプライン構想

ガス源としては、2005年の需要予測 3,700万トン（LNG換算）のうち、2,700万トンを国内の7ヶ所のLNG基地から供給し、1,000万トンを後述の天然ガス輸入パイプラインから供給する計画である。

この計画では、LNG基地から天然ガスを供給することになっているが、東京・大阪・

名古屋都市圏では、電力・ガス・鉄鋼用として直接基地から供給される天然ガスの割合が大きく、パイプラインへの供給余力が十分確保されるかどうか不安要因が残る。

そこで、三大都市圏からやや離れた地点に石炭SNG工場を立地させ、近傍を通るパイプラインにSNGを供給すれば、消費地近郊に立地という制約なしで、石炭SNGをパイプラインを通じて消費地に供給することが可能となる。天然ガスパイプラインのガス源の、LNGへの過度の依存を避け、エネルギーセキュリティを確保するためにも、石炭SNG工場のパイプライン沿いの立地が必要となろう。

d. 国際共同プロジェクトによる立地

平田氏はまた、アジア・太平洋地域のエネルギー資源の確保と安定供給、エネルギーの効率的使用と環境保全、域内の相互依存を基盤とした安全保障強化、などを目的として「アジア・太平洋エネルギー共同体構想」を提唱した。これには、アジア、オーストラリア、アラスカ等環太平洋地域に比較的豊富な天然ガスの利用を拡大するため、トランスアジア天然ガスパイプライン網を建設し、その共同利用を推進することが盛り込まれている。

(第1.1.2-3 図)

具体的な構想として

イ. オハガス田(サハリン)→コルサコフ→稚内 (Aルート)

ロ. ビリュイスクガス田(ヤクート)→中国東北地方→韓国→北九州 (Bルート)

ハ. ウルムチガス田(中国)→中国西部→上海→長崎 (Cルート)

の3ルートを設定し、いずれも前述の国土縦貫天然ガスパイプラインに接続する。

このうちCルートのウルムチ→上海ルート沿いには、河北省、山西省に中国有数の炭田地帯を控えているため、産炭地で石炭をガス化し、パイプラインにより上海周辺、日本といった大消費地に輸送して供給する、というエネルギー変換輸送システムが成り立つ可能性を秘めている。

元々中国は内陸部に炭田をかかえながら、肝心の輸送手段に恵まれないため、消費地の海岸地方に十分輸送できないという弱点を持っていた。ところが、このパイプラインが完成すれば、石炭SNG工場を産炭地に立地させることにより、石炭をSNGに変換してパイプラインで輸送することが可能になる。さらにその一部を日本に輸出すれば、エネルギー資源の安定供給、効率的使用、環境保全に資することができる。ひいては日中間の経済的、技術的関係を促進することができ、日本の国際貢献にもつながるものである。

そこで、日中共同プロジェクトとして、中国に石炭SNG工場の立地を考えた場合、考

慮すべき事項として以下のようなものがあげられる。

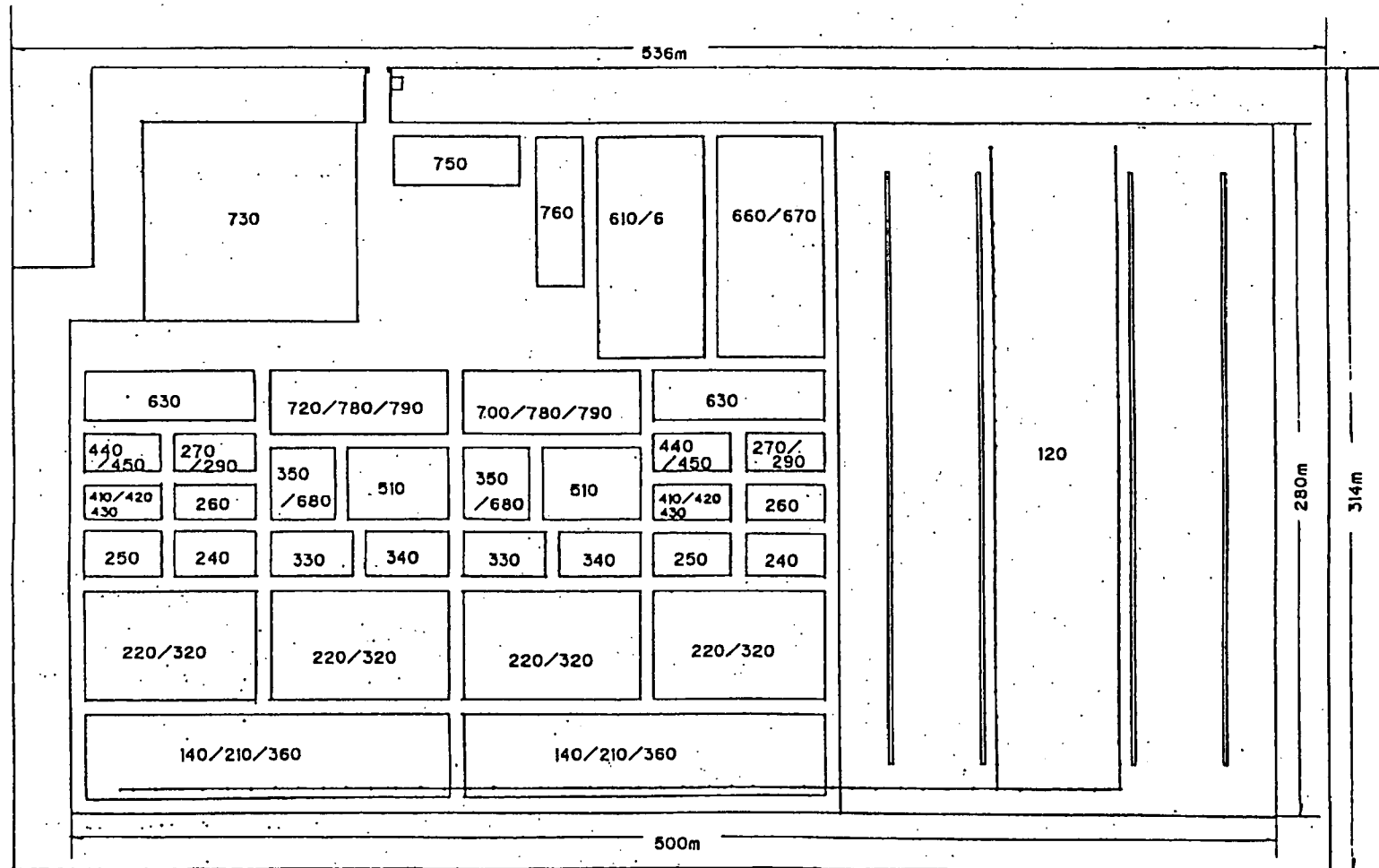
- イ．原料炭の資源量・価格
- ロ．インフラ整備状況
- ハ．技術レベル
- ニ．労務コスト
- ホ．建設コスト
- ヘ．天然ガスに対する需要緊急度
- ト．SNGの導入可能性
- チ．経済成長率
- リ．政治・経済の安定性
- ヌ．エネルギー政策
- ル．地球環境対策

中国は近年、ソ連の崩壊・冷戦の終結といった、世界の大きな変革の中でも、政治的には安定な社会主義体制を維持している。経済的には、改革開放政策を積極的に推し進め、驚異的な経済成長を続けているが、経済成長に伴いエネルギーの消費量が急激に増えており、旧式のガス製造設備では量的にも、環境的にも対応できなくなっている。一方内陸部を中心に 5,400億トン以上の確認埋蔵量を誇る石炭資源を有し、豊富な労働力にも恵まれている。

そこで残る技術面での全面的な協力・支援を日本が担えば、日中共同プロジェクトとしての石炭SNGプラント建設・運転は、かなり成功する可能性が高い。

今後このパイプライン計画の具体化への動き、中国の政治的・経済的状况を注意深く見据えながら、本プロジェクト実現に向けてより詳細な検討をする必要があろう。

概略配置図（平成3年3月発行の報告書 70 ページより転記）



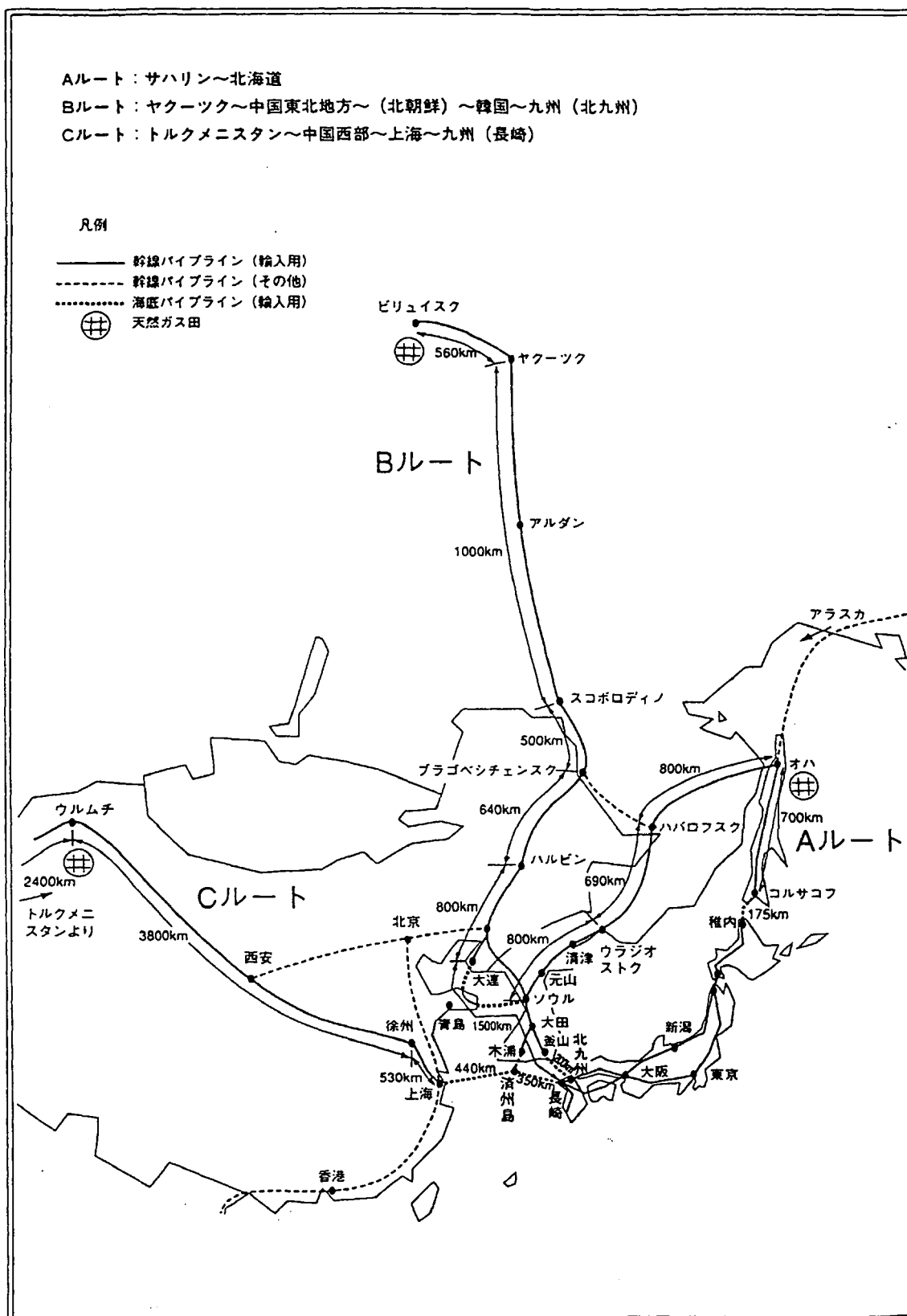
追記; 1): ————— コンベアを示す

2) AREA NO.と設備名との関係は第3表を参照の事

REVISIONS						CUSTOMER 燃料協会(NEDO)	SECTION	
No.	DATE	DESCRIPTION	DRN	CHKD	APPD	PROJECT NEDO石炭水添ガス化	APPROVED	
◇						ORDER No.	CHECKED	
◇							DRAWN	
◇							DRAWN DATE	
◇							ISSUED DATE	
◇						DWG. No.	REV.	2
							ISSUE	12

AREA NO. と設備名の関係（平成3年3月発行の報告書68ページより転記）

AREA		AREA	
110	石炭輸送	510	空気分離・酸素圧縮機
120	石炭貯蔵		
130	石炭移送設備	610	原水供給と処理
140	石炭前処理設備	620	BFW製造
		630	冷却水供給
210	石炭供給設備	640	排水処理
220	水添ガス化炉	650	スチーム発生と供給
230	排熱回収と分離	660	発電設備
240	シフト・ガス液分離	670	電力供給と照明
250	ガス精製	680	プラント空気・計装空気
260	深冷分離	690	N ₂ システム
270	循環用水素圧縮機		
290	メタネーションとドライヤー	700	消防設備
		710	内部連絡配管
310	チャー取扱	720	フレアー・システム
320	チャーガス化・熱回収	730	環境設備
330	シフト・熱回収・冷却	740	緑地
340	酸性ガス除去	750	管理棟
350	原料水素圧縮機	760	倉庫と修理工場
360	灰・残渣取扱	770	道路のフェンス
		780	製品貯槽
410	コンデンセートストリッピング	790	製品出荷設備
420	アンモニア回収		
430	硫黄回収		
440	芳香族回収		
450	ベンゼン精製		



第1.1.2-3 図 わが国への輸入パイプラインの計画例

1. 2 ARCHプロセスの優位性

1. 2. 1 経済性

ARCHプロセスの経済性を見直すために、1994年時点での設備費・原材料費・ユーティリティー費用等を下記の様に決め、エスカレーション・ファクターも決めて、プラントを稼働した時点での、初年度のSNG（13A）製造原価を求めている。先ず、経済性評価の前提から記すと、次の通りになる。

（1）建設費

1994年の設備費を以下の通りとする。なお、自己資本比率は必要資金の25%とする。

プラント名	設備費（百万円）
ARCH・熱効率 MAX	108,847
ARCH・BTX MAX	127,218
石炭部燃SNG	107,028
ナフサSNG	31,100
LNG	43,000

（2）原材料の価格

1994年を価格設定基準年度とする。また、各種の単価は価格設定基準年価格として使い、その後は、各種エスカレーション・ファクターを掛けて使う。

表1.2.1-1 表 変動費・固定費の各種単価

項 目	単 価	項 目	単 価
石炭	¥ 4,877 / t	電力	¥ 12 / kWh
天然ガス	¥18,899 / t	冷却水	¥ 2.0 / t
ナフサ	¥18,404 / t	労務費	¥7,000 × 10 ³ / 人年
プロパン	¥ 17 / kg	硫黄	¥ 28 / kg
ベンゼン	¥ 40 / kg	アンモニア	¥ 120 / kg
ビチューメン	¥ 10 / kg	売電価格（一定）	¥ 9 / kWh
副産ナフサ類	¥ 10 / kg		

(3) エスカレーション・ファクター

下記の通りとする。

年率 0.7% : 石炭

年率 1.3% : 設備費

年率 2.0% : 各種ユーティリティー・副産硫黄、アンモニア等
天然ガス・ナフサ・プロパン・ペンゼン・ビチューメン・
副産ナフサ類

年率 2.9% : 労務費

(4) 資本費・税等

固定資産税 : 簿価の 0.78%

損害保険料率 : 簿価の 0.63%

保全工事費率 : 建設費の 3.00%

工場管理費 : 労務費の 20.00%

一般管理費 : 総原価の 5.00%

金利 : 8.00%

(5) 資本費の計算

- 1) 原価償却費 : 償却期間15年、残存簿価10%、定額償却とする。最初の設備費の55%相当を対象に、保険料、固定資産税の費用を算出する。

$$R = (P - L) \cdot i (1 + i)^n / \{ (1 + i)^n - 1 \} + L i$$

ここに、

R : 各年度末原価償却費

P : 設備取得費

L : 残存簿価 (= 0.1 × P)

i : 金利 (= 0.06 : 自己資本比率25%あるため)

n : 償却年数 (= 15)

従って、 $R = 0.09866 \times P$ を得る。これに、固定資産税、損害保険料、保全工事費などを加算する。

2) 固定資産税 : $0.55 \times P \times 0.0078 = 0.00429 \cdot P$

3) 損害保険料: $0.55 \times P \times 0.0063 = 0.003465 \cdot P$

4) 保全工事費: $0.03 \cdot P$

以上を合計すると、

$$\text{資本費} = 0.1364 \cdot P$$

固定費の算出には、この他に、

6) 工事管理費: 労務費の20.0%

7) 一般管理費: 総原価の5.0%

8) 運転資金

等を計算して、固定費を求める。

(6) 各プロセスの経済計算根拠補足

1) ARCH・熱効率 MAX、ARCH・BTX MAX、並びに石炭部燃SNGの各ケース
平成3年度、及び4年度のNEDO石炭水添ガス化技術調査、委託業務報告書に記載されている。

2) ナフサSNG工場

イ) SNGプラントの基数

年間 9.9億 Nm^3 の13Aガスを製造するためには、製造能力 100万 Nm^3/d
(1,300kl/d) 相当のSNGプラントが3基必要となる。

ロ) SNG製造原範囲

ナフサ(比重: 0.67) 1kl当たり、

13Aガス製造量	955 Nm^3
増熱プロパン量	0.219 t/kl
加熱燃料(ナフサ換算)	0.112kl/kl
電力	25 kWh/kl
工業用水	0.75 t/kl
その他諸材料(含む触媒)	1,500円/kl

ハ) タンク要領(14日分)

$$\text{ナフサ使用量} \quad 990 \times 10^6 \text{ Nm}^3 / 955 = 1.037 \times 10^6 \text{ kl}$$

$$1.037 \times 10^6 \text{ kl} \times 14 / 365 = 4.0 \text{ 万kl}$$

4.0 万kl/0.9 = 4.4kl、従って、5.0万klフローティングルーフタンクを設置。

二) 設備費	億円
ナフサタンク (防液堤込み)	20
SNGプラント (3基)	171
配管など	40
ユーティリティー設備	20
その他 (建家など)	20
小 計	271
一般管理費他	40
合 計	311

ホ) 要員 70名

ヘ) 敷地 約82,000㎡

石炭SNG算定条件と合わせるため、バース設備費・土地代・LPG設備は含まないものとした。

3) LNG工場算定根拠

イ) LNGタンク要領 (35日分保有)

$$74.3\text{万千t} \times 35 / 365 = 7.1\text{万t}$$

$7.1\text{万t} / 0.465 / 0.9 = 17.0\text{万kl}$ 、従って、18万kl (地下タンク) を設置。

ロ) 気化器

$$300\text{万Nm}^3/\text{d一定製造、従い、}12.5\text{万m}^3\text{即ち、}100\text{t/h}$$

予備器を考慮し、2基設置。

ハ) 設備費	億円
LNGタンク	250
気化器 (熱調込み)	20
配管など	40
電気・計装	30
土木・建築など	50
小 計	390
一般管理費他	40
合 計	430

二) 要員 45名

ホ) 敷地 約87,000㎡

石炭SNG算定条件と合わせるため、バース設備費・土地代・LPG設備は含まないものとした。

(7) 計算結果

以上の条件を基にSNG（13A）製造原価を計算し、下記の結果が得られた。

第1.2.1-2 表 SNG製造原価（円／Nm³）

西暦年	ARCH		部燃ガス化	ナフサ SNG	天然ガス
	効率max	B T Xmax			
1995年	27.11	24.96	33.06	27.11	23.68
2000年	28.82	26.14	35.77	29.82	25.93
2005年	30.74	27.58	38.19	32.74	28.40
2010年	32.78	29.02	41.12	36.01	31.13
2015年	34.98	30.54	44.29	39.61	33.95
2020年	37.36	32.17	47.76	43.54	37.37
2025年	40.36	33.92	51.58	47.93	41.00

計算結果の一例として、2015年の場合の計算例を、各製造プロセス毎に表示したものを添付して置く。

また、上の表を図示すると、第1.2-1 図の如くなる。

変動費と固定費の割合を、1995年、2010年、2015年、2025年のそれぞれの場合を参考までに一覧表にまとめると、「SNG製造原価の比較表」の様になる。

製 造 原 価 試 算 表

2010年：石炭水添ガス化熱効率max ケース

	項 目	単 価	年間使用量	年間経費 (百万円)
変 動 費	1. 原料石炭	¥ 5,453 / t	1.93×10^6 t	10,524
	2. ユーティリティー 1) 工業用水	¥ 2.75 / t	10.55×10^6 t	29
	3. 触媒・ケミカルズ			824
	4. 増熱用プロパン	¥ 23.34 / kg	192.92×10^6 kg	4,503
	変動費計			15,880
固 定 費	1. 労務費	¥11,060 × 10 ³ / 人	310人	3,429
	2. 資本費等	0.1364 × 133.9 × 10 ³		18,262
	3. 原料・予備品等			341
	4. 工場管理費	人件費の20.0%		686
	5. 一般管理費	総原価の 5.0%		2,031
	固定費計			24,749
年間経費合計		¥40,629百万円		
	項 目	単 価	年間製造量	年間売上 (百万円)
収 益	1. 13A ガス	¥ 32.78 / N m ³	990.0×10^6 N m ³	32,449
	2. ベンゼン	¥ 54.92 / kg	80.36×10^6 kg	4,413
	3. ナフサ類	¥ 13.73 / kg	49.34×10^6 kg	677
	4. 硫黄	¥ 38.4 / kg	4.17×10^6 kg	160
	5. アンモニア	¥164.7 / kg	13.72×10^6 kg	2,260
	6. 電力	¥ 9.0 / kWh	74.4×10^6 kWh	670
年間収益合計		40,629		
13A ガス製造単価：		¥ 32.78 / N m ³		

製 造 原 価 試 算 表

2010年：石炭水添ガス化B T Xmax ケース

	項 目	単 価	年間使用量	年間経費 (百万円)
変 動 費	1. 原料石炭	¥ 5,453 / t	2.27×10^6 t	12,379
	2. ユーティリティー			
	1) 工業用水	¥ 2.75 / t	10.55×10^6 t	29
	3. 触媒・ケミカルズ			824
	4. 増熱用プロパン	¥ 23.34 / kg	194.21×10^6 kg	4,533
	変動費計			17,765
固 定 費	1. 労務費	¥11,060 × 10 ³ / 人	310人	3,429
	2. 資本費等	0.1364 × 156.5 × 10 ³		21,344
	3. 原料・予備品等			341
	4. 工場管理費	人件費の20.0%		686
	5. 一般管理費	総原価の 5.0%		2,293
	固定費計			28,093
年間経費合計		¥45,858百万円		
	項 目	単 価	年間製造量	年間売上 (百万円)
収 益	1. 13A ガス	¥ 29.02 / N m ³	990.0×10^6 N m ³	28,730
	2. ベンゼン	¥ 54.92 / kg	232.14×10^6 kg	12,749
	3. ナフサ類	¥ 13.73 / kg	11.98×10^6 kg	164
	4. 硫黄	¥ 38.4 / kg	6.28×10^6 kg	241
	5. アンモニア	¥164.7 / kg	21.70×10^6 kg	3,574
	6. 電力	¥ 9.0 / kWh	44.42×10^6 kWh	400
年間収益合計		45,858		
13A ガス製造単価：		¥ 29.02 / N m ³		

製 造 原 価 試 算 表

2010年：石炭部燃SNGケース

	項 目	単 価	年間使用量	年間経費 (百万円)
変 動 費	1. ビチューメン	¥ 13.73/kg	$54.36 \times 10^6 \text{ t}$	746
	2. 原料石炭	¥ 5,453/t	$1.52 \times 10^6 \text{ t}$	8,289
	3. ユーティリティー			
	1) 工業用水	¥ 2.75/t	$9.00 \times 10^6 \text{ t}$	25
	2) 電力	¥ 16.47/kWh	$124.51 \times 10^6 \text{ kWh}$	2,051
	4. 触媒・ケミカルズ			824
	4. 増熱用プロパン	¥ 23.34/kg	$246.68 \times 10^6 \text{ kg}$	5,758
	変動費計			17,693
固 定 費	1. 労務費	¥11,060×10 ³ /人	310人	3,429
	2. 資本費等	0.1364×131.6×10 ³		17,956
	3. 原料・予備品等			341
	4. 工場管理費	人件費の20.0%		686
	5. 一般管理費	総原価の 5.0%		2,111
	固定費計			24,523
年間経費合計		¥42,216百万円		
	項 目	単 価	年間製造量	年間売上 (百万円)
収 益	1. 13A ガス	¥ 41.12/N m ³	$992.99 \times 10^6 \text{ N m}^3$	40,828
	2. ナフサ類	¥ 13.73/kg	$19.01 \times 10^6 \text{ kg}$	261
	4. 硫黄	¥ 38.43/kg	$4.50 \times 10^6 \text{ kg}$	173
	5. アンモニア	¥164.7 /kg	$5.79 \times 10^6 \text{ kg}$	954
年間収益合計				42,216
13A ガス製造単価： ¥ 41.12/N m ³				

製 造 原 価 試 算 表

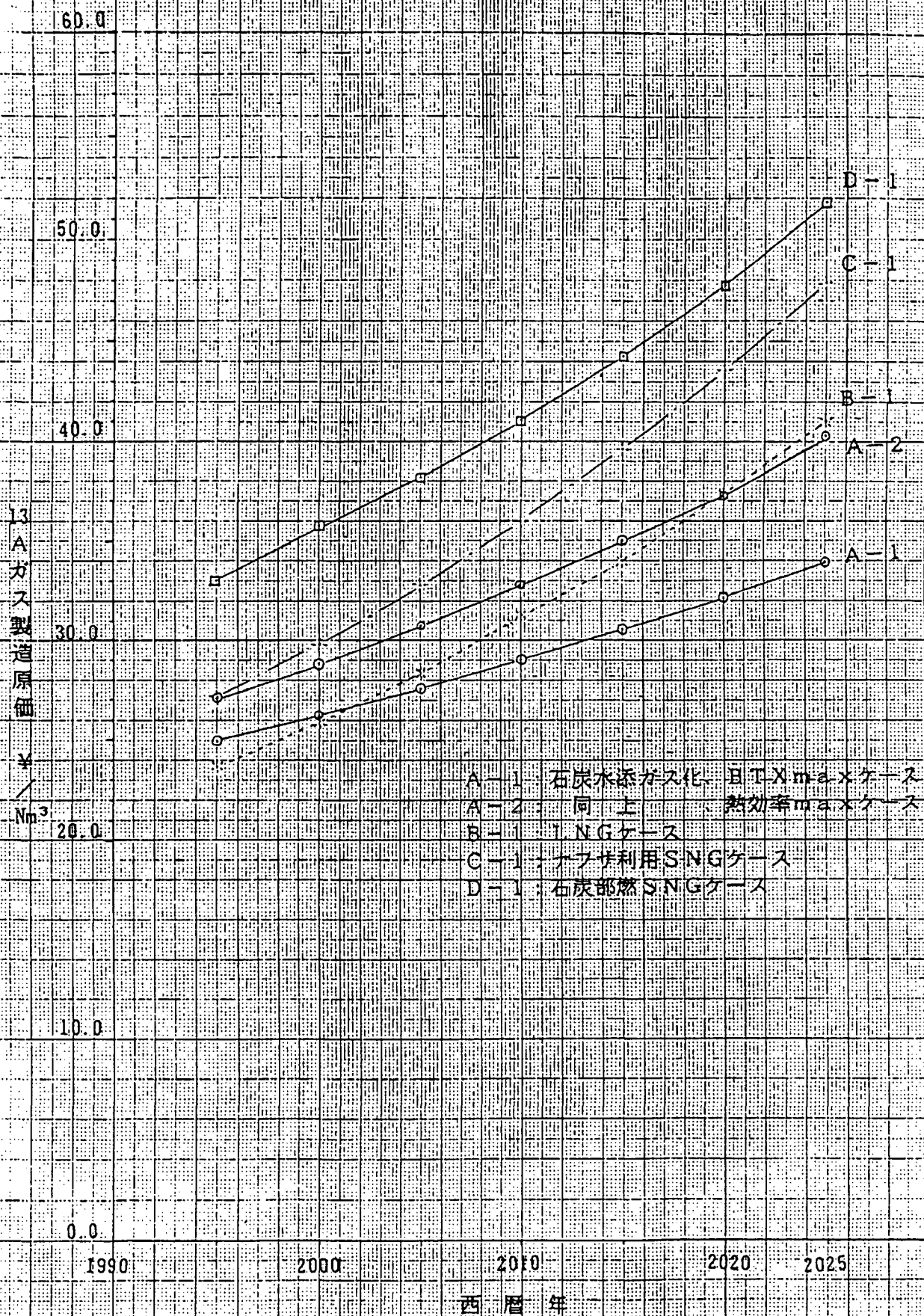
2010年：ナフサSNGケース

	項 目	単 価	年間使用量	年間経費 (百万円)
変 動 費	1. 原料ナフサ 比重0.67	¥16,930/k _l	$1,037 \times 10^3 \text{ k}_l$	17,556
	燃料ナフサ(同上)	¥16,930/k _l	$116 \times 10^3 \text{ k}_l$	1,964
	2. ユーティリティー			
	1) 電力	¥ 16.47/kWh	$25.93 \times 10^6 \text{ kWh}$	427
	2) 工業用水	¥ 2.75/t	$0.77 \times 10^6 \text{ t}$	2
	3) その他	¥ 2,060/k _l	$1,037 \times 10^3 \text{ k}_l$	2,136
	3. 増熱用プロパン	¥ 23.34/kg	$227 \times 10^6 \text{ kg}$	5,298
	変動費計			27,383
固 定 費	1. 労務費	¥11,060×10 ³ /人	70人	774
	2. 資本費等	0.1364×38.25×10 ³		5,218
	3. 原料・予備品等			274
	4. 工場管理費	人件費の20.0%		155
	5. 一般管理費	総原価の 5.0%		1,783
	固定費計			8,271
年間経費合計		¥35,654百万円		
	項 目	単 価	年間製造量	年間売上 (百万円)
収 益	1. 13A ガス	¥ 36.01/N m ³	$990.0 \times 10^6 \text{ N m}^3/\text{y}$	35,654
年間収益合計				35,654
13A ガス製造単価： ¥ 36.01/N m ³				

製 造 原 価 試 算 表

2010年：L N G ケース

	項 目	単 価	年間使用量	年間経費 (百万円)
変 動 費	1. 原料 L N G	¥25,948 / t	$742.50 \times 10^3 \text{ t}$	19,267
	2. ユーティリティー			
	1) 工業用水	¥ 2.75 / t	$0.25 \times 10^6 \text{ t}$	1
	2) 電力	¥ 16.47 / kWh	$32.67 \times 10^6 \text{ kWh}$	538
	3. 触媒・ケミカルズ			—
	4. 増熱用プロパン	¥ 23.34 / kg	$56.39 \times 10^6 \text{ kg}$	1,316
	変動費計			21,122
固 定 費	1. 労務費	¥11,060 × 10 ³ / 人	45人	498
	2. 資本費等	0.1364 × 52.89 × 10 ³		7,214
	3. 原料・予備品等			341
	4. 工場管理費	人件費の20.0%		100
	5. 一般管理費	総原価の 5.0%		1,541
	固定費計			9,694
年間経費合計		¥30,816百万円		
	項 目	単 価	年間製造量	年間売上 (百万円)
収 益	1. 13A ガス	¥ 31.13 / N m ³	$990.0 \times 10^6 \text{ N m}^3$	30,816
年間収益合計		30,816		
13A ガス製造単価：		¥ 31.13 / N m ³		



第1.2-1 図 13Aガス製造原価比較図

SNG製造原価の比較表

西 暦 年	プロセス名	年間費用（百万円）			製品の部（百万円）		SNG製造 原価 ¥/Nm³
		変動費計	固定費計	年間費用	SNG以外 副産品収入	SNG製造 費	
1 9 9 5 年	水添ガス化熱効率 MAX	13,458	19,627	33,085	6,250	26,835	27.11
	同 上 BTX MAX	15,150	22,388	37,538	12,828	24,710	24.96
	石炭部燃SNG	14,450	19,414	33,864	1,032	32,832	33.06
	ナフサSNG	20,346	6,497	26,843	0	26,843	27.11
	LNG	15,693	7,755	23,448	0	23,448	23.68
2 0 1 0 年	水添ガス化熱効率 MAX	15,880	24,749	40,629	8,180	32,449	32.78
	同 上 BTX MAX	17,765	28,093	45,858	17,128	28,730	29.02
	石炭部燃SNG	17,693	24,523	42,216	1,388	40,828	41.12
	ナフサSNG	27,383	8,271	35,654	0	35,654	36.01
	LNG	21,122	9,694	30,816	0	30,816	31.27
2 0 1 5 年	水添ガス化熱効率 MAX	1,681	26,781	43,591	8,965	34,626	34.98
	同 上 BTX MAX	18,762	30,344	49,106	18,873	30,233	30.54
	石炭部燃SNG	18,965	26,551	45,516	1,533	43,983	44.29
	ナフサSNG	30,236	8,975	39,211	0	39,211	39.61
	LNG	23,322	10,289	33,611	0	33,611	33.95
2 0 2 5 年	水添ガス化熱効率 MAX	19,255	31,478	50,733	10,780	39,953	40.36
	同 上 BTX MAX	20,993	35,507	56,500	22,917	33,583	33.92
	石炭部燃SNG	21,859	31,225	53,084	1,868	51,216	51.58
	ナフサSNG	36,860	10,591	47,451	0	47,451	47.93
	LNG	28,429	12,162	40,591	0	40,591	41.00

(8) 感度分析

1) LNG価格のエスカレーション・ファクターを変化させた場合：

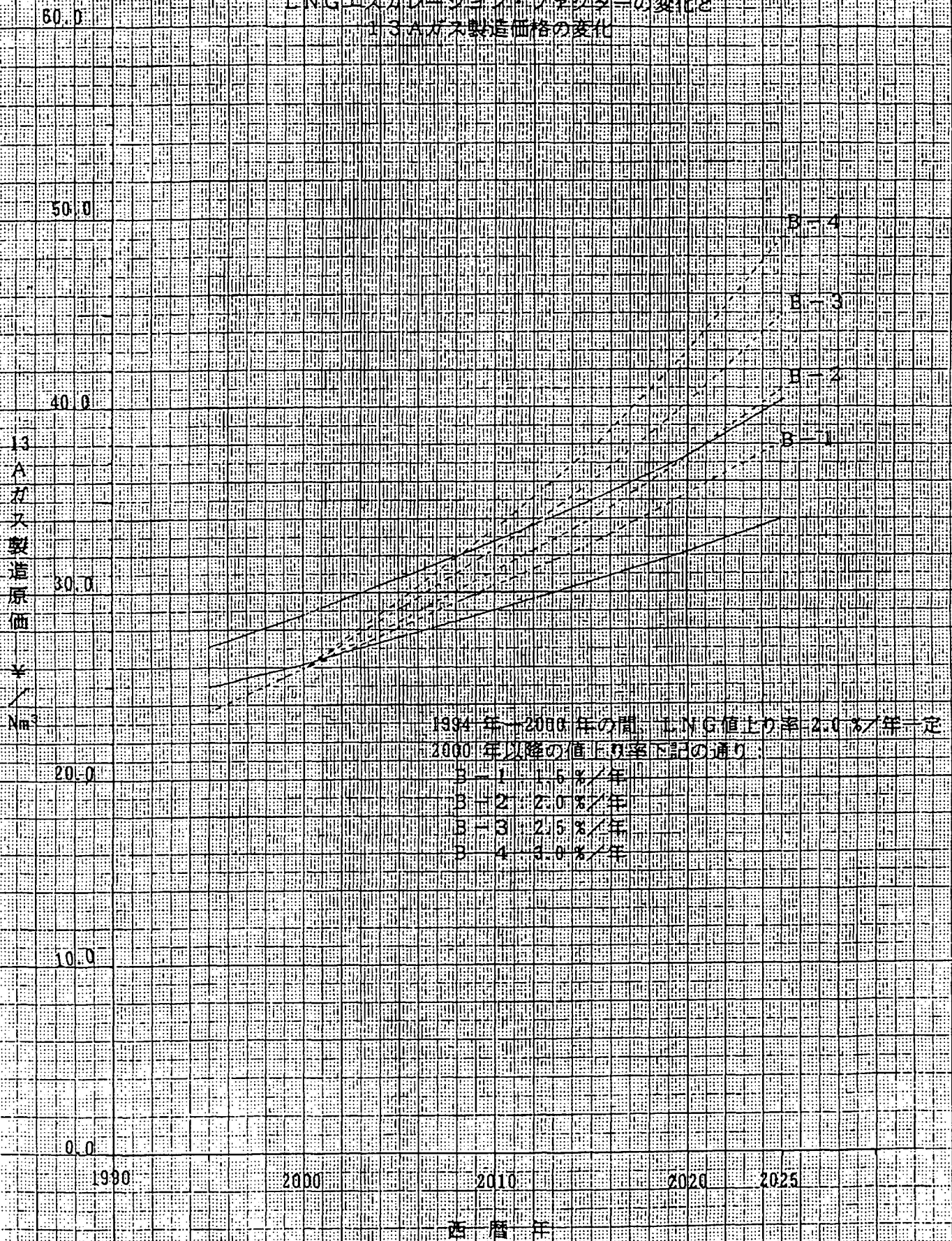
LNGのエスカレーション・ファクターを、2000年までの間 2.0%/年一定とし、2001年以降のエスカレーション・ファクターを、1.5 %、2.0 %、2.5 %、3.0 %と変化させた場合の、13Aガス製造価格に及ぼす影響を調べると、次の通りになる。

エスカレーション・ファクターの変化と13A製造価格

2001年よりのエスカレーション・ファクター	2005	2010	2015	2020	2025
1.5%/年	28.17	30.39	32.60	35.34	38.14
2.0%/年	28.40	31.27	33.95	37.37	41.00
2.5%/年	29.09	32.39	35.93	40.25	44.91
3.0%/年	29.55	33.47	37.78	43.06	48.94

表中の数字を図示すると、次頁の様になる。

LNGガスレンジ・ファクターの変化と L3Aガス製造価格の変化



2) 原料ナフサのエスカレーション・ファクターを変化させた場合：

ナフサのエスカレーション・ファクターは、2000年まで 2.0%一定とし、2001年以降のエスカレーション・ファクターを、1.5 %、2.0 %、2.5 %、3.0 %とした場合の、13A ガス製造価格に及ぼす影響を調べると、次の表のようになる。

エスカレーション・ファクターの変化と13A製造価格の変化

2001年よりのエスカレーション・ファクター	2005	2010	2015	2020	2025
1.5%/年	32.29	35.02	37.97	41.18	44.69
2.0%/年	32.74	36.01	39.61	43.54	47.93
2.5%/年	33.22	37.05	41.34	46.15	51.55
3.0%/年	33.68	38.14	43.21	49.00	55.64

表中の数値を図示すると、次頁のようになる。

3) 石炭水添ガス化熱効率 MAX. ケース、2010年の場合の、各種要因別の感度分析：

計算結果を一覧表の形に表すと、第1.2.1-3 表の如くなる。それぞれの因子の寄与度を示すために、この表を図示して置く。

b209

13 A 为 入 票 造 面 格 の 変 化

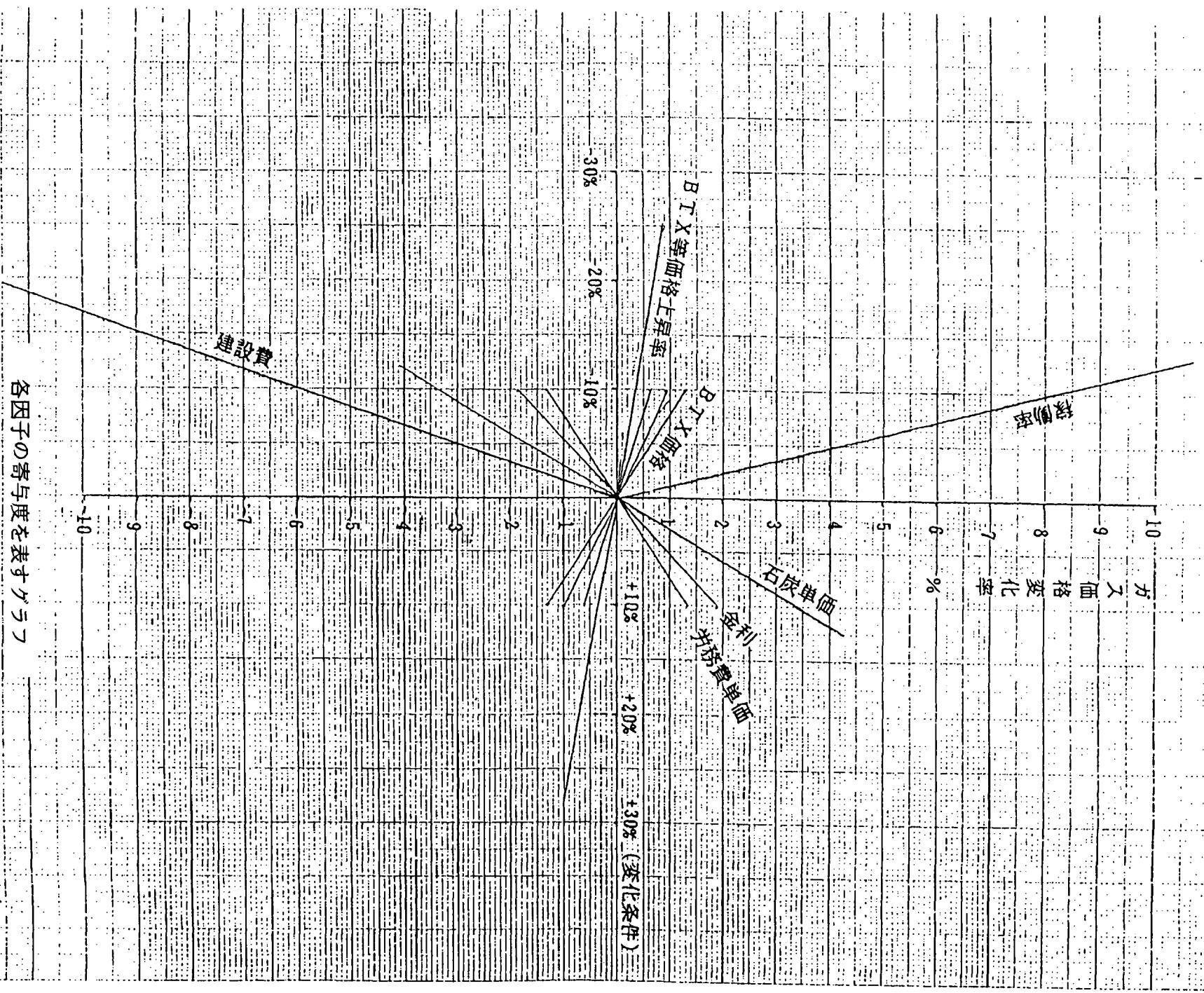
C-4

34-年-2000 年の国

1994年—2000年の間に、日本の上昇率は2.0%、米—1.0%。

第1.2.1-3 表 石炭水添ガス化熱効率 MAX. ケース (2010年) 感度分析結果

因子	感度分析のインプット条件 基本ケース	感度分析条件	製造 S N G 原価(¥/Nm³)	ガス価格の 変化率(%)
建設費 (百万円)	108,847	97,962 (-10%) 87,078 (-20%)	30.83 28.89	- 5.95 -11.87
稼働率 (%)	90	81 (-10%) 72 (-20%)	35.46 38.82	+ 8.18 +18.43
B T X 収率 (%)	6	5.4 (-10%) 6.6 (+10%)	33.11 32.46	+ 1.01 - 0.98
運転要員数 (人)	310	279 (-10%) 341 (+10%)	32.34 33.21	- 1.34 + 1.31
労働費単価 (百万円/人・年)	700	630 (-10%) 770 (+10%)	32.34 33.21	- 1.34 + 1.31
石炭単価 (円/t)	4,877	4,389 (-10%) 5,365 (+10%)	31.66 33.90	- 3.42 + 3.42
為替レート (円/US\$)	108	97.2 (-10%) 118.8 (+10%)	31.66 33.90	- 3.42 + 3.42
B T X 価格 (円/kg)	40	36 (-10%) 44 (+10%)	33.22 32.33	+ 1.34 - 1.37
B T X 等価格上昇率 (%/年)	2.0	1.5 (-25%) 2.5 (+25%)	32.88 32.65	+ 0.31 - 0.40
金利 (%/年)	8.0	7.2 (-10%) 8.8 (+10%)	32.18 33.39	- 1.83 + 1.86
自己資本比率 (%)	25.0	22.5 (-10%) 27.5 (+10%)	32.98 32.58	+ 0.61 - 0.61



各因子の寄与度を表すグラフ

4) ARCHプロセスで製造されるSNG単価と設備費との関係：

熱効率 MAX及びBTX MAXのそれぞれの場合の設備費は、個々の設備費を集計の後、10%の予備費を加えて、全体の設備費としている。

ここで、

y : 13A製造単価 ¥/Nm³

x : 予備費を削減した割合

と置くと、各年度での13A製造単価を表す式として、次式が得られる。

年度	ARCH・熱効率 MAX.	ARCH・BTX. MAX.
1995	$Y = -1.60X + 27.11$	$Y = -1.88X + 24.96$
2000	$Y = -1.72X + 28.82$	$Y = -1.98X + 26.14$
2005	$Y = -1.82X + 30.74$	$Y = -2.14X + 27.58$
2010	$Y = -1.96X + 32.78$	$Y = -2.26X + 29.02$
2015	$Y = -2.08X + 34.98$	$Y = -2.42X + 30.54$
2020	$Y = -2.22X + 37.36$	$Y = -2.58X + 32.17$
2025	$Y = -2.36X + 40.36$	$Y = -2.76X + 33.92$

この式を利用して、製造される13A単価が、それぞれの年度で、¥1.00/Nm³安くする為に必要な、1994年度における設備費削減必要金額を算出すると、次の様になる。

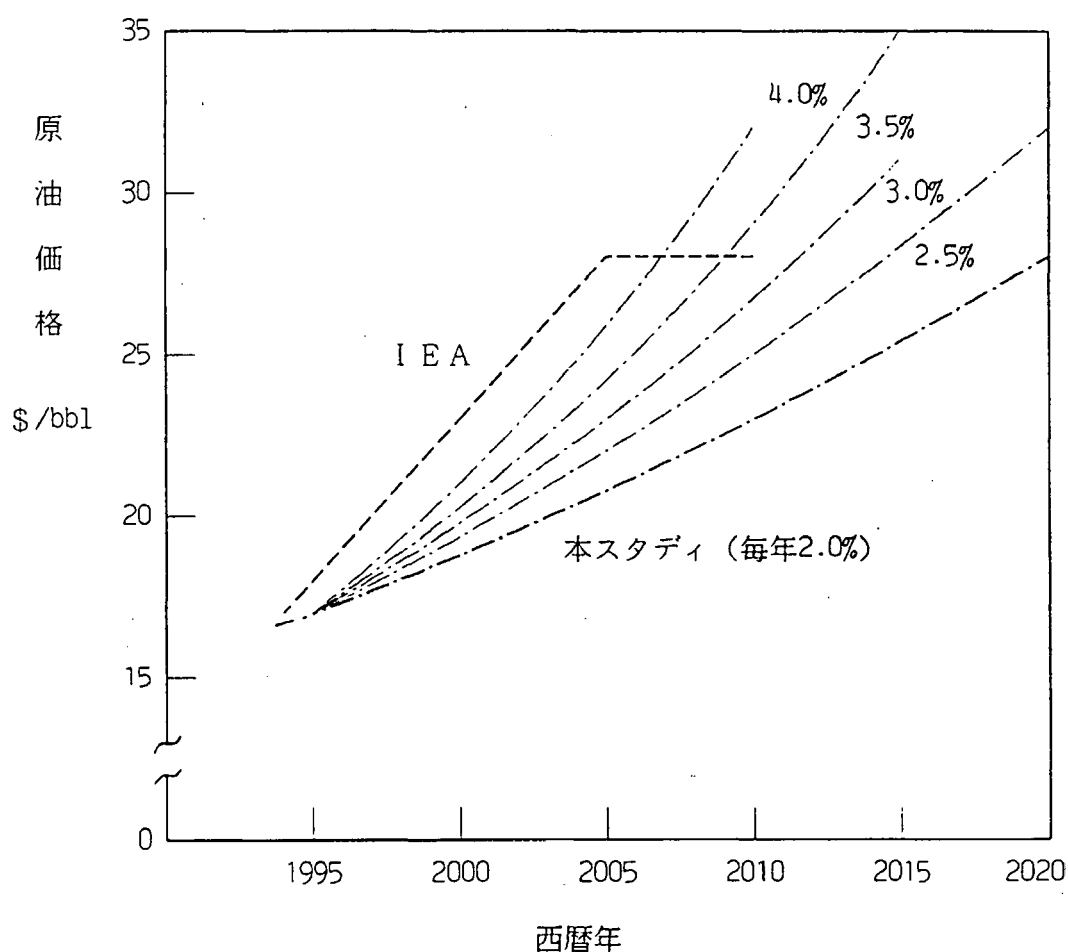
年度	ARCH・熱効率 MAX. (単位：百万円)	ARCH・BTX. MAX. (単位：百万円)
1995	6,891	6,855
2000	6,411	6,509
2005	6,059	6,022
2010	5,625	5,325
2015	5,301	5,325
2020	4,967	4,995
2025	4,672	4,669

(9) 原価価格からの考察

本経済性スタディでは、1994年度を価格設定基準年とし、1993年度の原油価格16.7\$/bbl を基に毎年 2.0%の価格上昇するというシナリオを採用した。しかしながら、不透明

なエネルギー情勢から、原油価格の上昇についてもいろいろなケースが想定される。ここでは、I E A (International Energy Agency)の1994年の価格見通しとの比較を行ってみよう。I E Aのレポートでは、1994年17 \$ / bbl より、2000年で23 \$ / bbl 、2005年で28 \$ / bbl に上昇し、2005年から2010年までは価格が一定のまま推移すると予測している。

第1.2-2 図に、今回の経済性スタディの前提条件（毎年 2.0 %）と I E A の見通しを比較する。



第1.2-2 図 原油価格上昇シナリオの比較

上記の図より、I E A の見通しのように原油価格が上昇すれば、石炭 S N G 熱効率最大ケースは、原油価格が28 \$ / bbl になる2005年にも経済性が出てくる可能性がある。

1. 2. 2 環境適合性

1. 2. 2. 1 はじめに

環境適合性を考える場合、先ず石炭水添ガス化プラントに関する、環境法規制及び地方自治体の条例がどのようなになっているかを調べる必要がある。石炭水添ガス化プラント内の各ユニット並びにその中に含まれる対象設備を上げると、次の様になっている。

<u>ユニット</u>	<u>対象設備</u>	<u>適応環境法規制</u>
貯炭場	コンベアー・貯炭場	(1)
石炭前処理	コンベアー・破碎・摩砕・フルイ	(1)、(3)
石炭供給・反応器	石炭フィーダー・反応器	(1)、(5)
チャーガス化装置	チャー冷却・搬送・ガス化	(1)、(2)、(5)
精製装置	ガス冷却洗浄・酸性ガス除去	(1)、(2)、(4)、(5)
共通付帯設備	ボイラ・自家発電装置	(1)、(3)

ここに、(1)：大気汚染防止法 (2)：水質汚濁防止法 (3)：騒音(振動)規制法 (4)：悪臭防止法 (5)：廃棄物処理法

また、工場立地等に関する環境関連法規制は、

＊工場立地法

＊環境アセスメント条例(各地方自治体)

等があり、これらの内容を十分満足出来るものである必要がある。

1. 2. 2. 2 プラントから排出される物質

石炭水添ガス化プラントから排出される可能性のあるものにつき、ガス、液体、固体の順に記述する。

(1) ガス

プラントから排出される可能性のあるガスは、次の通りである。

- a) ガス精製過程における、脱炭酸装置からのCO₂
- b) ガス精製過程における、脱硫装置からの硫黄化合物(これは、硫黄回収装置を経て、単体硫黄として回収分離される)
- c) COリッチガスの燃焼によるCO₂、NO_x
- d) 製造されたSNGが燃焼した場合のCO₂

これらの内、CO₂については、地球温暖化対策として、その削減が地球規模で論議されている所であり、現代社会に与える影響が極めて大きいので、別に取り上げて詳述する。

CO₂以外の上記ガスについては、現在使われている工業装置で十分処理可能な状態にあり、排出上の問題はない。

(2) 液体

プラントから排出される、環境適合性との絡みで重要なのは、工場排水である。

排水としては、

- a) 石炭水添ガス化プロセス排水
- b) HYCOLプロセス排水
- c) ボイラ・ブロー
- d) 冷水塔ブロー
- e) BFW再生排水ブロー
- d) HYCOLスラグ・クエンチ水

が挙げられるが、通常の排水処理設備により、問題なく処理される。なお、HYCOLスラグ・クエンチ水については、後述する。

(3) 固体

石炭は、複雑な化合物の集積されたものであり、様々な微量物質が存在するので、これらに対する配慮も忘れる事は出来ない。

石炭水添ガス化プラントの場合、石炭水添ガス化炉周りから出るチャーは、次の様な性状が示されている³⁾。

チャー名称	A	B
原料炭	Bituminous	Lignite
Proximate analysis, % w/w db		
V.M.	4.9	5.3
F.C.	80.7	91.3
ASH	14.4	3.4
Ultimate analysis, % w/w db		
C	94.7	96.2

H	2.4	2.2
O	0.4	1.0
N	1.4	0.6
S	1.1	0

このチャーは、HYCOLプラントに送られて、炉内で部分酸化法によるガス化反応が行われるので、HYCOL炉から出るスラグの組成は、TEXACOがロスアンゼルス近くの、Montebello研究所の15 t/dのパイロット・プラントで行った環境試験の結果が参考になる。

この試験の対象とした石炭は、東部炭(Illinois No.6)と西部炭(Kaiparowits)で、その分析値と、この石炭を使用してガス化を行った場合の、粗粒(1/16-1/2"、約0.5-2%のカーボン含有)と細粒のスラグの分析値を発表している。^{1)・2)} 次頁以降に、スラグの分析値、粗粒(1/16-1/2"、約0.5-2%のカーボン含有)と細粒のスラグの分析値を示した表と、スラグの溶出試験をEPAのEP(Extraction Procedure)Toxity Test(pH 5の酢酸水溶液、24時間)に従って行った結果の表を示す。飲料水基準値(NIPDWS)の100倍値と比較して、溶出の程度は僅かであると判定している。従って、HYCOLから排出されるスラグについても、溶出の程度は極僅かで問題ないと判断される。

HYCOLから出るスラグの量は、SNG製造量 300百万Nm³/dのプラントから年間27万t程度となる。これらは、埋立や道路工事等の骨材その他に利用する事が可能である。

現在考えられているマスバランスから見れば、全量のチャーを水素製造に利用するので、余剰副生チャーは殆ど出てこない事になっている。もし、水素製造にチャーを利用しないとした場合は、今まで行ってきた、SNG 300万Nm³/d製造する設備から出るチャーの量は、年間90万tになる。チャー自体は、比表面積 214m²/g、細孔半径 12.05Aというデータが得られており、更にこれを水蒸気賦活することにより、比表面積は 500m²/g程度となり、排煙脱硫、河川流水浄化用に必要と言われている 100-300 m²/gを満たしている。また、薬品賦活する事により、200m²/g程度の値が得られており、市販品と比べて遜色ない結果となっている。³⁾

以上記述した様に、水添ガス化プラントは、環境適合性の面で、特に問題となる所がない事が解る。以下に、項を改めて詳述するように、CO₂排出に関しても有効な石炭利用法である事が理解出来るのではないかと考える。

原料炭とスラグの分析値

Analyses, %	COAL		COAL SLAGS			
	Illinois No. 6 Coal	Western Bituminous Coal	Illinois No. 6 Coarse	Illinois No. 6 Fine	Western Bituminous Coarse	Western Bituminous Fine
Ash	13.21	9.64	96.61	75.70	99.53	82.60
Carbon	65.86	68.58	4.03	22.76	0.54	12.58
Hydrogen	4.79	4.91	0.05	0.84	0.06	0.37
Nitrogen	1.31	1.41	0.07	0.31	<0.01	0.09
Sulfur	4.07	0.51	0.59	1.83	0.10	0.36
Chlorine	0.06	0.02				
Oxygen(by diff.)	10.70	14.93				
Major Elements, %						
Aluminum	1.19	0.58	11.9	8.89	6.4	5.4
Calcium	0.66	1.29	4.60	3.57	14.1	10.4
Iron	1.52	0.34	11.6	10.20	4.13	3.95
Magnesium	0.08	0.16	0.65	0.50	1.57	1.39
Potassium	0.22	0.03	1.27	1.05	0.37	0.34
Silicon	2.61	1.55	21.0	14.15	23.4	19.2
Sodium	0.09	0.08	0.60	0.63	2.02	2.42
Titanium	0.05	0.05	0.62	0.52	0.80	0.73
Minor Elements, mg/kg						
Antimony	0.97	0.2	0.8	0.9	0.2	1.6
Arsenic	6.4	0.10	15	20	3	11
Barium	140	262	378	302	770	705
Beryllium	0.6	0.2	7.5	6.6	0.6	0.7
Cadmium	1.9	0.3	5.0	6.7	0.2	0.2
Chromium	10.2	17.2	1790	842	244	115
Cobalt	7.3	3.3	124	86	22	14
Copper	16	6.0	81	90	72	109
Lead	43	14	30	47	33	190
Lithium	6.7	3.0	62	44	74	64
Manganese	89	51	613	525	500	469
Mercury	0.19	0.05	0.14	0.09	0.52	2.6
Molybdenum	8.7	1.6	64	98	10	22
Nickel	46	15	229	267	55	41
Selenium	1.1	1.2	14	17	0.2	5.7
Silver	0.22	0.35	0.1	0.2	0.1	0.9
Strontium	64	107	458	364	835	637
Thallium	0.22	0.7	0.3	0.3	0.7	0.7
Tin	2.2	0.2	4	2	0.5	0.3
Vanadium	23	20	340	280	70	70
Zinc	118	22	67	425	26	110

E P A の E P 溶出試験結果

Soluble Metals, mg/l	Texaco Coal Gasification Process				Coal-Fired Boiler		EPA
	Illinois No. 6 Slage		Western Bituminous Slags		Illinois No. 6 Ashes		RCRA
	Fine	Coarse	Fine	Coarse	Fly	Bottoms	Standards
Arsenic	<0.005	<0.005	<0.005	<0.005	0.07	0.10	5.0
Barium	<0.1	<0.1	0.25	<0.1	0.67	0.10	100
Cadmium	<0.03	<0.03	0.04	<0.03	0.30	0.03	1.0
Chromium	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	0.03	0.70	5.0
Copper	<0.05	<0.05	<0.05	<0.05	1.2	<0.05	100
Iron	0.38	<0.30	<0.30	<0.30	9.5	2.0	30
Lead	<0.3	<0.3	0.4	<0.3	<0.3	<0.3	5.0
Manganese	0.25	<0.05	1.09	<0.05	N. A.	N. A.	5.0
Mercury	0.002	<0.002	<0.002	<0.002	<0.002	<0.002	0.2
Selenium	0.8	0.06	<0.002	<0.002	0.05	0.07	1.0
Silver	<0.03	<0.03	0.1	<0.03	<0.03	0.03	5.0
Zinc	1.7	0.26	0.50	0.30	5.7	0.06	500

