平成３年度

石炭水添ガス化技術開発調査

報　告　書

平成４年３月

新エネルギー・産業技術総合開発機構

委託先　社団法人　日本エネルギー学会

NEDO 図書・資料室
010019802-7

『石炭水添ガス化技術開発調査』

社団法人　日本エネルギー学会

平成４年３月　　152 頁

調査目的

各種の石炭ガス化プロセスのうち、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最近、開発研究が行われている。

平成２年度における調査では、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各種の石炭ガス化プロセスについて技術的および経済的評価の実施およびその開発課題等についての調査、検討および評価を行った。本年度の調査では、石炭ガス化技術における水添ガス化の要素技術の調査および評価、反応器とその周辺技術の調査評価およびパイロットプラントの基本構想と実用化のスケジュール等について検討することを目的とした。

目　　次

まえがき…… (1)
概　　要…… (3)

第1章　はじめに…… 1
1.1　平成2年度調査の総括…… 1
1.2　本年度の調査方針…… 1
1.3　本報告の概略…… 2

第2章　石炭水添ガス化要素技術の調査および評価…… 5
2.1　水添ガス化反応に関する調査…… 5
2.1.1　ガス化条件の影響の調査…… 5
2.1.2　反応熱の評価…… 14
2.1.3　熱分解モデル…… 18
2.1.4　低級飽和炭化水素の合成…… 21
2.2　水添ガス化反応器の調査および検討…… 24
2.2.1　水添ガス化反応器の条件…… 24
2.2.2　内部循環式反応器…… 28
2.2.3　ワンスルー式反応器…… 36
2.3　反応器周辺の要素技術調査および評価…… 43
2.3.1　石炭供給方式…… 43
2.3.2　熱交換器…… 54
2.3.3　チャーの分離（冷却）、搬送…… 57

第3章　石炭水添ガス化プロセスの実用化のためのスタディ…… 65
3.1　水添ガス化プロセス構成のための検討…… 65
3.1.1　ARCH－1 効率上昇のための検討と経済評価…… 65
3.1.2　ARCH－2 反応器の提言…… 89
3.2　開発項目の抽出と開発方法の検討…… 94
3.2.1　ARCH－1 の開発課題並びに進め方…… 94
3.2.2　ARCH－2 の開発課題並びに進め方…… 104
3.2.3　スケールアップの指針…… 107
3.3　実用化スケジュールの検討…… 111
3.4　パイロットプラントの基本構想…… 117
3.4.1　概念設計…… 117
3.4.2　必要経費…… 145
3.4.3　今後の検討課題…… 150

第4章　まとめ…… 151

ま　え　が　き

本報告書は、第１章で平成２年度調査の総括と本年度の調査方針および報告の概要について述べた。

第２章においては、石炭の急速加熱分解反応でのポイントおよびプロセス開発上重要と考えられる反応器とその周辺技術などを調査・整理し、それぞれの研究開発課題を提示した。

第３章では、実用化のためのスタディとして、平成２年度の調査結果をもとにＡＲＣＨ－１の効率向上のための検討と経済評価、ＡＲＣＨ－２の反応器の提言とそれぞれの開発の基本的な諸元から概念設計を行い、各セクションごとの設備経費、運転のための諸経費等を調査し、実用化技術開発のための必要経費を算出した。

第４章で、以上のまとめを述べた。

「石炭水添ガス化委員会」
委員名簿

委員	氏名	所属
委員長	海保　守	工業技術院 資源環境技術総合研究所 エネルギー資源部
委員	加藤勝二郎	東邦ガス㈱ 総合技術研究所
〃	河村隆文	新日本製鐵㈱ プロセス技術研究所
〃	瀬尾智之	東京ガス㈱ 生産技術部
〃	武松敏弐	岩谷産業㈱ 技術保安本部
〃	中島愛光	三菱重工業㈱ 機械事業本部
〃	堀尾正靭	東京農工大学 工学部 物質生物工学科
〃	牧野三則	工業技術院 資源環境技術総合研究所 エネルギー資源部
〃	松井久次	大阪ガス㈱ 開発研究所
〃	松本孖郎	工業技術院 九州工業技術試験所 化学部
〃	三浦孝一	京都大学 工学部 重質炭素資源転換工学実験施設
〃	森　滋勝	名古屋工業大学 機械工学科
〃	吉武邦樹	出光興産㈱ 新燃料部

SYNOPSIS

In the last fiscal year, 1991, the committee conducted the investigation into hydrogasification of coal , which covered;

- fundamental research on hydropyrolsis reaction,
- development status of SNG production process ,
- by-products from hydrogasification and their utilization technology,
- comparison of performance between hydrogasification and methanation using SYN gas.

The committee concluded from the study that the entrained bed reactor will be used principally from now on as a gasifier for hydrogenation of coal. Consequently, following topics were discussed this year, aiming at the development of such a process that has an entrained bed reactor.

1 current view on hydrogasification process from the standpoint of fundamental research.
2 extraction of research subjects by surveying the technologies for hydrogasifier and related equipments.
3 organization of equipments and operations which lead to high thermal efficiency.
4 timetable for R&D from PDU to commercial scale.
5 outlining design of a pilot plant.

Summaries of each chapter are as follows,

Chapter 1 Introduction

This chapter describes a brief conclusion of the last study in 1991, a guideline of the studies for this year and the outline of the results. A new process named ARCH (Advanced Rapid Coal Hydrogenation) is proposed for development.

Chapter 2 Investigation and evaluation of technologies in hydrogsification

As a foundation of hydrogasification process, the committee studied the effects of gasification conditions, the decomposition mechanisms of tarry materials, estimation and evaluation of reaction heat using a mathematical model, the modelling of the thermal decomposition of coal, the synthesis of gaseous hydrocarbons and so on. The R&D subjects were extracted, looking into current status of development for a once-through reactor and a internally circulating one, .

In the investigation into subsidiary technologies related with the hydrogasifier, this chapter dealt with the technologies for coal feed into gasifier, gas phase heat-exchanger, separation/cooling/conveying of char which was produced in hydrogasifier.
Also studied are dense phase conveying which will be used for coal feed or transportation of unreacted char. In the investigation into splitting and pre-heat of dense phase solids, problem to be solved were pointed out for the application to the hydrogasifier. Pressure and heat resisting structures and materials were discussed for heat exchanger which heat up hydrogen using apparent heat of product gas. Concerning with char separation, the internal structure of the gasifier was studied and methods of char collection were examined to remove entrained char from product gas. Technical problems were also extracted here for cooling high temperature char by use of fluidized bed at the exit of the reactor. Various valves were examined for use with gases and powders at high temperature and pressures.

Chapter 3 Development of hydrogasification process

Hydrogasification process, whose FS had been done in the last report, was optimized in order to increase the thermal efficiency . It was confirmed that the cold gas efficiently increased from the previous values of 75.2 to around 78%. It was also found that high yield of liquid products such as BTX is essential to improve economical adaptation of the process. The hydrogasification reaction consists of initial stage of thermal decomposition and the successive hydrogenation reaction. Independent control of each reaction is favorable to increase liquid yield. While the thermal decomposition reaction takes place predominantly in the once-through reactor, internally circulating reactor is characterized by being able to control hydrogenation reactions. Enhancing the features in both types of reactors , it might be possible to construct a new type of gasifier which could control each stage of reaction independently. Thus, the committee proposed the concept of ARCH process and showed a guideline for scale-up leading to industrial use. The problems, which may appear in each stage of development were discussed. A plan was made to perform effective development, especially in the stage of pilot test which comprises ARCH-1 and ARCH-2. ARCH-1 will be subjected to the test of equipments which will make up a large scale reactor of the type of internal circulation. Combining them with subsidiary units around reactor , they are supposed to be examined whether they were suitable for the rector system in a whole process. The reactor established in ARCH-1 shall be modified in ARCH-2 to demonstrate the independent control of the two reactions i.e. thermal decomposition and hydrogenation reactions. One of the modification will be a replacement of the injector which enables partial oxidation of hydrogen. Another principal modification must be installation of the rapid heat-up zone in the reactor for effective decomposition of coal. Although there are data available for both type of reactor, they are collected separately. It is, therefore, necessary to check the validity of our concept using PDU or cold models. The test plan, which includes aims and test items as well as scope of the plant,

was discussed in order to move easily on to ARCH-2. An outlining of a pilot plant was designed using engineering data obtained from experiments with a internally circulating reactor. The plant consists of process units such as preparation of coal, hydrogen producer, hydrogasifier, gas cooler, char combustor and other incidental facilities. These units were selected and their structures were determined utilizing the current knowledge of technologies as much as possible. This chapter also estimates, to accomplish test items, plant fund and operating cost together with the number of run, test periods and personnel.

Chapter 4 Conclusion

A scope and contents of this report is summarized.

概　　要

平成２年度に行った水添ガス化の基礎理論と研究動向、水添ガス化法を含むＳＮＧ製造技術の開発状況、水添ガス化副生成物とその利用技術に調査、および水添ガス化法や部分酸化－メタン合成法によるＳＮＧ製造プロセスのフィージビリティスタディを踏まえ今後は噴流床方式の水添ガス化法が主流になると結論した。　本年度は噴流床方式の水添ガス化プロセスを実用化するために、①基礎研究から見たプロセスに対する現状での見解を出す、②水添ガス化反応器およびその周辺における要素技術を調査し研究開発課題を抽出する、③プロセスの熱効率を高める機器構成や操業法のあり方を検討する、④ＰＤＵから実用プラントまでのプロセス開発の計画を策定する、⑤パイロットプラントを概念設計する、ことを目標に調査した。以下に各章毎の概要を述べる。

第１章　はじめに

平成２年度調査の総括、本年度の調査方針、調査の結果の概略を述べ、新しくＡＲＣＨ（ Advanced Rapid Coal-Hydorgination ）プロセスを提案することを紹介した。

第２章　石炭水添ガス化要素技術の調査および評価

水添ガス化反応に関する基礎研究の調査として、ガス化条件の影響、タールの分解機構、モデルによる反応熱等の推定とその評価、熱分解反応モデルの調査と評価、増熱用の低級炭化水素類の合成技術などの動向を調べた。また、反応器に関しては反応器周辺の調査として、ワンスルー式と内部循環式の噴流床水添ガス化炉について、技術開発の現状を調べ、今後の課題を抽出した。

反応器周辺技術では、石炭のガス化炉への供給方式、ガス－ガス熱交換器、水添ガス化チャーの分離、冷却、搬送技術を調査した。石炭供給やチャーの搬送に使用される濃厚相輸送技術と、濃厚相での分流技術や予熱技術を水添ガス化に適応するための開発要素を調べた。原料水素を生成ガスの顕熱で予熱するための熱交換器では、耐圧耐熱の構造と材質を検討した。チャーの分離では、反応器の内部構造と、生成ガスに同伴するチャーの収集方法を検討した。反応器から出る高温チャーを流動床方式で冷却するための技術上の課題を摘出した。高温高圧バルブに関しては、ＩＧＣＣなどで開発中のガス用・粉体用各種バルブについて調査した。

第３章　石炭水添ガス化プロセスの実用化のためのスタディ

熱効率を高めるため、昨年度フィージビリティスタディで検討したプロセス構成を最適化し、冷ガス効率は昨年度の75.2%から、78%前後に向上できることを確認した。また、プロセスの経済性を上げるには、ＢＴＸなど液状成分の収率向上が必要との見解を得た。水添ガス化反応は初期の熱分解と続く水素化分解からなるが、液収率の向上には両分解反応の個別制御が望ましい。従来のワンスルー式は初段の熱分解を重視した反応器であり、内部循環式は水素化分解の制御を特徴とするので、両反応器の特質を活かせば、個別制御式反応器を構成できると考え、新しい反応器を用いるＡＲＣＨプロセスの概念を提案した。また、ＡＲＣＨプロセスを商業化するまでのスケールアップの指針を策定し、各階発段階の課題を抽出した。特に、パイロット試験では、ＡＲＣＨ－１とＡＲＣＨ－２からなる効率的な開発計画を検討した。ＡＲＣＨ－１は新しい反応器の開発の基本となる内部循環式反応器を大型化するために必要な構成要素の試験と、反応器周辺の要素技術を組み合わせ、プロセスとして構成可能かどうかを見極める試験を行う。ＡＲＣＨ－２ではＡＲＣＨ－１で確立した反応器を基本に、インジェクターを酸素部燃型に換え、熱分解用急速昇温ゾーンを設けた反応器に改造し、熱分解・水素化分解の個別制御の実証を行う。ＡＲＣＨ－２は基本となる内部循環式とワンスルー式のデータはかなり蓄積されているが、全体としては概念の段階にあるので、ＰＤＵやコールドモデル実験でその可能性を検証し、ＡＲＣＨ－１からＡＲＣＨ－２にスムースに試験を移行出来るよう、計画の概略を策定した。ＡＲＣＨ－１、ＡＲＣＨ－２ の試験に必要なパイロットプラントによる開発研究の目的や試験項目、設備の範囲などを明らかにした。さらに、内部循環式反応器に関して得られたエンジニアリングデータを基に、ＡＲＣＨプロセス開発のためのパイロットプラントを概念設計した。概念設計で検討したプラント設備は、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、チャー燃焼処理工程、その他の付帯設備などで、現状の技術で可能な限りの工夫を凝らし、構造と規模を決定した。また、パイロットプラントの試験項目をクリアーするための試験回数、期間、必要な人員数を推定し、プラントの設備費や運転経費を試算した。

第４章　まとめ

本報告書の目的と報告書の内容を簡単にまとめた。

第1章　はじめに

第１章　　はじめに

１．１　平成２年度調査の総括

平成２年度は水添ガス化の基礎理論と研究動向、水添ガス化法を含むＳＮＧ製造プロセスの技術開発の状況、水添ガス化副生成物とその利用技術などを調査した。また、最も進んだと思われるスラッギングルルギ炉に基づく部分酸化－メタン合成法と内部循環式による水添ガス化法との理論効率を比較すると共に、それぞれのプロセスデータを用いて、ＳＮＧ製造プロセスのフィージビリティスタディを行い、開発課題の抽出と評価を行った。主な結論は以下の４点に要約できる。

１）基本反応の収支関係を原理的に比較し、水添ガス化法の優位性を明らかにした。

２）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良の余地が多い。

３）経済的には、ＳＮＧ価格は付加価値の高い液状生成物（ＢＴＸなど）を取得することによって、大幅に低下できる可能性がある。

４）設備費、運転費を削減するにはプロセス全般にわたる設備の簡略化、最適化と省エネルギーの徹底が必要である。

１．２　本年度の調査方針

平成２年度に調査したように、効率の高さ、経済性の良さ、技術的発展の可能性などから、将来のＳＮＧ製造技術として水添ガス化法が有望で、中でも急速水素化熱分解をねらう噴流床方式が開発の主流になると見られる。平成３年度は、昨年度の基礎研究の調査を補充すると共に、噴流床ガス化炉によるプロセスの実用化に必要な知見を整理し、今後研究すべき項目を抽出した。従来技術に関する調査では、開発が先行するワンスルー式と内部循環式の噴流床反応器を取り上げ、特徴や性能を比較評価した。プロセスの構成に必要な反応器炉周辺の要素技術の現状を調査し、開発課題を指摘した。また昨年度実施したフィージビリティスタディを進めて、熱効率と経済性の改良に必要な各要素での技術上の課題や、プロセス構成のあり方などを試算に基づき検討した。

プロセスの経済性は、ＢＴＸ等軽質油の収率に依存する、とフィージビリティスタディから結論できる。石油、天然ガスの供給が減衰する時代に備える上でも、ＳＮＧと軽質油分の生産比率をフレキシブルに選択できる新プロセスは、我国にとって研究意義が高いと

見られる。この新プロセスを Advanced Rapid Coal-Hydrogenation Process（略してＡＲＣＨ プロセス）と名付けた。

我国での商業化規模と目される 300万Ｎｍ^3／ｄのＡＲＣＨプロセスを実用化するには、反応器と周辺の要素技術を効率よく開発し、スケールアップの展望を開く必要がある。そのために重要なパイロットプラントによる研究では、第１段階のＡＲＣＨ－１テストで、ＢＧ／ＯＧ の開発成果を手がかりに、内部循環式反応器のスケールアップし、周辺の要素技術も含めたプロセスを構成するための、基本的知見の確立を目指し、つづくＡＲＣＨ－２ テストで、ＡＲＣＨ－１の内部循環式反応器の大型化の成果に立脚して、熱分解反応と水素化分解反応の個別制御試験を行うのが、現状では合理的な研究計画である、と結論した。その上で、ＡＲＣＨ－１とＡＲＣＨ－２の試験項目の摘出と、それに必要なパイロットプラントの概念設計を行い、基礎研究の調査と連携して、反応制御、エンジニアリング、プロセス構成、などの検討項目を調査した。

１．３　本報告の概略

基礎研究分野では、前年度調査の補足と、今年度実施するパイロットプラントの概念設計を支援するために、基礎研究の知見の整理を行い、そこから導かれる見解をまとめた。すなわち、水素化熱分解を起こすときの水素分圧、水素／石炭比、等の反応条件と生成物分布をロックウェルのＡＦＨＰやＢＧ／ＯＧのデータなどで検討した。石炭の熱分解で生成するタールが熱や水素により２次的に分解してＢＴＸなどの有用物質になる反応と、重縮合してコークスを生成する反応に関係する諸因子について調べた。水添ガス化の反応熱に関して、数学モデルをつくり、ワンスルー式反応器と循環式反応器の物質収支式、熱収支式、粒子の運動方程式を立て、反応器軸方向の各成分、温度、速度分布を計算して、両反応器の特徴を比較検討した。また、シミュレーターの開発に関連して提案されている石炭の熱分解モデルについて調査した。増熱用のＣ２ ～ Ｃ4炭化水素を一酸化炭素と水素から合成する研究についても調べた。

平成２年度に行った各種のＳＮＧ製造プロセスの調査を受け、今年度は噴流床水添ガス化プロセスに絞り、近年開発が進んでいる内部循環式反応器とワンスルー式反応器について急速水素化熱分解のための反応器の構造や反応の制御方式や、開発レベル、開発課題などについて検討し、両方式を比較した。内部循環式反応器は、比較的長時間の水素化分解を行え、反応熱の利用性に優れ、生成する軽質油はＢＴＸを主体に比較的単純な製品群に

特化される。ワンスルー式反応器は熱分解反応を重視しており、反応温度を制御してメタンと液状生成物を様々な比率で生産できる、などの両方式の特徴を整理出来た。

反応器周辺では、乾式濃厚相輸送や予熱法などの石炭供給技術、ガス化剤水素を生成ガスで予熱するガス／ガス熱交換器、反応器から排出する未反応チャーの分離技術と冷却技術と搬送技術などについて、現在の開発レベルと水添ガス化のパイロットプラントに利用する場合の課題を抽出した。

実用化プロセスを想定したスタディでは、各要素技術の改良や、プロセスに構成する組み方や、より一層の省エネルギー対策などによる熱効率改善の方向性を探るため、平成2年度の経済性の検討において想定したプロセスを見直し、経済性を解析し、熱効率を試算して今後の開発課題を探した。その結果、昨年度75.2%であったプロセスの冷ガス効率を78%以上に高められることを確認し、熱効率や経済性を上げる指針を明らかにした。

また、従来の噴流床水添ガス化技術を検討した上で、今後開発すべき反応器の概念として、内部循環式を基本にワンスルー式の長所を取り入れて、熱分解と水素化分解を個別に制御する方式を提案した。個別制御が成功すれば、メタンと軽質油の収率をフレキシブルに制御でき、液状物の選択性も向上すると期待される。

以上の、反応器と周辺の要素技術やプロセス構成に関する調査と検討を基に、我国として開発すべき実用化プロセスを想定し、ＡＲＣＨ－１とＡＲＣＨ－２のパイロットプラント試験を中心とする研究計画を策定した。ＡＲＣＨ－１では、内部循環式反応器のスケールアップテストを基本に、周辺要素技術の試験を加えてプロセス構成の可能性を証明する。同時に、熱分解制御法の検討も進めて行き、ＡＲＣＨ－２で大型化した内部循環式反応器に熱分解要素を加えて、個別制御式反応器の可能性を検討する。ＡＲＣＨ－１、２各々のテストについて、開発項目や研究課題の抽出、研究開発の進め方や支援研究の位置づけを検討した。また、実用化に向けた研究計画のあり方やパイロットプラントの適正な規模とそれ以降のスケールアップのあり方も検討し、各開発段階での課題を明確化し、目標値とスケジュールを設定した。

ＡＲＣＨ－１とＡＲＣＨ－２を実施するためのパイロットプラントの目的、考え方、設備範囲、実験条件の範囲などを考慮して基本構想を決め、パイロットプラントを概念設計した。また、プラントの各セクション毎の設備経費などを明らかにし、試験に必要な経費を算出し、今後の研究開発に必要な予算、期間、人手、敷地などの条件を検討して、現状でもっとも合理的と考えられる研究計画の全体像を明らかにした。

第２章　石炭水添ガス化要素技術の調査および評価

第２章　石炭水添ガス化要素技術の調査および評価

２．１　水添ガス化反応に関する調査

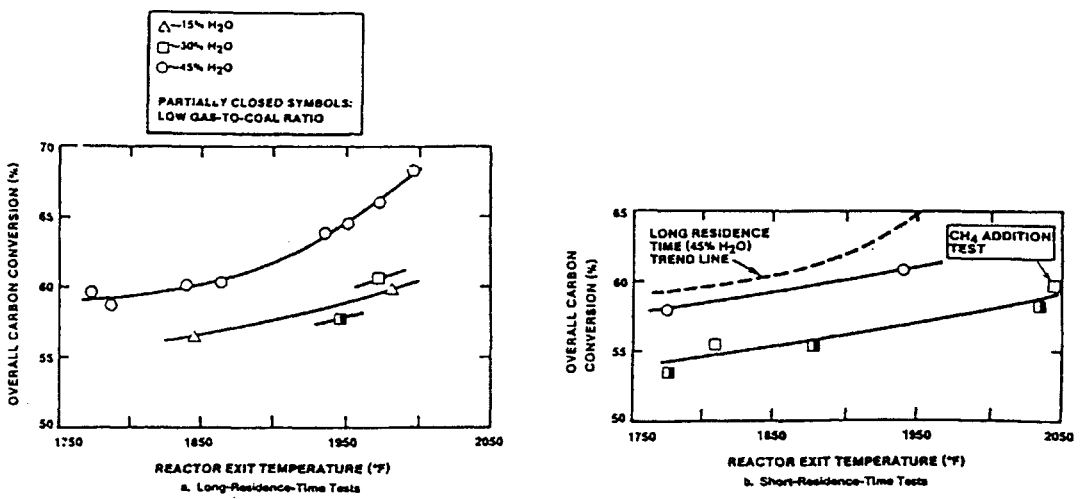
２．１．１　ガス化条件の影響の調査

（１）水素化熱分解の反応条件の範囲

石炭の急速水素化熱分解は、炭種、温度、圧力、昇温速度、滞留時間、水素／石炭比等によって、その生成物が異なる。これらの影響は、昨年度において巾広く調査されている。そのため、本年は、ロックウェルのＡＦＨＰ、ＢＧ／ＯＧのデータの中から、各操業条件と生成物分布について調査した。

ロックウェルＡＦＨＰでは、石炭としては、ケンタッキーＮｏ．９高揮発分瀝青炭が使用され、滞留時間約2.2秒を短滞留時間テストとし、4.8～7.9秒を長滞留時間テストとしている。また圧力は、1000psig(約70kg/cm²G）で、スチーム濃度、ガス／石炭比、メタン添加の影響を調べている。

第２．１－１図は、全炭素転化率と反応器出口温度をプロットしたものであるが、全炭素転化率は、約55％から約70％にわたっている。転化率は反応器出口温度、入口スチーム濃度、滞留時間とともに増加している。スチーム濃度の影響は、15％、30％レベルに比べ45％レベルで顕著であり、低ガス／石炭比（長滞留時間テスト　水素／石炭比0.28→0.22、

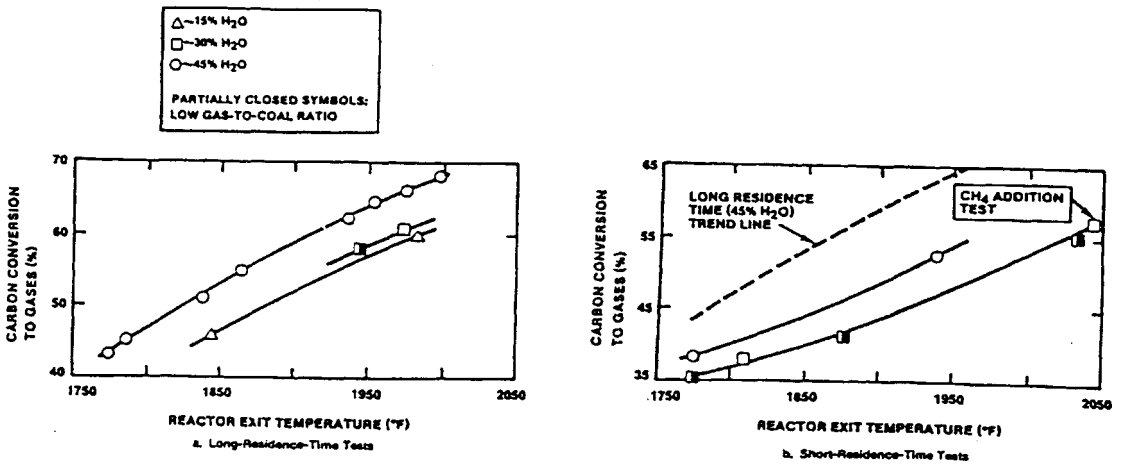


第２．１－１図　全炭素転化率と反応器出口温度（ＡＦＨＰ）[1)]

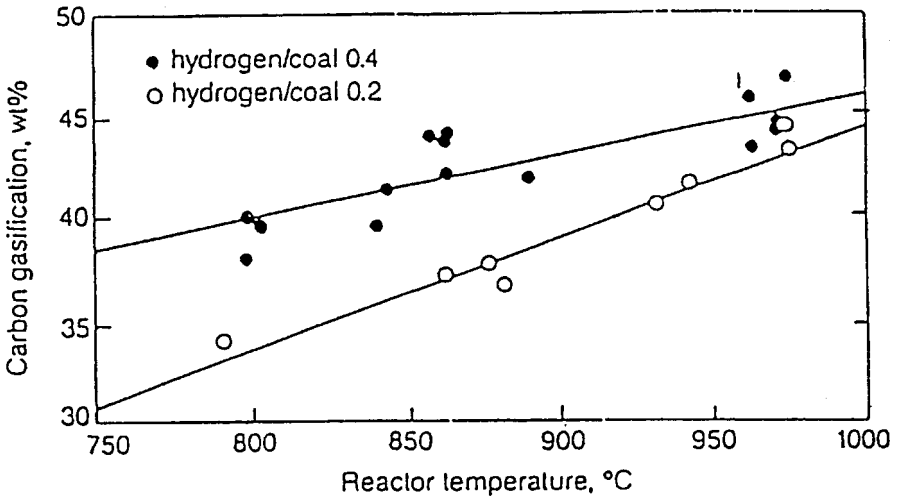
短滞留時間テスト　水素／石炭比0.27→0.24)では、わずかに転化率が低くなり、メタン添加（約10％）はあまり影響なかった。

これら水素化分解で消費された水素量は、スチームの影響が最も小さい、スチーム濃度15％以下レベルで全炭素転化率約56％に対し、消費水素／石炭＝0.07であった。また、昨年のスタディーの太平洋炭でも全炭素転化率約55％に対し、消費水素／石炭＝0.066で、ほぼチャーからの水素製造とバランスしていたことを考えると、スチームの影響が低い条件では、この程度の全炭素転化率で、チャーからの水素製造とほぼバランスするものと思われる。ただし、スチーム濃度が高く、反応温度が高くなるとスチームの影響が大きくなり、全炭素転化率に対する水素消費量が減るため、バランスする点は異なってくる。

第２．１－２図は、ガスへの炭素転化率と反応器出口温度を示したものである。転化率に対する反応器出口温度、スチーム濃度、滞留時間の影響は、全炭素転化率と同じ傾向であり、低ガス／石炭比の影響もあまりでていない。第２．１－３図にも同様のものを示してあり、スチーム添加の無い場合であるが、水素／石炭比の増加により、ガスへの炭素転化率が大きくなり、その効果は、反応器温度が低いほど大きく、高温になると影響が小さくでている。第２．１－２図において、低ガス／石炭比の影響があまりでていないのは、この値の変化範囲が小さいこと、反応温度が高いこと、スチームの影響があること等が考えられる。

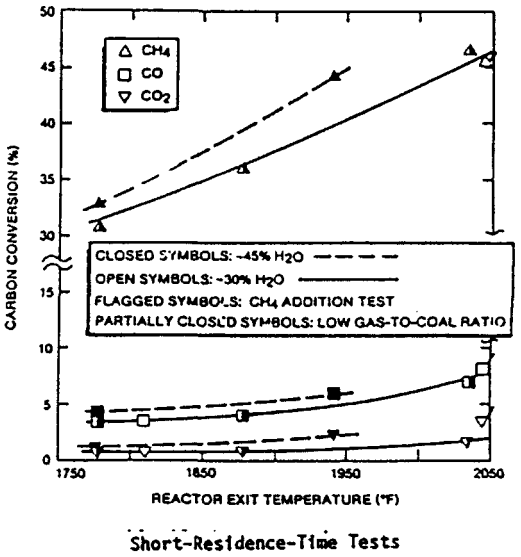


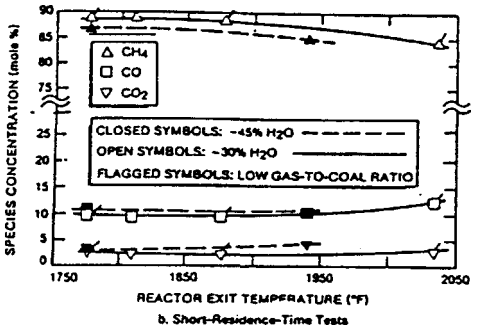
第２．１－２図　ガスへの炭素転化率と反応器出口温度（ＡＦＨＰ）[1)]



第２．１－３図　ガスへの炭素転化率と反応器出口温度（ＢＧ／ＯＧ、Manvers石炭）[2)]

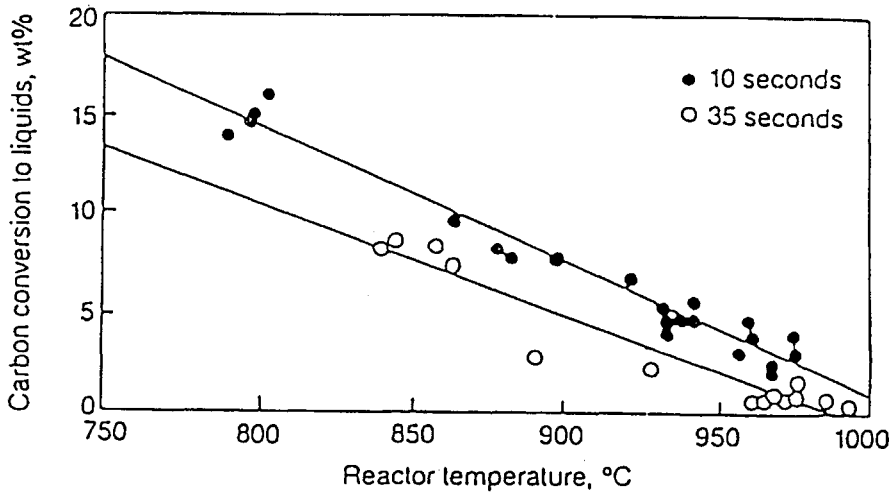
第２．１－４図に、主なガスへの炭素転化率を、第２．１－５図に生成ガス中の主なガスの濃度を示す。反応器出口温度とともに各成分への炭素転化率は大きくなっていくが、濃度的には変化が少なく、CH_4で87％位、ＣＯで10％位、CO_2で3％位のところにある。





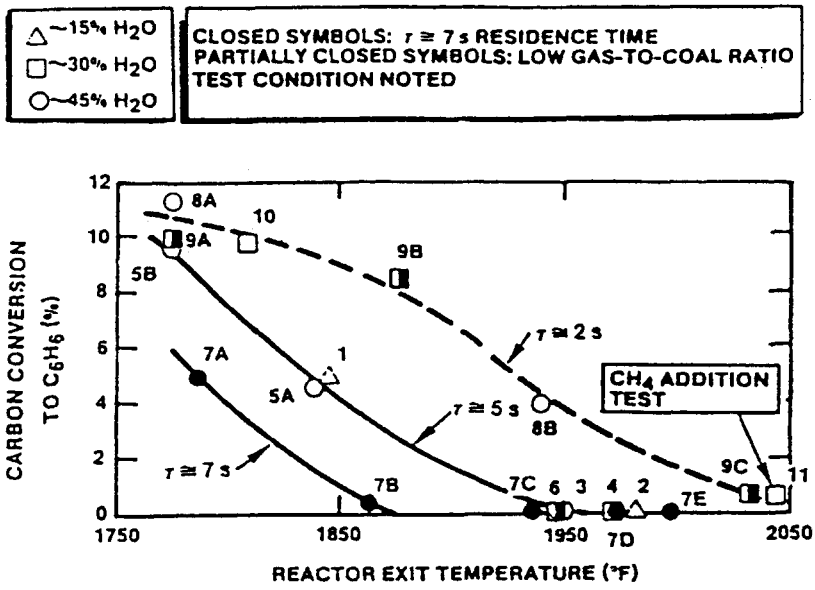
第２．１－４図 主要ガスへの炭素転化率[1)]（ＡＦＨＰ）　第２．１－５図 生成ガス中の主要ガス濃度[1)]（ＡＦＨＰ）

第２．１－６図に液への炭素転化率に対するガス滞留時間の影響を示す。滞留時間が短くなるほど液収率が大きくなり、反応温度が高くなるほど液収率が小さくなっている。



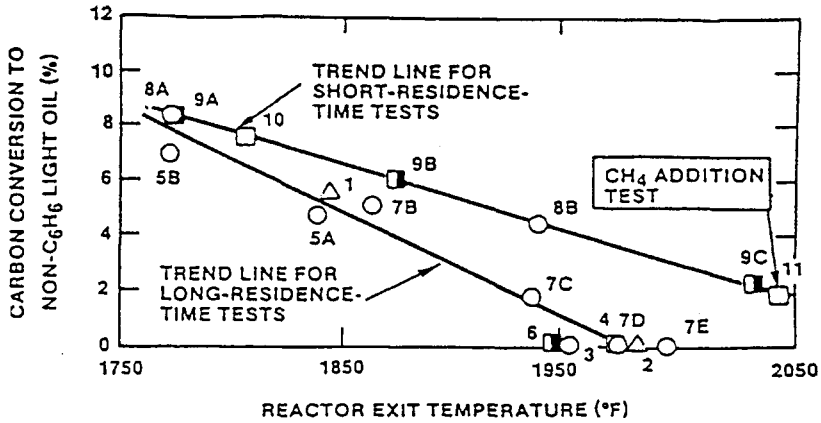
第２．１－６図　液収率に対するガス滞留時間の効果（BG/OG Manvers石炭）[2)]

第２．１－７図は、ベンゼンへの炭素転化率を示したものであるが、反応温度としては、ベンゼン最大収率の温度を超え、その収量が減少していくところである。ＡＦＨＰでは、入口ガス温度を1100℃～1400℃の高温で実施しており、概してベンゼンの収率が高い結果となっている。また、この場合にも滞留時間が短い方が高収率となっているが、スチーム濃度、低ガス/石炭比、メタン添加の影響はでていない。



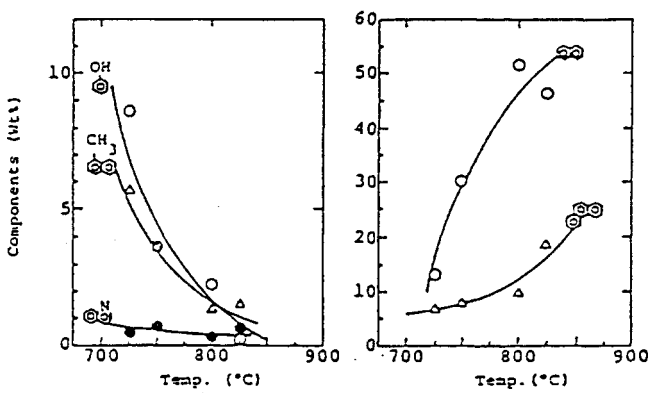
第２．１－７図　ベンゼンへの炭素転化率（ＡＦＨＰ）[1)]

ベンゼン以外のオイル分への炭素転化率を第２．１－８図に示す。この転化率も滞留時間の短い方が、高収率となっており、ベンゼンと合わせた全液収率は、最高約２０％（短滞留時間テスト）近くまで高くなることになる。



第２．１－８図　ベンゼン以外のオイルへの炭素転化率（ＡＦＨＰ）[1)]

オイル分の性状分析例として報告されているものを、第２．１－９図に示す。温度の上昇に伴ってフェノール、メチルナフタレンのような側鎖を有する環状化合物が減少し、ナフタレン、アントラセンのような側鎖の無い環状化合物が増加している。



第２．１－９図　オイル分の性状（BG/OG）[3)]

文　　献

1）Falk,A.Y.,　Schuman,M.D.,　Kahn,D.R.,　US DOE Rep.ET 10328-2013, Rockwell International (1986)

2）Asaoka,Y., Noguchi,F., 18th World Gas Conference Berlin 91,IGU/B3-91,(1991)

3）第２回　日中石炭シンポジウム予稿集（1988）

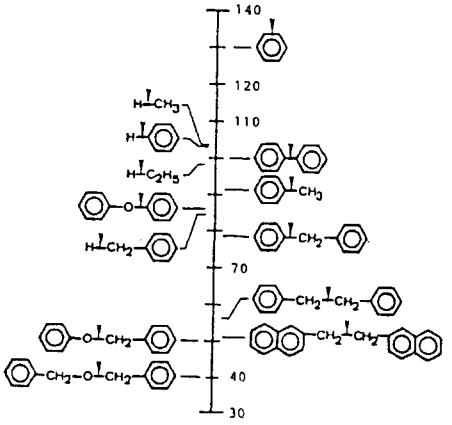
(2)タールの分解

a. はじめに

石炭の急速水素化熱分解においては、まずラジカルの生成およびその安定化によりガス状化合物、飽和もしくは不飽和液状化合物のタールおよび固体化合物のチャーが生成する1次反応と、主としてタールの分解縮合が進行する2次反応とに分けることができる。2次反応は最終的な生成物分布を決定する重要な反応であることが知られており、有用物質であるメタンやBTXの収率に大きく影響するが、また逆に縮合反応により配管閉塞等を起こすコークスを生成させ、コーキングトラブルの原因となる可能性も持つ。この観点から、タールの分解による有用物質の生成に関係する因子と、コークス生成の因子とについて最近の報告に基づいて調査をおこなった。

b. タールの熱分解

石炭熱分解の最終的な生成物分布は原料石炭の性質（炭化度、含有鉱物質の種類と量）、操作条件（温度、加熱速度、圧力、雰囲気ガス）等に大きく影響されることはよく知られている。石炭は複雑な巨大分子であり、石炭分子中には種々の結合が存在する。石炭の熱分解によりどの様な分子結合の切断が起こるかは結合エネルギーに左右されると考えられる。参考のために各種炭化水素化合物の結合エネルギーを第2.1-10図に示す。