文 献

- 1) M. Teper, et.al., The economics of gas from coal, IAE Coal reseach report E2/80 (Jan. 1983)
- 2) B. R. Clibert, et.al., Economics potential of coal as source of chemical synthesis gas, Cont. of Int. Coal Conv., CSIR 予稿 (1982.8)
- 3) 新エネルギー・産業技術総合開発機構：「石炭水添ガス化技術開発調査委託業務報告書」P. 27及びP. 31, 平成4年3月

1. 2. 2. 3 化石燃料の採掘から燃焼までのCO₂放出量の比較

(1) 化石燃料別にみた採掘から燃焼までのトータルな温室効果のまとめ

エネルギー経済、第17巻、第7号（1991年7月）“採掘から燃焼までのトータルな温室効果からみた化石燃料の比較”によれば、今後更にデータの検証が必要であると言う前提ながら、以下の表がまとめられている。

第1.2.2-1 表 化石燃料別にみた採掘から燃焼までのトータルな温室効果のまとめ

(単位：kg-C/10⁶kcal)

		石 炭 (平均)	石 炭 (坑内)	石 炭 (露天)	石 油	天然ガス	L N G
炭 酸 ガ ス	生 産	3.08	5.15	1.48	0.27	-	-
	フレア燃焼	-	-	-	0.27	2.81	0.77
	随伴天然ガス	-	-	-	0.03	3.60	3.60
	輸送（陸上）	0.85	0.85	0.85	-	-	-
	輸送（海上）	1.85	1.85	1.85	0.79	-	1.39
	転換	-	-	-	1.83	-	7.47
	（小計）	(5.87)	(7.85)	(4.18)	(3.19)	(6.41)	(13.23)
	燃 焼	99.82	99.82	99.82	80.45	57.55	57.55
合 計		105.60	107.67	104.00	83.64	63.96	70.78
メ タ ン	メタン (CO ₂ 換算)	6.78	10.97	0.00	1.50	15.50	5.88
総 計		112.38	118.64	104.00	85.14	79.46	76.66

燃焼段階だけをとると、CO₂ 排出量は、石炭：石油：天然ガス＝ 100：80：58と考え

られるが、上表より、石炭（平均）の場合及び石炭（露天堀）の場合の、排出メタンの温室効果を考慮すると、この割合が次の様に示される。

石炭（平均）：石油：天然ガス＝ 100：76：71

石炭（露天）：石油：天然ガス＝ 100：82：76

この報告書中の、化石燃料の年間生産量、発熱量、各エネルギー源の単位間の換算係数として使用された数字は、参考文献〈MITI資源エネルギー庁委託調査「火力発電所大気影響評価技術実証調査報告書」平成2年3月、（財）エネルギー総合工学研究所〉に記載されている。即ち

石炭：47.7 億トン

石油：219億バーレル

天然ガス：1.8兆Nm³ 以上1987年実績

石炭：6,200kcal/kg

石油：9,900kcal/l

天然ガス：9,500kcal/Nm³

天然ガス：1 t = 1,400Nm³, 1 Nm³ = 38 S C F

石油：1 bbl = 159 l

（2）井戸もとのガスに同伴されるCO₂含有量の変化と燃焼エネルギー当りのCO₂中のC量との関係

ガス田から出るガスが、CH₄とCO₂の2成分系と簡略化して、天然ガス中に含まれるCO₂の容積率をXで表すと、井戸から出る天然ガス中のCH₄量は、1-Xで表される。従って、この天然ガスが燃焼した場合、発熱量1×10⁶ kcal（HHV基準）当たりのCO₂中に含まれるC量をAとすると、次式で表される。

$$A = \{X \times 12.01 \times 10^6 / (1 - X) \times 16.04 \times 13,264\} \text{ kg-C} / 10^6 \text{ kcal} \quad (\text{A})$$

また、前記第1.2.2-1 表より、LNGの場合には、フレア燃焼や輸送並びに液化のためのCO₂中のC量として、次の数値が挙げられる。

フレア燃焼：0.77kg-C/10⁶kcal

輸送（海上）：1.39kg-C/10⁶kcal

転換：7.47kg-C/10⁶kcal

計) 9.63kg-C/10⁶kcal

(B)

また、 CH_4 を燃焼させた場合の CO_2 中の C 量は、

$$\text{燃焼} \quad : 56.45\text{kg-C} / 10^6\text{kcal} \quad (\text{C})$$

今、前記 (A) 式中の X の値を、0 から 0.9 まで変化させた場合の、地球的規模で考えられる、全発生 CO_2 中の C 量の変化をまとめてみる。

はじめに、天然ガスに随伴して出てくる CO_2 量に依って、脱炭酸のための所要動力がどの様に変化するか考えてみる。

先ず、前掲の“第1.2.2-1 表”の中に、LNG に随伴する炭酸ガス中の炭素量が、 $3.60\text{kg-C} / 10^6\text{kcal}$ の時の“転換”に必要な値として、 $7.47\text{kg-C} / 10^6\text{kcal}$ という数値が書かれている。この時の CO_2 量はいくらであることを計算してみる。この場合、 CO_2 と CH_4 の 2 成分系を考えると、 CO_2 の容積％は 6.00％である事が解る。

CO_2 中の C 量 $3.60\text{kg} / 10^6\text{kcal}$ という事は、 CO_2 量が、

$$0.30\text{kg-mol} / 10^6\text{kcal} = 6.72\text{N m}^3 / 10^6\text{kcal}$$

10^6kcal の熱量に必要な CH_4 量は、 4.699kg-mol であるので、

$$4.699 \times 22.4 = 105.26\text{N m}^3 / 10^6\text{kcal}$$

従って、この場合の CO_2 の容積％は、

$$6.72 / (105.26 + 6.72) \times 10^2 = 6.00\%$$

即ち、天然ガス中の炭酸ガスとしての C 量が、 $3.60\text{kg-C} / 10^6\text{kcal}$ の場合は、 CH_4 、 CO_2 系として考えると、井戸から出るガス中 CO_2 の容積％は、6.00％である。

この場合の脱炭酸のための所要エネルギーが入って、“転換”に $7.47\text{kg-C} / 10^6\text{kcal}$ 必要だという事である。

燃焼排ガス中の CO_2 を 90％、脱炭酸装置で吸収除去するとした場合の、脱炭酸装置での所要動力は、211 から $240\text{kWh} / \text{t. CO}_2$ 程度の範囲にある。今、微粉炭焚き発電装置の場合の値、 $211\text{kWh} / \text{t. CO}_2$ を使って、この場合の脱炭酸装置での必要なエネルギーを求めてみると、

$$\begin{aligned} \text{理論必要熱量} &= 211 \times 860 = 181.46 \times 10^6\text{kcal} / \text{t. CO}_2. \quad 181.46\text{kcal} / \text{kg CO}_2 \\ &= 7,983.28\text{kcal} / \text{kg-mol. CO}_2 \end{aligned}$$

効率 42.4％の LNG 発電装置で発電した電気を使用すると、必要エネルギーは、

$$7,983.28 / 0.424 = 18,828\text{kcal} / \text{kg-mol. CO}_2$$

従って、 CH_4 必要量は $18,828 / 212.79 \times 10^3 = 0.08848\text{kg-mol CH}_4$

即ち、 1kg-mol の CO_2 を除去するのに必要な熱量は、 0.08848kg-mol の CH_4 の燃焼熱量

に相当する（これはまた、 $1.062\text{kg-C/kg-mol. CO}_2$ に相当する）。

前頁の（A）式を変形して、 10^6 kcal 当たりの CO_2 量 D ($\text{kg-mol-CO}_2/10^6\text{ kcal}$) は、次式で表される。

$$D = \{X \times 10^6 / (1 - X) \times 16.04 \times 13,264\} = 4.700 \times X / (1 - X)$$

従って、 CO_2 の除去率を 100%と見なすと、 CO_2 除去に必要なエネルギー E (即ち $\text{kg-C}/10^6\text{ kcal}$) は次式で表される。

$$E = \{4.700 \times X / (1 - X)\} \times 1.062 = 4.991 \times X / (1 - X)$$

この E の値を計算し、 CO_2 除去に必要なエネルギーを加算して、前頁の B の値を補正すると、次表の通りとなる。

メタンに同伴される CO_2 容積当たりの、脱炭酸に必要な動力

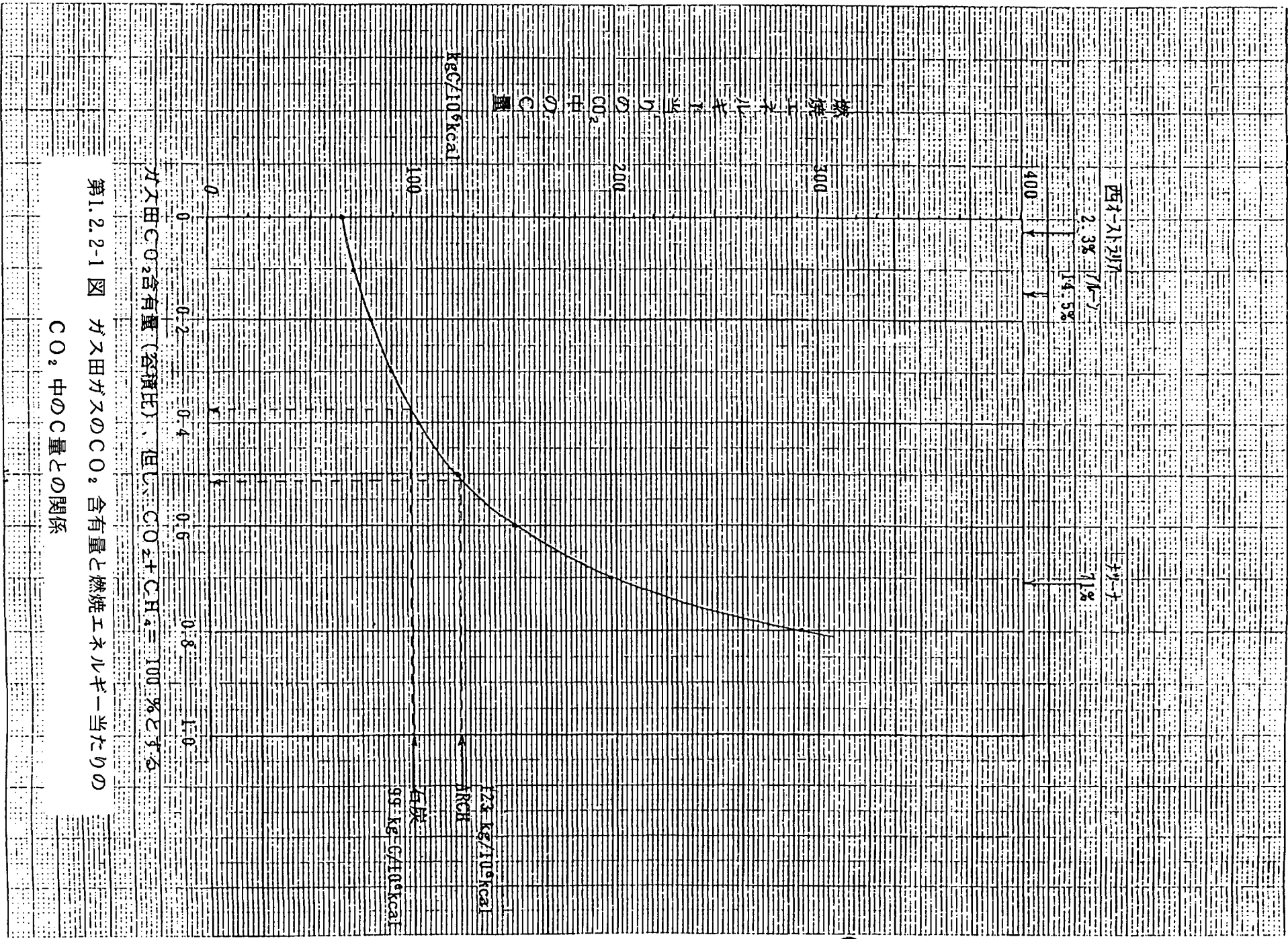
X	CH_4 容積率	E 量 ($\text{kg-C}/10^6\text{ kcal}$)	B ($\text{kg-C}/10^6\text{ kcal}$)
0	1.00	0.00	9.311
0.06	0.94	0.319	9.63
0.10	0.90	0.555	9.866
0.20	0.80	1.248	10.559
0.30	0.70	2.139	11.450
0.40	0.60	3.327	12.638
0.50	0.50	4.991	14.302
0.60	0.40	7.487	16.798
0.70	0.30	11.646	20.957
0.80	0.20	19.964	29.275
0.90	0.10	44.919	54.23

この表を使って、地球規模で考えられる、全発生 CO_2 中の C 量の変化を表示すると、第1.2.2-2 表の通りになる。

第1.2.2-2 表を図示すると、第1.2.2-1 図のようになる。

第1.2.2-2 表 燃焼エネルギー 10^6 kcal当たりの CO_2 中のC量: $T = A + B + C$

	X	A (m = 1)	B	C	T	C O ₂ 中の C 発 生 量 比率
		(kg-C/10 ⁶ kcal)				
L	0	0.00	9.31	56.45	65.76	0.664
	0.06	3.60	9.63	56.45	69.68	0.704
	0.10	6.28	9.87	56.45	72.60	0.733
	0.20	14.14	10.56	56.45	81.15	0.820
	0.30	24.23	11.45	56.45	92.13	0.931
N	0.40	37.70	12.64	56.45	106.79	1.079
	0.50	56.54	14.30	56.45	127.29	1.286
	0.60	84.82	16.80	56.45	158.07	1.597
G	0.70	131.94	20.96	56.45	209.35	2.115
	0.80	226.18	29.28	56.45	311.91	3.151
	0.90	508.90	54.23	56.45	619.58	6.258
石炭：T = 99kg-C/10 ⁶ kcalと置く。						1.000
石炭例：太平洋炭（OG）T = 98.1 （TG）T = 96.0						
イリノイ No.6 T = 102.2 ウェストバージニア T = 99.3						
重油：T = 76.2kg-C/10 ⁶ kcal						0.77
メタノール：T = 84.1kg-C/10 ⁶ kcal						0.85
LNG（井戸からでるガス中C O ₂ 含有量により差がでる）						



第1.2.2-1 図 ガス田ガスのCO₂含有量と燃焼エネルギー当たりのCO₂中のC量との関係

(3) ARCHプロセスにおける、生成物中の炭素(C) 分布状況

ここで、ARCHプロセスにより生成される生成物中のC含有量を考えてみる。

ARCHプロセスから出てくる炭素化合物は、次の通りである。

イ) SNGとして製造される製品ガス

ロ) ARCHプロセス用水素製造過程における、脱炭酸プロセスからのCO₂排気中のC

ハ) COリッチガス(最後は発電装置からの燃焼排ガスとなる)中のC

ニ) ナフサ類中のC

ホ) 芳香族副産品(ベンゼン)中のC

平成3年度の、石炭水添ガス化技術開発調査報告書の中の、マテリアル・バランス表の数値を使用して、それぞれの生成物中のC量を調べると次の通りになる。

イ) SNGとして製造される製品ガス

	製造ガス量	同左中C量kg-mol/h	同左中C量kg/h
CH ₄	: 5,020.61kg-mol/h	5,020.61kg-mol/h	60,298kg/h
CO	: 0.63kg-mol/h	0.63kg-mol/h	8kg/h
C ₂ H ₆	: 6.97kg-mol/h	13.94kg-mol/h	167kg/h
計)	5,028.21kg-mol/h	5,035.18kg-mol/h	60,470kg/h

排ガス中のCO₂の90%を吸収除去するとすると、

大気放出CO₂中のC量: 6,047kg-C/h

濃厚分離CO₂中のC量: 54,423kg-C/h

ロ) 脱炭酸系からの放出CO₂中のC

	ガス量	同左中C量kg-mol/h	同左中C量kg/h
CO	: 4.13kg-mol/h	4.13kg-mol/h	50kg/h
CO ₂	: 6,062.4 kg-mol/h	6,062.4 kg-mol/h	73,355kg/h
H ₂ 、N ₂ 、Aなどは省略			
計)	6,066.5 kg-mol/h	6,066.5 kg-mol/h	72,859kg/h

ハ) COリッチガス

	ガス量	同左中C量kg-mol/h	同左中C量kg/h
CH ₄	: 97.63kg-mol/h	97.63kg-mol/h	1,173kg-C/h
CO	: 484.45kg-mol/h	484.45kg-mol/h	5,818kg-C/h
H ₂	: 162.12kg-mol/h		

$N_2 + A : 28.30\text{kg-mol/h}$

計) 772.50kg-mol/h 582.08kg/h $5,991\text{kg-C/h}$

ニ) 芳香族副産品 (ベンゼン)

	生成量	同左中 C 量 kg-mol/h	同左中 C 量 kg/h
$C_6H_6 :$	129.89kg-mol/h	779.3 kg-mol/h	$9,352\text{kg-C/h}$

ホ) ナフサ類

	生成量	同左中 C 量 kg-mol/h	同左中 C 量 kg/h
$C_7H_8 :$	0.02kg-mol/h	0.14kg-mol/h	1.7kg-C/h
$C_{10}H_8 :$	24.39kg-mol/h	243.9 kg-mol/h	$2,927\text{kg-C/h}$
$C_{14}H_{10} :$	17.41kg-mol/h	243.7 kg-mol/h	$2,924\text{kg-C/h}$
計)	41.82kg-mol/h	487.7 kg/h	$5,853\text{kg-C/h}$

以上のイ) からホ) までの合計では、生成物中の C の総量は、次の如く表される。

	生成量 kg-C/h	原料石炭中の C に対する比率%
イ)	$60,422\text{kg-C/h}$	38.0%
ロ)	$71,749\text{kg-C/h}$	45.8%
ハ)	$6,985\text{kg-C/h}$	4.4%
ニ)	$9,352\text{kg-C/h}$	5.9%
ホ)	$5,853\text{kg-C/h}$	3.7%
計	$155,361\text{kg-C/h}$	97.8%

なお、原料石炭中の C 量 (kg-C/h) は、DAF COAL $210,225.9\text{kg/h}$ であり、DAF COAL 中の炭素%が 75.59%である事から、 $158,910\text{kg-C/h}$ である事が解る。この値を使用して、上表右側の数字を計算した。 $210,225.9 \times 0.7559 = 158,909.75\text{kg-C/h}$ 。

従って、炭素捕捉率 = 97.77% ($= 155,361 / 158,910$) である。

この点について、別の観点から考えてみると、ARCH プロセスにおける、熱効率 MAX ケースの場合のカーボンバランスは、次頁のようになる。

このカーボン・バランスの図の中の炭素のロス分は、2.2%であり、(換言すれば炭素捕捉率 97.8%) 前頁の値と一致する。

ここで、原料石炭中のカーボン量の 38.0% が生成される SNG 中に残る。

また、精製工程過程において CO_2 となるカーボン量は、脱炭酸ガス装置からの CO_2 ガス 45.8% である事が解る。即ち、原料石炭中の C の 45.8% は、脱炭酸装置から、純度 98.8

%のCO₂として濃厚分離除去される事が解る。

1. 2. 2. 4 石炭発電方式とガス発電方式の比較による、CO₂ 排出量状況

発電設備から出るCO₂ 回収などに関しては、下記報告書がある。

「平成3年度調査報告書 NEDO-P-9109 :

火力発電プラントからCO₂ 回収システムに関する調査

平成4年3月 委託先：(財)エネルギー総合工学研究所」

「平成4年度調査報告書 NEDO-P-9209 :

火力発電プラントからCO₂ 回収システムに関する調査(Ⅱ)

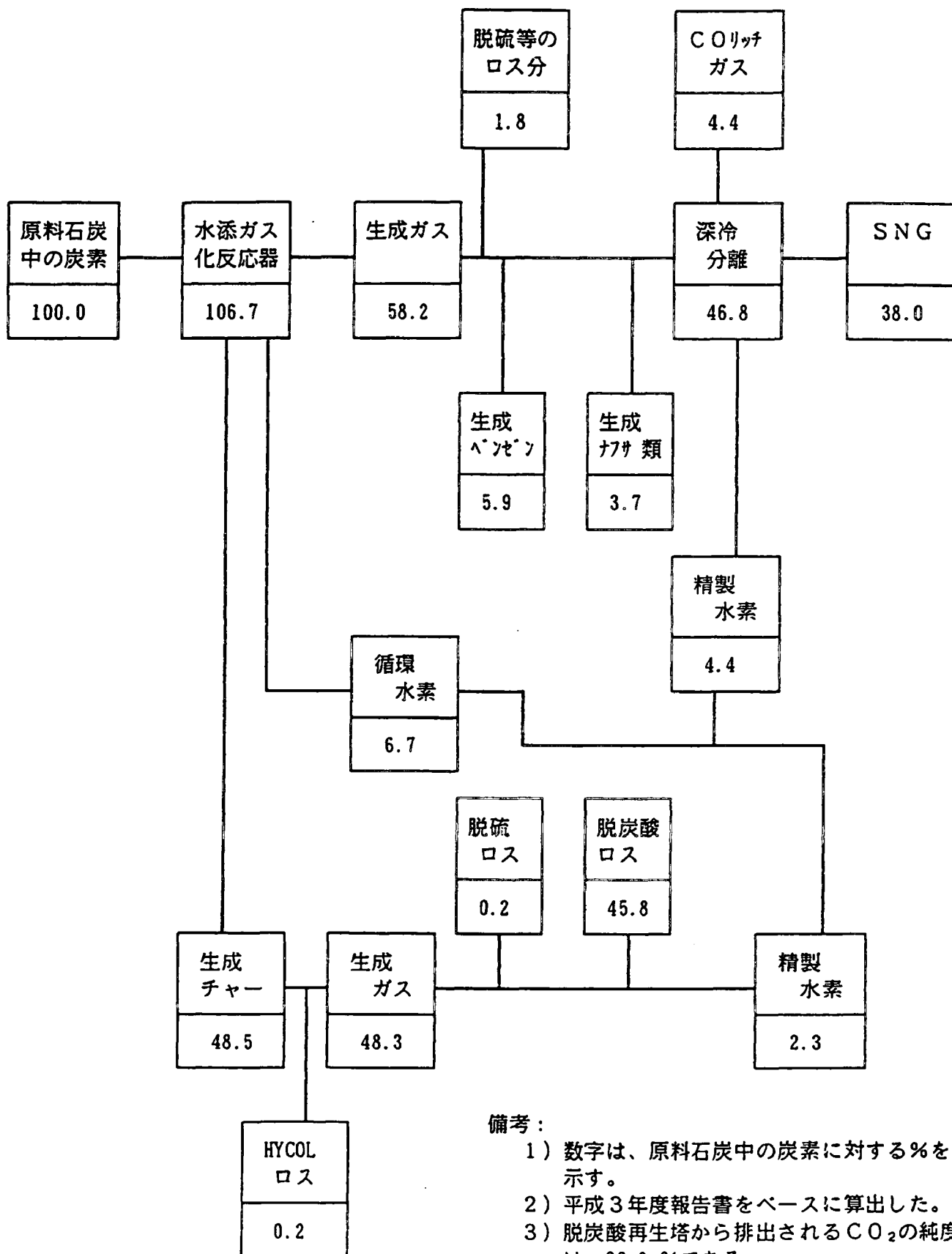
平成5年3月 委託先：(財)エネルギー総合工学研究所」

これらの報告書は、2000-2010年頃に新設される火力発電プラントを対象として、燃料としてLNG、石炭、メタノールについて検討されている。また、各発電容量は、発電端出力で600MWとして検討されている。

(1) LNG発電の場合

前記、「NEDO-P-9109」の中の、LNG複合発電におけるスタディー結果として、次の数値が挙げられている。

項 目	ベースケース	排ガスからCO ₂ 回収
燃料発熱量 (HHV:kcal/Nm ³)	10,810	10,810
燃料消費量 (HHV:×10 ⁶ kcal/h)	1,088.0	1,088.0
発電端出力 (kW)	600,000	563,563
発電端効率 (%)	47.4	44.5
発電所内動力 (kW)	12,000	12,000
送電端出力 (kW)	588,000	536,228
送電端効率 (%)	46.5	42.4
CO ₂ 回収所要熱量 (×10 ⁶ kcal/h)	--	178.0
CO ₂ 回収所内動力 (kW)	--	15,335
CO ₂ 回収による送電端出力減 (kW)	--	51,772
CO ₂ 回収量 (t/h)	--	213.5
CO ₂ 回収動力率 (kWh/t/CO ₂)	--	242



カーボン・バランスの図

(2) 一般的石炭利用発電装置の場合

微粉炭焚き発電の場合と、酸素吹き石炭複合発電の場合の例を、前記「NEDO-P-9109」から引用すると、次の様になる。

イ) 微粉炭焚き発電の場合

項 目	ベースケース	排ガスからCO ₂ 回収
燃料発熱量 (HHV:kcal/N m ³)	6,200	6,200
燃料消費量 (HHV:×10 ⁶ kcal/h)	1,172.7	1,172.7
発電端出力 (kW)	600,000	527,960
発電端効率 (%)	44.0	38.7
発電所内動力 (kW)	42,000	42,000
送電端出力 (kW)	558,000	474,534
送電端効率 (%)	40.9	34.8
CO ₂ 回収所要熱量 (×10 ⁶ kcal/h)	--	330.5
CO ₂ 回収所内動力 (kW)	--	10,346
CO ₂ 回収による送電端出力減 (kW)	--	83,466
CO ₂ 回収量 (t/h)	--	396.5
CO ₂ 回収動力率 (kWh/t/CO ₂)	--	211

ロ) 酸素吹き石炭ガス化複合発電の場合

項 目	ベースケース	排ガスからCO ₂ 回収
燃料発熱量 (HHV:kcal/N m ³)	7,100	7,100
燃料消費量 (HHV:×10 ⁶ kcal/h)	1,053.6	1,053.6
発電端出力 (kW)	600,000	541,000
発電端効率 (%)		
発電所内動力 (kW)		
送電端出力 (kW)	527,000	454,000
送電端効率 (%)	43	37
CO ₂ 回収所要熱量 (×10 ⁶ kcal/h)	--	207
CO ₂ 回収所内動力 (kW)	--	13,500
CO ₂ 回収による送電端出力減 (kW)	--	73,000
CO ₂ 回収量 (t/h)	--	355.4

(3) 各発電所の比較

CASE-1) LNG複合発電、CASE-2) 微粉炭焚き発電、CASE-3) 酸素吹き複合発電、の各方式の比較を簡単に行うと第1.2.2-3 表のようになる。

第1.2.2-3 表 各発電方式の比較

CASE	発電装置CO ₂ 削減率			
	ベースケース： 0 %		90%削減	
	CO ₂ の状態他	効率%	CO ₂ の状態他	効率%
CASE-1	送電端出力：588,000 kW 全CO ₂ 量：237.0 Ton 大気放出量：237.0 Ton 濃厚分離量：0.0 Ton	46.50	送電端出力：563,563 kW 全CO ₂ 量：237.0 Ton 大気放出量：23.7 Ton 濃厚分離量：213.9 Ton	42.4
CASE-2	送電端出力：588,000 kW 全CO ₂ 量：440.5 Ton 大気放出量：440.5 Ton 濃厚分離量：0.0 Ton	40.9	送電端出力：474,534 kW 全CO ₂ 量：440.5 Ton 大気放出量：44.0 Ton 濃厚分離量：396.5 Ton	34.8
CASE-3	送電端出力：527,000 kW 全CO ₂ 量：394.9 Ton 大気放出量：394.9 Ton 濃厚分離量：0.0 Ton	43.0	送電端出力：454,000 kW 全CO ₂ 量：394.9 Ton 大気放出量：44.0 Ton 濃厚分離量：355.4 Ton	37.0

(4) ARCHプロセスからの製造ガスをNG複合発電装置に繋げる場合

ARCHプロセスで、SNG、3百万Nm³/dを製造するプラントから生成するCH₄を主成分とするガスの持つ発熱量と、所要原料石炭の持つ熱量などは、平成3年度報告書から次の通りになっている。

生成ガス：112,625Nm³/h（発熱量 9,547kcal/Nm³） 1,075.23×10⁶ kcal/h

原料石炭：243,881.6kg/h（発熱量 6,650kcal/kg） 1,621.81×10⁶ kcal/h

この生成ガスの持つ熱量は、これを「LNG複合発電装置」で発電させると、約600MW相当の発電量になる。前記、NEDO-P-9109報告書P-134より、発電端出力600MWのための燃料使用量は、1,088×10⁶ kcal/hとなっている。

従って、ここではARCHプロセスにより生成された燃料ガスにより、発電端出力600MWの発電をさせる事を考える。そのため、原料石炭使用量を、1.01188倍増やして(1,088.0/1,075.2=1.01188)、発電端600MWの発電を行わせるものとする。

この考えに基づき、前記平成3年度報告書のマテリアルバランスの数字を、発電端出力600MWに対応させた場合に修正すると、次の如くなる。

	平成3年度報告書	修正後の数値
原料石炭投入量	243,881.6 kg/h	246,778.9 kg/h
生成ガス量	1,075.23×10 ⁶ kcal/h	1,088.00×10 ⁶ kcal/h

この場合のCO₂発生量を、ARCHプロセスからのものと、発電プラントからのものとに分けて算出すると、次の様になる。

1) ARCHプロセスからのもの

	当初CO ₂ 量	修正後のCO ₂ 量
a) 脱炭酸装置より：	6,062.40 kg-mol/h	6,134.4 kg-mol/h = 269,913.6kg/h
b) COリッチガス：	582.08 kg-mol/h	588.99kg-mol/h = 25,915.7kg/h
計		295,829.3kg/h

2) 発電プラントからのもの

	当初CO ₂ 量	修正後のCO ₂ 量
生成ガスより	5,035.18 kg-mol/h	5,094.98kg-mol/h = 224,179.1kg/h

LNG複合発電の場合のCO₂発生量は、237.2t/h（前記文献より）であり、生成

ガスの熱量の関係で、多少CO₂発生量が少なくなる。従って、発電させた場合の、発電所がらみのCO₂については、LNGの場合と殆ど同じと見て良い。

ARCHプロセスの場合のCO₂発生量は、上記の通りであるが、大気放出量と固定可能量との割合を計算してみると、次の様になる。但し、発電用に使用されるCOリッチガスは、燃焼排ガスをそのまま放出するものとした場合。

CO₂ 大気放出量： 25,916kg-CO₂/h

CO₂ 濃厚分離量： 269,914kg-CO₂/h

計 295,830kg-CO₂/h

平成3年度の報告書では、ARCHプロセスの中で、COリッチガスを発電燃料として、31,590 kWh/hの発電を行わせているが、この燃焼排ガス中のCO₂の90%を吸収除去する場合、全体熱効率がどの程度変化するか検討する。

発電端出力 600MWの発電装置を併設するとした場合、

COリッチガス量 = 588,933kg-mol/h = 25,915.7kg-CO₂/h

吸収除去CO₂量 = 23,324kg-CO₂/h

大気放出CO₂量 = 2,591.6kg-CO₂/h

燃焼排ガスからCO₂を回収する事による電力量の増加は、「NEDO-P-9109」の中の、微粉炭焚き発電の燃焼排ガスからのCO₂回収ケースとして、211kWh/t.CO₂となっている。この数字を使うと、COリッチガスからのCO₂除去に必要な電力は、4,921kWh/h (=23.324t. × 211)となる。

一方、この場合のCOリッチガスでの発電量は、31,965kWh/h (=31,590 × 1.0119)。系内消費電力量は、22,455kWh/h (=22,191 × 1.0119)。従って、余剰電力量は、9,510kWh/hとなる。ここからCO₂除去のための追加電力量、4,921kWh/hを差し引くと、この場合の余剰電力量は、4,589kWh/hとなる。

このCO₂除去による、ARCHプロセスの熱効率低下の度合いは、0.2579%で、平成3年度報告書中の、ARCHプロセスの熱効率 77.50%が、77.24 %に下がる事になる。

$$\{ (4,921 \times 859.98) / 1,641.07 \times 10^6 \} \times 10^2 = 0.2579\%$$

一方、ARCHプロセスの熱効率は、平成3年度報告書より、

入熱：原料石炭、 $1,621.18 \times 10^6$ kcal/h 100.00%

出熱：製造ガス、 $1,075.23 \times 10^6$ kcal/h 66.30%

ベンゼン、 101.44×10^6 kcal/h 6.25%

ナフサ類、	$62.30 \times 10^6 \text{ kcal/h}$	3.84%
硫 黄、	$1.17 \times 10^6 \text{ kcal/h}$	0.07%
アンモニア、	$8.74 \times 10^6 \text{ kcal/h}$	0.54%
電 力、	$8.08 \times 10^6 \text{ kcal/h}$	0.50%
出熱計＝総合熱効率		77.50%

COリッチガスの燃焼排ガスのCO₂を、そのまま放出すると、原料石炭の持つ発熱量の66.30%が製造ガスとなり、11.20%がその他の副産品となる。従って、この製造ガスを使ってNG複合発電を行わせると、全体としてのエネルギー効率は、次の様になる。

1) ベースケース

(NG複合発電装置の送電端効率： 46.50 %)

従って、発電装置部分の熱効率： 30.83 %

NG複合発電装置以外の熱効率： 11.20 %

2) 排ガスからCO₂を90%回収する場合

(NG複合発電装置の送電端効率： 42.40 %)

従って、発電装置部分の熱効率： 28.11 %

NG複合発電装置以外の熱効率： 11.20 %

ここに、COリッチガスの燃焼排ガス中のCO₂90%吸収除去した場合の、全体としての熱効率を求めると、次の通りとなる。

イ) ベースケース

発電装置部分の熱効率： 30.83 %

NG複合発電装置以外の熱効率： 10.94 %

ロ) 排ガスからCO₂を90%回収する場合

発電装置部分の熱効率： 28.11 %

NG複合発電装置以外の熱効率： 10.94 %

以上の如く、石炭水添ガス化プロセスで熱効率MAX ケースの場合、生成されるSNGを使用して発電を行ったとすると、全体としては、発電効率の他にARCHプロセス内での熱効率が加算できるので、かなり高い熱効率が期待できる。この場合、石炭水添ガス化プラントから配管で送ガスする事を考えれば、発電所は隣接する必要は無い。

(5) CO₂ バランスの比較

今まで検討してきた結果を、CO₂ に関してまとめると次の様に表される。但し、ここでは、前記CASE-2) 微粉炭焚き発電、CASE-3) 酸素吹き複合発電のそれぞれの場合の石炭の使用量について、次の様なカロリー修正して使用量を比較して置く。

CASE-2 : 6,200kcal/kgを 6,650kcal/kgに修正

CASE-3 : 7,100kcal/kgを 6,650kcal/kgに修正

石炭水添ガス化の場合、製品の内、芳香族副産品（ベンゼン）とナフサ類を除いた、SNGとして製造される製品ガスの燃焼によるCO₂ 量、脱炭酸装置から出るCO₂ 量、COリッチガスの燃焼排ガス中のCO₂ 量を対象に、全CO₂ 量・濃厚分離CO₂ 量・放出CO₂ 量を求めて置く。

	原料使用量	全CO ₂ 発生量	濃厚分離CO ₂ 量	大気放出CO ₂ 量
CASE-1 : 13A	10.88×10 ³ Nm ³ /h	237.7 t/h	213.9 t/h	23.8 t/h
CASE-2 :	石炭 176.4 t/h	440.5 t/h	396.5 t/h	44.0 t/h
CASE-3 :	石炭 158.4 t/h	394.9 t/h	355.4 t/h	39.5 t/h
CASE-4A :	石炭 246.8 t/h	520.0 t/h	471.7 t/h	48.3 t/h
CASE-4B :	石炭 246.8 t/h	520.0 t/h	495.0 t/h	25.0 t/h

但し、CASE-4Aは石炭水添ガス化熱効率MAX の場合で、COリッチガスの燃焼排ガスをそのまま放出した場合、CASE-4Bは、COリッチガスの燃焼排ガス中の90%のCO₂ を脱炭酸装置で除去した場合である。

石炭を原料とする場合の原料石炭t当たりのCO₂ 発生量などの比較を行うと、次の様になる。

石炭t当たりのCO₂ 発生量・固定量などの比較（単位：t）

	全発生CO ₂ 量	濃厚分離CO ₂ 量	大気放出CO ₂ 量
CASE-2 :	2.497 (1.000)	2.247 (1.000)	0.2497 (1.000)
CASE-3 :	2.493 (0.998)	2.244 (0.999)	0.2493 (0.998)
CASE-4A :	2.107 (0.844)	1.911 (0.851)	0.1957 (0.784)
CASE-4B :	2.107 (0.844)	2.006 (0.893)	0.1013 (0.406)

この表の結果から、ARCHプロセスの場合は、全発生CO₂ 量及び、濃厚分離CO₂ 量が他の石炭を利用する場合に比べ、全発生量で約15%少なく、CASE-4Aの場合で

CO₂ 放出量が約78%に、また、CASE-4Bの場合には、40%程度にまで減少する事が解る。

この事は、大気中へのCO₂ 放出量を考える上で極めて顕著な差であり、CASE-4Bの場合は、LNGの場合と同じ程度のCO₂ 放出量に出来る。火力発電プラントや、ARCHプロセスの様に、大型プラントの場合、高濃度のCO₂ ガスとして取り出したものを、大量に処理する方法としては、海洋への投棄か、地中への投棄のどちらかに依らざるを得ない。現在、濃厚分離CO₂ の処理方法については、海洋利用、地中利用、EOR利用等に関する環境保全の面での問題点が検討されて居り、CO₂ の大量処理方式が確立される日も近いと考える。

1. 2. 2. 5 WE-NET 関連スタディ

水添ガス化技術は開発されれば2010年頃からLNGを補完する方法として実用化されるであろう。国際的には、中国奥地の石炭をメタンに転換してパイプラインでアジアの需要地に供給するような展開も想定される。石油、天然ガスの供給が減退を始めれば、メタンハイドレートなどと共に天然ガスを代替する目的に利用されるであろう。

さらに時代が進んで、再生可能エネルギーが使用され、水素が中間エネルギーとして位置付けられれば、これを固定化したり、石油、天然ガス以後の炭素資源輸送媒体として重要な技術となるであろう。

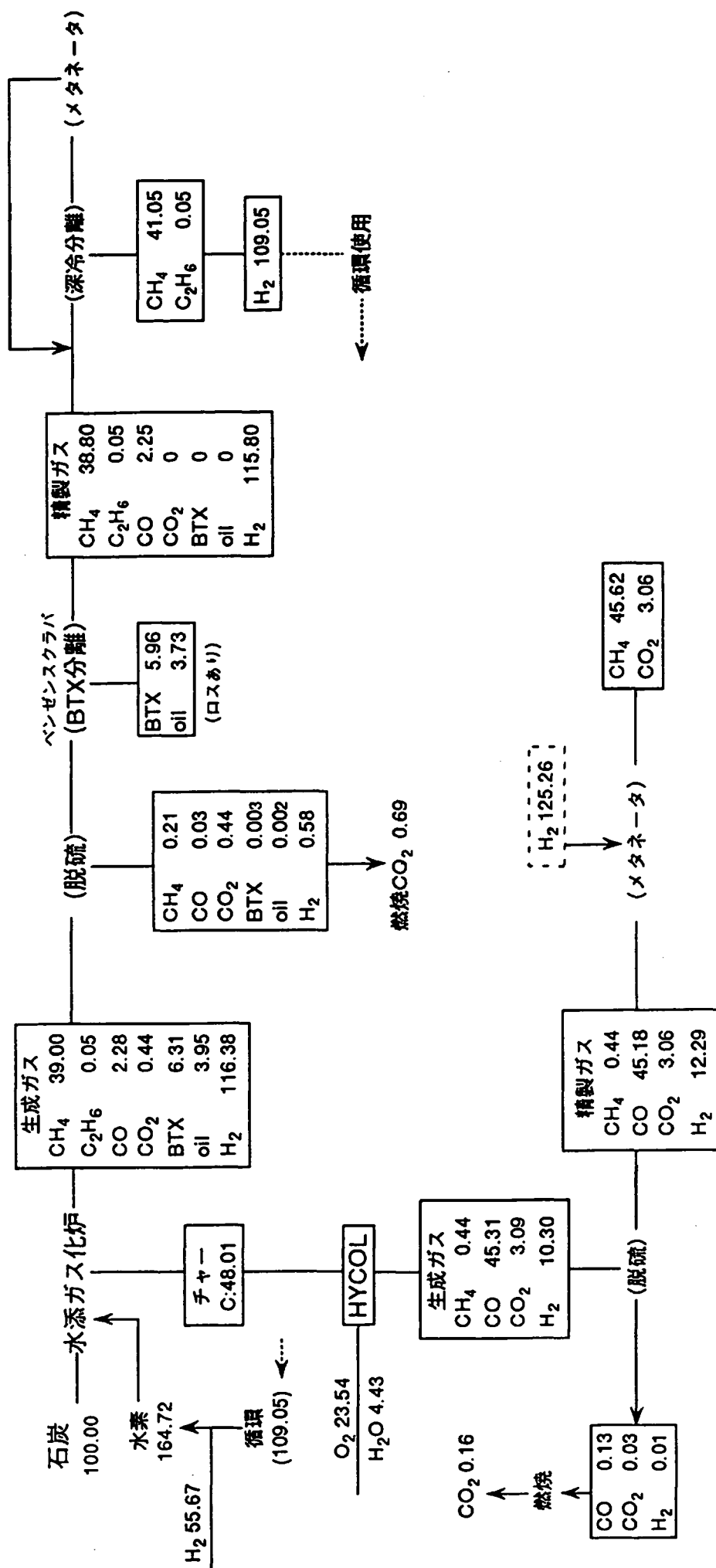
WE-NETの水素を利用できるという前提で ①石炭を部分酸化し、生成したCO等を水素と反応させてメタン化する方法と ②石炭を水添ガス化し、生成するチャーを部分酸化-メタン化する方法を比較した。②石炭水添ガス化法の計算はARCH熱効率最大モード（平成3年度石炭水添ガス化委員会報告書）の物質収支をもとに、第1.2.2-4 表に示す石炭およびチャーの分析データを用い下記の条件により行った。

第1.2.2-4 表 計算に用いた石炭およびチャーの分析値

	C	H	N	O	S	Cl	Ash	発熱量
	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	(kcal/kg-mf)
石 炭	65.16	5.74	0.92	14.11	0.25	0.02	13.8	6642.1
チャー	64.72	1.12	0.80	3.07	0.22	0.00	30.05	-

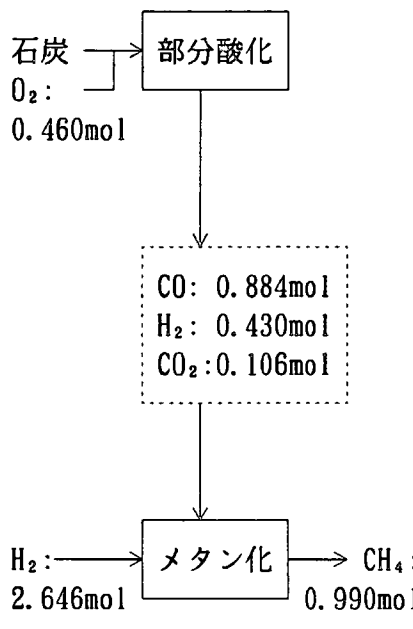
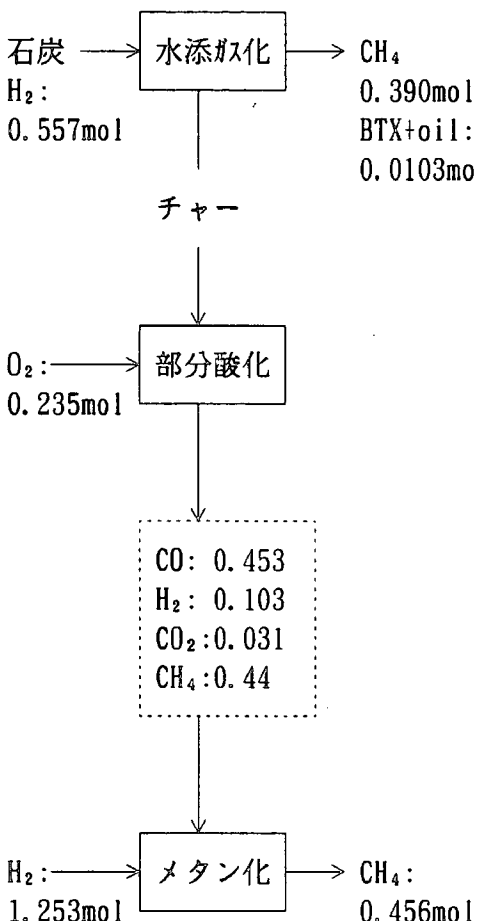
- 1) 循環水素とHYCOLから供給される水素に同伴するCO、CO₂、CH₄は水添ガス化中はイナートと考える。
- 2) HYCOLに補充する石炭は除く。(水添直後の炭素バランスで補正する)
- 3) 循環ガスのうち、石炭供給系の搬送ガスはN₂、Arバランスから推定して補正する。
- 4) 深冷分離後のCOリッチガスは全量メタネータに入れ、100 %メタンに転換するとする。
- 5) チャーのガス化でもメタンが生成しているとする。

炭素をベースにすると、第1.2.2-2 図のような収支が計算される。これをもとに石炭を基準(炭素1 mol 当たり)として、メタン生成量、メタン生成に必要な水素量、酸素量を試算し、①石炭部分酸化-メタン化法との比較を行い第1.2.2-5 表に示した。



第1.2.2-2 図 ARCH熱効率最大モードでの炭素ベースの収支

第1.2.2-5 表 外部からの水素を利用したときの石炭転換プロセス比較

	① 石炭部分酸化－メタン化法	② 石炭水添ガス化法
方式の比較		
必要水素量	2.65 mol	1.81 mol
必要酸素量	0.460mol	0.235mol
メタン生成量	0.990mol	0.867mol
メタン 1mol 当りの必要水素量	2.67 mol	2.09 mol

その結果、WE－NETなど外から水素が供給されることが前提であれば、①石炭を部分酸化し生成するCO等をメタン化する方法より、②石炭を水添ガス化し、生成するチャーを部分酸化しメタン化する方法がメタン1mol 当たりの必要水素量が2割程度少なく、この点からも石炭水添ガス化法が優位である。この場合には、水添段階の反応率を上げるほど水素消費量、必要酸素量の削減に有利になるので、この方向の反応条件の設定や、それを可能にする反応器、石炭の前処理、システムの開発が目指されると推測される。

1. 3 まとめ

調査研究の最終年度にあたる本年度は、第1章においては、過去4年間の調査結果をベースに、最近のエネルギー事情の変化及び技術開発の進捗状況を反映させ、さらに新しい視点からの考察も加えて、石炭添ガス化技術開発の重要性に関する調査を集大成した。

平成6年6月の総合エネルギー調査会需給部会の「長期エネルギー需給見通し」の見直しや石油審議会開発部会 石油・天然ガス開発小委員会のLNGをめぐる環境の変化の分析によると、LNG需要は我が国では、電力用、ガス用を中心に今後とも確実な伸びがみこまれるに加え、韓国・台湾の輸入国としての参入で、今後大幅な伸びが予想されている。一方、供給サイドの見通しとしては、開発されるガス田の自然環境や地質的・品質的な条件の悪化、インフラの未整備等の開発環境の悪化や開発のリードタイムの長期化、カントリーリスクの増大、資金調達の困難さ等、投資対象としての環境の悪化が懸念されている。第1章では、このような状況下で、LNGを使用して既に20余年を経過し、93年度では73.6%に達している都市ガス業界は、原子力、石油、LNG、石炭、その他をバランスよく原料構成している電力業界と比較して、原料多様化の観点からの都市ガス原料の偏りは否めないと指摘した。さらに原料多様化として、オリマルジョン、オイルサンド、コールベットメタン、メタンハイドレート等について調査したが、技術的にも不透明で今後開発までに相当の期間を必要とすることが予測され、セキュリティ対策からも資源埋蔵量の多い石炭からのSNGの必要性を強調した。

さらに具体的に石炭利用SNG工場の立地について、単独立地の基本的な条件を整理するとともに、石炭を取扱う電力・鉄鋼等との複合企業としての共同プロジェクトの可能性について検討した。規制緩和の新しい動きの基で、我が国の企業の再構築が急速に進められる中、共同プロジェクトからは長年にわたり構築してきた石炭関連の遊休インフラを積極的に活用し、新しい電力・SNG併産エネルギー事業や化成品・SNG併産事業を展開する可能性が見出せる。さらに将来の国内外の天然ガスパイプライン構想と絡めた石炭利用SNG工場の可能性についても検討し、石炭を環境にやさしく且つ効率的にガス体エネルギーとして輸送し、天然ガスの安定供給に資することの意義を強調した。

また、石炭利用SNGプロセスとして平成5年度までの調査研究で概念として確立したARCHプロセスの経済性・環境適合性について新しい視点からの検討をくわえた。経済性については、1994年時点での設備費・原材料費を基準に、その後のエスカレーション・

ファクターを想定し、将来のSNG製造原価を予測し、LNG価格と等価になる時期を推定した。その結果、ARCHプロセスからのSNG価格はBTXの価格・収率に大きく依存するものの、2015年頃にLNG価格と競合することがわかり、さらに今後のLNG需要の増大及び新しい天然ガス田の開発環境の悪化を考慮すると、LNG価格の単独上昇の可能性もあり、ARCHプロセスの経済性の成り立つ時期が早くなることも予測される。環境適合性について、ARCHプロセスは硫黄・窒素化合物や灰分・金属はプロセス内で除去・処理されるため充分環境に適合するプロセスであることをこれまでの調査で明らかにしたが、本年度は地球温暖化物質とされるCO₂放出に関するプロセスの位置づけを検討した。ARCHプロセスは熱効率の高いプロセスであるため他の石炭利用SNGプロセスに比較して、CO₂放出量は少ないことは明らかであるが、今回ARCHプロセスとガス田からのCO₂放出量を比較した結果、ARCHプロセスからのCO₂放出量は、CO₂含有量約50%のガス田からLNG製造のCO₂放出量と同程度であることを見出した。さらに石炭からの各種発電方式に於いて放出CO₂を固定した場合の効率低下を比較したが、ARCHプロセスはCO₂回収型発電技術の観点から評価すると、プロセス系内で発生するCO₂は濃縮されており、容易に固定でき、見方を変えれば、ARCHプロセスを用いた発電方式は、既に石炭中の50%程度の炭素を固定し、LNG複合発電並みの放出CO₂量に押さえる技術であるともいえる。

さらに、WE-NETプロジェクトとの関連について検討したが、そもそもARCHプロセスの中心である水添ガス化反応ではCO₂の発生は無く、チャーから水素製造する際にCO₂を放出している。従ってWE-NETの安価な水素が利用できれば、チャーからのメタン製造で石炭中の炭素はほぼ完全にメタン化される。すなわち、WE-NET時代における水添ガス化技術とは、「自然エネルギーである水素と化石エネルギーとして残る石炭を効率的に連結し、効率的で環境にやさしく輸送容易なガス体エネルギーに変換する架け橋（ARCH）となる重要技術である。」と位置付けた。

第2章 ARCHプロセスの開発

2. 1 ARCHプロセスの基本概念

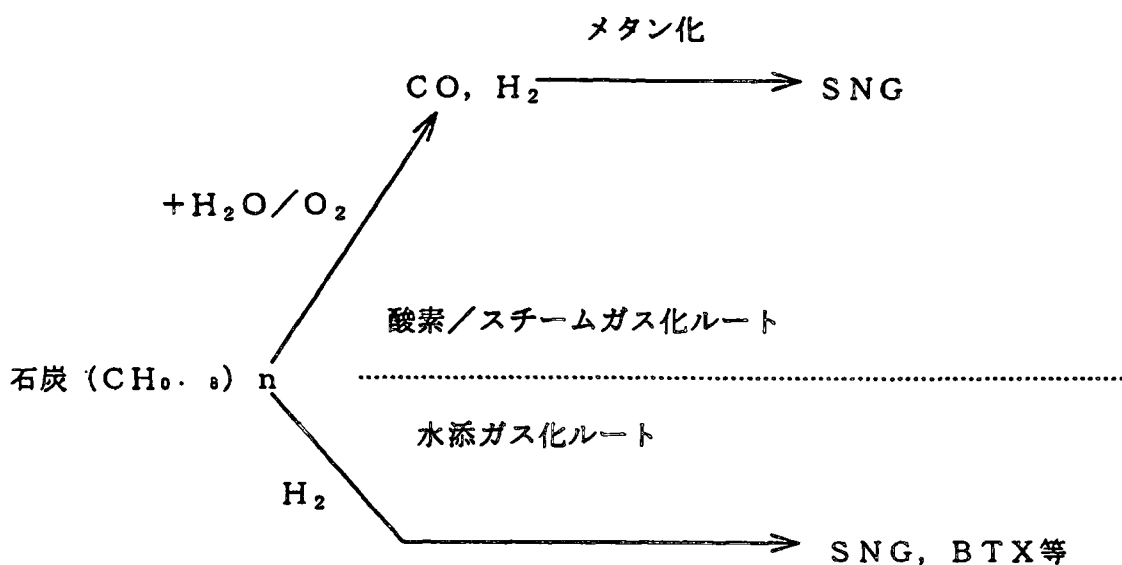
2. 1. 1 石炭水添ガス化法とは

石炭のガス化や液化が古くから研究されているのに対して水添ガス化法は比較的最近になって提案された石炭転換法である。

水添ガス化法は $42\sim 70\text{ kg/cm}^2\text{ G}$ の水素加圧化において石炭を約 $850\sim 1,200\text{ }^{\circ}\text{C}$ で急速乾留し、都市ガス用のメタンを中心に、化学原料や、液体燃料となり得るBTXを製造する方法であり、反応温度と圧力の観点から既存の石炭転換法と比較すると、石炭のガス化($1,500^{\circ}\text{C}$, $30\text{ kg/cm}^2\text{ G}$)と液化(400°C , $150\text{ kg/cm}^2\text{ G}$)の間であると位置づけられる。反応生成物は気体、液体及び固体チャーであり、気体が主成分であることはガス化に類似しているが、ガス化のように石炭全量をガスに転換するわけではなく、副生成物としてチャーが生成する。これは、石炭の反応しやすい部分のみを有用物質に転換させるもので、マイルドガス化と共通するものである。しかも、副生成物であるチャーは水素製造のために使用され、結果としては石炭全量が有用物質に転化されることになる。水添ガス化法では生成する液状物質はBTXが主成分であり、液化やマイルドガス化では重質分を含む多くの化合物の混合物として得られる点が大きく異なる。このように、水添ガス化法はガス化、液化及びマイルドガス化と一部共通点を持つものの、結果として石炭全量を転換できること、さらに、生成物質がメタンやBTXのように純物質に近い形で得られ、後処理が簡便となること等から将来性の大きい有望な石炭転換法であると考えられる。

石炭水添ガス化法は上述のように石炭に高温水素を反応させて、直接メタンを製造することができる石炭ガス化方式である。石炭をガス化してメタンを製造する方法には水添ガス化法のほかに、第2.1-1 図に示すように、酸素／スチームを使用して $1,500^{\circ}\text{C}$ 以上の温度で合成ガスを製造し、その合成ガスをさらに接触式プロセスによりメタンを合成する部分酸化－メタン合成法がある。

水添ガス化法と部分酸化－メタン合成法を比較すると、ガス化温度が低く、熱回収量の少ない水添ガス化法の方が熱損失は少ない。したがって、水添ガス化法の方が総合熱効率が高くなる。



第2.1-1 図 石炭からの製造ルート

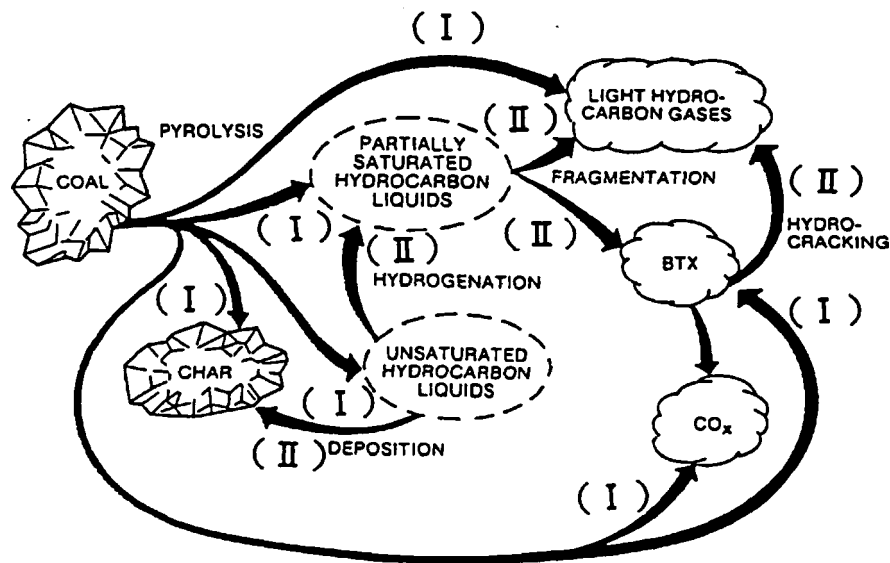
この2つのガス化法に共通する反応式の収支関係の解析から両者の冷ガス効率が炭素転換率と酸素比との差に比例する関係式が導かれるので、この式に基づいて実用可能なプロセスの最大効率を試算すると第2.1-1表のようになる。その結果、部分酸化－メタン合成法では炭素転換率が高く、酸素比が小さいスラッキングルルギ炉を用いる場合が最もよく、冷ガス効率は0.75と計算された。一方、水添ガス化法の冷ガス効率は最大0.81に達すると推定され、部分酸化－メタン合成法より効率を高くできる可能性がある。技術的には、部分酸化－メタン合成法の冷ガス効率は理論値に近く、大幅な改善を望めないのに対して、水添ガス化法には改善の余地が多い。

第2.1-1 表 部分酸化－メタン合成法と水添ガス化との成績比較

SNG製造法	使用する部分酸化炉	酸素比	CH ₄ 転換率	理論冷ガス効率
部分酸化－ メタン合成法	HYCOL	0.400	0.340	0.632
	ルルギ炉	0.221	0.386	0.693
	スラッキングルルギ炉	0.273	0.427	0.750
水添ガス化法	HYCOL (チャーガス化用)	0.215	0.435	0.810

2. 1. 2 石炭水添ガス化反応とは

石炭水添ガス化反応は第2.1-2 図に示すような二段階の反応と考えられている。すなわち一次反応は石炭乾留であり、図の経路 (I) で示される。石炭乾留は本質的には石炭の熱分解である。一次反応は雰囲気、圧力、滞留時間には関係なく、ほぼ温度のみによって決定される反応であると一般的に考えられている。この場合、温度が高くなるほど熱分解生成物の量は増加する。次いで二次反応は乾留生成物の水素化分解反応であり、図の経路 (II) で示される。ラジカルを含む熱分解生成物の反応が起こるが、これは軽質化と重合の競走反応であり、雰囲気、圧力、温度、滞留時間などが反応に影響する。軽質化は一般に高温ほど有利であり、比較的速い反応であるのに対し、重合化は、400℃程度の低温でも進行するものの、比較的遅い反応である。このことより、軽質化を促進するために急速に 800℃以上にまで昇温させる急速高温乾留の手法が有利となる。