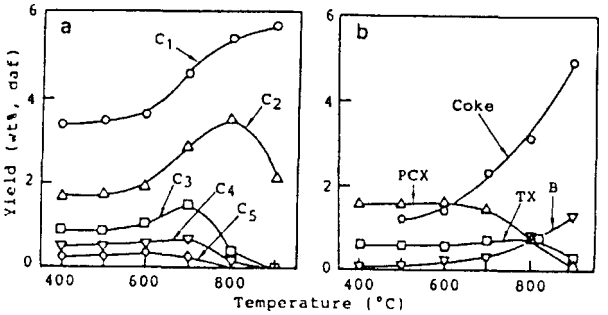


第2.1-10図　各種炭化水素化合物の結合エネルギー(Kcal/mol)

1次反応によって生じたラジカルは水素原子と反応して安定化してガスや液状生成物を与えるが、ラジカル同士の再結合は固体のチャーになる可能性が高い。ここで、水素原子は石炭中の水素、特に脂肪族水素が重要な役割を果たすが[1]、外部より補給された水素、例えば雰囲気水素等も影響する。1次反応でどのようなラジカルの安定化を受けたかは、2次反応のタールの分解にも影響すると考えられる。

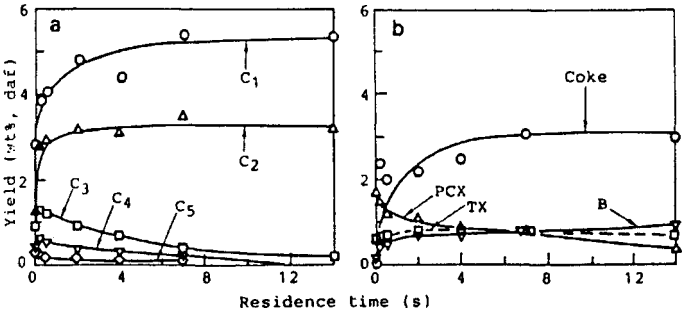
富田等の石炭熱分解の総説[2]によると、タールの反応に関係する因子として反応温度、接触時間、石炭中の鉱物質、外部からの添加物（触媒等）の4種を上げている。水素化熱分解ではこの他に水素雰囲気の影響が上げられると思われるが、これらの因子について簡単に述べる。

まず反応温度であるが、反応温度は最終生成物分布に大きく影響する。各成分の収率と反応温度の関係を第2.1-11図[3]に示す。図からわかるように、600℃以下では分解反応はほとんど認められず、C_5以上の炭化水素およびＰＣＸは600℃から分解が始まり、温度の上昇とともに収率は低下する。C_2は800℃で最大値を示し、C_1とベンゼンは温度の上昇とともに収率は増加する。このような挙動は第2.1-10図に示した結合エネルギーの差、すなわち化合物の安定性と密接に関係すると考えられる。ここで問題は炭素の収率であり、炭素は500℃からでも増加の傾向を示す。炭素析出と関係するメソフェースは400℃前後から生成することはよく知られている。炭素と軽質成分の生成の温度依存性の差は高温急速熱分解法の有利性を表すものと言える。同様な収率の温度依存性は他の報文[4]でも認められている。



第2.1-11図　熱分解生成物収率と２次反応温度の関係

滞留時間の影響であるが、タールの２次反応と滞留時間との関係の一例を第2.1-12図[3]に示す。反応温度は800℃である。反応温度と同様に、滞留時間の増加とともにC_1、C_2、ベンゼンおよび炭素は増加する。ここで、加熱速度、石炭粒径、ガス圧力も見方を変えれば滞留時間の問題と考えることができる。



第2.1-12図　２次反応に対する滞留時間の影響

石炭中の鉱物質は灰分として含まれるものと、石炭の含酸素官能基と結合しているもの（イオン交換性金属）とに分けることができるが、いずれの鉱物質もタールの分解に影響し、鉱物質の除去によって最終的なタールの収率が上昇する。この原因が熱分解そのものに対するものであるか、２次反応に対するものであるかははっきりしない。またタールの収率の変化が炭素生成に結びつくのか、軽質留分の増加に関係するのかもはっきりしない。

石炭への触媒の添加[5]および水素化分解触媒の使用はタールの分解に大きく影響する。

これは石油留分の水素化分解に触媒が用いられていることからも明らかである。触媒としては、通常の水素化触媒、塩化スズ、塩化亜鉛等が用いられる。２段式反応器を用い、水素化触媒を用いてのタールの分解についての報告[6]がなされている。前段の反応での水素圧および後段の反応条件が得られる生成物分布に大きく影響し、加圧水素下で後段反応に硫化モリブデン触媒を用いると高い収率でＢＴＸが得られるとしている。前段での石炭の熱分解、後段での２次反応の組み合せを最適化することで、有用成分の収率を大きく増加できる可能性がある。

c・ コークスの生成

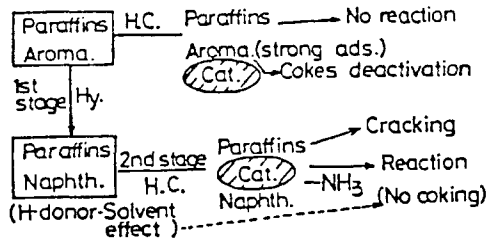
コークス生成によるコーキングトラブルについての研究は石炭液化反応や油分の接触水素化反応等で研究されている。コークス生成に関する因子は多く、しかも複雑である。まずコークスを生成するような重質化合物としては、石炭ではビトリニットのように溶融する成分が軽質化するとともに、コークスに転化する可能性が高く、イナーチニットのように溶融しない成分からのコーキングトラブルは少ないことである。タール状物質にしてもベンゼン可溶分のアスファルテン程度の重質成分によって、触媒のコーキングによる劣化が著しくなる[7]。これは重質油の軽質化と炭素化（コーキング）が一種の競争反応になっていることを示すものである。

タールの軽質化を促進し、重質化を抑制させるためには水素が重要な役割を示す。水素源としては雰囲気ガスとしての外部水素と内部水素がある。まず外部水素であるが、ラジカルの水素による安定化、引いては軽質化の促進のためには水素圧が重要であることは多くの報告からも明らかである。急速熱分解では水素圧の上昇とともに残渣のチャー収率が低下する。また、石油精製工程での水素化脱硫や水素化分解工程は数十気圧の圧力下で反応がおこなわれ、触媒上への炭素の析出を低下させている。さらに、水素を効率よくタールと反応させるためには、水素化触媒が重要な役割を果たす。ここで問題なのは水素化触媒への水素の供給が不十分であると、水素化触媒自身がコーキングの触媒として作用し、コークス生成を促進させることである[7]。

次に内部水素であるが、タールの熱分解の項で述べたように、石炭中に含まれる脂肪族水素がタールの生成に大きく影響する。これと同様にタール中に含まれる水素がコーキングを抑制する。例えば持田等は石炭液化油の２段階水素化処理について検討[8]をおこない、まず軽度水素化処理し、次いで水素化処理することにより水素化が進むと同時に、触媒上への炭素析出も少なくなると報告している。この原因として前処理により水素供与性の化

合物、主としてナフテン環化合物が生成したためとしている。概念図を第2.1-13図に示す。

コーキングはタール中の不純物にも原因する。坂西等はイオン交換性の金属を除くことによって触媒上への炭素析出が軽減されると述べている[9]。イオン交換性の金属、例えばカルシウムは熱処理にともない炭素析出の核となる可能性があるとともに、カルシウムイオンが2個の含酸素官能基と水素結合し、フラグメントの自由性を奪い、炭素析出を増大すると考えられる。フラグメントの自由度を奪うという点では、窒素や酸素官能基も分子間および分子内で水素結合をなし、コーキングの原因となると思われる。大井等[10]はＰＶＣピッチのメソフェース生成においてバナジウムと硫黄が共存すると、ＱＩが増加し、微細モザイク構造を呈するようになると報告している。このことは、タール中の不純物の金属やヘテロ原子がコーキングの原因になるとともに、両者の相互作用により、よりコーキングが促進される可能性があることを示している。



第2.1-13図　２段階水素化反応の概念図

d．おわりに

タールの分解と重合について調査した。タール中の金属やヘテロ原子の存在は重合、すなわちコーキングの原因となる可能性が高い。タールが分解して有用物質のＢＴＸやメタンとなるか、重合してコーキングを起こすかは一種の競争反応であり、軽質化を促進させるためには内部および外部水素の影響が大きい。有用物質をいかに多く生成させるかは、いかに効率よく水素を反応に関与させるかにかかっていると考えられる。

文　　献

1) Solomon, P. R., et al., Fuel, 60, 342(1981)　2) 許維春、富田彰、燃料協会誌、67, 14(1988)　3) Xu, W.-C., et al., 'Coal Science & Technology' 11, p629(1987)　4) Xu, W.-C., et al., Fuel, 69, 1007(1990)　5) 松井久次他、燃料協会誌、70, 81(1991)　6) 山下弘巳他、第２８回石炭化学会議、P197(1991)　7) Mochida, I., et al., Fuel, 67, 1101(1988)　8) 持田勳他、日本化学会誌、No.9, 1212(1986)　9) 坂西欣也他、燃料協会誌、69, 267(1990)　10) 大井章市他、第４回炭素材料学会、p6(1977)

2．1．2 反応熱の評価

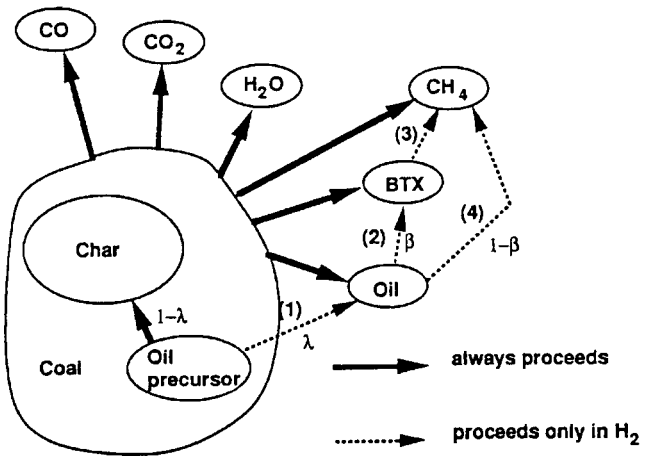
(1) 概要

水添ガス化反応を効率よく進めるためには、反応器内の温度分布、石炭粒子、ガスの滞留時間が生成物の分布・収率にどのように影響するかを明らかにし、それに基づいて合理的な装置形式、操作条件を決定して行く必要がある。特に、CH_4生成反応は大きな発熱を伴う反応であるので、反応温度に注目した検討が必要と思われる。そこで、反応器の形式、操作条件によって生成物の収率、温度分布がどのように変化するかを簡単な数学モデルを用いたシミュレーションにより検討した。

(2) 数学モデル

a 反応モデル　Rockwell社で提出されたモデル[1)]を参考に熱分解反応をモデル化した。第2.1-14図に示すように、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。図中の矢印は反応経路を示し、それらのすべてが１次反応であると仮定した。

b 設計方程式　反応器は噴流床型とし、①石炭粒子、ガス共に押し出し流れ、②粒子は終末速度で降下する、③断熱反応器、④粒子内に温度分布はない、⑤物質移動抵抗は無視できる、と仮定して第2.1-1表に示すように設計方程式を定式化した。なお、BTXはベンゼン、Oilはナフタレンで代表して、それぞれの特性値を表した。また、Oil前駆体（Prc）は石炭と同じ元素組成、特性値を有するものとした。気相における反応は、第2.1-14図中の(2)～(4)の反応とシフト反応を考慮し、水素は(2)～(4)の反応のみによって消費されるものとした。また、シフト反応は瞬時に平衡に達するものとした。反応熱は、(1)～(4)の反応についてのみ考慮し、それ以外の反応は熱的に中立であるとした。



第2.1-14図　石炭熱分解反応モデルで考慮した成分と反応経路

(3) 計算結果例

例として、次の３つの場合の計算結果を示す。それぞれの操作形式、操作条件を第2.1-15図に示した。

Case 1：ワンスルー反応器で、水素／石炭供給比（H/Coal）＝0.3[kg/kg]

Case 2：リサイクル反応器で、

第2.1-1表　シミュレーションに採用した基礎式

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

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

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

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

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

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

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

$$\frac{d(f_{Oil})_p}{dz} = \frac{d(f^+_{Oil})_p}{dz} + \lambda\kappa_{Prc}(f_{Prc})_p/u_s \quad (8)$$

$$\frac{d(f_{Prc})_p}{dz} = \frac{d(f^+_{Prc})_p}{dz} - \kappa_{Prc}(f_{Prc})_p/u_s \quad (9)$$

$$\frac{df_{H_2}}{dz} = M_{H_2}\{-6\kappa_{BTX}\frac{f_{BTX}}{M_{BTX}} - 38\kappa_{Oil}\frac{f_{Oil}}{M_{Oil}} - 16(1-\beta)\kappa_{Oil}\frac{f_{Oil}}{M_{Oil}}\}/u_f + SM_{H_2}r_{sft}/G_{s0} \quad (10)$$

$$\frac{df_{CO}}{dz} = \frac{d(f_{CO})_p}{dz} - SM_{CO}r_{sft}/G_{s0} \quad (11)$$

$$\frac{df_{CO_2}}{dz} = \frac{d(f_{CO_2})_p}{dz} + SM_{CO_2}r_{sft}/G_{s0} \quad (12)$$

$$\frac{df_{H_2O}}{dz} = \frac{d(f_{H_2O})_p}{dz} - SM_{H_2O}r_{sft}/G_{s0} \quad (13)$$

$$\frac{df_{CH_4}}{dz} = \frac{d(f_{CH_4})_p}{dz} + \{(1-\beta)\kappa_{Oil}f_{Oil} + \kappa_{BTX}f_{BTX}\}/u_f \quad (14)$$

$$\frac{df_{BTX}}{dz} = \frac{d(f_{BTX})_p}{dz} + (\beta\kappa_{Oil}f_{Oil} - \kappa_{BTX}f_{BTX})/u_f \quad (15)$$

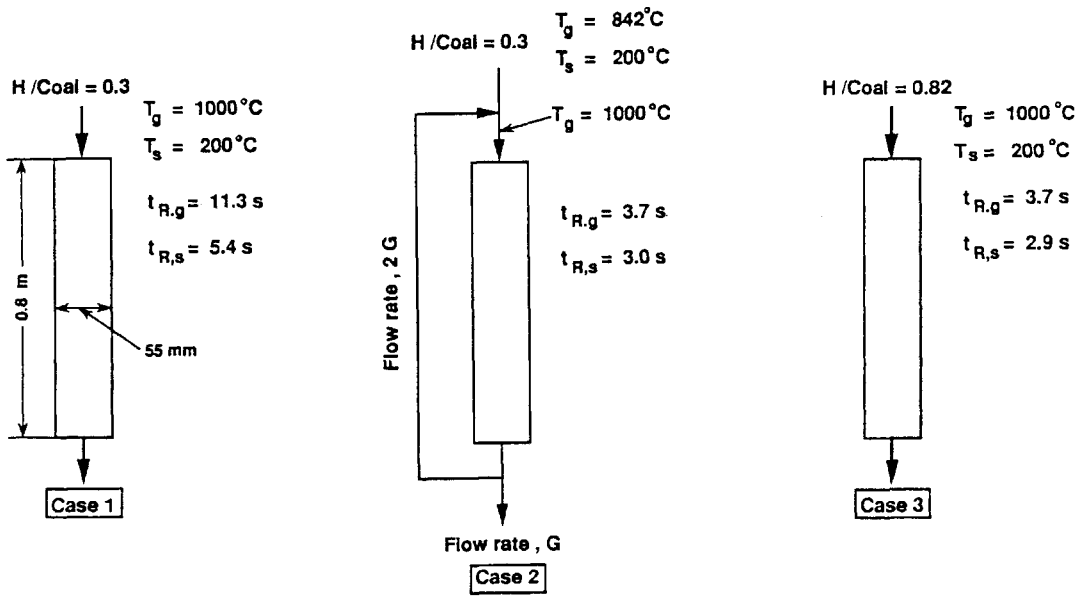
$$\frac{df_{Oil}}{dz} = \frac{d(f_{Oil})_p}{dz} - \kappa_{Oil}f_{Oil}/u_f \quad (16)$$

$$G_s c_{ps}\frac{dT_s}{dz} = h_c a_p S(T_g - T_s) - \Delta H_{1,m}G_{s0}\lambda\kappa_{Prc}(f_{Prc})_p/u_s \quad (17)$$

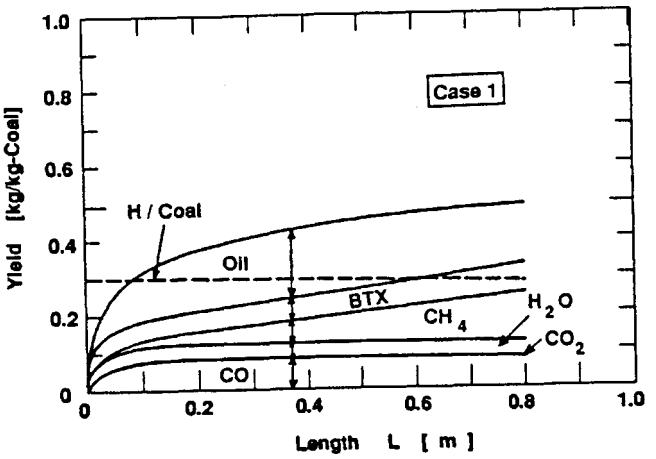
$$G_{s0}\sum(f_j c_{p,j})\frac{dT_g}{dz} = h_c a_p S(T_s - T_g) + (-\Delta H_{sft})r_{sft}S + G_{s0}\{\kappa_{BTX}f_{BTX}(-\Delta H_3)/M_{BTX} + \beta\kappa_{Oil}f_{Oil}(-\Delta H_2)/M_{Oil} + (1-\beta)\kappa_{Oil}f_{Oil}(-\Delta H_4)/M_{Oil}\}/u_f + G_{s0}\sum\{\frac{d(f_j)_p}{dz}\bar{c}_{p,j}(T_s - T_g)\} \quad (18)$$

【使用記号】

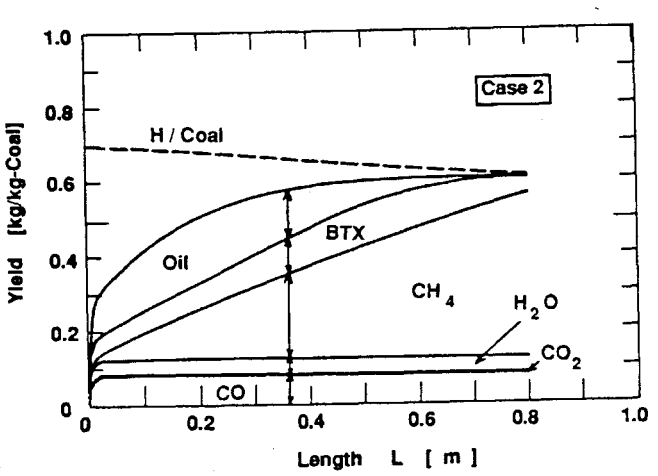
$(f_j)_p$：粒子内における各成分の累積生成量〔kg/kg-coal〕、f_j：各成分の収率（気相における値）〔kg/kg-coal〕、f^*_j：石炭中で各成分に変化し得る最大量〔kg/kg-coal〕、$(f^+_j)_p$：粒子内における各成分の累積生成量〔kg/kg-coal〕、k_j：石炭内の反応の速度定数〔1/s〕、κ_j：気相における反応の速度定数〔1/s〕、T_s：粒子温度〔K〕、T_g：ガス温度〔K〕、G_{s0}：石炭供給速度〔kg/s〕、d_p：石炭粒子径〔m〕、u_s：粒子速度〔m/s〕、u_g：ガス速度〔m/s〕、h_c：粒子外境膜伝熱係数〔W/(m²·K)〕、a_p：粒子外表面積〔m²/m³〕、S：反応器断面積〔m²〕、c_{pj}：比熱容量〔J/(kg·K)〕、M_j：分子量〔kg/mol〕、ΔH_i（i=2～4）：反応(2)～(4)の反応熱〔J/mol〕、$\Delta H_{1,m}$：反応(1)の反応熱〔J/kg〕、ΔH_{sft}：シフト反応の反応熱〔J/mol〕、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



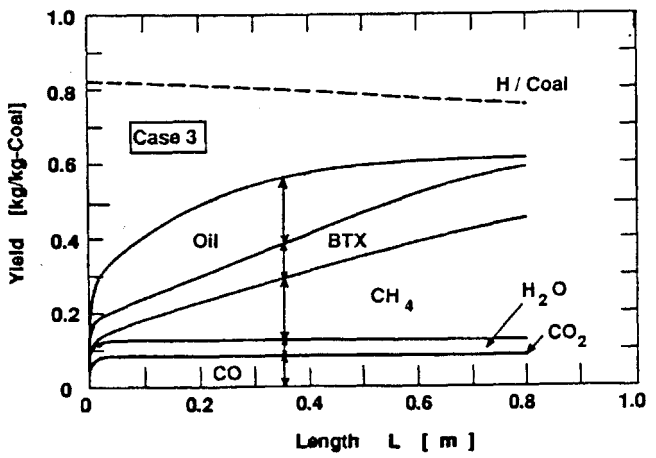
第2.1-15図　検討した反応器操作形式と操作条件



第2.1-16図　Case 1の反応器内の生成物分布



第2.1-17図　Case 2の反応器内の生成物分布



第2.1-18図　Case 3の反応器内の生成物分布

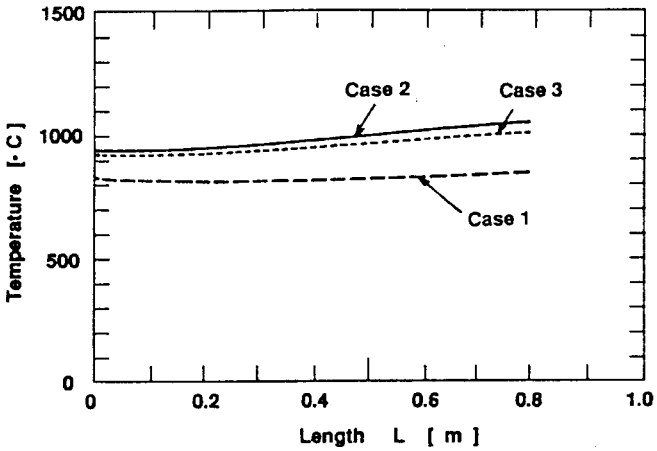
供給H/Coal比はCase 1と同じで、生成ガスの2/3をリサイクルする場合

Case 3：ワンスルー反応器で、Case 2とほぼ同じ滞留時間となるようにH/Coal比を大きくした場合（H/Coal=0.82）

いずれの場合も、石炭供給速度は3.0 kg/h、反応器入口におけるガス温度＝1000℃、粒子温度＝200℃とした。なお、石炭は瀝青炭を想定し、粒子径は70μmとした。

第2.1-16～第2.1-18図に生成物分布と、H/Coal比の反応器長さ方向の変化を、第2.1-19図に温度変化を示す。なお、本条件下では、ガスと石炭粒子は接触するとほぼ瞬間的に同一温度になったので、ガスと粒子の温度は区別しないで示した。現時点では、モデル、反応速度パラメータが全面的に信頼し得るものではないので厳密な議論はできないが、それぞれの場合の結果は定性的に次のように整理できる。

【Case 1】　入口で粒子とガスが混合されて830℃程度の温度になり、以後はほぼその温度のままで反応が進行している。反応温度が低い



第2.1-19図　Case 1～Case 3の反応器内の温度分布

ため滞留時間が大きいにも拘らず転化率は小さく、Oil、BTXが主生成物である。

【Case 2】　この場合にはかなり高温の反応生成ガスをリサイクルするので、供給水素は842℃に予熱するだけでよい。反応温度は900℃以上に維持され、またリサイクル流にはBTXも相当量含まれているので、反応(1)～(4)が進行し、反応器出口ガスはCH_4リッチになる。

【Case 3】 Case 2と比較すると、温度は同様に上昇してき（第2.1-19図）、転化率もほぼ同じであるが、生成物はBTXの割合がやや大きくなる。この結果は、H/Coal比を大きくすればリサイクル反応器と同様の状況にできることを示している。しかし、この場合大量の水素の予熱が必要になるとともに、大量の高温のガスが生成することになる。

Case 1では転化率が小さいが、転化率を上げるには反応温度、すなわち水素の予熱温度を上げればよい。たとえば、Case 1と同じ条件下で水素予熱温度のみを1100℃にすると、反応は反応器長さ0.2 mでほぼ完了し、無機ガス以外にはほぼCH_4のみが生成物となる。しかし、この時反応器出口温度は1300℃近くにも達する。

まだ、十分とは言えないがこのようなシミュレーションによって反応器の性能、最適な操作条件に対する情報を得ることができる。今後、シミュレーションの精度を上げて、プロセス全体の効率を高める観点からの検討を進めて行きたい。

文　献

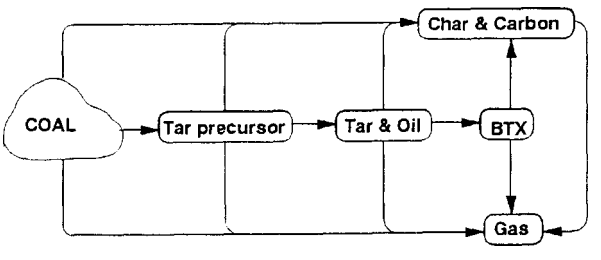
1) Falk, A.Y., Schuman, M.D. and Kahn, D.R., USA DOE Report AI-DOE-13536(1986).

2．1．3　熱分解モデル

シミュレーション・モデルの中で、石炭粒子内部の反応挙動を表す部分は、極めて重要である。加圧水素下での粒子内の反応の経路は、第2.1-20図のように考えられている。ここで、石炭から数種の生成物が生じる過程は、単なる熱分解反応である。この部分については、既往の多くの実験的研究を参照でき、急速加熱条件下でもＭＩＴの研究者の優れた研究があって、モデル化の手法はほぼ確立されていると考えられる[1]。水素加圧下では熱分解生成物の組成や収率が影響されるかもしれないが、モデルとしてはこれを純熱分解とみなすのが妥当であろう。熱分解生成物あるいは中間体は、その後、熱反応や水素化反応を起こし、最終生成物の分布が決められる。ここでの最終生成物とは粒子外へ出てくる物質のことで、これらは引き続き、気相で熱的な変質や水素化を受ける。メタンのみを製造する場合、反応条件を厳しくすることで、タール前駆体からの生成物を更に水素化分解し、液状中間生成物をメタンにまで転換できる。このときは、液状物質を一括してタールとして扱い、タールからメタンやコークへの反応としてモデルを簡略化できる[2]。しかし、本計画のように、反応条件を制御してＢＴＸ等の副製品を得ようとするならば、タール前駆体を経て順次低分子化する反応、すなわちタール前駆体がより小さなフラグメンに解裂する反応やラジカルの再結合による不活性化および水素による安定化を表現するところが最も重要な部分となる。

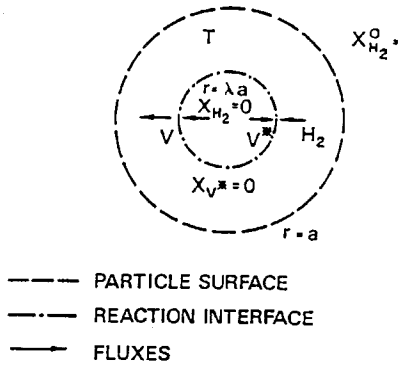
このような反応面での取り扱いの他に、粒子内部への水素の進入を考える必要があるが、熱分解が急激に起きる温度域では、石炭の細孔構造も大きく変化するため、水素の拡散過程を簡潔に表現する工夫を必要とする。特に、粘結炭の溶融状態での拡散を妥当な精度でモデル化するには、急速加熱条件下での熱可塑性の研究が著しく不足している。

水素化熱分解モデルの発展をたどると以下のようである。MoseleyとPaterson[3]は第2.1-20図の活性チャーからメタンが生成する反応に注目し、活性チャーの反応点がメタン化によって急速に消費される過程をモデル化した。また、Zahradnikら[4]は活性点がメタンの生成のみでなくクロスリンクにより失活する過程を追加した。Anthonyら[5]は粒子内の急速水素化



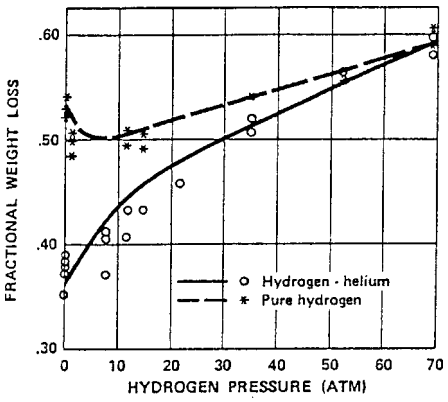
第2.1-20図　反応モデル

熱分解生成物を総称して”揮発分”と呼び、その一部は活性であり、残りは不活性であるとした。活性揮発分はクロスリンクによりチャーに取り込まれ、水素で安定化されたものは不活性揮発分とともに粒子外に流出して重量減少を引き起こすと考えた。そして、活性揮発分のこれらの反応に、拡散項を加えた収支式を導入することで、水素圧１０気圧付近で重量減少が極小となる圧力効果を説明できた。



第2.1-21図　粒子内の物質移動

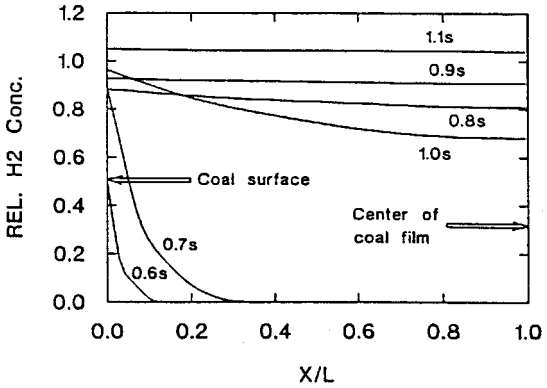
Russelら[6]は粒子内部への水素の拡散を組み込み、Anthonyらの数式モデルを拡張した。その概念は次のようである。熱分解反応が遅いときは、外部水素は粒子内部まで進入でき、活性揮発分を直ちに安定化するものとする。したがって、チャー化は全く生じない。熱分解反応が激しくなると、粒子外部に向かう揮発分の流れが生じるので、水素分圧は半径方向に分布をもち、ある位置で値が0になる。すなわち、粒子の中心部に外部水素が存在しない核ができる（第2.1-21図）。全体として、モデルは、圧力や粒子径の影響をうまく表現でき、Anthonyらの実験結果と良好な一致を示した（第2.1-22図）。しかし、反応温度の影響については、高圧水素下の場合に不一致が大きい。これは移動現象に重点を置き、反応に関しては簡単なSingle reactionモデルを用いたからであるとしている。Russelらのモデルは反応が進んでもマクロ孔構造に変化がない場合を対象としている。したがって、熱分解過程で液相に転じる粘結炭には適用できない。Shaubら[7,8]は粘結炭に対するモデルを構築しようとし、脱揮発反応を起こしているプラスチック・ゾーンについては、気泡によって攪拌されている物質移動系とみなし、水素の拡散を定式化した。粒子内部の水素分圧を計算した結果は第2.1-23図のようである。ワイヤー・メッシュ加熱法を想定しているので、厚さ７０μmの平板（L＝35μm）に対するものである。加熱開始より0.6秒あたりから石炭の軟化が始まり、粒子内の細孔が閉じ始めるので、水素は内部に進入できず、中心方向に向かって水素分圧が急激に低下している。0.7秒後には液相の粘度が低下してく



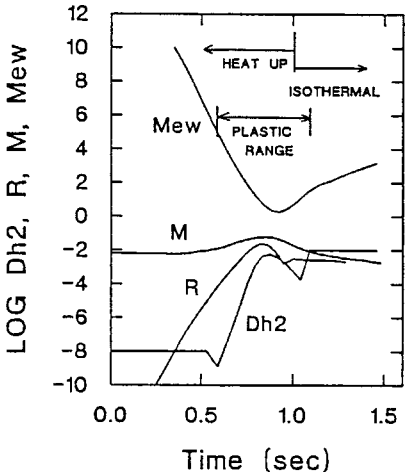
第2.1-22図　モデル計算の結果

るので、水素はやや進入し易くなる。その後、脱揮発反応が盛んになると、気泡の攪拌効果によって有効拡散係数が増大し、内部の水素分圧はほぼ一様になる(0.8～0.9)。プラスチック期間の終期で液相の粘度増加によって、やや分布がつくが、再固化が完了する1.1秒後には発達した細孔のため、再びフラットな分布になる。この間の各種因子の変化、すなわち、有効拡散係(dh2)、ガス生成速度(R)、タール前駆体生成速度(M)、液相粘度(Mew)の変化を計算したのが第2.1-24図である。全体のモデルはピッツバーグ炭に対して圧力や粒子径の効果を効果を調べた実験結果と良く一致している。

以上、主な研究の概要を記したが、今後の方向として、生成物分布を推定できるモデルを開発しなければならない。高いＢＴ収率を目指す場合は特にそうである。



第2.1-23図　粒子内の水素分圧



第2.1-24図　プラスチック期間の各種因子の変化

参考文献

1) E.M.Suuberg, W.A.Peters and J.B.Howard, Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., 17 No1, 37 (1978)

2) G.Schaub, W.A.Peters and J.B.Howard, AIChE J., 31 No6, 903 (1985)

3) F.Moseley and D.Paterson, J. Inst. Fuel, 38 13 (1965)

4) R.L.Zahradnik and R.A.Glenn, Fuel, 50 77 (1971)

5) D.B.Anthony, J.B.Howard, H.C.Hottel and H.P.Meissner, Fuel 55 121 (1976)

6) W.B.Russel, D.A.Saville and M.I.Greene, AIChE J., 25 65 (1979)

7) G.Schaub, W.A.Peters and J.B.Howard, AIChE J. 31 903 (1985)

8) G.Schaub, W.A Peters and J.B.Howard, AIChE J. 31 912 (1985)

２．１．４　低級飽和炭化水素の合成

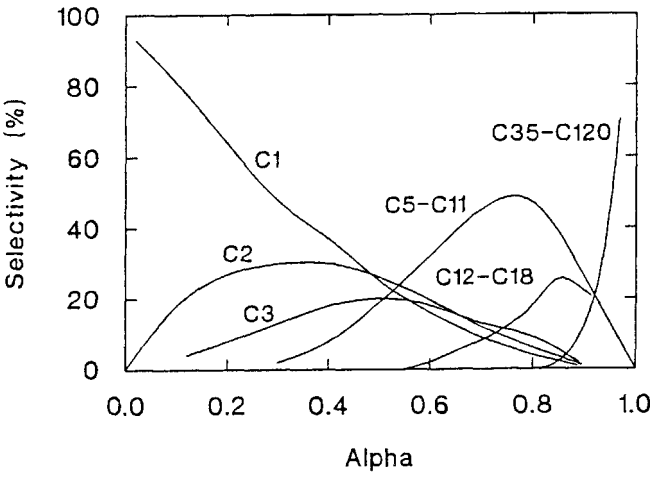
天然ガスを主成分とする現在の都市ガスは、11､000kcal/m³の熱量を有し、メタン以外にエタン、プロパンなどを含んでいる。水添ガス化炉からの生成ガスはメタンが殆どであるから、現状と同等の熱量のガスを供給する場合、増熱用として炭素数２～４の低級炭化水素を製造する必要がある。製造量は、エタンのみで増熱するとき、0.27　Nm³/Nm³・CH_4、プロパンのみのとき 0.12 Nm³/Nm³・CH_4であり、炭素数で表せば、メタン１分子に対しエタンでは０．５４個、プロパンでは０．３６個の炭素原子が必要になる。この量は、水添ガス化プロセスの炭素や水素の収支において軽視できない値であることに注意しなければならない。これだけの量は、ＢＴＸ以外の液状副製品のクラッキングでは確保できないので、やはり合成する必要がある。

合成用原料としては、当然、部分酸化炉で製造される水素、一酸化炭素がまず考えられる。しかし、ここでは、技術の可能性を探る意味で広く捉え、水添ガス化炉からのメタンをも原料とみなし、これらから低級炭化水素を合成する研究を調査し、研究課題を整理した。

（１）　水素・一酸化炭素からの合成

水素と一酸化炭素からの液体炭化水素合成はＦＴ合成として膨大な研究例があり、工業化されたものも少なくない[1)]。しかし、Ｃ２～Ｃ４を主製品とするような合成法は、今までその必要性が少なかったこともあって、すぐにも工業化できるものは開発されていない。合成の鍵は、優れた触媒の調製に尽きるといってよい。ＦＴ合成ではないが、モービルＭＴＧ法の成功に見られるような画期的な触媒開発が望まれる。

通常のＦＴ合成触媒では、図のように広い生成物分布を与えるという欠点がある。これは、原料の水素と一酸化炭素が触媒上でほぼ完全に解離し、反応条件で決まる連鎖成長確率αに支配されてしまうからである。このシュルツ・フローリー分布則に従う触媒では連鎖成長確率を０．３から０．４に設定すれば、Ｃ２～Ｃ３の収率



第2.1-25図　選択性と連鎖成長確率

を最大にできるものの、メタンへの転化率が大きすぎることや、C5～C11の液状物も生成することが図から読み取れる。この分布則から逃れるために、触媒金属の多元化や細孔径の制御、あるいは担体の電子的性質の改善や添加物効果の利用などが研究されている[2)-7)]。そのような方法で、低級炭化水素の選択性が向上した例を第2.1-2表に示す。選択性の他にも、触媒の基本的性能として、活性、機械的強度、熱安定性、被毒、調製の経済性などを解決しなければならず、今後の研究課題は極めて多い。