第2.1-2 図 石炭水添ガス化反応概念図

重合反応について詳述すると、一次熱分解反応によって生じたラジカルを含む巨大分子同士が重合、縮合を繰り返しながら、縮合芳香環の発達した炭素構造を持つような分子となることと考えられる。炭素構造が発達すれば、水素圧下、高温においても軽質化することとはなくなる。このため、石炭乾留により軽質分を多く得ることを目的とした場合には、如何に巨大分子同士の重合を抑制するか、また、巨大分子を如何に速やかに分解して軽質化するかが重要となってくる。石炭乾留における圧力の影響を見た場合、不活性ガス雰囲気

気下では圧力の上昇とともに炭素収率が上昇し、軽質分の収率が低下する。水素雰囲気下では逆に圧力の上昇とともに炭素収率は低下し、軽質分の収率は増加する。これは不活性ガス雰囲気下では圧力の上昇とともに、巨大分子が気相中に移動することが妨げられ、巨大分子どうしの縮合反応が促進されることを示しているが、水素圧力下では水素ラジカルと反応し安定化させ、ラジカル重合を阻害するとともに、水素化分解反応により巨大分子が軽質化することによるものだと考えられる。すなわち、水添ガス化反応においては水素はメタンやB T Xの製造だけでなく、重縮合反応を阻害する、つまり、第2.1-2 図の deposition の経路の抑制に対しても重要な効果を持っている。

石炭の水添ガス化反応においては反応生成物はメタン、B T X 及び副生成物のオイル（タール分のような重質油）とチャー（炭素質物質）である。このうち、最終反応生成物はメタンとチャーであり、オイルは中間生成物、B T X は準安定中間生成物である。このため、反応条件を、高温、長滞留時間と厳しくすれば、生成物はチャーとメタンになる。しかしながら、水添ガス化プロセスでは、チャー収率とオイル収率はなるべく小さくする必要がある。しかし、場合によってはB T X 収率を最優先したり、熱効率を大きく（最適生成物分布）する必要となる。このうち、チャー収率を小さくするためには反応温度の上昇と水素圧力が重要である。オイル及びB T X 収率に関する現在までの本技術開発調査によるシミュレーション計算結果によると、オイル収率減少、B T X 収率増大のためには温度を比較的低温にして滞留時間を長くすればよいことが判明している。これは温度を高くするとオイルからメタンへの転化割合が増加するとともに、B T X もメタンに転化するためと考えられる。しかしながら温度を低めに設定するということはチャー収率の増大、ひいてはB T X だけでなくメタン収率の減少につながり、高転化率を目的とすることと矛盾した条件となる。このため、反応器内が同一温度となる一段式の反応器では高メタン収率運転は可能であっても、B T X を目的生成物とした場合には生成物分布に制限が出てくることが予想される。

2. 1. 3 A R C H プロセスの新規性

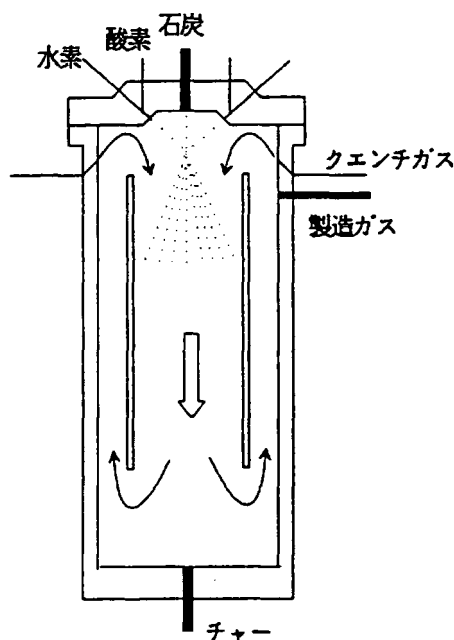
A R C H プロセスは水添ガス化法の新しいプロセスとして提案したものである。

本技術開発調査で検討してきたA R C H プロセスの反応器は急速水素化熱分解を応用した噴流床方式であり、石炭水添ガス化反応の特徴である二段階反応を最大限活かそうとするものである。一次反応を極力高温で行い全体の炭素転換率を高めておき、二次反応はB

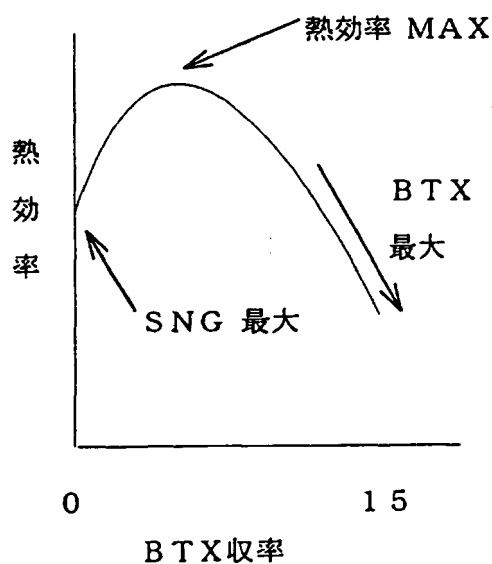
TX収率が上がるような温度、滞留時間で制御する構造となっている。第2.1-3 図のように上部が高温水素による急速昇温ゾーン、下部が内部循環用ドラフトチューブのある等温反応ゾーンとなっている二段の反応ゾーンを持つ反応器で、従来研究されてきた反応器が大部分一段式反応器であるのに対して新機軸の反応器である。

ARCHプロセスの特徴は反応器を二段に分け、一段目の反応器滞在時間は1秒以下と小さくとり、二段目の反応器は循環方式を採用し、さらに冷水素等のクエンチガスの吹き込みにより10～20秒の長滞留時間と一段目より低い温度設定が可能な構造にしたことである。さらに、一段目反応器では酸素吹き込みにより高温短時間運転も可能な方式としている。本プロセスにより高転化率（低チャー収率）でかつ高BTX収率運転が可能となる。

このようにARCHプロセスはこの2つの反応を個別制御することにより、メタンとBTXの収率比を調節でき、SNG収率最大、冷ガス効率最大、液収率最大の三種類の反応モード（第2.1-4 図参照）を1台の反応器で設定できる石炭水添プロセスである。



第2.1-3 図 ARCH反応器イメージ図



第2.1-4 図 BTX収率vs熱効率

さらに、本プロセスに期待できることは石炭炭種に対するフレキシビリティである。現在は太平洋炭のような原料を想定しているが石炭は褐炭から歴青炭まで多くの種類がある。石炭炭種によっては性状は大きく異なるため、一次熱分解物の性状（生成物分子の大きさ、芳香族性、ラジカル等）も大きく異なり、目的生成物のメタンとBTXの収率にも

大きな影響を持つことが予想される。このような場合でも一段目と二段目の反応器の運転条件を適当に選ぶことにより、目的に添った生成物分布が可能となる。

上述のように水添ガス化法はメタン製造に適していると考えられるが、メタン製造に関する研究の歴史は浅く、石炭とガス化剤の反応の詳細や生成物の物性と反応条件との関係など今後の研究により明らかにすべき点が多い。

2. 2 全体開発計画

2. 2. 1 反応器のスケールアップ

A R C Hプロセスを2010年代に商業化するためには、今後、要素研究、パイロットプラント（P P）運転研究、デモプラント（D P）運転、商業プラント（C P）建設、と着実にスケールアップを図っていく必要がある。

最終目標である商業プラントの能力を 2,000トン／日×3系列(300万Nm³／日)とした場合、パイロットプラント、デモプラントの能力は、各々50トン／日、500 トン／日程度に設定するのが、反応器の大型化技術からみて適当と考えられる。

(平成3年度調査報告書参照)

2. 2. 2 全体開発計画

(1) 開発計画概要

要素研究、パイロットプラント運転研究、デモプラント運転、商業プラント建設に至る全体開発計画を第2.2-1 図に示す。

要素研究は1996～1999年度の4年間をかけ、パイロットプラント設計用の技術データの取得、機器開発を目的とし、反応器を中心とする各開発要素について、モデルによる試験を実施していく。

パイロットプラント運転研究は、2000～2007年度の8年間をかけ、実用化技術の開発を目的とし、反応器と周辺機器とを組み合わせたプラントシステムにより、実用化のための運転性能の確認、エンジニアリングデータの取得等を行っていく。

デモプラント建設・運転は2008年以降に予定されているが、実用化プラントとしての信頼性、経済性の実証を目的とし、水添ガス化システムとチャージガス化システムとをコンバインしたトータルプラントシステムにより、両者のマッチングの確認を中心とした実証試験を行う。

以下に各開発段階での開発課題、開発計画等について詳細に述べる。

年 度	1996	1999	2000	2007	2008	2014	2015	2020
開 発 段 階	要素研究段階(PDU)							
			パイロットプラント段階 (P P)					
					デモプラント段階 (D P)			
							商業プラント段階 (C P)	
反 応 器 規 模	数 t / 日		50 t / 日		500 t / 日		2,000 t / 日	
装 置 構 成	新規反応器 反応器周辺		同左		フル装備 (反応器、チャーガス化炉) (精製、分離)		同左	
主な開発項目	①反応実証 ②高温水素供給用 インジェクター ③反応器内部構造 の決定 ④チャー抜き出し 移送技術 ⑤チャー冷却・ 熱回収技術		パイロット規模で機器の性能を 確認し、エンジニアリング・ データを取得する。 ①シングルインジェクター &マルチインジェクター ②石炭予熱器 ③ガス／ガス熱交換器 ④チャー連続抜き出し技術 ⑤流動層冷却器					

第2.2-1 図 ARCHプロセス全体開発計画

(2) 要素研究

要素研究は前述のとおり、パイロットプラント設計・建設のための技術データ取得を目的とし、以下の3つの主要開発課題があげられる。

a. ガス化反応実証

反応器内のガス化反応をシミュレートするために必要な反応定数を、小型試験装置を使用した反応実証テストによって求めていく。特に二段反応による、BTX収率向上のための基礎データ取得は重要であり、予備シミュレーションの結果を確認するためにも、最優先で実施する必要がある。

b. ARCH反応器の開発

ARCH反応器の重要な構成要素である、酸素・水素インジェクターを開発するもので、耐熱性・機能性に優れたインジェクターを目指して、下記の四つのステップで開発を進めて行く。

イ. 酸素・水素インジェクターの試作

ロ. コールドモデルテストによる混合特性・流動特性確認

ハ. ホットモデルテストによる石炭の凝集回避、およびインジェクターの耐熱性の確認

ニ. マルチインジェクターの開発

c. 反応器周辺技術開発

反応器から高温のチャーを円滑に抜き出すための流動層冷却器技術開発、HYCOL等の技術を応用したチャーガス化技術開発、石炭濃厚相輸送技術開発、等の反応器周辺技術開発については、状況をみて基礎試験を実施していく。

これら各要素技術開発については、相互に関連しているものもあり、全体開発計画の中の個々の位置付けを明確にするために、第2.2-2 図に要素技術開発フローを示す。

またこれらの要素技術開発を各年度毎に展開すると、第2.2-3 図のようになる。全体の開発期間は4年を計画しており、最重要開発課題であるARCH反応器開発が、インジェクター試作→コールドモデルテスト→ホットモデルテストのステップを経て実施されるため、これが律速となる。

一方、全体の開発費用はおよそ20億円程度必要と見込まれ、そのうち最重要開発課題であるARCH反応器開発に、50%程度が占められている。

さらに、これら各要素技術開発の実施場所については、各項目毎に個別に分離して実施することが可能であり、各民間企業や研究機関で分担しあうことが考えられる。

I. 反応実証テスト

II. ARCH反応器開発

III. 反応器周辺技術開発／基礎試験

① 本機・産業インジェクター

② コールドモデル試験

③ ホットモデル試験

1) チャー流動冷却抜き出し技術

① チャー抜き出し循環設備

② 炭酸層伝熱特性評価試験

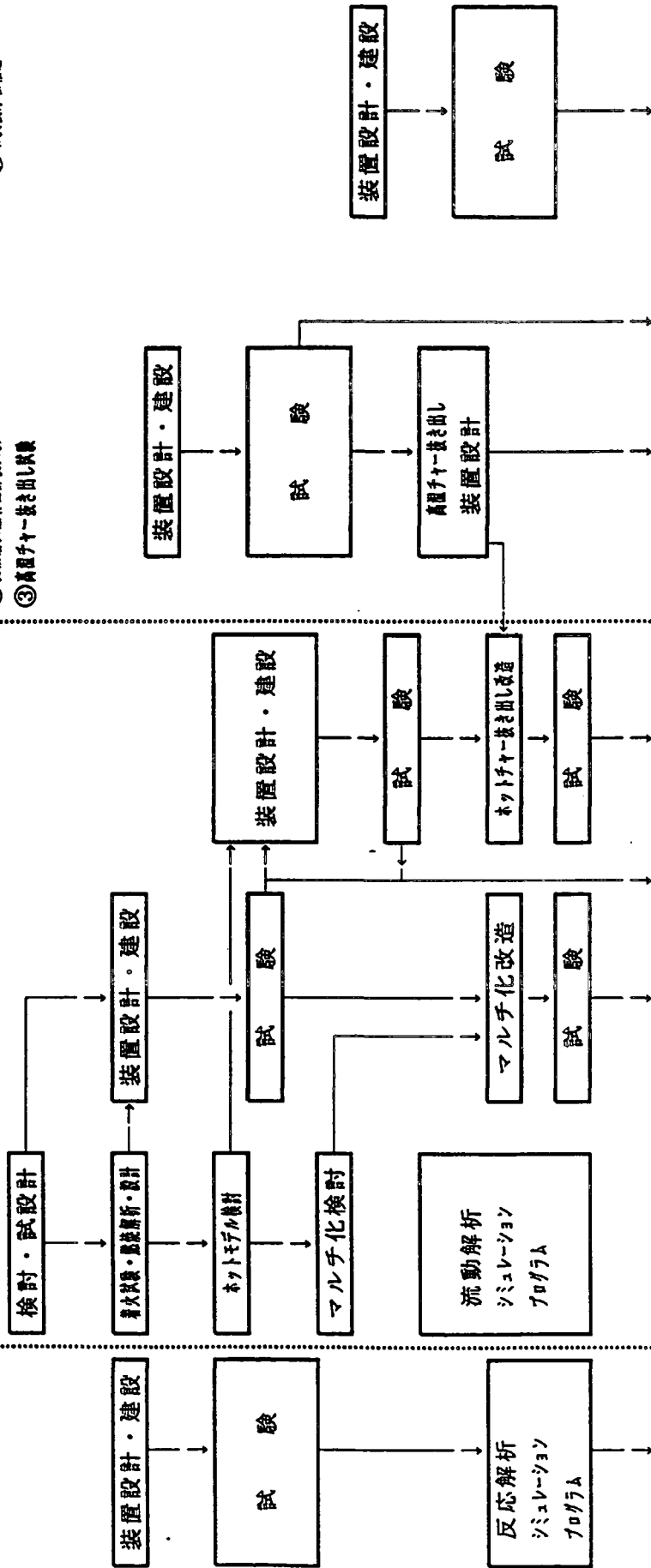
③ 高温チャー抜き出し試験

2) その他

① チャーガス化

② 石灰質層相転移

③ 石灰質層相転移



パイロットプラント設計建設

第2.2-2 図 ARCHプロセス要素技術開発フロー

開発ステータス	調査研究 / 要素研究						P P 運転研究	
	～H6	H7	H8	H9	H10	H11	H12～	約8年間
1. 調査研究								
2. 予備研究								
3. 要素研究								
1) 反応実証テスト			設計・建設	建設	試験	試験	追加試験	支援研究継続
2) 水素・酸素インジェクター開発			設計・試験 格納試験・燃焼解析・設計	ネットモデル用設計	マルチ化設計	マルチ化設計		
①水素・酸素インジェクター開発			設計・建設	試験	試験	試験	マルチ化改造・テスト	支援研究継続
②コールドモデルテスト								
③ホットモデルテスト				設計・建設	試験	試験	試験	支援研究継続
3) 反応器周辺技術開発 / 基礎試験								
①チャージャー流動冷却抜き出し			①基礎試験・ チャージャー抜き出し簡易試験	②流動層伝熱特性試験	③高圧チャージャー抜き出し試験			支援研究継続
②チャージャーガス化検討								
③石灰質原料燃焼試験					その他試験	その他試験		支援研究継続
4. パイロットプラント運転研究						▽産技審		設計・建設4年、運転研究4年
予算	[40～50/年]						要素研究総額 [2,000]	総額 [20,000]

図2.2-3 図 ARCHプロセス開発計画 (調査/要素研究)

(3) パイロットプラント運転研究

パイロットプラント運転研究は、実用化技術開発のために必要であり、技術開発課題として以下のような項目があげられる。(平成3年度調査報告書参照)

a. 原料供給分配システム

イ. 濃厚相輸送の実証・分配方式の検討

b. 水添ガス化反応器

イ. ガス化性能、物理学的運転性能の確認

ロ. 安定連続運転性能の確認

ハ. スケールアップファクターの解析

ニ. エンジニアリングデータの取得

ホ. 最適運転条件の把握

c. 生成ガス冷却・熱回収システム

イ. ガス／ガス熱交換器の性能確認

ロ. 熱回収システムの確立

ハ. エンジニアリングデータの取得

d. チャー抜き出し・冷却・移送システム

イ. チャー流動床冷却器の性能確認

ロ. チャー抜き出し、冷却システムの安全性確認

ハ. エンジニアリングデータの取得

e. 計画・制御システム

イ. 原料流量制御システムの確立

ロ. 反応器温度制御システムの確立

ハ. 自動制御システムの確立

f. フィージビリティスタディ

イ. パイロットプラントのデータに基づく経済性評価

(4) デモプラント運転

デモプラント運転段階では、パイロットプラントのデータを基にして、実用化プラントとしての信頼性、経済性を実証する。主要な開発項目は以下の通りである。

a. 原料供給分配システム

- イ. 分配方式の実証
- b. 水添ガス化反応器
 - イ. スケールアップ技術の実証
- c. チャーガス化システム
 - イ. 水添ガス化システムとチャーガス化システムのマッチングの確認
- d. 計測・制御システム
 - イ. トータル制御システムの実証
- e. フィージビリティスタディ
 - イ. 実用規模における経済性の実証

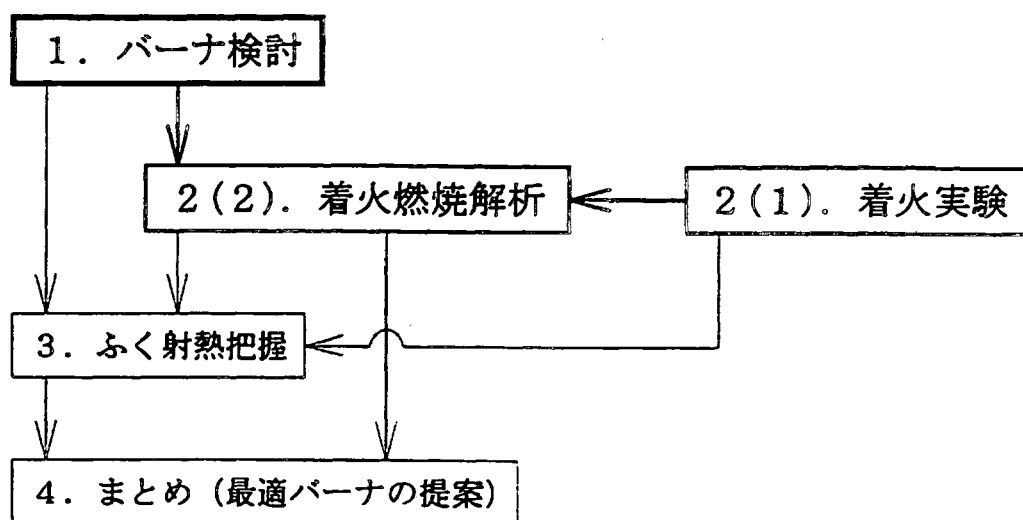
2. 2. 3 開発の進め方

A R C Hプロセス開発にあたって、今後の研究開発を効率的に推進するには、いわばニーズ指向型の研究として、化学的にも工学的にも各開発段階に応じた明瞭な目的を掲げ、目的に合致した開発とこれを支援する基礎研究体制を整備する必要がある。また、チャーのガス化技術との関係した研究開発を実施して、プロセス全体の経済性や熱効率を高める条件を見極め、実証する必要がある、今後のH Y C O L等の高温ガス化技術の開発スケジュールと調和した開発を実施する必要があるだろう。

2. 3 水素・酸素バーナーの開発計画

2. 3. 1 開発手法

水素・酸素インジェクターで使用する、耐久性のある水素・酸素バーナーの開発フローを第2.3-1 図に示す。また、本年度の実施項目を第2.3.1-1 表に示す。



第2.3.1-1 図 水素・酸素バーナーの開発フロー

第2.3.1-1 表 実施内容

	項 目	H 6 年度実施内容
1	水素・酸素バーナーの検討 構造、点火法、監視法等	・文献、特許調査 ・2～3種バーナーの考案
2	水素・酸素着火状況の把握 (1) 常圧／高圧着火実験 a) 目視観察 b) L I F * による温度、成分分布計測 * Laser Induced Flouresence (2) 水素・酸素着火燃焼解析 a) 燃焼反応シミュレーション (単一噴射口) b) 火炎形状解析	・実験計画 ・燃焼特性把握のための準備 平衡及び非定常反応計算
3	バーナーノズルへのふく射熱の把握	(実施せず)
4	まとめ (最適バーナーの提案)	(実施せず)

2. 3. 2 バーナーの構造検討

(1) 特許調査結果

公開特許、実用新案の調査結果に使用したキーワードを第2.3.2-1 表に、調査結果の概要を第2.3.2-2 ～4 表に示す。これらの特許及び実用新案に抵触しない（勿論MHIのものもある）、安全で高信頼性の水素・酸素バーナーを開発する。

第2.3.2-1 表 検索キーワードおよび検索件数一覧

(件数は平成7年2月現在)

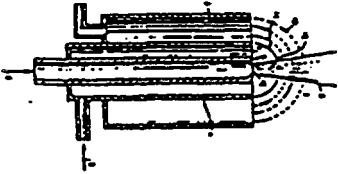
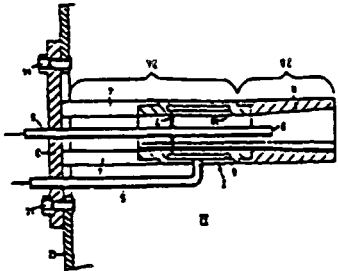
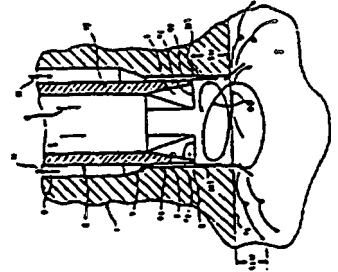
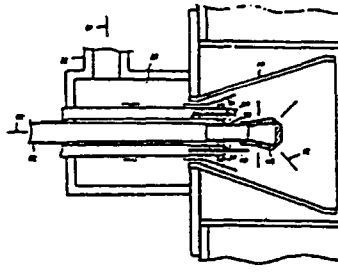
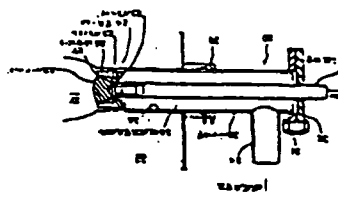
キーワード	I P C* コード	特許件数	実用新案件数
水添ガス化	水添*F043469	17	1
水添	水添	2,242	6
ガス化	F043469	3,112	687
水素	F275315	94,150	2,024
酸素	F226561	68,484	5,902
バーナー	F23D	21,414	11,763
ノズル	B05B	2,965	5,585
インジェクター	F033282	3,673	918
外混式バーナー	F23D14/20	332	240
酸素利用バーナー	F23D14/32	53	19

* I P C : International Patent Classification、国際特許分類

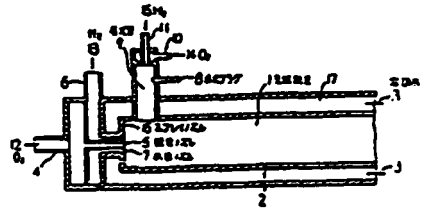
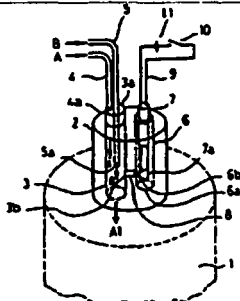
上記のキーワードを基に検索を行い、以下の項目について内容を整理した。

- ・ 燃焼方式 : 第2.3.2-2 表
- ・ 点火方式 : 第2.3.2-3 表
- ・ バーナー構造 : 第2.3.2-4 表

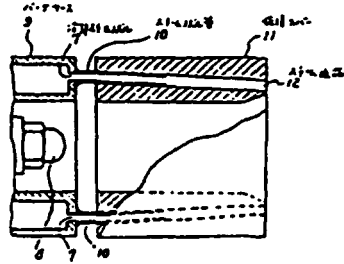
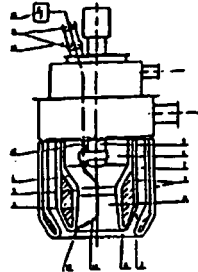
第2.3.2-2 表 燃燒方式に関する調査結果概要

目的	手段	実施例
安定燃焼	低速の燃料噴流により保炎を安定させる	
火炎温度の制御	排ガスと酸化剤を混合することにより、火炎温度を調整する	
燃焼性の向上	酸素の通路に旋回羽根を設置する	
安定した火炎の形成	保炎器の背面に渦を形成する	
混合性の向上	混合ポートで、燃料と酸化材を衝突混合させる (100~200m/s)	

第2.3.2-3 表 点火に関する調査結果概要

目的	手段	実施例
点火プラグの保護	点火室を別途設置する	
安定着火	ノズル口にセラミックヒータを設置する	

第2.3.2-4 表 バーナー構造に関する調査結果概要

目的	手段	実施例
バーナーの保護	セラミックの保護カバーをバーナーの先端に取り付ける	
安全性の向上	燃料と酸化剤を水冷壁で隔離する	

(2) バーナー構造案

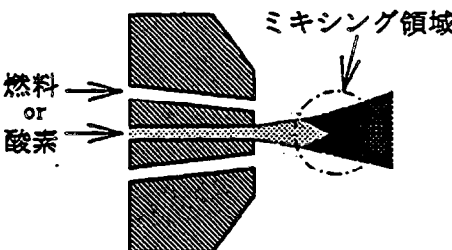
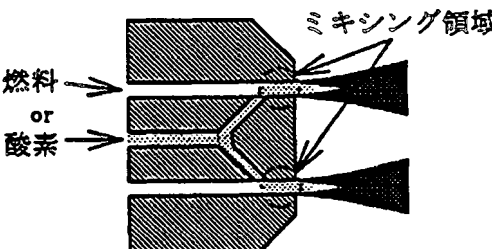
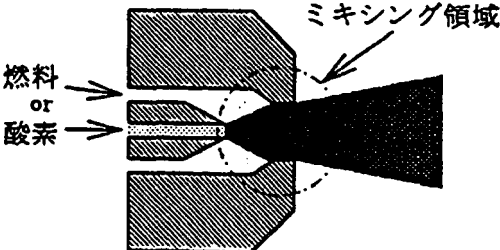
冷却、着火安定性、ターンダウン（低負荷運転）、点火方法、燃焼状況の監視方法等を考慮した水素・酸素バーナーを考案する。

各種バーナー形式の特徴を第2.3.2-5 表に示す。バーナー各部の構造、寸法、燃焼型式は、後述する基礎着火燃焼試験結果あるいはシミュレーション結果を反映し最終決定する。

(a) バーナー構造の概要

バーナーの代表的な構造として以下の構造があり、それぞれメリット（+）、デメリット（-）がある。これらの構造の中からバーナーの耐久性・安全性等を考慮し外部混合式を選定する。

第2.3.2-5 表 各種バーナー形式の特徴

形式	特徴	概略図
外部混合式	(+) 高温部をバーナーノズルから離すことによりバーナーの耐久性を向上させる (-) 一般的には保炎が困難となるが、水素・酸素では反応速度が大なので、問題は少ない	
中間混合式	(+) 着火・保炎性に優れる (-) 構造が複雑となる 局所的高温部が形成された場合、バーナーが損傷する	
内部混合式	(+) 着火・保炎性に優れる (-) 局所的高温部が形成された場合、バーナーが損傷する	

(b) バーナー概略寸法の計算

(i) 水素・酸素バーナー運用条件

当面の中間目標である50 t／日炉相当のパイロットプラントの運転条件例を第2.3.2-6表に、また3 kg／h ホットモデルの運転条件例を第2.3.2-7 表を示す。

第2.3.2-6 表 50T／日炉パイロットプラント運転条件例

項 目	流 量	備 考
石炭処理量	2,083kg／h	50 t／日（灰分11.5% dry）
水素量	369kg／h	水素量 0.2kg／kg of daf-Coal
酸素量	443kg／h	酸素比 0.15(水素理論酸素量：8 kg／kg of H ₂)
炉圧力	7lata	—
インジェクター形式	4-on-1	石炭ノズル1本、水素酸素バーナー4本

第2.3.2-7 表 ホットモデル試験条件例

項 目	流 量	備 考
石炭処理量	3kg／h	灰分11.5% dry
水素量	0.531kg／h	水素量 0.2kg／kg of daf-Coal
酸素量	0.637kg／h	酸素比 0.15(水素理論酸素量：8 kg／kg of H ₂)
炉圧力	7lata	—
インジェクター形式	4-on-1	石炭ノズル1本、水素酸素バーナー4本

(ii) ノズル寸法の概算

ノズル寸法を概算した計算結果を示す。本計算結果は50 t／日炉を想定したものである。また、水素の投入温度は600℃、酸素の投入温度25℃、常圧での水素・酸素混合気の反応データから、それぞれの投入流速を100m／sと仮定して計算を行った。

水素・酸素バーナーでは、水素の体積流量が酸素に比べて非常に大きく、円環状に投入する場合は、水素を外側に配置する方が望ましい。第2.3.2-9 図にバーナー形状例を示す。

ここで、石炭処理量3 kg／hのホットモデルインジェクターに取り付けるには、第2.3.

2-8 表の寸法を約 1/10 倍する必要がある (ただし幾何学的相似条件でのスケールアップを前提とした場合)。

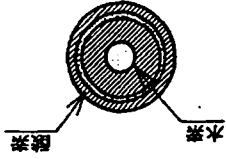
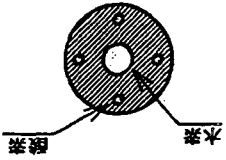
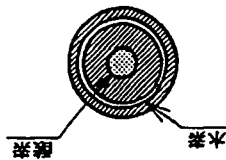
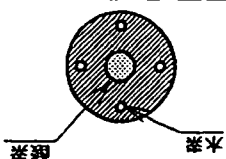
第2.3.2-8 表 水素・酸素バーナーのノズル形状と寸法例

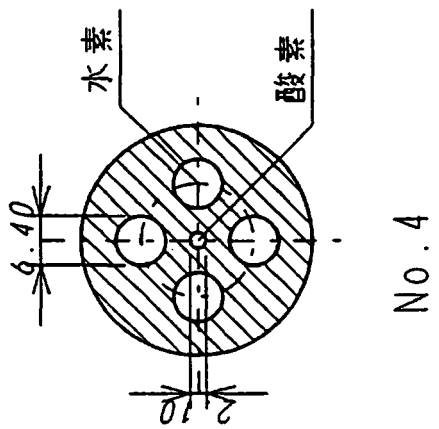
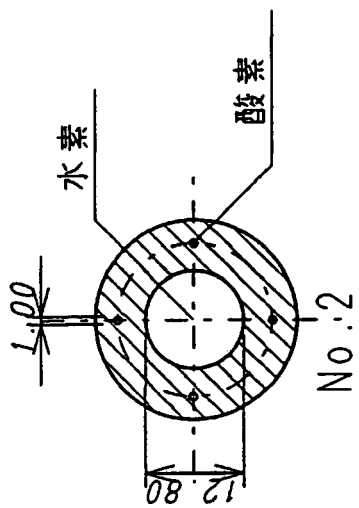
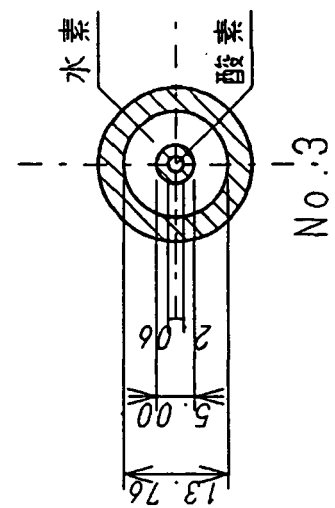
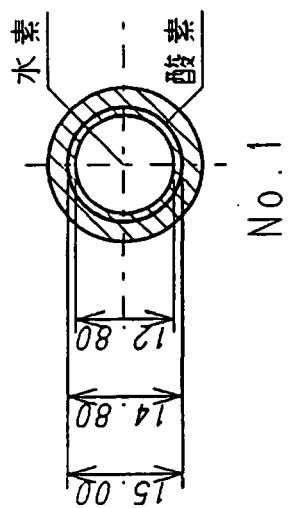
配置	(a) 水素・酸素の投入形式	
	水素ノズル	酸素ノズル
配置	外側／内側	外側／内側
噴孔形状	円環／4穴	円環／4穴

(b) 水素・酸素の投入条件

	水素	酸素
投入温度	600 (°C)	25 (°C)
投入流速	100 (m/s)	100 (m/s)

(c) バーナー寸法例

No.	投入方式	水素ノズル	酸素ノズル
1		穴径 : 12.8mm	内径 : 14.8mm 外形 : 15.0mm (隙間 : 0.1mm)
2		穴径 : 12.8mm	内径 : 4個 穴径 : 1.0mm
3		内径 : 5.0mm 外形 : 13.8mm (隙間 : 4.4mm)	穴径 : 2.1mm
4		穴数 : 4個 穴径 : 6.4mm	穴径 : 2.1mm



縮尺 1 : 1

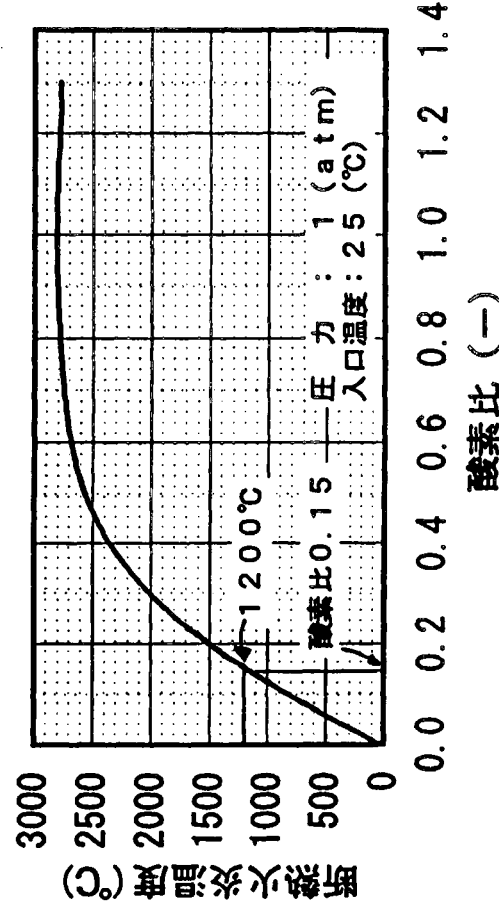
第2.3.2-9 図 バーナー寸法図

2. 3. 3 水素・酸素の着火燃焼特性の把握

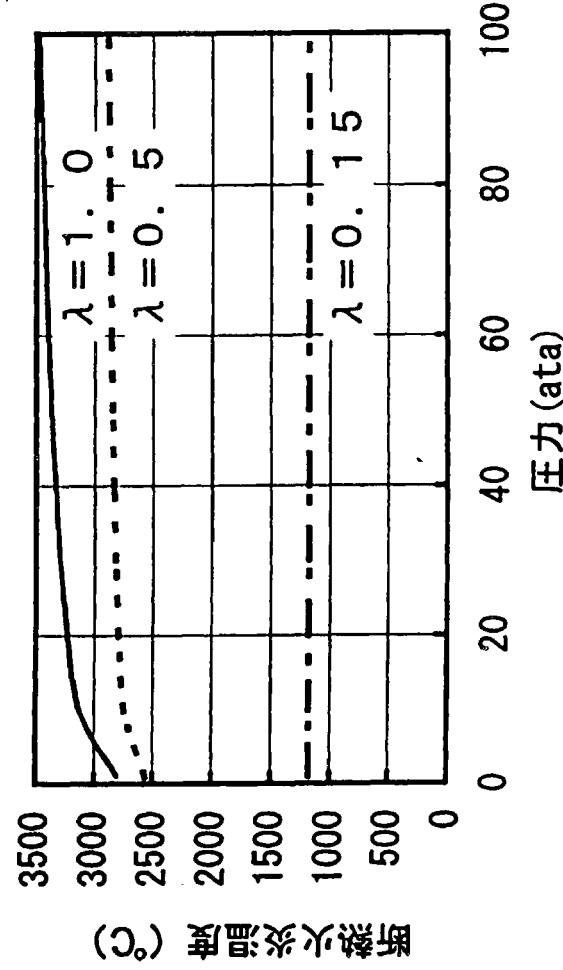
(1) 反応条件の把握

石炭の水添ガス化反応で必要な高温水素ガスを生成する為に必要な、水素・酸素の反応条件を把握するために、化学平衡計算を実施した。第2.3.3-1 図に酸素比と断熱火炎温度の関係を、第2.3.3-2 図に雰囲気圧力と断熱火炎温度の関係を示す。

本計算結果から、水添ガス化反応に用いる 1,200℃以下の高温ガスを生成するための反応条件は、酸素比0.15以下であることが解る。加圧下では、断熱火炎温度は最高で 3,500℃程度になるために、局所的な高温部の形成によるバーナーの焼損等には充分な注意を払う必要がある。



第2.3.3-1 図 酸素比と断熱火炎温度の関係



第2.3.3-2 図 圧力と断熱火炎温度の関係

(2) 文献調査結果

文献より水素酸素の基礎着火特性を調査し、要取得データの抽出を行う。

(a) 着火特性

水素と酸素の燃焼限界を第2.3.3-1 表に示す。酸素比0.15以下の混合気は着火限界に近いために、適正な酸素比での安定着火とその後の混合希釈方法等の工夫が必要である。ただし、本文献データは常温かつ雰囲気圧力1 atm での着火データであり、高圧下については試験を実施し検討していく。

第2.3.3-1 表 水素・酸素混合ガスの燃焼限界

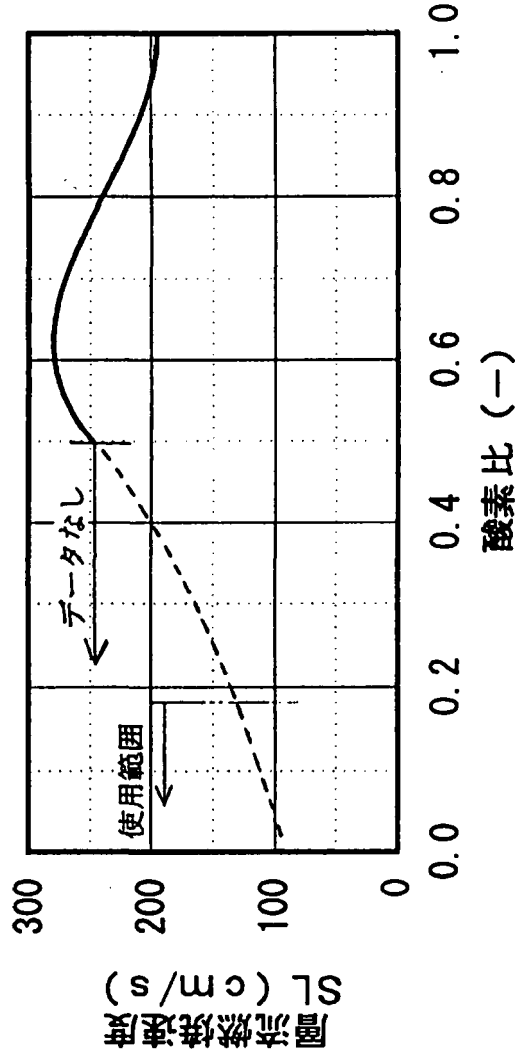
(1 atm、25°C)

	過濃限界	希薄限界
酸素比	0.11 (—)	48 (—)
水素体積濃度	95 (vol %)	4 (vol %)

* 酸素比 = 投入酸素量 (kg) / 理論燃焼に必要な酸素量 (kg)
(水素の理論酸素量は 8 kg of 酸素 / kg of 水素)

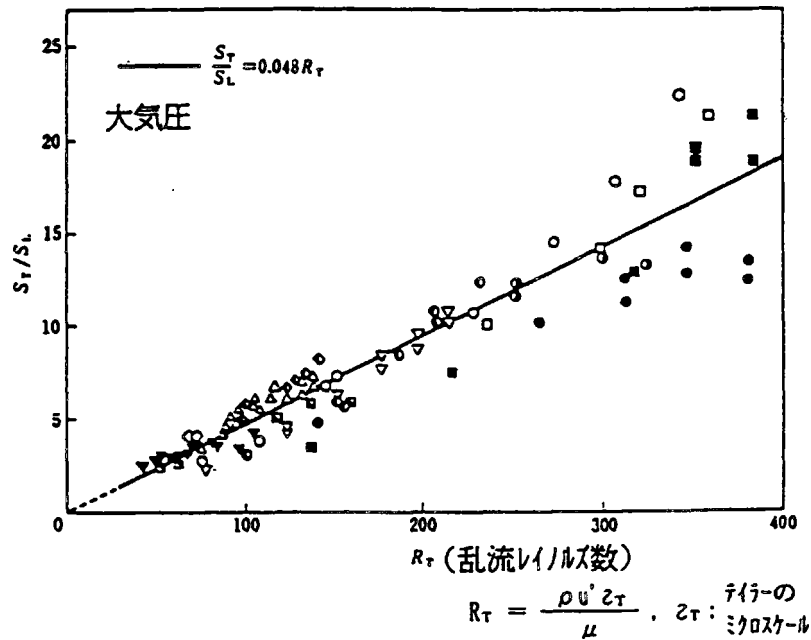
(b) 火炎伝播速度

水素・酸素混合気の当量比と層流燃焼速度の関係を第2.3.3-3 図に、第2.3.3-4 図に乱流燃焼速度と層流燃焼速度の比を示す。また、水素・酸素の層流燃焼速度に及ぼす圧力の影響を第2.3.3-5 図に示す。これらの文献データは酸素比で 0.5以上のデータであり、酸素比0.15以下の混合気での燃焼速度については今後の試験で検討していく。

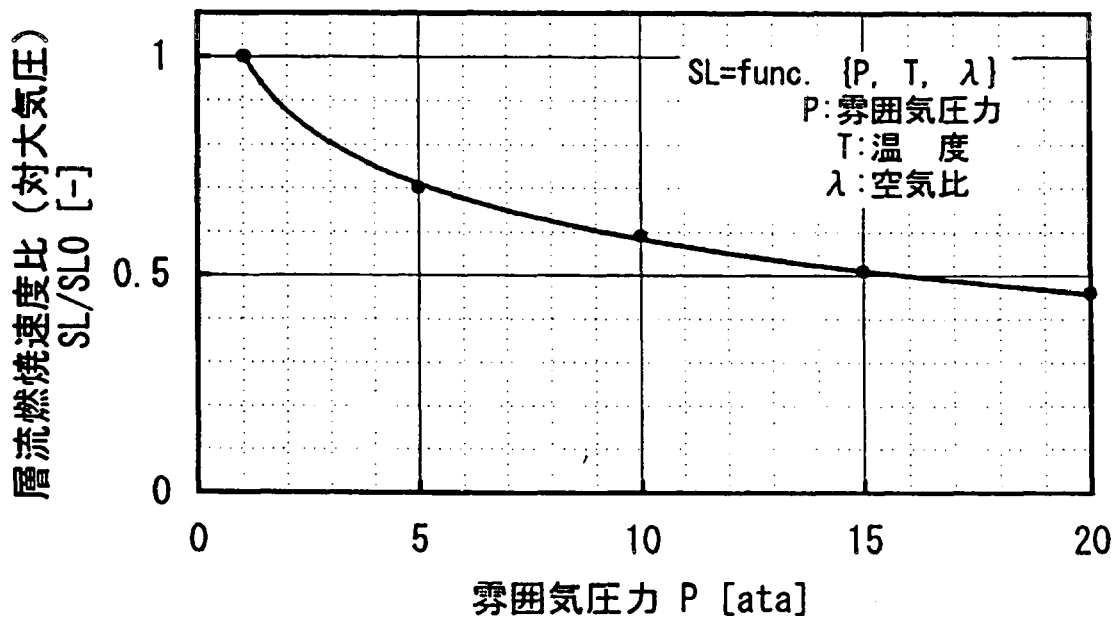


第2.3.3-3 図 水素・酸素混合気の酸素比と層流燃焼速度の関係

水素・酸素混合気の層流燃焼速度は最大で 2.8m/s である。通常の燃焼場は乱流場であり、乱流度によっても異なるが乱流燃焼速度は層流燃焼速度の10～20倍に達し非常に大きい。バーナーノズル噴出部の速度分布、局所的な渦形成による火炎のフラッシュバック（逆火）には十分に注意を要する。



第2.3.3-4 図 乱流燃焼速度と層流燃焼速度の比



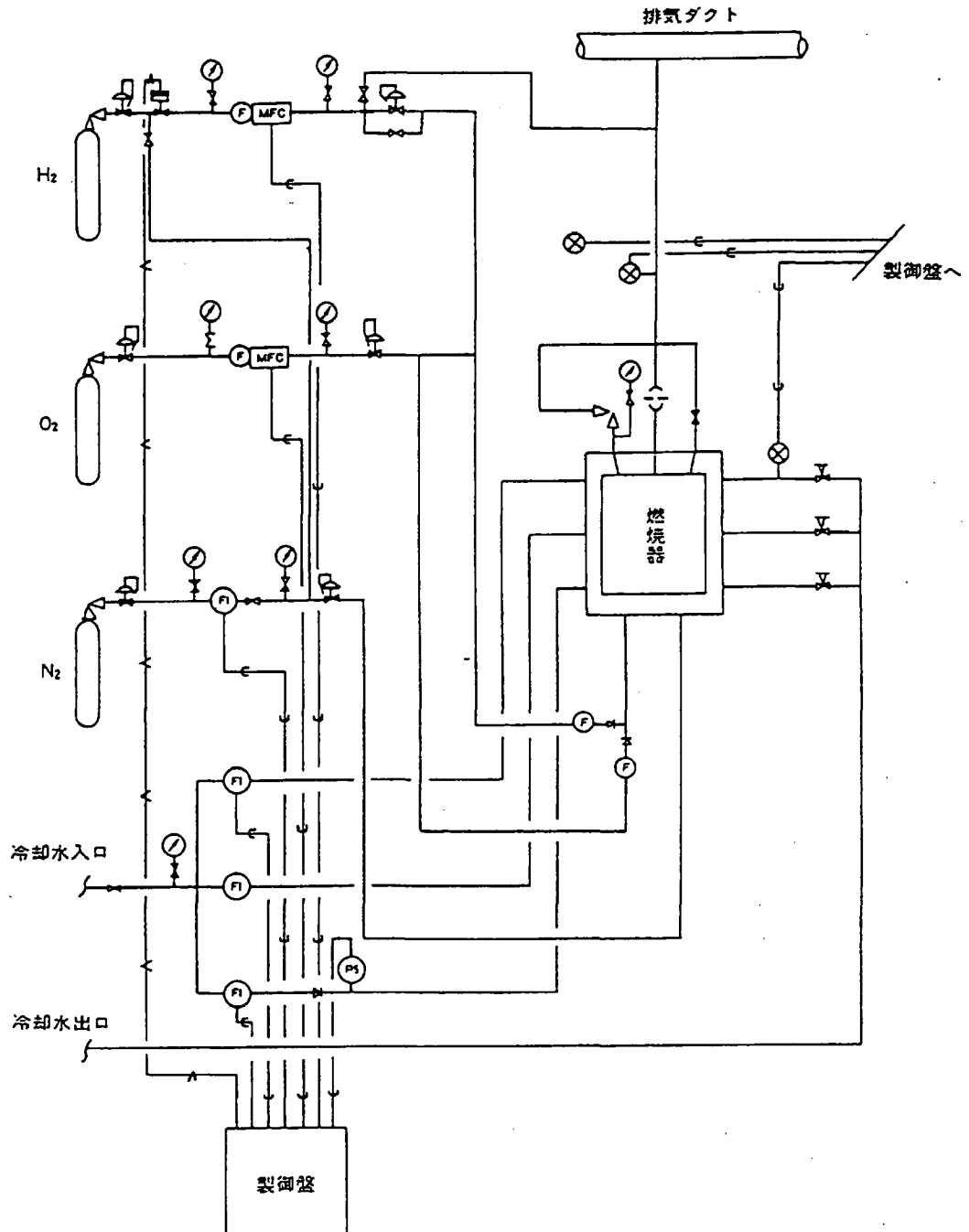
第2.3.3-5 図 水素・酸素の層流燃焼速度に及ぼす圧力の影響

(3) 常圧／高圧着火燃焼実験計画

前項で考察する（2～3種）の水素・酸素バーナーの、常圧／高圧での着火実験を計画した。

(a) 試験装置概略

第2.3.3-6 図に試験装置の系統を示す。



第2.3.3-6 図 試験装置系統

(b) 試験パラメータ及び計測項目

第2.3.3-2 表に試験パラメータを、第2.3.3-3 表に計測項目を示す。

第2.3.3-2 表 試験パラメータ

パラメータ	変化範囲
バーナー構造	2～3 ケース
水素／酸素比	2～3 ケース
圧力	常圧／高圧

第2.3.3-3 表 計測項目

目的	項目	方法
燃焼状況の把握	・ 火炎形状	・ ビデオ ・ 赤外線カメラ
	・ 成分分布	・ L I F
	・ 生成ガス温度	・ 熱電対 ・ L I F
バーナーの 耐久性の確認	・ メタル温度計測	・ 熱電対
	・ 焼け、損傷の確認	・ 試験後点検

(c) L I Fによる温度、成分濃度分布計測要領

(i) 理論

L I Fでは入射光として分子の電子エネルギー差に対応する波長が選択される。入射光の吸収に続き、分布は第2.3.3-7 図に示す衝突、放射、前期解離等の過程を経て他のエネルギー状態へと遷移していく。このとき観察される光（蛍光）強度より測定分子の濃度、温度が計測できる。

(ii) 実験装置

実験装置を第2.3.3-8 図に示す。インジェクションシード付YAGレーザを光源として色素レーザを発振させる。色素レーザ光は波長変換器を用いて紫外光に変換された後、レ

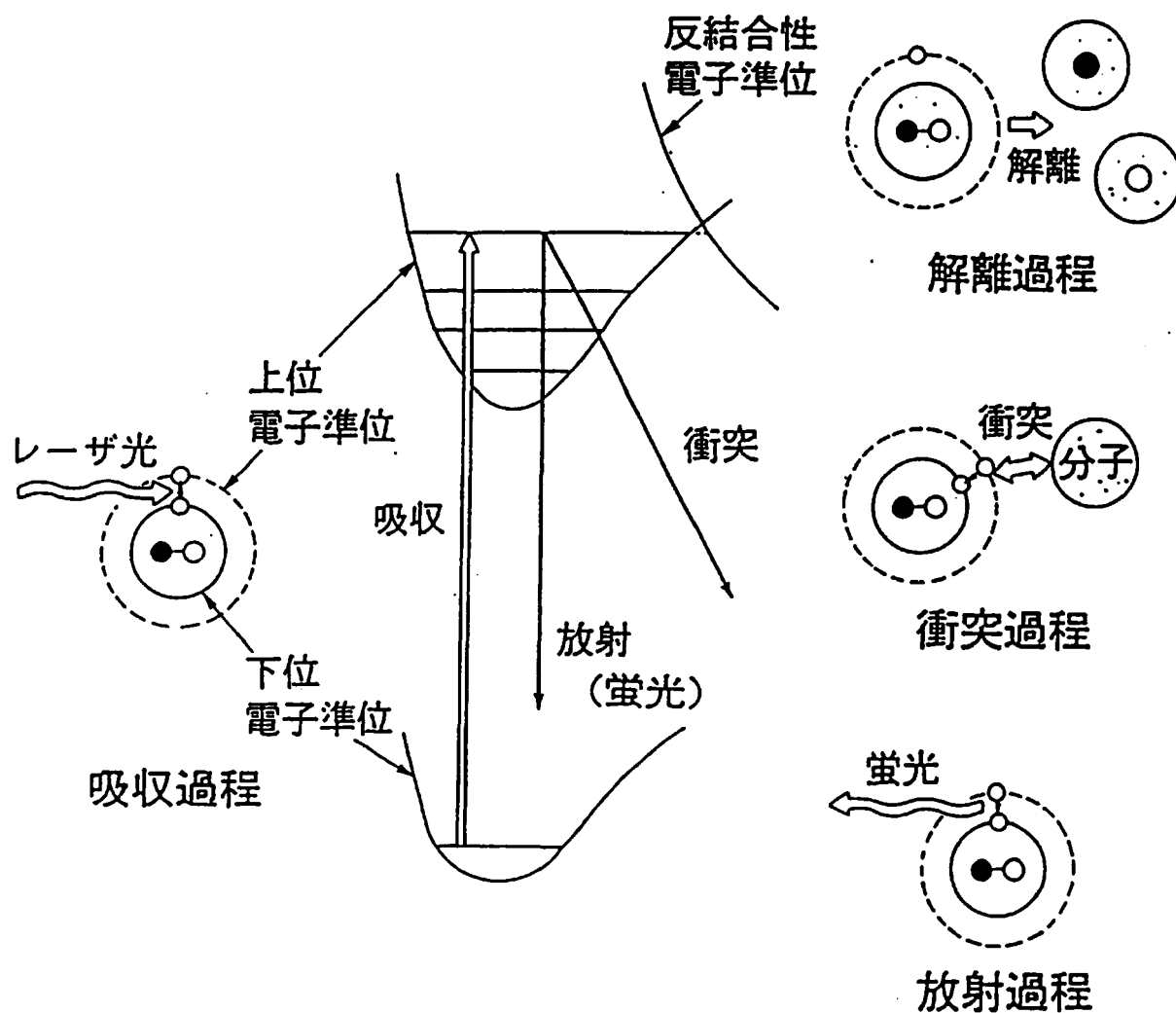
ンズ等の光学系によりシート状にされ、測定場に集光される。測定場からの蛍光は紫外用集光レンズで集光され、イメージインテンシファイヤ付CCDカメラを用いて検知される。燃焼バーナーは、前述のバーナー案に基づき製作する。

(iii) 計測結果例

内径 2.0mmのブンゼン型バーナーを用い、周囲に直径 100mmの円管より酸素を富化した空気を流した条件での計測例を示す。火炎条件を以下に示す。

バーナー内径		2 mm
燃料		水素 (3.7m/s)
周囲流		酸素54%、窒素46% (0.03m/s)

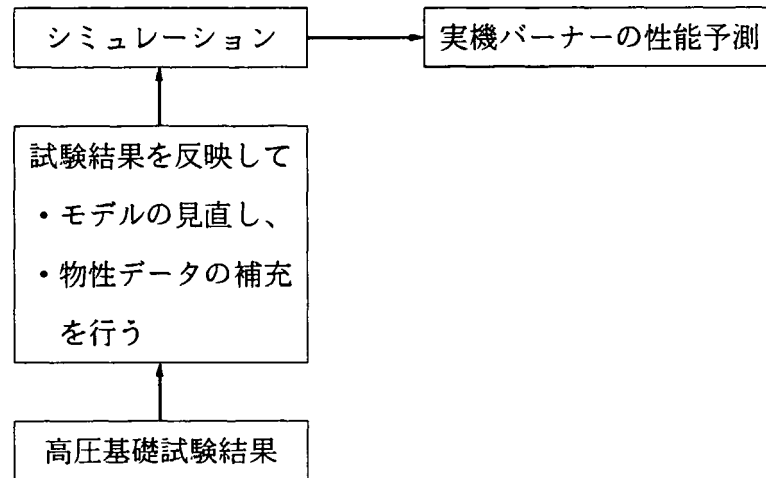
OH、高温域に存在するO₂、温度計測結果を第2.3.3-9 図に示す。



第2.3.3-7 図 L I Fのエネルギー遷移過程

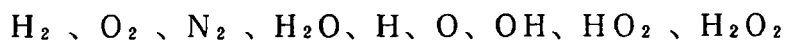
(4) 水素・酸素着火燃焼解析

水素・酸素の燃焼流動シミュレーションの整備を行った。本シミュレーションにより加圧基礎試験結果ならびにホットモデル試験結果で得られた火炎特性データを、実機バーナーのスケールアップに反映する。



(a) 計算モデル

二次元軸対称ブンゼンバーナー火炎における基礎方程式として、第2.3.3-4 表に示す連続の式、運動量保存の式、エネルギー保存の式、化学種保存の式、状態方程式を考慮した。化学反応計算には第2.3.3-5 表に示す素反応式を用いた。考慮した化学種はラジカルを含む次の9種類である。



熱・分子拡散計算には、Stefan-Maxwell 式による多成分拡散理論を用いた。素反応を考慮した場合には stiff 形の方程式を含むため、流れ、化学反応、熱・分子拡散を連立させる場合には計算の安定性に注意を払う必要がある。本計算ではタイムスプリッティング法を使用し、計算の安定化を図った。タイムスプリッティング法を使用するにあたり、次の差分法を適用した。

$$L(\Delta t) = L_a(\Delta t/2) L_b(\Delta t) L_a(\Delta t/2)$$

ここで、 L は式 (1) - (5) における差分演算子、 L_a は反応生成項の差分演算子、 L_b は反応生成項を除いた差分演算子を表す。

(b) 計算例

L I F 計測例で試験に使用したバーナーでの計算結果を第2.3.3-10図に示す。

本計算結果は、火炎内の温度、ガス組成等の分布形状は試験結果に良い相関を示すが、

火災長の絶対値は試験結果よりも短くなっていることがわかる。今後、高圧試験結果等を反映し、シミュレーションのインプットならびに計算手法を改善する事により、計算精度・実用性を向上させ実機バーナーの開発に活用する。

第2.3.3-4 表 燃焼・反応シミュレーション基礎方程式

(軸対称2次元)

(1) 連続の式

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (\rho u r) + \frac{\partial}{\partial z} (\rho v) = 0$$