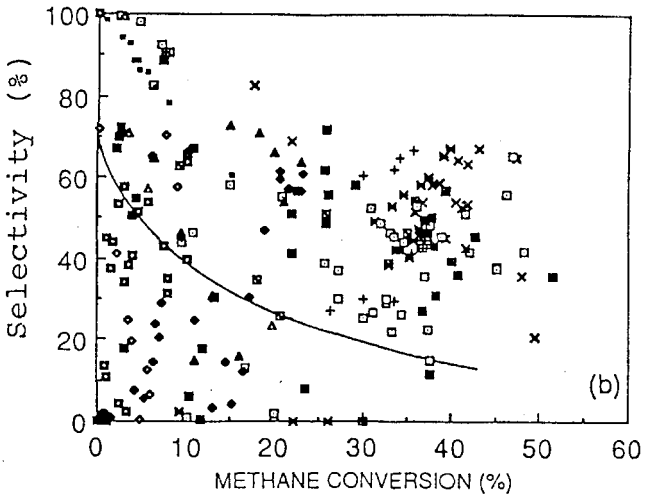
第2.1-2表　ＦＴ触媒の修飾の例

触媒：	100　Fe：100　Mn：10　ZnO：4　K_2O	
反応温度	320　℃	
反応圧力	10　atm	
CO/H_2比	1.0	
空間速度	500　h^{-1}	
転化率	86　%	
全生成物収率	164　g	
生成物分布		
CH_4	9.6	wt%
C_2H_4	31.3	
C_3H_6	22.2	
C_4H_8	17.4	
C_2-C_4パラフィン	15.7	
C_5+	3.8	

（２）　メタンからの合成

メタンから低級炭化水素を合成するのは、自然に起きる熱反応を逆行させるものであるから、相当のエネルギーを必要とする。このエネルギーをメタンの部分酸化で取出すことによって、無理なく反応を進めようとするのが、酸化カップリング重合法である。この方式以外にもいくつかの重合法が検討されているが、反応が温和であるのでこれを取り上げた。この反応については、今まで多くの報告があり、極めて多数の金属酸化物が触媒作用を示すことがわかっている[8,9)]。金属酸化物上でメタンは触媒の格子酸素や吸着酸素によって水素を引き抜かれ、メチルラジカルを生成する。メチルラジカルが結合してエタン、エチレンを生成する反応が目的とするものであるが、酸素による酸化が進みすぎると、COやCO_2を生成する。したがって、CH_4/O_2の送入比がＣ２炭化水素の収率に大きく影響する。しかし、この比を大きくして選択性を大にしようとすると、酸素不足になってメタンの転化率が上がらなくなる。第2.1-26図のように、高転化率と高選択性を両立させる

のは大変に困難である。この点の改善策として、メタンと酸素を初めから混合して反応に供するのでなく、分離して供給することが考えられる。一例として、酸素イオン伝導体であるジルコニアを隔膜として用い、それへの印加電圧によって選択性と反応速度を制御することが試みられている[10]。また、酸素透過膜を用いて触媒近傍でのCH_4／O_2比を制御することも行われている[11]。このような工学的なアプローチと、より低温でメタンを活性化する触媒の探索を続けるならば、近年の触媒化学の急速な進歩からみて、実用に耐える反応法が確立されるのも遠くないであろう。



第2.1-26図　メタンの転化率と選択性

参考文献

1) C1ケミストリー　触媒学会編　講談社　(1984)

2) P.V.Venuto, P.S.Landis, Adv. Catal., 18 308 (1968)

3) D.Commereuc, Y.Chauvin, F.Hugues, M.Basset, D.Olivier, J. Chem., Soc., Chem. Commun., 154 (1980)

4) G.B.McVicker, M.A.Vannice, J. Catal., 63 25 (1980)

5) T.Okuhara, K.Kobayashi, T.Kimura, M.Misono, Y.Yoneda, J. Chem. Soc., Chem. Commun., 1114 (1981)

6) H.Arakawa, A.T.Bell, Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev. 22 97 (1983)

7) T.Mitsudo, H.Boku, S.Murachi, A.Ishihara, Y.Watanabe, 石油学会誌 31 62 (1988)

8) 大塚　潔　触媒　30 248 (1988)

9) 藤元　薫、朝見　賢二　ペトロテック　12 62 (1989)

10) 橋本　茂、小俣　光司、冨永　博夫、藤元　薫　触媒学会92回研究発表会　3B　222 (1988)

11) K.Ohtsuka, Chem. Lett., 319 (1985)

２．２　水添ガス化反応器の調査および検討

２．２．１　水添ガス化反応器の条件

石炭水添ガス化プロセスの商業化に際して、噴流床水添ガス化反応器の具備すべき条件としては、以下の項目が考えられる。

- 水添ガス化反応の効率が高いこと
- ＢＴＸ等の高付加価値液生成物に対する自由度が大きいこと
- 石炭の大量処理が可能であること
- 反応器の運転制御システムの信頼性が高いこと
- 炭種適合性の良いこと
- 環境調和性の良いこと

それぞれの項目について、ワンスルー式および内部循環式の噴流床反応器を例として検討し、重要な開発のポイントを述べる。

（１）水添ガス化反応の効率が高いこと

水添ガス化反応器の性能を決める第一のポイントは、目的生成物であるCH_4やＢＴＸ等の液生成物への炭素転化率および排熱回収を含めた全体としての熱効率が高い反応器であることである。反応効率はプロセスの経済性に大きな影響を及ぼす。

滞留時間の非常に短い（～１０秒）噴流床の水添反応器においては、反応速度の遅い固体チャーとH_2の反応はあまり期待できず、石炭中揮発分の放出の初期過程とそれに続く気相水添反応をいかに効率良く行わせるかが、反応効率向上にとって重要となる。多量の揮発分の放出を実現し、全炭素転化率を上げるためには、石炭インジェクター部の構造が極めて支配的となる。石炭粒子と高温反応ガス（H_2）の混合・分散を瞬時に可能とし、充分な粒子加熱速度を確保する構造とする必要があろう。気相水添反応では、反応温度や滞留時間が支配的反応条件となって、CH_4やＢＴＸ・オイル等の液生成物収率への振り分けが決まってくる。一般的に、反応温度が高いほど、CH_4収率の増大、液収率の減少、滞留時間が短いほど液収率の増大、CH_4収率の減少という傾向を示す。

ワンスルー式の反応器では、酸素によるH_2の部分燃焼昇温で１１００～１４００℃近い高温のH_2を石炭に噴射・反応させるため、石炭の急速昇温は達成しやすい構造を持つ。また、反応温度および滞留時間の制御性は良く、滞留時間の短い（～２秒）、低温（～９

００℃）の反応では、ＢＴＸへの炭素転化率が１０％を越える。しかしながら、Non-ＢＴＸオイルの収率も１０％近く存在し、液製品の分布は広い。また、反応熱を有効に回収し、熱効率を向上する必要がある。

内部循環式の反応器は、反応熱の利用に優れた構造をもち、熱効率の高いプロセスとなり得る。また、ガス滞留時間を長くとれるため、気相水添反応を充分に行える。したがって、液生成物に対するＢＴＸ製品の純度は高いが、CH_4 収率とのバランスから、ＢＴＸ収率を高くできない。内部循環式においては、反応器の制御性を決定づけるインジェクターの構造は、特に、石炭の急速昇温、循環ガス量の制御において、ワンスルー式より重要となるであろう。

（２）ＢＴＸ等の高付加価値液生成物に対する自由度が大きいこと

平成２年度の報告書に示されるフィージビリティスタディでは、水添プロセスの経済性は、副産物であるＢＴＸ等の液生成物の収率に依存することが明らかになった。石炭から都市ガス用としてのＳＮＧだけでなく、化学原料としてのＢＴＸ製品を併産するプロセスを開発することは、原料ソースの多様化を図る上で、我が国にとっては特に意義のあることである。

ワンスルー式および内部循環式反応器の開発成果をベースに、ＳＮＧおよびＢＴＸの生産比率に自由度のある我が国独自の反応器の開発（ＡＲＣＨプロセス）を推進していくべきである。

（３）石炭の大量処理が可能であること

経済性の面から、設備費および運転・維持費の低減をはかるためには、単基容量の大きな水添反応器を実現する必要があり、スケールアップの容易な反応器でなければならない。コマーシャルプラントにおいて要求される水添反応器の単基容量は、２０００～３０００ｔ／ｄの規模であり、現状の５～１０ｔ／ｄＰＤＵレベルからパイロット、実証レベルを経て、商業化に結び付く。

固定床および流動床の反応器に比較して、一般に噴流床は大型化に適しているといわれているが、大型化に伴う石炭粒子・ガス流動および反応状態の予測手法、濃厚相輸送、チャーの冷却・排出、ガス／ガス熱交換の周辺技術を含めたスケールアップ手法の確立をはかる必要がある。

本報告書「3．2．3」のスケールアップの指針に述べてあるとおり、商業プラントでは、ワンスルー式および内部循環式の反応器ともに、反応H_2ガスと石炭の混合・分散を良好に保つ必要性から、マルチインジェクターを採用することになる。反応器のスケールアップでは、このインジェクターのスケールアップをどう確立していくかが最大の課題となる。

石炭インジェクターの本数・径・配置、反応H_2インジェクターの孔数(2-on-1,3-on-1,4-on-1 等）・径をどうとるかによって、ガスおよび粒子流れ・反応状態が変わり、反応器性能に影響する。さらに、内部循環式では、反応器内筒径と外筒径の比、インジェクター面とのギャップが、ガス循環量を決定する上で重要なファクターとなる。

反応器のスケールアップに際しては、精度の良い反応器数学モデルによる予測を行いつつ、冷間モデルによる充分な試験で、流れの状態を事前に見極めておく必要がある。

（4）反応器の運転制御システムの信頼性が高いこと

石炭水添ガス化プラントは、多大の設備コストを要する装置型システムである。稼働率（部分負荷率）の影響が、即、生成ガスコストに反映する。したがって、水添プラントは、できるだけ負荷変動を避け、高負荷で運転する必要がある。そのためには、システムの個々の信頼性を向上させ、トラブルによる運転停止を極力なくすことが重要である。できるだけ単純なシステムであることが望まれる。

水添反応器およびその周辺機器において、システムの信頼性を低下させる要因として、重要と思われるものは、(a) 石炭供給系　(b) 反応器材質　(c) チャーの排出／輸送系（チャーガス化プラントとのつなぎ）　(d) 負荷追従に対する操作性　である。

水添反応器は、最適な設備設計条件で高負荷運転をすることが理想的であるが、負荷変動・部分負荷運転にも信頼性ある反応器であることが望ましい。水添ガス化において、負荷追従に対する制御の操作因子は、供給H_2量および石炭量であるが、噴流床は、固定床・流動床に比べて、炉内熱容量・反応温度の維持の観点から、一般的に制御が難しい[1]。

（5）炭種適合性の良いこと

我が国のように、大部分の石炭を海外に依存しているところでは、多くの種類の石炭を使用しうるプロセスが望まれる。石炭水添ガス化では、高揮発瀝青炭から亜瀝青炭・褐炭までの石炭が対象となる。炭種の選定にあたっては、水添反応器での適合性だけでなく、

生成チャーのガス化炉への適合性についても考慮する必要がある。

水添ガス化プロセスにおいて、考慮すべき重要な石炭特性は、(a) 反応性（石炭の水素化反応性および生成チャーのO_2ガス化反応性） (b) 粘結性（石炭の水添反応器内での溶融凝集・付着性の指標） (c) 灰分溶融性（チャーガス化炉におけるスラグ排出の指標） (d) 搬送性（濃厚相輸送における指標） である。

（6）環境調和性の良いこと

あらゆる石炭利用プロセスは、クリーンな環境を保証しないかぎり、将来の商業化への道はない。石炭水添ガス化プロセスも例外ではない。水添反応器から排出されるH_2SやＣＯＳの硫黄化合物やNH_3等の窒素化合物は、脱硫・脱アンモニアプロセスによって、ＳやNH_3として資源化される。また、石炭中灰分は、チャーガス化炉によって、溶融スラグ化して有用な資源となり得る。排水処理も既存プロセスで充分に対応できるものであり、水添プロセスは基本的にクリーンな石炭利用技術である。

さらに、水添反応器の熱効率を向上させ、プロセス全体の熱効率を高くすることで、地球環境問題にも寄与できるクリーンコールテクノロジーの提示が可能となるであろう。

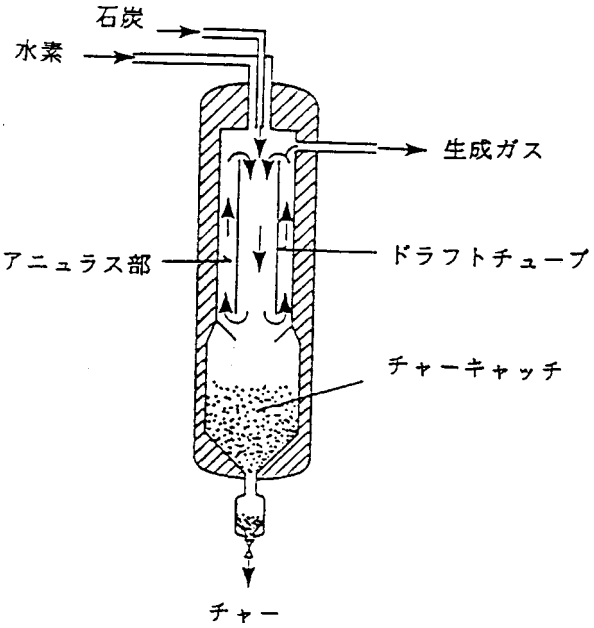
文　献

1）平戸：サンシャインジャーナル，7(2)，p4 (1986)

2．2．2　内部循環式反応器

（1）反応器の概要

第2.2-1 図に示すような反応器内部にドラフトチューブを有する生成ガス内部循環式反応器である。　反応器は上部にインジェクターを有し、インジェクターから噴出される水素ガスのモーメンタムによって、石炭粒子と水素との急速混合を促進し、同時に高温の生成ガスの内部循環を誘発する。　石炭粒子は、インジェクター出口で予熱された水素と高温のリサイクルガスにより、急速に昇温され、ドラフトチューブ内およびアニュラス部で水素ガスと反応し、メタンとＢＴＸ等の軽質油を生成する。　未反応チャーは、　ほとんどが反応器下部で分離される。



第2.2-1 図　内部循環式反応器の概念図

内部循環式反応器は、次のような特徴を有している。

a．反応器の構造がシンプルでスケールアップが容易である。

b．反応器内で、石炭と高温の生成ガスの直接の熱交換が行われるため、水素の予熱に酸素の部分燃焼が必要でなく、熱効率が高い。

c．ドラフトチューブ内およびアニュラス部で水素化分解が充分に行われるため、ＢＴＸ等の軽質油が多い。

d．微粉炭や粘結炭を容易に扱える。

（2）開発状況

内部循環式反応器は、ナフサを原料とする水添分解プロセス（ＧＲＨ:Gas Recycle Hydrogenator）で商業化の実績があり、固体原料である石炭の水添ガス化に適用するために、英国ガスと大阪ガスは共同で、1986年から反応器の開発を開始した。　大阪ガスでは、石炭供給量10kg/hのベンチ設備を用いて基礎的な研究が進められた。　また、英国ガスでは、２つの冷間モデルにより、インジェクターの開発および反応器設計に関するエンジニアリングデータが取得され、５トン／日のＰＤＵ(Process Developing Unit) 反応器の詳細設計が行われた。　引き続き、1987年～1991年まで、各種の石炭で、反応器の性能実証のための運転

が実施された。

（３）反応器の開発

石炭と水素の反応器への導入部すなわちインジェクター開発と、反応器の内部構造の最適化を図るための反応器内部構造の開発に分け、各々の冷間モデルにより、開発が進められた。

ａ．インジェクターの開発

石炭と水素の反応器への導入部すなわちインジェクターの開発課題は、石炭と水素の急速な混合が得られることと、石炭が最適に分散し、凝集および反応器内部への付着が防止されることである。　インジェクター開発は、ＣＨＭＲ(Coal Hydrogenation Mixing Rig) と呼ばれるＰＤＵ反応器と同規模の冷間モデルの実験により行われた。　冷間モデルでは、模擬流体として、水素リッチガスを空気に、微粉炭をＦＣＣ触媒にシミレートさせて、インジェクターのガス／固体混合の性能評価に関するいろいろなテストが行われた。　数十個のインジェクターが試作されテストされた。　中央部に石炭ノズルを周囲に水素ノズルを配備した標準的な形状のインジェクターにおいて、水素ノズル径の異なる４つのインジェクターを製作し、水素噴出速度の影響が調べられた。　第2.2-2 図にその固体分散の状態を示す。　水素噴出速度が小さいとガス／固体混合が不十分（ａ）で、適切な水素噴出速度によってガスと固体との混合状態は良好（ｂ）になるが、ある点を越えてさらに増加すれば、不安定な流れが多く（ｃ，ｄ）なる。　多くの実験から、インジェクターの性能を評価するガス／固体混合状態を決定する最大の因子は、インジェクターでのガスのモーメンタム・フラックスであることがわかった。　モーメンタム・フラックスとは断面積当りの移動速度であり、密度：ρと噴出速度：Ｕ（モーメンタム・フラックス＝ρU^2 ）から求まる。ガス／固体のモーメンタム・フラックス比と混合状態に、第2.2-3 図のような関係があることが明らかになった。

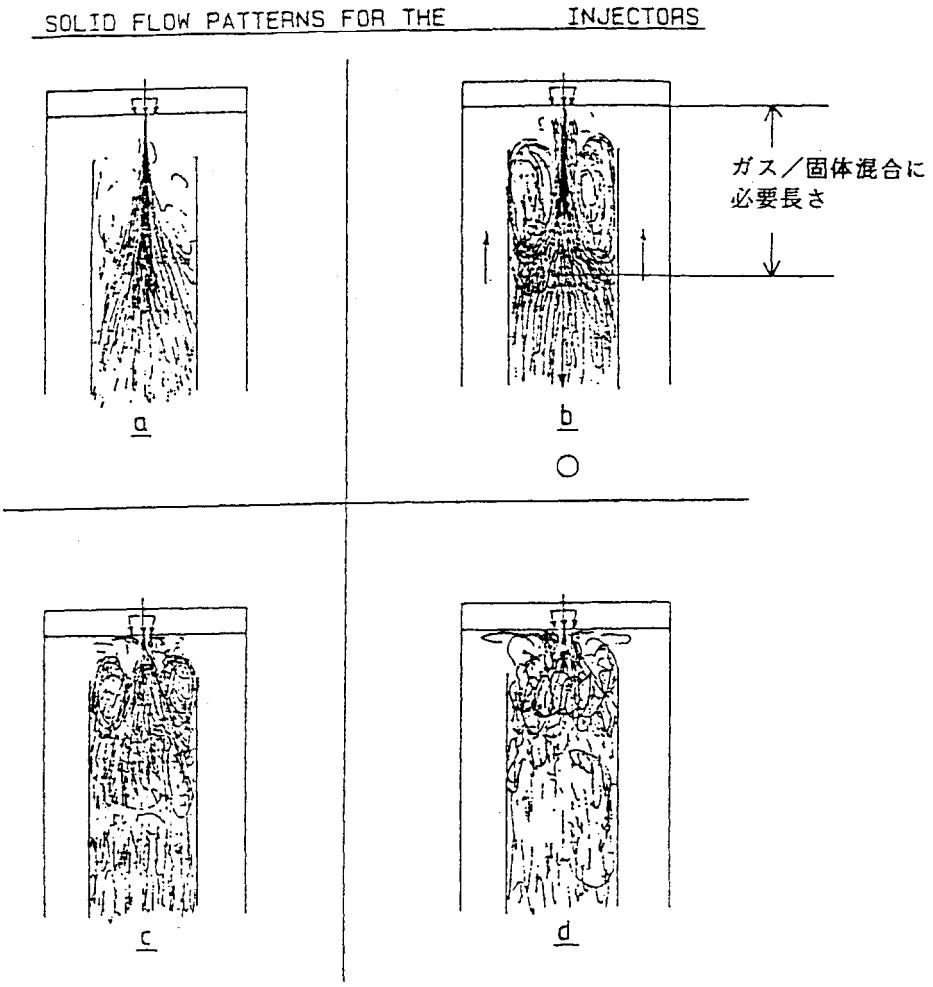
要約すると、インジェクター開発では、次のような成果が得られた。

イ．反応器内の挙動をみきわめることにより、最適なインジェクター構造が把握できた。

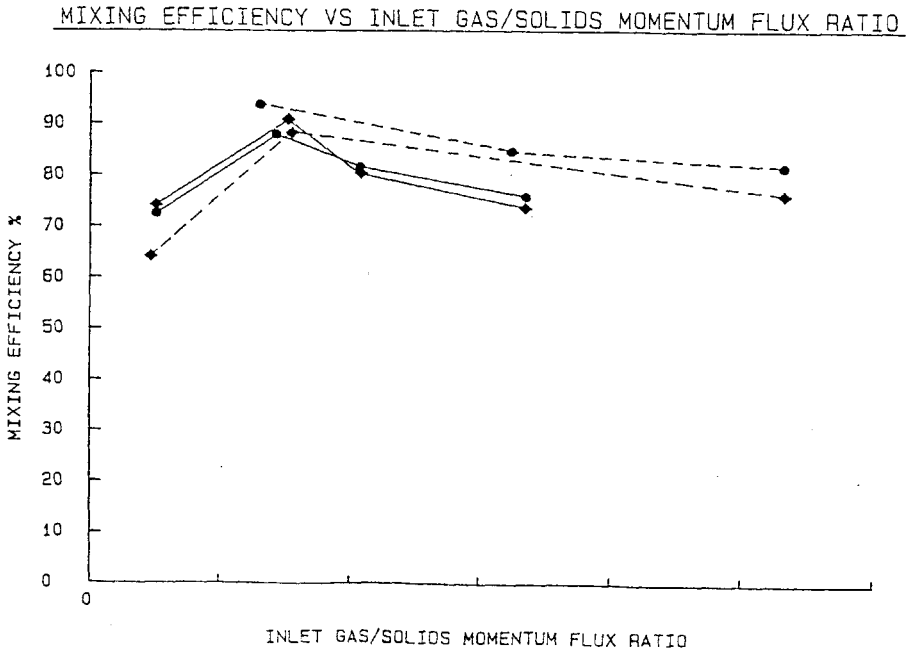
ロ．インジェクターのガス／固体混合性能を決定する因子は、モーメンタム・フラックスであることがわかった。

ハ．ガス／固体混合に必要な長さ（インジェクター・フェースからの距離）が決定された。

ニ．噴出のモーメンタムと循環ガス量の関係が把握された。



第2.2-2 図　固体分散テスト



第2.2-3 図　ＣＨＭＲでのインジェクター性能評価

b．反応器内部構造の決定

目的とするガスリサイクル比（反応器出口ガス量／循環ガス量）およびチャー分離効率を得るための反応器内部構造の決定のために、もう一つの冷間モデルＣＨＰＭ(Coal Hydrogenation Physical Model）が製作された。　この冷間モデルでは、模擬流体として、水素リッチガスを空気に、チャーをバーミキュレートに置き換えた。　ガスリサイクル比やチャー分離効率等反応器の内部挙動が詳細に調べられ、反応器内部構造のいろいろなファクターたとえば、リサイクルチューブ形状、リサイクルチューブとインジェクターフェースとの間隔、テイクオフ配管の位置・形状、チャーセパレーターの形状等の設計に必要なデータが得られた。　第2.2-1 表は、ガスリサイクル比に対する各種パラメーターの影響が調べられた実験結果である。　固体の粒子径、インジェクターノズル径、リサイクルチューブとインジェクターフェースとの間隔およびリサイクルチューブ径を変えてガスリサイクル比が測定された結果である。

第2.2-1 表　ガスリサイクル比に対する各種パラメーターの影響

Mean particle size	Injector nozzle bore	Draught tube-injector spacing	Draught tube diameter	Gas Recirculation ratio
460	B	3L	D	9.2
30	B	3L	D	8.9
30	B	L	D	7.3
30	B	3L	1.25D	6.0
30	B	L	1.25D	4.6
30	1.4B	L	1.25D	4.0
30	1.4B	3L	D	6.7
30	1.4B	L	D	5.4
30	2B	L	1.25D	2.9
30	2B	L	D	3.5

要約すると、反応器内部構造の決定の技術開発では、次のような成果が得られた。

イ．ガスリサイクル比に影響を与える反応器内部構造のパラメーターを把握し、最適な反応器内部構造が決定できた。

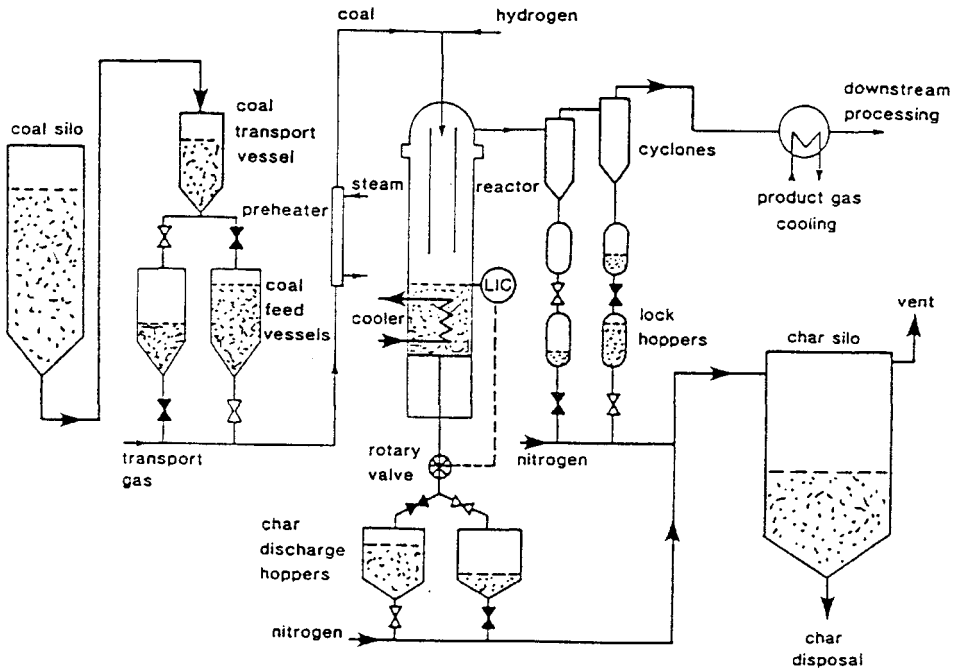
ロ．反応器内部での固体粒子の挙動が明らかになり、　チャー分離効率に与える因子が把握できた。

（4）ＰＤＵでの運転性能

1987年 9月から1991年 7月まで、英国ガスのＭＲＳ(Midlands Research Station) でＰＤＵ (Process Developing Unit)の運転が実施された。 このＰＤＵは、石炭フィード量 200 kg/h、水素フィード量 670Nm^3/h 、圧力 62bar、最高温度1,000 ℃までの運転が可能である。その他の運転条件は次の通りである。

反応器温度	840 ～	1,000 ℃	
反応器圧力	42 ～	62 bar	
H_2 ／石炭比	0.17 ～	0.61 kg/kg(dry,ash-free)	
滞留時間	10 ～	36 秒	
ガスリサイクル比	3.5	12 vol/vol	

概略フローシートを第2.2-4 図に示す。



第2.2-4 図　ＰＤＵの概略フローシート

ＰＤＵの一連の運転は３つのフェーズに分けて行われた。 第１フェーズでは、冷間モデルで得られたデータをもとに設計された新しい反応器のガス化性能および物理的運転性能が熱間で実証された。第２フェーズでは、いろいろな石炭で反応器の限界性能すなわち石炭フィード量を増加した時のガス化性能が調べられた。 第３フェーズでは、１０日間の連続運転性能が確認され、太平洋炭で、延べ２３１時間もの長期連続運転が達成された。 ＰＤＵの

運転に使用された石炭は、中程度の粘結性をもつ英国瀝青炭のマンバース炭、粘結性の大きいアメリカのピッツバーグ-8やイリノイ-6、粘結性の小さいオーストラリア褐炭のロイヤン炭および日本の太平洋炭等である。　ＰＤＵの運転結果の一部を、第2.2-2 表に示す。

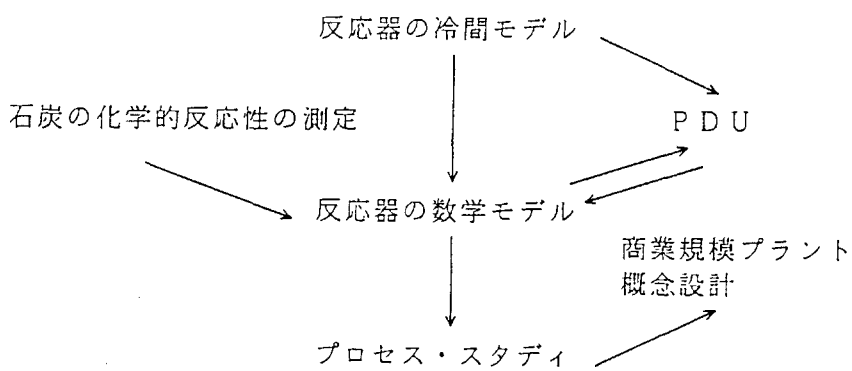
第2.2-2 表　ＰＤＵの運転結果

運転圧力　62bar

石炭	Manvers				Pittsburgh-8	Loyyang	太平洋		
温度	955	962	867	865	872	876	854	868	857
水素／石炭比　w/w	0.2	0.6	0.4	0.4	0.4	0.4	0.44	0.3	0.2
ガス滞留時間　秒	15	15	35	12	11	11	12	12	12
炭素転化率　%									
メタン	32.3	44.4	32.8	27.0	29.6	32.0	37.8	39.2	36.6
他ガス	3.5	3.1	1.9	3.0	1.9	12.3	3.8	4.5	6.4
ベンゼン	3.8	1.4	4.5	8.6	6.8	8.0	8.2	9.1	10.1
重質芳香族化合物	2.0	1.1	3.0	4.6	8.2	2.7	3.0	2.5	3.8
合計	41.6	50.0	42.2	43.2	46.5	55.0	52.8	55.3	56.9

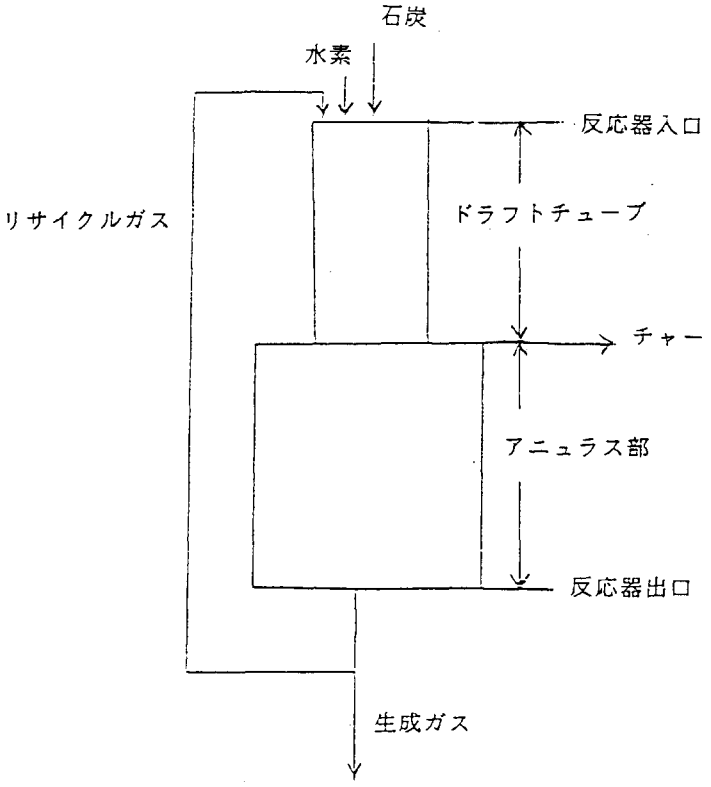
（５）反応器のシミュレーションモデル

反応器内部での挙動を理解するために、ならびに、大型化した場合とか異なった運転条件での反応器性能を予測することを目的として、反応器のシミュレーションモデル（数学モデル）が作成されている。　基礎研究、冷間モデル、ＰＤＵ等の他の開発プログラムとの関係を明らかにするために、一連の開発プログラムの中での反応器のシミュレーションモデルの位置関係を第2.2-5 図に示す。

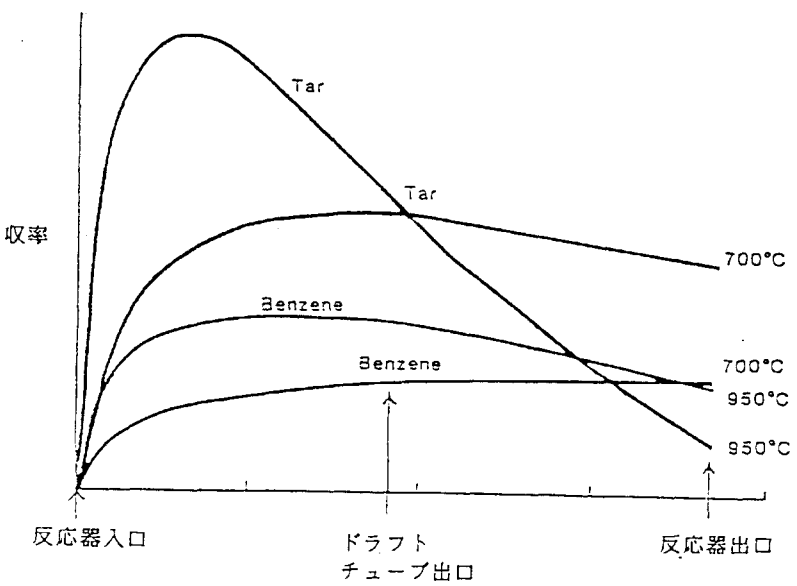


第2.2-5 図　開発プログラムの全体構成

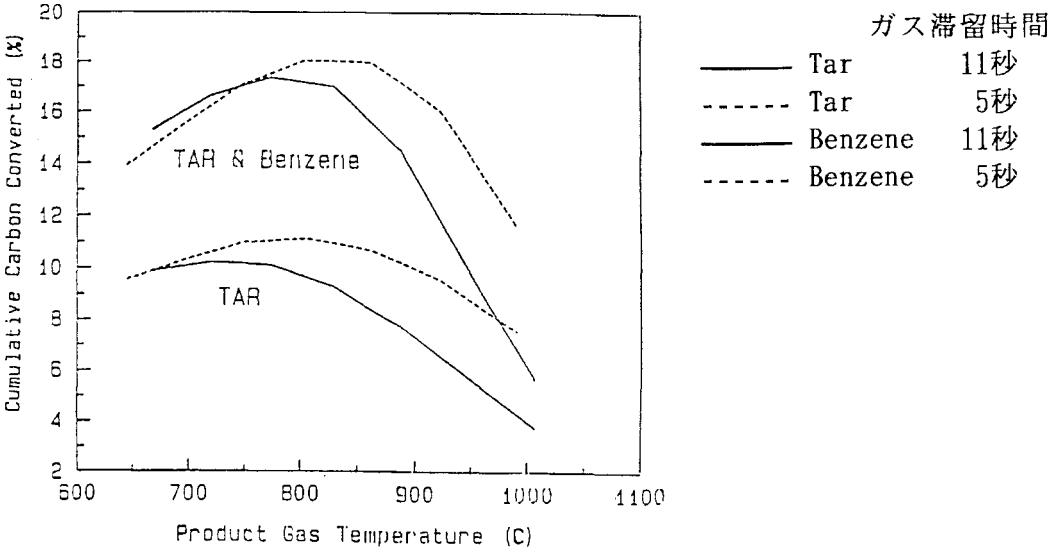
反応器のシミュレーションモデルは、冷間モデルのデータやＰＤＵの運転結果をもとに、 化学モデルと流体モデルを組み合わせて開発されたもので、反応器各部における反応率、生成物組成、物質収支、熱収支をアウトプットすることができる。 第2.2-6 図に、 シミュレーションモデルの概略構成を示す。アウトプット例として、第2.2-7 図に反応器内部でのベンゼン、タールの生成の様子を、第2.2-8 図にガス滞留時間の影響を示す。



第2.2-6 図　シミュレーションモデルの構成



第2.2-7 図　反応器内部での挙動（ベンゼン、タールの生成状況）



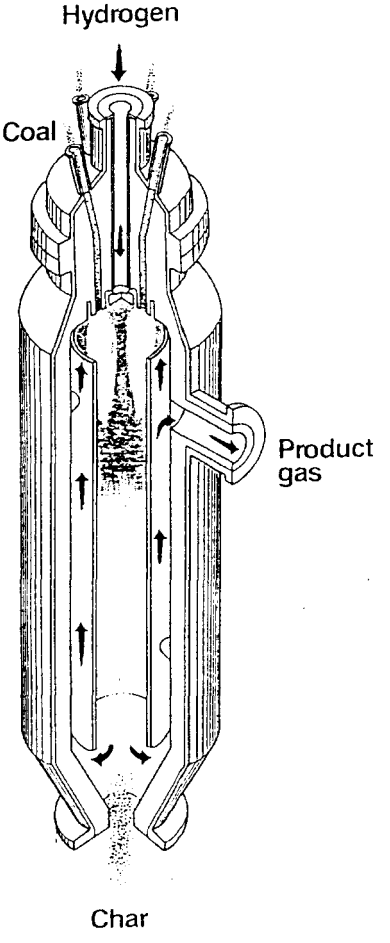
第2.2-8 図　ガス滞留時間の影響

（6）反応器のスケールアップ

第2.2-9 図に、商業規模の反応器の一例を示す。商業規模の反応器（約 2,000t/日）では、水素ガスと石炭の混合・分散を良好に保つ必要性から、複数のインジェクターを持つことになる。

従って反応器をスケールアップする時、インジェクターのスケールアップとともに、マルチインジェクターシステムの開発が最大の課題である。

50t/日のパイロットプラント設計のためのデータ取得を目的として、1991年４月より、大型冷間モデルが製作開始され、1992年には、大型反応器設計のためのデータが得られる予定である。実験は２つのフェーズで計画されており、　第１フェーズは大型シングルインジェクターの開発であり、第２フェーズはマルチインジェクターシステムの開発である。基本的にＰＤＵを開発したときのＣＨＰＭ、ＣＨＭＲの冷間モデルの設計技術を利用して行われる。



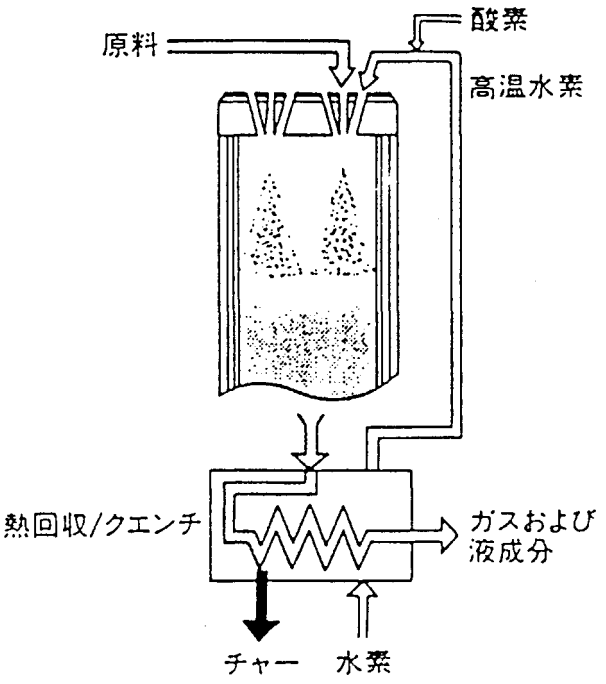
第2.2-9 図　商業規模反応器の例

2．2．3　ワンスルー式反応器

(1)反応器の概要

ワンスルー式反応器では、一般に反応器上部のインジェクターより微粉炭および高温水素ガスを導入し、微粉炭と高温水素を瞬間的に混合することにより石炭粒子を急速昇温することができ、水添ガス化反応を短時間（～10秒）で行なわせることができる。主製品としてはメタン、副生品としてＢＴＸまたは芳香族油を製造することができる。

高温水素により石炭を急速昇温・混合することにより水添ガス化反応を開始させ、生成物（ガス、液、チャー）は反応管内をプラグフローで流れ反応管下部より抜き出され、その後、水添ガス化反応を短時間で収束させるためにガス化生成物をクエンチする方法がとられる。また、石炭粒子を急速に昇温するための高温水素（温度：1100～1400℃）を得る方法としては、インジェクターにおいて原料水素ガスの一部を酸素により部分燃焼する方式がロックウェルインターナショナル社により液体ロケットエンジン関連技術を応用して開発されている。ワンスルー式反応器の代表例としてロックウェルＦＨＰ（Flash Hydropyrolysis）反応器の概念図を第2.2-10図に示す。



第2.2-10図　ロックウェルＦＨＰ反応器概念図

ワンスルー式反応器の特長としては以下のようなものが上げられる。

a．石炭を急速昇温し、短時間で反応をコントロールすることによりＢＴＸ等の有用液成分を高い収率で得ることができる。

b．反応条件（反応温度、滞留時間、水素ー石炭比等）を変えることによりメタンと液成分の生成比率をコントロールすることができる。

c．反応器構造がシンプルかつコンパクトである。

d．スタートアップが迅速容易である。

e．炭種適応性が高い。

(2) 開発状況

これまでの開発状況としては、1976から1986年まで米国のロックウェルインターナショナル社が米国エネルギー省（ＤＯＥ）の援助の下に１ｔ／ｈｒ規模のプロセス開発装置によるテストを実施している。また、1980から1983年まで旭化成により通産省工業技術院からの補助金を受け２０ｋｇ／ｈｒのプロセス開発装置によるテストを実施している。しかし、両社とも現在は開発を中断している。1989年より東京ガスにおいてロックウェル型反応器を用いた３ｋｇ／ｈｒベンチ装置による検討が行なわれている。

第2.2-3 表にこれまでに行なわれたワンスルー式反応器による石炭水添ガス化プロセスの開発状況を示す。

第2.2-3 表　ワンスルー式反応器による石炭水添ガス化プロセスの開発状況

		ﾛｯｸｳｪﾙ･ｲﾝﾀｰﾅｼｮﾅﾙ	旭化成	東京ｶﾞｽ
開発規模		1t/hr ﾌﾟﾛｾｽ開発装置 (PDU)	20kg/hr ﾌﾟﾛｾｽ開発装置 (PDU)	3kg/hr ﾍﾞﾝﾁ装置
連続運転時間		1時間	70時間	1時間
石炭輸送法		濃厚相輸送	[濃厚相輸送]	濃厚相輸送
水素予熱方法		酸素供給	[酸素供給]	酸素供給
テスト石炭		ｹﾝﾀｯｷｰNo.9	豪州褐炭4種	太平洋炭、ﾛｲﾔﾝ他
ｶﾞｽ化条件	反応温度	760～1100℃ (反応器出口)	650～800℃	700～950℃ (反応器出口)
	反応圧力	36～106kg/cm²G	70kg/cm²G	15～30kg/cm²G
	滞留時間	0.02～8sec	6～11sec	1～20sec
その他		ﾛｹｯﾄｴﾝｼﾞﾝ関連技術を応用したｲﾝｼﾞｪｸﾀｰを開発。	2段ガス化。反応に触媒を使用。	ﾛｯｸｳｪﾙ型のｲﾝｼﾞｪｸﾀｰを使用。
開発時期		1976～1986年 (現在、開発中断)	1980～1983年 (現在、開発中断)	1989年～

表中の［　　］は文献中には記述されていないが予想されるもの。

ワンスルー式反応器による石炭水添ガス化プロセスの開発として、ロックウェルインターナショナル社により１ｔ／ｈｒ規模のテストが行なわれており、これまで実施された開発の中で最大の規模である。ロックウェルでは液体ロケットエンジン関連技術を応用した石炭急速昇温用インジェクターの開発や微粉炭濃厚相輸送技術の開発が行なわれてはいる

が、連続運転あるいは生成物（ガス、液、チャー）のクエンチおよび熱回収工程等についての課題が残されている。ロックウェルで実施されたケンタッキーNo.9のガス化テストデータの一例を第2.2-4 表に示す。

旭化成における開発では、液製品としての化学原料用ＢＴＸ、ガス製品としてエチレンあるいは高カロリーガスであるエタンの収率を最大化することを目的とした。旭化成で行なわれたガス化テストデータの一例を第2.2-5 表に示す。石炭の輸送法や水素予熱法等を含めた反応器形式の詳細は公表されていない。開発規模は、２０ｋｇ／ｈｒではあるが約70時間の連続運転が行なわれている。しかし、テスト石炭が豪州褐炭中心であり、しかも反応に触媒を使用していることからプロセスとして実用化することは経済的には難しいと考えられる。

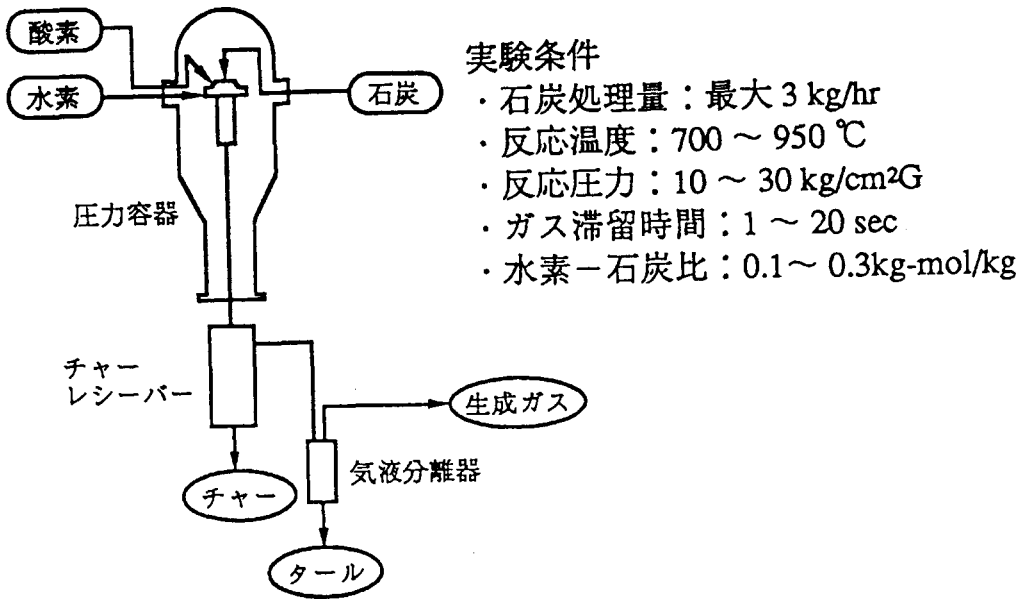
東京ガスでは、ロックウェル型反応器を用い太平洋炭等を原料石炭として３ｋｇ／ｈｒベンチ装置によるテストが行なわれている。ベンチ装置の概略図を第2.2-11図に示す。また、本スタディでも原料石炭のベースとなっている太平洋炭のガス化テストデータの一例を第2.2-6 表に示す。東京ガスで実施されているガス化テストは、まだ基礎研究の段階であり、今後の課題としてプロセスのスケールアップが上げられる。

第2.2-4 表　ロックウェルガス化テストデータ例

		例1	例2
反応圧力（kg/cm²g）		68	68
入口ガス温度（℃）		1411	1120
反応器出口温度（℃）		1092	988
ガス/石炭比(kg-mol/kg)		0.25	0.19
滞留時間（sec）		6.1	2.3
入口ガス組成(%)	H_2	56.5	71.4
	H_2O	43.5	28.6
炭素転化率(%)	CH_4	39.0	33.6
	C_2H_6	0.03	0.15
	C_6H_6	0	9.8
	C_7H_8	0	0.07
	CO	22.2	3.4
	CO_2	7.2	0.8
非BTX液成分		0	7.58
合　計		68.4	55.4

第2.2-5 表　旭化成ガス化テストデータ例

reactor temperature zone		two stage		one stage
catalyst		$NiSO_4$ 1 %	$Ni(OH)_2$ 1 %	$NiSO_4$ 1 %
reaction temperature (℃)		650-800	650-770	750
reaction time (sec)		6-4	11-4	10
product yield (carbon conversion %)	methane	28.1	24.8	22.2
	ethane	14.7	17.1	15.6
	propane	—	0.5	—
	(H. C gas)	(42.8)	(42.4)	(37.8)
	$CO + CO_2$	9.1	8.4	9.8
	benzene	17.3	21.3	12.7
	toluene	0.4	2.0	0.8
	xylene	0.1	—	0.1
	(BTX)	(17.8)	(23.3)	(13.7)
	C_9 plus oil	(11.8)	10.9	11.6
	char	18.5	15.0	27.0
	Total	100	100	100



第2.2-11図　東京ガス　3kg/hr試験装置概略

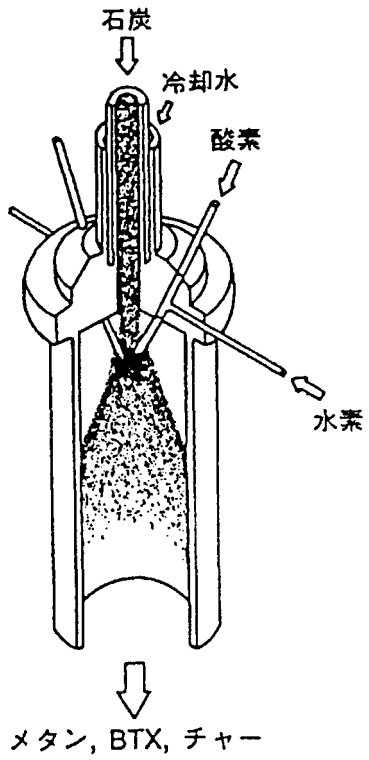
第2.2-6 表　東京ガスガス化テストデータ例

	例1	例2	例3
反応温度（℃）	900	900	950
反応圧力（KSCG）	30	30	30
滞留時間（ｓｅｃ）	10.7	15.1	10.7
水素-石炭比（kg－mol/kg）	0.15	0.16	0.14
ｶﾞｽ化生成物(炭素転化率[%])			
ＣＨ4	30.9	30.2	34.4
C2H6	0.5	0.4	0.2
C3+	tr	tr	tr
ＢＴＸ	11.8	13.9	10.9
non-BTX liquids	1.8	0.8	tr
ＣＯ	6.0	6.1	6.7
ＣO2	0.6	0.6	0.7
ＴＯＴＡＬ	51.6	52.0	52.9

現在の状況では開発を中断しているものもあり、ワンスルー式反応器による石炭水添ガス化プロセスの実用化を目指した十分な検討はこれからであり、今後、反応器の特長を活かしたプロセスの開発が期待される。

(3)反応器構造

これまで、ロックウェルインターナショナル社等によりワンスルー式水添ガス化反応器の開発が行なわれているが、その詳細構造はあまり公表されていない。一般にワンスルー式反応器は、原料石炭と高温水素を供給するインジェクター、反応管および生成物（ガス、液成分、チャー）冷却器・熱回収器より構成される。インジェクター部以下それぞれの部分について、その概要および開発課題を以下に示す。



第2.2-12図　インジェクター部概略図

①インジェクター

インジェクターにおいて石炭と高温水素を供給し、石炭を急速昇温・混合するもので、ワンスルー式反応器構造の中で最も重要な部分である。反応管上部のインジェクター部の概略図を第2.2-12図に示す。石炭を急速昇温・混合することからインジェクターにおける高温水素の製造、石炭供給およびノズル構成がポイントとなる。それぞれの部分について概要を以下に示す。

・高温水素製造：酸素による原料水素の部分燃焼を行ない、その燃焼熱により水素を昇温する。（温度：1100～1400℃）

・石炭供給：インジェクター中心上方より濃厚相輸送法で微粉炭を供給する。

・ノズル構成：急速混合を行なうため、石炭ノズルを中心とした石炭ノズル１本、水素ノズル４本の４-on-１型が一般的。

インジェクター部分に関しては東京ガスにおける３ｋｇ／ｈｒ規模テストで実証済みである。また、ロックウェルにおいて１ｔ／ｈｒ規模のインジェクターが開発されている。ただし、ロックウェルにおけるハード面のデータは開示されておらず、スケールアップに適用できないため、今後５０ｔ／ｈｒ以上パイロットプラントテストを行なうためには、段階的なインジェクターの開発を行なう必要がある。スケールアップを行なうにあたってのインジェクター部分に関する開発課題を以下に示す。

・インジェクター材料の検討および耐久性確認。

・ノズル構成の検討および水素と微粉炭の混合状態の確認。

②反応管

インジェクター下部に設置される反応管は水添ガス化反応ゾーンであり、反応管形状は空筒でほぼ直管となっている。旭化成の場合は２段ガス化を行なわせるために二つの反応ゾーン（反応温度が異なる）を設けている。ロックウェルの場合は１段反応であり内径10.2～22.2cm、長さ　6.2mの反応管を使用している。

スケールアップを行なう際の反応管に関する開発課題として以下のようなものが上げられる。

・水素と微粉炭の混合状態を考慮した反応器形状の検討。

・反応管内でのコーキング、アッシュの局部溶融を防止できる反応器形状の検討。

③生成物（ガス、液、チャー）冷却器および熱回収器

ワンスルー式反応器の場合、水添ガス化反応を短時間で行なわせ、しかも反応をコントロールするためには、石炭を急速昇温し、反応開始後生成物（ガス、液、チャー）を冷却（クエンチ）する必要がある。そこで、短時間で反応を制御するために生成物冷却器を反応管後段に設置し生成物をクエンチする。クエンチの方法としては、ガス（生成ガス等）あるいは液体（水、油等）によるダイレクトクエンチ法や、熱交換器による間接クエンチ法が考えられる。ロックウェルのスタディではボイラー型熱交換器による間接クエンチ法が提案されている。しかし、技術的観点から見てプロセスの実用化を考えれば、ガス（生成ガス等）によるクエンチ法を採用することになるであろう。

さらに、生成物のクエンチを行なった後、生成ガス、液、チャーの分離工程および生成物からの熱回収を行なうためのプロセスが必要である。ワンスルー式反応器における生成物冷却器および熱回収器については、これまで十分な検討がなされていないのが現状であり、以下に示すような課題に取り組まなければならない。

・プロセスに最適なクエンチ方法および生成物からの熱回収の検討。

・生成ガス・液成分とチャー分離プロセスの検討。

(4)反応の制御方式

水添ガス化反応では、反応条件（反応温度、滞留時間、水素-石炭比等）を変化させ反応を制御することにより幅広いガス化生成物を得ることができる。ワンスルー式反応器の

場合、短時間で反応をコントロールすることによりＢＴＸ等の有用な液成分を得ることができることが特長であり、石炭を急速昇温（吸熱反応）し、反応開始後に大きな反応熱（発熱反応）が得られることから、高温状態で反応温度を任意に制御することが重要な課題である。

反応温度をコントロールする場合、ロックウェルでは、反応温度を反応器出口温度で管理し、その温度を得るために必要な熱を高温水素で与えており、高温水素温度は部分燃焼で使用される酸素量で制御している。即ち、反応温度はインジェクターにおいて原料水素ガスの部分燃焼に使用する酸素量で制御することになる。さらに、反応を短時間で収束させるために、前述の開発課題にもあるように反応器出口において生成物をクエンチ（反応温度を下げる）することになり、そのためにガスまたは液によるダイレクトクエンチあるいは熱交換器による間接クエンチによる反応の制御が考えられている。

旭化成の場合は、反応ゾーンを２段分け、反応温度を変化させることにより反応を制御することを試みている。

これまでの開発でも検討されているようにワンスルー式反応器では、急速昇温・短時間反応の特長を活かすためインジェクターへの酸素の導入あるいは反応器出口での生成物のクエンチ等の技術により反応を制御することになる。

２．３　反応器周辺の要素技術調査および評価

２．３．１　石炭供給方式

噴流床石炭水添ガス化プロセスにおいて、水添反応器への微粉炭の安定かつ定量的な供給システムの確立は、プロセスの実用化に際して、最重要課題の一つである．水添ガス化プラントの石炭供給システムは、粗粒炭の粉砕・乾燥系、微粉炭原料の貯槽系、高圧反応器への供給を可能とするロックホッパー系、濃厚相輸送を実現する高圧フィーダー・輸送ライン系、石炭の予熱供給を可能とする石炭予熱器系、反応器のマルチインジェクターへの石炭分流系からなる．石炭の粉砕・乾燥およびロックホッパーシステムは、勿来のＩＧＣＣやＨｙｃｏｌの石炭ガス化プロセスの石炭供給システムと類似の既存技術で対応が可能と思われるが、濃厚相輸送および分流技術、搬送過程での石炭の予熱技術は、商業規模での実績はほとんどなく、水添ガス化における大きな開発課題である。

（１）　濃厚相輸送技術

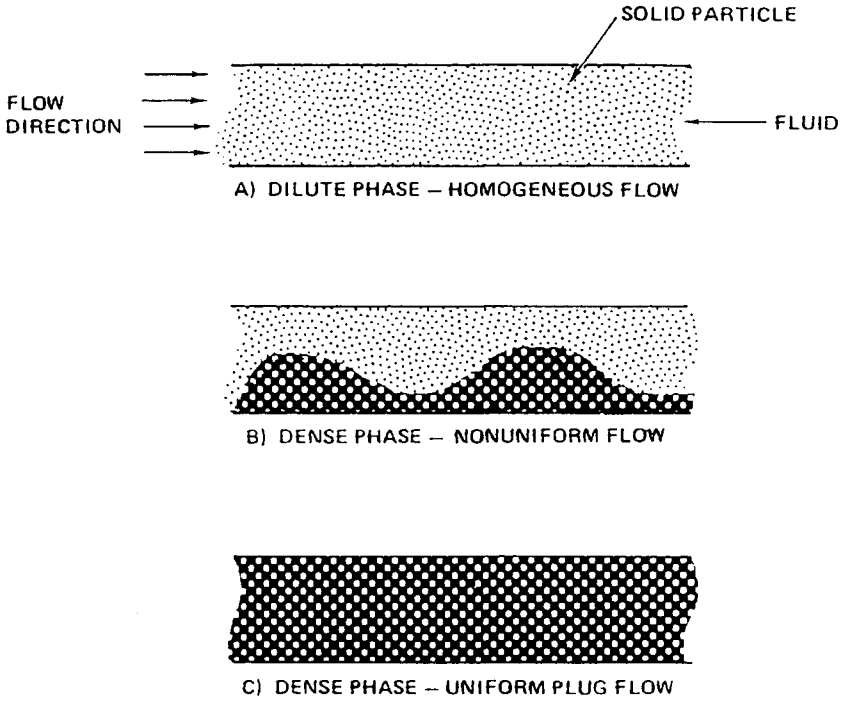
粉粒体の濃厚相輸送(Dense Phase Pneumatic Conveying) は、稀薄相輸送(Dilute Phase Pneumatic Conveying) に比べて、①　粒子の搬送速度が遅いことから、粒子の輸送過程での破砕・変質が少ないこと、②　パイプラインのサンドブラスト効果による損耗が少ないこと、③　輸送ガス量がミニマムで済むことから、N_2 など高価な気体による搬送では、経済性が良くなること　④　輸送の消費動力が少ないこと　などの特長が一般にいわれている。特に、石炭水添ガス化において濃厚相輸送技術を開発する意義は、キャリヤーガスであるH_2 のガス量をできるだけ少なくすることで、水添反応器に供給されるコールドなH_2 を低減し、反応器の熱効率向上に寄与できること、およびH_2 ガスの搬送圧力までの圧縮（昇圧）動力を削減することで、プロセスの熱効率向上に寄与できることにある。石炭の微粉炭焚ボイラー、高炉への微粉炭（ＰＣＩ）吹き込み、石炭の酸素（空気）ガス化などの石炭利用プロセスでは、空気あるいはN_2 による稀薄相輸送が行われているが、これらのプロセスに比べて、水添ガス化では反応熱量の違いから、石炭搬送コールドガス量が熱効率に与える影響はより大きくなり、濃厚相輸送技術開発の重要性は増す。

稀薄相輸送については、過去、多くの実績があり、輸送システムの設計法も提示されているが、濃厚相輸送については、現象の複雑さもあって、実験および理論的研究が十分に進んでおらず、実用に耐え得る設計法はない。特に、設計者にとって重要な圧力損失や閉塞限界については、個別システム毎の実験や経験に頼らざるを得ない状況にある。

a） 濃厚相輸送の研究状況

何をもって濃厚相輸送というのかについては、固気比（搬送ガスに対する搬送固体の質量流量比）がある一定値以上でいうのか、搬送ライン中の空隙率が一定値以下をいうのか、あるいは、搬送ラインの幾つかの断面を固体が占有・充填した流れの状態（プラグ輸送）をいうのか明確な定義が存在するわけではない。

気体搬送における粒子流れのフローパターンを非常に簡略化して図示したものが第2.3-1 図である[1]。



第2.3-1 図　気体搬送におけるフローパターン

第2.3-1 図(A) は、稀薄相輸送のフロー領域で、固体が気流中に十分に分散して輸送される流れの状態で、空隙率がエンジニアリング的には０．９以上のケースである。図(B) は、気体流速を低下させて、水平輸送では Saltation 速度、垂直輸送ではChoking 速度以下になると搬送ガスと固体の分離が部分的に起こり、固体粒子は静止充填状態に近い空隙率で輸送される不均一な濃厚相輸送の流れの状態が現われる。図(C) は、さらにガス量を低下させ、固気比を増加させていくと、固体の静止充填状態に近い空隙率で均一な濃厚相輸送状態となる。濃厚相輸送の研究および商業化された設備は、プラグ輸送にみられる如く図(B) の領域を一般に対象としてきた。

第2.3-1 表および第2.3-2 表に研究対象に用いられた水平および垂直輸送における濃厚相輸送の実験系をまとめている[2]。フローパターンは、明確ではないが、主にプラグ輸送流れを対象とした、第2.3.-1図(B) に示すような不均一な濃厚相輸送状態の研究がほとんどである．実験系の圧力が大気圧からせいぜい数ａｔｍ程度であり、輸送ライン圧に対する圧力損失の大きさを考えれば、搬送ガスの圧縮性（膨脹）により不均一な流れとなる傾向がある。石炭水添ガス化では、第2.3-1 図(C) のような均一な濃厚相輸送のフローパタ

第2.3-1 表　水平輸送における濃厚相輸送実験一覧

Author(s)	Solids	Particle diameter (mm)	Pipe Internal diameter (mm)	Length (m)	Mass flowrate of solids ($kg\ s^{-1}$)	Superficial air velocity based on atmospheric air ($m\ s^{-1}$)	Solid/air mass flowrate ratio	Classification of the work done	Comments
Albright *et al.* [6]	Pulverized coal	Quoted as 90% through 200-mesh	6.25 7.83 11.06	17.68	0.018 - 0.170	1.72 - 5.12 2.00 - 6.28 1.82 - 6.4	141 - 219 125 - 197 145 - 236	Tabulated data; correlation	Fluidized-bed feeder; used copper tubes so the flow pattern was unknown. Results may contain acceleration effects.
Wen and Simons [7]	Coal powder	0.754 0.500 0.112	Glass pipes 12.7, 19.1, 25.4; (using coal powder only)	3.048	0.005 - 0.038	0.15 - 15.0	50 - 850	Data presented as small-scale graphs; give design method and correlation; found that $U_s/\bar{\varepsilon} = 2u_p = \frac{2M_s/A}{\rho_s(1-\bar{\varepsilon})}$ ($\bar{\varepsilon}$ is the average *in situ* voidage.)	Fluidized-bed feeder; the correlation appears to give reasonable value but the design method does not; give diagrams of the flow pattern drawn from visual observation; some problems with static electricity.
	Glass beads	0.279 0.147 0.071	Steel pipe: 9.25; (for both materials)						
Lippert [11]	Alumina	0.075 0.066	40	12.5	0.28 - 2.5	1 - 20	10 - 250	Data presented on phase diagrams (log scales); used bypass system.	In German; transparent pipes; includes data for vertical pipes; more detail in his thesis [37]
P.E.C. Report [25]	Sand	{0.864 2.39 3.63}	25.4	22.86 53.34	0.06 - 0.42	1.24 - 6.90	40 - 160	A large amount of tabulated data; some semi-empirical correlations.	Pressurized hopper as feeder; transparent pipes; many errors; whether the conveying reached steady state is uncertain; often the pipeline ΔP is not given; to analyze the data, Ramachandran *et al.* [38] assumed the gas expansion to be adiabatic, whereas it is isothermal.
			50.8	22.86 53.34 121.92 167.64	0.03 - 1.7	0.88 - 8.16	9 - 191		
			76.2	30.48 53.34 60.96 121.92	0.04 - 2.31	0.33 - 7.24	2 - 292		
Chari [26]	PPG catalyst carrier	0.437	25.4; 50.8; 76.2	0.61 - 2.44	0.0122 - 0.563	0.20 - 0.495	48 - 208	Tabulated data for moving bed flow; (Chari used a restricat the end of the pipeline to prevent significant changes in voidage) correlation.	Pressurized hopper as feeder; transparent pipes; correlation is supposed to be for the ΔP due to solids friction. However, the quantity correlated would have been zero if Chari had used the correct slip velocity. Hence, his correlation is worthless.
	Sodium tri-polyphosphate granules	0.320	25.4; 50.8; 76.2	0.61 - 2.44	0.0260 - 0.566	0.246 - 0.514	78 - 204		
	Catalyst beads	2.63	50.8; 76.2	0.91 - 2.44	0.112 - 0.354	1.30 - 1.98	28 - 74		
	Potassium sulphate crystals	0.14	76.2	0.61 - 2.44	0.045 - 0.183	0.068 - 0.088	123 - 383		

第2.3-2 表　垂直輸送における濃厚相輸送実験一覧

Author(s)	Solids	Particle diameter (mm)	Pipe		Mass flowrate of solids (kg s^{-1})	Superficial air velocity based on atmospheric air (m s^{-1})	Solid/air mass flowrate ratio	Classification of work done	Comments
			Internal diameter (mm)	Length (m)					
Lippert [11]	Alumina	0.075 0.066	40	12.5	0.14 - 2.5	0.5 - 20	8 - 700	Data presented on phase diagrams (log scales).	In German; transparent pipes used; used bypass pipe system.
P.E.C. report [25]	Sand	0.991 2.39 3.63	50.8 76.2	3.124 4.648 3.124 4.648	1.01 - 5.85 1.61 - 4.84	1.43 - 7.88 0.895 - 3.35	94 - 476 235 - 315	Tabulated data; correlation.	The pipe material is not stated so that it may not have been transparent. No description of the flow pattern is included. The results for static bed experiments are given.
Sandy *et al.* [28]	Fused alumina	0.20	10.9 14.1 17.3	2.74 1.83 0.61	0.0036 0.0121	0.40 - 0.66 0.24 - 0.40 0.16 - 0.27	62 - 179	Tabulated data; note that while 12 other gas/solid systems were studied, only the air/fused alumina results are given.	Metal pipes; serious error in the pressure drop analysis.
Tomita *et al.* [29]	Cement	0.030	41.0 66.8	~ 24 ~ 24	4.58 - 6.09 8.15 - 13.45	14.5 - 37.7 14.7 - 32.0	51 - 244 60 - 161	Data presented on graphs	PVC pipes used; no description of the flow pattern is given; spurious correlation.

ーンが望ましい。７０ａｔｍという高圧反応器への供給では、圧力損失が小さければ、搬送ガスは非圧縮性となり、搬送過程におけるガス膨脹による不均一流れを抑制できることから、均一な濃厚相輸送の状態を実現しやすい方向になる。

濃厚相輸送における固気比μは、システム設計の重要な指標の一つであるが、固体粒子の流れが、初期流動状態(Incipiently Fluidized Bed)、即ち、ガスと固体の相対速度が最小流動化速度（U_{mf}）で、空隙率が初期流動状態のそれに等しいときの最大のμ_{max}は、以下の式で表される[2)3)]。

$$\mu_{max} = \frac{M_S / A}{\rho_G U_{mf} + \dfrac{\varepsilon M_S \rho_G}{(1-\varepsilon)\rho_S A}} \qquad (1)$$

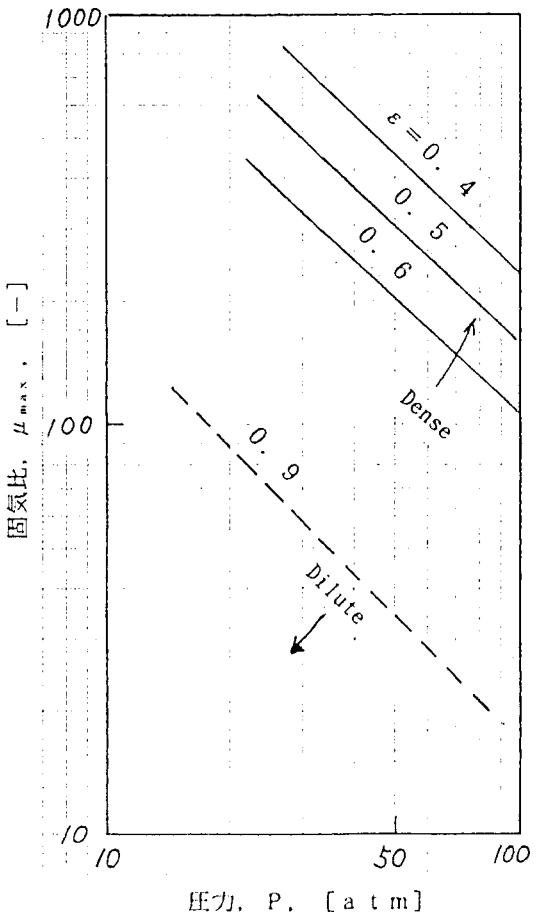
ここに、M_Sは固体流量、Aはパイプ断面積、ρ_G、ρ_Sはガスおよび固体密度、εは空隙率である。最小流動化速度U_{mf}は、Wen&Yu[4)]やRichardsonら[5)]の方法で推算できる。

固体流量M_Sが非常に大きいときには、

$$\mu_{max} = \frac{(1-\varepsilon)\rho_S}{\varepsilon \rho_G} \qquad (2)$$

本報告書３．２．３のスケールアップの指針に示すように、商業プラントでのインジェクター一本当たりの石炭流量は、３００ｔ／ｄと大きいことから、（２）式を用いて、石炭水添ガス化における濃厚相輸送の固気比（μ_{max}）を計算してみる。搬送ガスはH_2、温度３００ｋ、石炭密度ρ_S＝１．３　ｇ／ｃｍ^{3}の条件下で試算した結果を第2.3-2 図に示す。石炭水添ガス化における固気比μ_{max}＝１５０～３００程度となる。

ロックウェルのSprouse ら[1)]は、均一な濃厚相流れについての圧力損失を理論的に予測している。石炭フィーダーおよび輸送ラインにおける粒子およびガスについてのそれぞれの連続の式および運動量収支から求めた理論式を以下に示す。



第2.3-2 図　石炭水添ガス化の濃厚相輸送における固気比の圧力依存性

固体流量M_S（kg/s）、ガス流量M_F（kg/s）、およびラインの圧力損失$\Delta P_{f,L}$（P_a）は、それぞれ以下の（3）～（5）式で与えられる。

$$M_S = \frac{M_F (1-\varepsilon) \rho_S}{\rho_F} - \frac{\pi D_t (1-\varepsilon)^2 \rho_S C_{WF} P_{f,L}}{\nu b} \qquad (3)$$

$$M_F = \frac{\pi D_t^2 \varepsilon \rho_F (\sqrt{4 C_1 C_3 + C_2^2} - C_2)}{8 C_1} \qquad (4)$$

ここで、$C_1 = \rho_F / 2 C_D^2$、$C_2 = 4 L \nu \sqrt{b} / D_t$、$C_3 = \Delta P_{f,T} - 4 L C_{WF} (1-\varepsilon) P_{f,L} / D_t$

$$\Delta P_{f,L} = \frac{4L}{D_t} \left[C_{WF} (1-\varepsilon) P_{f,L} + \frac{4 L \sqrt{b} M_S}{(1-\varepsilon) \rho_S \pi D_t^2} \right] \qquad (5)$$

D_t；ライン径　L；ライン長　$P_{f,L}$；ライン出口における圧力

b；ガス－粒子間の摩擦係数　ν；ガス粘度

C_{WF}；ライン壁摩擦係数　C_D；ホッパーからのガス排出係数

（C_{WF}およびC_Dは、濃厚相輸送実験から求めている。）

上記（3）～（5）の理論式は、かなり大胆な仮定のもとに導出されたもので、かつC_{WF}やC_Dの未知の係数の決定には実験が必要となる。実機設計に使用するには、危険が伴い、あくまで参考とすべき性質のものである。

b）　濃厚相輸送システム[2)]

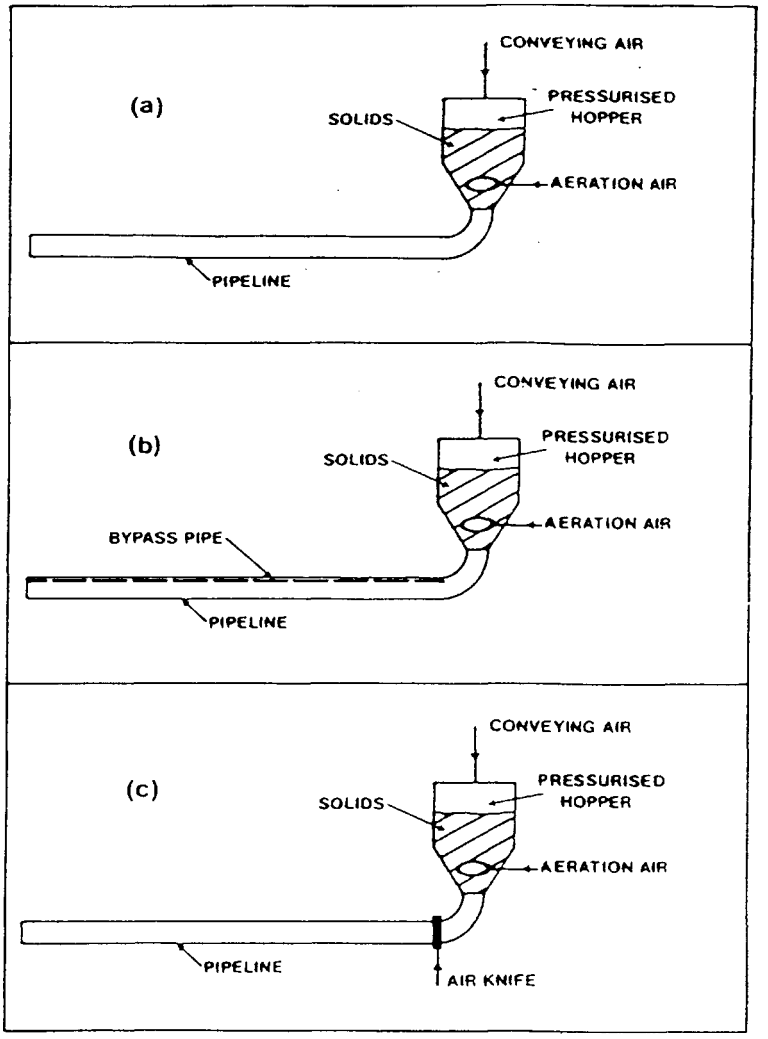
商業規模で採用されている濃厚相輸送システムの概要を簡単に第2.3-3 図に示す。

第2.3-3 図(a) は、単純な圧力輸送システム(Simple Pressure System)である。加圧ホッパーを使用して、その圧力でパイプライン中へ固体粒子を搬送する。ホッパー下部にしばしばエアレーションリング装備する。

図(b) は、バイパスシステム(Bühler Bypass System)である。プラグ輸送においては、しばしば圧力変動による輸送の不安定性が生じることから、パイプライン中にバイパスパイ

プ（例えば、４０ｃｍ毎に穴を開けたパイプ）を設けて、搬送ガスの代替ルートを確保することで、プラグが長くなって閉塞することを防止するシステムになっている。

図(C) は、パルス輸送システム(WSL Dense Phase Pulse System)である。このシステムは、加圧ホッパーおよびエアレーションリングのほかに、規則的パルスを発する“エアナイフ”を装備している。“エアナイフ”によるパルスは、安定したプラグ輸送を実現するために効果的で、圧損も低下できる。



第2.3-3 図　濃厚相輸送システム

バイパスシステムやパルスシステムは、安定したプラグ輸送を達成するには適した供給システムであるが、石炭水添ガス化のように均一な濃厚相輸送が必要となるシステムでは単純な高圧ホッパーによる圧送で十分であると思われる。

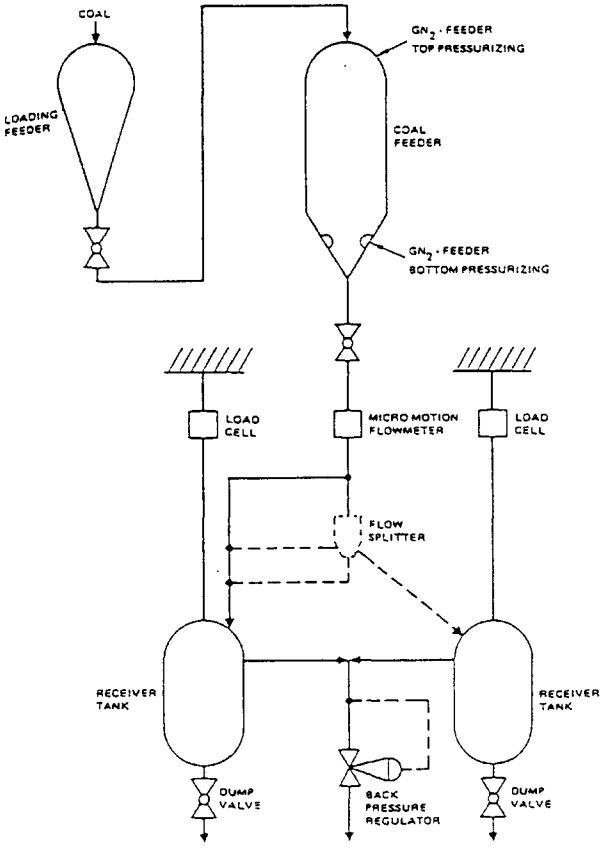
ｃ）ロックウェルおよびＢＧ／ＯＧにおける濃厚相輸送実験[1)6)]