(2) 運動量保存の式

$$\begin{aligned} \frac{\rho}{\partial t} - \left(\frac{1}{n} - \frac{\rho}{n \partial} \right) \frac{1}{n \partial} + \left[\left(\frac{\rho}{\partial} + \frac{z \partial}{n \partial} \right) \eta \right] \frac{z \partial}{\partial} + \\ \left[\left\{ \left(\frac{z \partial}{\partial} + (\eta n) \frac{\rho \partial}{\partial \partial} \right) \frac{\xi}{\partial} - \frac{\rho \partial}{n \partial} \right\} \eta \right] \frac{\rho \partial}{\partial} = \left(\frac{z \partial}{n \partial} \partial + \frac{\rho \partial}{n \partial} n + \frac{\rho \partial}{n \partial} \right) \partial \end{aligned}$$

(3) エネルギー保存の式

$$\begin{aligned} \rho \left(\frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial r} + v \frac{\partial v}{\partial z} \right) = \frac{\partial}{\partial z} \left[\mu \left\{ 2 \frac{\partial v}{\partial z} - \frac{2}{3} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (u r) + \frac{\partial v}{\partial z} \right) \right\} \right] \\ + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[\mu r \left(\frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial v}{\partial r} \right) \right] - \frac{\partial p}{\partial z} - \rho g \\ c_p \rho \left(\frac{\partial T}{\partial t} + u \frac{\partial T}{\partial r} + v \frac{\partial T}{\partial z} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\lambda r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \right) \\ + \sum_i D_i \rho \frac{\partial h_i}{\partial r} \frac{\partial \varpi_i}{\partial r} + \sum_i D_i \rho \frac{\partial h_i}{\partial z} \frac{\partial \varpi_i}{\partial z} - \sum_i h_i \phi_i \end{aligned}$$

(4) 化学種保存の式

$$\rho \left(\frac{\partial \varpi_i}{\partial t} + \frac{\partial \varpi_i}{\partial r} + \frac{\partial \varpi_i}{\partial z} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(D_i \rho r \frac{\partial \varpi_i}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_i \rho \frac{\partial \varpi_i}{\partial z} \right) + \phi_i$$

(5) 状態方程式

$$p = \rho R T \sum_i \frac{\varpi_i}{m_i}$$

第2.3.3-5 表 素反応式及び反応速度係数

Fuel Oxidation Mechanism. Reaction Rates in $\text{cm}^3\text{mol sec kcal units}$, $k = A T^n \exp (-E_a / R T)$

Reaction	Forward rate			Reverse rate		
	$\log A$	n	E_a	$\log A$	n	E_a
1. $\text{H} + \text{O}_2 \rightarrow \text{O} + \text{OH}$	14.27	0	16.79	13.17	0	0.68
2. $\text{H}_2 + \text{O} \rightarrow \text{H} + \text{OH}$	10.26	1	8.90	9.92	1	6.95
3. $\text{H}_2\text{O} + \text{O} \rightarrow \text{OH} + \text{OH}$	13.53	0	18.35	12.50	0	1.10
4. $\text{H}_2\text{O} + \text{H} \rightarrow \text{H}_2 + \text{OH}$	13.98	0	20.30	13.34	0	5.15
5. $\text{H}_2\text{O}_2 + \text{OH} \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{HO}_2$	13.00	0	1.80	13.45	0	32.79
6. $\text{H}_2\text{O} + \text{M} \rightarrow \text{H} + \text{OH} + \text{M}$	16.34	0	105.00	23.15	-2	0.00
7. $\text{H} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{M}$	15.22	0	-1.00	15.36	0	45.90
8. $\text{HO}_2 + \text{O} \rightarrow \text{OH} + \text{O}_2$	13.70	0	1.00	13.81	0	56.61
9. $\text{HO}_2 + \text{H} \rightarrow \text{OH} + \text{OH}$	14.40	0	1.90	13.08	0	40.10
10. $\text{HO}_2 + \text{H} \rightarrow \text{H}_2 + \text{O}_2$	13.40	0	0.70	13.74	0	57.80
11. $\text{HO}_2 + \text{OH} \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{O}_2$	13.70	0	1.00	14.80	0	73.86
12. $\text{H}_2\text{O}_2 + \text{O}_2 \rightarrow \text{HO}_2 + \text{HO}_2$	13.60	0	42.64	13.00	0	1.00
13. $\text{H}_2\text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{OH} + \text{OH} + \text{M}$	17.08	0	45.50	14.96	0	-5.07
14. $\text{H}_2\text{O}_2 + \text{H} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{H}_2$	12.23	0	3.75	11.86	0	18.70
15. $\text{O} + \text{H} + \text{M} \rightarrow \text{OH} + \text{M}$	16.00	0	0.00	19.90	-1	103.72
16. $\text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{O} + \text{O} + \text{M}$	15.71	0	115.00	15.67	-0.28	0.00
17. $\text{H}_2 + \text{M} \rightarrow \text{H} + \text{H} + \text{M}$	14.34	0	96.00	15.48	0	0.00

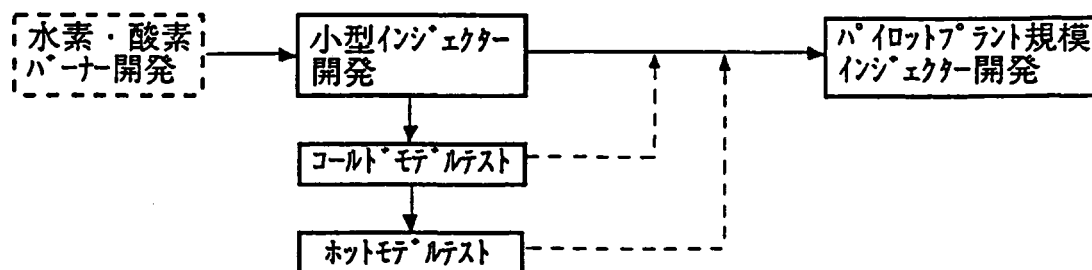
2. 4 インジェクター開発計画

ARCHプロセスでは、石炭水添ガス化反応における石炭昇温速度、反応温度、滞留時間、等の反応因子を単一の反応器内で変化させ、水添ガス化で起こる二つの主要な反応（揮発分発生および水素化熱分解反応）を制御することにより、幅広い反応モードを達成することができる。中でも、高温水素を用い石炭粒子を急速昇温し、揮発分をより多く発生させ、発生揮発分の水素化熱分解反応を制御することによりBTX収率を増大させることができると考えられており、液収率向上のためのスタディの結果からも、その可能性が示されている。

本節では高温水素を得るため水素の一部を酸素により部分燃焼させる方式のバーナー（水素・酸素バーナー）を組み合わせたインジェクターの開発計画について述べる。

水素・酸素バーナー搭載型インジェクターについては、これまでにROCKWELLプロジェクトにおいて24 t/dの規模で基本性能が確認されており、インジェクター噴出孔近傍において石炭を凝集させずに急速昇温・混合させる技術が開発され、数多くの水添ガス化反応データを取得した実績がある。しかし、インジェクターの耐久性、マルチ化等に課題が残されており、また反応条件が限定されておりARCHプロセスの目指す幅広い反応モードでの運転が困難である。そこで、既存知見を最大限活用し、ARCHプロセス独自のインジェクターの開発を進めて行く。開発するインジェクターの規模はARCHプロセスの新規性を実証するためのものでありパイロットプラント規模を想定している。インジェクターを開発するにあたり以下に示す開発フローおよび開発項目が考えられる。それぞれの開発項目において要素試験を実施し、その成果をまとめ最終的にパイロットプラント規模のインジェクターを開発する。

〈開発フローおよび開発項目〉



- ・小型インジェクター開発（水素・酸素バーナー搭載型）

高温水素供給型インジェクター

- ・コールドモデルテスト

インジェクターの性能確認（反応器内流動状態把握）

- ・ホットモデルテスト

インジェクター耐熱性確認（石炭・水素混合状況確認）

- ・パイロットプラント規模インジェクター開発

商業炉をイメージした耐久性のあるインジェクター

ARCHプロセスにおいて開発するインジェクターは単に水素・酸素バーナーを組み合わせたアセンブリーとしてだけのインジェクターではなく、反応器に組み込んだ際に石炭と水素を確実に急速混合させ反応させるためのものであり、併せて反応器内の循環流動および反応温度制御も達成しうるものでなければならない。そのためインジェクターの開発は前節で述べられたように、まず耐久性のある水素・酸素バーナーの開発から着手し、その後水素・酸素搭載型インジェクターに組み上げていく。さらにインジェクターの性能確認のためコールドモデルを使用して反応器内流動状態の把握やホットモデルによる石炭・水素の混合状況の確認が必要となる。上記のように各開発項目を検討し、成果を総合的にまとめパイロットプラント規模のインジェクターを開発するものである。

2. 4. 1 水素・酸素バーナー搭載型インジェクター開発

商業炉をイメージした耐久性のあるインジェクターを開発するため前節に記載された水素・酸素バーナーを組み込んだインジェクターを設計・製作し、各種テストを行いその性能を確認する。バーナーの形状は開発に当たりこれまでに報告されているロックウェル、BG/OG等の開発実績をベースに水素・酸素バーナー搭載型インジェクターを設計・試作する。インジェクターはまず石炭ノズル1本のシングルインジェクターが試作され、そのインジェクターの着火試験・燃焼解析を実施し、ホットモデルテスト用インジェクターが検討される。最終的には商業炉をイメージした石炭ノズルを複数もつマルチインジェクターを検討する。インジェクターの設計に当たってはコールドモデルテストおよびホットモデルテストの結果を十分考慮する。以下に、水素・酸素バーナー搭載型インジェクターの開発ステップを示す。

水素・酸素バーナー搭載型インジェクター（シングル）設計・試作



インジェクター着火試験・燃焼解析



ホットモデルテスト用インジェクター検討



マルチインジェクター検討

1) 試作インジェクター（シングル）

まず、バーナー燃焼テスト、燃焼解析シミュレーション等の結果を基に水素・酸素バーナーを搭載したインジェクターが設計される。また、設計する際に石炭ノズルおよび水素・酸素バーナーの個数、配置、噴出角度、噴出流速等のパラメータが重要な要素となるが、これらについては既存の知見を活用することにより効率よく開発が進められるものと考えられる。なお、インジェクターはコールドモデルテスト、ホットモデルテスト等を経て最適なインジェクターへ改良されるものである。

開発の第1段階で試作するインジェクターの概略図を第2.4-1 図に示す。水素、酸素バーナーの形状については着火性、耐久性等の確認されたものを内蔵することになるので、詳細構造については現時点では明らかになっていない。しかし、これまでの石炭水添ガス化関連の研究開発成果より、バーナーの配置は水素バーナー4本とインジェクターの中心に石炭ノズルが1本ある、いわゆる4-on-1タイプの配置をまず考える。その理由として、4-on-1タイプのインジェクターが微粉炭とガスの混合特性に優れていると言われているからである。

試作インジェクターの基本仕様を以下に示す。

- ・基本構成：水素バーナー4本、石炭ノズル1本（4-on-1タイプ）

- ・材質：インジェクター本体 インコネル601

本体以外 SUS316

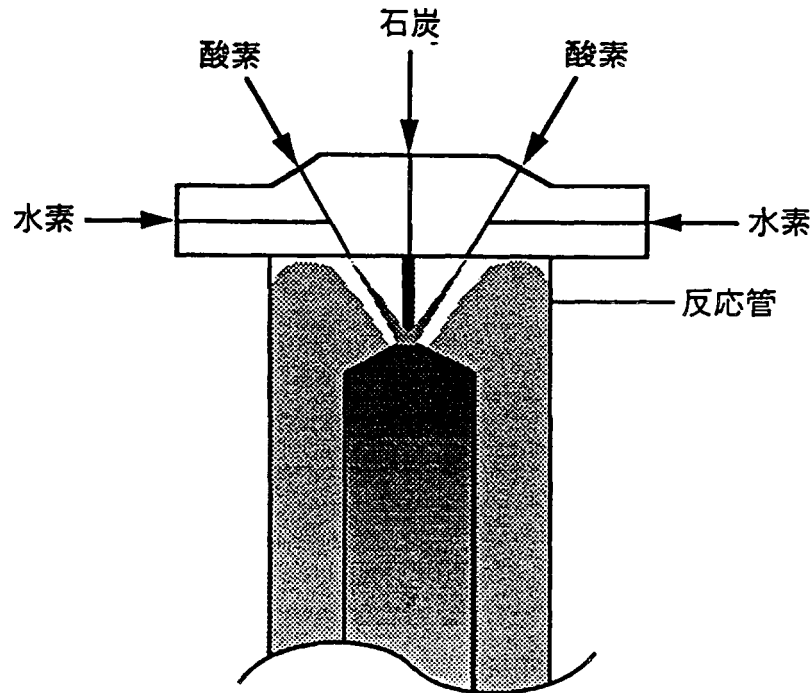
- ・水素ノズル：本数 4本

位置 インジェクター中心より等距離に4カ所

噴出角度 60°

- ・酸素ノズル：本数 4本

- 位置 インジェクター内またはノズル出口付近で水素ラインと合流
- 石炭ノズル：本数 1 本
- 位置 インジェクターの中心
- 水素ガス流速（ノズル出口）：100～200m/s
 - 水素ガス温度（ノズル出口）：900～1,300℃



第2.4-1 図 インジェクター概略図

2) ホットモデルテスト用インジェクター

小型インジェクターの開発で得られたインジェクターに石炭ノズルを装着し、実際に石炭を供給しホットモデルテストを行うためのインジェクターを設計・製作する。

ホットモデルテストは低圧で行われ、インジェクターの耐熱性評価、石炭・水素の混合状況を確認するものである。インジェクターの大きさは今後のインジェクター基本特性検討結果およびテスト装置の規模により決定されるが、できるだけパイロットプラント規模に近い大きさを目指している。なお、ホットモデルテストの内容については後述する。

3) マルチインジェクター

商業炉用インジェクターをイメージし複数の石炭－水素供給ユニットをもつインジェクターを検討する。

コールドテストの結果を基にパイロットプラント規模のマルチインジェクターを設計するものであり、インジェクター構造の一例として4-on-1ユニット×3～4が考えられる。本インジェクター開発においてはコールドモデルテストおよびシングルインジェクターによるホットモデルテスト結果に基づきマルチインジェクターの詳細設計を効率的に行う。

2. 4. 2 コールドモデルテスト

インジェクターに求められる性能は、確実に石炭を急速昇温・混合することおよび反応器内で循環流動、反応温度制御を実現することである。循環流動については反応器内の構造およびクエンチガス流量、流速、導入位置に大いに関係する。そこで反応器内の流動混合状態の確認をするために可視化できる装置によるコールドモデルテストが必要である。

試験装置は可視化するために一般的にアクリル樹脂等で製作されるため高温での試験は不可能であり通常常温・常圧で行われる。試験に用いられる流体も実験のやり易さから模擬粒子と空気を使用するのが一般的である。これまでの石炭ガス化炉開発の実績・知見でも常温・常圧コールドモデルは高温・高圧ガス化炉の設計に大いに活用されている。また、より有効な設計データを補強する意味から圧力の影響も確認しておきたいパラメータである。最近の研究では数kg/cm²の加圧下においてコールドテストが検討されており、本開発においても加圧下での試験を実施することが望ましい。装置規模としては低圧・常温のものでありパイロットプラントと同じ程度の大きさとする。また、近年可視状態測定の発達 は著しく、有効なデータ取得のために適切な測定装置を採用していく。

コールドモデルテストの概要を以下にまとめる。

1) 目的

a. インジェクターの性能評価

水素ノズル特性（流速、圧力損失、等）、リングヘッドによるガス分配、
石炭（模擬粒子）・ガス混合特性

b. 反応器内部構造の決定

反応管、ドラフトチューブ、クエンチガスラインの位置および大きさ

c. 反応器内部流動状態の確認・把握

石炭（模擬粒子）・ガス混合状態（インジェクター面近傍）、
石炭（模擬粒子）・ガス循環状態（ドラフトチューブ周辺）、

クエンチガス導入位置および導入量の影響

2) パラメータ

a. 反応管内径・長さ

内径：10～20インチ（25～51cm）

長さ：4～5 m

b. ガス・模擬粒子噴出速度および角度

ガス噴出流速：100～200m/s

ガス噴出角度：45～60°

模擬粒子噴出流速：～10m/s

模擬粒子噴出角度：90°（垂直下向）

c. クエンチガス挿入位置・量

ガスライン挿入位置：ドラフトチューブ外側（上向にガス導入）、

ドラフトチューブ内側（下向にガス導入）

ガス挿入量：反応温度制御に必要な量（反応シミュレーションモデルより計算）

d. ドラフトチューブ長さ・口径

ドラフトチューブ長さ：～3 m

ドラフトチューブ口径：～15インチ（～38cm）

3) 装置（コールドモデルテスト装置概略フローを第2.4-2 図に示す。）

a. 規模 10B～20B $\phi \times 4,000 \sim 5,000$ mmH (70kg/cm²Gで5 t/d～50t/d相当)

b. 容器材質 アクリル樹脂製

c. 温度・圧力 常温・常圧（可能ならば8 kg/cm²G程度の低圧も実施）

d. 操作流体 模擬粒子（FCC、チャー）および空気

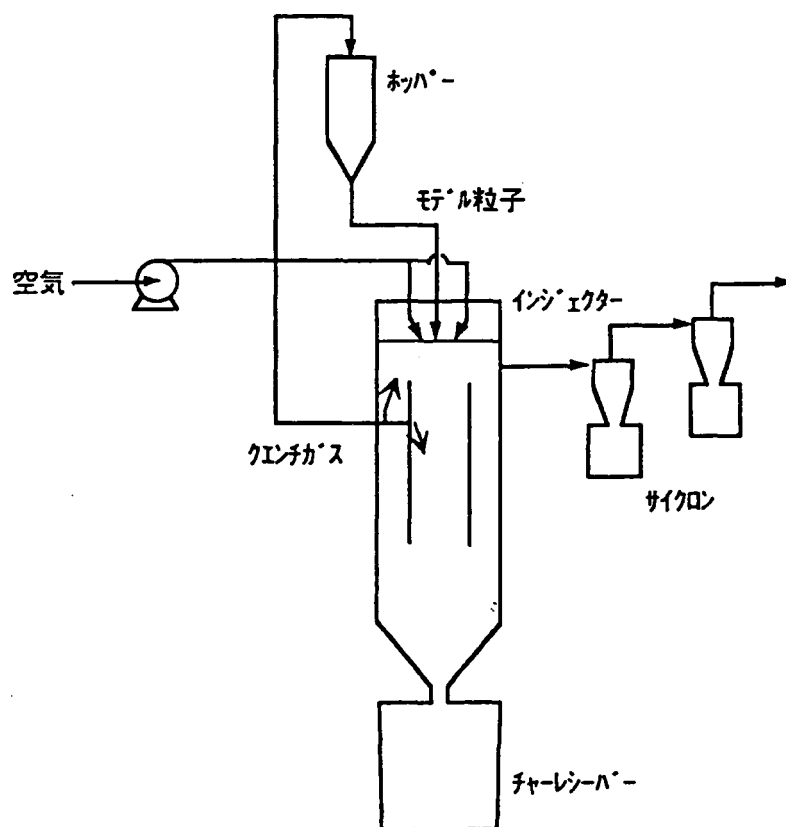
4) 期間

・設備建設を含め2～3年間（シングルインjekターテスト）

・シングルインjekターテスト終了後マルチインjekターテストに移行。

5) 費用

・3億円（設備費および運転費）



第2.4-2 図 コールドモデルテスト装置フロー

2. 4. 3 ホットモデルテスト

高温状態におけるインジェクターの性能について確認すべき事項として、耐熱・耐久性および高温下での安定した混合性能、石炭凝集回避の確認である。これらを確認するためには実際に石炭と高温水素とを混合・反応させて確認する必要がある。

本ホットモデルテストでは実際に石炭と水素を反応させるため多量の原料水素ガスが必要となる。そのため水素プラントを必要とする規模の試験は水素製造プラント運転の煩雑さから効率の良い試験実施が非常に困難である。そこで大型水素ローリー等で水素を供給することが検討された。その結果、数kg/cm²の低圧試験で4 t/d 規模の試験ができ、パイロットプラント設計に十分有効なデータを取得することができるものとする。装置規模としては低圧であるがパイロットプラントと同程度になるが、インジェクターでの水素ガス噴出流速を高圧実機と同一にする場合にはスケールアップに支障のない範囲で縮小せざるを得ないことになる。また、本ホットモデルテストでは反応器内のガス循環、反応温

度制御も実現できるよう装置を検討し、低圧ながら種々の条件下での有用なデータが得られるものと推定される。

ホットモデルテストの概要を以下にまとめる。

1) 目的

a. インジェクターの耐熱性評価

インジェクター材料の耐熱性、耐久性

b. 石炭・水素混合状況の確認（凝集回避）

石炭・ガス混合特性、石炭昇温速度、チャーの凝集状況の把握

c. 参考として低圧での反応生成物の把握

ガス化生成物および液生成物分布の把握

2) パラメータ

a. 水素／石炭比

水素／石炭比：0.2～0.4kg/kg-daf coal

b. 反応温度

反応温度：800～900℃

c. クエンチガス温度・量

クエンチガス温度：常温

クエンチガス量：反応器下部の温度を 800℃または 850℃に制御できるガス量

3) 装置（ホットモデルテスト装置概略フローを第2.4-3 図に示す。）

a. 規模

10 B～20 B $\phi \times 4,000 \sim 5,000$ mmH(70kg/cm²Gで5 t/d～50t/d相当)

試験を効率的に実施するため水素プラントを設置せず実験できる

規模 [水素トレーラー(2,000m³)]

b. 反応器材質

C r - M o 鋼 ただしインジェクター周辺はインコネル

c. 圧力

8 kg/cm²G 程度

d. 温度

高温 1 段目出口 900℃、2 段目 800℃

e. 操作流体

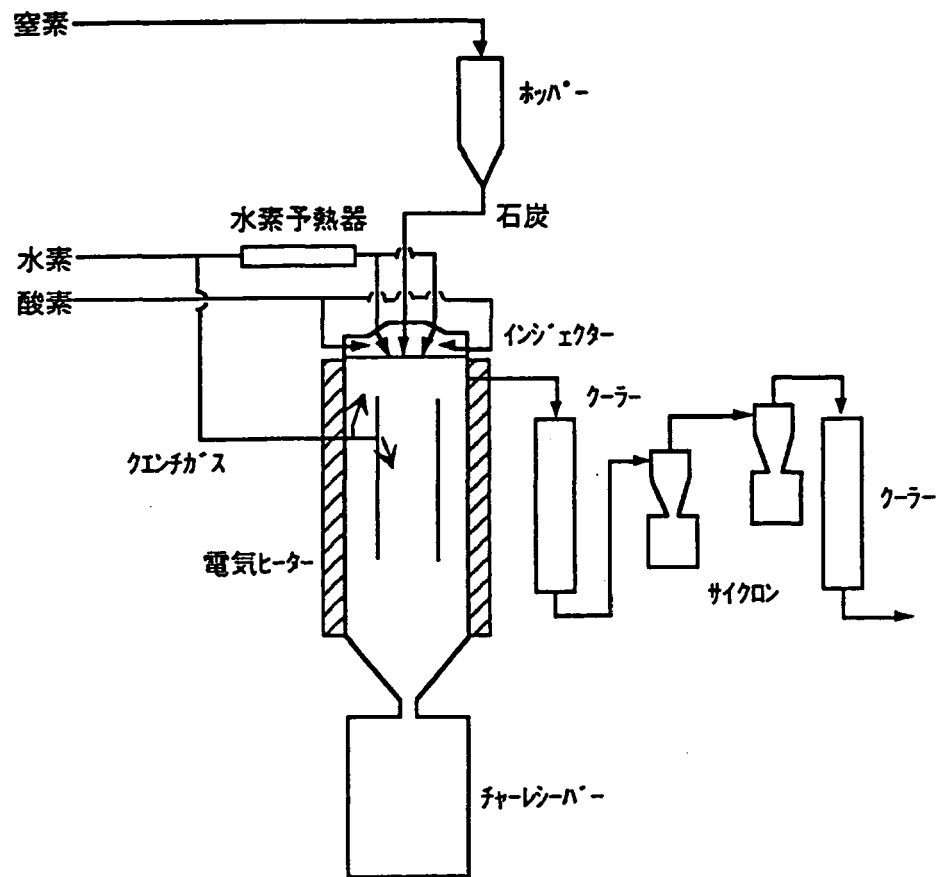
微粉炭および水素

4) 期間

- ・設備建設を含め 3～4 年間

5) 費用

- ・5.5 億円（設備費および運転費）



第2.4-3 図 ホットモデルテスト装置フロー

2. 5 液収率向上のためのスタディ

2. 5. 1 反応器性能のシミュレーションモデルによる予測

A R C Hプロセスの想定する反応器は上下に直列に接続された2つの反応器より成る。ここでは、上段の反応器を1段目反応器、下段のそれを2段目反応器と呼ぶことにする。A R C Hでは、まず1段目の反応器を高温（～900℃）、短滞留時間（～1秒）で操作して、ある程度の炭素転化率を達成すると共に高収率でオイルを生成させる。次いで、2段目反応器入口に冷却用ガスを導入し、2段目反応器を1段目反応器よりも低い温度で長滞留時間で操作し、B T Xの分解を抑制しながらオイル分をできるだけB T Xに変換しようとするものである。

一昨年度、A R C Hプロセスの反応器の性能を表現できるシミュレーションモデルを提案したが、本年度は同モデルを用いて以下の点を検討した。

- ①本シミュレーションモデル太平洋炭以外の石炭への適用の可能性
- ②1段目の反応器の滞留時間が2段目反応器におけるB T X収率に与える影響
- ③2段目反応器の混合状態がB T X収率に与える影響

(1) シミュレーションの概要

1段目と2段目の反応器を区別して考える。一昨年度提出したモデルによって1段目の反応器をシミュレートし、2段目の反応器の入口条件（生成物組成）を決定する。2段目の反応器内では、オイル、B T Xと水素の反応のみが起こると考えられるので、気相反応として解析する。1段目と2段目の反応器のシミュレーションによって、ある程度の炭素転化率を維持しながら、B T X収率をどの程度高められるかを検討する。

シミュレーションに際して採用した操作条件を次に示す。

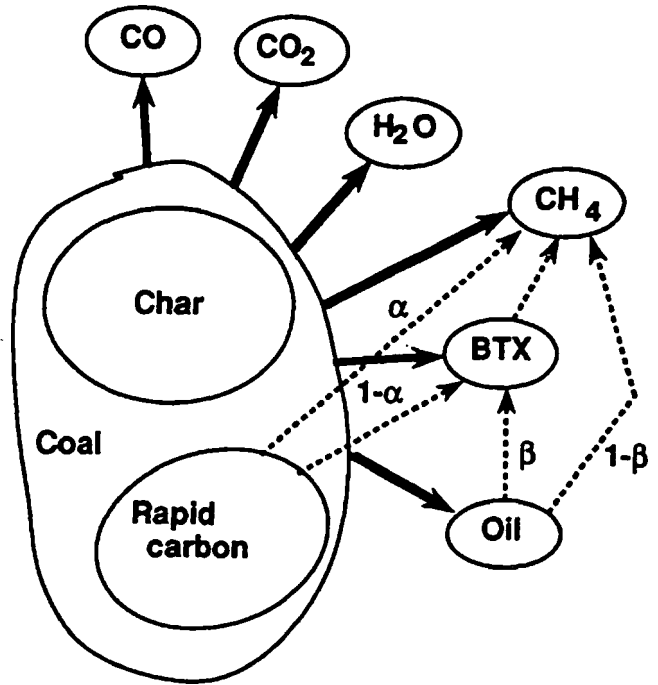
- ・反応圧力：70atm
- ・1段目反応器出口でのガス、チャー、灰分温度：1,173K（900℃）
- ・2段目反応器出口でのガス、チャー、灰分温度：～1,023K（～750℃）
- ・ガス滞留時間：1段目 ～1sec、2段目 約10sec を想定するが、シミュレーションにより最適値を定めるものとする。
- ・冷却用ガス 組成：2段目反応器出口ガスを精製したガスを用いる
(水素 約70%、CH₄ 約25%、CO 約5%)
温度：308K（35℃）

使用量：反応器後段の熱交換器出ガス量の約30%

(2) 第1段目反応器の設計

a. モデルの概要

詳細は一昨年度報告したので、結果だけを以下に示す。第2.5-1図に本モデルで想定した反応経路を示す。石炭由来の反応成分として9成分、それに水素を合わせて10成分を考えた。実線は初期熱分解反応経路を、破線は水素存在下での2次的反応を表わし、それらのすべてが1次反応であると仮定した。



第2.5-1 図 水添ガス化反応モデルで考慮した成分と反応経路

①Rapid carbonの生成可能量

f_{Prc}^* [kg/kg-daf coal]は温度 T [K] と水素圧 P_{H_2}

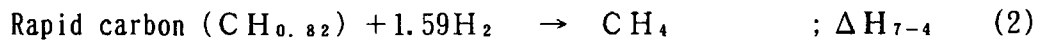
[atm] の関数で表されるとし、次式で相関した。

$$f_{Prc}^* = 5.00 (P_{H_2})^{0.337} e^{-5.245/RT} \quad (1)$$

②Rapid carbonは水素存在下で $\alpha : (1 - \alpha)$ の速度比で CH_4 と BTX に水素化分解されるものとした。 α は太平洋炭について 900℃では次のように相関された。

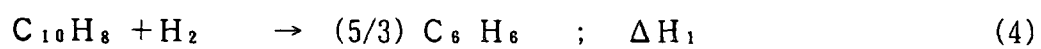
$$\alpha = 1 - \frac{9.26}{P_{H_2} + 8.33}$$

③Rapid carbonは石炭から酸素のみが取り除かれた組成を持つものとし、水素と反応して次の量論式に従って CH_4 と BTX を生成するものとした。



ΔH_{7-4} 、 ΔH_{7-5} はそれぞれの反応の反応熱である。

④BTX (C_6H_6 で代表)、Oil (C_8H_{10} で代表) の水素化反応に対するみかけの反応量論式として次の3つを考えた。



ここで、 ΔH_1 、 ΔH_2 、 ΔH_3 は反応(4)、(5)、(6)の反応熱である。

シフト反応は瞬時に平衡に達するものとした。反応熱は、(2)～(6)の反応とソフト反応のみについて考えた。基礎方程式を第2.5-1 表に示す。

第2.5-1 表 反応シミュレーションに用いた基礎方程式

$$\frac{d(f_{CO})_p}{dz} = k_{CO}(f_{CO}^* - (f_{CO})_p)/u_s \quad (1)$$

$$\frac{d(f_{CO_2})_p}{dz} = k_{CO_2}(f_{CO_2}^* - (f_{CO_2})_p)/u_s \quad (2)$$

$$\frac{d(f_{H_2O})_p}{dz} = k_{H_2O}(f_{H_2O}^* - (f_{H_2O})_p)/u_s \quad (3)$$

$$\frac{d(f_{CH_4})_p}{dz} = k_{CH_4}(f_{CH_4}^* - (f_{CH_4})_p)/u_s \quad (4)$$

$$\frac{d(f_{BTX})_p}{dz} = k_{BTX}(f_{BTX}^* - (f_{BTX})_p)/u_s \quad (5)$$

$$\frac{d(f_{Oil})_p}{dz} = k_{Oil}(f_{Oil}^* - (f_{Oil})_p)/u_s \quad (6)$$

$$\frac{d(f_{Prc})_p}{dz} = k_{Prc}(f_{Prc}^* - (f_{Prc})_p)/u_s \quad (7)$$

$$\frac{d(f_{Prc}^*)_p}{dz} = \frac{d(f_{Prc})_p}{dz} - \kappa_{Prc}(f_{Prc}^*)_p/u_s \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \frac{df_{H_2}}{dz} = & M_{H_2} \left\{ -9\kappa_{BTX} \frac{f_{BTX}}{M_{BTX}} - \beta \kappa_{Oil} \frac{f_{Oil}}{M_{Oil}} - 16(1-\beta) \kappa_{Oil} \frac{f_{Oil}}{M_{Oil}} \right\} / u_f \\ & - M_{H_2} \{ 1.59\alpha + 0.09(1-\alpha) \} \kappa_{Prc} \frac{f_{Prc}^*}{M_{Prc}} / u_s \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \frac{df_{CH_4}}{dz} = & \frac{d(f_{CH_4})_p}{dz} + \{ 1.25(1-\beta) \kappa_{Oil} f_{Oil} + 1.231 \kappa_{BTX} f_{BTX} \} / u_f \\ & + 1.184 \alpha \kappa_{Prc} f_{Prc}^* / u_s \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \frac{df_{BTX}}{dz} = & \frac{d(f_{BTX})_p}{dz} + \{ 1.016 \beta \kappa_{Oil} f_{Oil} - \kappa_{BTX} f_{BTX} \} / u_f \\ & + 1.01(1-\alpha) \kappa_{Prc} f_{Prc}^* / u_s \end{aligned} \quad (11)$$

$$\frac{df_{Oil}}{dz} = \frac{d(f_{Oil})_p}{dz} - \kappa_{Oil} f_{Oil} / u_f \quad (12)$$

$$\begin{aligned} G_{s0} \frac{dT_s}{dz} = & h_c a_p S (T_g - T_s) \\ & - G_{s0} \{ \alpha \Delta H_{7-4} + (1-\alpha) \Delta H_{7-5} \} \kappa_{Prc} \frac{f_{Prc}^*}{M_{Prc}} / u_s \end{aligned} \quad (13)$$

$$\begin{aligned} G_{s0} \sum (f_{j,p,j}) \frac{dT_g}{dz} = & h_c a_p S (T_s - T_g) \\ & + G_{s0} \{ (1-\beta)(-\Delta H_1) + \beta(-\Delta H_3) \} \kappa_{Oil} f_{Oil} / M_{Oil} \\ & + \kappa_{BTX} f_{BTX} (-\Delta H_2) / M_{BTX} / u_f \\ & + G_{s0} \left\{ \left(\frac{d(f_j)_p}{dz} \right)_{c,p,j} (T_s - T_g) \right\} \end{aligned} \quad (14)$$

$$(f_{CO_2}/M_{CO_2})(f_{H_2}/M_{H_2}) / (f_{CO}/M_{CO})(f_{H_2O}/M_{H_2O}) = K_{shift}(T_g) \quad (15)$$

【使用記号】

$(f_j)_p$: 粒子内における各成分の累積生成量[kg/kg-coal]、 f_j : 各成分の収率(気相における値)[kg/kg-coal]、 f_j^* : 石炭中で各成分に変化し得る最大量[kg/kg-coal]、 $(f_{Prc})_p$: 粒子内におけるRapid carbonの存在量[kg/kg-coal]、 k_j : 石炭内の反応の速度定数[1/s]、 κ_j : 気相における反応の速度定数[1/s]、 T_s : 粒子温度[K]、 T_g : ガス温度[K]、 G_{s0} : 石炭供給速度[kg/s]、 d_p : 石炭粒子径[m]、 u_s : ガス速度[m/s]、 h_c : 粒子外境膜伝熱係数[W/(m²・K)]、 a_p : 粒子外表面積[m²/m³]、 S : 反応器断面積[m²]、 $C_{p,j}$: 比熱容量[J/(kg・K)]、 M_j : 分子量[kg/mol]、 ΔH_i ($i=1 \sim 3$) : 反応(4)~(6)の反応熱[J/mol]、 ΔH_{7-4} 、 ΔH_{7-5} : 反応(2)、(3)の反応熱[J/mol]、 K_{shift} : シフト反応の平衡定数[-]、 z : 反応器軸方向距離[m]

(添字) s : 粒子の値、g : 気相の値、j : 成分

b. 計算に用いたパラメータ

イ. 速度パラメータ

第2.5-2 表に用いた各パラメータの値を示した。

第2.5-2 表 計算に用いた反応速度パラメータ

初期熱分解反応の速度定数: $k_i : k_0 e^{-E/RT}$			
成分	k_0 [s^{-1}]	E [kJ/mol]	出典その他
C O	2.6×10^{12}	249	Suubergら ¹⁾
C O ₂	5.1×10^{13}	269	同上
H ₂ O	7.9×10^{13}	215	同上
C H ₄	7.5×10^{13}	249	Solomonら ²⁾
B T X	7.6×10^{11}	156	Suubergら ¹⁾ の Tarの値
Oil	7.6×10^{11}	156	同上
Rapid carbon	7.6×10^{11}	156	同上

2 次反応の速度定数	決定法
$\kappa_{Pre} = 7.5 \times 10^{13} e^{-249.000/RT} s^{-1}$	k_{CH_4} に等置
$\kappa_{oil} = 1.22 \times 10^4 (P_{H_2})^{1.48} e^{-154.000/RT} s^{-1}$	実測値にfitting ^{*)}
$(1 - \beta) \kappa_{oil} = 5.96 \times 10^4 (P_{H_2})^{0.84} e^{-154.000/RT} s^{-1}$	実測値にfitting ^{**)}
$\kappa_{BTX} = 9.75 \times 10^9 e^{-263.000/RT} s^{-1}$	Rockwellのデータ ³⁾

*) 活性化エネルギーはナフタレンの分解速度の値を採用

**) P_{H_2} 依存性はHuttinger らの報告⁴⁾ に基づき決定

ロ. 各成分の生成可能量 f_i^*

f_i^* は、太平洋炭については窒素中での熱分解結果、東京ガス水添ガス化データより、ロイヤン炭については実測値とのfittingによりそれぞれ第2.5-3 表のように定めた。

第2.5-3 表 初期熱分解による各成分の生成可能量 f_j^* [kg/kg-daf coal]

石炭	CO	CO ₂	H ₂ O	CH ₄	BTX	Oil	Rapid C.
太平洋炭	0.083	0.062	0.100	0.060	0.012	0.164	式(1)
ロイヤン炭	0.061	0.131	0.130	0.031	0.030	0.120	式(1)

ハ. 第1段目反応器出口組成の推定

本反応シミュレーション法が反応圧力 $P_t = 70 \text{ kg/cm}^2$ においても適用できるとの前提の下に、ARCH-2で想定する滞留時間 ~ 1 秒において反応器出口温度 = 900°C となる条件を想定して計算を実施した。計算に際して、水素/石炭供給比 = 0.1 kg-mol/kg 、石炭供給速度 = $421 \text{ kg-daf coal / (m}^3 \cdot \text{h)}$ とした。滞留時間は、水素の予熱温度を変えることにより変化した。

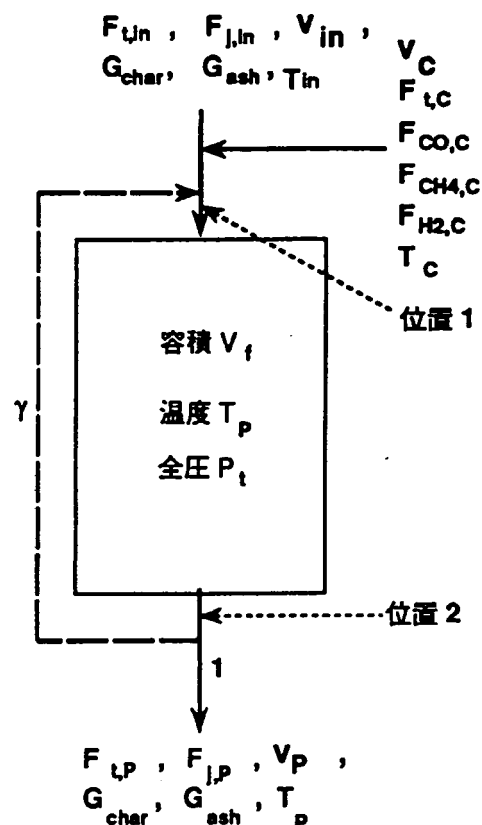
(3) 第2段目反応器の設計

第2段目の反応器ではBTXとOilのみが水素と反応すると考えた。計算に際して次の仮定を設けた。

- ①反応器は等温 (T_p)、等圧 (P_t) で操作される。
- ②ガス流は反応器入口で瞬時に混合されて均一な温度 (T_p) になる。

反応器内の混合状態の影響を検討するために、押し出し流れ (PFR)、完全混合流れ (CSTR) の場合と、リサイクル流れを伴う反応器で近似した場合の計算を実施した。

リサイクル流れを伴う反応器も含めて検討するので、次のように一般化して考える。すなわち、1段目の反応器からの生成物と冷却用精製ガス、さらに循環ガス流が混合されて



第2.5-2 図 2段目反応器回りの諸特性値の定義 (PFR、CSTRでは $\gamma = 0$ と置く)

温度 T_P となって反応器に供給される。反応器内で Oil、BTX が水素と反応して BTX、 CH_4 を生成する。反応器出口において生成物と循環流は物質流量比（体積流量比） $1 : \gamma$ に分割され、生成物流のみが取り出される。チャーは第 2 段目の反応器では反応しないので、入口で供給されたチャーはそのまま反応器より排出される。もちろん、PFR、CSTR ではリサイクル流れはないので $\gamma = 0$ と置いて議論すればよい。

a. 計算の方針

反応器内の位置、各特性値の記号を第 2.5-2 図のように定める。

F : 物質流量	[mol / s]	y : 各流れの物質流量分率	[-]
G : 質量流量	[kg / s]	(チャー、灰分は除く、 $\sum y_i = 1$)	
H : エンタルピー	[J / mol]	h : エンタルピー	[J / kg]
T : 絶対温度	[K]		

反応器回り、反応器内の各位置（各流れ）と成分は添字で表わす。

位置（流れ）：

in : 第 1 段目反応器生成物流れ	C : 冷却用精製ガス流れ
P : 生成物流れ	1 : 反応器入口
2 : 反応器出口	

成分： CO 、 CO_2 、 H_2O 、 CH_4 、BTX、Oil、 H_2 とチャー、灰分を考える。

なお、BTX、Oil は C_6H_6 と C_8H_{10} で代表する。

以上の仮定、条件の下に、温度 $T_{in} = 900^\circ C$ で第 1 段目反応器から排出された生成物を冷却用精製ガス流と混合して一定の温度 T_P で反応させて、できるだけ多くの BTX を得る実現可能な操作条件を見いだす。具体的には、指定された入口組成と T_P に対して出口組成、 V_r 、ガス滞留時間を計算する。既知量、仮定すべき値等を次にまとめる。

①計算に際して既知の諸量：

- in の位置における全ての特性値： $F_{j, in}$ 、 G_{char} 、 G_{ash} 、 T_{in}
- 冷却用精製ガス温度 T_c 。（ $= 35^\circ C$ ）
- 反応速度式とそれに含まれる速度定数

②変化させる値：

反応温度 T_P : in 流れの流量、組成

③操作の制限条件

冷却用精製ガスは反応器出口ガスから CO_2 、 H_2O 、BTX、Oil を除去・精製した

ガスの一部を利用するので、その組成は次の関係を満足しなければならないものとした。

$$y_{i,c} = y_{i,p} / (y_{CO,p} + y_{CH_4,p} + y_{H_2,p}) \quad (i = CO, CH_4, H_2) \quad (7)$$

③計算で得られる値

ガス滞留時間 τ_2 と反応器容積 V_r 、生成物物質流量 $F_{j,p}$ 、冷却用精製ガス必要量 $F_{i,c}$ の関係

b. 設計のための基礎方程式

イ. 総括の物質、エンタルピー収支式

第2.5-2 図の破線で囲まれた系について物質、エンタルピーの収支を考える。まず、総括Mass Balance式は次式で与えられる。

$$G_{t,in} + G_{t,c} = G_{t,p} \quad (8)$$

ここで、

$$G_{t,in} = \sum (F_{j,in} / M_j) + G_{char} + G_{ash}$$

$$G_{t,c} = \sum (F_{i,c} / M_i)$$

$$G_{t,p} = \sum (F_{j,p} / M_j) + G_{char} + G_{ash}$$

ただし、j についての和は CO 、 CO_2 、 H_2O 、 CH_4 、 BTX 、 Oil 、 H_2 の和を、i についての和は CO 、 CH_4 、 H_2 の和を表わす。以後、断りのない限り同様の表示法に従う。また、 M_i 、 M_j は分子量 $[kg/mol]$ を表わす。

総括エンタルピー収支式は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} & \sum [F_{j,in} H_j(T_{in})] + G_{char} h_{char}(T_{in}) + G_{ash} h_{ash}(T_{in}) + \sum [F_{i,c} H_i(T_c)] \\ & = \sum [F_{j,p} H_j(T_p)] + G_{char} h_{char}(T_p) + G_{ash} h_{ash}(T_p) \end{aligned} \quad (9)$$

ロ. 反応器入口と出口の関係式

い. 反応量論関係式と反応速度式

いま、みかけの反応量論式として、第1段目の反応器と同様に次の3つを考える。



ここで、 ΔH_j $[J/mol]$ 、 ξ_j $[mol/s]$ は、それぞれ反応に伴うエンタルピー変化、反応進行度を表わす。 r_j は各量論式に対する反応速度で、第1段目の反応器と同じく

$$r_1 = k_1 [C_{10}H_8] \quad (13)$$

$$r_2 = k_2 [C_6H_6] \quad (14)$$

精製したガスの組成に等しいことから、次の式で表される。

冷却用精製ガスの組成は、反応器出口ガスから CO_2 、 H_2O 、 BTX 、 O_2 を除去・反応熱を表わす。

量を表わす。また、 $-\Delta H_1(T_p) \sim \Delta H_2(T_p)$ は温度 T_p における反応(10)～(12)の

ここで、 $C_{p,i}$ [J/mol]、 $c_{p, \text{char}}$ [J/kg] などは該当する温度範囲での平均の熱容

$$\begin{aligned} F_{i,c} = & \{ \Sigma (F_{i,10} C_{p,i}) + G_{\text{char}} c_{p, \text{char}} + G_{\text{ash}} c_{p, \text{ash}} \} (T_{i0} - T_p) \\ & + \xi_1 \{ -\Delta H_1(T_p) \} + \xi_2 \{ -\Delta H_2(T_p) \} + \xi_3 \{ -\Delta H_3(T_p) \} \\ & \Sigma y_{i,c} C_{p,i} (T_p - T_c) \end{aligned} \quad (20)$$

式(9)の上で定義、導出された関係式を代入し、 $F_{i,c}$ について解くと次式が得られる。

冷却用精製ガスの物質流量 $F_{i,c}$ は、総括のエントルピー収支式(9)より計算できる。

ハ。冷却用精製ガス流量と組成

られていているから、 ξ_1 、 ξ_2 、 ξ_3 が $F_{o11,2}$ と $F_{BTX,2}$ で表現できることになる。

$F_{BTX,P}$ 、 $F_{o11,1} = F_{o11,10}$ 、 $F_{BTX,1} = F_{BTX,10}$ であり、 $F_{o11,10}$ 、 $F_{BTX,10}$ は与え

が成立することを利用した。PFR、CSTR では $F_{o11,2} = F_{o11,P}$ 、 $F_{BTX,2} =$

ここで、 $\alpha = k_3 / k_1$ であり、反応量論式より、 $\xi_3 / \xi_2 = r_3 / r_1 = \alpha$ の関係

$$\xi_3 = \alpha (F_{o11,2} - F_{o11,1}) / (1 + \alpha) \quad (19)$$

$$\xi_2 = (5/3) \xi_1 + (F_{BTX,2} - F_{BTX,1}) \quad (18)$$

$$\xi_1 = (F_{o11,2} - F_{o11,1}) / (1 + \alpha) \quad (17)$$

これらの式を ξ_1 、 ξ_2 、 ξ_3 について解くと次式が得られる。

$$F_{H2O,2} - F_{H2O,1} = 0 \quad (16-7)$$

$$F_{CO2,2} - F_{CO2,1} = 0 \quad (16-6)$$

$$F_{CO,2} - F_{CO,1} = 0 \quad (16-5)$$

$$F_{H2,2} - F_{H2,1} = -\xi_1 - 9\xi_2 - 16\xi_3 \quad (16-4)$$

$$F_{CH4,2} - F_{CH4,1} = 6\xi_2 + 10\xi_3 \quad (16-3)$$

$$F_{BTX,2} - F_{BTX,1} = (5/3)\xi_1 - \xi_3 \quad (16-2)$$

$$F_{o11,2} - F_{o11,1} = -\xi_1 - \xi_3 \quad (16-1)$$

上の反応量論式に基づいて、反応器入口と出口の物質量の関係が次式で与えられる。

の濃度を表わす。

と表わせるものとする。ここで、 $[C_{10}H_8]$ 、 $[C_6H_6]$ はそれぞれ $C_{10}H_8$ 、 C_6H_6

$$r_3 = k_3 [C_{10}H_8] \quad (15)$$

$$y_{CH_4, c} = \frac{F_{CH_4, in} + 6\xi_2 + 10\xi_3}{F_{CH_4, in} + F_{CO, in} + F_{H_2, in} - \xi_1 - 3\xi_2 - 6\xi_3} \quad (21)$$

$$y_{CO, c} = \frac{F_{CO, in}}{F_{CH_4, in} + F_{CO, in} + F_{H_2, in} - \xi_1 - 3\xi_2 - 6\xi_3} \quad (22)$$

$$F_{H_2, c} = \frac{F_{H_2, in} - \xi_1 - 9\xi_2 - 16\xi_3}{F_{CH_4, in} + F_{CO, in} + F_{H_2, in} - \xi_1 - 3\xi_2 - 6\xi_3} \quad (23)$$

したがって、 ξ_1 、 ξ_2 、 ξ_3 が得られると、冷却用ガス流れの諸量を決定できる。

二. 設計方程式

上述の議論から oil と BTX についてのみ設計方程式を解き、 ξ_1 、 ξ_2 、 ξ_3 を $F_{oil, 2}$ と $F_{BTX, 2}$ で表現すれば、他の成分の $F_{i, 2}$ は計算できる。また、反応容積の計算には、反応に伴う物質質量の変化を考慮して基礎式を定式化する必要がある。

i 押し出し流れ反応器 (PFR)

$$dF_{oil} / d\tau = -(k_1 + k_3)F_{oil} \quad (24)$$

$$dF_{BTX} / d\tau = (5/3)k_1 F_{oil} - k_2 F_{BTX} \quad (25)$$

ここで、 $v d\tau = dV$ と変数変換したので、反応器容積の決定には併せて

$$dV / d\tau = v \quad (26)$$

を解く必要がある。これらの式は解析的に解けて、次の諸式が得られる。

$$F_{oil, 2} / F_{oil, 1} = \exp \{-(k_1 + k_3)\tau_f\} \quad (27)$$

$$\frac{F_{BTX, 2}}{F_{oil, 1}} = \frac{\kappa_1}{\kappa_2 - 1} \left\{ \frac{F_{oil, 2}}{F_{oil, 1}} - \left(\frac{F_{oil, 2}}{F_{oil, 1}} \right)^{\kappa_2} \right\} + \frac{F_{BTX, 1}}{F_{oil, 1}} \left(\frac{F_{oil, 2}}{F_{oil, 1}} \right)^{\kappa_2} \quad (28)$$

$$V_f = v_1 [\tau_f - y_{oil, 1} \{ (I) / 3 + 4 (II) + 7 (III) \}] \quad (29)$$

ここで、 τ_f は反応器出口 (2) における τ の値、 v_1 は反応器入口 (1) における体積流量 ($= (RT/P_1) F_{i, 1}$) である。また、式(23)、(24)に含まれるパラメータ、積分項は次式で表される。

$$(I) = \frac{1}{1 + \alpha} \left(\tau_f - \frac{1}{k_1 + k_3} [1 - \exp \{-(k_1 + k_3)\tau_f\}] \right) \quad (30)$$

$$(II) = \frac{5}{3} (I) - \frac{\kappa_1}{\kappa_2 - 1} \left(\frac{1}{k_1 + k_3} [1 - \exp \{-(k_1 + k_3)\tau_f\}] \right) - \frac{1}{k_2} [1 - \exp(-k_2\tau_f)] + \frac{F_{BTX, 0}}{F_{oil, 0}} \left[\tau_f - \frac{1}{k_2} [1 - \exp(-k_2\tau_f)] \right] \quad (31)$$

$$(III) = \alpha (I) \quad (32)$$

ここで、

$$\kappa_1 = \frac{5 k_1}{3 (k_1 + k_3)} \quad , \quad \kappa_2 = \frac{k_2}{k_1 + k_3}$$

ii 完全混合流れ反応器 (CSTR) の設計方程式

oil と BTX についての設計方程式は次式で与えられる。

$$F_{oil, 2} - F_{oil, 1} = - (k_1 + k_3) F_{oil, 2} \tau_f \quad (33)$$

$$F_{BTX, 2} - F_{BTX, 1} = \{ (5/3) k_1 F_{oil, 2} - k_2 F_{BTX} \} \tau_f \quad (34)$$

これらを解くと $F_{oil, 2}$ と $F_{BTX, 2}$ が次のように得られる。

$$F_{oil, 2} = \frac{F_{oil, 1}}{1 + (k_1 + k_3) \tau_f} \quad (35)$$

$$F_{BTX, 2} = \frac{F_{BTX, 1} + (5/3) k_1 F_{oil, 2} \tau_f}{1 + k_2 \tau_f} \quad (36)$$

反応器容積は、反応に伴って物質質量が変化することから、

$$V_f = v_2 \tau_f = v_1 \tau_f [1 + \{ -(1/3) \xi_1 - 4 \xi_2 - 7 \xi_3 \}] \quad (37)$$

で与えられる。

iii リサイクル流れ反応器

PFR について導出した式(24)～(31)がそのまま適用できるので、 $F_{j, 1}$ が与えられれば $F_{j, 2}$ と反応器容器が計算できる。さらに、反応器入口と出口、in 流れ、C 流れの物質質量流量 ($F_{j, 1}$ 、 $F_{j, 2}$ 、 $F_{j, in}$ 、 $F_{j, c}$) の間には次の関係が成立する。

$$F_{oil, 1} = \{ \gamma / (1 + \gamma) \} F_{oil, 2} + F_{oil, in} \quad (38-1)$$

$$F_{BTX, 1} = \{ \gamma / (1 + \gamma) \} F_{BTX, 2} + F_{BTX, in} \quad (38-2)$$

$$F_{CH_4, 1} = \{ \gamma / (1 + \gamma) \} F_{CH_4, 2} + F_{CH_4, in} + F_{CH_4, c} \quad (38-3)$$

$$F_{H_2, 1} = \{ \gamma / (1 + \gamma) \} F_{H_2, 2} + F_{H_2, in} + F_{H_2, c} \quad (38-4)$$

$$F_{CO, 1} = \{ \gamma / (1 + \gamma) \} F_{CO, 2} + F_{CO, in} + F_{CO, c} \quad (38-5)$$

$$F_{CO_2, 1} = \{ \gamma / (1 + \gamma) \} F_{CO_2, 2} + F_{CO_2, in} \quad (38-6)$$

$$F_{H_2O, 1} = \{ \gamma / (1 + \gamma) \} F_{H_2O, 2} + F_{H_2O, in} \quad (38-7)$$

また、生成物流れの各成分の物質質量流量 $F_{j, p}$ は出口流れ (2) のそれぞれの物質質量流量 $F_{j, 2}$ と次式で関係付けられる。

$$F_{j, p} = \{ 1 / (1 + \gamma) \} F_{j, 2} \quad (39)$$

ホ. 2 段目反応器内のガス滞留時間

2 段目反応器内のガス滞留時間 τ_2 を次式で定義する。

$$\tau_2 = V_r / (v_{in} + v_c) \quad (40)$$

これは、反応器入口における体積流量を用いて便宜的に滞留時間を定義したものである。

CSTR、PFRの場合は $v_1 = v_{in} + v_c$ であり、 $\tau_2 = \tau_1$ の関係が、リサイクル流れ反応器で近似する場合は $\tau_2 = (1 + \gamma) \tau_1$ の関係が成立する。

以上で、反応器設計に必要な関係式が全て導出された。

ト. 計算の手順

① τ_1 を与えると、PFRとリサイクル反応器の場合は式(27)、(28)より、CSTRの場合は(35)、(36)より、 $F_{oil, 2}$ と $F_{BTX, 2}$ が $F_{oil, 1}$ と $F_{BTX, 1}$ で表される。PFRとCSTRでは、 $F_{oil, 2}$ と $F_{BTX, 2}$ はそれぞれ $F_{oil, P}$ と $F_{BTX, P}$ に等しく、 $F_{oil, 1}$ と $F_{BTX, 1}$ はそれぞれ $F_{oil, in}$ と $F_{BTX, in}$ (両者は既知) に等しい。リサイクル反応器では、さらに式(38-1)、(38-2)の関係を用いると、 $F_{oil, 2}$ と $F_{BTX, 2}$ が $F_{oil, in}$ と $F_{BTX, in}$ で表現できる。また、式(39)より $F_{oil, 2}$ と $F_{BTX, 2}$ は $F_{oil, P}$ と $F_{BTX, P}$ に関係づけられる。この結果、いずれの場合も $F_{oil, 2}$ と $F_{BTX, 2}$ が既知量で表される。(註: τ_1 の代わりに、たとえば Oil の反応率 $= 1 - F_{oil, P} / F_{oil, in}$ 等を与えてもよい)

② ①で得られた関係式(17)～(19)に代入すると ξ_1 、 ξ_2 、 ξ_3 が得られる。

③ ξ_1 、 ξ_2 、 ξ_3 を式(20)～(23)に代入すれば $F_{CH_4, c}$ 、 $F_{H_2, c}$ 、 $F_{CO, c}$ が得られる。

④ ξ_1 、 ξ_2 、 ξ_3 と上で得られた値を式(16-3)～(16-5)に代入し、式(38-3)～(38-5)と連立させて解くと、 $F_{CH_4, P}$ 、 $F_{H_2, P}$ 、 $F_{CO, P}$ が得られる。 $F_{CO_2, P}$ 、 $F_{H_2O, P}$ は式(16-6)、(16-7)、(38-6)、(38-7)より得られる。この結果、生成物流の全ての成分の物質量が計算できる。

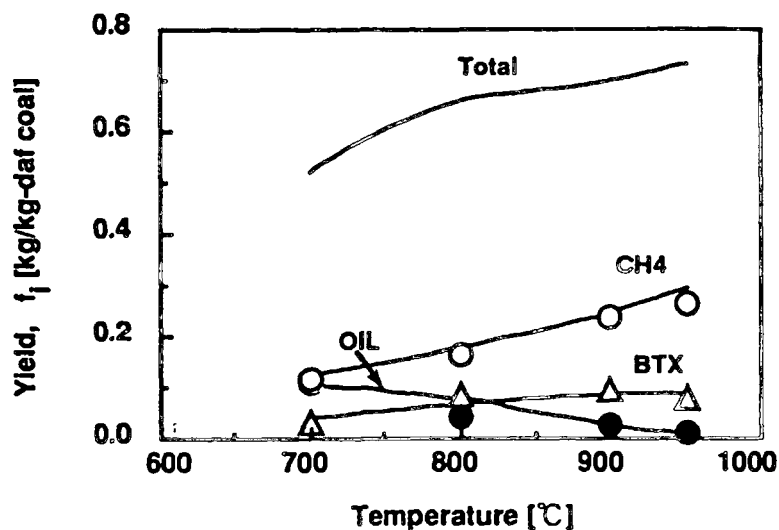
⑤ 式(24)、(37)より V_r を、式(40)より τ_2 を計算する。

なお、上で得られた値の中で、 τ_2 、 $y_{i, P}$ は処理量に依存しないが、他の諸量 F 、 G 、 V_r は処理量に比例する点に留意する必要がある。