ロックウェルでは、第2.3-4 図に示す実験装置を用いて、石炭の濃厚相輸送の実験を行った。実験条件は、フィードタンク圧力1000～1300psig、レシバータンク圧力1000～1050 psig、輸送配管内径0.215 ～0.527inch 、長さ30～60ft、搬送ガスN_2 である。

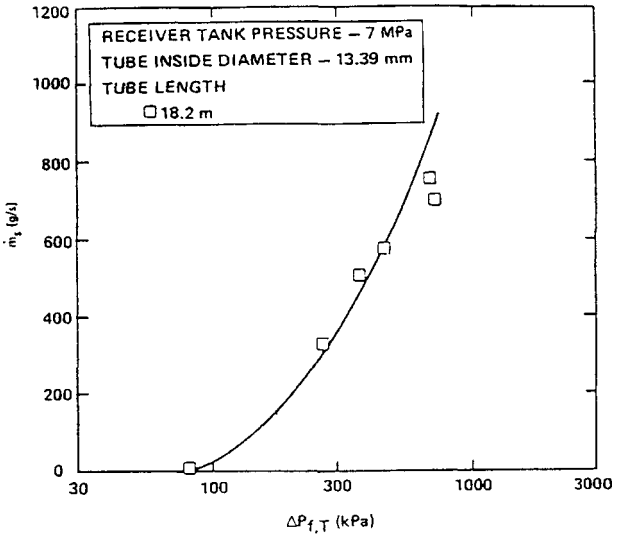
実験は、フィーダータンクの加圧に際して、大気圧から反応圧力1000psigまでの昇圧時間を変化させたときの輸送に及ぼす影響、配管径および配管長さを変化させたときの圧損と石炭流量の関係、石炭分流特性、チャーの輸送特性、石炭流量計（Micro Motion Flowmeter）の性能評価について検討している。

第2.3-5 図に圧力損失と石炭流量の関係の一例を示す。図中の実線は、前記、理論式から求めたものである。

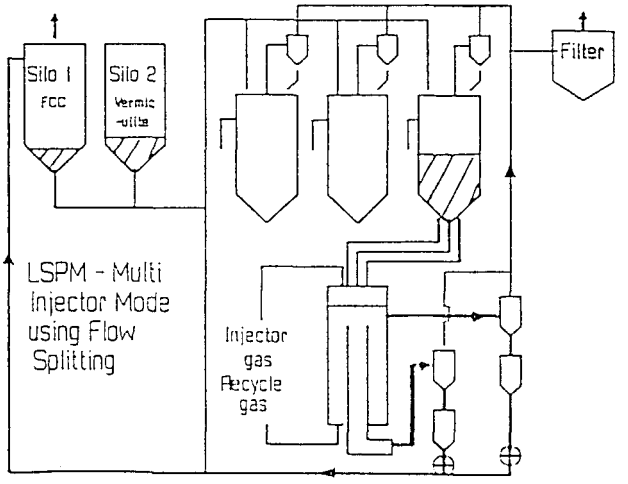
ＢＧ／ＯＧにおいても、ロックウェルと同様な高圧濃厚相輸送の実験が行われ、圧力損失と石炭流量の関係が実験的にもとめられている。また、５０ｔ／ｄのパイロットプラントを想定した冷間での輸送実験が現在行われている（第2.3-6 図、詳細は『Ｈ３年度　石炭ガス化技術開発調査における海外調査』参照）。



第2.3-4 図　ロックウェルにおける濃厚相輸送試験装置



第2.3-5 図　圧力損失と石炭流量の関係（Rockwell実験結果）



第2.3-6 図　ＢＧ／ＯＧの試験装置（ＬＳＰＭ）

ｄ）　石炭分流技術

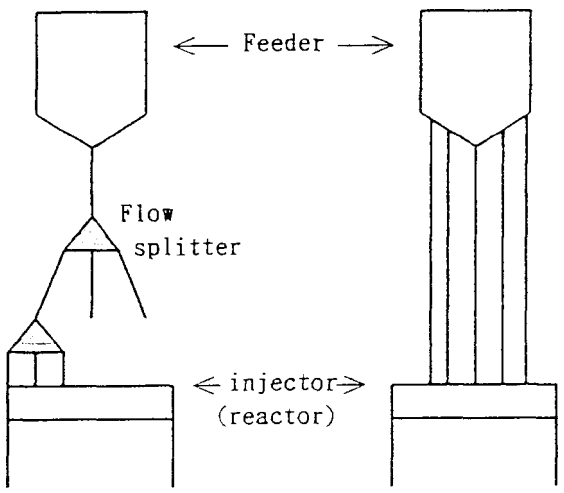
水添反応器のマルチインジェクターへの濃厚相輸送状態で安定かつ均一な石炭の分配技術は、反応器性能に多大の影響を与える重要な開発課題である。

稀薄相輸送の領域では、石炭酸素ガス化において、バーナーへの４～８分流、高炉

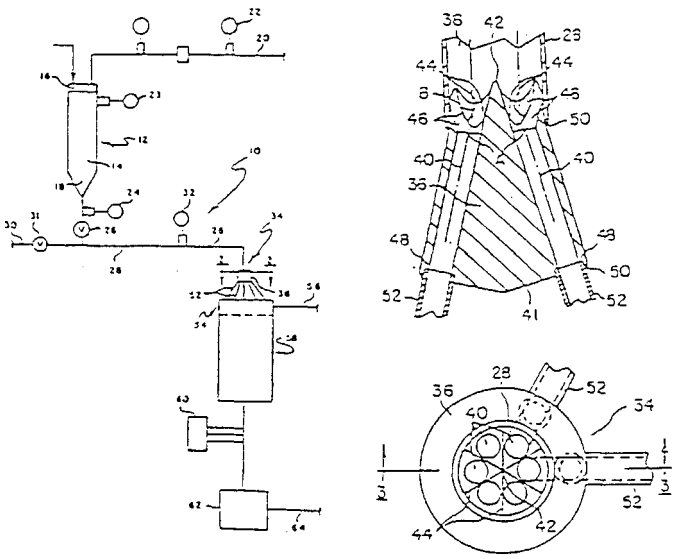
ＰＣＩにおいて、３０～４０の羽口への分流などの実績がある。高炉ＰＣＩでは、Armco の流動層分配装置による多くの支管への分流方式、Petrocarb の石炭フィードタンクからの直接分流方式に代表される。

濃厚相輸送の領域においては、商業規模の実績はない。水添反応器のマルチインジェクターへの石炭分流の考え方として、第2-3-7 図に示される方法が考えられよう。第2-3-7 図 (A)は、フィードタンクからは一つの輸送ラインで搬送し、途中で分流器によりインジェクターへ分配する方式で、図(B) は、フィードタンクから直接、インジェクターへ分配する方式である。いずれの方式を取るかは、分配精度により決定されるべきものである。

ロックウェルでは、第2-3-7 図 (A)の方式による分配試験を行った。試験は第2.3-4 図に示す試験装置の配管途中に分流器(Flow Splitter) を設けて、分配性能を測定することで行った。分流器の構造は、第2.3-8 図に示す簡単なものである（試験では３分流構造の分流器を用いている）[7]。分配精度は、±２．３％であったことを報告している[1]。



第2.3-7図 石炭分流システム



第2.3-8 図　石炭分流器構造

（2）　予熱技術

水添プラントからの排熱（スチームや燃焼排ガス）を石炭の熱的変質が起こらない２００℃までの予熱に利用できれば、プロセスの熱効率が良くなる。水添ガス化では、フィーダーからインジェクターまでの濃厚相輸送状態の石炭をスチーム等の排熱で予熱することになる。

既存の石炭乾燥・予熱技術の概要を第2.3-3 表に示す[8]。燃焼排ガスによる直接加熱方式とスチームによる間接加熱方式があるが、水添ガス化の石炭予熱に直接的に適用できる技術は見当たらない。

水添ガス化では、スチーム等による間接加熱を濃厚相輸送状態の輸送ラインで行う必要がある。ＢＧ／ＯＧでは、５ｔ／ｄＰＤＵの輸送ライン中の石炭をスチームによる間接加熱で２００℃まで予熱した実績がある。大量の石炭搬送が必要な商業規模のラインで、充分な伝熱面積を確保することは容易ではない。設計に反映できるデータを蓄積する必要がある。

（3）開発課題の抽出

濃厚相輸送においては、

- 圧力損失と石炭流量の把握
- 一本当たりの最大石炭輸送量と閉塞限界の把握
- 石炭流量制御方法の確立
- 均一分配を可能とする分流器の開発（分流システムを含めて）

石炭予熱技術においては、

- 濃厚相輸送状態の石炭における間接加熱の伝熱メカニズム（垂直および水平輸送）
- 設計に反映できる伝熱係数の把握
- 石炭予熱方法（装置）の確立

第2.3-3 表　石炭乾燥・予熱技術

型式		No	メーカー［設置工場］	乾燥温度（℃）	水分（%） 原料	水分（%） 製品	処理量（t/d）
直接加熱	流動層	1	［NKK福山］	600	8.0	4.5	7200
		2	三機工業	500	9.9	2.2	48
		3	三菱重工	350	20.0	6.5	7200
		4	大和三光	200	16.0	3.0	
		5	栗本鉄工所	436	9.8	0.3	25
	気流層	6	［NSC室蘭］	280	10.0	2.5	2160
		7	コールテック				960
間接加熱	回転炉	8	［NSC大分］	195	9.0	5.0	6240
		9	［NSC八幡］		12.0	2.0	288
		10		280	22	2.1	168
		11	川崎重工		9.0	5.0	
		12	月島機械				

文　献

1）L.P.COMBS; "Partial liquefaction of coal by flash hydropyrolysis phaseⅣ finaltechnical report" ,Rockwell International,DE-AC22-80PC30018,1982

2）K.Konrad; Powder Technology,49(1986),p1

3）G.Hetsroni;Handbook of multiphase systems,Hemisphere Pub.Co.,1982

4）C.Y.Wen & Y.H.Yu;AICHE Journal,12(1966),p610

5）J.F.Richardson & D.Harrison ;Fluidization,Academic Press,1971,p35

6）"石炭水添ガス化技術開発調査における海外調査"平成３年度報告書； NEDO , 1991

7）特許公報　昭６３－６４４９

8）上條綱雄、出口幹郎、宮川一也；第三回新溶融還元製鉄法研究発表大会,1989

2．3．2　熱交換器

ここで問題とする熱交換器とは、水添ガス化炉出口高温ガスと、水素加熱炉出口原料水素ガスとの、ガス・ガス熱交換器のことである。　この流体の条件は、太平洋炭を使用した場合の、最も過酷な条件として、

与熱体：　ガス圧力，80 kg/cm²,g.　ガス温度，900°C（入口条件）

受熱体：　ガス圧力，82 kg/cm²,g.　ガス温度，300°C（入口条件）

しかし、瀝青炭を原料とした場合の、高負荷運転ケースでは、与熱体の熱交入口温度が975°C程度となる予定となっており、この場合製造ガスにより、900°C に迄クエンチする計画となっている。

商業プラントを考えた場合、現在最も耐熱性のある金属材料としては、25Cr-35Ni-1Moが挙げられる。　そして、設計基準としては、10,000時間のラプチャー強度をチェックしている。　従って、圧力が高く、肉厚の厚い容器やパイプの場合は、自ずから最高使用温度が可なり制限される事になる。　通常の目安として、金属材料の表面温度を 900° Cに抑えて検討している。　一例を挙げると、この様な検討から、水素加熱炉の場合はガスの最高加熱温度を 700° Cとしている。　水素ガスの分圧が高い場合は、ネルソン・カーブにも注意を払う事は言うまでもない。

この熱交換器の場合、開発の為に考えられるべき検討項目は、次の如くなる。

1．与熱ガス入口側の熱交管板の設計

2．与熱ガス入口内部チャンネル部の耐熱材の材質と施工要領

3．熱交チューブの材質と、管板との接続要領

4．チューブ・バンドルの熱膨張対策と、ガスのシール対策

5．熱交本体内面の耐熱材の材質と、施工要領，並びにシュラウドの設計

6．装置のメンテナンスに関する配慮

7．その他

上記各項目は、常に、商業プラントとなった時の場合を考慮し、対応策を考えて置く必要がある。

この熱交換器の設計に当たっての、最も基本的な問題は、二段サイクロンを通過して飛んでくるチャーがどの程度あるのか、ということである。　即ち、伝熱面の汚れをどの程度見込む必要があるか、という事でもある。　今までの、ＰＤＵによる実験結果では、伝熱面の汚れの影響は殆どないであろう程度に迄、チャーは二段サイクロンで補集されてい

るようである。

以上の前提の下に、本熱交換器を設計する上での、留意事項と検討課題等に付き、構造上の問題と、材質上の問題について纏めると、次の通りになる。

（1）構造上の留意点

具体的に記述すると次の通りに要約される。

a．熱交換器の構造について

竪型ワンパスのフローテイング・ヘッドタイプとする。

i．管内流体は、与熱ガスが上部よりはいり、下部へ抜ける構造とする。

これは、多少は同伴される可能性のある、チャーによる汚れの影響を少なくする為である。

熱膨張は下方に逃がし、下部フローテイング部のシール部を工夫する。

従って、このガス・ガス熱交は、架構の中に吊り下げられる構造となる。

ii．チューブ・バンドルは差圧設計とする。

受熱ガスの原料水素ガスと、与熱ガスの反応生成ガスとの差圧は、このガス・ガス熱交の圧損，リアクター内部及び、二段サイクロンを含む配管圧損のみであり、その差圧は 2−3 kg/cm²,g. 以内に収まるので、差圧設計が望ましい。

これにより、チューブの肉厚を薄くする事が可能で、熱應力の面からも、設備費の面からも、大いに利点がある。

iii．シェル内面にキャスタブル施工を行う。

シェル内面にキャスタブル施工を行う事により、耐圧容器の材質のグレードを下げられる。　この場合、シェル内面のキャスタブル表面の保護の観点から、シュラウドを挿入する事も良く行われる。

キャスタブル施工可能なシェルの構造とするため、シェルは胴フランジ付となる。

b．与熱ガス入口側の熱交管板の特殊設計が必要

i．管板表面の耐熱保護方法。

上部管板を水冷式として、幾らかでもメタルの温度を下げる型式にする事が効果ある。　この冷却効果を上げる為には、出来るだけ管板肉厚を薄く設計出来る様な工夫が必要となるが、この点は、可能性があると考えられる。

ii．管板の材質と設計に十分注意を要する。

このガス・ガス熱交の設計で、最も温度的に難しいのは管板である。

与熱ガスの入口温度は、900°C 以上に上がらない様に、必要に応じて製造ガスにより、クエンチすることとする。

（2）材料に関する留意事項

a．シェル内面にキャスタブルを施工する事で、メタル部の温度を下げ、本体材質の適用範囲を広げ、Cr-Mo 鋼を使用する。　この際、ネルソンカーブにより、水素脆性に付き十分考慮する必要あり。

b．管板及び熱交チューブは、差圧設計が出来るので、材料の肉厚を薄くする事が可能となり、材料の面での工夫が可能となる。

c．上部チャンネル部は、水素分圧が高い上に高温であり、材料選定に特別の注意が必要である。　ネルソンカーブにより、水素脆性に付き十分考慮する必要あり。

（3）開発必要要素

開発要素として考えられる項目は、下記の様に纏められる。　これらの項目は、与熱体ガス入口温度を、900°C に抑えるという前提でゆけば、そう難しい事ではない。

a．チャーの挙動についての検討

どの程度迄伝熱効率に影響があるか、調べる事。　これは、飽くまでも二段サイクロンの効率との関連があり、運転してみないと分からない要素が大きいが、此処ではチャーの物性面からの検討を行う事になる。

b．シェル内面にキャスタブル施工可能とするために、本体にフランジを必要とするので、この温度条件・圧力条件を勘案し、構造・材質の検討が必要である。

c．下部フローテイング・ヘッド部のシール材の調査が必要。

d．管板冷却用水の循環方式。

高圧循環冷却水を使用する。

e．高温管板部の設計。

2．3．3　チャーの分離（冷却），搬送

反応生成物としてのチャーは、生成量の約 50%が、リアクター底部に堆積する。　その他は、出口ガスに同伴されることになる。

ＢＧの説明では、Geldart の行った、粉の分類を基本にすると、リアクターのチャーはグループＡ物質と呼ばれるとみてよい。　この様な物質は、ガスと濃厚相（dense phase）との間の十分なバック・ミクシングが行われる、理想的流動性能を持っている。　現在、チャーの粒子の大きさと密度を、より正確に摑むために、流動テストが行われいる。

この様に、理想的な流動性能を持つているチャーであれば、それなりの分離を行い、流動床冷却を行う事も可能と考えられる。　以下に、分離，冷却，チャーの搬送の各段階における問題点を整理し、エンジニアリング面のポイントをはっきりさせてみる。

（1）チャーの分離

なるべく多量のチャーを、ガス化反応器内で分離する事が望ましい。　従って、炉内循ガスの出口ラインへの、流れ方向の変更により、チャーの分離を出来るだけ多くするように考える。　この為、以下の事が挙げられる。

a．炉内から、出口配管へのガス入口部に細工をする。

b．ガス化炉本体と、チャーの流動冷却装置を分割する。

c．同一圧力下で、チャーの流動冷却を行わせる。

　この為、水添ガス化反応器との圧力調整、チャーのガス側への再同伴を防止する構造とする。

また、ガス化炉出口ガス中に同伴されるチャーの分離については、

d．外部サイクロンを二段に設備し、チャーの分離を徹底する。

　ＢＧの石炭量 5 t/dの PDUの実験では、適当なサイクロンを二段に設備する事で、後流へ同伴されるチャーは、殆ど無いという実績を得ていると言う。

　この場合、高温ガス（MAX. 975°C）を処理するので、サイクロンは、当然のことながら、リフラクトリー・ライニングが必要となる。

ＢＧにおける PDUの実験から、二段サイクロン出口ガス中には、後工程で問題となる様な量のチャーが同伴される事は無い、と考えて計画を進める。

少量のチャーであれば、その流動性からみて、ガス・ガス熱交に影響を与える事も少なく、また、その後のオイル・クエンチ工程で連続ブローダウンを考える程度で、問題は起きないと判断する。

尚、当然の事ながら、補集される場所毎に、チャーの物性は多少相違していることも念頭に置く必要がある。　特に、二段サイクロンで補集されるチャーの物性には、注意する必要がある。

水添ガス化反応器から分離されるチャーは高温・高圧であり、移送の途中に弁を入れて流量コントロールすることが難しい。　又、チャーの分離は、同圧の状態で行われる事が望ましいので、必然的に、水添ガス化反応器の真下に流動冷却器を配置し、連通管を通しグラヴィテイー・フローにより、チャーが此の反応器底部より分離される構造になると、考えられる。　この場合、リアクターからのチャーの連通管を、下部の流動冷却器の底部に迄下ろす事になると考えられる。

此処で問題となるのは、このチャーの流動性である。　正常な運転状態においては、冒頭に記述したように、粉体としての理想的な流動性能を持っているとしても、運転条件の変化によっては、流動性の悪いチャーが生成されないか？　その場合、この連通管を詰める様な事は起きないか？　と言う疑問である。　高温・高圧の状態下で、詰まり防止対策を機械的に行うことは不可能であるからである。　この問題の解決策としては、連通管の内径を、ある程度大きく取ると言うことで解決出来るのではないか、と考えられる。

以上の観点からも、運転状態と、その時に生成するであろうチャーの流動性に就いての調査・検討が、要素研究のテーマの一つとして欠かせないものである。

流動冷却器の底部から噴出される、流動媒体ガス（製造ガスを循環使用する計画）により、チャーの流動層を形成させる事になるが、冷却されたチャーは内部に設置されているオーバーフロー管により、底部より外にとりだされる。

しかし、これには、チャーの流動性を充分に把握しておく事が必要であり、要素研究でデータを取る事が必要である。

（2）チャーの冷却

現在迄行われてきた、石炭投入量 5 t/dの PDUにおいては、チャーの冷却は移動床で行われてきた。　従って、この移動床による冷却に就いては、可なりの知見が得られているが、この移動床では、冷却器の真下にチャー・ロックホッパーを2基パラに置き、交互に切り換え使用する事になる。　従って、構造的にリアクター全体の高さが非常に高くなり、当然架構も非常に高い物になってしまう。　これは、装置が大きく成ればなるほど、ますます増幅されてくるので、商業プラントの場合は考えられない。

従って、本パイロット・プラントでは、リアクター底部より分離されるチャーについては、最初から流動床冷却を計画する事とする。

チャーはリアクター以外にも、一段及び二段のサイクロンでも補集されるが、これらについては、商業プラントでは、全て流動冷却器に集めて冷却する事になると思われるが、本パイロットプラントでは、それぞれ別々の移動床冷却器を設ける事にしている。
流動冷却器を含め、チャーの冷却には、高圧循環冷却水を使用し、差圧設計による水管チューブを使用する事により、効果的な冷却が計画されている。

現状では、チャーの物性や流動化の条件が不明確なので、すぐ設計を行う事は出来ないので、流動床冷却装置の為の要素研究が必要になる。

これらを、エンジニアリング面からの問題点として纏めると、以下の如く表される。

a．流動化条件の調査

i．流動化ガス量・ベッセルL／D・流動床安定性，のそれぞれの関係調査

ii．流動ガスの種類との関係（H_2. CH_4 等）

b．チャー物性の取得

i．常温物性から高温物性の推定

ii．粒度分布

iii．真比重と嵩比重

iv．粘着性

v．発火点

vi．比熱

vii．熱伝導度

c．チャー冷却特性

i．冷却流体

ii．管群の配置形式

iii．管群の流動条件への影響

iv．管の材質

v．チャーは何度迄冷却するのか

vi．高温チャーの冷却テスト困難なら、常温チャーの昇温テストで推定

vii．伝熱係数の把握

d．チャー冷却器の配置

i．ガス化炉本体に対する相対配置

チャー側の圧力を下げない事が望ましいので、グラビテイー・フローー利用の構造・配置となる。

（3）チャーの搬送

チャーは、商業プラントでは，HYCOL へ送入する高温チャー搬送と、余剰のチャーを冷却して搬送する、低温チャーの搬送の二通りを考えておく必要あり。　チャーの外部への搬送は、最終的にロックホッパーを経由する事になるので、このチャーの搬出温度・圧力を何処まで高く保ちながら行えるかが、チャーのガス化効率に影響して来ることになる。その影響の程度と、技術的，経済的関係との天秤にかけて、その限界を見極めるべきである。　この場合の、エンジニアリング面からの問題点は、次の如くなる。

a．高温チャーの搬送は、内面リフラクトリー・ライニングを施した粗管面となる。

但し、チャーによるリフラクトリー面の磨耗を防止するため、状況に応じて、耐熱合金によるシュラウド挿入等の方法をとる。

b．搬送方式

チャーは流動特性が良いので、濃厚相輸送の必要は無いという事であるが、搬送計画については、チャーの流動冷却装置のための要素研究の内の一つのアイテムとして、流動性について確認した上で、最終的に結論を持つ。

c．搬送形態

水平配管の場合と、垂直配管の場合（この場合は，上向流と下向流を考える必要あり）につき、粗面管の場合と、平滑面管の双方に付き検討する。

可なり長距離配管と成るので、配管計画を良く考慮し、必要な圧力損失を見極めておく必要あり。

d．流動データの取得

i．ガス／チャーの重量比

ii．管形と流速

iii．搬送チャー流量と圧損

iv．搬送ガスの選定（H_2, CH_4 等）

e．チャー搬送量のコントロール

ロータリー弁、又はベッセル間の圧力差によるコントロール。

f．チャーの流量計測法の確立

g．チャー／ガスの境界面検出法の確立

h．高温・高圧の状態でのロータリー弁の使用は、特にそのシール性の困難さから、実用化されていないが、ダブル・シール方式を採用する事で、実現出来ないか、今後、バルブ・メーカーの知見を調査する必要がある。

ここで、高温・高圧におけるチャーのハンドリングの重要性を纏めて置くと、次の通りである。

チャーの部分酸化によるガス化の方向は、間違い無いと判断されるが、このチャーのガス化に伴う熱効率向上のため、出来るだけ酸素の使用量を減らしたい。　酸素を減らす為には、原料チャーを出来るだけ高い圧力で、且つ出来るだけ高い温度で、ガス化炉に供給する事が望ましい。　その場合問題と成るのが、高温・高圧におけるチャーの取扱い・搬送である。

従って、このチャーの高温・高圧に於けるハンドリングの為には、その状態に於けるチャーの物性を摑む事が必要であり、流動条件の調査と相まって、この面での要素研究が必要になってくる。

（4）高温・高圧バルブに就いて

現在開発中の、高温・高圧石炭ガス化の条件化で、使用頻度の多い自動切り換え弁の大型化の開発が行われている。　従って、この自動切り換え弁の開発が、全体のシステム開発上、重要な開発要素と成っている。　この為、特にガス化後流部門での、この点の開発が急がれている。

以上の観点から、この種バルブの開発状況を調査してみたが、残念ながら、今回のチャーそのものに就いての開発は未だ成されていない。　これに比較的に近いものとして、石炭ガス化関連の、高圧・高温下の、精密脱塵装置での脱塵・逆洗用自動切り換え弁や、乾式脱硫装置に於ける、脱硫・再生・還元用自動切り換え弁が挙げられる。

この種バルブの開発過程でも、チャーの影響に就いては色々と研究されており、例えば、運転停止時、露点以下の温度になると、水を含んで固着し、固着後は、通常のブロー等では取り除くことが難しい。　また、腐食に就いても、露点以下になるとチャーに含まれ

る色々の成分が影響を与える可能性も考えられている。　従って、バルブ本体は確実に保温する、グランド部はシールガスを供給して、チャーの混入を防ぐ事、また、運転停止する場合は、ブロー等を行い、チャーの固着を防ぐシステムを考える、等の点が指摘されている。

切り換え弁の形式としては、遮断の目的に用いられている代表的な三つの形式（仕切り形式・ボール形式・バタフライ形式）に就いて色々と検討されているが、その評価結果の一例として、第2．3－4表を挙げておく。　これは、圧力 32 kg/cm²,g.，温度 625°C バルブサイズ 1100 mmの、バルブ開発を想定しての検討の一例である。　但し、使用圧力に関しては、設計変更は比較的に容易なので、90 kg/cm²,g.用に適用する事は可能であるという、見通しを持っている。

高温・高圧の、粉体／ガス混相流用のバルブとして、一般形式分類で言う、仕切り弁，ボール弁，バタフライ弁のいずれもが適用可能である。　これらは、粉体取扱いを考慮して、細部構造を改良した特定形式があり、例えば、仕切り弁はスルーコンジット型、ボール弁はメタルシート付変心型、バタフライ弁は二次偏心型、として製品化されており、直ちに採用可能である。

この他、更に改良された弁として、ボール弁とバタフライ弁の長所をあわせ持った折衷型、バタフライ弁の長所を引きだしたテイルテイング型、ボール弁の長所のみ発展させたプラグ型、が開発されており、既に試作品が出来ているので、応用可能である。　これらのバルブは、それぞれ形式固有の長所・短所があるので、使用目的に合わせて選定する。例えば、流量調節用としては、バタフライ弁が最適で、その他は必ずしも向いていない。流れの遮断用としては、ボール弁形式，仕切り弁形式がいずれも閉止時リークが少なく、開閉時差圧が大きく取れるので最適である。　流量調節と流れの遮断の、二つの目的に向いているものとして、ロータリーバルブがあるが、常温・常圧近辺の製品しか無いので、使用カ所は限定される。　高温・高圧用の開発が望まれる所である。

此処で、バルブの価格について考えてみる。　バルブの価格は、その重量とほぼ同意義である。　いかに特性の優れたものでも、重量が大きいと、設計，建設とも困難になる。パイロットプラントのみ考えれば、小口径のバルブで済む為、特性優先でバルブ形式を選定する事は可能であるが、商業プラントでも同一形式のバルブを適用するべきである、という観点で考えると、大口径になっても、価格・重量共、小さいバルブを選定しておく事が重要である。　特に、微粉炭，チャー共、高圧ロックホッパー回りは、多数のバルブを

使用するので、慎重に選定する要がある。

第2．3－4表　バルブ形式とその特徴

形式 ＼ 項目		高温高圧漏れ	弁座耐久性	全開流路	温度変化時の影響	外形寸法重量	多塵ガス・シール性	ダストの堆積
仕切り形式	パラレルスライド	◎	○	○	○	△	△	△
	フレキシブルジスク	◎	○	○	△	△	△	△
	ソリッドジスク	◎	◎	○	×	△	△	△
	プレート	○	○	◎	○	△	△	△
	スルーコンジット	◎	○	◎	○	×	△	○
回転形式	フローチングボール	○	○	◎	○	○	△	○
	トラニオン付ボール	○	○	◎	△	○	○	○
	偏心形ボール	○	◎	◎	△	○	△	○
	石炭ガス化用(1)	○	○	△	○	◎	△	○
バタ形式	一次偏心	△	△	△	×	◎	△	◎
	二次偏心	△	△	△	×	◎	△	◎
	テイルチング	△	○	△	△	◎	△	◎
	石炭ガス化用(2)							
玉形・形式		○	◎	×	○	○	△	△

備考；記号は下記を表す。

不利　×＜△＜○＜◎　有利

第3章　石炭水添ガス化プロセスの実用化のためのスタディ

第３章　石炭水添ガス化プロセスの実用化のためのスタディ

３．１　水添ガス化プロセス構成のための検討

３．１．１　ＡＲＣＨ－１効率上昇のための検討と経済評価

３．１．１．１　プロセス効率上昇のための検討

（１）平成２年度報告書の要約

平成２年度報告書の要約を記述すると、次の通りである。

SNG 製造プロセスとして（BG/OG+HYCOL)プロセスのケースと、(BGL+HICOM) プロセスについて検討した.

原料　　：亞瀝青炭とし、太平洋炭相当の性状で輸入炭ベースの価格とする。

建設場所：東京湾周辺または大阪湾周辺を仮定し、石炭の埠頭からの受入れ以降、SNG 製造までの一連のプロセスについて、概念設計，設備費の試算を行い、それに基づく熱効率の検討、経済性の検討を行う。

設備能力：11,000 kcal/Nm^3(但し,HHV) の SNGを $3.00 \times 10^6 Nm^3/d$製造する設備とする。

SNG 性状：発熱量　：11,000 kcal/Nm^3

燃焼性　：13 A

ＣＯ濃度：500 ppm 以下

水素濃度：5 % 以下

ガス露点：0 ℃以下

送出圧力：35 kg/cm^2,g

年間稼働日数：330 日（年間稼働率を 90 % と見込む）

プラント概略所要敷地面積：両ケース共，165,900 m^2

総合熱効率：BG/OG+HYCOL，75.21 %，　BGL+HICOM，74.64 %

設備費　：BG/OG+HYCOL，119,015百万円，　BGL+HICOM，116,958 百万円.

（但し，共に予備費 10 % を含む）

SNG 製造原価：BG/OG+HYCOL，¥ 42.72/Nm^3，　BGL+HICOM，¥ 51.33/Nm^3.

（2）プロセス効率上昇の検討結果

平成2年度報告書の中の BG/OG+HYCOLのケースの総合熱効率は、75.21 % であった。

この効率が、更に改善出来ないかどうか検討した結果、下記対策を行えば、総合熱効率が 77.01 %に迄向上する事が分かった。 即ち、

— メタネーター出口の余剰メタンを利用して行っていた自家発電を止める。

— 自家発電に回していた余剰メタンガス相当分の原料投入石炭量を減らす。

— スチームバランスの関係で、電動駆動としていた空気圧縮機2台と、酸素圧縮機1台をスチームタービン駆動に変更する。

以上に伴う総合熱効率を、具体的に平成2年度報告書との対比で記すと、以下の如くなる。

項目		単位	高位発熱量 kcal/ 単位	平成2年度報告書 量（毎時）	平成2年度報告書 高位発熱量 HHV kcal/h	今回 量（毎時）	今回 高位発熱量 HHV kcal/h
入力	石炭（乾）	kg	6,650	238,515	1586.12 MM	221,580	1473.5 MM
	電力	kwh	2,048	14,850	30.41 MM	18,052	37.0 MM
	入力計				1616.53 MM		1510.5 MM
出力	製造ガス	Nm^3	9,442.4	111,830	1055.9 MM	111,830	1055.9 MM
	ベンゼン	kg	9,999	9,395	93.95 MM	8,728	87.3 MM
	ナフサ類	kg	10,000	5,600	56.0 MM	5,202	52.0 MM
						− 4,110	−41.1 MM
	硫黄	kg	2,220	526	1.17 MM	488.5	1.1 MM
	アンモニア	kg	5,048	1,732	8.74 MM	1,609	8.1 MM
	出力計				1215.76 MM		1163.3 MM
総合熱効率				75.21%		77.01%	

3．1．1．2　プロセス最適化の検討と最適構成時の技術評価および経済評価

平成2年度の報告書の内容を更に改善するために、プロセスの最適化につき再検討を行った。　その結果、全体熱効率改善のための方向ずけが明確になつた。　また、プロセスの最適構成時の場合の経済評価に付いても検討を行い、新しい結論を持つ事が出来た。

以下に、最適化の検討，最適構成時の技術評価，最適構成時の経済評価の順に記述する。

（1）最適化の検討

平成2年度の報告書では、61ページ，9)に記述されている様に、深冷分離器入口ガス中のＣＯ濃度を下げることとし、最終的にH_2．CH_4 の2成分への分離を行った。　是は、チャーから生成される水素ガス量が当初予想より少なく、水素ガスバランスをとるためのやむを得ぬ処置として行ったものである。　しかしながら、水素，メタンの2成分分離を行うため、最終的に、水素，メタン分離の際の圧力を下げなければならなくなり、必然的に水素ガスの系外出口圧力が低くなり、循環の為の水素ガス圧縮機の所要動力が非常に大きくならざるを得ない結果と成っている。　この水素ガスの圧縮動力を、何とかして下げることが、最適化のための一つの条件と考えられる。　この為の一つの方法は、何とかして、水素，メタン，ＣＯリッチガスの3成分分離を行い、メタンとＣＯリッチガスの分離圧を下げ、水素ガスは成るべく高い圧力で系外に取り出し、水素圧縮機の動力を低減することが挙げられる。

この為には、チャーから生成される水素ガス量にある程度の余裕を持たせることが不可欠となる。　従って、水添ガス化反応器の反応温度を少し下げ、チャーの生成量を増やし、これによって、深冷分離器における三成分分離が可能に成るようにする必要がある。
この場合、ＣＯはＣＯリッチガスとして取り出し、発電用の燃料として利用する事になるので、深冷分離器入口のＣＯ含有率を下げる必要はなく、水添ガス化反応器出口のＣＯ変換炉はなくす事が出来る。　是によって得られる効果としては、次の事が挙げられる。

a．平成2年度報告書 64.2 ページに記載されている通り、深冷分離器出口水素圧力 8.3 kg/cm²,gであったものが、可成り高い圧力で取り出せる。　是により、水素ガス圧縮動力が大幅に節減出来る。

b．ＣＯ変換炉用のスチームが不要となり、この熱量が節約される。

c．ＣＯリッチガスにより、十分な量の発電が可能となり、余剰電力を外販することが出来るようになる。

d．ベンゼン，ナフサ類など、液成分の生成量も増える。

以上の利点を生かすべく、種々検討した結果、平成2年度報告書のベースとして採用された、水添ガス化反応器における炭素変換率 54.379 % を 51.50 %に迄下げる事が、効率向上に有意義である事が分かった。

以上の結果から、本プロセスの最適構成時のフロースキームは、第3．1－1図　の如く考えられる。

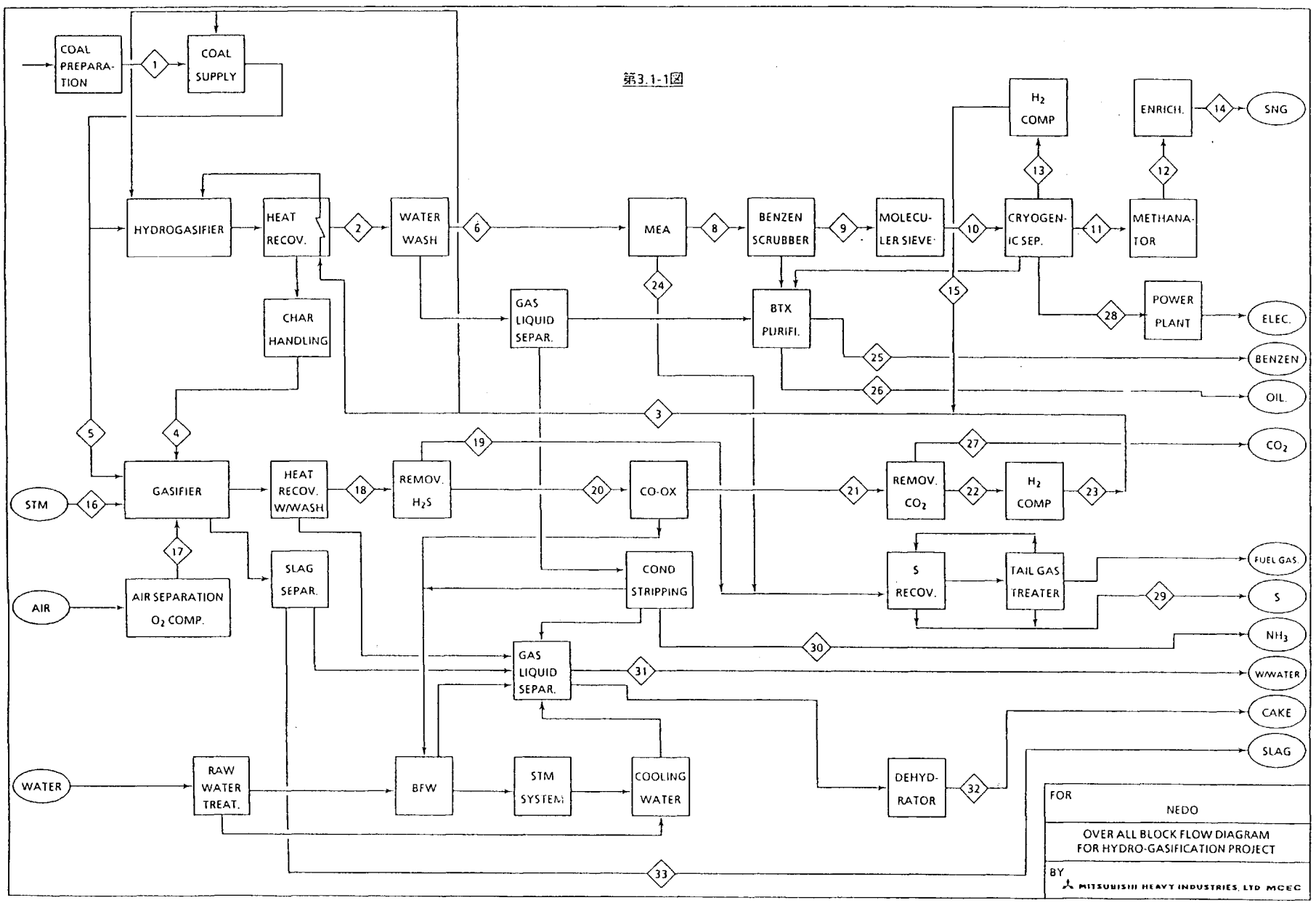
（2）最適構成時の技術評価

前記（1）の考えに基づき、具体的に数値を使用して、原料使用量の比較を行うと、以下の如くなる。

原料	今回	平成2年度報告書
水添ガス化反応器投入石炭（乾）kg/h	243,881.6	238,515
HYCOL へのチャー投入量（乾）kg/h	116,379.5	109,344.2
HYCOL への酸素投入量 kg-mol/h *)	3,100.9	2,855.63
HYCOL へのスチーム投入量 kg-mol/h	580.92	545.63