(4) シミュレーションモデルの太平洋炭以外の石炭への適用性

第2.5-4 表に、東京ガスにおいて $30\text{kg}/\text{cm}^2$ の水素圧下で実施されたロイヤン炭の水添ガ

ス化実験の結果を示す。本結果と提案したモデルによる計算値の比較を第2.5-3 図に示す。計算に際しては、 f_i^* の値は第2.5-3 表に示した値を用いた。その他のパラメータは太平洋炭について決定した値をそのまま用いた。実測値と計算線は全温度域で良好に一致しており、提案した反応シミュレーションモデルは有効であると言える。この結



第2.5-3 図 実測値とシミュレーション結果の比較
(ロイヤン炭、○●△：実測値、実線：計算値)

果から、本モデルは f_i^* の値のみが与えられれば他の石炭への適用も可能と考えられる。

第2.5-4 表 東京ガス水添ガス化テスト結果 (ロイヤン炭)

反応温度 [°C]	700	800	900	950
反応圧力 [kg/cm ² -G]	30	30	30	30
滞留時間 [s]	10.3	10.6	10.9	10.2
水素・石炭 [mol/g]	0.15	0.14	0.13	0.14
生成物 [質量%]	上段：炭素転化率、(下段)：daf coal基準			
CH ₄	6.1 (5.5)	12.2 (11.1)	25.6 (23.2)	28.9 (26.2)
C ₂ H ₆	5.6 (4.8)	5.9 (5.0)	0.3 (0.3)	0.2 (0.2)
C ₃ H ₈ +	1.8 (1.5)	tr	tr	tr
Benzene	2.7 (2.0)	10.8 (8.0)	13.0 (9.6)	10.6 (7.8)
Toluene	1.4 (1.0)	0.3 (0.2)	tr	tr
non-BTXliqp. (Oil)	15.5 (11.3)	6.0 (4.4)	3.9 (2.8)	1.5 (1.1)
CO	6.4 (10.2)	8.6 (13.7)	12.2 (19.4)	13.0 (20.7)
CO ₂	3.7 (9.2)	2.8 (7.0)	1.5 (3.7)	1.2 (3.0)
Total	43.2	46.6	56.5	55.4
H ₂ O収率を除いたTotal	45.5	49.4	59.9	59.0

(5) 1 段目反応器の滞留時間、ならびに 2 段目の反応器の混合状態が B T X 収率に与える影響

太平洋炭を想定して、第 2 段目反応器出口における B T X 収率に対する諸操作条件の影響を検討した。計算に採用した操作条件、諸パラメータを以下に示す。

① 操作条件：

[固定した値]

・全圧 $P_t = 70 \text{ atm}$ 、・1 段目生成物温度 $T_{i0} = 900^\circ\text{C}$ 、・冷却用ガス温度 $T_c = 35^\circ\text{C}$

[変化させた値]

・1 段目の反応器の滞留時間 $\tau_1 = 0.2$ 、 0.5 、 1.0 、 1.81 s

これに伴い $F_{j,1}$ (1 段目の反応器出口の値) が変化する。1 段目の反応器のシミュレーションより、石炭 $1 \text{ kg}(\text{daf 基準})$ 当りの各成分の生成量、同伴量が第 2.5-5 表のように得られた。

・循環比 $\gamma = 0$ (PFR)、 2 、 10 、 ∞ (CSTR)

・反応器温度 $T_P = 750$ 、 800 、 850°C

第 2.5-5 表 1 段目反応器出口収率 f_j ($\text{kg}/\text{kg-daf coal}$) の計算例

τ_1 [s]	CO	CO ₂	H ₂ O	CH ₄	BTX	Oil	H ₂	Char	Ash
0.2	0.081	0.007	0.120	0.273	0.055	0.145	0.196	0.323	0.130
0.5	0.107	0.009	0.122	0.277	0.068	0.122	0.193	0.302	0.130
1.0	0.114	0.010	0.121	0.284	0.082	0.099	0.190	0.300	0.130
1.81	0.116	0.010	0.121	0.299	0.094	0.073	0.184	0.303	0.130

② 反応速度パラメーター

$$k_1 + k_3 = 1.22 \times 10^4 (P_{H_2})^{1.48} e^{-154,000/RT} \text{ s}^{-1}$$

$$k_3 = 5.96 \times 10^4 (P_{H_2})^{0.84} e^{-154,000/RT} \text{ s}^{-1}$$

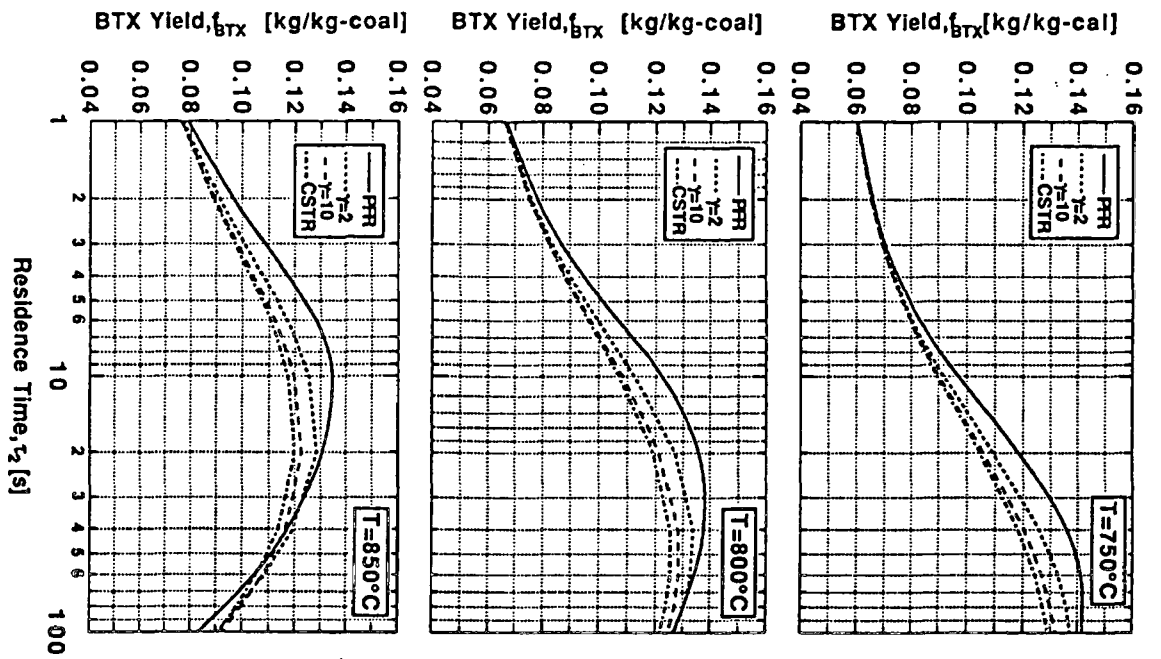
$$k_2 = 9.75 \times 10^9 e^{-263,000/RT} \text{ s}^{-1}$$

ただし、 T は絶対温度 [K]、 R はガス定数 ($= 8.314 \text{ J}/(\text{mol} \cdot \text{K})$) である。

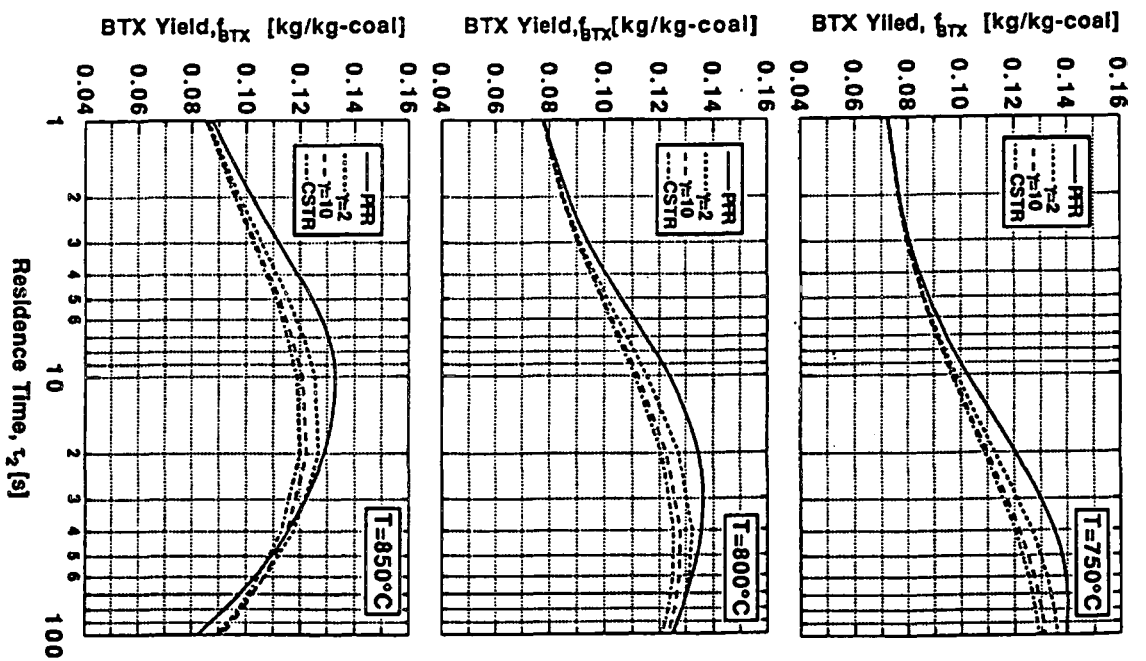
③ 計算基準

石炭供給速度 $= 1 \text{ kg-daf coal}/\text{s}$ (1 段目反応器入口)

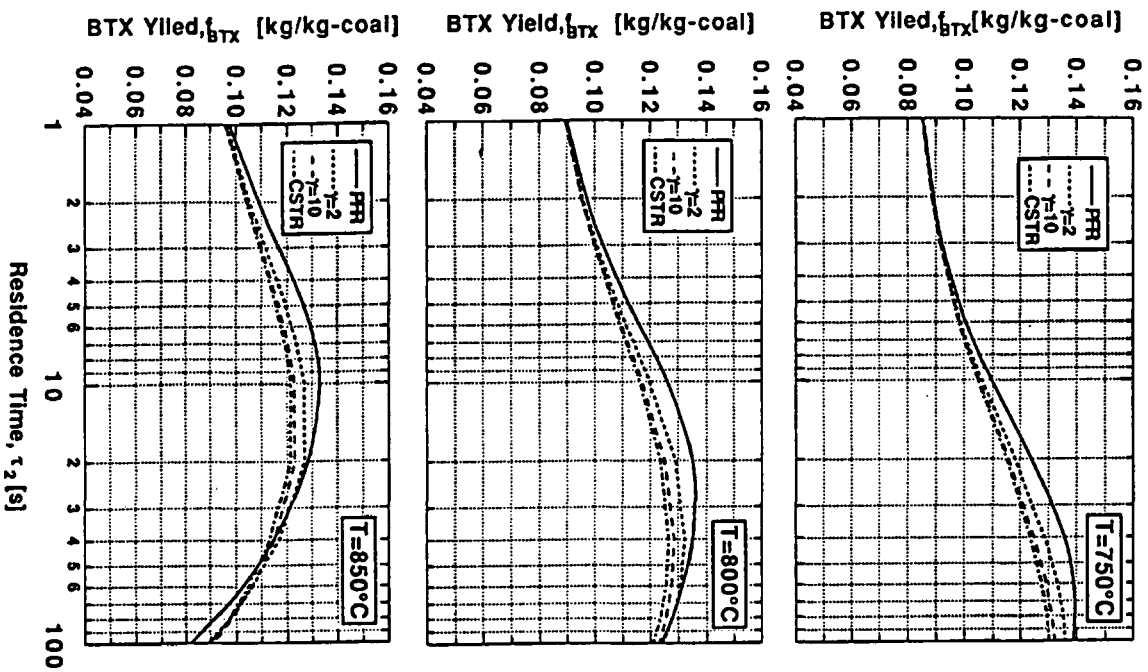
石炭 1 日当り処理量 (乾量基準) $= 1.130 \times 3,600 \times 24 / 1,000 = 97.6 \text{ ton/day}$ 、すなわち、概略 100 ton/day の処理量を想定している。



第2.5-4 図 B T X 収率に対する 1 段目の反応器内
滞留時間 τ_1 と 2 段目反応器の混合状
態の影響 ($\tau_1 = 0.2 \text{ s}$)



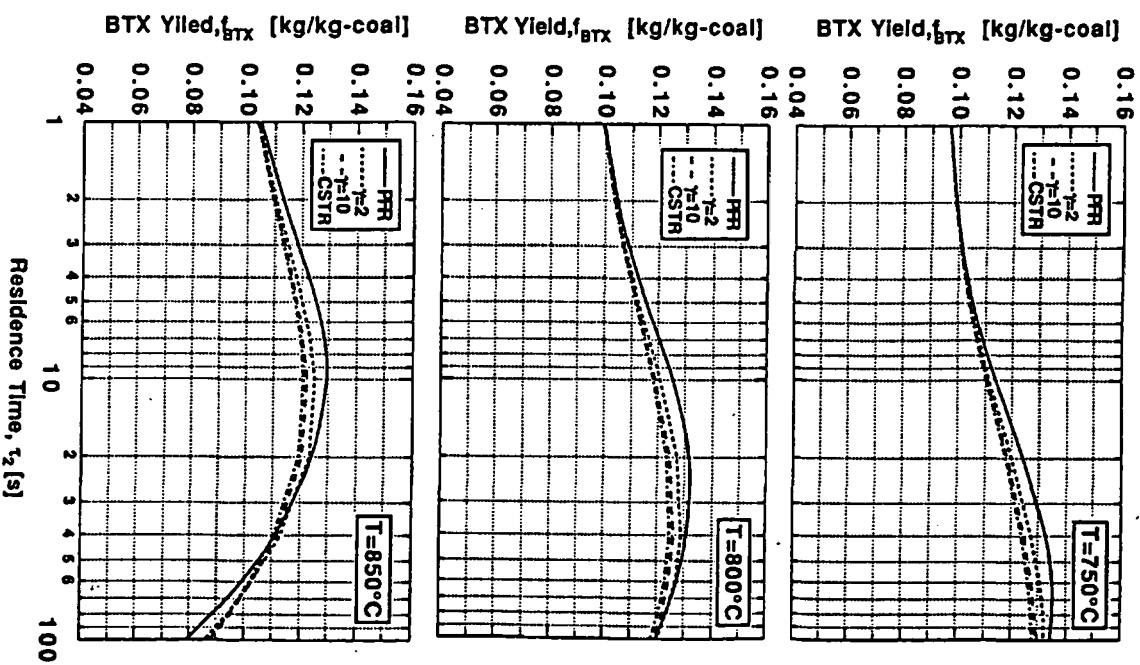
第2.5-5 図 B T X 収率に対する 1 段目の反応器内
滞留時間 τ_1 と 2 段目反応器の混合状
態の影響 ($\tau_1 = 0.5 \text{ s}$)



第2.5-6 図 BTX収率に対する1段目の反応器内

滞留時間 τ_1 と2段目反応器の混合状

態の影響 ($\tau_1 = 1\text{ s}$)



第2.5-7 図 BTX収率に対する1段目の反応器内

滞留時間 τ_1 と2段目反応器の混合状

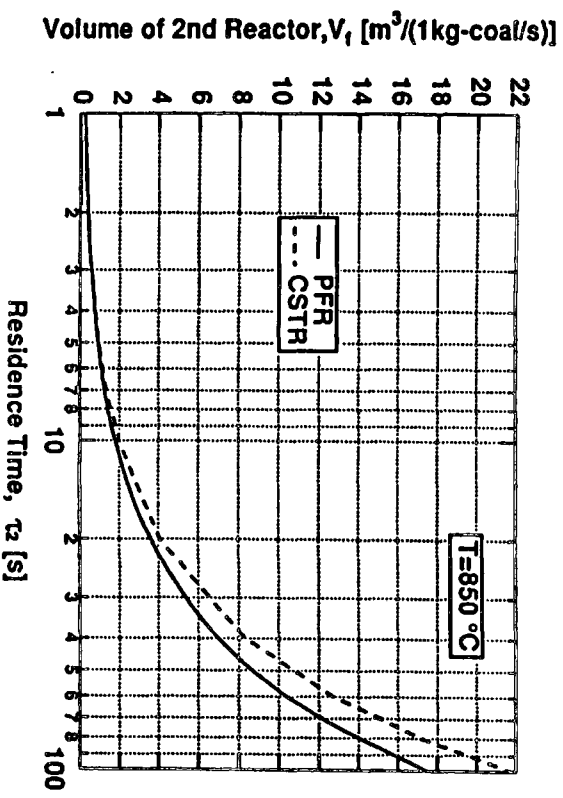
態の影響 ($\tau_1 = 1.81\text{ s}$)

④ 計算結果

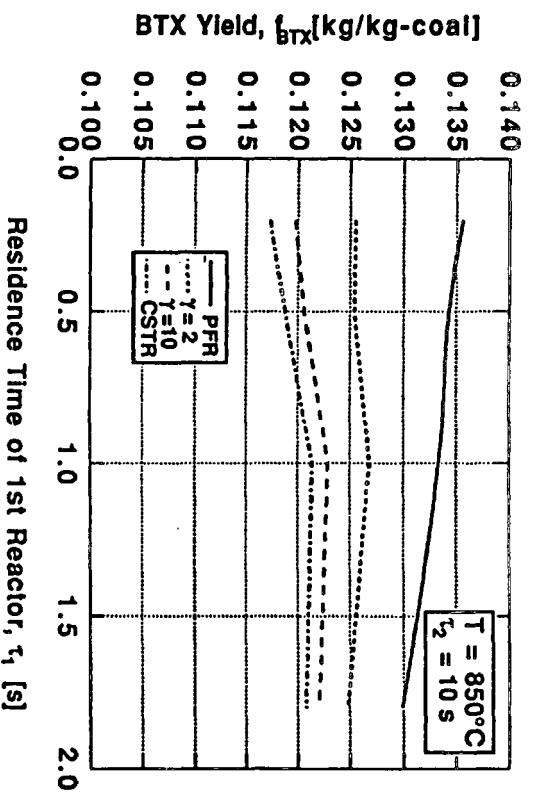
第2.5-4 図～第2.5-7 図に、1 段目の反応器内の滞留時間 $\tau_1 = 0.2$ 、 0.5 、 1.0 、 1.81 s について、2 段目の反応器出口での生成 B T X 量 $f_{\text{BTX}, P}$ と滞留時間 τ_2 の関係を示す。いずれの温度 T_P 、またいずれの循環比 γ でも、滞留時間 τ_2 の増加とともに B T X 収率は増加し、極大値をとった後減少する傾向にある。極大値は、1 段目の反応器内の滞留時間 τ_1 が小さいほど、温度が低いほど、また循環比が小さいほど大きくなる傾向を示す。極大値を与える τ_2 は循環比 γ が小さいほど小さくなる。

第2.5-8 図に2 段目の反応器容積 V 、と τ_2 の関係の一例として、 $\tau_1 = 0.5$ s、 $T_P = 850$ °C の結果を示す。本計算条件の範囲内では V 、と τ_2 の関係は操作条件の影響をあまり受けないので、第2.5-8 図の結果を使用して V 、と τ_2 の関係を議論できる。当然のことながら、 V 、が大きくなりすぎるのは好ましくない。いま $V_1 = 2 \text{ m}^3 / (100 \text{ ton-coal/day})$ 程度を想定すると、 $\tau_2 = 10$ s 程度の操作が望ましいと言える。

第2.5-4 図～第2.5-7 図から、 $\tau_2 = 10$ s 程度で B T X 収率が最大となるのは $T_P = 850$ °C の場合である。そこで、 $T_P = 850$ °C、 τ_2



第2.5-8 図 2 段目反応器の容積 V_1 と滞留時間 τ_2 の関係の一例 ($\tau_1 = 0.5$ s、 $T_P = 850$ °C)



第2.5-9 図 B T X 収率に対する 1 段目の反応器内滞留時間 τ_1 の影響 ($\tau_2 = 10$ s、 $T_P = 850$ °C)

=10 s に固定して1段目の反応器内の滞留時間 τ_1 が B T X 収率に及ぼす影響を検討してみた。その結果を第2.5-9 図に示す。C S T R、循環比 $\gamma = 2$ 、10の場合は τ_2 の増加につれて $f_{\text{BTX}, P}$ は増加したが、P F Rの場合には逆に減少した。しかし、いずれの混合状態でも τ_1 の影響はあまり大きくなく、 $\tau_1 = 0.2 \sim 1.81 \text{ s}$ と変化させても $f_{\text{BTX}, P}$ は最大でも 0.005 kg/kg-coal 程度しか変化しない。むしろ、反応器の混合状態の影響が大きく、P F RとC S T Rでは $f_{\text{BTX}, P}$ は最大で 0.02 kg/kg-coal 近くも異なる。P F Rとした場合は、 $\tau_1 = 0.2 \sim 1.81 \text{ s}$ の範囲で $f_{\text{BTX}, P} > 0.13 \text{ kg/kg-coal}$ となる。

(6) まとめ

- ① 太平洋炭について導出したシミュレーション法によってロイヤン炭に対しても適用できた。このことから、各成分の究極生成可能量 f_i^* の値のみを石炭固有の値に変更すれば本シミュレーション法は多くの石炭に適用可能であることが示唆された。
- ② シミュレーションにより諸操作条件が B T X 収率 $f_{\text{BTX}, P}$ に及ぼす影響を検討した結果は以下のように要約される。

- ・ 1 段目反応器の滞留時間 τ_1 の影響は小さく、 $\tau_1 = 0.2 \sim 1.81 \text{ s}$ の範囲では $f_{\text{BTX}, P} > 0.12 \text{ kg/kg-coal}$ が達成できる。
- ・ 2 段目反応器の温度 T_P が低くなるにつれて $f_{\text{BTX}, P}$ のが最大値をとる 2 段目反応器滞留時間 τ_2 は大きくなるが、最大値には大差なく、 $f_{\text{BTX}, P} > 0.12 \text{ kg/kg-coal}$ を達成できる。 $\tau_2 = 10 \text{ s}$ 程度での操作を想定すると、 $T_P = 850^\circ\text{C}$ 程度に設定すべきであろう。
- ・ $f_{\text{BTX}, P}$ の値に最も大きな影響を及ぼすのは 2 段目反応器の混合状態である。押し出し流れ (P F R) と完全混合流れ (C S T R) では、 $f_{\text{BTX}, P}$ の値に最大 0.02 kg/kg-coal もの差が生じる。2 段目反応器をできるだけ P F R に近い状態で操作する工夫が必要であろう。

これらの結果はあくまでもシミュレーションによる予測である。シミュレーションには多くの仮定、近似を採用している。まず、反応圧力 30 kg/cm^2 以下で推定した速度パラメータが 70 kg/cm^2 でも用い得ることを前提としている。さらに、いったん高温に晒された Oil 分が低温に冷却されたときにも、高温の結果から予測される速度で分解すると仮定している。また、2 段目反応器ではチャーの反応を無視している。A R C H プロセスの性能を精度良く予測するためには、基礎的な実験データを蓄積するとともに、上述の問題点を明確

にしてシミュレーションの精度をあげて行く必要があるであろう。

文 献

- 1) Suuberg, E.M., Peters, W.A., Howard, J.B., I&EC Process Des.Dev., 17, 37 (1978).
- 2) Solomon, P.R., Hamblen, D.G., Carangelo, R.M., Serio, M.A., Deshpande, G.V., Energy & Fuels, 2, 405 (1988).
- 3) Falk, A.Y., Schuman, M.D. and Kahn, D.R., USA DOE Report AI-DOE-13536(1986).
- 4) Nelson, P.F and Huttinger, K.J., Fuel, 65, 354(1986).

2. 6 レーザーシート法による反応器内流れの解析

2. 6. 1 概 要

A R C H反応器の特徴であるドラフトチューブの効果を定量的に把握することはスケールアップにおいて極めて重要である。とくに、ドラフトチューブにより生成チャーがリサイクルされるものとすれば、（従来の理解ではチャーは完全に分離されとしているようであるが）チャーのもつ熱容量により、バーナー部の熱分解環境が、火炎が安定化する方向へ大幅に改善されている可能性がある。しかし、本法のような下向高压混相・反応性ジェットの吹込みを伴うドラフト管付高压反応器内固気混相流れについては、既往の知見が全くないばかりか、既存の数値流体力学計算コードも直接的には適用できないと考えられる。高压実機内流れを最大限再現しうる相似則のもとにスケールダウンしたコールドモデルテストにより固気混相流れの知見を得ることが当面最も有力な手段と考えられる。

本年度は昨年度に検討した固気混相流れの可視化法であるレーザーシート法をさらに発展させて、その基礎データを充実させる一方、混相流の相似則に基づいて、石炭処理量 2,000 t/d の A R C H 反応器実機をスケールダウンしたコールドモデルを設計、製作し、インジェクター部近傍の流れの可視化、解析を開始した。

本報告書では、高速度ビデオカメラと高輝度レーザー光源により得られた固気混相流の可視化像とその画像補正の方法論と、コールドモデルテストの初歩的な結果について述べる。

2. 6. 2 レーザーシート法における高速度ビデオ画像とその補正についての検討

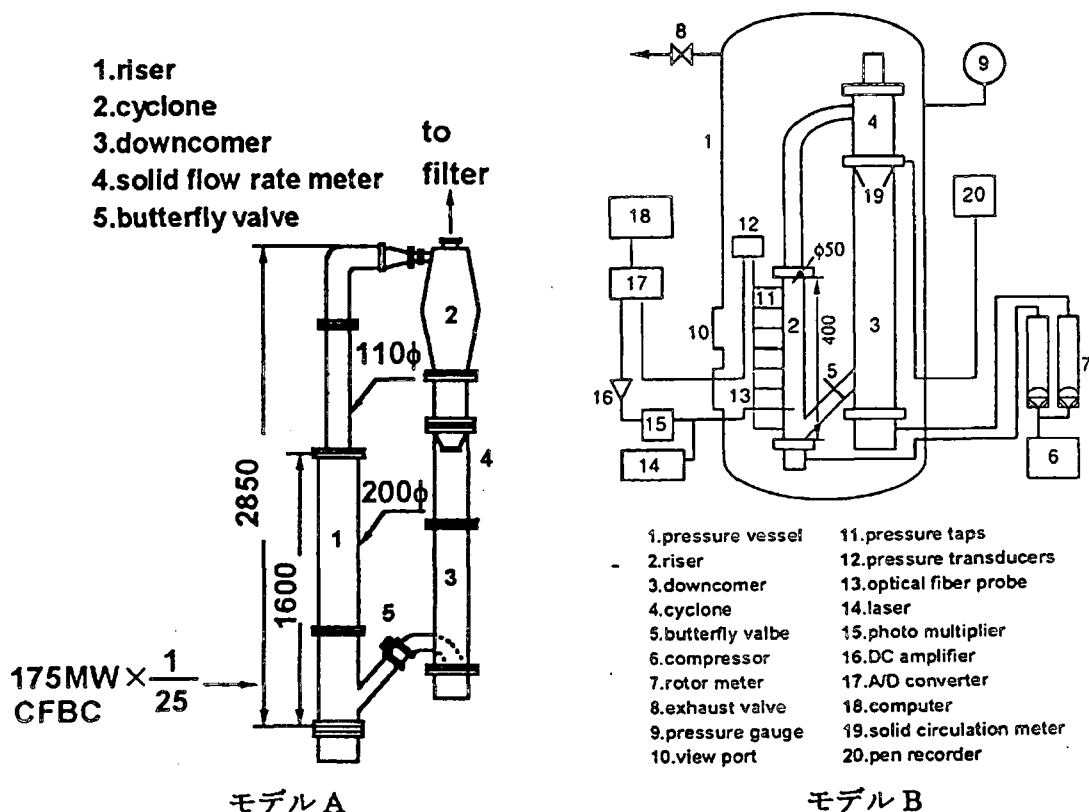
(1) 目 的

A R C H 反応器コールドモデルの可視化に先立ち、循環流動層小型コールドモデルを用いて、その内部の固気混相流を可視化し、定量的なレーザーシート法の確立を目指すこととした。

(2) 実験装置と方法

第2.6-1 図に実験装置を示す。常圧下の撮影には循環流動層モデルAを使用した。モデルAはライザー部の内径が $\phi 200$ mm、高さ 1.6m のアクリル樹脂製の常温模型である。粒子には、F C C 粒子（平均粒径 $61.3\mu\text{m}$ 、粒子密度 $1,780\text{kg}/\text{m}^3$ ）を、流動化ガスには常温の空気を使用した。また、加圧下の撮影には循環流動層モデルBを使用した。モデルB

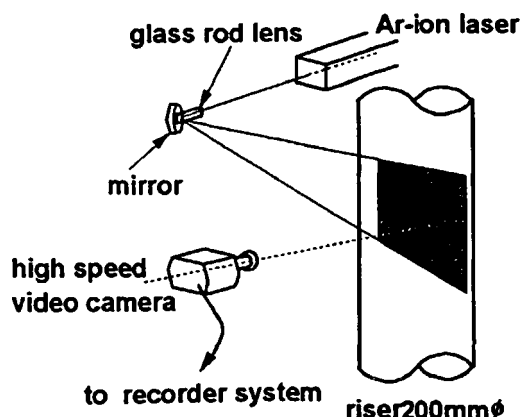
はライザー部の内径が $\phi 50\text{mm}$ 、高さ 0.4mの亚克力樹脂製の常温模型である。粒子には、FCC粒子（平均粒径 $46.4\mu\text{m}$ 、粒子密度 $1,780\text{kg}/\text{m}^3$ ）を、流動化ガスには常温の空気を使用した。両モデルは循環流動層燃焼ボイラー実機の $1/25$ 、及び $1/100$ の寸法で実機内の流れを再現できるよう設計されている。また静電気による粒子のライザー管壁への付着を防ぐためにCFBライザー内壁にセロテープを貼った。



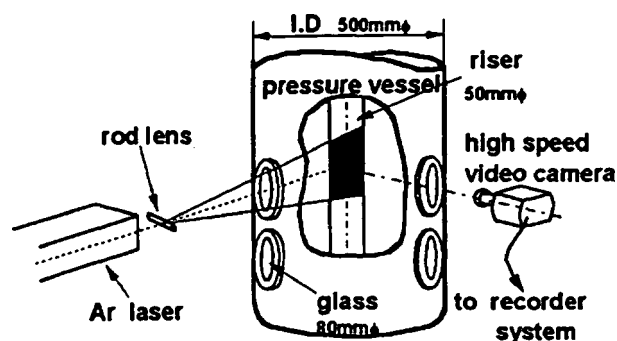
第2.6-1 図 循環流動層コールドモデル装置概念図

撮影システムの概念図を第2.6-2 図に示す。光源にはAr-ionレーザー（発振出力：4 W、波長：multiline、最高出力波長：514.5nm、タイプ：2011、SPECTRA-PHYSICS社製）を用い、直径4mmのガラスロッドレンズを用いてシート光を形成した。撮影は、高速度ビデオカメラ（撮影速度：500、1000、2000コマ/秒、シャッタースピード： $1/500 - 1/24,000$ 秒、nac社製）を用いた。モデルAでは、ガス流速は $0.6 - 1.3\text{ m/s}$ （高速流動化開始速度は 1 m/s ）とし、ライザー下部に濃厚な層は形成させなかった。撮影高さは画像中央で分散板から 800mm程度とした。モデルBでは、ガス流速は $0.30 - 0.70\text{ m/s}$ 、圧力は 0.1MPa 、及び 0.35MPa 、撮影高さは画面中央で分散板から 350mmで

ある。



モデル A



モデル B

第2.6-2 図 実験概念図

(3) 可視化画像の例

レーザーシート法により得られた画像の一例を第2.6-3 図に示す。(a)、(b)はモデルAにより得られた画像、(c)、(d)はモデルBで得られた画像である。図中白く見えるのが粒子の濃厚な部分である。常圧の場合(a, b, c)、粒子群の骨格構造はかなり複雑で、粒子群が単独で存在しているのではなく、近傍の粒子群とつながって存在している様子が観察された。またライザー内の水平断面の画像(b)で観察される粒子群の渦は、ライザー内3次元場の流れの複雑さを象徴している。Tsukada ら(Canadian Journal of Chemical Engineering, 1995, 投稿中)は、この粒子群の3次元構造の初歩的知見を得た。

(4) 画像補正の必要性

レーザーシート法は、循環流動層の粒子サスペンションの構造に関する情報を得る手段として有力である。しかし、画像の明るさが定量的に問題になる場合には1. レーザーシート光の広がりによる光の減衰、の効果の補正が必要である。さらに、より濃厚な粒子群を可視化した場合には、2. 粒子群によるレーザーシート光の減衰・遮光効果、3. レーザーシート面とビデオカメラの間に存在する粒子群による掩蔽効果、4. レーザーシート面からの反射光による他の粒子群の像形成効果 — 以下、2, 3, 4を遮光(sheltering)、掩蔽(occluding)、二次反射(secondary reflection)の効果と呼ぶ — を補正した画像解析が必要であると考えられる。今後、以上の問題に解答を出し、画像解析コードの開発

2. 6. 3 ARCH反応器内流れの解明

(1) 混相流の相似則と水添ガス化装置への適用法

混相流の相似条件としては、循環流動層についての相似則¹⁾を拡張したものを用いた。ガス空塔速度、粒子空塔速度、粒子終末速度、粒子・ガス密度比についての必要条件は以下のように与えられている。

$$u_0 = m^{1/2} u_0^{\circ} \quad (1)$$

$$v_0 = m^{1/2} v_0^{\circ} \quad (2)$$

$$u_t = m^{1/2} u_t^{\circ} \quad (3)$$

$$\rho_p / \rho_g = (\rho_p / \rho_g)^{\circ} \quad (4)$$

ただし、 m ：スケール比、 u_0 ：ガス空塔速度、 u_t ：終末速度、 v_0 ：粒子空塔速度、 ρ_g ：ガス密度、 ρ_p ：粒子密度、 $^{\circ}$ 印は基準となる装置を示す。

式(2) から粒子循環流束 G_s についての必要条件が以下のように得られる。

$$G_s = m^{1/2} (\rho_p / \rho_p^{\circ}) G_s^{\circ} \quad (5)$$

使用する粒子の粒径については、式(3) の必要条件を満たす粒径を逆算することによって求めることができる。

水添ガス化反応器内では石炭は供給後、即座に熱分解してチャーになるため、コールドモデルではチャー粒子の挙動を模擬することになる。またドラフトチューブ内は生成する混合ガスで満たされると考えられる。よってガス空塔速度 u_0 を水添ガス化装置のドラフトチューブ内の混合ガス空塔速度に u_D に、粒子循環流束 G_s をドラフトチューブ内で生成するチャー生成流束 G_{char} に拡張して水添ガス化装置に適用する。

(2) 装置内の流速の推算法

ARCH反応器の操作条件を以下に示す手順により算出し、反応器内アニュラス部での流れのフローレジームの判定を粒子終末速度 u_t および循環流動層ライザーのフローレジームの判別に使われてきた乱流流動化開始速度 u_{lr} 、高速流動化開始速度 u_{hr} を用いて行った。

a. チャー生成速度

ドラフトチューブ断面積当りのチャー生成速度 G_{char} は、ドラフトチューブ単位断面積基準の石炭供給流束 G_{coal} にチャー生成率 x_{char} を掛けることにより算出できる。

$$G_{char} = G_{coal} \times x_{char} \quad (6)$$

b. ドラフトチューブ内の混合ガス空塔速度

次に、水素／石炭比 (kg/kg-daf) から水素収支に基づいてドラフトチューブ内の混合ガスの空塔速度 u_D を試算する。 u_D はドラフトチューブ単位断面積基準の混合ガスの質量流束 G_g をガス密度 ρ_g で割って以下のように書ける。

$$u_D = G_g / \rho_g \quad (7)$$

G_g は水素収支より次のように書ける。

$$G_g = (G_{H_2} + G_{coal} \times (\text{石炭中のH原子の質量分率}) \times X_{H, vol} + G_{rec}) / (\text{混合ガス中のH原子の質量分率}) \quad (8)$$

ただし、 $X_{H, vol}$ は水素の揮発率である。また、 G_{rec} はドラフトチューブとアニュラス部の間を循環するガスのドラフトチューブ単位断面積基準の質量流束である。

ドラフトチューブ単位断面積基準の水素供給流束 G_{H_2} (kg/m²s) は、以下の式から計算できる。

$$G_{H_2} = G_{coal} \times (\text{揮発分} + \text{固定炭素分}) \text{の質量分率} \times (\text{水素／石炭比}) \quad (9)$$

また水素の揮発率 $X_{H, vol}$ は次のようにして求められる。

$$\begin{aligned} X_{H, vol} &= 1 - \text{チャー中の水素残存率} \\ &= 1 - (\text{チャー中の水素の質量}) / (\text{石炭中の水素の質量}) \end{aligned} \quad (10)$$

c. インジェクターノズルのガス空塔速度

4本のインジェクションノズルのガス空塔速度 u_{in} はドラフトチューブ単位断面積基準の水素供給流束 G_{H_2} 、およびドラフトチューブ単位断面積基準の酸素供給流束 G_o から以下のようにして算出される。

$$\begin{aligned} u_{in} &= (1/4) \times (G_{H_2} / \rho_{H_2} + G_o / \rho_o) \\ &\quad \times \pi (D_i / 2)^2 / \pi (d_n / 2)^2 \end{aligned} \quad (11)$$

ただし、 ρ_{H_2} は水素の密度 ρ_o は酸素密度である。また、 G_o は酸素比を用いて次のように求められる。

$$G_o = G_{H_2} / M_{H_2} \times \text{酸素比} \times M_o \quad (12)$$

ただし、 M_{H_2} は水素の分子量、 M_o は酸素の原子量である。

以上によりドラフトチューブ内の流速等が決まった。ガスの抜出し口がアニュラス部上部にあるとすればガスは全量上昇しなければならない。したがってアニュラス部のガス流速 u_A は次式で計算できる。

$$u_A = (A_D / A_A) u_D \quad (13)$$

ただし、 A_D 、 A_A はそれぞれドラフトチューブ断面積、アニュラス部断面積である。

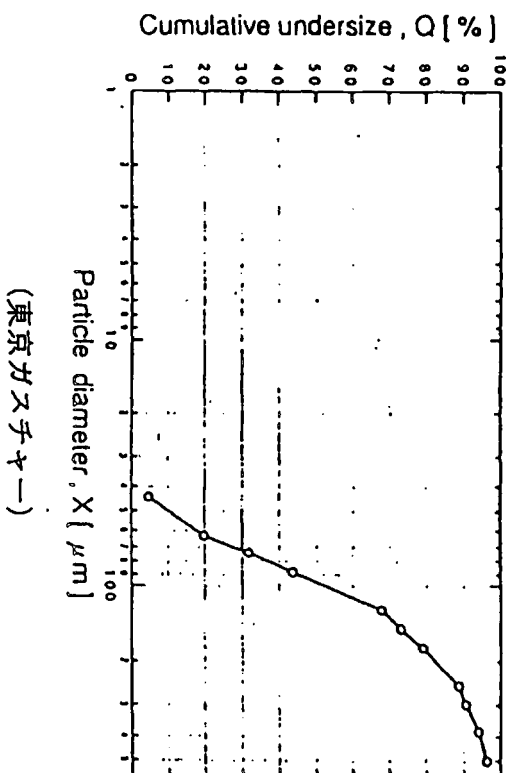
(3) 想定するARCH反応器の操作条件

第2.6-1 表に操作条件および計算結果を一括して示す。また、チャー粒子径分布を第2.6-4 図に示す。チャーは広い粒径分布を持つ。ドラフトチューブの内径は、圧力容器の限界を考慮して 2.5~4.0 mとした。また、ドラフトチューブ断面積とアニュラス部断面積比 $A_D / A_A = 1.0$ であるとした。このときアニュラス部のガス空塔速度 u_A は u_D に等しい。石炭処理量 W_{coal} は 2,000 t-dry/d (平成3年度報告書p.108)とした。また、使用する原料石炭は太平洋炭とし、原炭および生成するチャーの物性値およびチャー生成量は、平成4年度報告書p.78およびp.91に示されているものを使用した。水素/石炭比 (kg/kg-daf) は、前述した石炭の物性値と同様に平成4年度報告書p.91から引用した。本計算の要点の一つである混合ガス中のそれぞれの成分の組成は、平成5年度報告書p.48によれば、 $H_2 = 66.4\text{mol}\%$ 、 $CH_4 = 19.9\text{mol}\%$ 、 $CO = 3.8\text{mol}\%$ 、 $H_2O = 9.9\text{mol}\%$ である。

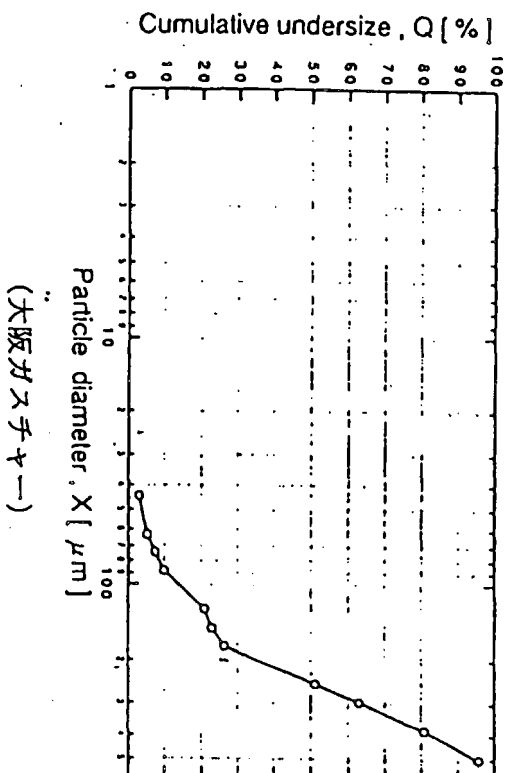
また、混合ガス中の水素原子の質量分率は

$$\begin{aligned} &= ((0.664 \times 2 + 0.199 \times 4 + 0.099 \times 2) \times 1.008) \\ &\quad / (0.664 \times 2.01 + 0.199 \times 16.02 + 0.038 \times 28 + 0.099 \times 18.01) \quad \text{より、} \\ &0.318(\text{kg/kg}) \text{ である。} \end{aligned}$$

また今回の結果は、循環流 $G_{rec} = 0$ と仮定した。実際には循環流が存在するため、 u_D の値は得られた結果よりさらに大きくなると考えられる。



(東京ガスチャー)



(大阪ガスチャー)

第2.6-4 図 チャー粒子の粒径分布 (ふるい分け法)
(平成5年度委託業務報告書 p.132[用])

第2.6-1 表 実機の操作条件

太平洋炭の分析値 (平成4年度報告書p.78引用)								
工業分析 (dry)			元祖分析 (d. a. f)					
灰分	揮発分	固定炭素分	C	H	N	S	O	C l
13.8	46.32	39.88	70.09	4.6	1.7	0.6	9.08	0.03
チャーの性状 (平成4年度報告書p.91引用)								
C	H	N	S	O	C l	Ash		
64.72	1.12	0.8	0.22	3.07	0	30.05		
チャー生成時の反応条件 (平成4年度報告書p.91引用)								
温度 (℃)	圧力 (km/cm ² , g)	水素／石炭比 (DAF, wt比)	反応時間 (s)	石炭供給量 (DRY, kg/h)	チャー生成量 (DRY, kg/h)			
880	70	0.2	10	2104.1	956.8			
実機の操作条件								
P (MPa)	3.5				7.0			
D _t (m)	2.5	3.0	3.5	4.0	2.5	3.0	3.5	4.0
D _A (m)(肉厚無視)	3.5	4.2	5.0	5.7	3.5	4.2	5.0	5.7
d _n (mm)	80				80			
W _{coal} (t-dry/d)	2000 (平成3年度報告書p.108)				2000			
G _{coal} (kg-dry/m ² s)	4.72	3.28	2.41	1.84	4.72	3.28	2.41	1.84
X _{char} (-)	0.455				0.455			
W _{char} (kg-dry/s)	10.6				10.6			
G _{char} (kg-dry/m ² s)	2.15	1.49	1.09	0.84	2.15	1.49	1.09	0.84
H ₂ /coal (kg/kg-daf)	0.2				0.2			
O／H ₂ (mol/mol)	0.15				0.15			
G _{H2} (kg/m ² s)	0.81	0.56	0.42	0.32	0.81	0.56	0.42	0.32
G _O (kg/m ² s)	0.97	0.67	0.50	0.38	0.97	0.67	0.50	0.38
G _S (kg/m ² s)	3.17	2.20	1.62	1.24	3.17	2.20	1.62	1.24
X _{H₂ vol} (-)	0.889				0.889			
u _D (m/s)	1.19	0.82	0.61	0.46	0.59	0.41	0.30	0.23
u _{in} (m/s)	235				117			
ρ _g (kg/m ³)	2.677 (平成5年度報告書p.48)				5.355			
μ _g (kg/ms)	3.72×10 ⁵ (平成5年度報告書p.48)				3.72×10 ⁵			
ρ _{char} (kg/m ³)	910 (平成5委託業務報告書p.134)				910			
ρ _{H2} (kg/m ³)	0.98				1.97			
ρ _O (kg/m ³)	7.82				15.6			
C _{D, g} (kJ/kgK)	4.8 (900℃)				4.8 (900℃)			
C _{D, char} (kJ/kgK)	2.6 (900℃)				2.6 (900℃)			

(4) フローレジムの判定

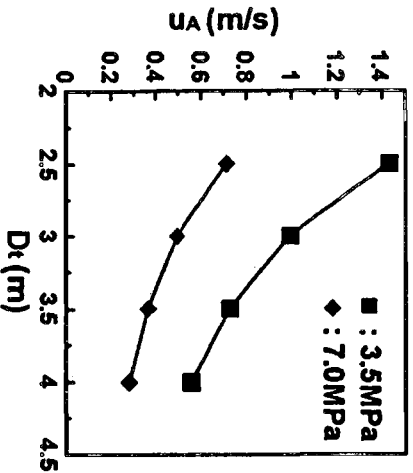
ドラフトチューブの内径を変化させたときの u_A の変化を第2.6-5 図に示す。次に、第2.6-4 図に示したチャー粒子の広い粒径分布を考慮し、チャー粒子の粒径 d_{char} を50～200 μm に変化させ、3.5、7.0MPaでのそれぞれの粒子の終末速度 u_t 、および、次の堀尾²⁾、塚田ら^{3) 4)} の相関式を用いて乱流流動化開始速度 u_c 、高速流動化開始速度 u_{tr} を計算した結果を第2.6-6 図、第2.6-2 表に示す。

$$u_c = 0.936(\mu/d, \rho_r) A r^{0.472} \quad (14)$$

$$u_{tr} = 1.41((\mu/d, \rho_r) A r^{0.56} \quad (15)$$

$$u_c = u_{c,0}(P/P_0)^{-0.3} \quad (16)$$

$$u_{tr} = u_{tr,0}(P/P_0)^{-0.3} \quad (17)$$

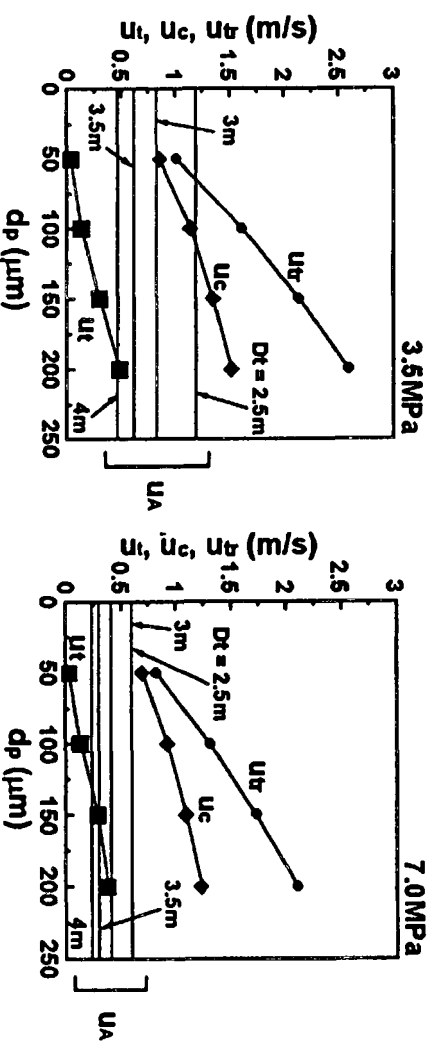


各粒径の u_t 、 u_c 、 u_{tr} と各ドラフトチューブ内の u_A を比較すると3.5MPaの場合、それぞれの u_A は粒径 200 μm のチャー粒子の終末速度 u_t 以上の流速を有している。また、50 μm の粒子についてはドラフトチューブ内径が 2.5、3.0 m の場合、 u_A は高速流動化開始速度 u_{tr} 以上に達することがわかる。

第2.6-5 図 ドラフトチューブ

内径の変化による

u_A の変化



第2.6-6 図 石炭処理量 2,000 t/d の実機のチャー粒子各粒径の u_t 、 u_c 、 u_{tr}

7.0MPaの場合については、ドラフトチューブ内径が4 mのとき、200 μ mの粒子は u_t に達しない。しかし50 μ mの粒子については、ドラフトチューブの内径が2.5mのとき、 u_c 以上になり得る。以上の結果から、アニュラス部を搬送される粒子の量は、想定するドラフトチューブの内径およびチャー粒子の粒径に大きく依存することが推察される。前述したようにチャー粒子は広い粒径分布を持つこと(200 μ m以下のチャー粒子が東京ガスチャーで約80%、大阪ガスチャーで約35%含まれている)、さらにチャー粒子の強度はあまり大きくないので、操作中により細かい粒子の割合が増す可能性が大きいことを踏まえると、ARCH反応器のスケールアップにおいて、アニュラス部への粒子の搬送は検討すべき事項であることが明らかになった。

第2.6-2 表 各粒径のチャー粒子の u_t 、 u_c 、 u_{tr}

P (MPa)	3.5				7.0			
d_{char} (μ m)	50	100	150	200	50	100	150	200
A r (—)	2.2	17.2	58.0	137.4	4.3	34.3	115.6	274.0
u_t (m/s)	0.0332	0.1327	0.2985	0.4832	0.0280	0.1122	0.2525	0.4321
u_c (m/s)	0.8542	1.1397	1.3491	1.5207	0.6934	0.9257	1.0958	1.2351
u_{tr} (m/s)	1.0085	1.6158	2.1287	2.5887	0.8192	1.3124	1.7291	2.1027

(5) 粒子上昇流による熱的効果の推算

アニュラス部への粒子の搬送の有無それぞれの場合について、アニュラス部を単位時間当たり通過するガス、あるいはガス—チャーの熱容量を推算する。

a. アニュラス部を通過するガスおよびガス—チャーの熱容量の比

アニュラス部をガスだけが通過する場合、単位時間当りに通過するガスの熱容量は以下の式で得られる。

$$Q_{p,g} = \rho_g u_A C_{p,g} \quad (18)$$

ただし、 $Q_{p,g}$ は単位時間当りにアニュラス部を通過するガスの熱容量、 $c_{p,g}$ はガスの比熱である。

アニュラス部をガスとチャーが通過する場合、単位時間当りに通過するガスとチャーの熱容量の和は以下の式で得られる。

$$Q_{p, g+char} = \rho_g u_A C_{p, g} + \rho_{char} V_{char} (1 - \varepsilon_A) C_{p, char} \quad (19)$$

ただし、 $Q_{p, g+char}$ は単位時間当りにアニュラス部を通過するガスとチャーの熱容量の和、 ε_A はアニュラス部の空間率、 $C_{p, char}$ はチャーの比熱である。

式(18)、(19)の比をとると次式が得られる。

$$\begin{aligned} Q_{p, g+char} / Q_{p, g} &= (\rho_g u_A C_{p, g} + \rho_{char} V_{char} (1 - \varepsilon_A) C_{p, char}) / \rho_g u_A C_{p, g} \\ &= 1 + \rho_{char} V_{char} (1 - \varepsilon_A) C_{p, char} / \rho_g u_A C_{p, g} \end{aligned} \quad (20)$$

b. アニュラス部のガス空塔速度 u_A の推算

アニュラス部のガス空塔速度 u_A は、次のRichardson-Zaki 式を適用して求められる。

$$u_A - \varepsilon_A \cdot V_{char} = u_t \varepsilon_A^n \quad (21)$$

n の値は、球形粒子についてのGarside-Al-Dibouniの次式を用いる。

$$n = (5.1 + 0.28 \text{Re}_t^{0.9}) / (1.0 + 0.10 \text{Re}_t^{0.9}) \quad (22)$$

また V_{char} 、 ε_A の値は、後に行う実験から得られる実測値を用いる。以上の手法により熱容量の比を推算することができる。推算結果については、後述の実験結果の報告とともに考察する。

c. チャー粒子の分離効率 ξ

チャー粒子の分離効率 ξ は次式から求まる。

$$\xi = 1 - W_R / (W_{char} + W_R) \quad (23)$$

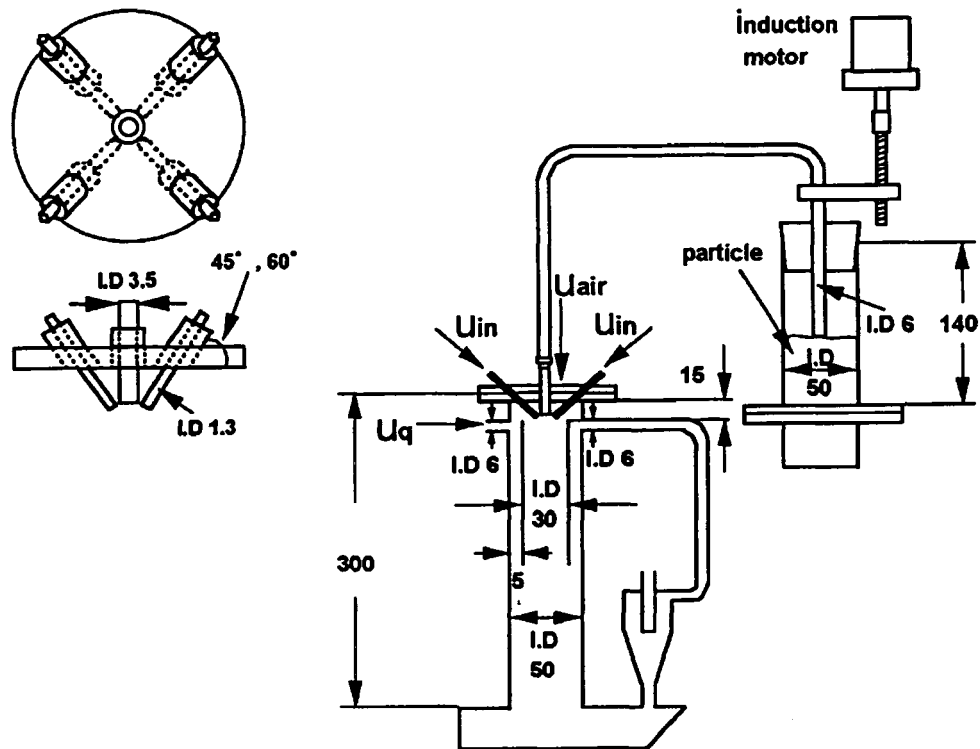
ただし、 W_R はドラフトチューブにリサイクルされるチャー粒子の質量流束、 W_{char} はドラフトチューブ内で生成するチャー粒子の質量流束である。 W_R は以下の式から求めることができる。

$$W_R = \rho_{char} V_{char} (1 - \varepsilon_A)^2 A_A \quad (24)$$

(6) 小型コールドモデルの設計

アクリル樹脂製コールドモデル実験装置(第2.6-7 図)は、加圧容器の大きさの制限上、実機で想定されているドラフトチューブ内径(2.5~4 m)を1/83~1/133にスケールダウン(ドラフトチューブ内径:30mm)することを想定して設計した。なお、反応器高さは300および600mmの二種類のものを作製した。クエンチガス供給口およびガス拔出し口の位置は、3段階で変化させられるようにした。また、インジェクションフィーダー部には、4本のガス供給管の挿入角度が45°、60°になる二種類のフランジを用意した。ノズ

ルはねじこみ式であり、今後必要に応じて変更することができる。



第2.6-7 図 ARCHコールドモデル概念図

(7) コールドモデルの実験条件の決定

(1) で論じた循環流動層についての相似則をARCH反応器に拡張し、コールドモデルでの実験条件を算出する。インジェクションノズルの流速は、幾何学的に相似であるとき、スケール比 m の $1/2$ 乗に比例する。コールドモデルでは模擬流体として空気を、模擬粒子としてFCCを使用する。また得られた結果を第2.6-3 表に記す。

最初に、式(4) から実機の実験条件である圧力 3.5および7.0MPaでの流動状態を模擬する常温モデルの圧力を計算する。(ただし、以下実機を基準とし、上付添字^oで区別するものとする。)

常温の空気密度は、温度、圧力の関数として以下のように与えられる。

$$\rho_r = (M_{air} / RT) P \quad (\text{kg/m}^3) \quad (25)$$

ただし、 R は気体定数(= $0.082 \text{ m}^3 \text{ atm} / \text{kmol K}$)である。

第2.6-1、2.6-3 表にそれぞれ記されている実機とコールドモデルの粒子密度およびガ

ス密度を用いると密度比は以下のようなになる。

$$(\rho_p / \rho_f)^\circ = (\rho_{char} / \rho_g) \quad (26)$$

$$\rho_p / \rho_f = \rho_p / (M_{air} / RT) P \quad (27)$$

次にドラフトチューブ断面積当りの粒子供給流速 G は、粒子密度および G_{char} の値を式(5)に代入して求める。

$$G = m^{1/2} (\rho_p / \rho_{char}) G_{char} \quad (28)$$

次に実機のドラフトチューブ内の流速 u_D を $u_0 = u_D^\circ$ として式(1)に代入してコールドモデルにスケールダウンしたときの u_D を求めることができる。

$$u_D = m^{1/2} u_D^\circ \quad (29)$$

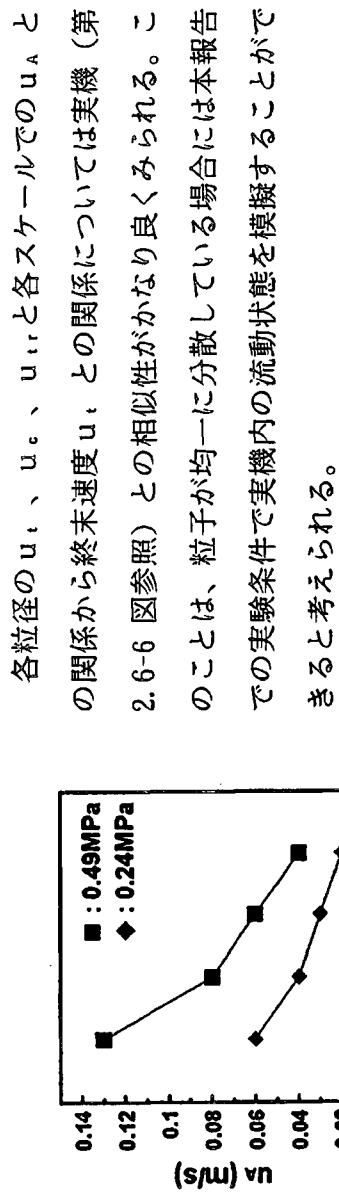
同様にインジェクションノズル部の流速 u_{in} も以下の式から得られる。

$$u_{in} = m^{1/2} u_{in}^\circ \quad (30)$$

最後に、使用する模擬粒子の粒径を算出する。実機で想定した粒径50~200 μm のチャ一粒子の $u_i (= u_i^\circ)$ (第2.6-2 表参照) を式(3)に代入し、コールドモデルの u_i を求める。その値から粒径 d_p を逆算する。

以上の手法を用いてドラフトチューブ内径 D_i を2.5~4.0 m (スケール比: $m = 1 / 133 \sim 1 / 83$) に変化させたときのコールドモデルの操作条件を第2.6-3 表に示す。

得られたコールドモデルの操作条件のフローレージムを実機のとときと同様の方法で判別する。スケール比の変化による u_A の変化を第2.6-8 図に、また $m = 1 / 83, 1 / 133$ のときの u_i, u_c, u_{ir} を第2.6-9、2.6-10図に示す。



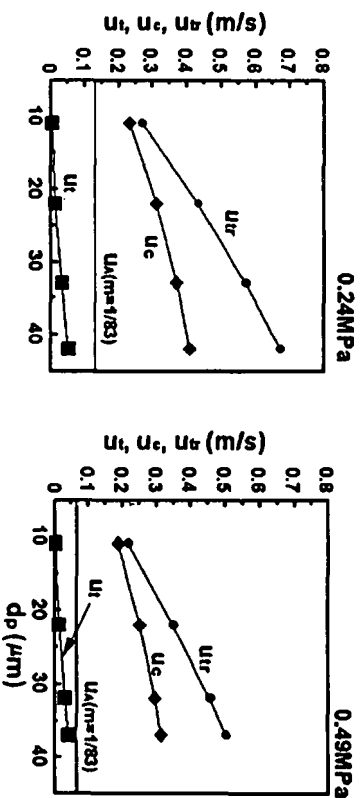
第2.6-8 図 相似条件下でスケ

ール比 m を変化させたときの

u_A の変化

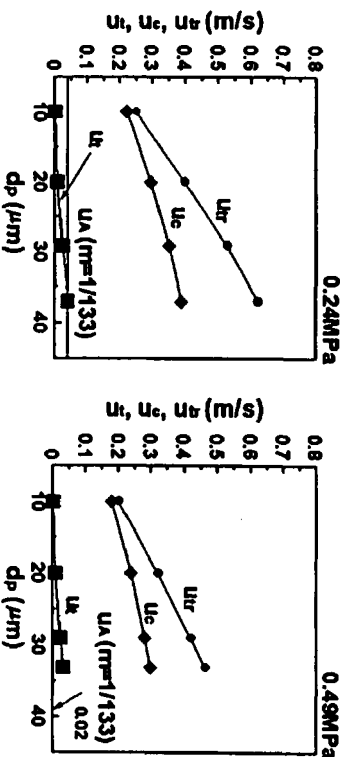
各粒径の u_i, u_c, u_{ir} と各スケールでの u_A との関係から終末速度 u_i との関係については実機 (第2.6-6 図参照) との相似性がかなり良くみられる。このことは、粒子が均一に分散している場合には本報告での実験条件で実機内の流動状態を模擬することができると考えられる。

しかし粒径の u_c 以上にはなり得ない。つまり u_c, u_{ir} 以上では相似性が失われると考えられる。この原因は、式(16)、(17)の相関式から圧力の異なる u_c, u_{ir} のそれぞれの比が圧力比の ~ 0.3 乗に従うためであると考えられる。均一分散がくずれクラスターが生



第2.6-9 図 コールドモデルにスケールダウンしたときの

模擬粒子各粒径の u_t 、 u_c 、 u_{tr} ($m = 1/83$)



第2.6-10図 コールドモデルにスケールダウンしたときの

模擬粒子各粒径の u_t 、 u_c 、 u_{tr} ($m = 1/133$)

成する場合には u_a と u_c 、 u_{tr} の関係が相似にならないが、 u_c 、 u_{tr} の圧力依存性 (u_c 、 $u_{tr} \propto P^{-0.3}$) が直接的には相似条件を満たさないため、便宜上 u_c との差について m の $1/2$ 乗則が成立するものと仮定する。これについては今後理論的、実験的証明が必要である。 u_a が u_c 、 u_{tr} 以上の流速になる場合は、以下に示すように相似の必要条件を書き換えて実験条件を算出する。

$$u_a - u_c = m^{1/2}(u_a - u_c) \quad (31)$$

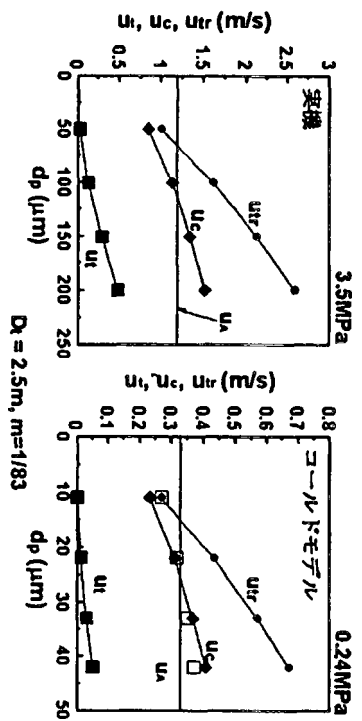
または

$$u_a - u_{tr} = m^{1/2}(u_a - u_{tr}) \quad (32)$$

式(31)を用いて推算した場合の各粒径の u_a ($m = 1/83$) を実機と比較して第2.6-11図に示す。この結果を前述した第2.6-9 図と比較すると u_a と u_c の差が $1/2$ 乗則に従う

と仮定した場合の方が、より実機のフローレジームを再現できる可能性が高いと考えられる。

これらの結果をもとにして実験を行うとともに、圧力依存性が相似条件にどのように寄与するか検討する必要がある。



第2.6-11図 実機とコールドモデル ($m = 1/83$) のフローレジームの比較

第2.6-3 表 コールドモデルの操作条件

P (MPa)	0.24 (実機内圧力3.5)				0.49 (実機内圧力7.0)			
ρ_f (kg/m ³)	2.890				5.900			
μ (kg/ms)	1.81×10^{-5}				1.81×10^{-5}			
ρ_p (kg/m ³)	1000				1000			
m (—)	1/83	1/100	1/117	1/133	1/83	1/100	1/117	1/133
G (kg/m ² s)	0.26	0.16	0.11	0.08	0.26	0.16	0.11	0.08
u_D (m/s)	0.13	0.08	0.06	0.04	0.06	0.04	0.03	0.02
u_{in} (m/s)	19.6	17.8	16.5	15.5	9.82	8.95	8.27	7.76
u_A (m/s)	0.13	0.08	0.06	0.04	0.06	0.04	0.03	0.01

m (—)	1/83				1/83			
d_{char} (μ m)	50	100	150	200	50	100	150	200
d_p (μ m)	11	22	33	42	11	22	32	37
u_t (m/s)	0.0036	0.0146	0.0328	0.0530	0.0036	0.0145	0.0315	0.0420
u_c (m/s)	0.2345	0.3129	0.3704	0.4094	0.1893	0.2526	0.2967	0.3150
u_{tr} (m/s)	0.2705	0.4333	0.5709	0.6725	0.2184	0.3498	0.4552	0.5020

m (—)	1/100				1/100			
d_p (μ m)	11	21	32	40	11	21	31	36
u_t (m/s)	0.0033	0.0133	0.0299	0.0483	0.0033	0.0132	0.0287	0.0383
u_c (m/s)	0.2300	0.3069	0.3633	0.4015	0.1857	0.2477	0.2910	0.3090
u_{tr} (m/s)	0.2620	0.4198	0.5531	0.6515	0.2115	0.3389	0.4410	0.4864

m (—)	1/117				1/117			
d_p (μ m)	11	20	30	38	10	20	30	34
u_t (m/s)	0.0031	0.0123	0.0276	0.0447	0.0031	0.0122	0.0265	0.0354
u_c (m/s)	0.2263	0.3019	0.3574	0.3950	0.1827	0.2437	0.2863	0.3040
u_{tr} (m/s)	0.2551	0.4088	0.5386	0.6344	0.2060	0.3300	0.4294	0.4736

m (—)	1/133				1/133			
d_p (μ m)	10	20	29	37	10	20	29	33
u_t (m/s)	0.0029	0.0115	0.0259	0.0419	0.0029	0.0115	0.0249	0.0332
u_c (m/s)	0.2233	0.2979	0.3526	0.3898	0.1802	0.2405	0.2825	0.3000
u_{tr} (m/s)	0.2496	0.4000	0.5269	0.6207	0.2015	0.3229	0.4202	0.4633

(8) 実験装置及び手順

実験装置には前述（第2.6-7 図）の亚克力樹脂製の常温模型（反応器高さ：300 mm、インジェクションノズル挿入角度：60°）を用いた。また循環流動層コールドモデルと同様に静電気防止用として内壁にセロハンテープを貼り、さらに静電気を除去するために、反応器フランジおよび粒子供給管にアース線を取り付けた。インジェクションノズルは内径 1.3mm のステンレス管を装着した。模擬粒子に粒径 $60.0\mu\text{m}$ 、粒子密度 $1,000\text{kg}/\text{m}^3$ の FCC 粒子を、模擬流体として常温空気を用いた。圧力は 0.49MPa （実機内の想定圧力 7.0MPa ）に設定し実験を行った。粒子供給ノズルガス空塔速度 u_{air} を $1.0\text{m}/\text{s}$ ($9.6 \times 10^{-6}\text{m}^3/\text{s}$)、クエンチガス速度 u_q を $0.5\text{m}/\text{s}$ ($1.4 \times 10^{-5}\text{m}^3/\text{s}$) で一定にした。インジェクションノズルガス空塔速度 u_{in} を $5 \sim 15\text{m}/\text{s}$ ($2.7 \times 10^{-5} \sim 8.0 \times 10^{-5}\text{m}^3/\text{s}$) で変化させ、単位面積当りの粒子供給量 G は $0.26\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$ ($1.84 \times 10^{-4}\text{kg}/\text{s}$) に設定した。第2.6-4 表に今回行った実験条件およびそれに相当する実機の操作条件を示す。

粒子供給には、流動層型粒子供給装置を用い、粒子供給量は、供給管の下降速度を変えることにより変化させた。

撮影は循環流動層の場合と同様のシステムを用いて撮影速度：1,000 コマ/秒、シャッタースピード：1/1,000 秒で行った。

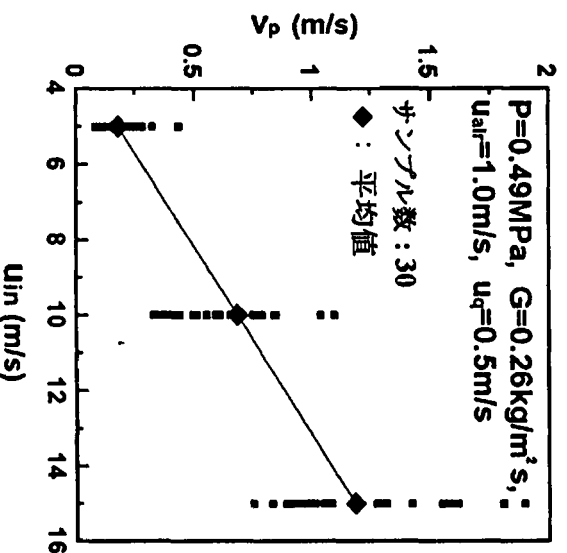
第2.6-4 表 今回の実験条件およびそれに相当する実機の操作条件

コールドモデル				実機			
$m(-)$	1/83	$u_{air}(\text{m/s})$	1.0			$u_{air}(\text{m/s})$	9.11
$D_t(\text{m})$	0.03	$Q_{air}(\text{m}^3/\text{s})$	$9.62\text{E-}6$	$D_t(\text{m})$	2.5	$Q_{air}(\text{m}^3/\text{s})$	0.64
$P(\text{MPa})$	0.49	$d_n(\text{mm})$	1.3	$P(\text{MPa})$	7.0	$d_n(\text{mm})$	107.9
$\rho_p(\text{kg}/\text{m}^3)$	1000	$u_{in}(\text{m/s})$	10	$\rho_{char}(\text{kg}/\text{m}^3)$	910	$u_{in}(\text{m/s})$	91.1
$d_p(\mu\text{m})$	60	$Q_{in}(\text{m}^3/\text{s})$	$5.31\text{E-}5$	$d_{char}(\mu\text{m})$	514	$Q_{in}(\text{m}^3/\text{s})$	3.33
$\rho_f(\text{kg}/\text{m}^3)$	5.90	$u_q(\text{m/s})$	0.5	$\rho_g(\text{kg}/\text{m}^3)$	5.36	$u_q(\text{m/s})$	4.56
$\mu(\text{kg}/\text{ms})$	$1.81\text{E-}5$	$Q_q(\text{m}^3/\text{s})$	$1.41\text{E-}5$	$\mu_g(\text{kg}/\text{ms})$	$3.72\text{E-}5$	$Q_q(\text{m}^3/\text{s})$	0.89
$u_t(\text{m/s})$	0.11	$T(\text{K})$	293	$u_t(\text{m/s})$	0.95	$T(\text{K})$	1173
$Re_t(-)$	2.1			$Re_t(-)$	11935	$G_{coal}(\text{kg}/\text{m}^2\text{s})$	4.74
$G(\text{kg}/\text{m}^2\text{s})$	0.26			$G_{char}(\text{kg}/\text{m}^2\text{s})$	2.16	$W_{coal}(\text{t}/\text{d})$	2008.2
$u_D(\text{m/s})$	0.089			$u_D(\text{m/s})$	0.81	$\text{H}_2/\text{coal}(-)$	0.25
$Q_D(\text{m}^3/\text{s})$	$6.27\text{E-}5$			$Q_D(\text{m}^3/\text{s})$	3.97		

図中のドラフトチューブ内の白い粒子群は上部のインジェクターから供給された直後の粒子である(a)。また、その周囲の白い点は、分散し下降する粒子である(c)。アニュラス部では、ガスの上昇流に同伴されてきた粒子が三条件すべて観察される (a, c, e)。さらにアニュラス部から上昇してくる粒子がドラフトチューブに吸い込まれる様子がわかる(e)。ドラフトチューブ下部では、チューブを通過した直後に渦を形成し舞い上がる粒子、および反応器下部から低流速で上昇してくる粒子が見られる(d)。

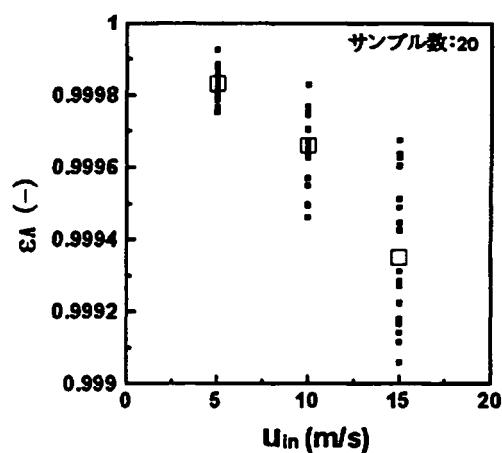
(10) 粒子上昇流に及ぼす因子の検討

粒子上昇流の速度をテレビ画面上で目視観察によって測定した。第2.6-13図に結果を示す。粒子上昇速度は、インジェクションノズルガス空塔速度 u_{in} の増加に伴い、高くなる傾向が見られた。 u_{in} の変化に伴う増加は、かなりの高速で流れる u_{in} が引き起こす圧力差、およびガス流量の増加に伴うアニュラス部のガス空塔速度 u_A の増加を考慮すれば、十分考えられることである。しかしここで注目すべき点は、平均粒径 $60\mu m$ の粒子 ($u_i = 0.107\text{ m/s}$ 、想定されるチャード径: $514\mu m$) を使用したにも関わらず、粒子上昇流が多く見られたことである。このことは、圧力差によるガスの引き込み力が大きく影響すると考えられる。前述したようにチャード径の広い粒径分布、およびその強度の弱さを考慮すると、実機ではさらに多くの粒子上昇流が引き起こされると推測できる。



第2.6-13図 インジェクションノズルガス空塔速度の変化による粒子上昇速度の変化

得られた画像の観察からも予想されたように u_{in} の増加に伴い、アニュラス部の空間率 ε_A は減少する。ただし u_{in} が増加するに従い、 ε_A のばらつきも大きくなり、アニュラス部の流動状態は、刻一刻と変動しているものと推量される。以下で実機の実験条件に最も近い $u_{in} = 10 \text{ m/s}$ のときの ε_A を用いて熱容量を算出する。



第2.6-15図 u_{in} の変化に対する ε_A の変化

(12) 粒子上昇流を伴うときの熱容量の変化と分離効率の試算

第2.6-13図に示した $u_{in} = 10 \text{ m/s}$ のときの粒子上昇速度をスケール比 $m = 83$ でスケールアップして得られる実機でのチャー粒子上昇速度 v_{char} 、第2.6-15図で得られた ε_A 、第2.6-4 表に示した u_t 、および Re_t を式(22)に代入し算出される n を式(21)に代入すると実機のアニュラス部ガス空塔速度 u_A は以下の値となる。

$$\begin{aligned} u_A &= u_t \varepsilon_A^n + \varepsilon_A v_{char} \\ &= 0.95 \times (0.99966)^{2.8} + 0.99966 \times 6.4 = 7.35 \text{ m/s} \end{aligned}$$

次に(5)で示した手法を用いて熱容量の比を推算する。式(20)に第2.6-1 表に示した既知の物性値、実験によって実測された v_{char} 、 ε_A 、および前述した u_A を代入すると熱容量の比は以下のようになる。

$$\begin{aligned} Q_{p, g+char} / Q_{p, g} &= 1 + \rho_{char} v_{char} (1 - \varepsilon_A) C_{p, char} / \rho_g u_A C_{p, g} \\ &= 1 + 910 \times 6.4 \times (1 - 0.99966) \times 2.6 / (5.4 \times 7.35 \times 4.8) \\ &= 1.03 \end{aligned}$$

次に分離効率 ξ を試算する。式(23)、(24)を用いると W_R および ξ は以下のようになる。

$$\begin{aligned} W_R &= \rho_{char} v_{char} (1 - \varepsilon_A) A_A \\ &= 910 \times 6.4 \times (1 - 0.99966) \times 3.14 \times (2.5/2)^2 = 9.7 \text{ kg/s} \\ \xi &= 1 - W_R / (W_{char} + W_R) = 1 - 9.7 / (10.6 + 9.7) = 0.52 \end{aligned}$$

熱容量はチャー粒子の上昇を考慮するとガスだけの場合と比べ3%の増加がみられた。

2. 6. 4 結 論

- 1) レーザーシート法を開発し、その測定方法を検討した。
- 2) ARCH反応器に混相流の相似則を適用し、実機相当のコールドモデルの緒元を決定した。
- 3) 2) の結果に基づきコールドモデルを作製し、レーザーシート法を適用してドラフトチューブの循環流を調べた結果、濃度を求めることができ、レーザーシート法が有効であることがわかった。
- 4) 循環流について初歩的なデータで解析した結果、チャーの循環流を伴う場合の熱容量に若干の差がみられた。

記号

A_A	アニュラス部断面積	(m^2)
A_D	ドラフトチューブ断面積	(m^2)
A_r	アルキメデス数	(—)
$C_{p, \text{char}}$	チャー粒子の比熱	(kJ/kgK)
$C_{p, g}$	混合ガスの比熱	(kJ/kgK)
d_{char}	チャー粒子の粒径	(μm)
d_n	インジェクションノズルの内径	(m)
D_A	反応器全体の内径	(m)
D_t	ドラフトチューブ内径	(m)
G	コールドモデルでの単位面積当りの粒子供給流束	($\text{kg/m}^2\text{s}$)
G_{char}	ドラフトチューブ単位断面積基準のチャー生成流束	($\text{kg-dry/m}^2\text{s}$)
G_{coal}	ドラフトチューブ単位断面積基準の石炭供給流束	($\text{kg-dry/m}^2\text{s}$)
G_g	ドラフトチューブ単位断面積基準の混合ガス流束	($\text{kg/m}^2\text{s}$)
G_{H_2}	ドラフトチューブ単位断面積基準の水素供給流束	($\text{kg/m}^2\text{s}$)
G_o	ドラフトチューブ単位断面積基準の酸素供給流束	($\text{kg/m}^2\text{s}$)
G_{rec}	ドラフトチューブとアニュラス部の間を循環する ガスのドラフトチューブ単位断面積基準の質量流束	($\text{kg/m}^2\text{s}$)
G_s	粒子循環流束	($\text{kg/m}^2\text{s}$)
G_s°	基準となる装置の粒子循環流束	($\text{kg/m}^2\text{s}$)

m	スケール比	(—)
n	<u>Richardson-Zaki</u> 式中のパラメータ	(—)
P	圧力	(MPa)
Q_{air}	粒子供給ガス流量	(m^3/s)
Q_D	ドラフトチューブ内ガス流量	(m^3/s)
Q_{in}	粒子インジェクションノズルガス流量	(m^3/s)
$Q_{p,g}$	単位時間あたりにアニュラス部を通過するガスの 熱容量	(kJ/K s)
$Q_{p,g+char}$	単位時間あたりにアニュラス部を通過するガスと 粒子の熱容量の和	(kJ/K s)
Q_q	クエンチガス流量	(m^3/s)
R	気体定数	($m^3 atm/kmol K$)
Re_t	終末速度基準の粒子レイノルズ数	(—)
T	温度	(K)
u_A	アニュラス部を上昇するガスの空塔速度	(m/s)
u_{air}	粒子供給ガス空塔速度	(m/s)
u_c	乱流流動化開始速度	(m/s)
u_D	ドラフトチューブ内の混合ガス空塔速度	(m/s)
u_{in}	インジェクションノズルガス空塔速度	(m/s)
u_0	ガス空塔速度	(m/s)
u_0°	基準となる装置のガス空塔速度	(m/s)
u_q	クエンチガス速度	(m/s)
u_t	終末速度	(m/s)
u_t°	基準となる装置で使用する粒子の終末速度	(m/s)
u_{tr}	高速流動化開始速度	(m/s)
v_{char}	チャー粒子の上昇速度	(m/s)
v_p	模擬粒子の上昇速度	(m/s)
v_0	粒子空塔速度	(m/s)
v_0°	基準となる装置の粒子空塔速度	(m/s)
W_{coal}	石炭供給流束	(t-dry/d)

W_{char}	チャー生成流束	(kg-dry/s)
W_R	リサイクルされるチャー粒子の質量流束	(kg/s)
X_{char}	チャー生成率	(-)
$X_{H, vol}$	水素の揮発率	(-)
Z	撮影高さ	(m)
ε_A	アニュラス部の空間率	(-)
μ	空気の粘度	(kg/m s)
μ_g	混合ガスの粘度	(kg/m s)
ρ_{char}	チャー粒子密度	(kg/m ³)
ρ_f	流体密度	(kg/m ³)
ρ_f°	基準となる装置で使用する流体密度	(kg/m ³)
ρ_p	粒子密度	(kg/m ³)
ρ_p°	基準となる装置で使用する粒子密度	(kg/m ³)
ρ_g	混合ガスの密度	(kg/m ³)
ρ_{H_2}	水素ガス密度	(kg/m ³)
ρ_O	酸素ガス密度	(kg/m ³)

引用文献

- 1) Horio, M. et al.: J.Chem. Eng. Japan, 22, 484 (1989)
- 2) Horio, M.: J. Powder Technol. Japan 23, 80 (1986)
- 3) Tsukada, M. et al.: Int. J. Multiphase Flow, 19, 27 (1993)
- 4) Tsukada, M. et al.: Circulating Fluidized Bed Technolgy IV A. A. Avidan(ed.), AIChE(1994)

2. 7 チャー流動床伝熱特性の把握

水添ガス化炉から抜き出された高温のチャーは流動層冷却装置に供給され、層内に内挿された熱交換器により水蒸気で冷却され、系外に取り出される。このチャー冷却装置の開発と合理的な設計を行うための要素試験としてチャー冷却試験を行う必要がある。

昨年度は、チャー粒子の基本物性として、粒度分布、安息角および比熱を測定するとともに、常温流動層装置と高温流動化実験装置を使用して、それぞれ、常温および高温におけるチャー粒子の流動化特性を測定した。

本年度は、流動層における伝熱特性に関する基礎的知見を得るために小型流動層伝熱実験装置を使用した伝熱実験を行った。具体的には、チャーに対応する模擬粒子を流動化させた層内に単一垂直管を挿入し、その表面と流動層間の伝熱係数を測定して、流動化条件などの操作条件や粒子の物性が伝熱特性に与える影響を検討した。

2. 7. 1 流動層伝熱試験に関する基本的概念

(1) 流動層の伝熱特性

流動化粒子は微細であり、気泡による粒子混合が十分に大きいため、粒子の強い発熱反応が発生したり、熱交換管のような内挿物によって粒子の混合が著しく阻害されない限り、粒子とガス間に温度差が生じ層内に温度分布が現れるのは分散板の直上部に限られる。したがって、通常は流動層の温度は層の下部を除いて均一に保たれる。

流動層の伝熱過程において重要なのは、層から外部への熱損失を規定する層から内壁への伝熱と、内挿伝熱管の表面における伝熱である。本プロセスでは、外部への熱損失は無視できると思われるので、冷却装置の開発に当たって重要なのは、内挿熱交換表面における伝熱係数の推算法の確立である。

伝熱過程の概説を行う前に、まず流動層の層膨張と気泡分率の関係について触れておく。層の流動化開始時の層高を L_{mf} 、層の空間率を ε_{mf} とし、あるガス流速 U で流動化させたときの層高を L_f 、気泡の層内に占める体積分率を ε_b とする。気固系流動層では流動化時の気泡以外の粒子層（濃厚層）の空間率 ε_s はほぼ一定に維持される（ $\varepsilon_s = \varepsilon_{mf}$ ）ので、層膨張は層内に存在する気泡の体積と等しくなる。したがって次の関係が成立し、

$$L_f \cdot \varepsilon_b = L_f - L_{mf}$$

気泡の体積分率 ε_b は次式で与えられる。

$$\varepsilon_b = (L_f - L_{mf}) / L_f$$

なお、濃厚層の体積分率は $(1 - \varepsilon_b)$ となる。

また、粒子を連続的に供給し、溢流により粒子を排出する場合には層高が一定に保たれ、ガス流速が同一であれば粒子を極端に多量に供給しない限り流動化状態も粒子回分式の場合とほとんど変わらないので、濃厚層の分率も $(1 - \varepsilon_b)$ となる。

内挿管表面の伝熱過程は、濃厚層への熱の浸透と気泡による濃厚層の更新によって規定される。なお、熱交表面が気泡によって覆われる期間は、ほとんど断熱状態となる。したがって、ガス流速が小さく気泡径が小さい場合には、ガス流速の増加とともに、気泡の頻度が上昇して濃厚層の更新時間が短くなるため、伝熱係数が大きくなるが、次第に気泡の占める割合が大きくなり断熱状態が増加するため伝熱係数が最大値に到達した後徐々に低下する。

(2) 冷却器の熱収支と層温度

粒子が連続的に供給排出される流動層冷却器において、粒子とガスの出口温度はともに層の温度 T_b と等しくなるので、定常熱収支は次のようになる。

$$c_p W_p (T_p - T_b) - c_f W_f (T_b - T_f) = UA (T_b - T_s) \quad (1)$$

ここで、 c_p 、 c_f は粒子とガスの比熱、 W_p 、 W_f は粒子とガスの供給質量流量、 T_p 、 T_f は粒子とガスの供給温度、 T_s は熱交内蒸気温度、 U は総括伝熱係数、 A は有効伝熱面積である。

ここで、熱流比 $\gamma = c_p W_p / c_f W_f$ 、 $St = UA / c_f W_f$ とすれば、層温度 T_b は次式で与えられる。

$$T_b = (\gamma T_p + T_f + St T_s) / (\gamma + 1 + St) \quad (2)$$

このように、流動層冷却器の特性は γ と St 、すなわち、 U 、 A および W_f によって規定されるため、伝熱係数 U の合理的推算法の確立が重要である。

(3) 加熱試験法

総括伝熱係数 U の推算のためには、必ずしも、粒子の冷却を行う必要はなく、逆に粒子の加熱試験を行うことによって、より容易にその値を求めることができる。内挿熱交換チューブを加熱器として用いると、その場合の定常熱収支は次のようになる。

$$c_p W_p (T_b - T_p) + c_f W_f (T_b - T_f) = UA (T_s - T_b) \quad (3)$$

の熱伝導度。

ここで、 U ：管外表面基準総括伝熱係数、 h_i 、 h_o ：それぞれ伝熱管内部伝熱係数、層・伝熱面間伝熱係数、 d_i 、 d_o ：それぞれ、管内径、管外径、 x ：管肉厚、 k ：管材料

$$\frac{1}{U} = \frac{d_o}{d_i} + \frac{1}{h_i} + \frac{1}{h_o} + \frac{(d_i + d_o) / 2}{k} + \frac{x}{d_o} \quad (4)$$

より総括伝熱係数が求められることになる。

係数が既往の推算式より容易に推算できるので、層・伝熱面間伝熱係数を測定することにより、前項の総括伝熱係数は層・伝熱面間伝熱係数を用いて次式に表され、伝熱管内部伝熱の流動状態の把握が容易な冷間モデルを用いて、層・伝熱面間伝熱係数の測定を行った。

そこで、内挿多管を挿入したベンチスケールモデルを行うための基礎試験として、内部層内部の流動状態の観察が容易ではない。

この場合、層温度は数 100°C 程度になるため、装置としては、必然的にホットモデルとなるが、総括伝熱係数は上記のように蒸気加熱による試験法を実施することにより求められるが、

2. 7. 2 伝熱基礎試験

切な値に保つ必要がある。

くなくてしまい U を推算できないので、大部分の水管は疑似熱交換管として伝熱面積を適塔径を確保しなくてはならない。しかし伝熱面積が大きくなると、 T_o は T_i にほぼ等しで影響を受けるため、実プロセスに近い内挿熱交換を挿入する必要があるので、ある程度の流動化特性や総括伝熱係数はガス流速とともに内挿熱交換チューブの径とピッチによって推定される。また、この試験の場合、粒子を連続的に供給排出する必要がある。また、この試験の場合、粒子を連続的に供給排出する

ガスの入り口温度 T_i と蒸気の温度 T_o を規定し、層の温度 T と有効伝熱面積 A が測定

$$T_o = (T_i + S t T_o) / (1 + S t)$$

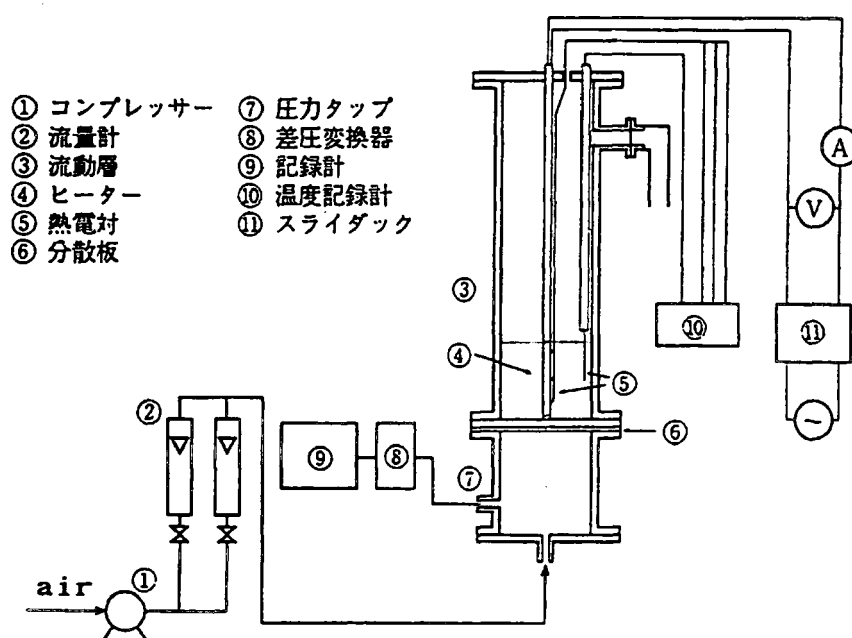
定されるので、

必要はないので、常圧・粒子回分式 ($\gamma = 0$) で試験を行うと、層の温度 T は次式で規定される。また、この試験の場合、粒子を連続的に供給排出する必要がある。また、この試験の場合、粒子を連続的に供給排出する

(3) 式を T_o について解くと、この場合も (2) 式となる。結局 (2) 式は粒子が熱源でも熱

(1) 実験装置

実験装置の概略を第2.7-1 図に示す。流動層本体は塔径 200mm、塔高 1,000mmの亚克力樹脂製円筒で、ガス分散板としては厚さ 3 mm、孔径 2 mm（ピッチ20mm正方配列、孔数81個）の多孔板を用いた。伝熱係数測定用プローブとしては、外径10mm、長さ 200mmの市販のカートリッジヒータ表面 3 ヲ所（ヒーター下端から 170mm、105mm、30mm）に熱電対感温部を接着したものを使用した。



第2.7-1 図 実験装置図

(2) 実験方法

ガス流速を 1 cm/s から 10 cm/s の間で変化させ、各ガス流速におけるヒーター表面温度、流動層温度、供給熱量を測定することにより、次式によりヒーター面上各点における伝熱係数を算出した。

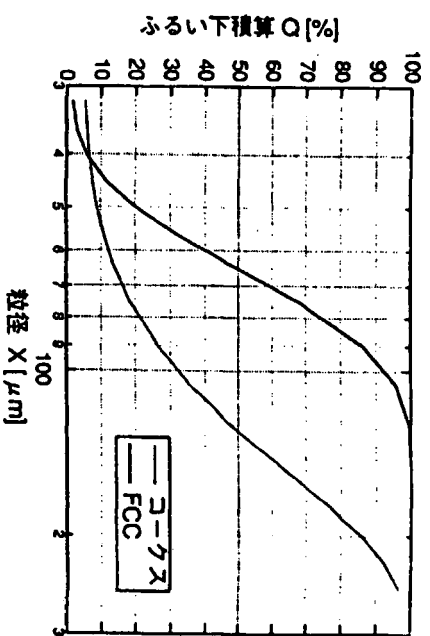
$$h_i = \frac{Q}{A (T_{s,i} - T_b)} \quad (5)$$

ここで、 Q : プローブ（ヒーター）への供給熱量 [W] A : プローブ表面積 [m^2]

$T_{s,i}$: 各点におけるプローブ表面温度 [K] T_b : 層温度 [K]

層高はヒーター上端が層から露出するのをさけるため、ヒーター高さと同じの 20 cm とした。また、伝熱実験はヒーターへの供給熱量が 30 W から 130 W の範囲内で行った。

チャー模擬粒子としては、主として、平均粒径 $129\mu\text{m}$ 、粒子密度 $1,200\text{kg}/\text{m}^3$ のコークス粒子を用い、補足的に粒径 $65\mu\text{m}$ 、粒子密度 $1,550\text{kg}/\text{m}^3$ の FCC 粒子も使用した。第2.7-2 図にそれらの粒度分布を示す。また、流動化ガスとしては、空気を用いた。



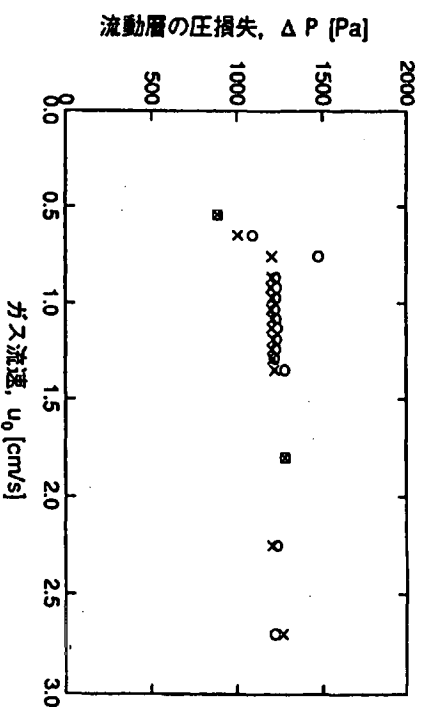
(3) 実験結果

3-1) 流動化開始速度

コークス粒子を用いた場合の各ガス流速において層の圧力損失を測定した結果を第2.7-3 図に示す。この結果から、流動化開始速度は $0.74\text{cm}/\text{s}$ であることがわかる。

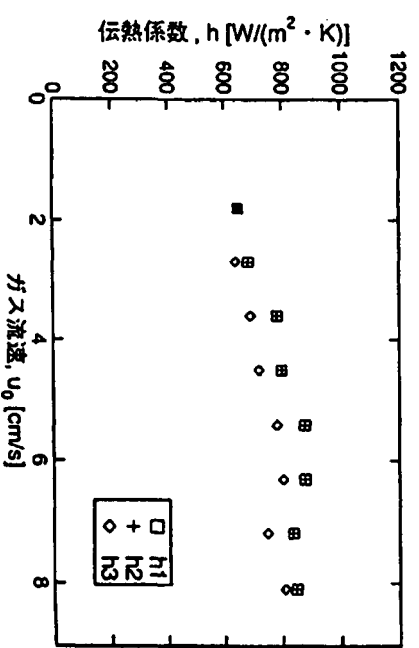
3-2) 伝熱係数とガス流速の関係

コークス粒子を用いた場合の各条件における伝熱係数とガス流速の関係を第2.7-4、5 図に示す。第2.7-4 図、



第2.7-3 図 圧力損失とガス流速の関係
(コークス粒子)

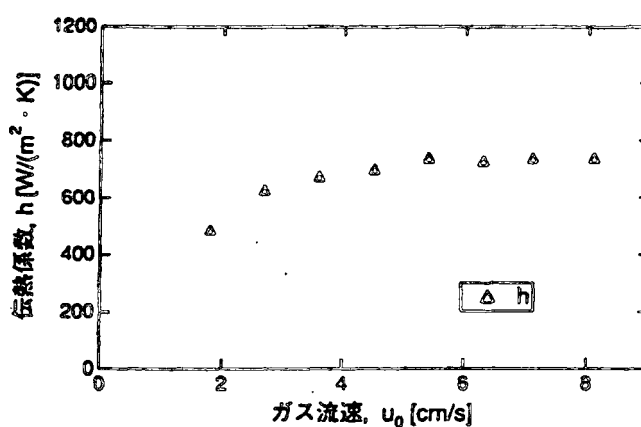
第2.7-5 図はそれぞれ、ヒーターの無次元半径位置、 r/R が 0 、 0.4 の場合の結果を示している。伝熱係数はいずれの場合もガス流速とともに増大し、流速 $7\text{cm}/\text{s}$ 程度でほぼ $800\text{W}/\text{m}^2\text{K}$ の一定値に達する。また、全体的には、 $r/R = 0$ のときの方が伝熱係数は若干大きくなっている。また、第2.7-4 図の場合には、層高の影響が表れており、層底部における伝熱係数の値 (h_3) が他の場合よりも小さくなっている。



第2.7-4 図 伝熱係数とガス流速の関係
(コークス粒子、 $r/R = 0$)

る。一方、第2.7-5 図の場合 ($r/R = 0.4$) には、層高の影響がほとんどなかった。

FCC粒子を用いた場合の伝熱係数とガス流速との関係を第2.7-6 図に示す。ガス流速に対する伝熱係数の変化の傾向はコークス粒子の場合と同様であるが、層底部の伝熱係数の値が他の層高の場合と比較すると著しく小さい。



第2.7-5 図 伝熱係数とガス流速の関係
(コークス粒子、 $r/R = 0.4$)

(4) 伝熱係数の推算

以下では、Mickely らの粒子群更新モデル¹⁾を用いて伝熱係数の推算を行った結果を示す。粒子群更新モデルによる伝熱係数は次式で与えられる。

$$h = (2/\sqrt{\pi}) (1 - f_o)^{1/2} n_b^{1/2} \sqrt{k_o \rho_o c_p} \quad (6)$$

k_o : 粒子群有効熱伝導度、 ρ_o : 粒子層密度、 c_p : 粒子比熱、 n_b : 気泡頻度、 f_o : 気泡が伝熱面に接触している時間割合

ただし、上式は気泡径がヒーターの横方向のサイズ（本実験の場合には10mm）よりも充分大きく、気泡の通過によってヒーター表面に接している粒子が円周方向全域にわたって更新されることを前提としているので、気泡径がヒーター径と同程度、あるいはそれより小さい場合には、この前提は成り立たず、気泡が接触する円周部分に存在する粒子のみが更新されると考えるべきである。

そこで、気泡によって更新される円周部分の全円周に対する比率、 η を有効伝熱面積率として定義し、伝熱係数推算式として(6) 式の代わりに次式を採用することにする。

$$h = (2/\sqrt{\pi}) \eta (1 - f_o)^{1/2} n_b^{1/2} \sqrt{k_o \rho_o c_p} \quad (7)$$

n_b 、 f_o 、 η は以下のように求められる。まず、 f_o は気泡分率、 ε_b と等しいと考えることができるので、

$$f_o = \varepsilon_b = (u_o - u_{mf}) / u_b \quad (8)$$

ここで、 u_o : ガス流速、 u_b : 気泡上昇速度

u_b は次式で与えられる。

$$u_b = u_o - u_{mf} + 0.711 \sqrt{g D_b} \quad (9)$$

また、ヒーターに接触する気泡の頻度、 n_b は層全断面を通過する気泡の頻度、 f_b と次式の関係にある。

$$\begin{aligned} n_b &= f_b (\pi/4) [(D_h + D_{bf})^2 - D_h^2] / A_t \\ &= f_b (\pi/4) D_{bf}^2 (1 + 2 D_h / D_{bf}) / A_t \end{aligned} \quad (10)$$

ここで、 A_t は層断面積を、 D_h はヒーター径を、 D_{bf} は気泡の横方向径を表し、 D_{bf} は気泡の球相当径、 D_b と次式の関係にある。

$$D_{bf} = (1 + f_w)^{1/3} D_b \quad (11)$$

ここで、 f_w : ウェーク分率 (約0.2)

また、(10)式中の f_b は二相説を仮定すると、次式で与えられる。

$$f_b = Q_b / V_b = \frac{A_t (u_o - u_{mf})}{(\pi/6) D_b^3} \quad (12)$$

(10)式に(11)、(12)式を用いると、

$$n_b = (3/2) (1 + f_w)^{2/3} \frac{u_o - u_{mf}}{D_b} \left[1 + \frac{2 D_h}{(1 + f_w)^{1/3} D_b} \right] \quad (13)$$

以上のように、 f_o 、 n_b は気泡径の関数になっており、気泡径を推算する必要がある。気泡径については、以下のMori and Wenの式²⁾を用いると容易に推算できる。

$$(D_{bm} - D_b) / (D_{bm} - D_{bo}) = \exp(-0.3 z / D_t) \quad (14)$$

ここで、 D_{bm} は最大気泡径を、 D_{bo} は生成気泡径を表し、それぞれ以下の式で与えられる。

$$D_{bm} = 2.59 g^{-0.2} [(u_o - u_{mf}) A_t]^{0.4} \quad (15)$$

$$D_{bo} = 1.38 g^{-0.2} [(u_o - u_{mf}) A_t / n_{or}]^{0.4} \quad (16)$$

ここで、 D_t : 塔径、 z : 層底からの距離、 n_{or} : 分散板孔数、 g : 重力加速度

次に、 η を以下のように求める。 η は第2.7-7 図のように、気泡によってカットされる伝熱面の平均弦長 ℓ_{sa} および ℓ_{sa} をみこむ角 θ_a を用いて次のように与えられる。

$$\eta = \ell_{sa} / (\pi D_h) = \theta_a / (2\pi) \quad (17)$$

また、 θ_a は気泡の中心とヒーターの中心との平均間隔 ℓ_a と次式の関係にある。

$$\ell_a = \frac{D_{bf}}{2} \left[\left(\frac{D_h}{D_{bf}} \right) \cos \frac{\theta_a}{2} + \sqrt{1 - \left(\frac{D_h}{D_{bf}} \right)^2 \sin^2 \frac{\theta_a}{2}} \right] \quad (18)$$

また、 1_a は中心間距離が $1 \sim 1 + d_1$ をとる確率を考えると、次式で与えられる。

$$\ell_a = \frac{1}{S_h} \int_{D_h/2}^{(D_h + D_{bf})/2} \ell \cdot 2\pi \ell d\ell \quad (19)$$

ここで、

$$S_b = (\pi/4) [(D_b + D_{br})^2 - D_b^2] \quad (20)$$

を用いると、

$$\ell_a = \frac{D_{br}}{3} \frac{1 + 3(D_b/D_{br}) + 3(D_b/D_{br})^2}{1 + 2(D_b/D_{br})} \quad (21)$$

結局、(18)式と(21)式とを等置して、 θ_a を求め、(17)式を用いることによって η を求めることができる。

ただし、(18)式が成立するのは

$$D_{br}/2 < \ell_a + D_b/2$$

即ち、

$$D_{br}/D_b < \frac{24}{\sqrt{57}-3} \quad (22)$$

の条件を満足するときである。

従って、逆に $D_{br}/D_b > 24/(\sqrt{57}-3)$ のときは $\eta = 1$ となる。

また、最後に(7) 式中の有効熱伝導度、 k_a は国井-Smith の式³⁾を用いて放射の影響を無視すると以下ようになる。

$$\frac{k_a}{k_r} = \varepsilon + \frac{1 - \varepsilon}{\phi + (2/3)(k_r/k_a)}$$

ここで、 $k_a/k_r = 5 \times 10^3$ のとき、 $\theta = 0.05$ であるので

$$k_a/k_r = \varepsilon + (1 - \varepsilon)(1/\phi) = \varepsilon + 20(1 - \varepsilon) \quad (23)$$

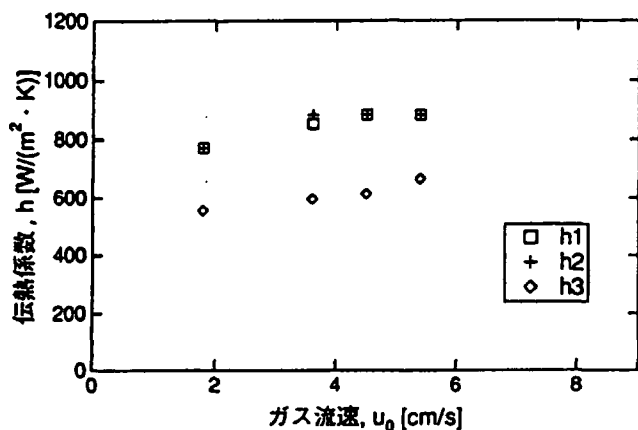
ここで、 k_a : 粒子の熱伝導度、 k_r : ガスの熱伝導度、 ε : 濃厚相空隙率

以上の諸式と以下のコークス粒子の物性値及び実験条件

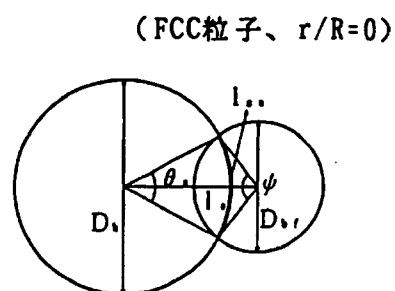
$k_s = 140 \text{ W/mK}$ (石墨、 20°C における値)、 $k_r = 0.0263 \text{ W/mK}$ (空気、 20°C における値)、 $c_p = 836 \text{ J/kgK}$ (実測値、 20°C における値)、 $\rho_s = 875 \text{ kg/m}^3$ 、 $u_{mr} = 0.74 \text{ cm/s}$ 、 $\varepsilon = 0.5$ 、 $f_w = 0.2$ 、 $D_t = 0.2 \text{ m}$ 、 $A_t = 0.0314 \text{ m}^2$ 、 $n_{or} = 81$ を用いて、

コークス粒子の場合について伝熱係数を推算し、実測値と比較した結果を第2.7-8 図に示す。ガス流速、 8 cm/s 付近で実測と推算は良好に一致し、また、層下部ほど伝熱係数の値が小さいという実測結果も推算値は良く説明しているが、本実験のガス流速全域で実測値が推算値より大きくなっており、特に、ガス流速が小さいところで、その差が著しい。これは低ガス流速において、生成した気泡が優先的にヒーター面に沿って上昇するため

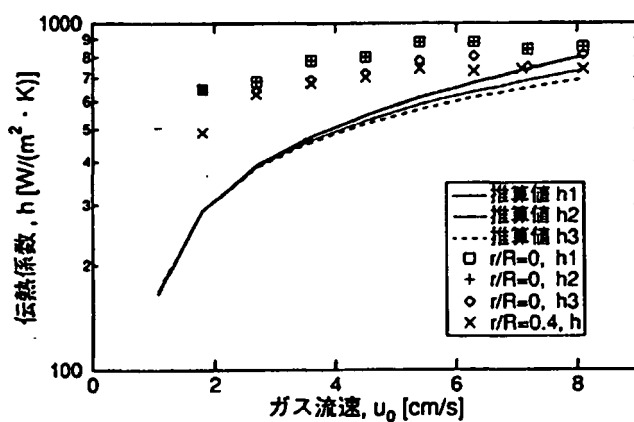
ある。実際、層の観察を行うと、低ガス流速域では、ヒーター近傍以外は全く気泡が観察されないにもかかわらず、層表面でかつヒーター面近傍を2 cm程度の気泡が多数上昇しているのが観察される。従って、今後、低ガス流速域における伝熱係数の推算精度の向上を図るためには、気泡挙動に及ぼす伝熱管など内挿物の影響を明らかにする必要がある。



第2.7-6 図 伝熱係数とガス流速の関係



第2.7-7 図 有効伝熱面積率の定義



第2.7-8 図 伝熱係数の実測値と推算値との比較

引用文献

- 1) Mickley, H. S. and D. F. Fairbanks: AIChE J., 1, 374 (1955)
- 2) Mori, S. and C. Y. Wen: AIChE J., 21, 109 (1975)
- 3) Kunii, D. and J. M. Smith: AIChE J., 6, 97 (1960)

2. 8 まとめ

第2章では、5年間の調査のまとめとしてARCHプロセスの基本概念とその全体開発計画、ARCH反応器開発のポイントの一つである水素・酸素バーナーの開発計画、さらに、このバーナーを組み込むインジェクターの開発計画をまとめた。また、要素技術の開発に先立つ基礎的な調査研究として、シミュレーションモデルにより、反応器性能を予測し、液収率を向上させる条件を抽出した。同様に、反応器内の気体・個体の流れを、レーザーシート法で可視化し、解析する予備検討を実施した。また、水添ガス化炉から抜き出したチャーを冷却する流動層冷却装置の伝熱特性を明らかにするための基礎試験を行った。

ARCHは、第1段熱分解を高温で行い多量の液状物を生成させ、第2段で低温で水素化分解して、BTX収率を制御する原理に基づき、一台の反応器でSNG収率、冷ガス効率、BTX収率を最大にする三種のモードの運転が可能にすることを特長とする。そのための反応器として、第1段高温熱分解のため水素・酸素バーナーをもつインジェクターを配し、その滞在時間を1秒以下にとり、第2段の水素化分解は、ドラフトチューブを有する内部循環方式にクエンチガスを添加できる構造を提案した。

SNG製造能力 300万Nm³/日で、三つの運転モードをとり得るプロセスを開発する全体計画を5年間の調査を踏まえて次のように提案した。全体としては、要素研究（4年間）と50t/dの規模のパイロットプラント運転研究（8年間）で反応器と周辺機器の基本的な開発を終える。次に200t/d規模のデモンストレーションプラントにスケールアップして、チャーガス化による水素製造システムと組み合わせたトータルシステムを実証し、商業化するものとする。要素研究段階では、小型の試験装置によるシミュレーションの結果の実証実験、水素・酸素バーナーやインジェクターの試作やコールド/ホットモデルテスト等による反応器の開発、チャーの流動層冷却器などの周辺技術を開発実施する。パイロットプラント試験では、実用化に必要なエンジニアリングデータの取得、スケールアップ技術の確立、機器、材料の耐久性や安全運転性の確認等を行う。デモンストレーションプラントにスケールアップをはかり、実用化の為の信頼性、経済性を実証する。開発の段階において明瞭な目的を掲げ開発を進めると共に、開発を支援する基礎研究体制を整備して、両者の連携により合目的性の高い合理的な研究を推進する必要がある。

水素・酸素バーナーの開発に関しては、構造、点火法、監視法等について文献、特許を調査した上で、バーナー構造を提案した。形式としては、外部混合方式を選定した。要素

技術開発で使用するホットモデル試験用とパイロットプラント用のバーナーのノズル形状とその寸法を概算した。

一方、水素・酸素バーナーの着火燃焼特性を把握するため水素・酸素間の反応の化学平衡計算を実施した。また、着火特性や火炎伝播速度に関する文献調査を行い、ARCHの圧力、酸素比でのデータはなく、今後実験で確認する必要があると結論した。実験項目としては、目視観察やLIF (Laser Induced Fluorescence)による火炎の温度、成分計測による常圧／高圧着火実験の計画を立案した。また、水素・酸素の燃焼流動シミュレーションモデルを整備した。

ARCHのインジェクターの開発に当たっては、本インジェクターが単に水素・酸素バーナーを組み込んだだけでなく、反応器内に配置した時に石炭と高温水素を十分に混合し、循環流動を起こさせ、反応温度を制御できねばならない点に特に留意した。その開発は、水素・酸素バーナーを確立し、これを搭載するインジェクターを組み、その性能をコールドモデルテスト、ホットモデルテストで試験し、石炭・水素の混合性、反応器の流動状態に優れたものに改良するための開発計画を立案した。

1段目で $\sim 900^{\circ}\text{C}$ 、滞在時間 ~ 1 秒で石炭を分解し、2段目でガス温度を下げて長時間滞留させBTX収率を高めるARCHの基本概念にとって、反応のシミュレーションモデルを組み、①第1段目の滞留時間が、2段目でのBTX収率に与える影響、②2段目の混合状態がBTX収率に与える影響について検討した。1段目については、平成4年度に提案したモデルを太平洋炭以外の石炭に適用して、その有効性を確認できた。2段目では、押し出し流れ、完全混合流れ、リサイクル流れを想定して推定した。計算結果によれば、2段目の滞在時間と共に増加し、極大値をとった後、減少する。BTX収率の極大値は、1段目の滞留時間が小さく、2段目の温度が低く循環比があがるほど増加した。BTX収率が極大となる2段の滞留時間は、2段目の反応温度が上がり循環比が小さくなるほど、短くなる。2段目反応温度を 850°C とし、反応容器容積を 2 m^3 程度とすると滞留時間は、10秒程度が適当と推定される。BTX収率に対する第1段の滞留時間の影響は比較的小さく、むしろ循環比の影響の方が大きい傾向が読み取れた。シミュレーションには多くの仮定と近似が用いられているので、反応実証研究により、その精度を高める必要があろう。

反応器のスケールアップにおいては、ドラフトチューブの効果を定量的に把握する必要がある。ARCHの高圧・下向の固気混相流れの知見は不足している。高圧実機内流れを最大限再現しうる相似則のもとにスケールダウンしたコールドモデルテストにより固気混

相流れの知見を得る必要がある。そこで、調査の一環として、固気混相流れの可視化法であるレーザーシート法を発展させて、混相流の相似則に基づいて、石炭処理量 2,000 t/d の ARCH 反応器実機をスケールダウンしたコールドモデルを設計、製作し、インjekター部近傍の流れの可視化、解析に着手した。実験装置としては、反応器高さ 30 および 60 cm の二種のモデルをアクリル樹脂で作製した。クエンチガス供給口およびガス抜き出し口の位置は、3 段階で変化させられるようにした。また、ガス供給管の挿入角度を変えたインjekションフィーダーを用意した。模擬粒子に、FCC 粒子を模擬流体として常温乾燥空気を用いた。圧力は常圧、インjekションノズルガス空塔速度とクエンチガス速度を一定にし、粒子供給ノズルガス空塔速度、粒子供給量を変化させて実験した。粒子供給には、流動層型粒子供給装置を用いた、高速度ビデオカメラと高輝度レーザー光源により固気混相流を可視化し、解析した。観察の結果、リフト管と、反応器の間の環状部を上昇する粒子の流れが観測された。粒子の上昇速度はインjekションノズルガス（高温水素に相当）の空塔速度と、単位面積当たりの粒子供給速度に影響された。

水添ガス化炉から抜き出したチャーは、熱交換器を内挿する流動層冷却装置で冷やされ、水素製造系に送られる。この装置を合理的に開発する基礎資料を得るために、チャー流動層の伝熱特性を調べる必要がある。装置はアクリル樹脂性で塔径 200 mm 塔高 1,000 mm である。熱源には $10\phi \times 200\text{mm}$ のカートリッジヒーターを用い、その表面に熱電対感温部を置いた。模擬粒子にはコークスと FCC の粒子を使用、流動化ガスには空気を使用した。コークス粒子を用いた場合は伝熱係数はガス流速とともに増加し、流速 $7\text{ cm}^3/\text{s}$ では約 $800\text{ W}/\text{m}^2\text{K}$ の一定値になった。一方、モデルを用いて伝熱係数を推定し、実測値と比較したところ、ガス流 $8\text{ cm}/\text{s}$ 付近では良好な一致が認められたものの、全般的に推算値より実測値が大きくなった。今後、気泡挙動等を検討し、推定精度を高める必要があると考えられる。

水添ガス化の開発は 1940 年代に始まり、等温条件下での反応の知見を基に実用化への歩みを始め、急速熱分解の有効性を確認して、ARCH が目指す熱分解、水素化分解の 2 段階反応の制御へと進もうとしている。反応器では反応温度を維持するために熱補給が必要と認識され、水素の一部を燃焼する方式や炉内での熱交換を利用する方式が試され、ARCH ではこれらを組み合わせさらに水素化分解に適した温度域に冷却する方式を目指そうとしている。このように ARCH はこれまでの研究成果を引き継ぐ形で提案されたため、この面だけを注視すると化学原理や反応器構造のすべてが斬新で画期的とは映らないかもし

れない。しかし、今日実現を競い合っている加圧高温噴流床ガス化炉も60～70年前のアイデアに出発したことを想えば、約半世紀にわたり蓄えた経験を着実にまた一步前進させる努力も必要といえよう。今後は経済性の感度分析等で指摘される課題を、システム構成の妥当性と各要素技術開発で解決して行くわけで、完成した暁にはARCHは一つの総合技術としての独自性と新規性を備えていることになるだろう。また、石炭の急速水素化熱分解現象の科学的解明は十分ではなく、ARCHの開発とそれを支援する基礎研究が進めば反応過程や新現象が明らかにされ、これらを取り込んで新たな原理に基づくプロセスへと発展する場合もあり得る。こうした可能性を秘めたARCHの研究開発が発進できることを祈るものである。