注：*)：酸素純度 99.50 %とする。

ここで、マテリアル・バランスの一例を、第3．1－1表　として添付する。


COAL PREPARA-TION
COAL SUPPLY
HYDROGASIFIER
HEAT RECOV.
WATER WASH
CHAR HANDLING
GAS LIQUID SEPAR.
MEA
BENZEN SCRUBBER
MOLECU-LER SIEVE
CRYOGEN-IC SEP.
METHANA-TOR
ENRICH.
SNG
H_2 COMP
POWER PLANT
ELEC.
BTX PURIFI.
BENZEN
OIL.
CO_2
STM
GASIFIER
HEAT RECOV. W/WASH
REMOV. H_2S
CO-OX
REMOV. CO_2
H_2 COMP
AIR
AIR SEPARATION O_2 COMP.
SLAG SEPAR.
COND STRIPPING
S RECOV.
TAIL GAS TREATER
FUEL GAS
S
NH_3
GAS LIQUID SEPAR.
W/WATER
CAKE
SLAG
WATER
RAW WATER TREAT.
BFW
STM SYSTEM
COOLING WATER
DEHYD-RATOR
FOR
NEDO
OVER ALL BLOCK FLOW DIAGRAM FOR HYDRO-GASIFICATION PROJECT
BY
MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES, LTD MCEC

第3.1-1図

第3.1-1表 MATERIAL BALANCE FOR PRODUCTION OF SNG BY BG/OG, HYCOL PROCESSES

		①		②		③		④		⑤		⑥				⑧		⑨	
	M.W.	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %
CH_4	16.04			5,443.65	24.84	350.21	1.53					5,443.65	24.98			5,416.44	25.11	5,416.44	25.33
CO	28.01			766.69	3.50	477.61	2.09					766.69	3.52			762.86	3.54	762.86	3.57
COS	60.7			0.93	0.00	0.00						0.93	0.00						
CO_2	44.01			107.80	0.49	50.82	0.22					102.54	0.47						
C_2H_6	30.07			7.01	0.03	0.01						7.01	0.03			6.98	0.03	6.98	0.03
C_6H_6	78.114			137.42	0.63							137.42	0.63			136.73	0.63		
C_7H_8	92.141			0.02	0.00							0.02	0.00			0.02	0.00		
H_2	2.016			15,216.07	69.42	21,922.03	95.89					15,216.07	69.84			15,139.99	70.20	15,139.99	70.79
H_2S	37.08			8.24	0.04							8.24	0.04						
HCl	36.461			0.88	0.00							0.00							
N_2+A				60.84	0.28	61.93	0.27					61.11	0.28			60.81	0.28	60.81	0.28
O_2	32			0.00															
NH_3	17.031			122.30	0.56							0.00							
CS_2	76.131			0.27	0.00							0.27	0.00						
HCN	27.026			2.65	0.01							0.00							
$C_{10}H_8$	128.17352			25.80	0.12							25.80	0.12			25.66	0.12		
$C_{14}H_{10}$	178.2334			18.43	0.08							18.43	0.08			18.33	0.09		
Total gas-dry, Kg-mol/h				21,919.00	100.00	22,862.61	100.00					21,788.18	99.99			21,567.82	100.00	21,387.08	100.00
Steam, Kg-mol/h																			
Total gas-wet, Kg-mol/h																			
Daf coal Kg/h		210,225.9						81,349.3											
Ash Kg/h		33,655.7						35,030.2											
Water Kg/h		0						0											
Total mass Kg/h		243,881.6						116,379.5											
Temp. °C				145.9		40.0						35.0				35.0		35.0	
Press. Kg/cm^2g				74.0		86.0						74.0				73.0		72.5	

		10		11				13		14		15		16		17		18	
	M.W.	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %
CH_4	16.04	5,416.44	25.33	5,020.61	99.85			298.20	1.91	5,020.61	89.96	294.58	1.89					57.25	0.73
CO	28.01	762.86	3.57	0.63	0.01			277.77	1.78	0.63	0.01	274.36	1.76					5,937.81	76.22
COS	60.7																	0.80	0.01
CO_2	44.01																	405.09	5.20
C_2H_6	30.07	6.98	0.03	6.97	0.14					6.97	0.12								
C_6H_6	78.114																		
C_7H_8	92.141																		
H_2	2.016	15,139.99	70.79					14,977.88	96.10			14,947.92	96.14					1,346.28	17.28
H_2S	37.08																	8.52	0.11
HCl	36.461																	0.49	0.01
N_2, A		60.81	0.28					32.51	0.21			31.99	0.21			15.50	0.50	32.13	0.41
O_2	32															3,084.59	99.50		
NH_3	17.031																	2.17	0.03
CS_2	76.131																		
HCN	27.026									プロパン 552.49	9.90								
$C_{10}H_8$	128.17352																		
$C_{14}H_{10}$	178.2334																		
Total gas-dry, Kg-mol/h		21,387.08	100.00	5,028.21	100.00			15,586.36	100.00	5,580.70	99.99	15,548.85	100.00			3,100.09	100.00	7,790.54	100.00
Steam, Kg-mol/h														580.92				225.77	
Total gas-wet, Kg-mol/h																		8.,016.31	
Daf coal	Kg/h																		
Ash	Kg/h																		
Water	Kg/h																		
Total mass	Kg/h																		
Temp.	°C			33				33		33		40		313		130		40	
Press.	Kg/cm²g			36				8.3		35		86		105		76		65.5	

		19		20		21		22		23		24		25		26		27	
	M.W.	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %
CH_4	16.04			58.22	0.74	58.22	0.43	55.95	0.76	55.62	0.76	27.21	12.40						
CO	28.01	17.34	53.20	5,920.47	74.98	208.59	1.53	204.46	2.79	203.25	2.78	3.83	1.75					4.13	0.07
COS	60.7	0.80	2.45																
CO_2	44.01	3.46	10.57	503.34	6.37	6,215.22	45.67	51.13	0.70	50.82	0.69	102.54	46.73					6,062.40	98.80
C_2H_6	30.07											0.03	0.01						
C_6H_6	78.114											0.70	0.32	129.89					
C_7H_8	92.141															0.02			
H_2	2.016	1.29	3.95	1,383.14	17.52	7,095.02	52.14	6,988.09	95.34	6,974.11	95.36	76.07	34.67					68.78	1.12
H_2S	37.08	8.52	26.13									8.24	3.76						
HCl	36.461																		
N_2+A		1.21	3.70	30.92	0.39	30.92	0.23	30.09	0.41	29.94	0.41	0.31	0.14					0.83	0.01
O_2	32																		
NH_3	17.031																		
CS_2	76.131											0.27	0.12						
HCN	27.026																		
$C_{10}H_8$	128.17352											0.13	0.06			24.39			
$C_{14}H_{10}$	178.2334											0.09	0.04			17.41			
Total gas-dry, Kg-mol/h		32.62	100.00	7,896.09	100.00	13,607.97	100.00	7,329.72	100.00	7,313.74	100.00	219.42	100.00	129.89		41.82		6,136.14	100.00
Steam, Kg-mol/h																			
Total gas-wet, Kg-mol/h																			
Daf coal	Kg/h																		
Ash	Kg/h																		
Water	Kg/h																		
Total mass	Kg/h																		
Temp.	°C			35		35		10		40									
Press.	Kg/cm^2g			65		60		59.5		86									

		28		29		30		31		32		33		◇		◇		◇	
	M.W.	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %	Kg-mol/h	mol %
CH_4	16.04	97.63	12.64																
CO	28.01	484.45	62.71																
COS	60.7																		
CO_2	44.01																		
C_2H_6	30.07																		
C_6H_6	78.114																		
C_7H_8	92.141																		
H_2	2.016	162.12	20.99																
H_2S	37.08																		
HCl	36.461																		
N_2+A		28.30	3.66																
O_2	32																		
NH_3	17.031					103.99													
CS_2	76.131																		
HCN	27.026																		
$C_{10}H_8$	128.17352																		
$C_{14}H_{10}$	178.2334																		
Total gas-dry, Kg-mol/h		772.50	100.00			103.99													
Steam, Kg-mol/h																			
Total gas-wet, Kg-mol/h																			
Daf coal Kg/h												カーボン 378.33							
Ash Kg/h												33.65×10^3							
Water Kg/h				単体鉱質		6,928		644×10^3											
Total mass Kg/h				526		8,699		644×10^3		50.2		34.01×10^3							
Temp. °C		35		135		35		30		30		35							
Press. Kg/cm^2g		35		10		常圧		常圧		常圧		常圧							

a．原単位

原単位は、第3．1－2表　の如く表される。

第3．1－2表　最適構成時の原単位

項　　目	消　費　量	プロセス	原単位	備　　考
ＤＡＦ石炭換算 （部分酸化ガス化炉ＤＡＦ石炭換算）	210,225.9 kg/h (81,349 kg/h)	BG/OG HYCOL	1,681.7 kg (650.8)	1)原単位は製品SNG 1,000Nm³当りの消費量.
酸素量	99,141 kg/h	HYCOL	793 kg	2)O_2 99.5 Vol%.
ＢＦＷ用原水量	264 t/h		2.11 t	
安水製造原水量	9 t/h		0.07 t	
ＣＷ用　原水量	1,000 t/h		8.00 t	
原水使用量合計	1,273 t/h		10.18 t	
洗浄水量	72 t/h		0.58 t	
電力	−9,399 kw/h		− 75.19kw	

スチーム発生量（ t/h）：	BG/OG ガス化炉	HYCOL ガス化炉	ガス精製系
105kg/cm², g. 540°C	51	156.9	—
105kg/cm², g. 313°C	80	76.2	96.4
3.5kg/cm², g. 147°C	—	—	24.7

b．熱効率

総合熱効率を、平成２年度報告書との対比で書くと、第３．１－３表　の通りとなる。

第３．１－３表　総合熱効率の比較

種別	項目		単位	量（毎時）	高位発熱量 kcal/単位	高位発熱量 kcal/h	比率（%）
今回	入	石炭DRY	kg	243,881.6	6,650	$1,621.81 \times 10^6$	100.00
	出	製造ガス	Nm^3	112,625	9,547	$1,075.23 \times 10^6$	66.30
		ベンゼン	kg	10,146	9,999	101.44×10^6	6.25
		ナフサ類	kg	6,230	10,000	62.30×10^6	3.84
		硫黄	kg	526	2,220	1.17×10^6	0.07
		NH_3	kg	1,732	5,048	8.74×10^6	0.54
		電力	kwh	9,399	859.98	8.08×10^6	0.50
		出力計				$1,256.96 \times 10^6$	77.50
	総合熱効率：７７．５０％						
平成２年度報告書	入	石炭DRY	kg	238,515	6,650	$1,586.12 \times 10^6$	98.12
		電力	kwh	14,850	2,048	30.41×10^6	1.88
		入力計				$1,616.53 \times 10^6$	100.00
	出	製造ガス	Nm^3	111,830	9,442.4	$1,055.9 \times 10^6$	65.32
		ベンゼン	kg	9,395	9,999	93.95×10^6	5.81
		ナフサ類	kg	5,600	10,000	56.0×10^6	3.46
		硫黄	kg	525.8	2,220	1.17×10^6	0.07
		NH_3	kg	1,732	5,048	8.74×10^6	0.54
		出力計				$1,215.76 \times 10^6$	75.21
	総合熱効率：７５．２１％						

c．ユーテイリテイー・バランスについて．

イ．スチームに関するバランス．

平成２年度の場合との対比で記述すると、プロセス・プラントの運転により発生するスチームは、次の通りである。

スチーム	今　回（t/h）			平成２年度報告書（t/h）		
	（１）	（２）	（３）	（１）	（２）	（３）
105 kg/cm²,g. 540°C	51.1	156.9	——	50.0	147.4	——
105 kg/cm²,g. 313°C	79.8	76.2	96.4	78.0	71.6	90.6
3.5kg/cm²,g. 147°C	——	——	24.7	——	——	23.0

備考；（１）は水添ガス化反応器，（２）はHYCOL ガス化炉，（３）はガス精製系を示す。　従って、次の様に要約される。

	今回発生量	平成２年度報告書
105 kg/cm²,g. 540°C スチーム	208.0 t/h	197.4 t/h
105 kg/cm²,g. 313°C スチーム	252.4 t/h	240.2 t/h
3.5 kg/cm²,g. 147°C スチーム	24.7 t/h	23.0 t/h

高圧スチームの動力用以外の使用量は次の通り（全て、105kg/cm²,g. 313°C）。

	今回使用量	平成２年度報告書
HYCOL 向け，	10.4 t/h	9.8 t/h
ガス精製系，ＣＯ変換（No.1）	127.7 t/h	120.0 t/h
同　上　　同上　（No.2）	——	36.5 t/h

従って、大型圧縮機の動力用に向けられるスチームは、次の通り。

	今　回	平成２年度報告書
105 kg/cm²,g. 540°C スチーム	207.9 t/h	197.4 t/h
105 kg/cm²,g. 313°C スチーム	114.5 t/h	73.9 t/h

スチーム・タービン駆動機は、つぎの通り。

	今　回	平成2年度報告書
空気圧縮機	2 基計) 26,396 kwh	――――
酸素圧縮機	2 基計) 16,178 kwh	1 基計) 7,600 kwh
No.1水素圧縮機	9,357 kwh	36,400 kwh
No.2水素圧縮機	2,700 kwh	2,700 kwh
合計	55,231 kwh	47,300 kwh

ＢＦＷの必要量は次の通り。

	今　回	平成2年度報告書
ＢＦＷフィード量	208.7 t/h	219.2 t/h
(デアレーター入口ＢＦＷ	416.4 t/h	409.7 t/h)

ロ. 電力に関するバランス.

電力使用量に就いて纏めると、次の通りである。

項　　目	今　　回	平成2年度報告書
1. 石炭前処理工程	6,655 kwh	6,514 kwh
2. 水添ガス化工程	3,466 kwh	3,390 kwh
3. 同上ガス精製工程	1,041 kwh	1,041 kwh
4. ＨＹＣＯＬ	1,809 kwh	1,700 kwh
5. 同上ガス精製工程	2,689 kwh	2,689 kwh
6. プロセスプラント共通設備	179 kwh	179 kwh
7. ユーテイリテー・オフサイト	6,352 kwh	6,357 kwh
8. 空気圧縮機	――――	24,800 kwh
9. 酸素圧縮機	――――	7,600 kwh
10. 電力所要量合計	22,191 kwh	54,270 kwh
11. 発電量	31,590 kwh	39,420 kwh
12. 買電必要量	9,399 kwh	14,850 kwh

d．発電量と総合熱効率について

発電用のＣＯリッチガスは、第３．１－１表にある様に、次の通りである。

	ＣＯリッチガス全量		余剰ＣＯリッチガス量	
	kg-mol/h	mol%	kg-mol/h	mol%
CH_4	97.63	12.64	29.04	12.64
CO	484.45	62.71	144.12	62.71
H_2	162.12	20.99	48.23	20.99
N_2+A	28.30	3.66	8.42	3.66
計)	772.50	100.00	299.81	100.00

此のガスの発熱量は、3,737.5 kcal/Nm^3であり、全体の発熱量はQ＝64.672x10^6kcal/hとなる。　このガスを、効率 42.0%のコンバインド発電サイクルで発電させると（全て発電端での値）、発電量は 31.59x10^3kwh となる。　前ページに記載されている通り、プラントで消費する電力量は、22,191 kwhであり、9,399 kwh 分が余剰となる。

この余剰電力を電力会社に売るとすると、熱効率は 42.0%にしか評価されない。

9,399 kwh 相当のＣＯリッチガスの発熱量は、19.24x10^6kcal/h であり、このガスの熱量の有効利用の方法によって、ＡＲＣＨ－１の総合熱効率に、可なりの影響を与える。即ち、発電した場合の熱効率 42.0%の場合は、総合熱効率は 77.50% にしかならず、熱効率 100% で利用した場合には 78.19% に迄アップする。

そこで、ＣＯリッチガスによる発電は自家消費分に止め、余りのＣＯリッチガスを効率 42% 以上に利用する方法を検討してみる。　そして、この場合、余りのＣＯリッチガス以外は一切手を触れず、このガスだけで処理する事を考える。

此の、余りのＣＯリッチガスの組成と量は、上記の通りである。

これを、メタネーシヨン・プロセスにより、ＳＮＧの原料として利用する検討を行ってみると、ＡＲＣＨ－１総合熱効率は、78.0% 程度になる事が分かる。　実際には、これによって生成されるＳＮＧ見合い分の、石炭量を減らす事になるが、発電量 31.59x10^3kwh の発電プラントのキャパシテイーを、22,19x10^3kwhに減らし、その代わりに、メタネーシヨン・プラントと脱炭酸プラントを設備しなければならない。　総合熱効率は上がるが、設備費の面ではアップするので、経済的観点から見ると必ずしも得策とは言えない。

この項では、効率面だけを考えるならば、78.0% までアップする事も可能であるが、同時に経済性の面も考え合わせて行く必要がある事を指摘するに止める。

（3）最適構成時の経済評価

以下に、運転費，設備費，経済性の検討，の順に記述する。

a．運転費

イ．運転資金

平成2年度と同様、運転資金として、下記の金利分を「原料・予備品」として計上する。

i．原料石炭在庫 30 日分

ii．予備品在庫

ロ．変動費

原料，副原料，触媒，薬品，ユーテイリテイー，副産物の単価は、平成2年度同様両プロセスに共通で、以下の様に設定した。

i．原料，副原料，触媒，薬品，ユーテイリテイー

原料石炭　7,140円／t

電力　18円／kw　但し、売電の場合は，9 円／kwとする。

工業用水　80円／t

プロパン　50円／kg

触媒，薬品，メタノールは、昨年同様年間費用として、6 億円計上する。

ii．人件費

所要人員数は、昨年同様、310 名，費用 7.00×10^6/人・年　とする。

iii．副産品

ベンゼン　90円／kg

ナフサ類　25円／kg（C重油並と見なす）

硫黄　25円／kg

アンモニア　120円／kg（安水として回収するが，液安評価する）

ロ．設備費

平成2年度報告書の値との対比で書くと（ 0.6乗則を適用）、第3．1－4表　の如くなる。　尚、1990年 10 月現在の設備費と同一の単価を使用して求めたものである。

第3．1－4表　設備費

種別	項目	今回 設備費	今回 比率 %	平成2年度報告書 設備費	平成2年度報告書 比率 %	備考
1	100 石炭関係	12,481	11.61	12,315	11.38	
2	200 ガス発生（1）	10,500		10,500		
	（2）	25,613		25,000		
	小　計	36,113	33.60	35,500	32.81	
3	300 ガス精製					
	その他	24,734		26,552		
	小　計	24,734	23.01	26,552	24.54	
4	400 空気分離関係	13,319	12.39	13,000	12.02	
5	500 ユーテイリテイ	20,828	19.38	20,828	19.25	
6	600 オフサイト					
	合　計	107,475	99.99	108,195	100.00	
	予備費（10％）	10,748		10,820		
	総設備費	118,223		119,015		

ハ．経済性の検討

a．固定費について

以下の通り考えた。

i．1990年 10 月現在の設備費と同一の単価を使用した値を試算し、これに予備費 10%を加えたものを設備費とした。

ii．プラント・ライフを考慮し、設備費の償却期間は 15 年残存簿価 10 % とし、定額法で償却するものとした。　また、償却期間中、毎年設備費負担を均等にする事を考え、最初の設備費の 55 % 相当額を対象に、保険料，固定資産税等の費用を計算した。

iii．原料石炭の在庫 1 ケ月分と見て、予備品在庫費用共々、金利分を費用として計上する。

iv．人件費については、7.00×10^6/ 人・年　と見込み、必要人員数を 310名とした。

v．一般管理費として、人件費の 10 % を計上した。

vi．金利は、年率 8.0 %と見込む。

vii．借入金の比率は 100 %と見込む。

viii．土地については費用を一切計上しない事とした。

ix．上記を勘案すると、毎年の原価償却費（R）は、当初の設備費（P）の 11.315 %となる。　即ち，R＝0.11315 P

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

ここに，R：各年度末原価償却費

P：設備取得費

L：残存簿價

i：金利

n：償却年数

b．経済収支計算

今回の経済収支計算を、第3．1－5表に纏める。

第3．1－5表　今回の経済収支計算結果

	項　目	単　価	使用量 毎時	使用量 年間	年間経費（百万円）
変動費	1 原料石炭（DRY）	7,140 円/t	243.3816t	1.9276 x10⁶t	13,763
	2 ユーテイリテイー				
	1）工業用水	80 円/t	1,332 t	10.548x10⁶ t	844
	3 触媒・ケミカルズ				600
	4 プロパン	50 円/kg	24,359 kg	192.92x10⁶kg	9,646
	変動費計				24,853
固定費	1 人件費	7.00x10⁶/ 人		310名	2,170
	2 資本費				
	1）減価償却費	0.11315xP			
	2）金利				
	3）修繕費	0.03 x P			
	4）保険料	0.003x0.55xP			
	5）固定資産税	0.014x0.55xP			
	6）諸雑費	0.02 x P			
	資本費計	0.1725 xP			20,393
	3 原料・予備品費				248
	4 一般管理費				217
	固定費計				23,028
	年間経費合計				47,881

	項　目	単　価	生産量 毎時	生産量 年間	年間売上（百万円）
製品	1 SNG		125,000Nm³	990.0 x 10⁶	
	2 ベンゼン	90円/kg	10,146 kg	80.36x 10⁶	7,232 x 10⁶
	3 ナフサ類	25円/kg	6,230 kg	49.34x 10⁶	1,234 x 10⁶
	4 硫黄	25円/kg	526 kg	4.17x 10⁶	104 x 10⁶
	5 アンモニア	120円/kg	1,732 kg	13.72x 10⁶	1,646 x 10⁶
	6 電力	9円/kw	9,399 kw	74.4 x 10⁶	670 x 10⁶
	SNG 以外の収益				10,886 x10⁶
	SNG 製造原価　：　３７．３７　円／Nm³				

備考：

1）ＳＮＧの製造原価試算は，次の通り計算した．
ＳＮＧ製造原価＝（年間経費－ＳＮＧ以外の収益）／年間ＳＮＧ生産量

2）スラグの処理について．
スラグの処理については，計上する必要が有るが，立地条件により大きく変わるので，具体的な見通しを立てにくく，此処では省略した．　尚，スラグ発生量は下記の通りとなる．

$$34.01\ t/h = 816.24\ t/d = 269.4 \times 10^3\ t/y$$

3）設備費は 118,223百万円とする．

c．設備費とＳＮＧ製造原価の関係.

項　目 （金額；百万円）		設　備　費（億円）					
		900	1,000	1,100	1,200	1,300	1,400
費用	1.変動費	24,853	24,853	24,853	24,853	24,853	24,853
	2.固定費	18,160	19,885	21,610	23,335	25,060	26,785
	費用計	43,013	44,738	46,463	48,188	49,913	51,638
SNG以外収益	1.副産収益	10,886	10,886	10,886	10,886	10,886	10,886
SNG　費用		32,127	33,852	35,577	37,302	39,027	40,752
SNG製造原価（円／Ｎｍ³）		32.45	34.19	35.94	37.68	39.42	41.16

備考；１）ＳＮＧ製造原価（円／Ｎｍ³）は、下記要領で算出した。

（費用計－副産品収益）／Ｇ＝ＳＮＧ製造原価

但し、Ｇは 990 x 10^6 Nm^3/Y

上記結果から、設備費とSNG 製造原価との関係は、次式で表される。

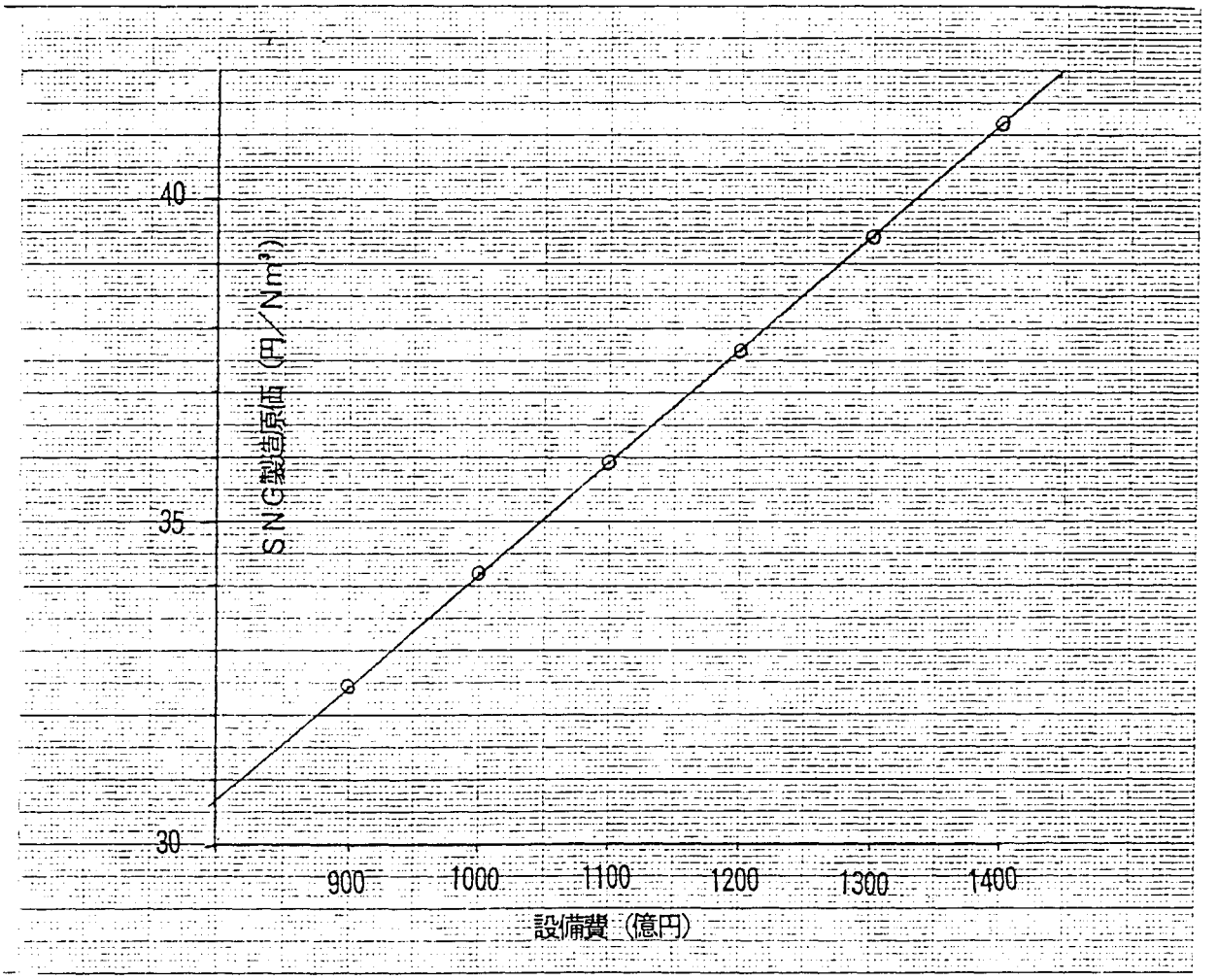
$$A = 0.01743 \cdot P \times 16.76$$

但し、１）Ａ；SNG 製造原価（円／Ｎｍ³），Ｐ；総設備費（億円）

２）稼働日数 330日／年

上記の結果をグラフで表すと、第３．１－２図の如くなる。

第３．１－２図　設備費とＳＮＧ製造原価の関係

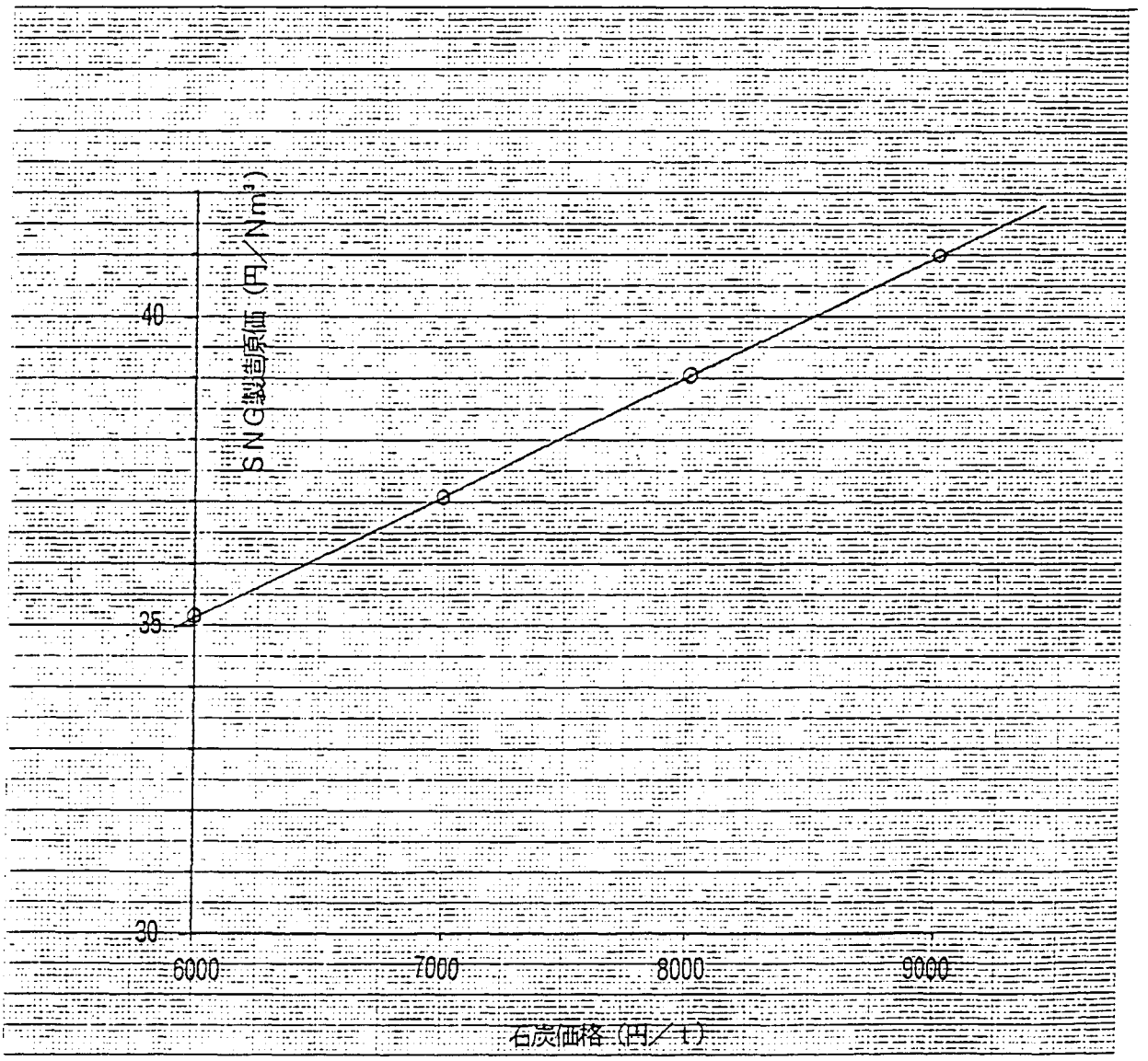


（４）感度分析

石炭，ベンゼン，プロパンの単価変動の影響に就いて検討した結果を、次ページ以下に示す。　これらの感度分析を行うに当たっては、該当する物質以外の単価は、全て前記経済計算に使用した値とした。

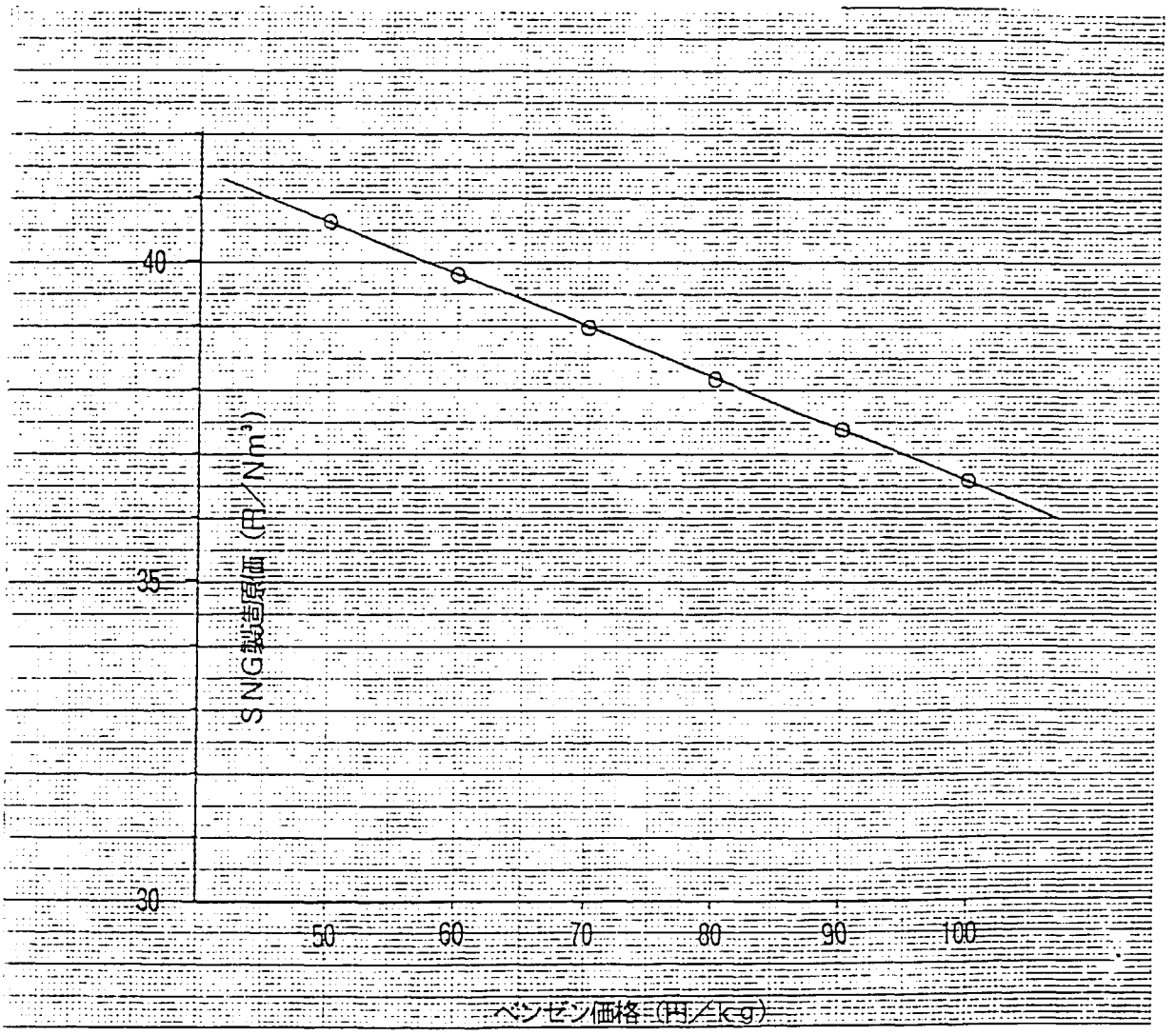
a．原料石炭単価の影響

原料石炭単価；円／t	6,000	7,000	8,000	9,000
SNG製造原価；円／Nm³	35.15	37.10	39.04	40.99



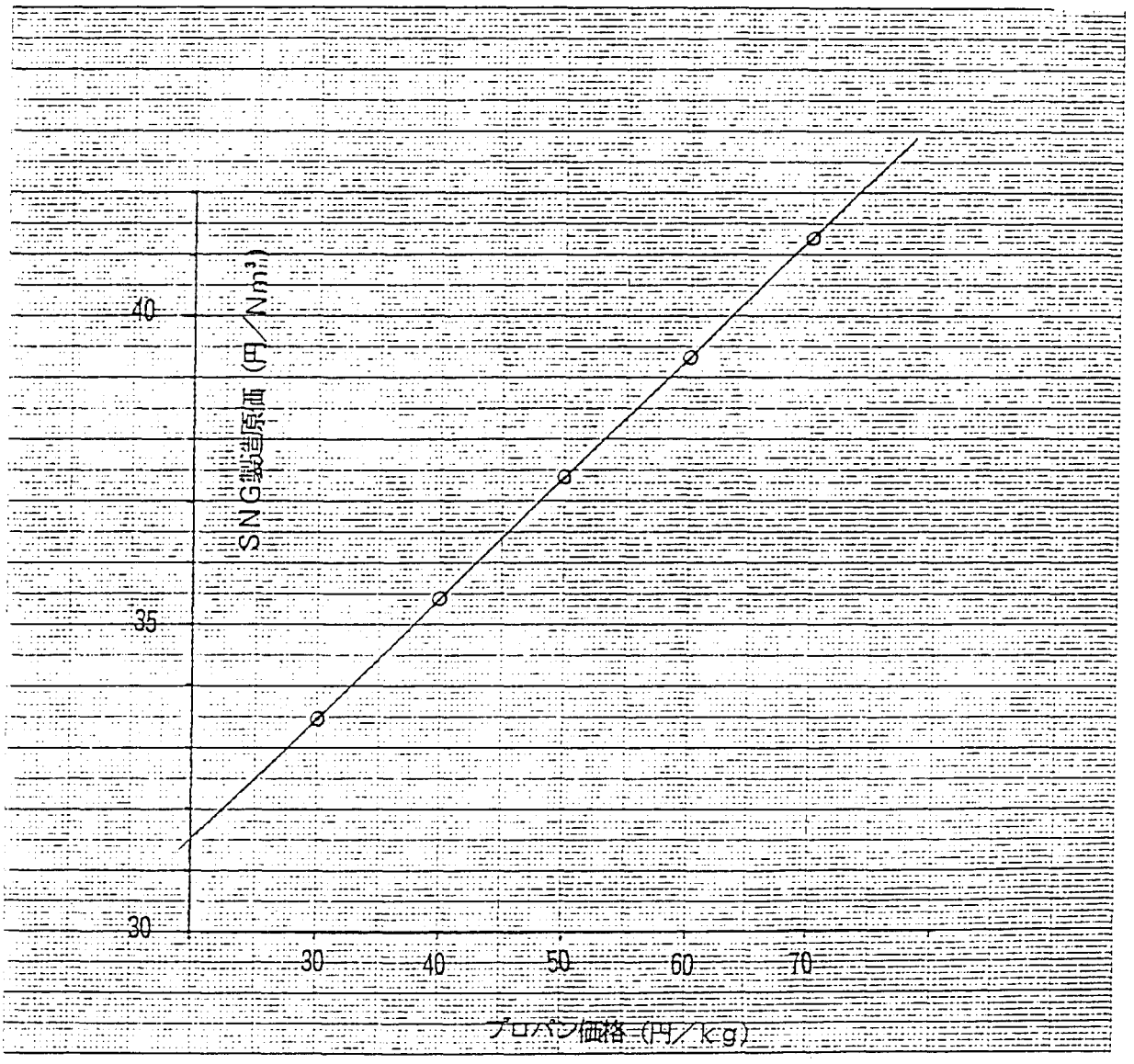
b．ベンゼン価格の影響

ベンゼン価格；円／kg	50	60	70	80	90	100
ＳＮＧ製造原価；円／Ｎｍ³	40.62	39.80	38.99	38.18	37.37	36.56



c．プロパン価格の影響

プロパン価格；円／ｋｇ	30	40	50	60	70
ＳＮＧ製造原価；円／Ｎｍ³	33.47	35.42	37.37	39.32	41.27



d．感度分析の纏め

イ．原料石炭とＳＮＧ製造原価の関係

次式で表される。

$$A = 1.9466 \times 10^{-3} \cdot C + 23.47$$

但し、Ａ；ＳＮＧ製造原価（円／Nm^3），Ｃ；石炭価格（円／ｔ）

ロ．ベンゼン価格の影響

次式で表される。

$$A = -0.0812 \cdot B + 44.68$$

但し、Ａ；ＳＮＧ製造原価（円／Nm^3），Ｂ；ベンゼン価格（円／ｋｇ）

ハ．プロパン価格の影響

次式で表される。

$$A = 0.195 \cdot D + 27.62$$

但し、Ａ；ＳＮＧ製造原価（円／Nm^3），Ｄ；プロパン価格（円／ｋｇ）

３．１．２　ＡＲＣＨ－２反応器の提言

平成２年度に実施した調査では、ＳＮＧ製造プロセスのケーススタディーとして石炭水添ガス化法の代表である［ＢＧ／ＯＧ＋ＨＹＣＯＬ］プロセスと石炭部燃ガス化法の代表である［ＢＧＬ＋ＨＩＣＯＭ］プロセスとの比較を行った。その結果、総合熱効率では７５．２％対７４．６％とほとんど差はなかったが、ＳＮＧ製造原価では４２．７円／Ｎ㎥対５１．３円／Ｎ㎥と大きな差となった。これは水添ガス化法と部燃ガス化法とでは付加価値の高いＢＴＸ等の収率に大きな差があることによるものである。

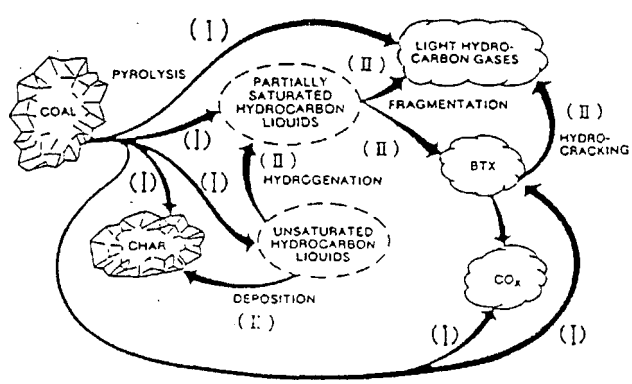
一方、本報告書「３．１．１」においてはパイロットプラントの基本型であるＡＲＣＨ－１について、更に効率向上のための最適化の検討を実施し、総合熱効率として約７８％という高い結果を得ることができた。これは水素ガスの圧縮動力を低減させ全体の効率向上を図るため操業条件を見直したものである。またこのケースでの経済性については、操業条件見直しの結果として液成分の生成量が増えたこともあり、ＳＮＧ製造原価で 37.4 円／Ｎ㎥と向上している。

このようにこれまでの調査検討では、ＢＴＸ等付加価値の高い有用成分の収率を上げることがプロセスの経済性向上に大きく寄与することが判っており、このため本３．１．２においては、ＳＮＧメインのＡＲＣＨ－１を発展改良してＢＴＸの収率を更に向上させることを狙いとしたＡＲＣＨ－２反応器の提言をするものである。

（１）石炭水添ガス化反応

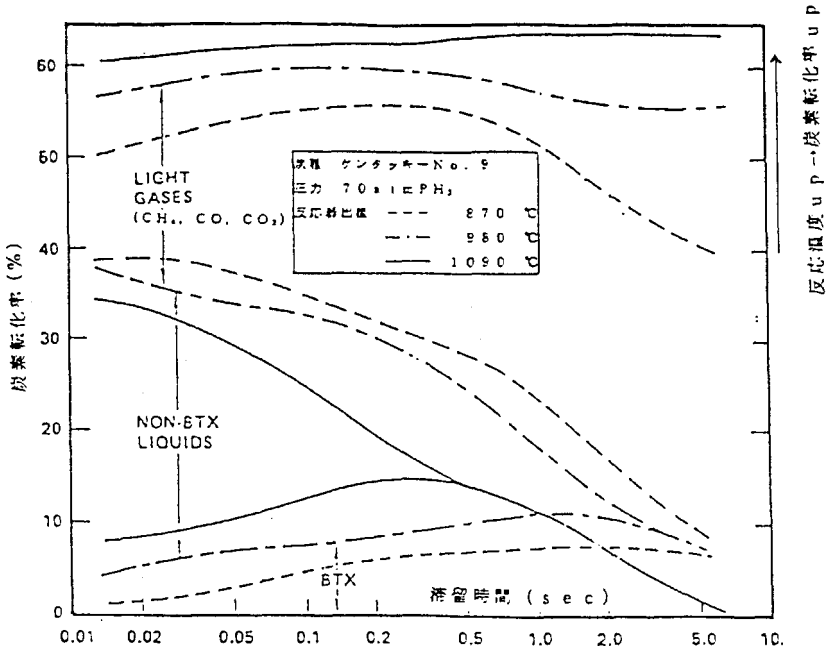
石炭水添ガス化反応は昨年度の報告書にもあるとおり第３．１－３図に示すような二段階の反応と考えられている。即ち、一次反応としては図の経路（Ｉ）であり、これは進行の程度がほぼ最終到達温度で決定される熱分解によるものである。

次いで経路（II）の二次反応（水素化反応）により最終的な生成物分布が決定されると考えられる。生成物分布に影響を与えるのは、反応温度、反応時間（滞留時間）、反応圧力といった反応条件である。圧力については高いほど炭素転化率が上昇することが昨年



第３．１－３図　石炭水添ガス化反応概念図

度も報告されているが、実反応器の圧力としてはプロセス全体の経済計算から７０Ｋｇ／ｃｍ^{2}程度が経済的であるとされている。一方、反応温度については、第３．１－４図にロックウェル社による石炭水添ガス化反応のシミュレーションモデルの計算結果例を示すとおり、反応温度を上げると炭素転化率が上昇する。また反応時間（滞留時間）としては短いほど重質油を含め液収率が上昇し、ある時間を越えると、液成分はＢＴＸおよびガスとなり、更に長時間では全てガスとなることが判る。



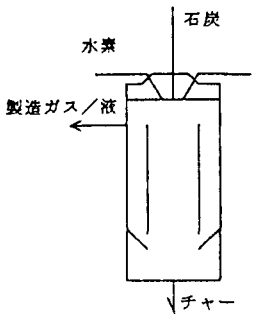
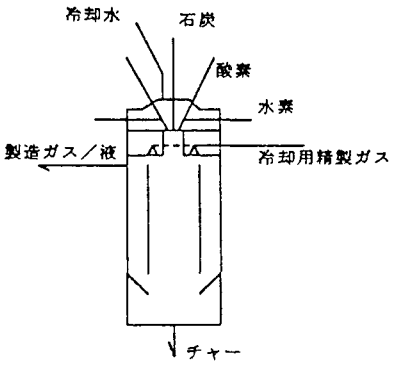
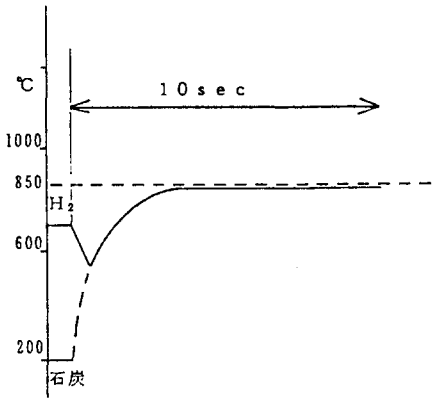
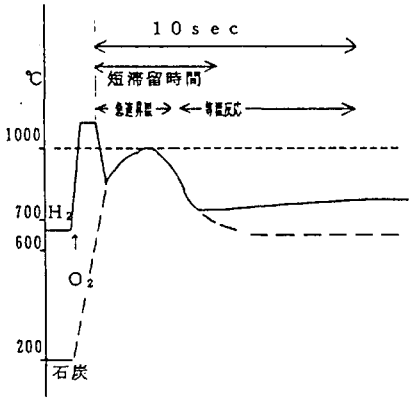
第３．１－４図　ロックウェル社の反応シミュレーションモデルによる計算結果

（２）ＡＲＣＨ－２反応器の提言

ＡＲＣＨ－２反応器は、上述の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、一次反応を極力高温で行い全体の炭素転化率を高めておき、二次反応はＢＴＸ収率が上がるような温度、滞留時間で制御しようとするものである。次ページに反応器の概念図を示すが、上部が高温水素（酸素部燃）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、新機軸の反応器と云える。しかし構造そのものはＡＲＣＨ－１反応器を基本としており、上部インジエクター部を酸素部燃インジエクター付き急速昇温ゾーンへ変更することが必要であるが、この部分を予めフランジ接合で設計しておけばそれ程大規模な改造とはならないものと考えられる。

一次反応ゾーンでは高温水素を得るために酸素による部分燃焼が必要となるが、このこ

第３．１－６表　石炭水添ガス化プラント反応器概念

	ＡＲＣＨ－１	ＡＲＣＨ－２
型状		
温度プロフィール		
特徴	・循環水素により石炭を急速昇温しガス化する。 （理論上酸素を必要としない。） ・高効率、経済的にＳＮＧを製造できるが、長滞留時間（10sec）のためＢＴＸ収率に限界がある。	・高温水素（酸素部燃）による急速昇温ゾーンで一次反応を行い、下部の等温反応ゾーンで主に重質油からＢＴＸへの二次反応を行わせる、２段の反応ゾーンを持つ新機軸のプロセス。 ・ＳＮＧに加え、液（特にＢＴＸ）収率の増大が図られ経済性向上が期待できる。
製品分布	・ＳＮＧ　３５ ～ ４５ ％ ・ＢＴＸ　０ ～ ７ ％ ・チャー／タール　４０ ～ ６０ ％ （炭素添加率ベース）	・ＳＮＧ　３０ ～ ４０ ％ ・ＢＴＸ収率目標　５ ～ １５ ％ ・チャー／タール　４０ ～ ６０ ％ （炭素添加率ベース）
課題	・反応温度制御の追従性	＊急速昇温ゾーン ・インジェクターの開発 ・等温反応ゾーンからの輻射伝熱による温度低下対策。 ＊等温反応ゾーン ・循環のdriving force 確保策。 ・最適反応のための温度制御。

とは総合熱効率の低下につながるため、最適酸素量の見極めが肝要である。

二次反応ゾーンは一次反応ゾーンで生成した重質液状物質を水素化分解によりＢＴＸ、ガスに変換するゾーンである。短滞留時間クェンチでは重質液状物質が大量に残るが、ドラフトチューブを利用した等温長時間クェンチには重質液状物質を効率良くＢＴＸ、ガスに変換し得る可能性がある。このゾーンでは冷却用精製ガスの量・温度に関連するが、循環のための driving force 確保、最適反応のための温度制御が課題となる。

ＡＲＣＨ－２反応器は、反応器全体としては未だ実験されておらず今後開発していくものであるため、現時点での実験データは全くない。しかし、このＡＲＣＨ－２を多少なりとも定量的に評価・判断するために、現在推定できる範囲で成績目標値を設定すると以下のとおりとなる。

・総合熱効率　　７５　％　以上

・ＢＴＸ収率（炭素転化率ベース）　　１５　％

まず、効率であるがＡＲＣＨ－２では高温一次反応を行わせるため酸素による水素部分燃焼が必要であり、先に述べたとおりこの分、ＡＲＣＨ－１より効率は低下せざるを得ない。しかし、高効率確保はＡＲＣＨプロセスの命題の一つであるため、他石炭ガス化プロセスＳＮＧ（例えば、部燃ガス化＋メタネーション）以上の達成は最低条件であり、７５％以上を目標値に設定した。このためには酸素量を極力少なくするために、熱回収により水素予熱温度を高める等のプロセス上の工夫が必要となる。

次にＢＴＸ収率であるが、これについてはワンスルー式反応器のデータが参考になる。本報告書「第 2.2-6 表」に東京ガスでの太平洋炭を用いた小規模ベンチプラントのテスト結果が示されているが、これによるとＢＴＸを含む液成分として 13.6 ~ 14.7 % の収率が得られている。この成績は３０ｋｇ／cm^2Gと低い圧力下で得られたものであり、このことから圧力７０ｋｇ／cm^2Gで二段反応器であるＡＲＣＨ－２において、ＢＴＸ収率１５％の達成は不可能ではないと考える。

なお、これ以外の成績の指標として炭素転化率があるが、ＡＲＣＨ－２では一次反応温度を高めるためかなり高い炭素転化率を期待できる。しかし、本報告書「３．１．１」でのプロセススタディに見られるとおり、総合熱効率を最大にする場合の操業条件と炭素転化率最大の条件とは異なることもあり、炭素転化率の成績目標値については特に設定はしない。

最後に経済性の指標となるＳＮＧ製造原価であるが、これは成績値ではなく、また原材

料・副産品単価により変化する値であるため、これについても目標値を設定することは不適当である。しかしＢＴＸ収率１５％が達成できればその時の経済性は大幅に向上し、ＳＮＧ製造原価は条件によってはＬＮＧベースのガス原価に相当近いものとなり得るはずである。

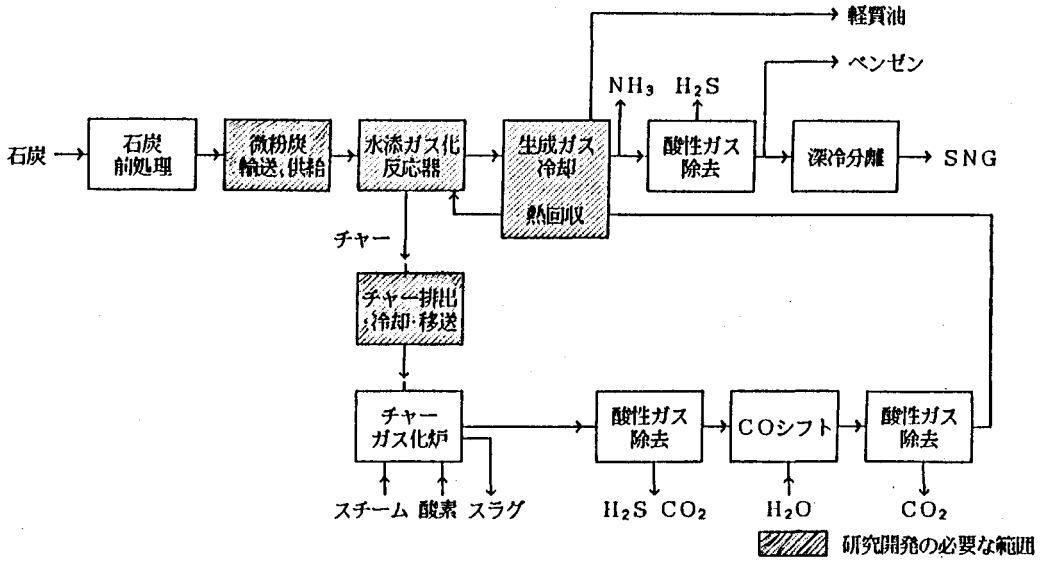
以上、ＡＲＣＨ－２反応器の提言を述べたが、先に述べたとおりＡＲＣＨ－２はこれから開発していかなければならない反応器であり、今後効率的に開発を進めてプロセス上の実証をしていく必要が有る。

３．２　開発項目の抽出と開発方法の検討

３、２、１、　ＡＲＣＨ－１の開発課題並びに進め方

ＡＲＣＨ－１は内部循環式反応器を基本とした総合熱効率の高いプロセスの開発を目指している。内部循環式反応器の開発はＰＤＵ段階まで進んでおり、今後の重要な開発課題はプロセスの総合熱効率の向上とプロセスを構成する要素の実用化技術の開発と確立であると考えられる。

第３．２－１図に、本報告書「３．１．１」において提言されたＡＲＣＨ－１の総合熱効率面から見た最適なプロセス構成の１例を示した。プロセスは各種要素技術を組み合わせた複合技術である。今後、プロセス開発を効率的に進め、かつ実用プラントの信頼性を高めるためには、できるだけ実証された技術を応用し、既存の技術では対処し得ないところには、積極的に新しい技術を開発するような選択が必要であると考えられる。ＡＲＣＨ－１を構成する主なる要素技術とその開発段階を第３．２－１表に示した。これ等の要素技術のうち、酸性ガス除去、深冷分離、ＣＯシフトが既存の確立された技術が応用できるか、あるいは信頼性のある設計が可能であると考えられる技術である。石炭前処理、チャーのガス化が既存あるいは開発中の石炭ガス化プロセス等の技術蓄積がＡＲＣＨ－１の実用化の時点で有効に活用できると考えられる技術である。従って、早急に開発が必要な技術は第３．２－１図の網掛けの範囲で示される水添ガス化反応器とその周辺技術であり、実用プラントのプロセス構成としての基本的知見の確立が主要な課題であると考えられる。第３．２－２図に網掛けの範囲のフローと開発課題箇所を示した。



第３．２－１　図　ＡＲＣＨ－１のプロセス構成

第３．２－１表　ＡＲＣＨ－１の主なる要素技術

工　程	要　素　技　術	技術の開発段階
石炭前処理	・微粉砕及び粒度調整、乾燥、貯蔵	B
原料供給・分配	・水素による微粉炭の濃厚相輸送	C
	・反応器の複数インジェクターへの均等分配	D
	・微粉炭予熱	D
水添ガス化	・インジェクターによる微粉炭噴射	C
	・反応器内、生成ガスリサイクル	C
	（微粉炭の急速昇温加熱・水添ガス化反応熱の制御）	
	・生成ガスからのチャー分離	C
チャーの排出・冷却・移送	・反応器から高温のチャーの排出	D
	・流動床式冷却器によるチャーの冷却	D
	・チャーのガス化炉への定量移送	D
生成ガス冷却・熱回収	・熱交換器材料、構造	A’
水素製造	・チャーのガス化	B
ガス精製	・酸性ガス除去（H_2S、CO_2）	A
ガス分離	・深冷分離（H_2、CO、CH_4）	A
計測・運転制御	・原料流量制御	C
	・反応器温度制御	C
	・自動化システム	D

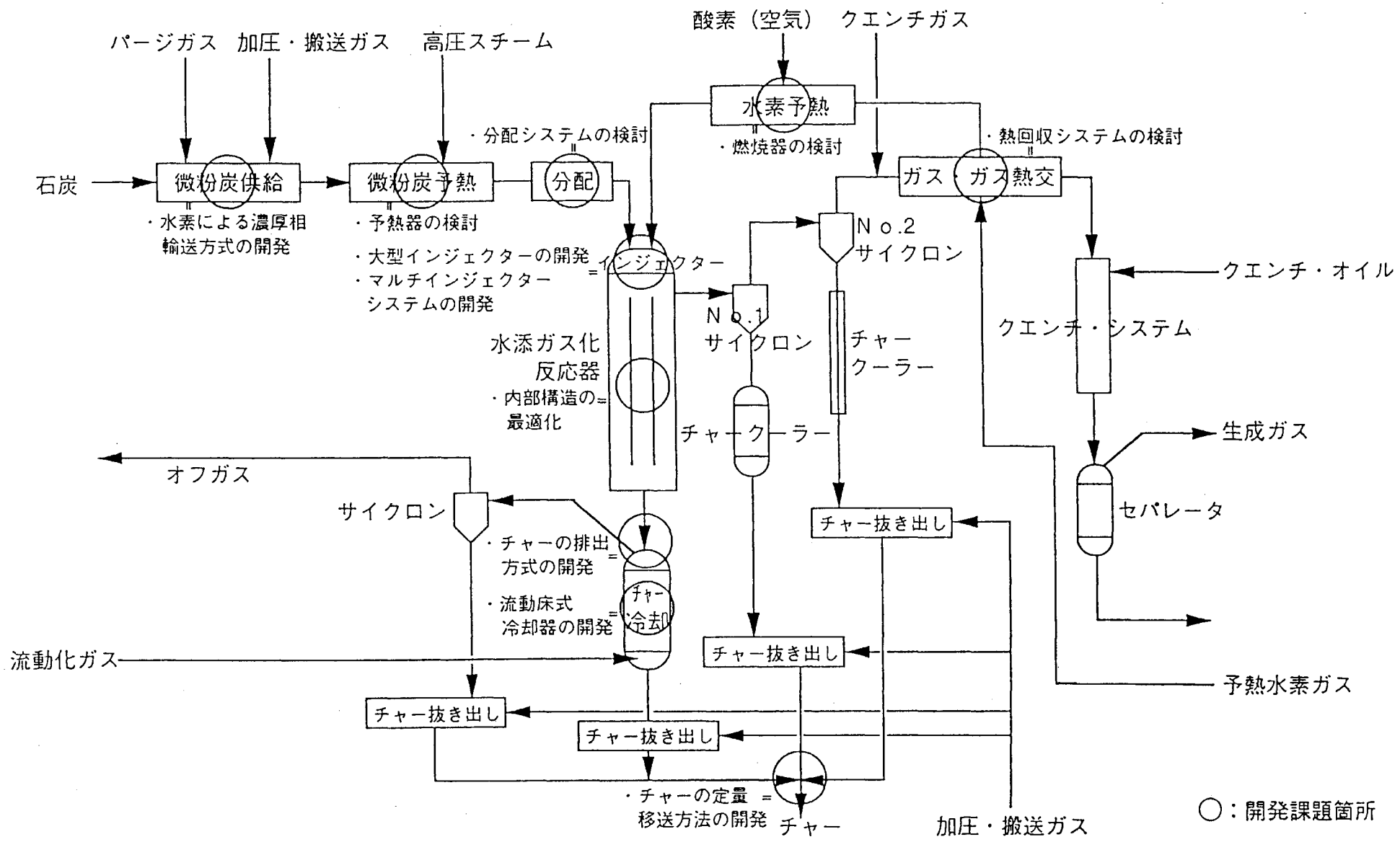
A　：既存の確立された技術が使用可能な状態か、又は信頼性のある設計が可能な技術

A’：設計が可能であるが、パイロットプラント段階で実証が必要な技術

B　：既存又は開発中の石炭ガス化プロセス等の技術蓄積の活用が期待される技術

C、D：実用化のために研究開発が必要な技術

｛　C：ＰＤＵ研究で基本検討がされている技術、D：新たに検討が必要な技術　｝



第3.2-2　図　水添ガス化反応器および周辺の主要な開発課題

以下プロセス実用化のためにパイロットプラント段階で研究開発が必要な技術の課題と進め方を本報告書「２．２」、「２．３」を引用して述べる。

（１）原料供給・分配システム

ａ）課題

微粉炭を水添ガス化反応器に安定して導入する方法として、微粉炭を少量の搬送ガスにより輸送する濃厚相輸送技術、及び複数のインジェクターへ均一に石炭粒子を分配する技術の確立が重要である。ＰＤＵ研究ではフィダーから微粉炭を少量の窒素を搬送ガスとして一本のインジェクターに安定に供給する基本技術が確立されているが、スケールアップ技術が不足している。実用プラントでは、搬送ガスとして水添用の水素を使い、効率的な輸送条件（搬送ガス比、差圧、配管径等）で搬送する技術が必要とされている。また複数のインジェクターに均一に分配・供給する方法については、本報告書「２．３．１」で示されているようにフィーダーから一つの輸送ラインで搬送し、途中で分流器によりインジェクターへ分配する方式、フィードタンクから直接インジェクターへ分配する方式があるが、設備の簡略化、制御の面から実用化プラントではいずれの方法をとるかはよく検討をしておく必要がある。

ｂ）開発手法

濃厚輸送や分配技術は現象の複雑さがあって現状では大型化に対して実用に耐える設計法はないため、パイロットプラントと同程度の規模のコールドモデルによりパイロットプラントの設計に必要な要素研究を行う。パイロットプラント運転で検討、実証、評価を行うことにより理論的解析と経験を蓄積し、スケールアップ技術の確立を図る。

（２）水添ガス化反応器

ａ）課題

内部循環式反応器の開発については、ＰＤＵ研究により５Ｔ／Ｄ規模の一本のインジェクターを備えた反応器の性能について実証されており、インジェクターと反応器内部構造に関する基本技術は確立されている。２０００Ｔ／Ｄ規模の実用反応器ではインジェクターの混合性能の制限から本報告書「３．２．３」のスケールアップの指針に示されているように反応器は１本のインジェクターの能力が３００ｔ／ｄ程度で７本程度の複数のインジェクターを備えたシステムになると予想され、実用反応器に対応する大型インジェクター及び、複数のインジェクターから構成されるシステム（マルチインジェクターシステム）の設計技術の開発が必要である。

また実用反応器の設計に必要なガス化性能等の予測、評価のため、炭種に対する適応性、物質収支、熱効率や最適運転条件等について確度の高いデータが必要である。

b）開発手法

本報告書「２．２．２」の内部循環式反応器のＰＤＵ反応器開発と同じ手法を用いて、パイロットプラントと同規模のコールドモデルによる要素研究を行い、ＰＤＵの実績と対比しながらスケールアップファクターを把握し、パイロットプラントで使用する大型インジェクター、反応器内部構造、マルチインジェクターシステムの開発を行う。パイロットプラント運転による熱間での物理的運転性能の実証により実用反応器へのスケールアップ技術の確立を図ると共に、パイロットプラント運転を通じて実用化技術の確立に必要な各種のデータを取得する。

（３）チャーの排出・冷却・定量移送システム

a）課題

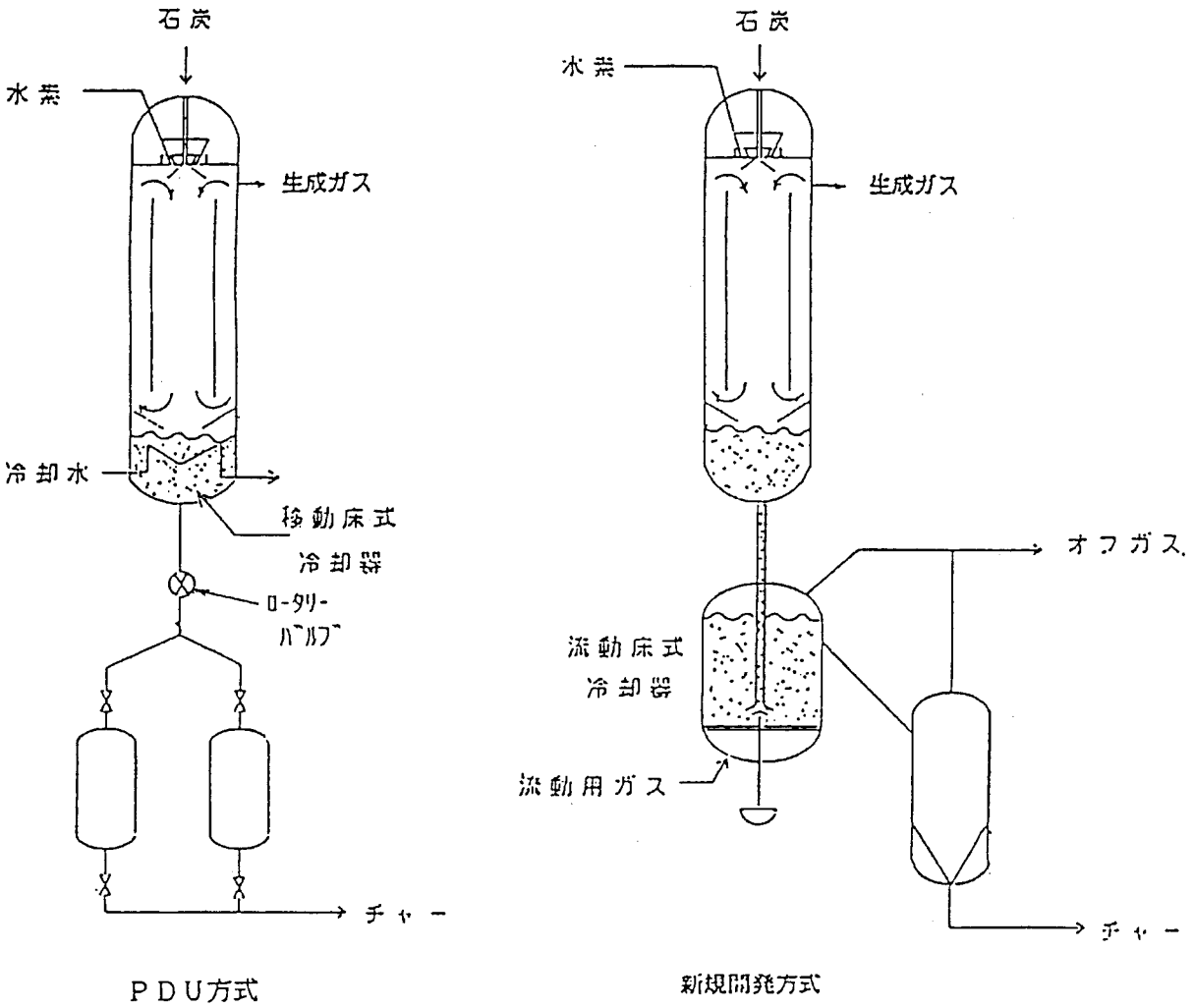
プロセスの熱効率を向上させるために反応器からのチャーをできるだけ高い温度でチャーガス化炉に供給することが要求されている。本報告書「３．１．１」のＡＲＣＨ－１熱効率上昇のための検討ではチャーは３５０℃程度のホットな状態でチャーガス化炉へ供給するようになっているが、更に熱効率を向上させるには、高温のチャーを供給・移送できる技術が望まれている。従って反応器の運転に外乱を与えないでチャーを高温のまま反応器から抜き出し、必要最低限に冷却し、高温でチャーガス化炉に定量移送する機器の開発とシステムの確立が必要である。

第３．２－３図にチャーの排出、冷却システムのＰＤＵ方式と新規開発方式の比較を示した。ＰＤＵ方式では移動床の冷却器を設けた反応器下部にチャーをため込み、バッチ的にロータリーバルブで反応器からロックホッパーに抜き出しているが、実用反応器で同様なシステムをとると、反応器や架構がかなり背の高いものとなり現実的でないと考えられる。反応器の外部に別途、効率の良い流動床式の冷却器を設置する方が得策と考えられる。また反応器から流動床式冷却器へのチャーの抜き出し方法は高温のためロータリーバルブの使用は不可能であり、特別な工夫が必要と考えられる。ＦＣＣ等で用いられているグラビテイによる抜き出し技術があるが、高圧で使用されている例がなく本プロセスに適した方法の開発が必要である。流動床式冷却器の設計については高圧、高温下でのチャーの流動特性及び伝熱特性についてのエンジニアリングデータが不足している。冷却器やサイクロンから抜きだしたチャーの定量移送については、チャーの性状が捕集される箇所（反応

器底部、Ｎｏ．１、ＮＯ．２サイクロン）でかなり異なると予想されるので、チャーの性状を把握し、最適なチャーの定量移送方式を開発する必要がある。

ｂ）開発方法

コールドモデルによる反応器と流動床式冷却器との連結、抜き出し方式の開発、チャーの流動特性の把握、ホットモデルによる流動床の伝熱特性等についての要素研究（詳細は「３．３」の参考資料１参照）を行い、パイロットプラントに使用する機器の開発を行う。パイロットプラント運転で実証、評価、改善をおこなうことにより、実用化技術の確立を図る。　また高温、高圧の状態でのロータリー弁の使用は、シール性の困難さから実用化されていないが、定量切り出しに優れているので開発検討することも必要であろう。



第３．２－３図　　チャーの排出・冷却システム

（４）生成ガス冷却・熱回収システム

ａ）課題

プロセスの熱効率を上げるために、高温の反応器出口ガスの顕熱を回収し、反応器に導入する水素の予熱に使用する事が重要である。実用化規模の熱交換器の設計は一般に既存の技術が使用できるが、～９００℃の高温で、～７０気圧のほぼ純粋な水素ガスの金属材料に対する影響、生成ガスに同伴するチャーや、タール等の付着による汚れ、更に摩耗、腐食の状況等を把握して、熱交換器の材料、構造の最適化を図ると共に、熱交換器まわりのフロー等についても最適なシステムを開発する必要がある。

ｂ）開発方法

熱交換器の材料や汚れ、摩耗につてのに対しては石炭や重質油プロセスの例について事前に充分に調査、検討を行い、パイロットプラントの設計に反映させる。パイロットプラント運転で熱交換器を含めたシステムについて評価、改善を行った後、長期連続運転により機器に使用した材料の耐久性等の実証をおこなう必要があろう。

（５）計測、運転制御システム

ａ）課題

水添ガス化反応器の負荷変動時や反応条件変更時を含めた運転には、原料流量制御システム及び反応器温度制御システムの確立が必要である。また反応器の安定運転のため原料供給とチャー排出システムのマッチングした自動制御システムを開発する必要がある。反応器温度は水添ガス化の生成熱によって影響を受けるので、生成ガス熱交換器による水素の予熱温度や原料予熱温度でうまく制御する方法を確立しておく必要があるが、微粉炭を予熱するための熱交換器は実用化規模では特別な設計が必要とされるため、実用プラントでは水素予熱温度単独により制御できれば好ましいと考えられる。

ｂ）開発方法

パイロットプラントで原料予熱法と水素ガス予熱法の比較を行い、実用プラントで特別な原料予熱器の必要性について確認する必要がある。またスタートアップ時や反応器温度の微妙な制御のために反応器の入り口に設ける水素燃焼器の検討も必要であろう。このためにパイロットプラントで使用するこれ等の機器の検討をおこなっておく必要があろう。

反応器の安定運転のための自動制御システムはパイロットプラント運転を通じて実証、評価されるものであり、パイロットプラントの設計時に充分に他の石炭ガス化プロセスの調査、検討を行い最適化しておくことが必要である。

（６）チャーのガス化

ａ）開発課題

水素製造のためのチャーのガス化性能はプロセスの熱効率や建設費に大きな比重をしめている。技術的には既存あるいは開発中の石炭ガス化技術の活用が可能と考えられるが、チャーのかさ密度は一般的に小さくガス化の反応性に影響すると考えられるので、チャーのガス化特性にあったプロセスの選択や熱効率の改善の可能性を評価しておく必要がある。

ｂ）開発方法

既存あるいは開発中のプロセスの小型試験装置によるガス化反応性の調査を行う。（詳細「３．３」参考資料２参照）

（７）総括

以上、概観すればＡＲＣＨ－１の主な開発課題は下記に示すようなものであり、実用化技術の確立はパイロットプラント段階の研究開発に委ねられていると考えられる。

１）水添ガス化反応器の基本要素のスケールアップ技術の開発と実証

２）原料供給、チャー排出・冷却・移送、生成ガス冷却・熱回収等の水添ガス化反応器周辺の熱効率向上ために最適なシステムとそれを構成する機器の開発と材料の実証

３）原料流量、反応器温度、チャーの抜き出し等の自動制御システムの開発と実証

第３．２－２表にＰＤＵ段階からパイロットプラント段階へのスケールアップ、機器開発のために必要な要素研究の開発課題を、第３．２－３表にパイロットプラント段階での開発課題をまとめた。

第３．２－２表　　要素研究が必要な開発課題

課　題	開発目標	開発方法
微粉炭の輸送・供給システム	①　濃厚相輸送条件の把握 ②　分配・供給方式の検討 ③　流量制御システムの開発	コールドモデルによる研究 （民間で実施）
インジェクターシステム	①　大型インジェクター構造の開発 ②　ドラフトチューブ等の反応器内部構造の最適化 ③　マルチインジェクターシステムの開発	コールドモデルによる研究 （民間で実施）
チャーの排出・冷却・移送システム	①　チャー連続抜き出し方式の開発 ②　チャーの流動特性の把握 ③　流動床伝熱特性の評価	コールドモデルによる研究 ホットモデルによる研究
生成ガス冷却・熱回収システム	①　材料の選定 ②　熱交換器の構造の検討	調査、検討 調査、検討
水素燃焼器 原料予熱器	①　構造の検討 ②　構造の検討	調査、検討 調査、検討
チャーのガス化	①　ガス化特性の評価	既存プロセス、小型試験装置による評価

第３．２－３表　パイロットプラント段階での開発課題

課　　題	開　発　目　標
原料供給・分配システム	①　濃厚相輸送の実証、分配方式の検討
水添ガス化反応器	①　大型インジェクターの性能評価とスケールアップ手法の確立 ②　反応器内部構造の性能評価とスケールアップ手法の確立 ③　マルチインジェクターシステムの確立と反応器容量拡大の見通しの把握 ④　反応器ガス化性能の把握 ⑤　連続運転による反応器の信頼性の確認
チャーの排出・冷却・移送システム	①　チャーの連続抜き出し法の確立 ②　流動床冷却器の性能評価、最適化 ③　チャーの定量移送法の確立
生成ガス冷却・熱回収システム	①　材料の評価、改良　、実証 ②　構造部位の評価及び改良による最適化
計測・運転制御システム	①　原料流量制御システムの確立 ②　反応器温度制御システムの確立 ③　反応器と周辺機器の自動制御システムの確立