第3章 ガス化技術の開発動向と将来展望

3. 1 世界の石炭ガス化技術の開発動向

石炭をガス化することによりクリーンな流体燃料あるいは基礎化学工業原料に転換するさまざまな技術が開発されてきた。ARCHプロセスはこれまで開発されてきたガス化法のうち代表的なものである水添ガス化、部分酸化及びマイルドガス化の3つの長所を組み合わせたプロセスと云えよう。ARCHプロセスの機能を最大にするには、その目的とする生成物の組成により、それぞれのガス化法の寄与の度合の最適化と個々のガス化法の効率の最大化を計ることが必要である。このような観点からARCHプロセスの今後の開発のため、その要素ガス化技術の開発の動向を簡単にレビューすることにした。今回は紙面枚数に制限があるため、部分酸化、つまり所謂石炭のガス化に主眼を置き、水添ガス化について極簡単にふれるだけにとどめた。

3. 1. 1 石炭ガス化（部分酸化）技術開発の現状

所謂第一世代のガス化炉として、移動床式のLurgi、流動床式のWinkler及び噴流床式のKoppers-Totzek法がこれまでの代表的なものであったが、1970年代から80年代にかけて、高効率化と炭種適応性の拡大を目指した改良・開発が行われ、1980年代には高温、高圧ガス化の第二世代ガス化法の全盛時代を迎えた。第3.1-1表及び第3.1-2表にその代表的なものの運転条件と運転成績の代表例を示す。1980年代にはいくつかのガス化炉の商業生産が開始されたが、大部分は化学原料の生産が目的であった（第3.1-3表）。1984年に運転を開始したSouthern California EdisonのCool Water発電所に於けるTexaco炉に基づくIGCC（石炭ガス化複合サイクル）発電プラントの環境適応性が評価され、発電への適用を目指した開発の機運が一挙に高まった。HTW（High Temperature Winkler）が1985年以来メタノール製造を目的に、1.0MPaで設計・運転されていたのを、1989年にIGCCを目的に2.5MPa仕様に改造したのはその好例である。しかし、技術的な信頼性の点で、どのガス化法も十分な実績がなく、80年代後半以後、石炭火力発電プラントの更新に際し、新発電方式を導入しようと考えていたところは、オランダDemkolecの例外を除き、IGCCではなく、これより若干効率が低く、環境負荷が大きいが、技術的な信頼性の高いAFBC（常圧流動床燃焼）あるいはPFBC（加圧流動床燃焼）方式の発電プラントを導入し

第3.1-1 表 主なガス化炉のタイプとガス化条件³⁾

Gasifier	Bed type	Ash	Feed			Oxidant	Steam	Pressure, MPa	Temperature, °C	
			type	fuel	size, mm				reaction	exit
BG/L	moving	slagging	dry	B, SB	5-50	O ₂	+	2.5	>2000	450
HTW	fluidised	dry	dry	Lig	<6	O ₂ /air	+	1.0	<1000	850-950
U-Gas	fluidised	agglomerating	dry	B, SB	<6	O ₂ /air	+	0.4-3.2	950-1090	NA
KRW	fluidised	agglomerating	dry	B, SB	<5	O ₂ /air	+	2.1	870-1040	<1010
Texaco	entrained	slagging	slurry	B	<0.5	O ₂	-	4.1	1260-1540	<800
DOW	entrained	slagging	slurry	SB, Lig	NA	O ₂	-	2.2	1320-1430	<1038
Shell	entrained	slagging	dry	B, Lig	<0.1	O ₂	+	3.0	2000	900
PRENFLO	entrained	slagging	dry	B, SB, Lig	<0.1	O ₂	+	3.0	1500-2000	1350-1600*
GSP	entrained	slagging	dry	SB, Lig	<0.2	O ₂	+	3.0	1600-2000	NA

* temperature of exit gas before quenching by cold gas

B bituminous coal

SB subbituminous coal

Lig lignite

NA data not available

第3.1-2 表 主なガス化炉の運転成績³⁾

Gasifier	O ₂ consumption kg/kg-coal, maf	Steam consumption kg/kg-coal, maf	Carbon conversion, %	Product gas HHV, MJ/m ³	Cold gas efficiency, %	Remarks
BG/L	0.52	0.36	99.9	13.2	88	bituminous coal, liquor production
HTW	0.54	0.36	96	11.5	85	brown coal
U-Gas	n/a	n/a	95.3	5.0	69.6	bituminous coal
KRW	0.68	0.44	95	12.1	80.8	bituminous coal
Texaco	0.9	0	97.2	10.1	74.3	bituminous coal
DOW	0.86	0	98.9	9.8	77	subbituminous coal
GSP	0.8	0.3	98	10.8	85	subbituminous coal
Shell	0.89	0.3	99	11.2	81.0	bituminous coal
PRENFLO	1.03	0.06	99.3	11.8	79.6	subbituminous coal

第3.1-3 表 主なガス化炉の商業運転・実証運転状況³⁾

Gasifier	Project or company	Location	Coal throughput, tonnes/day	Product (final)	Start-up
2nd generation gasification plants in commercial operation					
Texaco	Tennessee Eastman	Tennessee, USA	820	methanol	1983
Texaco	Cool Water	California, USA	910	IGCC	1984
Texaco	Ube Industry	Ube, Japan	1500	ammonia	1984
Texaco	Ruhrkohle/Ruhrchemi	Oberhausen, FRG	1720	Oxo chemicals	1986
HTW	Kemira Oy	Oulu, Finland	600	ammonia	1988
2nd generation gasification plants in demonstration operation					
Ruhr 100	Ruhrgas	FRG	100-200	fuel & synthesis	1979
BG/Lurgi	British Gas	Westfield, UK	500	fuel & synthesis	1984
Kiln Gas	Allis-Chalmers	Illinois, USA	540	fuel gas	1983
U-Gas	IGT	Chicago, USA	27	fuel & synthesis	1974
KRW	Kellog-Rust-Westinghouse	Pennsylvania, USA	14-27	fuel gas	1975
HTW	Rheinbraun	Berrenrath, FRG	720	methanol	1985
VEW	VEW	Dortmund, FRG	240	fuel & synthesis	1985
PRENFLO	Koppers-Totzek	Furstenhausen, FRG	48	fuel & synthesis	1986
Shell	Shell	Texas, USA	230-360	fuel & synthesis	1987
Dow	Dow	Louisiana, USA	2200	IGCC	1987
Saarberg-Otto	Saarberg-Otto	Furstenhausen, FRG	260	fuel & synthesis	1979
MIP	Humboldt/Sumitomo (MEFOS)	Lulea, Sweden	240	fuel & synthesis	1986
NEDO	NEDO	Chiba, Japan	20-50	hydrogen	1991
NEDO	NEDO	Iwaki, Japan	200	IGCC	1991

た。しかし、環境問題に対する世界的な意識が一層高揚し、発電への適用を目指して進めてきた実証試験の成果が評価されてきたこともあり、90年代に入り、I G C C方式による商業発電の機運が再度高まってきており、米国を中心にさまざまなプロジェクトが計画されている。又、燃料電池開発の進展とともに、石炭ガス化と燃料電池を連結したI G F C発電の検討も進められており、次章にI G C Cへの適用と合わせて紹介する。

3. 1. 2 石炭ガス化技術（部分酸化）実用化の動向¹⁾

(1) I G C C発電への適用

イ) Demkolecプロジェクト(Shellガス化炉、オランダ)

オランダ電力協議会(S E P)の本プロジェクト実施機関DemkolecがBuggenumのE P Z発電所内に建設したShellガス化炉をもつ250MWのI G C C発電プロジェクト。1991年建設に着手し、1993年末完成。1994～1996年の3年間は実証テスト期間、終了後はE P Zに引き渡され商業運転に入る予定。酸素吹きで石炭処理量は2,000トン/日。SiemensのV 94.2ガスタービンにより156MW、スチームタービンにより128MWを発電。ガス化炉の冷ガス効率は80～82%、I G C Cの送電端効率43%(L H V)を予定している。

ロ) Wabashプロジェクト(Dowガス化炉、米国)

インディアナ州にあるP S I Energy, Inc.のWabash River発電所の6基の火力発電プラントのうちの1基をDowガス化炉をもつI G C Cプラントに建てかえようというD O Eの資金援助を受けたP S I社とDestec Energy, Inc.との共同プロジェクト。これはDowのL G T I (Louisiana Gasification Technology, Inc.)がルイジアナ州Plaquemineに於て1987年以来実証テストを行ってきた酸素吹きガス化プロセスの商業化。1993年に着工、1995年完工予定。正味出力は262MW。G EのMS7001Fガスタービンにより192MW、スチームタービンにより105MWの電力を生産。ヒートレイトは現在のL G T Iのプラントより20%低い(効率が高い)9,025BTU/kWh。1994年8月時点で、すべての主要設備の設置を完了、12月にはガスタービンの試運転を開始しており、実ガスによる運転は95年7月開始の予定。

ハ) P O L Kプロジェクト(Texacoガス化炉、米国)

Tampa Electric Companyがフロリダ州TampaのP O L K発電所にD O Eの資金援助を得て、酸素吹きTexacoガス化炉をもつ250MWのI G C C発電プラントPolk Unit1を建設しようとするプロジェクト。これはTampa地域の電力需要の増加に対応し、発電所の能力を増

強しようとするもの。予定では1994年着工、1996年完工・運開ということになっている。
使用予定のガスタービンはGE 7F。このプロジェクトで特徴的なのは、高温ガス洗浄
(480~540 °C) を採用しようとしていることであるが、詳しいことは不明。1994年8月時
点で、主要設備の発注を完了、現場工事が進行中。

ニ) Puertollano プロジェクト (PRENFLOガス化炉、スペイン)

CECの資金援助により、スペインのPuertollano に PRENFLOガス化炉をもつ 300MWの
IGCC発電プラントを建設するプロジェクト。実施主体は、Empresa Nacional de
Electricidad, S. A., Krupp-Koppers, Siemens, Babcock & Wilcox Espanola等11社によ
り構成されるコンソーシアムであるELCOGAS。1994年着工、1996年完工・試運転開始の予
定。酸化剤として 85vol%の酸素を使用。Siemens V94.3 ガスタービンにより 190MW、ス
チームタービンにより 145MWの電力を生産。正味の発電効率は45% (LHV) を予定。

ホ) KoBra プロジェクト (HTWガス化炉、ドイツ)

Rheinbraun AG とRWE Energie AGがケルンの近くのRWE のGoldenberg発電所に建設中の
高圧HTWガス化炉をもつIGCC発電プラント建設プロジェクト。高圧HTWは運転圧
力27bar、空気吹き。正味の出力 312MW。Siemens /KWU V94.3 ガスタービンにより 212
MW、スチームタービンにより 155MWの電力を生産。総合発電効率45% (LHV)、ヒート
レイト7,580BTU/kWh。1994年着工、1996年完工の当初予定が3~4年後送りされ、運転
開始が2000年にずれ込むとの見通し。

ヘ) Pinon Pineプロジェクト (KRWガス化炉、米国)

Sierra Pacific Power CompanyがDOEの資金援助を受けて、ネバダ州にある自社の
Toracy発電所内に、空気吹きKRWガス化炉をもつIGCC発電プラントを建設しようと
するプロジェクト。1995年着工、96年完工、実証運転開始。正味の出力は95MW。GEのMS
6001FAガスタービンにより61MW、スチームタービンにより40MWの電力を生産する。本プロ
ジェクトでは高温ガス洗浄が行われ、セラミックキャンドルフィルターが脱塵に、亜鉛系
の混合金属酸化物 (Z SORB) が脱硫に使用される予定。ヒートレイトは8,470BTU/
kWh を予定。

ト) ポーランドのIGCCプロジェクト

石炭火力発電による大気汚染を防止する計画の一環として、既存プラントの一部をIG
CCに更新するためのFSがIEn-NPC (Institute of Power Engineering, Poland)
とECN (Netherland Energy Research Foundation)との協力により行われている。これ

までまとまった計画では、更新の第一弾として、クラカウに近いSilesia のSiersza 発電所の2基の発電プラントをそれぞれ110MWのIGCC発電に変えようとするもの。ガス化炉、ガスタービン、ガス洗浄方式等の選定は検討中。

チ) スウェーデンのIGCCプロジェクト-NEXプロジェクト

NEX (Nynas Energy Chemicals Complex) とState Power Board が協力して進めているプロジェクトで、ストックホルムから50km南のバルト海に面したNynashamにあるNynas石油の製油所の隣接地にIGCC発電プラントを建設しようとするもの。第一期365MW、第二期にも365MW、合計730MWの発電プラントの建設を予定している。建設時期は未定。使用するガス化炉はTexacoに決定しているものの、その他の設備については検討中。このIGCCプロジェクトが他とかわっている点はデザインフィードが隣接の製油所から供給されるオリマルジョンであること。しかし、減圧常留残油でも石炭でもフィードとして使えるような設備になっているとのこと。

リ) インドのIGCCプロジェクト

インド政府が、灰分の非常に多い(多いもので40%)インド石炭の有効利用の一環として進めようとしているプロジェクト。現在、USAID (US Agency of International Development)の資金援助によりインド政府と民間の専門家によるチームとBechtel が、Shell、Texaco、KRW及び移動床式ガス化プロセスをベースにしたIGCCのインド石炭への適応性等の評価を実施している。このFSで効率、コスト等あらゆる面で高温ガス洗浄を備えた空気吹き of KRWが最も有望との結論がでている。プラントの規模は600MW。GE9Fガスタービンを2基設置する予定。IGCCの商業化の第一ステップとして1995年迄にデモプラントを作るとというのが第8期5ヶ年計画に於けるインド政府の方針である。最初の実証テストが行われたあと10年間で現在の石炭火力プラントの5~10%をIGCCに建て替える計画。

(2) IGFC発電への適用

IGFC発電は、燃料電池として使われる熔融炭酸塩型燃料電池(MCFC)がまだ実用化の段階に達していないため、FSあるいは小型プラントによる評価テストの段階をでていないが、EPR Iがスポンサーとして資金援助している2つのプロジェクトを紹介する。

イ) Dow-MCFCプロジェクト

Destecがルイジアナ州PlaquemineにあるL G T I の 160MWのDow ガス化プラントからの生成石炭ガス（洗浄済み）の分岐流路（45.4kg/hr）にE R Cの20kWのM C F Cを組み込んで試験をするプロジェクト。このプロジェクトの主たる目的は実際の石炭ガスに対するM C F Cの適応性の検証と 4,000時間の耐久試験を行うこと。これまでにM C F Cの組み込みが完了し、耐久試験を実施中。石炭ガスの分岐流路には酸化亜鉛の高温脱硫剤が入っており、M C F C入口ガスの硫黄濃度が0.1ppm以下になるようにしてあり、実ガスの試験結果と天然ガスを用いた試験結果は、電圧、起電力とも殆ど差がなかった。一通りのテスト終了後はこのテスト結果はMW級の次のステップの実証試験に反映される。

ロ) B G L - M C F C プロジェクト

Flour DanielがE P R Iからの委託を受けて行った石炭ガス化とM C F Cとの複合発電プラント(430MW)の概念設計を行うプロジェクト。M C F CはE R Cの 140kW/stack(1 stack は2' × 2' × 300cell)の容量のもので、常圧仕様として10kg/cm²仕様のもの。最終的に選ばれたガス化プロセスはB G Lの70kg/cm² (1,000psi)仕様のもの。30kg/cm²仕様のものに比べて冷ガス効率が 6.3%高く、酸化剤及びスチーム消費量がそれぞれ14.4%及び13.3%削減でき、プラント全体の設備コストも5%削減できる。これは、ガス化炉生成ガスのメタン濃度が、高圧の場合の方が51%も高い(10.1 VS 6.7mol%)ことによる。このプロジェクトの結論として、以下のことが指摘された。I G F Cの効率、経済性等の面で最も重要な鍵となるのは、ガス化プロセスの性能である。水添ガス化や接触ガス化は、メタン生成量が大であるから、このI G F Cの有力候補である。ガス化炉とF Cとの間の化学的一体化としての水素のリサイクルを検討すべきである。

3. 1. 3 石炭の水添ガス化技術開発の動向²⁾

石炭の水添ガス化技術は1970年代から80年代の前半にかけ、米国のI G TやRockwell International 社等により、又、80年代半ばより90年代初期にかけBritish Gas と大阪ガスのJ Vにより研究され、急速水素化熱分解法(Flash Hydrogasification)やガス内部循環型水添ガス化法等の優れたガス化法を生み出した。現在A R C Hプロセスで提案している水添ガス化法は、これら2つのガス化法をベースにして発展したものである。現在水添ガス化法について研究を継続しているところは、少なくとも文献で知る限りはあまり多くない。わずかに東京ガス、大阪ガス、British Gas 等に於いて、反応器構造の最適化、反応条件と生成物分布との相関々係等、東北大学に於いて鉄系触媒を用いた水添ガス化の研

究がされている程度である。そう遠くない将来、天然ガスの供給が逼迫し、価格が高騰するときに必ず来ると予想される。そのときは石炭からの高カロリーガスが都市ガスとして又、3. 1. 2章の(2) -ロ) で述べたよう I G F C 発電の燃料として必ず必要になるはずである。それまでに A R C H プロセスをいつでも実用化できる技術水準まで高めておくことが是非とも必要である。

このことは、なにも日本国内だけの必要性にとどまらず、中国のような、主たるエネルギー源を石炭に頼り、酸性雨の問題に悩んでいる国々への支援という点でも非常に重要である。このような国々に於いては自国内のみならず、周辺国への酸性雨の被害の拡大ということを考えると、世界的な天然ガス供給の逼迫化を待つまでもなく、A R C H のような技術があればすぐにでも実用に供したいと考えていることであろう。

北京ではコークス炉ガスを都市ガスとして使用しているが、2000年までに年間7億 m^3 の天然ガスを内陸の天然ガス田より導入する計画があるというが、これには、960kmのパイプラインをひく必要があり、インフラ整備に莫大な投資が必要となることから、2000年を目標に石炭水添ガス化技術を導入したいと考えている。これは北京に限らず、上海や広州のような人口密度の高い地域ではどこも考えているようである。しかし、自国にその技術がないため、日本との共同研究を切に望んでいる。このようなことは中国のみならず、旧東欧諸国も同じ悩みをもつことを考えると、一日も早くA R C H の技術を完成させることは日本の使命ではなかろうか。

文献

- 1) Proceedings: 9th EPRI Conference on Gasification Power Plants, October 17-19, 1992, Palo Alto, California and 12th EPRI Conference on Gasification Power Plants, October 27-29, 1993, San Francisco, California
N. A. Holt: Gasification Power Plants-Technology Status Update for the meeting of Utility Gasification Association, San Francisco, CA, October 18, 1994.
- 2) 野口冬樹: 石炭水添ガス化による代替天然ガス (S N G) の製造; 動力vol. 41, No. 209, pp22-27 (1992)
津留義通: 将来の石炭からの都市ガス製造技術; 燃料及燃焼vol. 61, No. 5, pp323-330 (1994)
Asami, T., Ohtsuka, Y.: Hydrogasification of Brown Coal with Active Iron

Catalysts from Ferric Chloride; Prepr. pap. Am. Chem. Soc. Div. Fuel Chem.,
vol. 37, No. 4, pp1951-1956 (1992)

- 3) Takematsu, T., Maude, C: Coal Gasification for IGCC Power Generation; IEACR/
37, March 1991, IEA Coal Research, London

3. 2 開発推進と国際協力

平成2年度からの5年間の調査研究で、日本の将来のエネルギー需給予測をベースに、日本における石炭SNGの必要性を調査し、日本において望ましい石炭SNGプロセスとしてARCHプロセスのコンセプトを確立し、その開発全体計画を提案した。第2章 2.2に述べられているように、ARCHプロセスを実用化可能な技術に育て上げるには、要素研究・パイロットプラント研究・デモプラント研究と段階的に推進してゆくことが必要で、その開発期間は十数年程度、開発費用は、数百億円程度と見積もられている。このような長期間の研究開発においては計画的・効率的な推進が必要で、早期に要素研究を開始し、次段階に進む前には取得したデータをベースにその時点での客観的な評価を実施すべきである。

石炭ガス化技術開発の国内の動向としては、ARCHプロセスからの生成チャーのガス化に不可欠なHYCOLプロセスのパイロットプラント運転研究が平成5年度に1,000時間以上の連続運転に成功して終了した。今後の開発課題としてはガス化炉のスケールアップ研究や負荷変動試験等のガス化炉本体の長期性能確認テストや製造ガスを燃料電池に使用するためのガス精製技術の確立等があり、それらに取り組む研究開発の動きがある。

一方、石炭ガス化技術開発の欧米の動向としては、大型プロジェクトとして進められているもののほとんどは、ガス化複合発電のプロジェクトである。しかし、アジア・太平洋地域では著しい経済成長に伴う天然ガスの急激な需要増大が予測され、需給バランスのくずれによるLNG価格への影響も憂慮されはじめている。したがって、この地域内のエネルギー安定供給のために、石炭SNGの必要性が認識されはじめている。

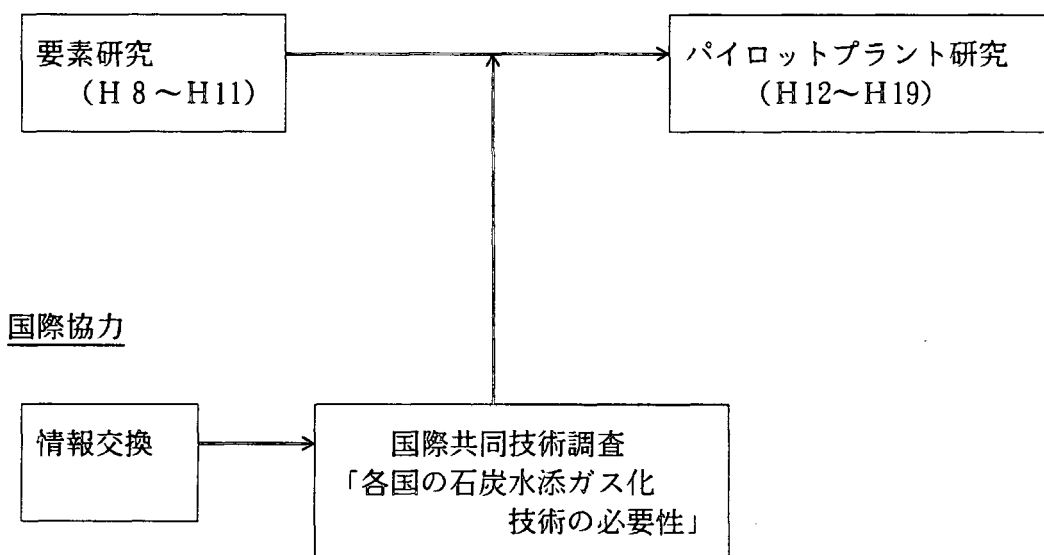
さらに、今年度実施された海外調査（国連の第2回中国ミッションに参加）によると、中国は、民生用燃料としてコークス炉ガス等石炭利用の都市ガスの普及を推進しているが、今後の石炭利用技術として、毒性がなく、高カロリーガスの製造可能な石炭水添ガス化技術に大きな興味を示し、日本との共同開発を希望している。大量の石炭消費国である中国における石炭のクリーンユース技術の開発・普及は、地球環境上わが国の酸性雨対策にも有益であり、この分野の共同開発は国際協力としても有意義な課題である。

しかし、この分野の国際協力の進め方に対しては、十分な検討が必要である。石炭水添ガス化技術に関しても、各国の事情により、その国に望ましいプロセスは異なり、必ずしも今回提案した我が国として望ましいARCHプロセスと一致するとは言えない。例えば

中国ではコークス炉ガスから比較的安価な水素が得られる可能性があり、チャーはブリケット等にして利用できる可能性もあり、ARCHプロセスと異なったコンセプトの組み立ても考えられる。したがって、まず、情報交換を深め、さらに、本調査研究のような技術調査を共同で実施し、共通の開発課題の抽出が必要であろう。例えば、可能性のある案としては、ARCHプロセス全体開発計画で、要素研究は日本単独で早期に立ち上げ、その間、別体制で国際協力下の技術調査を実施し、パイロットプラント研究段階で国際共同開発プロジェクトとして合流することも考えられる。

例

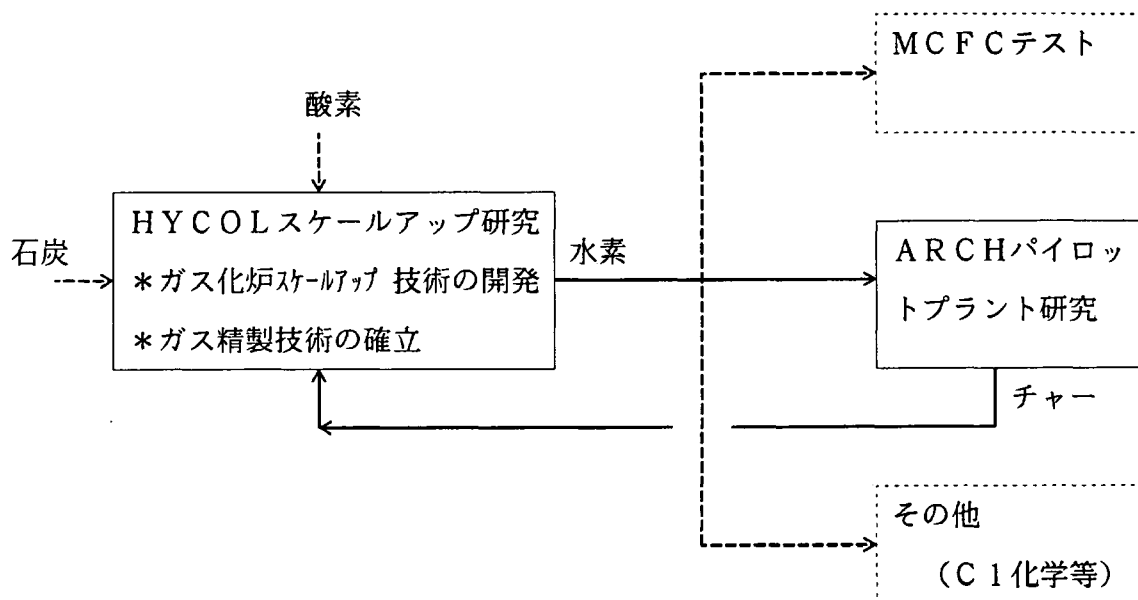
ARCHプロセス開発



パイロットプラント研究段階の効率的な推進の例として、次の2つの可能性が考えられる。パイロットプラント運転研究を効率的に進めるには、安定した水素供給が可能で、かつチャー等の生成物の処理が容易な場所が好ましい。

ケース 1. HYCOLスケールアップ研究の活用の可能性：

HYCOLスケールアップ研究において、ARCHプロセスから生成するチャーのガス化性能確認テストを実施することや、HYCOLスケールアップ研究で得られる水素をARCHプロセスで利用すること等が考えられる。



ケース 2. 日中共同開発プロジェクトの可能性：

中国において、安価なコークス炉ガスより安定して水素を製造し、ARCH反応器回りを中心に開発を進める。生成ガス、液体生成物及びチャーを例えば、既設コークス炉及びその精製工程に戻して処理することにより付帯設備が不要になり、開発の効率化が期待できる。

第4章 5年間の総括

天然ガス高度改質有効利用調査等（石炭水添ガス化技術開発調査）は、通商産業省資源エネルギー庁より、NEDOに委託された調査事業であり、平成2年度より5年間にわたり調査を行った。

平成2年度、3年度の調査では、石炭からSNGを製造することの必要性、石炭水添ガス化プロセスを含むSNG製造プロセスの調査、基本的なSNG製造プロセスのフィージビリティ・スタディ、要素技術の調査・評価、開発課題の抽出、パイロットプラントの基本構想、実用化のスケジュール等について検討された。

さらに平成4年度の調査では、石炭水添ガス化の新しいプロセスについて調査を継続し、BTX収率の向上および熱効率の向上の可能性について検討した。我が国が開発すべき石炭水添ガス化プロセス（ARCHプロセスと呼ぶ。Advanced Rapid Coal Hydro-gasification）は、一つのガス化炉で ①SNG収率最大 ②熱効率最大 ③BTX収率最大 という3つの目標を運転条件の変更によって達成し得るフレキシビリティのあるものを目指すべきであると提言された。平成5年度の調査では、このプロセスのパイロットプラントを設計・建設するために残されている要素開発項目を抽出し、パイロットプラントの運転研究に至るまでの開発計画について検討された。平成6年度の調査では、5年間の調査をまとめ、スムーズに要素研究に移行するための準備のための調査を行った。

これまでの5年間の調査の中で、石炭SNG導入に関して明らかになったポイントは、次の通りである。

- ①需要が急激に伸びている天然ガスの供給基盤をより安定なものにしておくために、SNGの製造技術を開発しておく必要があること。
- ②そのSNGの原料としては資源量の豊富な石炭を使用すべきであること。
- ③石炭からSNGを製造する方式の中で、石炭水添ガス化法が効率および経済性の面から最適であること。
- ④効率向上、経済性向上を目的に検討を継続した結果、この石炭水添ガス化法におけるBTX収率増大の可能性および経済性向上の可能性が確認されたこと。

4. 1 石炭からの代替天然ガス製造の必要性

(1) 世界のエネルギー資源埋蔵量

世界のエネルギー資源埋蔵量は、第4.1-1 表に示した通りである。これによれば、石油の可採年数（R／P）は45年と最も少なく、次いで天然ガスは64年、ウランは74年であり、石炭は 219年と天然ガスの約 3.4倍であり、石炭の資源量がきわめて大きいことがわかる。また、化石燃料の分布地域については、第4.1-1 図に示されるように、石油の70％近くが中東地域に偏在しているのに対して、石炭は世界各地に存在している。

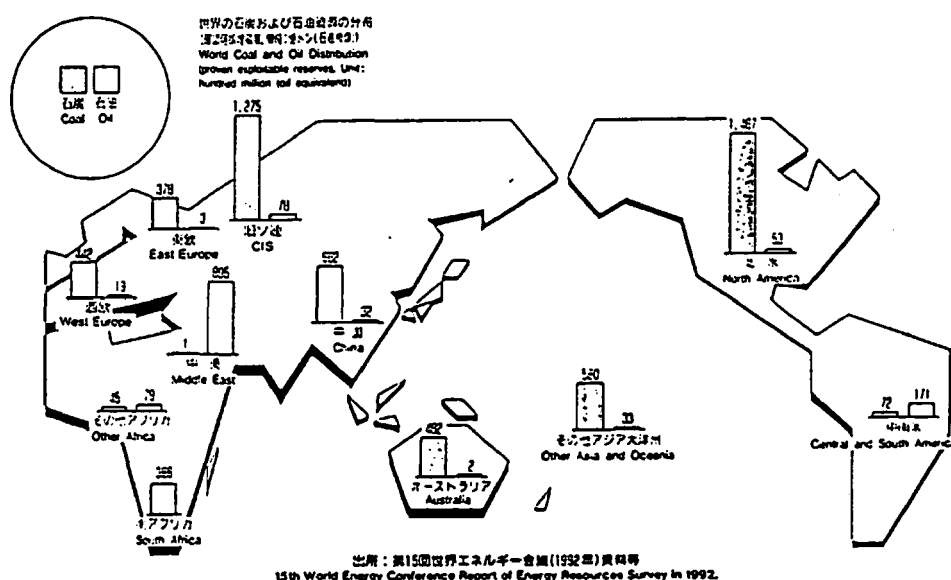
このように石炭は、石油や天然ガスに比べて量的に極めて大きな資源であるのみならず、世界各国に分散していることから、安定的な供給が確保されやすく、ナショナル・セキュリティの観点から優れたエネルギー資源である。

第4.1-1 表 世界のエネルギー資源確認可採埋蔵量

	資 源 量	可 採 年 数
石 油	9,970 億バーレル	45 年
天然ガス	138 兆m ³	64 年
石 炭	10,392 億トン	219 年
ウ ラ ン *	200 万トン	74 年

(* 共産圏を除く)

(出所) 第15回世界エネルギー会議 1992年



第4.1-1 図 世界の石炭および石油資源の分布

(2) 我が国における天然ガス需要の急激な増大

もともと、日本国内における天然ガス利用は、生産地である新潟県を中心にローカルな利用に限定され、1960年代前半は、国内一次エネルギー供給の1%を占めていた。LNG（液化天然ガス）が、1969年初めてアラスカから輸入されて以来、日本の輸入LNG量は順調に延びてきており、1992年度には4,070万トンになっている。（第4.1-2表、第4.1-2図）その3/4が発電用燃料に、残りの1/4が都市ガス用に使用されている。また、1992年度の日本の一次エネルギー供給に占める天然ガスの割合は、10.6%に達し、石油（58.2%）石炭（16.1%）に次いで、原子力（10.0%）と並ぶ第3のエネルギーとなり、我が国の基幹エネルギーに位置づけられている。

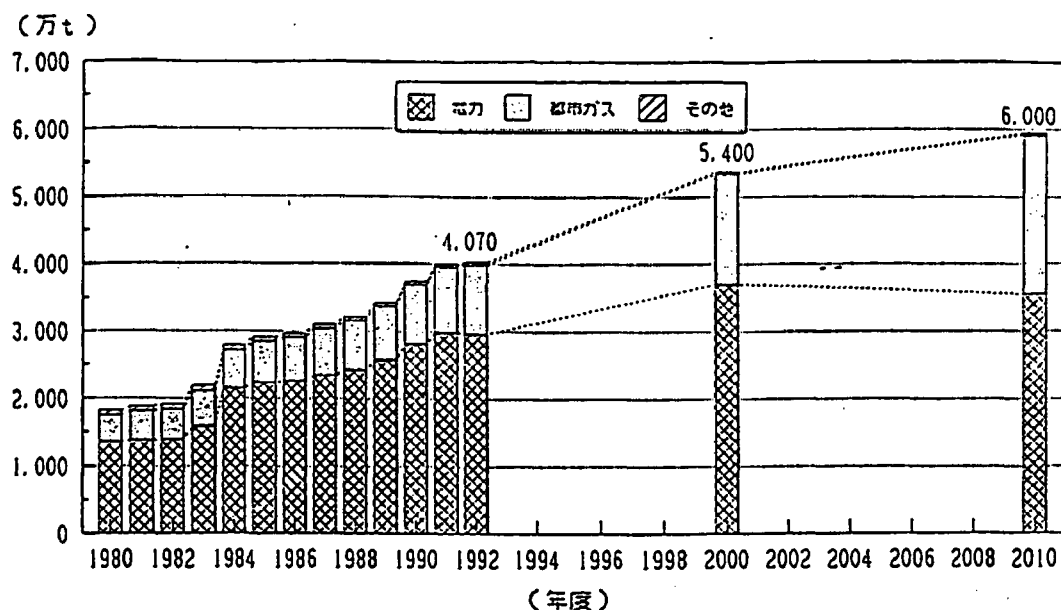
第4.1-2表 長期エネルギー需給見通し

項 目	年 度	1992年度 (実績)	2000年度		2010年度	
			A	B	A	B
一次エネルギー（百万kl）		541	589	582	660	635
区 分	エ ネ ル ギ ー 別	実 数 構成比	実 数 構成比	実 数 構成比	実 数 構成比	実 数 構成比
	新エネルギー等（万kl）	670	880	1,140	1,090	2,080
	（%）	(1.2)	(1.5)	(2.0)	(1.6)	(3.3)
	水 力（億 kWh）	790	860	860	1,050	1,050
	（%）	(3.8)	(3.1)	(3.1)	(3.2)	(3.3)
	地 熱（万KL）	55	100	100	380	380
	（%）	(0.1)	(0.2)	(0.2)	(0.6)	(0.6)
	原 子 力（億 kWh）	2,230	3,100	3,100	4,800	4,800
	（%）	(10.0)	(12.1)	(12.3)	(16.2)	(16.9)
	天 然 ガ ス（万 t）	4,070	5,400	5,320	6,000	5,800
	（%）	(10.6)	(12.8)	(12.8)	(12.8)	(12.8)
	石 炭（万 t）	11,630	13,400	13,000	14,000	13,400
	（%）	(16.1)	(16.6)	(16.5)	(15.4)	(15.3)
	石 油（百万kl）	315	315	309	331	302
	（%）	(58.2)	(53.5)	(53.1)	(50.1)	(47.7)
	合 計（百万kl）	541	589	582	660	635
	（%）	(100.0)	(100.0)	(100.0)	(100.0)	(100.0)

(注) ①各段下段の数値は、各エネルギーが一次エネルギー総供給に占めるウェイト。

②表の内、A－現行施策織り込みケース

B－新規施策追加ケース



第4.1-2 図 我が国のLNG年度別消費量推移と見通し

(3) LNG開発環境の悪化

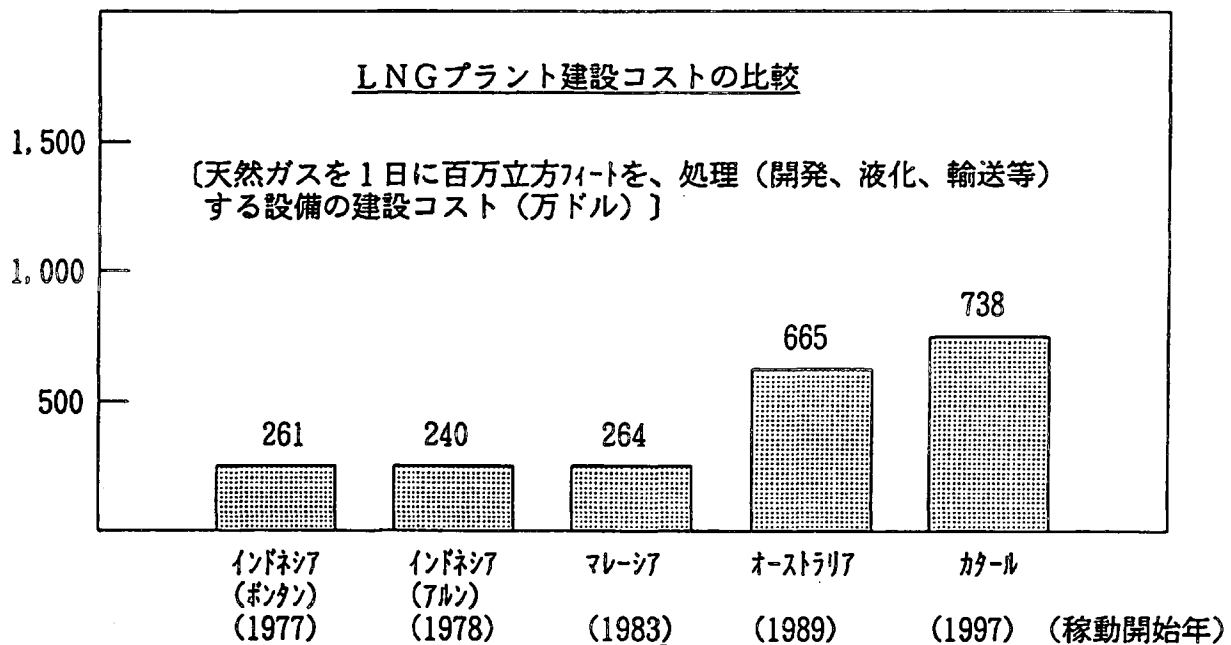
これまでの我が国のLNG供給は、インドネシア、マレーシア、オーストラリア等環太平洋を中心に、比較的近距离にあり政治的・経済的に安定し、密接な関係を持っている産ガス国のプロジェクトにより支えられてきたが、2000年以降の需要増大への対応を図るとともに、さらなる供給源の分散化によるエネルギー・セキュリティを追求する視点から、新規プロジェクトの開発が期待されている。

しかしながら、新規LNGプロジェクトに関しては、天然ガス資源をめぐる自然環境の悪化や産ガス国の政情不安による投資リスクの増大など、開発環境の変化が見られはじめている。現在、プロジェクト開発段階への移行が検討されている案件においては、ガス田が氷海、深海に存在するといった厳しい自然的条件、ガス田から積出し港までの距離が長いという地理的条件、港湾等のインフラが未整備である等の社会的条件、生産井戸1本当たりの生産性が低いと言った地質的条件、炭酸ガス等の不純物を多量に含んでいるといったガス品質等、各種の条件がより厳しくなっている傾向が見られる。(第4.1-3 表) また、LNGプロジェクトに係るコストは、近年増加傾向にあり、第4.1-3 図に示すように天然ガスを1日に百万立方フィート処理(開発、液化、輸送等)する設備の建設コストは、20年前のLNGプロジェクトのほぼ3倍にもコスト増になっている。

第4.1-3 表 予想される新規プロジェクトの問題点

・氷海（サハリン）	}	厳しい自然条件
・深海（オーストラリア）		
・密林地帯（パプア・ニューギニア）		
・高濃度炭酸ガス（ナツナ）	}	低生産性・低品質
・小規模埋蔵量（オーストラリア）		
・長距離パイプライン （アラスカ、サハリン、パプア・ニューギニア、オーマン）	}	インフラ未整備
・長距離海上輸送（オーマン、イエメン、カタール）		
		— 地理的条件

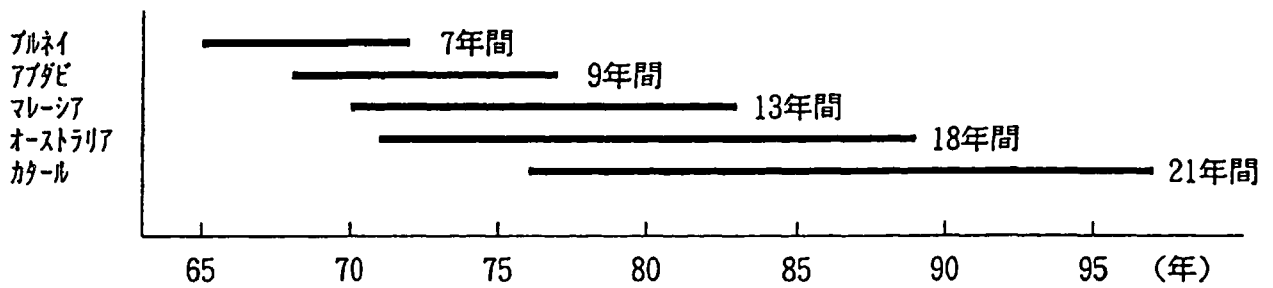
出典：日エネ学会委員会資料



第4.1-3 図 LNGプラント建設コストの比較

さらに、LNG開発プロジェクトにおいては、その開発の検討、開発体制の整備、実際の建設工事等に要する時間についても長期化傾向にあり、LNG開発のリードタイム（ガス田発見、LNG構想開始から第1船出荷まで）が長期化の傾向をみせている。（第4.1-4図）

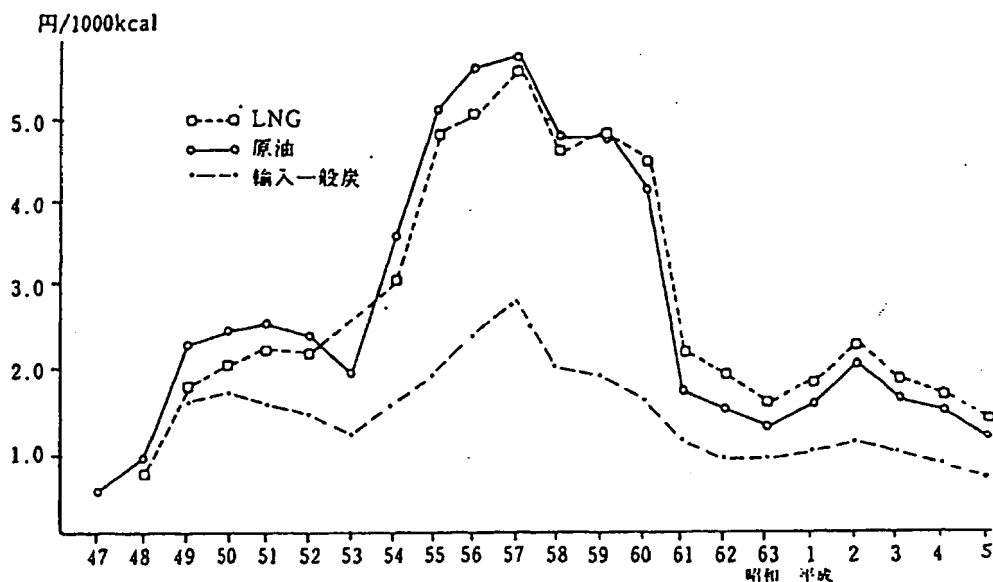
〔ガス田発見・LNG構想開始から第1船出荷まで、〕



第4.1-4 図 既存LNGプロジェクトのリードタイム

(4) LNG価格の上昇の懸念

LNGは石油代替エネルギーであり、石油との競合エネルギーの性格が強かったため、二度にわたるオイルショックで原油価格が高騰したのにもないその価格も上昇し、固定方式から、原油価格との連動方式に変更され、現在に至っている。第4.1-5表に、LNG・原油・石炭の各価格の推移を示す。21世紀には、原油の需給が逼迫し、原油価格が高騰することが見込まれる。従って、原油と連動しているLNG価格も大幅に上昇することが予想される。また、環境問題から、欧州諸国においても、発電用燃料として、従来の主力であった原子力や石炭に対する天然ガス火力の比率が高まることが予想されること、および極東においては韓国や台湾が新規のLNG輸入国として登場してきていることから、世界的に天然ガス需給が逼迫し、LNG価格が上昇することが懸念されている。



出典：日本貿易月報(大蔵省)の価格を換算

輸入一般炭 6,200kcal/kg 原油 9,250kcal/l LNG 13,000kcal/kg

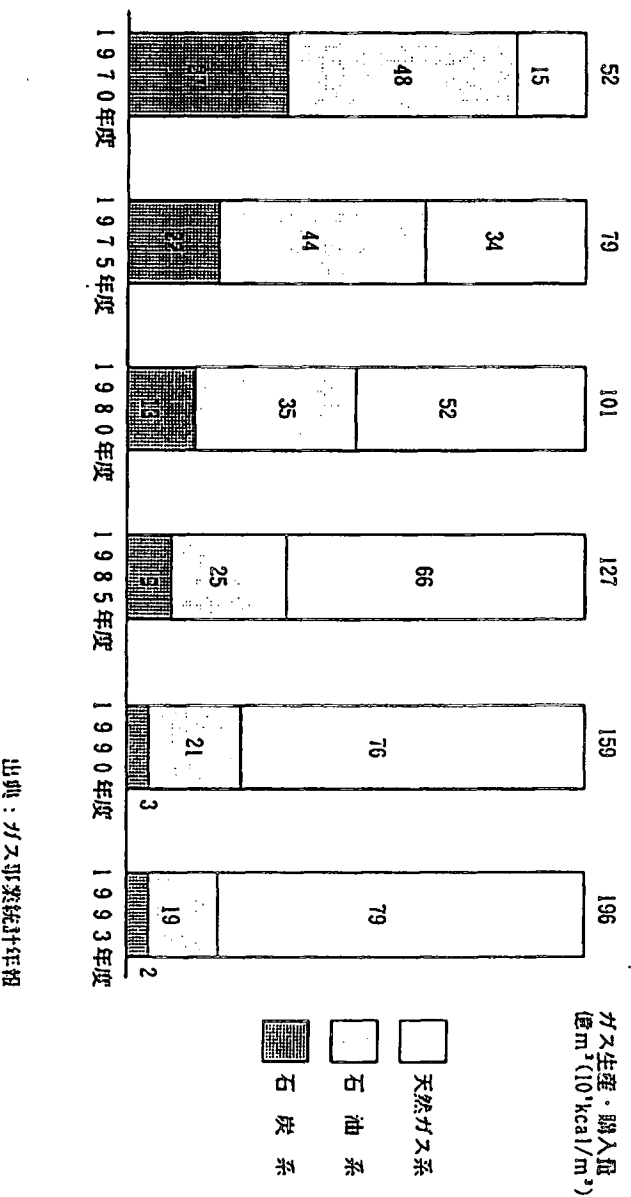
第4.1-5 図 LNG・原油・石炭の各価格の推移

4. 2 石炭利用代替天然ガス製造技術開発導入の意義

(1) 都市ガス事業サイトからの意義

都市ガス業界においては、都市ガスの使用に係わる安全の一層の向上を図るため、1 G F-21計画として、一酸化炭素を含まない高カロリーガス種への集約を2010年を目途に推進している。

一方、地球規模、地域規模の環境問題への対応として、不純物を含まずクリーンで、CO₂発生が少ない、さらには省エネルギーやNO_x低減等が比較的容易な都市ガス需要が、産業用ならびに業務用の分野を主体に増大している。この2分野で需要全体の52%を占めるに至っている。また、第4.2-1図に示すように1993年度において、都市ガスの天然ガス系原料の占める割合は、79.2%に、LNG原料の占める割合は、73.6%に達している。



第4.2-1図 都市ガスの原料構成比の推移 (%)

これら安全の高度化や環境保全、その他の社会的要請から、天然ガスの需要は拡大の一途をたどり、天然ガス系原料偏重に拍車がかかることが見込まれる。この拡大する都市ガス需要に対し安定した供給を果たすため、都市ガス原料のLNG偏重については速やかに改善を図る必要があり、また、原料価格上昇の抑制機能として、石炭からSNGを製造する技術の確立に取り組んでいくことが重要である。

（２）電力事業サイドからの意義

石炭ＳＮＧの発電燃料への適用可能性について、電力事業サイドから考察をいただき、〔石炭ＳＮＧ＋パイプライン輸送＋天然ガス複合発電〕方式は、〔遠隔地石炭ガス化複合発電〕方式と比較して、すべて発電の変換手段を経た後の効率で評価した場合、発電効率は低いものの、発電所設備利用率を高くすることができ経済性の面で優れている可能性があること、及び都市近郊の発電所立地の受け入れられ易さや、燃料の長期安定性の面から、電気事業においても石炭利用代替天然ガス製造技術開発の意義がある。

（３）国の政策からの指摘

総合エネルギー調査会ガス基本問題検討小委員会の答申から、天然ガスが我が国の基幹エネルギーとして位置づけられ、代替天然ガス設備の技術開発の必要性が指摘された。また、総合エネルギー調査会都市熱エネルギー部会からの今後のガス事業政策のあり方の提言の中にも、ガス事業基盤の一層の整備を目的に原料の安定供給確保の観点から、「石炭水添ガス化等の新技術開発に取り組んでゆくことが必要である。」と指摘された。

ニューサンシャイン計画の中で石炭水添ガス化プロセスの開発は、ニューサンシャイン計画の中長期的研究課題として、今後取り組むべきエネルギー環境技術の化石燃料高度改質技術の一つにとり上げられている。（第4.2-1 表）

第4.2-1 表 ニューサンシャイン計画のエネルギー・環境技術の重点研究開発課題

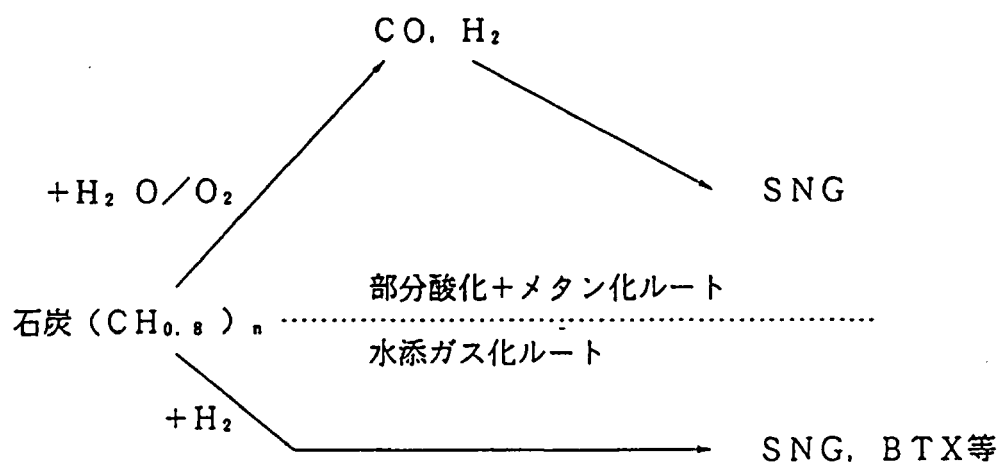
	日本及び先進国の短・中期的研究開発課題	日本及び先進国の中・長期的研究開発課題	発展途上国の短・中期的研究開発課題	世界規模の中・長期的研究開発課題
1. 再生可能エネルギー	・低コスト・高効率太陽電池製造技術 ・パッシブソーラー技術 ・深部地熱開発技術 ・バイナリーサイクル発電技術 ・大型風力発電システム技術 等 8 課題	・超高効率太陽電池技術 ・有機系（バイオ）ソーラーセル技術 ・高温岩体発電技術 ・水素燃焼タービン技術 4 課題	・太陽光発電システム技術（村落電化等） ・太陽熱利用システム技術（冷凍、乾燥等） ・風力発電システム装置、メンテナンス技術 ・バイオマス燃料化技術 ・海洋温度差発電技術 等 8 課題	・大規模太陽エネルギー利用システム技術 ・宇宙太陽発電技術 ・マグマ発電技術 ・新水素技術 4 課題
2. 化石燃料高度利用	・燃料電池発電技術（リン酸型、熔融炭酸型） ・高温／高効率ガスタービン発電技術 ・石炭ガス化複合発電技術 ・石炭利用水素製造技術 等 6 課題	・固体電解質型燃料電池発電技術 ・超伝導発電機技術 ・石炭液化技術 ・化石燃料高度改質技術（石炭水添ガス化技術等） 等 8 課題	・低品位炭利用技術（液化・ガス化） ・石炭脱灰技術 ・ボイラー等の熱管理システム技術 3 課題	
3. エネルギー輸送・貯蔵技術	・高効率蓄熱技術 ・超高効率ヒートポンプ技術 ・高効率熱輸送技術 等 5 課題	・分散型電池電力貯蔵技術 ・高密度熱輸送技術 ・化学媒体熱変換技術 等 6 課題	・ヒートポンプ排熱利用技術 ・簡易蓄（冷）熱技術 2 課題	
4. 環境対策技術	・ディーゼル脱硫脱硝技術 ・希薄燃焼技術 ・低温燃焼技術 ・触媒燃焼技術 ・金属リサイクル技術 ・複合プラスチックリサイクル技術 ・フロン分散技術 ・汚染物質分解処理技術 8 課題	・細菌・藻類利用CO₂固定・有効利用技術 ・接触水素化利用CO₂固定・有効利用技術 ・人口光合成技術 ・CO₂高温分離技術 ・第3世代フロン技術 ・生分解性プラスチック技術 ・汚染物質微生物分解処理技術 等15課題	・バイオマス有効利用技術 ・燃焼空気比改善技術 ・簡易脱硝技術 ・排ガス浄化触媒技術 ・凝集沈澱技術 ・集塵対策技術 ・活性汚泥処理技術 7 課題	・炭素循環メカニズムの解明 ・地球観測システムの構築 ・サンゴ礁の人口造成技術 ・砂漠緑化技術 4 課題
5. システム化技術		・広域エネルギー利用ネットワークシステム技術 ・経済・環境調和型石炭転換コンプレックス技術 等 6 課題	・植林プランテーションシステム技術 1 課題	・水素利用国際クリーンエネルギーシステム技術 ・サンゴ礁再生システム技術 2 課題
6. 基礎的・基盤的技術		・革新的触媒技術 等 3 課題		
課題数	27課題	42課題	21課題	10課題

（計100課題）

4. 3 石炭利用代替天然ガス製造技術開発の重要性

(1) 石炭からの代替天然ガス（SNG）製造方式

石炭をガス化してSNGを製造する方式には、第4.3-1 図に示すように、①石炭を酸素とスチームでガス化し、発生した水素と一酸化炭素からメタンを合成する石炭部分酸化＋メタン化法と、②石炭を高温高圧の水素でガス化し、直接メタンを製造する石炭水添ガス化法の二つがある。石炭水添ガス化法は、石炭部分酸化＋メタン化法に比べて熱効率が高く、運転条件によっては付加価値の高い液状製品の収率増大の可能性はある。



第4.3-1 図 石炭からの代替天然ガス製造ルート

石炭からのSNG製造プロセスの比較

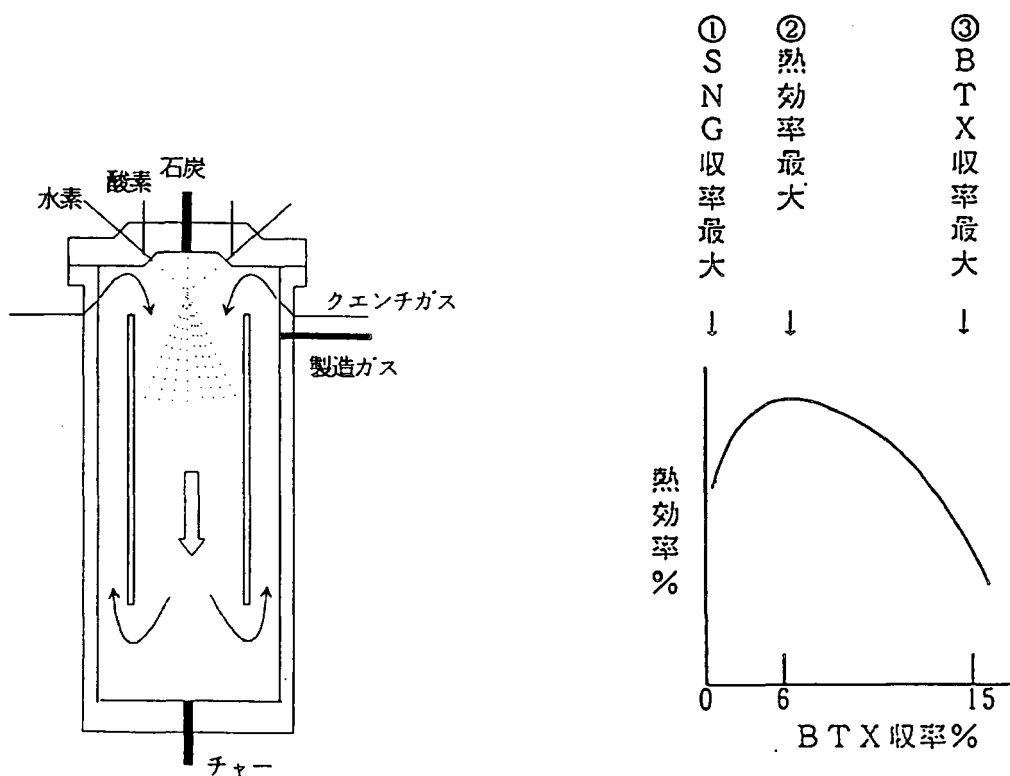
	石炭水添ガス化法 (ARCHプロセス)			部分酸化－メタン化法 (既存プロセス)
	①SNG最大	②熱効率最大	③液収率最大	
酸素の使用	無し	無し	有り	有り
熱効率 (%)	75.5	77.5	72.0	63
液収率 (%)	0	6	15	0

出典：日本エネルギー学会委員会資料

「調査」では、将来の政治情勢や不透明なエネルギー情勢に鑑み、我が国の開発すべき水添ガス化プロセスの目標としては、①SNG収率最大、②熱効率最大、③BTX収率最大の3つを掲げ、製品収率のフレキシビリティのある反応器を持つプロセスを開発すべきと提言された。（第4.3-2 図）

石炭水添ガス化プロセス（ARCHプロセス）の全体構成を第4.3-3 図に示す。

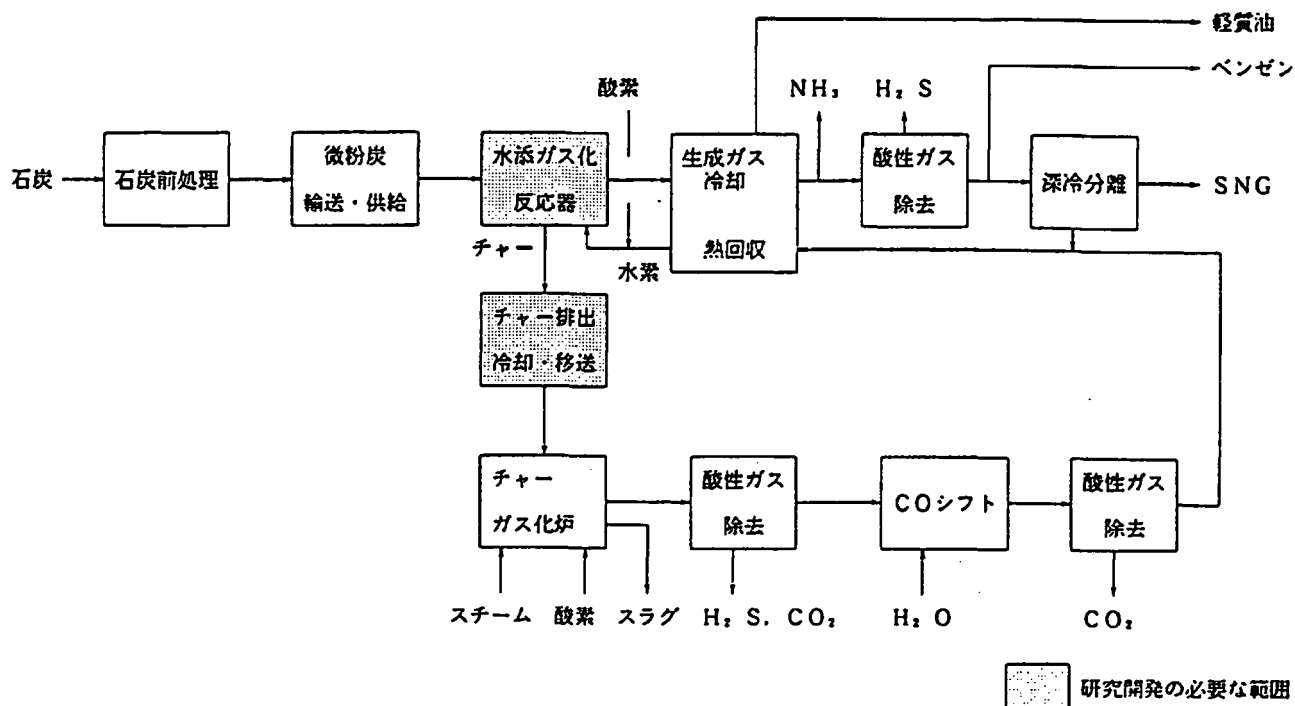
石炭水添ガス化の新しいプロセスについて、BTX収率向上及び熱効率向上の可能性の検討を重ねた結果、将来の日本の不透明なエネルギー事情に鑑み、我が国が開発すべき石炭水添ガス化プロセス（ARCHプロセス）は、一つのガス化炉で ①SNG収率最大 ②熱効率最大 ③BTX収率最大 という3つの目標を運転条件の変更によって達成し得るフレキシビリティのあるものを目指すべきであると提言された。



BTX収率と熱効率の関係

出典：日本エネルギー学会委員会資料

第4.3-2 図 我が国で開発すべき石炭水添ガス化プロセスの基本概念



出典：日本エネルギー学会委員会資料

第4.3-3 図 石炭水添ガス化プロセス（ARCHプロセス）の全体構成

（2）経済性

経済性の検討を実施するために、プラントの立地条件、規模、ファイナンス条件等の前提条件を設定した。その前提条件を、第4.3-1 表に示す。プラント立地は、国内とし、東京湾または大阪湾沿岸を想定した。プラント規模は、代替天然ガス製造量3 百万Nm³/日とし、LNG80万トン／年相当とした。ファイナンス条件は、自己資本比率25%とし、15年定額償却法によりガス製造原価（13A）を求め、石炭部燃ガス化／メタン化SNGやLNG及びナフサSNGと比較検討した。原料価格等は、大蔵省日本貿易統計から1993年度の年間平均価格を基準とし、各実質価格上昇率を設定して将来価格を算定し、試算を行った。試算結果から、第4.3-4 図に示すように、石炭SNG・BTX収率最大ケースでは2002年に、石炭SNG・熱効率最大ケースでは2020年に、LNGよりも安価になり経済性が出てくることが分かった。

第4.3-2 表に、各要因の感度分析結果を、第4.3-5 図に、ガス原価の構成を示す。

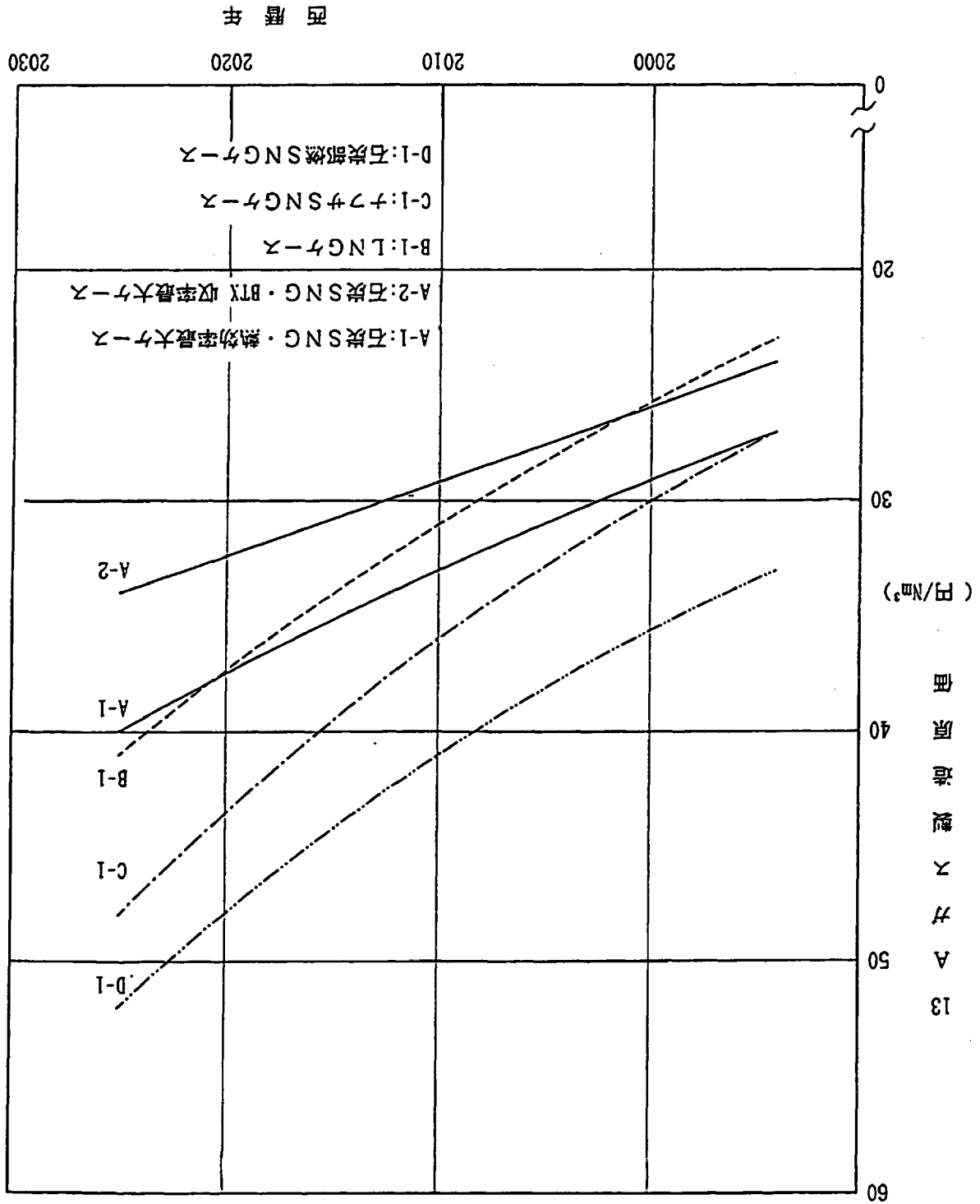
第4.3-1 表 石炭利用代替天然ガスのコスト試算・前提条件

	単 位	①石炭SNG 基本型（熱効率最大）	②石炭SNG （BTX収率最大）	備 考
試算の前提条件				
プラントの立地場所		国内立地 （東京湾または大阪湾の沿岸を想定）	同左	
プラント能力				
ガス製造量	Nm ³ /日	3,000,000 （LNG 80万t/年相当）	3,000,000	
石炭処理量(dry)	t/日	5,853	6,879	
ベンゼン製造量	t/日	243 （8万t/年）	703 （23万t/年）	
プロジェクト条件				
価格設定年度	年	1994	1994	
運転開始	年	2010	2010	
運転期間	年	15	15	
プラント稼働率	日/年	330（年平均90%稼働）	330	
建設費	億円	1,088	1,272	
保全費	%/年	建設費の3%	同左	
石炭価格	円/t	4,877(45.1\$/t)	同左	
BTX収率	%	6.0	15.0	
ファイナンス条件				
自己資本比率	%	25	25	
原価償却年数	年	15	15	
為替レート	円/US\$	108	108	
借入金利（長期）	%/年	8	8	
一般物価上昇率	%/年	2.5	2.5	
石炭価格上昇率	%/年	3.2	3.2	実質上昇率 0.7%
ベンゼン等 油価格上昇率	%/年	4.5	4.5	実質上昇率 2.0%
建設費上昇率	%/年	3.8	3.8	実質上昇率 1.3%
労務費上昇率	%/年	5.4	5.4	実質上昇率 2.9%
試 算 結 果 西暦2010年実質価格	円/Nm ³	32.78	29.02	

出典：日本エネルギー学会委員会資料

第4.3-4 図 13Aガス製造原価比較図

出典：日本エネルギー学会委員会資料



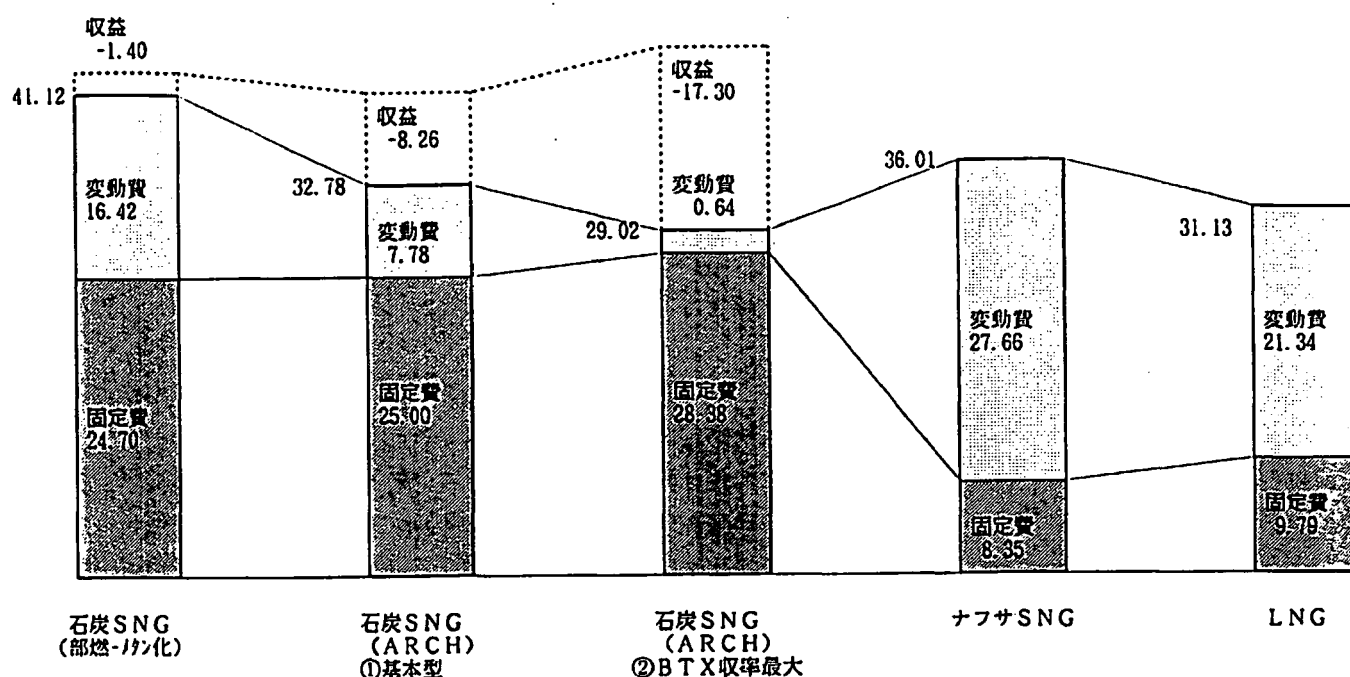
第4.3-2 表 各要因の感度分析結果

基本型（熱効率最大ケース）の2010年価格

因子	感度分析のインプット条件		製造SNG 原価¥/Nm ³	ガス価格の 変化率（％）
	基本ケース	感度分析条件		
建設費 (百万円)	108,847	97,962(-10%)	30.83	- 5.95
		87,078(-20%)	28.89	-11.87
稼働率 (%)	90	81(-10%)	35.46	+ 8.18
		72(-20%)	38.82	+18.43
B T X収率 (%)	6	5.4(-10%)	33.11	+ 1.01
		6.6(+10%)	32.46	- 0.98
運転要員数 (人)	310	279(-10%)	32.34	- 1.34
		341(+10%)	33.21	+ 1.31
労務費単価 (百万円／人・年)	700	630(-10%)	32.34	- 1.34
		770(+10%)	33.21	+ 1.31
石炭単価 (円/daf-C)	4,877	4,389(-10%)	31.66	- 3.42
		5,365(+10%)	33.90	+ 3.42
為替レート (円／US\$)	108	97.2(-10%)	31.66	- 3.42
		118.8(+10%)	33.99	+ 3.42
B T X価格 (円／Kg)	40	36(-10%)	33.22	+ 1.34
		44(+10%)	32.33	- 1.37
B T X等価格上昇率 (％／年)	2.0	1.5(-25%)	32.88	+ 0.31
		2.5(+25%)	32.65	- 0.40
金利 (％／年)	8	7.2(-10%)	32.18	- 1.83
		8.8(+10%)	33.39	+ 1.86
自己資本比率 (%)	25	22.5(-10%)	32.98	+ 0.61
		27.5(+10%)	32.68	- 0.61

出典：日本エネルギー学会委員会資料

単位：円/㎥



出典：日本エネルギー学会委員会資料

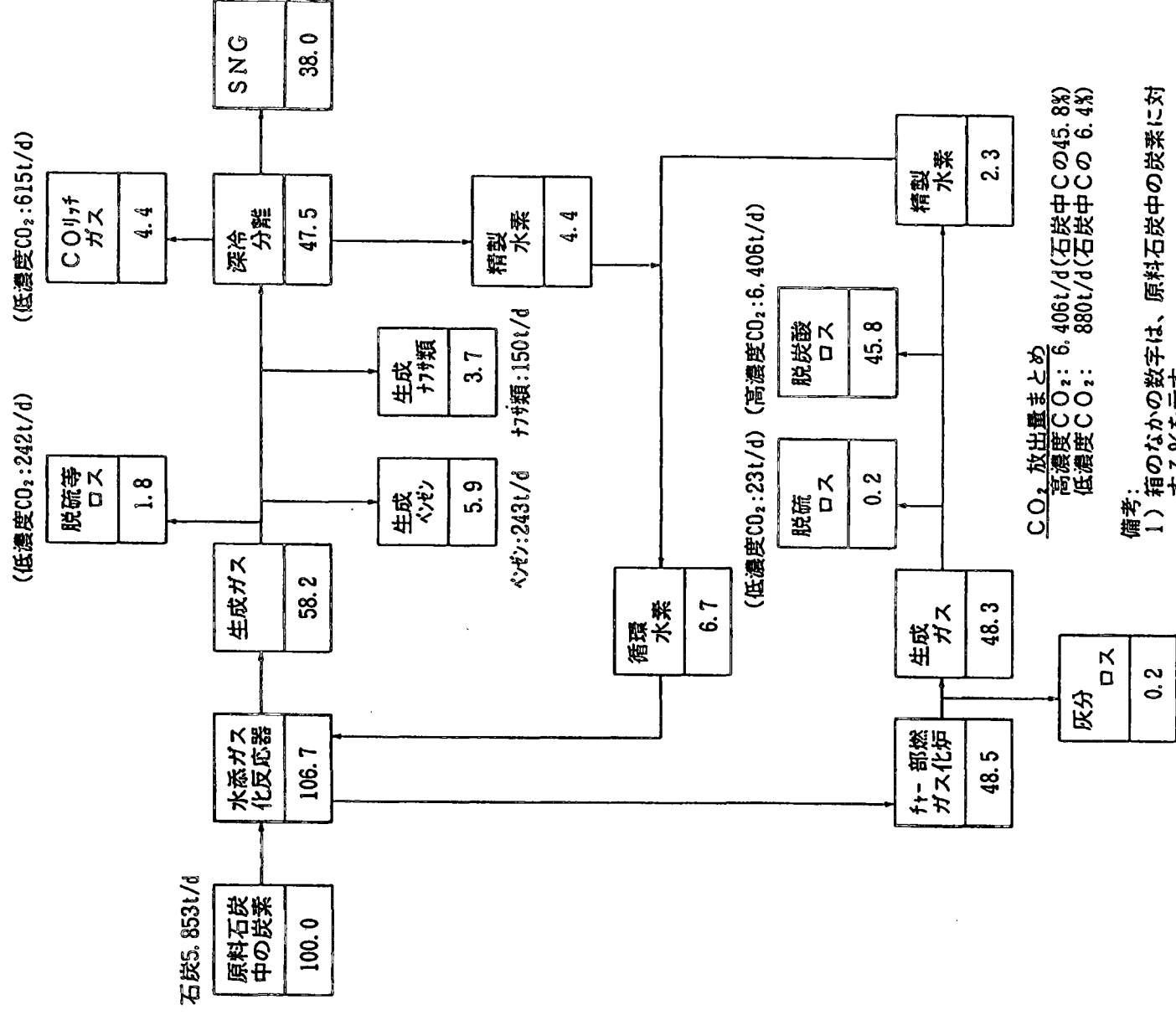
第4.3-5 図 ガスコスト構成の比較 (2010年)

(3) 環境適合性

石炭中のN、S分は、プロセス中のガス精製工程でそれぞれアンモニア、単体硫黄として回収される。灰分は処理の容易なスラグとして回収されるので、減量化および重金属溶出防止が図られる。

二酸化炭素の放出量は、ARCHプロセスの場合は、石炭部分酸化+メタン化方と比較して2割ほど少ない。さらに、二酸化炭素を回収する場合を考えると、チャーガス化炉の後流に設置される脱炭酸装置によって、石炭中の炭素の45.8%に相当する二酸化炭素を高濃度(98.8%)で分離回収することができる。(第4.3-6 図)

第4.3-3 表に、化石燃料別にみた採掘からガス燃焼に至るまでに放出する二酸化炭素放出量の比較を示す。①石炭部分酸化+メタン化法、②ARCHプロセス、③LNG の二酸化炭素放出量のおおよその比率は、①：②：③=10：9：4になり、石炭を使う方法では、ARCHプロセスはすぐれており、さらに、脱炭酸工程で二酸化炭素を固定すれば、二酸化炭素の放出量を半分程度に削減できる。(第4.3-7 図)



CO₂放出量まとめ
 高濃度CO₂: 6.406t/d(石炭中Cの45.8%)
 低濃度CO₂: 880t/d(石炭中Cの6.4%)

備考:

- 1) 箱のなかの数字は、原料石炭中の炭素に対する%を示す。
- 2) 脱炭酸再生塔から排出されるCO₂の純度は、98.8%の高濃度である。

出典：日エネルギー学会委員会資料

第4.3-6 図 二酸化炭素に着目したARCHプロセスの概念図

第4.3-3 表 化石燃料別にみた採掘から燃焼までの温室効果ガス

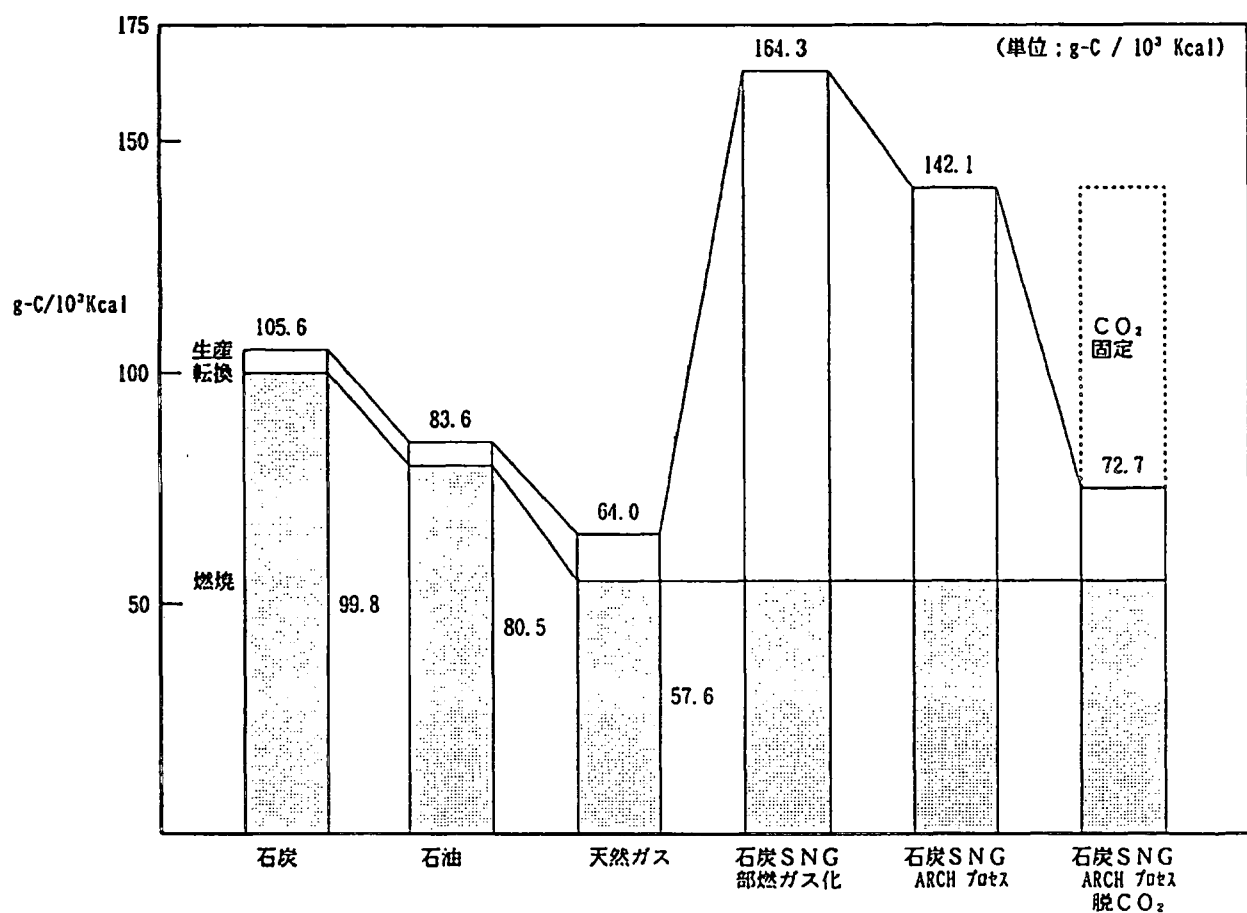
(暫定試算) (単位 ; g-C / 10³ kcal)

		石炭 (平均)	石炭 (坑内)	石炭 (露天)	石油	天然ガス	LNG	石炭SNG 部燃-タン化	石炭SNG ARCH プロセス	石炭SNG ARCH プロセス 脱CO ₂
炭酸ガス	生産	3.08	5.15	1.48	0.27	—	—	2.35	1.91	1.91
	フレア燃焼	—	—	—	0.27	2.81	0.77	—	—	—
	随伴炭酸ガス	—	—	—	0.03	3.60	3.60	—	—	—
	輸送(陸上)	0.85	0.85	0.85	—	—	—	1.35	1.10	1.10
	輸送(海上)	1.85	1.85	1.85	0.79	—	1.39	2.94	2.39	2.39
	転換	—	—	—	1.83	—	7.47	100.10	79.10	9.70
	(小計)	(5.78)	(7.85)	(4.18)	(3.19)	(6.41)	(13.23)	(106.74)	(84.50)	(15.10)
	燃焼	99.82	99.82	99.82	80.45	57.55	57.55	57.55	57.55	57.55
	合計	105.60	107.67	104.00	83.64	63.96	70.78	164.29	142.05	72.65
メタン	メタン	6.78	10.97	0.00	1.50	15.50	5.88	0.00	0.00	0.00
	CO ₂ 換算値									
総計		112.38	118.64	104.00	85.14	79.46	76.66	164.29	142.05	72.65

1. 石炭SNGデータ以外は、エネルギー経済 第17巻 第7号による。
2. 石炭SNGの炭酸ガス量は、石炭(露天)を原料ベースとしたケース。
3. 石炭SNGプラントは、国内立地。
4. 石炭SNGのエネルギー効率は、ARCH プロセス=77.5%、部燃-タン化=63.0%。

(算定根拠)

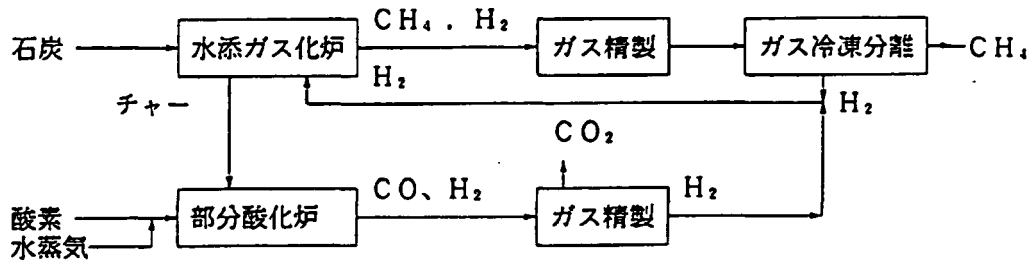
$$\begin{array}{ll}
 1.48/0.63=2.35 & 1.48/0.775=1.91 \\
 0.85/0.63=1.35 & 0.85/0.775=1.10 \\
 1.85/0.63=2.94 & 1.85/0.775=2.39 \\
 57.55 \times 63.5/36.5=100.1 & 57.55 \times 52.2/38.0=79.1 \\
 & 57.55 \times 6.4/38.0=9.7
 \end{array}$$



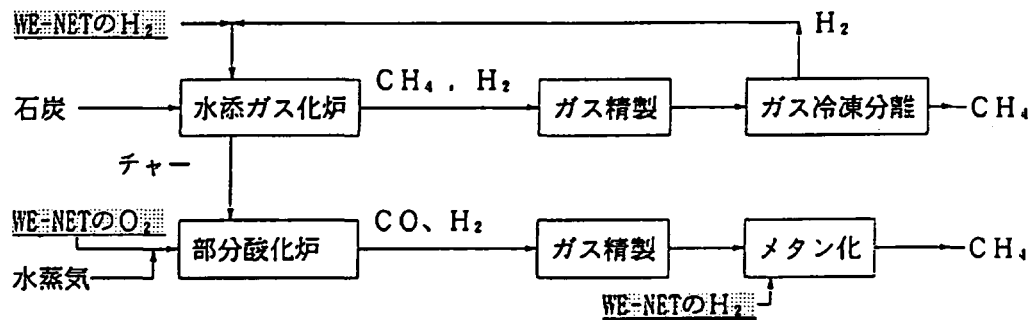
第4.3-7 図 化石燃料別にみた採掘から燃焼までの二酸化炭素排出量比較

また、WE-NET計画との関連での一考察では、将来WE-NETの水素を利用して、ARCHプロセスへ水素を補給できれば、石炭中の炭素をすべてメタンに変換することが出来る（第4.3-8 図）こと及び水素エネルギーを搬送する手段として、メタンが優れた輸送媒体であることが分かった。また、石炭水添ガス化プロセス（ARCHプロセス）は、再生可能エネルギーである水素と21世紀唯一残る化石エネルギーである石炭を高効率に利用する「架け橋」（ARCH）の役割りを果たすプロセスであると提言した。

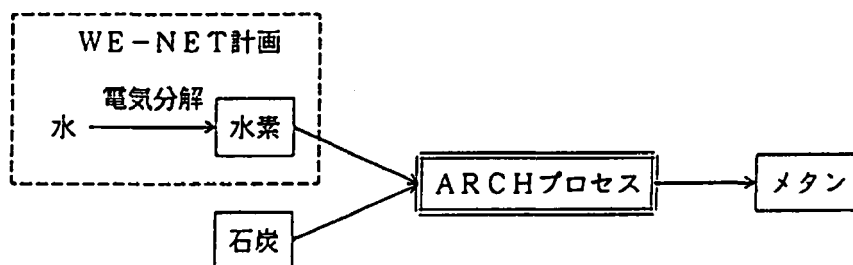
・石炭水添ガス化プロセス（ARCHプロセス）の基本フロー



・WE-NETの水素を利用するときのARCHプロセス概略フロー



・ARCHプロセスの役割の概念図



出典：NEDO委員会資料

第4.3-8 図 WE-NETの水素を利用したときのARCHプロセス概念図

4. 4 ARCHプロセスの開発

(1) ARCHプロセス開発の基本計画

「調査」では、ARCHプロセス全体にわたっての開発項目の抽出と開発方法の検討が行われた。パイロット・プラントの運転研究に進む前に、インジェクターを含む新規水添ガス化反応器とその周辺技術としてのチャー抜き出し・冷却に関して、基礎技術を中心に要素研究開発から着手し、その後パイロット・プラント運転研究に進むマスタープラン（第4.4-1 表）が提示された。

要素開発研究の必要経費は20億円と概算された。パイロット・プラント運転研究の必要経費については見直しをかけ、既にNEDOが保有している機器類を活用、水素製造装置の規模の最適化、水添ガス化炉出口ガスを水素製造の原料に再利用等を行えば、50億円程度の費用削減が可能で、200億円程度になる見込みである。

第4.4-1 表 ARCHプロセスのマスタースケジュール

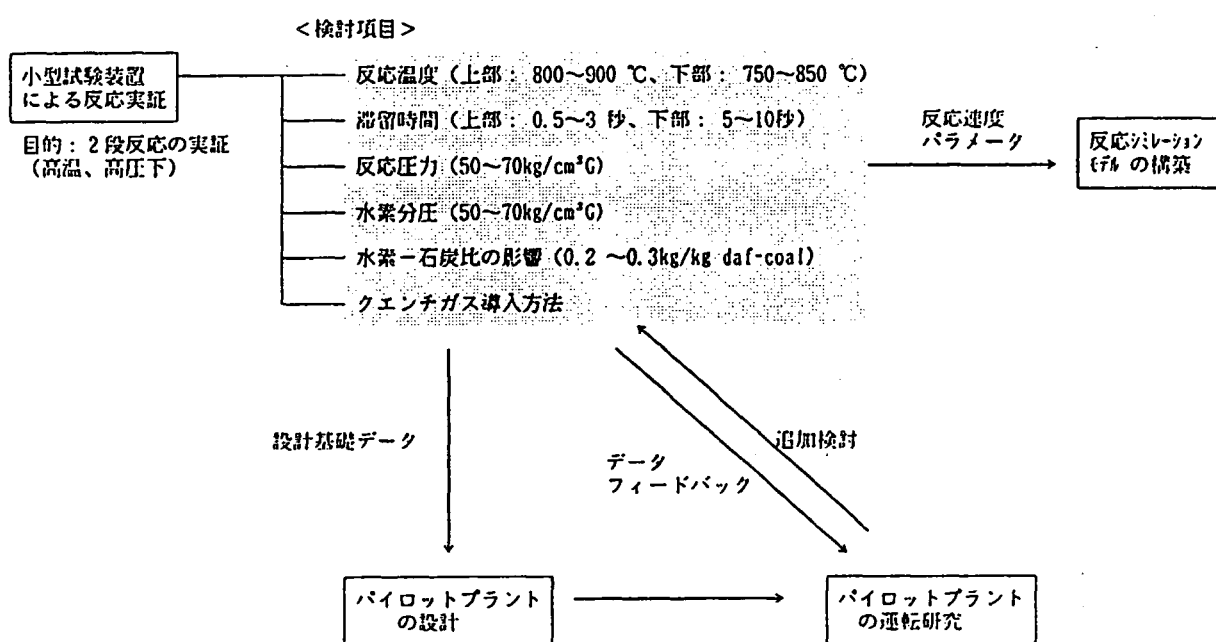
	'90	'91	'92	'93	'94	'95	'96	'97	'98	'99	2000	～	2007
調査	(総額 2 億円)												
予備研究													
要素研究	(総額20億円)												
パイロットプラント 運転研究 (50t/d)	(総額 200億円)												

(2) 要素研究計画

石炭利用代替天然ガス製造技術実用化のためには、これまでの調査で明らかになったように反応器とその周辺技術からなる要素研究から、まず着手することが必要である。第4.4-2 表に、ARCHプロセスの開発課題と要素研究の概要を示す。

調査では、BTX収率向上に関するスタディが行われ、BTX収率増大の可能性を数学モデルを使用して反応器性能を反応シミュレーション予測により検討が進められた。その結果、ベンゼン収率は、炭素転換率で15%まで可能であることが分かった。さらに、その反応を実証するための小型試験装置による試験計画の詳細も検討され、第4.4-1 図、第4.4-2 図のような実験方法、実験装置、試験項目が明確にされている。インジェクターの開

発に関しては、酸素・水素バーナー単体から始めて、これを組み込んだインジェクターを設計・製作し、コールドモデルテストで固気混合性能・ガス循環性能を調べ、ホットモデルテストで耐熱性能や石炭凝集が起こらないことを確認しながら、合わせて反応器内部構造の詳細を決定する開発方針が策定されている。チャーの抜き出し・移送に関しては、模擬粒子と模擬気体を用いた試験装置を用意して、抜き出し方式やチャーレベルコントロール方式について、常温、常圧で把握しておく必要があると判断され、装置を概念設計され、試験方法が検討された。チャー流動層の伝熱特性に関しても、パイロットプラント設計・建設のためのデータ取得を目的に、試験装置を用いて説明する必要があると考えられ、装置を概念設計され、試験方法が検討された。（第4.4-3 図）

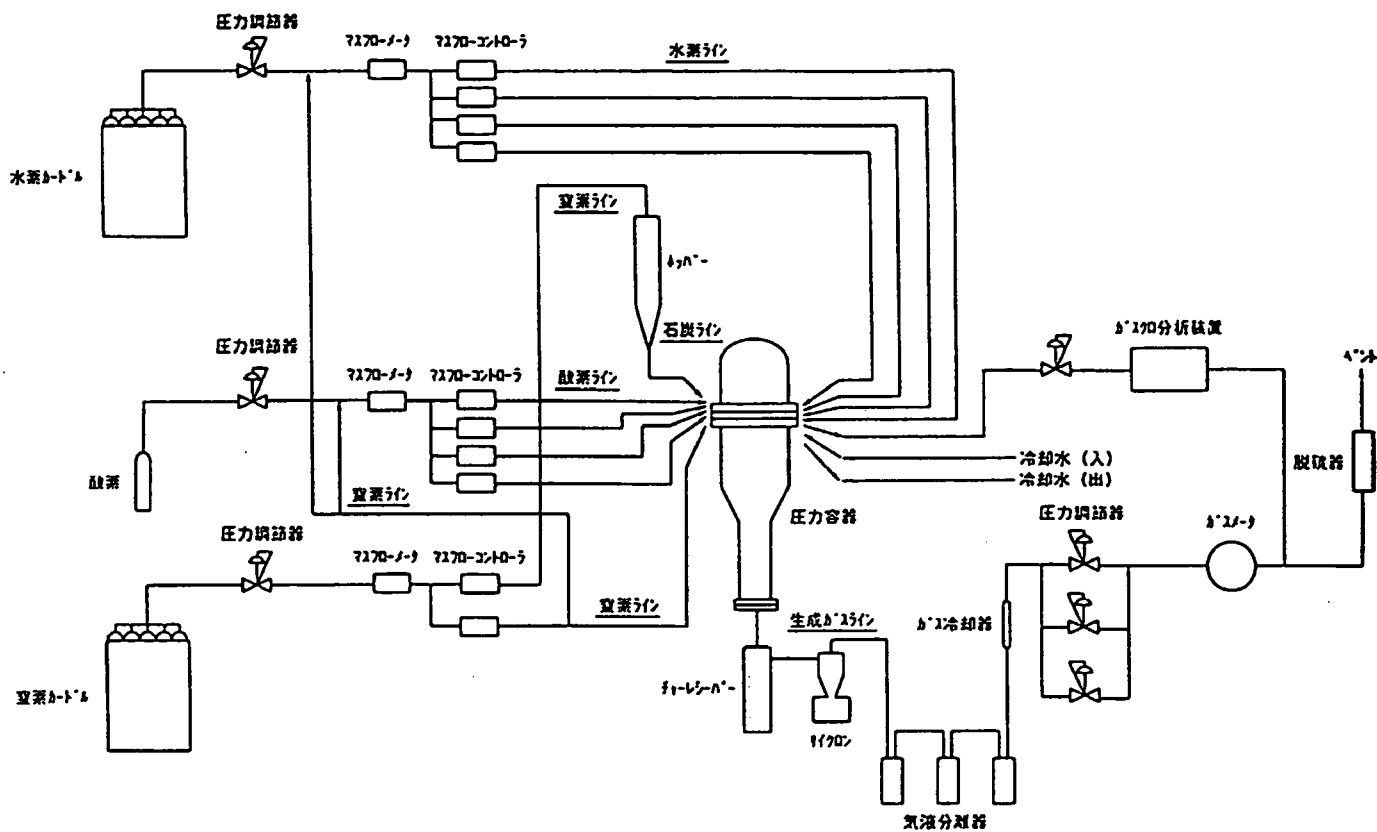


第4.4-1 図 反応実証テストにおける検討項目

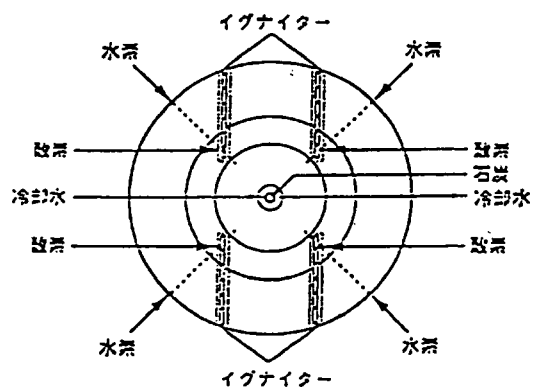
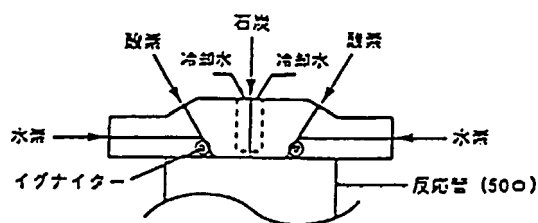
第4.4-2 表 ARCHプロセス・要素研究段階の主要研究課題

項 目	要 素 研 究 段 階	パイロットプラント運転研究段階
水添ガス化反応器	a) 高温水素を供給するインジェクターの開発	パイロットプラント規模で以下の機器の性能を確認する。 ・シンデル・インジェクター およびマルチ・インジェクター
	b) 反応器内部構造の決定	・反応器内部構造 ・石炭予熱器 ・ガス/ガス熱交換器
	c) 反応実証の確認	④小型試験装置を用いて反応実証テスト ・各運転条件でのデータ取得及び最適条件の探索
	d) チャー抜き出し移送技術の開発	⑤コールドモデルテスト ・模擬流体を用いた抜き出し移送テスト
	e) チャーの冷却・熱回収の開発	⑥コールドモデルテスト ・チャー流動層の伝熱特性の把握
反応器周辺技術		・チャー連続抜き出し装置 ・流動層冷却器

出典：日本エネルギー学会委員会資料

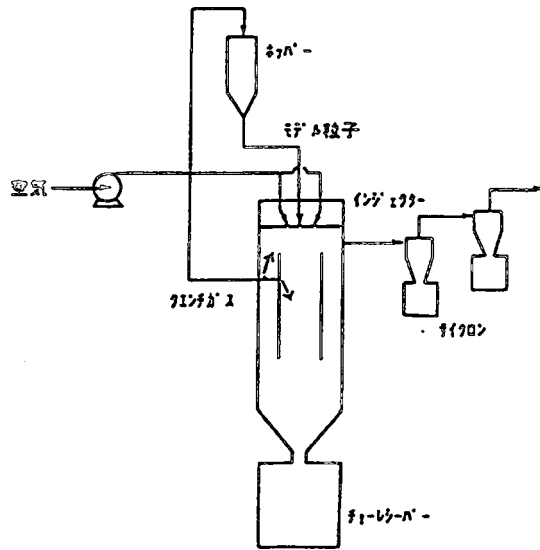


出典：日本エネルギー学会委員会



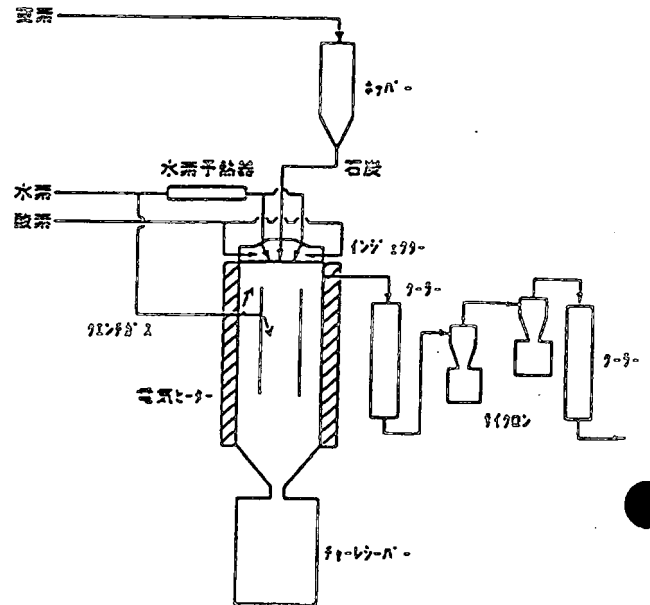
第4.4-2 図 小型試験装置の概略フロー

コールドモデルテスト装置



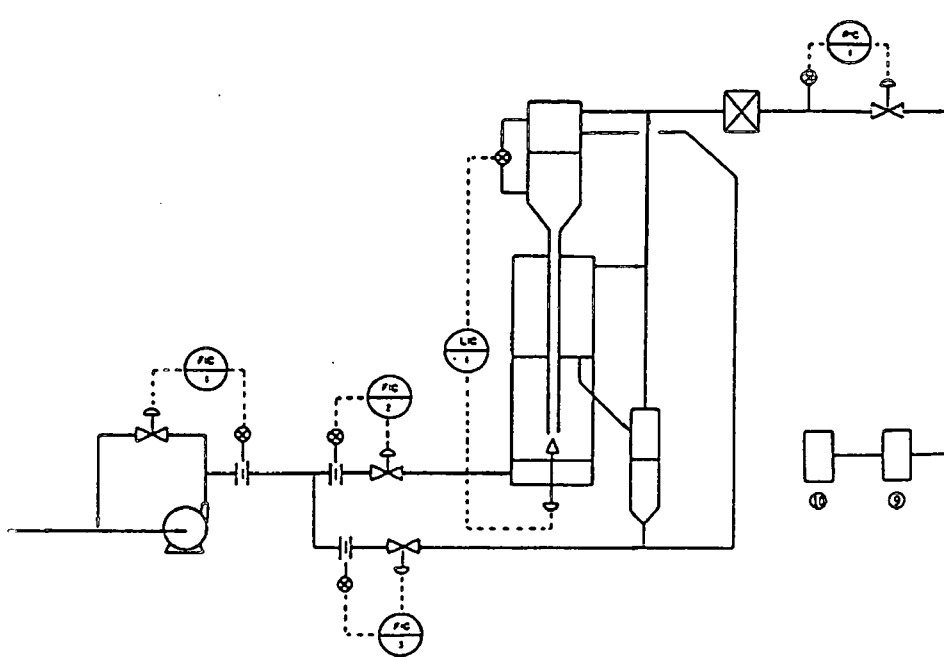
- a. 装置規模 10B~20BΦ*4000~5000mmH
- b. 容器材質 アクリル樹脂製
- c. 温度、圧力 常温、常圧
- d. 操作流体 模擬粒子（FCC、チャー）及び空気

ホットモデルテスト装置

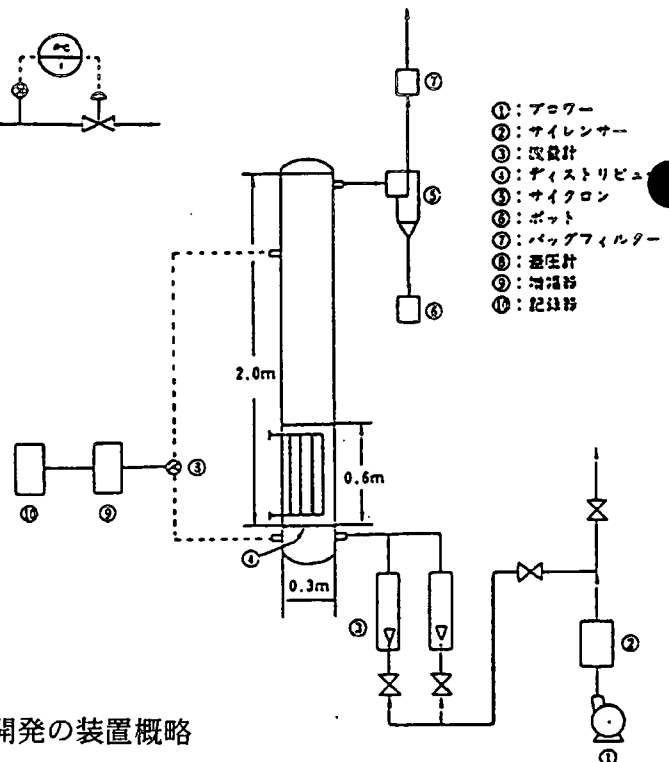


- a. 装置規模 10B~20BΦ*4000~5000mmH
- b. 容器材質 Cr-Mo 鋼、ただしインジェクター周辺はインコネル
- c. 圧力 8 kg/cm²G 程度
- d. 温度 1段目出口 900℃、2段目 800℃
- d. 操作流体 微粉炭および水素

チャー抜き出し試験装置



チャー流動伝熱特性評価装置



第4.4-3 図 要素研究開発の装置概略

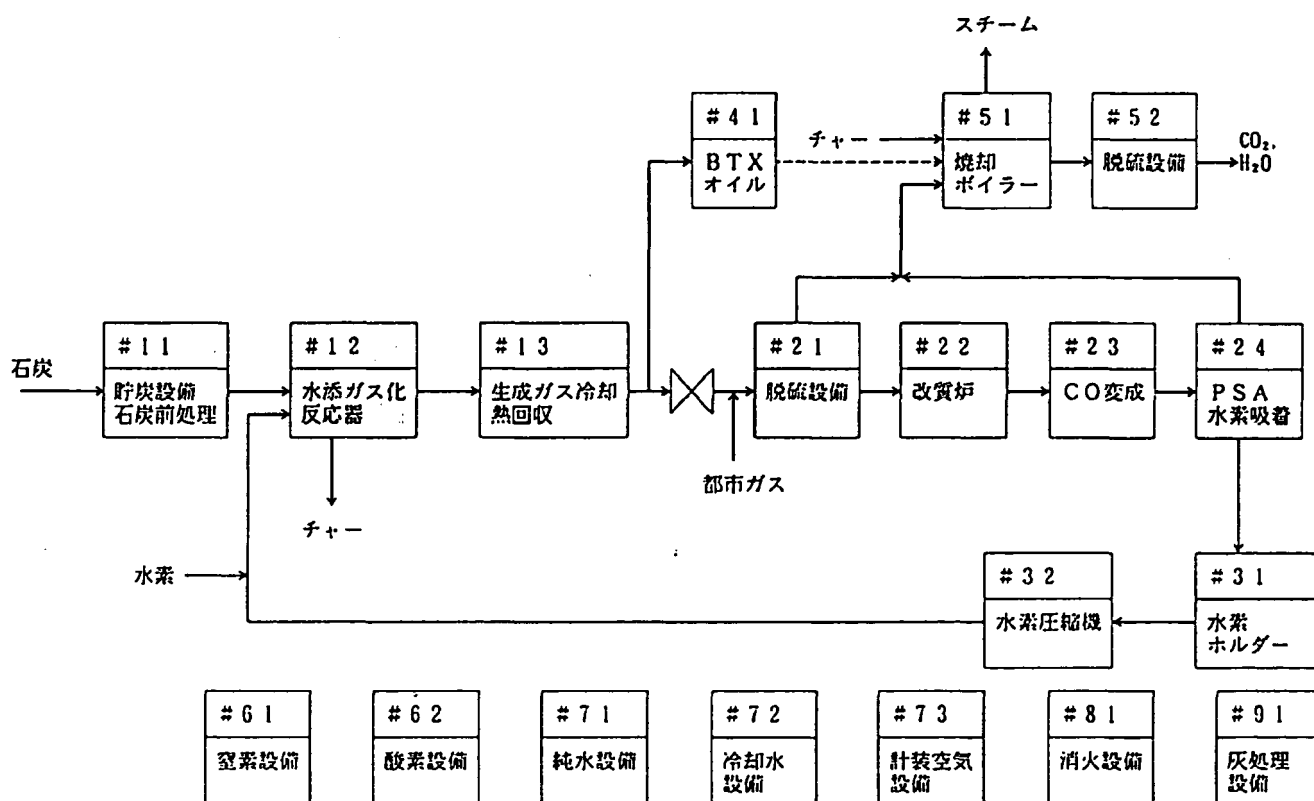
(3) パイロットプラント研究計画

調査では、反応器のスケールアップ指針が以下のように示され、パイロットプラント（P P）による試験が是非とも必要であると位置づけられた。

P D U → P P (50 t / d) → D P (500 t / d) → C P (2,000 t / d)

パイロットプラントの運転研究についても、概念設計と必要経費に関するスタディが行われた。石炭処理量50 t / 日のパイロットプラント設備は、石炭前処理工程、水素ガス製造工程、水添ガス化工程、ガス冷却工程、チャー焼却処理工程および附帯設備（用役設備、防火設備等）からなり、運転研究では47名の人員が必要になる。（第4.4-4 図）

パイロットプラントにおける開発項目の抽出と開発方法の検討が行われ、マルチインジェクターを搭載する水添ガス化反応器、生成ガスと水素の熱交換器、チャーの排出・冷却・定量輸送システム等の研究課題が明確にされている。（第4.4-5 図）



出典：日本エネルギー学会委員会

第4.4-4 図 パイロットプラントの概略フロー

第4.4-5 図 ARCHプロセス全体開発計画

開発段階	要素開発段階 PDU	PP段階 PP	実証P段階 DP	商業P段階 CP
反応器規模	数t/日	50t/日	500t/日	2000t/日
装置構成	新規反応器/反応器周辺	同左	フル装備 反応器, 炭灰化炉, 精製, 分離	同左
主な開発項目	①反応実証の確認 ②高温水素を供給するインジェクター ③反応器内部構造の決定 ④チャー抜き出し移送技術の開発 ⑤チャーの冷却・熱回収技術の開発	パイロット規模で機器の性能を確認し、エンジニアリング・データを取得する。 ①シングルインジェクター & マルチインジェクター ②石炭予熱器 ③ガス/ガス熱交換器 ④チャー連続抜き出し ⑤流動層冷却器	——	——

1996年

2000年

2008年

2015年

出典：日本エネルギー学会委員会資料

平成6年度石炭水添ガス化技術開発調査における海外調査概要

1. 目 的

新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）が通産省・資源エネルギー庁から受託している石炭水添ガス化技術開発（石炭を高温の水素でガス化し、都市ガス原料となるメタンを得る技術開発）調査の一環として海外調査を行うものである。過去4年間の海外調査では、各種石炭ガス化プロセスの開発先を訪問し、その技術開発動向調査やエネルギー関係の情報収集を行ったほか、プロセスの原料面と製品面にポイントを置いてLNG基地や炭鉱等の調査も実施してきました。本年度は、中国を訪問し、石炭ガス化技術開発の実情を調査したほか、石炭ガス化研究所、関係機関等を訪問しての意見交換から、中国における石炭水添ガス化技術の必要性等について調査を行った。

2. 訪問先

中国

北京：①中国科学院	石炭水添ガス化技術の必要性等情報
②中国科学技術委員会	〃
太原：③山西石炭化学研究所	〃

3. 調査日程

平成7年2月24日（金） ～ 2月28日（火）（5日間）

4. 実施方法

今回の調査は、国連の前河氏をヘッドとする国連中国ミッションに合流した形で実施された。すなわち、石炭水添ガス化技術開発調査委員会の委員である東京大学藤元教授に国連中国ミッションに参加をお願いし、調査が行われた。

5. 調査内容

今回の調査は、国連の前河氏を団長とする中国調査団に合流する形で、そのメンバーの中でNEDOに最も関係の近い人間として、調査を行った。この国連中国調査団のそもそもの目的は、クリーン・コール・テクノロジーに関して、国連として中国に対してどの様に応援ができるか具体策を調査するもので、①水素化ガス化技術（石炭水添ガス化技術）開発に関する国際協力、②LPG代替としてのジメチルエーテル合成に関する国際協力、が主目的であった。今回は、①中国科学院、②国家科学技術委員会、③山西煤炭化学研究所の3か所を訪問できたのでその概要を報告する。

5. 1 中国科学院

2月24日中国科学院（北京）を訪問し、副院長の王佛松氏をはじめとして、10人近くの関係者と会談した。ミーティングの最初に、国連の前河氏より国連の係わりについて、引き続き藤元よりNEDOにおける水添ガス化技術開発調査状況を、その後石炭総合利用センター（CCUJ）の篠崎氏よりCCUJの取り組みを説明した。

それに対して、王氏より中国における石炭技術開発の紹介があった。中国における石炭技術開発は、燃焼、液化、ガス化の3分野に分けられる。中国では、排ガスによる大気汚染の問題が深刻であり、本年度の第9回5ヵ年計画の重要項目として取り上げている。ガス化は、水蒸気と酸素（空気）をガス化剤とするガス化が中心で、都市ガス製造については、積極的に利用できる技術を有していない。現在の都市ガス供給は、コークス炉ガスが主流で比較的安価である。沿岸部から石油系の天然ガスも、ある程度供給されている。北京市では、2000年までに約7億 m^3 /年、内陸部の天然ガス田より導入する計画がある。この為には、960kmのパイプラインが必要で、インフラの整備にお金がかかる。2000年を目標に石炭水添ガス化技術を導入したいと考えている。太原の山西石炭化学研究所や北京の化工冶金科学研究所ではグラムオーダーの基礎研究をも実施している。水素の製造コストが低ければ、大いに有望な技術と考えており、中国として日本の協力を得て積極的に取り組みたいと考えている。

日本側としては、現在調査段階で国際協力を実施する状況に無いことを説明し、1996年5月には南京で石炭/C-1化学シンポジウムもあるので、両国の情報交換を実施することにより開始してはどうかと提案した。しかしながら、中国としては非常に急いでいるので国連を通じて共同開発研究の申し入れを行いたいとの意向であった。具体的には、以下

の3研究所、すなわち、大連の化工物理研究所では触媒液体製品の研究を、中国科学院化工冶金研究所では反応器開発とハイドロダイナミックスの研究を行いたい。山西石炭化学研究所ではパイロットプラントの研究等トータルの研究を、中国科学院の責任のもとで実施したい。

5 - 2 中国科学技術委員会

2月25日国家科学技術委員会の処長である張國成氏と会談した。エネルギー部のヘッドの地位にあり、中国全体の技術開発の予算を握っている。先般、中国におけるCCTの米中政府間プロジェクト（トータル80億ドル）に調印した。日本と石炭に関する共同研究は、液化テスト、CWMに関して行っているが、新しいプロジェクトがスタートしていないので、ぜひともスタートさせたい。日本政府の通産省に2国間協力の申し入れをしたい。通産省と中国政府との間でダイレクトにコンタクトしたい。中国政府としては、都市ガスの供給は極めて重要と考えており、意欲を持っている。中国としては、薪がガス化原料にならないか、CBM（コールベッドメタン）にも興味をもっており資源的にも有望なので、アメリカ企業と共同で調査を実施している。

その他、地下ガス化の実地テストも実行している。石炭水添ガス化技術は、都市ガスの供給技術として優秀と判断しており、上海及び広州においても評価が高い。上海のコークス炉工場も計画に参加したい。生成するオイルは軽質化しているので輸送用燃料として利用できるのも有利である。コスト上の問題点すなわち水素の低コスト化からもコークス炉ガスをそのまま使用することを提案する。要素技術の開発も重要だから、要素技術段階から共同研究したい。50t/日のパイロットプラントも中国側に建設してほしい。大阪ガス(株)にある小型試験装置の運転にも、中国は参加したい。中国は、12億人の人口で、12億トン/年の石炭を使用しており、この技術はきわめて大きい市場を持つ。中国では、日本の15~20%の資金で技術開発ができるであろう。

5 - 3 山西煤炭化学研究所

2月27日本研究所の所長 張碧江氏 他約10名の研究者と会談した。この研究所では、石炭利用のためのトータルの研究を行っており、石炭の水素化ガス化については、約4年間の経験を有している。現在は、京都大学橋本教授の主催されているNEDOの国際共同研究グラントに参加して、小規模、バッチにより、ハイドロ・パイロリシスの研究を行

っている。水素化剤および炭種の影響等について検討した。この水素化ガス化の日中の共同プロジェクトを山西の研究所で、ぜひ実施したい。

当該研究所は石炭のガス化、炭化、パイロリシス等について長年の経験を有しており、研究者の数も多い。日本の資金、頭脳と中国の頭脳、体力の結合は最も良い組み合わせと考えている。また当研究所にはパイロットプラントサイトをもち、大型の石炭ガス化の研究プラントも保有しており、ユーティリティ設備もあるので、水添ガス化のパイロットプラント建設のサイトとして最適と考えている。建設、運転費、石炭入手費なども極めて安い。ぜひ建設し、共同研究したいとの強い希望表明を受けた。

その他、DME合成の計画についても説明を受けたが、CCUJ保坂氏との会談内容と同一であるので本報告では省略する。日本側のスタンスについては、北京での話しと同一である。また、国連への協力要請が重要であることを指摘した。

以上

本報告書は関係者の責任において保管するとともに、原則として、その内容の公表は避けてください。やむをえず、公表の必要が生じたときは、あらかじめ新エネルギー・産業技術総合開発機構の許可を受けてください。

電話 03-3987-9445