３．２．２　ＡＲＣＨ－２の開発課題並びに進め方

３．１．２において新たな概念の反応器によるＡＲＣＨ－２を提言した。ＡＲＣＨ－２は、新たな概念の反応器によるものではあるが、反応器の構造はＡＲＣＨ－１の反応器を基本として上部インジェクター部を酸素部燃インジェクター付急速昇温ゾーンに変更すれば良く、この部分を予めフランジ接合で設計しておけばそれ程大幅な改造とはならない。また石炭供給部やチャー抜出し部等の反応器周辺部分についてはＡＲＣＨ－１とほぼ共通であるため、その開発成果がそのまま適用できる。このためＡＲＣＨ－２については、これから開発しなければならない固有の課題を相当絞り込むことができる。更にスケジュール的にも、限られた期間までに大型パイロットプラントによる運転研究を実施しなければならず、より効率的に開発を進めることが肝要である。このような考え方に基づき、ＡＲＣＨ－２の開発課題並びに進め方をまとめると以下のとおりとなる。

（１）ＡＲＣＨ－２の開発課題

前述のとおりここではＡＲＣＨ－２固有の開発課題、即ち反応器上の課題を述べる。ＡＲＣＨ－２反応器で不足しているのは大きく言って①反応データの実証、②エンジニアリングデータ、、③スケールアップ用データの３点であり、具体的に要素研究が必要な内容を開発方法も含めて列記すると第３．２－４表のようになる。

第３．２－４表　　要素研究が必要な課題

課　題	開　発　目　標	開　発　方　法
反応器	①反応の実証	・ＰＤＵによる研究
	②ガスの流れおよび温度制御の実証	・　〃
	③エンジニアリングデータの取得 （物質収支・熱収支・効率推算）	・　〃
	④５０ｔ／ｄ規模反応器の ガスの流れの確認	・コールドモデルによる研究
インジェクター	①酸素・水素インジェクターの熱解析シミュレーション	
	②中規模インジェクターの実証	・ＰＤＵによる研究
	③５０ｔ／ｄ規模インジェクター開発	
	・耐久性確認	・ノズル一本による実験
	・混合状態確認	・コールドモデルによる研究

反応器①反応の実証および②ガスの流れおよび温度制御の実証の内容詳細については表の中では説明し切れないため以下に補足する。実証の中身としては、イ．最適酸素量の決定、ロ．急速昇温部のディメンジョン決定、ハ．下部滞留時間と温度変化による反応生成物の差の把握がポイントであり、これらについてはＰＤＵを用いて確認する。

イ．最適酸素量の決定

まず比較的少ない酸素量からテストを始め、酸素量と急速昇温反応温度および反応生成物との関係を把握する。また、下部循環部でのクェンチガス量・温度と反応生成物・反応器出口温度の関係も把握する。

ロ．急速昇温部のディメンジョン決定

急速昇温部のディメンジョンは高温状態の滞留時間を決めるものであり、ＰＤＵでいくつかのディメンジョンの急速昇温部のテストを実施し最適なものを決定する。

ハ．下部滞留時間と温度変化による反応生成物の差の把握

下部循環部でのクェンチガス量・温度を変化させるだけでなく、必要によりドラフトチューブの長さも調節してＢＴＸ収率アップの条件を把握する。

なお、パイロットプラント段階での開発課題については最適ガス化条件の把握、連続運転による信頼性の確認等ＡＲＣＨ－１で列記した内容とほぼ同様である。

（２）ＡＲＣＨ－２開発の進め方

ＡＲＣＨ－２の開発については、先に述べたとおり限られた期間までに大型パイロットプラントによる運転研究を実施するレベルまで開発を進める必要があり、より効率的に開発を進めることが肝要である。効率的開発の方法として、例えば、国家プロジェクトとしての大型パイロットプラント運転研究の場合、ある規模のＰＤＵ（Process Developing Unit）を設置して支援研究を実施することが通例であるので、このＰＤＵをＡＲＣＨ－２の実証やエンジニアリングデータ取得のための中規模ベンチプラントとして利用する必要がある。またスケジュール的には、開発の進んでいるＡＲＣＨ－１の運転研究期間中に、ＡＲＣＨ－２の個別課題を解決しておき、最後に大型パイロットプラントでＡＲＣＨ－２を実証するといった時間的節約の工夫も必要である。３．３節「実用化スケジュールの検討」において開発スケジュールが示されているが、上記のようなスケジュールとなっている。

なお、ＰＤＵによる支援研究は単にＡＲＣＨ－２固有の課題解決だけでなく、ＡＲＣＨ

－１、ＡＲＣＨ－２の共通の研究としてプロセス運転研究期間中の

①パイロットプラントでのテスト条件決定のための予備試験実施

②炭種拡大のための予備試験実施

③パイロットプラント改造必要時の事前実証試験実施

④パイロットプラント運転方式、操業条件の検討

といった役割がある。ＰＤＵの規模としては、熱バランスを含むエンジニアリングデータ取得のための最小規模として１ｔ／ｄ程度は必要と考える。この規模はＨＹＣＯＬ、石炭液化プロジェクトといった他の石炭関係の国家プロジェクトのＰＤＵ規模と一致している。

３．２．３　スケールアップの指針

商業化規模と目される３００万Ｎｍ^3／ＤのＳＮＧプラントを想定した場合、石炭の処理量は６０００Ｔ／Ｄ規模になる。どのような単基容量を持つプラントを何系列持つかは主に水添ガス化反応器の開発状況による。現在、実用化されている各種の石炭ガス化炉の規模は１０００Ｔ／Ｄ止まりであるが、今後の大型炉計画では２０００～５０００Ｔ／Ｄ規模になると推定される。ＡＲＣＨプロセスの実用反応器がどの程度の規模が妥当であるかは簡単に決められないが、ＳＮＧの需要規模や、最近の石炭ガス化技術の進展状況から、当面、２０００～３０００Ｔ／Ｄ規模を目標としてスケールアップ技術の開発を進めていくのが妥当であると考えられる。

以下「石炭ガス化炉のスケールアップ」に関する平戸[1),2)]および宮谷[3)]の総説を引用し、スケールアップの考え方について述べる。

１）スケールアップ比

ガス化炉のスケールアップは下記に示すように各社独自の技術を基礎に特長のある方法で進められている。

（ａ）Lurgi社、Texaco社等にみられる実績を重ねた経験に基ずくスケールアップ法

（ｂ）Westinghouse社にみられる基礎研究、要素研究を組み合わせたシミュレーションモデルに基ずくスケールアップ法

（ａ）は実用化されているガス化炉の伝統的な開発手法でスケールアップ比はきわめて慎重に行われ、１０～５０Ｔ／Ｄ、１００～４００Ｔ／Ｄ、５００～１０００Ｔ／Ｄの段階を経て進められている。Shell社は現在、２０００Ｔ／Ｄの実用化規模のガス化炉を建設中であるが、１５０Ｔ／Ｄ、２５０～４５０Ｔ／Ｄの実証炉段階を経ている。安全性が高いが大型化に時間のかかるのが問題である。（ｂ）の手法は未だ実証されていないが、Westinghouse社の例では倍率４０と極めて高いスケールアップ比で３０Ｔ／Ｄのパイロットプラント炉から直接１２００Ｔ／Ｄの実用炉が計画された。精度の良いシミュレーションを用いたとしても信頼性に問題が残る。

ＡＲＣＨ反応器をスケールアップする場合、開発の効率と信頼性の両面から配慮する必要がある。第３．２－５表にＰＤＵ反応器から実用反応器に至るスケールアップ比の１例を示す。ＰＤＵ反応器からパイロットプラント反応器のスケールアップは要素研究で補完することにより比較的大きなスケールアップ比を取ることが可能と考えられる。パイロットプラント反応器から実証反応器へのスケールアップ比は（ａ）の経験法と（ｂ）のシミ

ュレーション法を両立させ１０～２０倍程度に大きく、実証反応器から実用反応器へは最も成功の確度の高い２～４倍程度のスケールアップ比で開発を進めていくことが、効率的で、かつ信頼性の上で望ましいと考えられる。

実用反応器の容量を２０００Ｔ／Ｄ、内径を４ｍ（　下記　２）より　）とし、ガス化能力（石炭供給量／反応器断面積）が一定と言う単純な条件で実用反応器をスケールダウンした場合の各開発段階での概略の反応器径を１例を第３．２－５表に示した。

第３．２－５表　　反応器のスケールアップ比

	スケールアップ比	反応器規模（Ｔ／Ｄ）	反応器径（ｍｍ）
ＰＤＵ反応器		１～５	９０～２００
	１０～５０	↓	
パイロットプラント反応器		～　５０	～６３０
（ＰＰ）	１０～２０	↓	
実証反応器		５００～１０００	２０００～２８００
（ＤＰ）	２～４	↓	
実用反応器		２０００	４０００
（ＣＭ）			

２）反応器を大型化する場合の制限因子

反応器を大型化する場合の制限因子としては次の３項目があげられる。

（ａ）反応器の製作及び輸送限界

（ｂ）正常な反応器内流動、反応状態の維持

（ｃ）反応器の運転制御性

これ等の項目中、（ａ）については現在の技術水準から言えば機器製作上の限界より輸送上の制約の方がむしろ大きな要素となっており、ＡＲＣＨ反応器のような筒形容器の場合、外径５ｍ（内径４ｍ）程度が大型化の限界と言われている。この内径より推定される石炭処理量を部分酸化法による石炭ガス化炉を例にとると、固定床で１２００～２０００Ｔ／Ｄ流動床で３０００～４０００Ｔ／Ｄ、噴流床で４０００～５０００Ｔ／Ｄ程度になる。

これが当面、大型化可能なガス化炉の限界容量とされている。ＡＲＣＨ反応器の場合、ガス滞留時間を数秒～数十秒とすれば２０００～３０００Ｔ／Ｄ規模は充分に成り立つ容量である。（ｂ）に関しては大型化した反応器においても、もとの反応器の場合と同じようにガス化剤と石炭との接触が均一におこなわれ、ガス化性能が維持、継続されるかということである。この意味からＡＲＣＨ反応器の場合、インジェクターの性能が大型化、マルチ化した場合にいかに維持、継続されるかが、実用反応器の容量を内径、高さを考慮してを決める際の最も重要なファクターになる。

一本のインジェクターのＰＤＵ反応器から実用反応器のマルチインジェクターシステムへのスケールアップの考え方の１例を第３．２－６表に示した。

第３．２－６表　インジェクターのスケールアップの考え方の１例

（Ｔ／Ｄ）

	ＰＤＵ	ＰＰ	ＤＰ	ＣＭ
ＡＲＣＨ反応器	５	５０	５００	２０００
		10倍	10倍	4倍
インジェクター：Ｓ[1]	５	５０		
	10倍		6倍	
	4倍			
：Ｍ[2]		１７×３	１００×５	３００×７
		6倍	3倍	

Ｓ[1]　シングルインジェクター　　Ｍ[2]：マルチインジェクター

（ａ），（ｂ）は反応器本体のスケールアップに関するものであるが、一般に反応器を大型化して行く上で限界に直面するのは原料供給、未燃チャーの排出・計測・制御等の反応器の安定運転性、制御性に関連する周辺技術である。実用化規模になった場合、何が問題となるのか、操作性に問題がおこらないか、周辺技術については実用化プラントと類似のシステムが取れる規模のパイロットプラント段階で技術の検討を充分にされておくべきと考えられる。

３）パイロットプラントの規模

パイロットプラント規模は所要資金が大きいので、実用化技術の基本となるＡＲＣＨ反応器と周辺技術を効率良く進めることができる最低必要限の規模が望ましい。

ＰＤＵと実証プラントの反応器とのスケールアップ比からは、前述「１）」で指摘したようにパイロットプラント規模は５０Ｔ／Ｄ程度が適当であると考えられる。一方、１本のインジェクターの大型化（ＰＤＵの１０倍率）と最少のマルチインジェクターシステム（３本）のテストを行うための反応器上部のデイメンジョンとして５０Ｔ／Ｄ程度が最小の反応器規模となる。またパイロットプラントのメンテナスや物質収支、熱収支等の精度の良い各種のデータを取得するために必要な規模と言った面からも充分に検討しておく必要がある。

４）実証プラント、セミコマーシャルプラント

水添ガス化プロセスは水添ガス化工程以外に水素製造、ガス精製、深冷分離工程等の数多くのプロセスから構成されている。これ等の各工程の合理的配置や連携する総合的な運転技術等はＡＲＣＨ反応器及び周辺の実用化技術の見極めがついた後に実証プラントで検討されるべきであると考えられる。商業プラントは数系列の反応器を持つプロセス構成となるが、事前に１系列の実用反応器を持つセミコマーシャルプラントによる実証が必要であるかは実証プラント段階の技術の信頼性により決められるべきであると考えられる。

文献

１）平戸端穂，　サンシャインジャーナル，７（１９８６）
２）　〃　燃協誌，６４，３６４（１９８４）
３）宮谷和夫　燃協誌　６３，９９０（１９８４）

３．３　実用化スケジュールの検討

本報告書「３．２．３」のスケールアップの指針に示されているように、ＡＲＣＨプロセスが商業化されるまでには、ＰＤＵ段階（１～ ５Ｔ／Ｄ）、パイロットプラント段階（～５０Ｔ／Ｄ）、実証プラント段階（５００～１０００Ｔ／Ｄ）の各開発段階を経て進めるのが妥当と考えられる。第３．３－１表に、本報告「３．２．１」、「３．２．２」に基づき、また他の石炭ガス化プロセスの開発経過等を参考として、各開発段階でのＡＲＣＨ－１、２共通の開発目標と課題をまとめ、パイロットプラント段階の位置ずけを明らかにした。実用化技術の確立のうえで不可欠な各種エンジニアリングデータの取得、機器・材料の開発と耐久性の実証、運転技術及び制御技術の確立、経済性に係わる確度の高いデータの把握等はすべてパイロットプラント段階の研究開発に委ねられている。

第３．３－１図にＡＲＣＨ－１、２のパイロット段階までの長期開発計画を示した。パイロットプラント段階における研究開発は多額の資金を必要とするため、限られた期間で開発目標を達成するためには現状での技術の開発状況を考慮したＡＲＣＨプロセスの効率的な研究の遂行が望まれる。

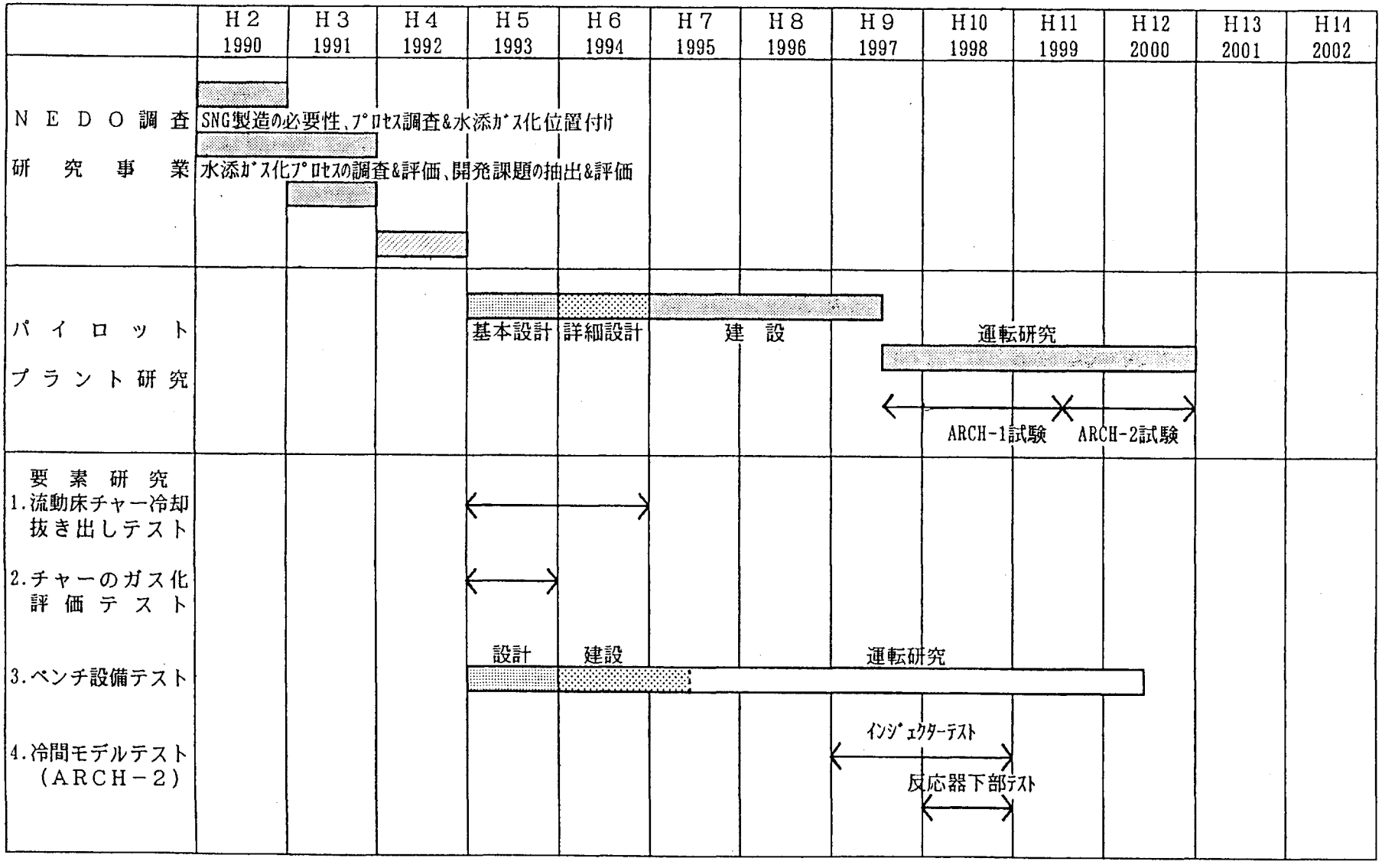
ＡＲＣＨ－１は、総合熱効率の高いＳＮＧプロセスの基本技術であり、よりよいプロセスへの展開の基礎となるために早期に実用化技術を確立しておくことが望まれる。内部循環式反応器の基本要素に関しては民間のＰＤＵ研究で基本技術が蓄積されており、更にスケールアップのための要素技術の研究が民間で進められているので、この成果を活用し、引き続きパイロットプラントの設計、運転研究と間をあけないで着実に進むのが得策であると考えられる。反応器周辺技術はプロセスの熱効率の向上に不可欠なＡＲＣＨ－１、２共通の核心の要素技術であり、かつパイロットプラントで反応器を安定に運転するための重要な技術でもあるので、パイロットプラントの当初の設計に反映できるように事前に要素研究（参考資料１）を実施し、更にパイロットプラントで評価、改善を加えプロセス構成としての基本的知見の確立を図るのがよいと考えられる。

ＡＲＣＨ－２の開発に関しては、ＡＲＣＨ－２反応器が、現在、基本概念の段階であり、今後、パイロットプラント段階にステージアップするまでには基礎技術データの取得、ＰＤＵ規模での反応器概念の実証、スケールアップのためのコールドモデルによる要素研究の段階を経る必要がある。限られた期間までにパイロットプラントによる運転研究を実施するレベルまで開発を進めるためには、本報告「３．２．２」で示されているように１Ｔ

第３．３－１表　ＡＲＣＨプロセスの各段階での開発目標

	ＰＤＵ段階	要緊研究	ＰＰ段階	ＤＰ段階
規模	１～５Ｔ／日		～５０Ｔ／日	５００～１０００Ｔ／日
主な装置構成	原料供給／反応器		反応器／反応器周辺機器 （原料供給、ﾁｬｰ冷却器、ｶﾞｽ/ｶﾞｽ熱交等）	フル構成 （反応器、ﾁｬｰｶﾞｽ化炉、生成ｶﾞｽ精製、分離等）
開発目標	新しい反応器の開発と概念の実証	ＰＰ設計用技術ﾃﾞｰﾀ取得／機器開発	実用化技術の開発	実用化ﾌﾟﾗﾝﾄとしての信頼性、経済性の実証
原料供給・分配ｼｽﾃﾑ	①濃厚相輸送法の基本検討	①濃厚相輸送の開発	①濃厚相輸送の実証・分配方式の検討	分配方式の実証
水添ｶﾞｽ化反応器	①ｺｰﾙﾄﾞﾓﾃﾞﾙによる開発 ・ｲﾝｼﾞｪｸﾀｰ構造の開発 ・反応器内部構造の開発 ②ＰＤＵによる反応器概念の実証 ・ｶﾞｽ化性能 ・物理学的運転性能の実証	①ｺｰﾙﾄﾞﾓﾃﾞﾙによるﾊﾟｲﾛｯﾄﾌﾟﾗﾝﾄ用 ・大型ｲﾝｼﾞｪｸﾀｰの開発 ・反応器内部構造の最適化 ・ﾏﾙﾁｲﾝｼﾞｪｸﾀｰｼｽﾃﾑの開発	①ｶﾞｽ化性能、物理学的運転性能の確認 ②安定運転性の確認 ③ｽｹｰﾙｱｯﾌﾟﾌｧｸﾀｰの解析 ④ｴﾝｼﾞﾆｱﾘﾝｸﾞﾃﾞｰﾀの取得 ⑤連続運転技術の確立 ⑥最適運転条件の把握	①ｽｹｰﾙｱｯﾌﾟ技術の実証
生成ｶﾞｽ冷却・熱回収ｼｽﾃﾑ		①ｶﾞｽ/ｶﾞｽ熱交換器の基本検討	①ｶﾞｽ/ｶﾞｽ熱交換器の性能確認 ②熱回収ｼｽﾃﾑの確立 ③ｴﾝｼﾞﾆｱﾘﾝｸﾞﾃﾞｰﾀの取得	
ﾁｬｰ抜き出し・冷却・移送ｼｽﾃﾑ		①ﾁｬｰ流動床冷却器の基本検討	①ﾁｬｰ流動床冷却器の性能確認 ②ﾁｬｰ抜き出し、冷却ｼｽﾃﾑの安全性確認 ③ｴﾝｼﾞﾆｱﾘﾝｸﾞﾃﾞｰﾀの取得	①水添ｶﾞｽ化ｼｽﾃﾑとﾁｬｰｶﾞｽ化ｼｽﾃﾑのﾏｯﾁﾝｸﾞ性の実証
計測・制御ｼｽﾃﾑ			①原料流量制御ｼｽﾃﾑの確立 ②反応器温度制御ｼｽﾃﾑの確立 ③自動制御ｼｽﾃﾑの確立	①ﾄｰﾀﾙ制御ｼｽﾃﾑの実証
ﾌｨｼﾞﾋﾞﾘﾃｨｽﾀﾃﾞｨ	①ＰＤＵｶﾞｽ化ﾃﾞｰﾀに基ずくＦ／Ｓ		①ＰＰﾃﾞｰﾀに基ずく経済性評価	①実用規模における経済性の実証

第３．３－１ 図　ＡＲＣＨプロセス開発スケジュール（案）



／D程度のＰＤＵ（ベンチスケール設備）を設置し、パイロットプラント建設、ＡＲＣＨ－１運転期間中にＡＲＣＨ－２反応器固有の課題をＡＲＣＨ－１試験の成果や経験を充分に活用しつつ短期間で解決しておき、最後にパイロットプラントで実証するといった時間的節約の工夫が必要であると考えられる。

水素製造のためのチャーのガス化は既存あるいは開発中の石炭ガス化技術の活用が可能と考えられ、本パイロットプラントでの開発課題に入ってないが、プロセスの総合熱効率や建設費に大きな比重をしめている。従ってチャーのガス化特性にあったプロセスの選択や熱効率の改善の可能性を評価するために早い時期に既存プロセス等の小型試験装置によるガス化反応性に関する要素研究（参考資料２）を進めておく必要があろう。

参考資料（１）　流動床チャー冷却・抜き出しテスト

１．目的

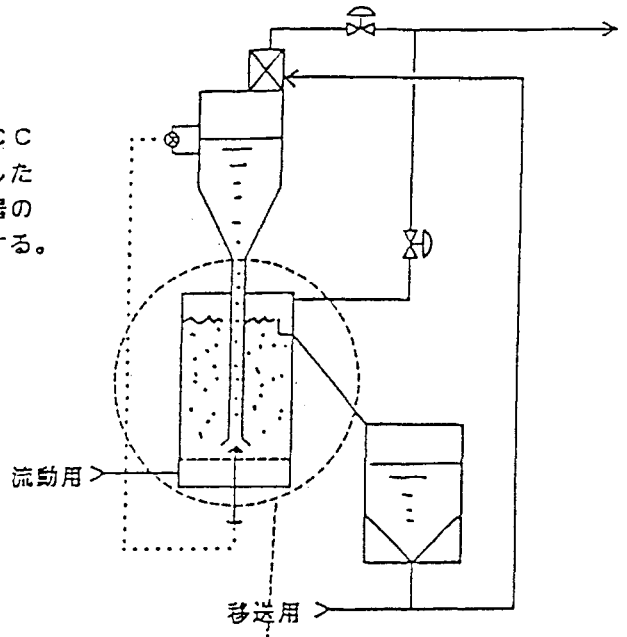
石炭水添ガス化反応器の要素技術の中で、チャーの抜き出し、及び冷却方法は既存の技術を応用しながらも、反応器と同様に開発の各段階で開発すべき課題を持つ技術である。
パイロットプラントの設計に際して、その設計に必要最小限のデータを取得し、パイロットプラントにおけるテスト／開発課題を調査、把握しておく。

２．テスト方法

（１）チャー連続抜出しテスト

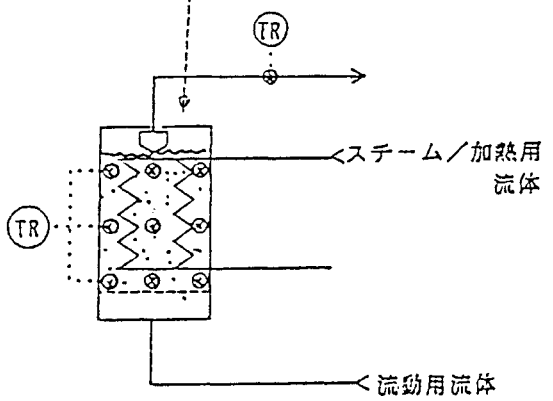
チャー抜出しに適用できる可能性のあるＦＣＣ反応器のシステムを模擬固体／流体を使用したテスト装置により再現し（右図）、上下容器の圧力バランス等、システムの実現性を評価する。

（例）
固体　：　バーミキュライト
流体　：　空気
容器　：　透明プラスチック



（２）流動床伝熱特性評価テスト

将来の大型装置におけるチャー冷却装置になると思われる流動床冷却装置における伝熱特性（管外側h_w）を右図のような加熱型流動床で測定し、伝熱設計用データを取得する。



参考資料（２）　チャーガス化評価

１．目的

石炭水添ガス化全体プロセスの中で、水素製造のためのチャーのガス化性能は総合熱効率や建設費に大きな比重を占めている。
平成２、３年度のＦ／Ｓ結果を踏まえて、プロセスの最終評価をおこない、総合熱効率の改善の可能性を評価するため、P.DU規模のガス化炉でガス化テストを実施し、他の石炭のガス化性能と比較することにより、チャーのガス化反応性を調査する。

２．テスト方法

下記フローを持つ、石炭供給量 1 t/D の既存テスト装置でチャーをガス化し、生成ガス量、組成、未反応チャーをサンプリングすることにより、チャーのガス化データを採取する。

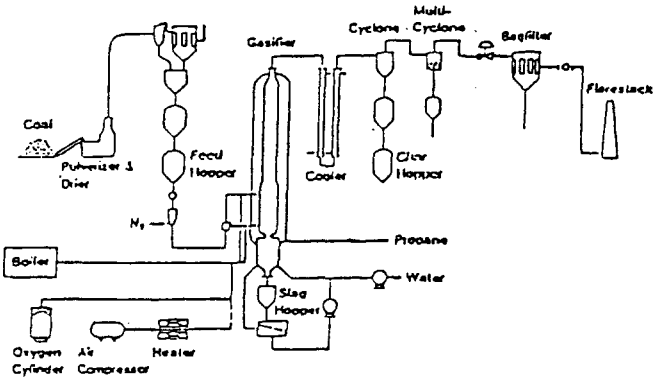


Fig. 1 Process development unit for pressurized entrained-bed gasifier

３．評価方法

ガス化条件のうち、酸素／炭素比を変更させたとき（最低３水準）の炭素転化率、ガス組成等を右図のような親石炭のデータ、あるいは他の石炭種と比較し、ガス化反応性を評価する。

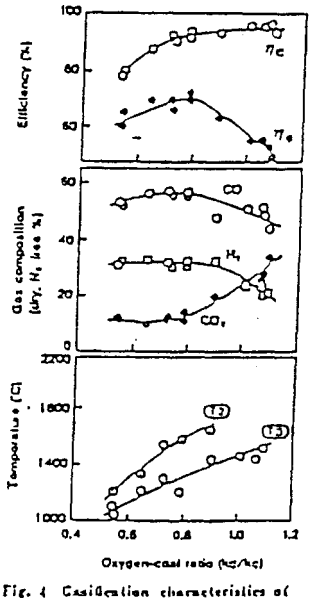


Fig. 4 Gasification characteristics of Taiheiyo coal

3．4　パイロットプラントの基本構想

3．4．1　概念設計

（1）基本設計仕様

a．パイロットプラントに就いての考え方

昨年来検討を行ってきた、ＡＲＣＨ－１に関しては、石炭投入量 5.0 t/dの PDU の試験も完了し、パイロットプラントの設計の為のデータも取得する事が出来ている。

一方、液収率の向上を計るべく考えられた、ＡＲＣＨ－２は、未だ計画の初段階であり、今後の要素研究並びに支援研究により、パイロットプラントを設計するデータを取得する事に成っている。

従って、ここでは、ＡＲＣＨ－１を主体としたパイロットプラントの計画を進め、このＡＲＣＨ－１のテスト完了後の時点で、平行して行われる予定の、ＡＲＣＨ－２の為のベンチスケール・テスト（支援研究）の成果を折り込んだ改造を行い、既設のパイロットプラントで運転可能な範囲の条件で、テストを行う事を前提とする。

尚、パイロットプラントの設計圧力は100kg/cm²,g.とし、当面の運転圧力は 70kg/cm²,g. とするが、将来のナショナル・パイプライン計画を考慮して、90kg/cm²,g. での運転も考慮しておく（ナショナル・パイプライン幹線の圧力は 70kg/cm²,g.）。

b．パイロットプラントの能力と連続運転時間について

既に石炭投入量 5.0 t/dの PDU試験が完了しており、これをベースにスケールアップを考える場合、最も妥当な能力は、10倍の能力アップ、即ち、石炭投入量 50 t/d の能力を持つものといえる。

此の場合、連続運転時間をどの程度に設定するのかということが、設備費に影響して来るので、良く詰めておく必要がある。

ここでは、他のプロジェクトの実例も踏まえ、ONE RUN 石炭投入 10 日間のテストが出来るパイロットプラントを前提に、仕様を決めて行くこととする。　そして、最後には、１ヶ月乃至 1,000時間程度のテストが行えるように考えてゆく。

c．石炭の性状

テストに使用する石炭は、太平洋炭と瀝青炭の二種類を考える。　これら二種類の石炭性状は、次の通りである。

項　目	太平洋炭	瀝青炭
揮発分　%	46.32	34.0
固定炭素%	39.88	52.1
灰　分　%	13.80	13.9
C　　%	65.16	70.09
H　　%	5.74	4.60
N　　%	0.92	1.70
O　　%	14.11	9.08
S　　%	0.25	0.60
Cl　　%	0.02	0.03

d．環境対策について

このパイロットプラントからの排出物については、環境規制値を十分にクリヤーするよう設計する。　即ち、生成ガスの燃焼並びにチャーの焼却による排ガスは、排熱ボイラで熱回収の後、排煙脱硫装置により、SO_2 を除去した後排出する。　また、排水処理設備も設け、処理した後の水を下水道に放流する。

e．適用法規

高圧ガス取締法に準拠するものとする。

（2）プロセスの構成について

パイロットプラントによる必要な開発項目を、具体的に整理すると、次のようになる。

イ．トータルシステムの開発

ロ．原料供給システムの開発

ハ．水添ガス化反応器性能の検討，評価

ニ．熱回収システムの開発

ホ．チャー排出，冷却システムの開発

ヘ．計測，制御システムの開発

ト．炭種の拡大

チ．運転操作技術の開発

これらの課題に対応する為に、今回のパイロットの範囲を、第3．4－1図の如く計画した。　即ち、石炭前処理工程から、生成ガス焼却工程及びチャー焼却処理工程までとする。　是に、ユーテイリテイー・オフサイト設備を含めて、計画のB／Lとする。

工程別には、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，生成ガス焼却工程，及びチャー焼却処理工程にわかれている。　先ず、それぞれの工程について説明する。

a．石炭処理工程

貯炭場からの石炭を、金属の除去，篩分け等の工程を経て、微粉砕乾燥機に送入し、200 メッシュ・アンダー 80 % 以上とする。　その後、製品ビンを経て常圧ホッパーに送られる。　そして、ロックホッパー，高圧フィーダーを経て反応器に送られる。

石炭微粉砕乾燥装置は、日中 8時間の運転で、24時間分の使用量を賄える能力を持たせる。

b．水素ガス製造工程

前記“（1）d．反応器運転条件”に書かれている様に、瀝青炭を使用する場合は、反応温度を上げ、且つ、水素／DAF COAL wt.比も 0.3前後にする必要がある。

また、今回は、太平洋炭の場合にも、石炭投入量 50 t/d の状態で、水素／DAF COAL wt. 比が 0.3のケースもテストするので、この場合が水素量を最も多量に必要とする。

従って、水素プラントの能力は、水素 100% 換算で毎時 8,000Nm^3 とする。

また、原料は都市ガスを使用するものとし、水蒸気改質プロセスを利用する。　安定した運転がやりやすい方式とするため、改質圧力を比較的に低くし、二次改質炉なしで、95% 以上の水素ガス純度がえられる装置とする。

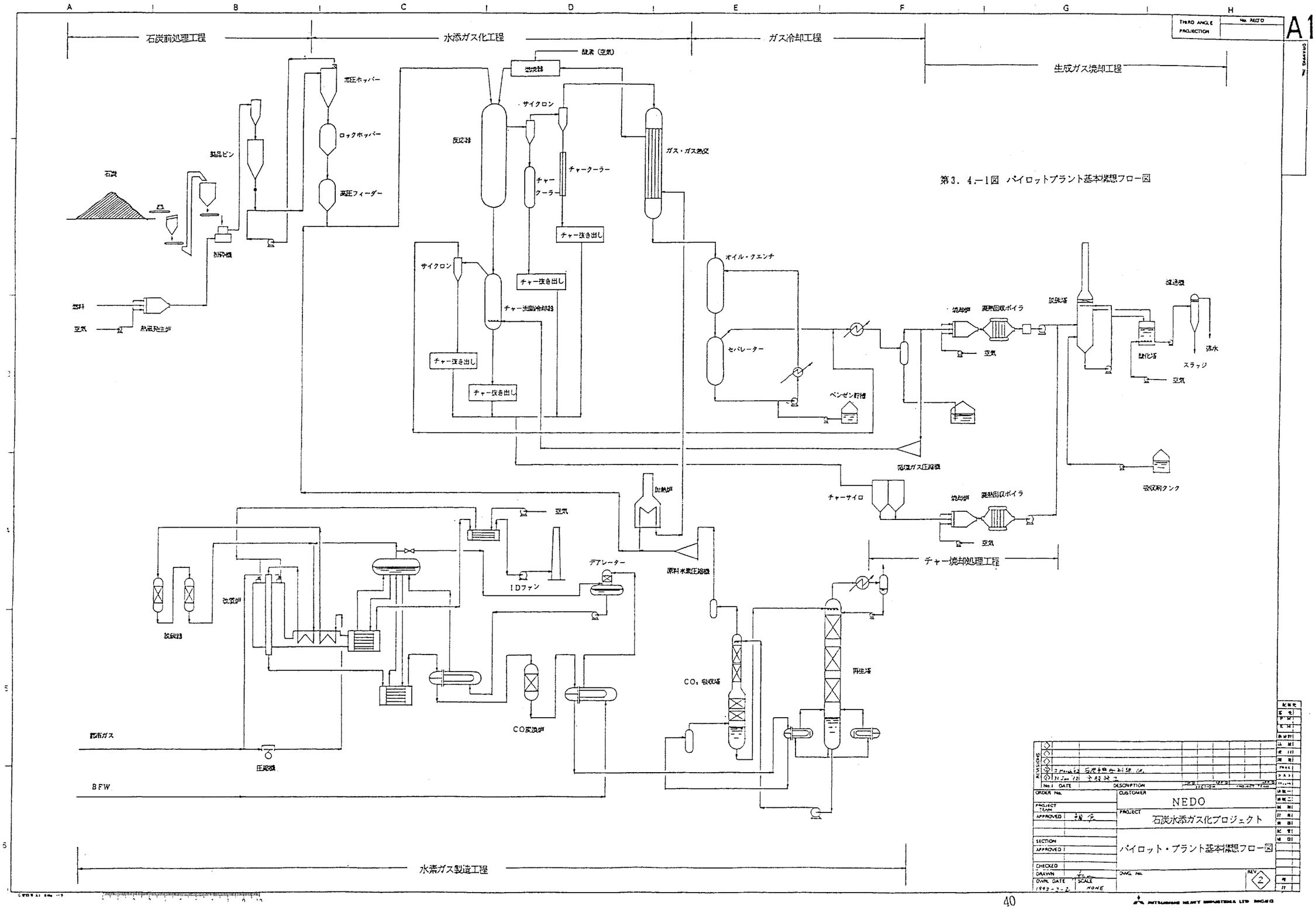
c．水添ガス化工程

常圧ホッパー，ロックホッパー，高圧フィーダーを経て、反応器に送入する。

一方、水素ガス製造工程より生産される水素ガスは、圧縮機により約 80 kg/cm^2,g にまで昇圧後、外部加熱炉で 300^{0}C前後に加熱され、ガス・ガス熱交換器を経て反応器に導入される。　途中、必要に応じて、酸素ガスによる水素ガスの昇温を行う。

（コールド・スタートアップの際は、空気により昇温する）

石炭粉と水素ガスの反応により生成するチャーの一部は、自動的に流動冷却装置に導入され、冷却後の生成ガスを流動媒体として、水冷却管と共にチャーの均一冷却を行う。　水添ガス化反応器出口ガスに同伴されるチャーは、二段サイクロンにより分


石炭前処理工程
水添ガス化工程
ガス冷却工程
生成ガス焼却工程
チャー焼却処理工程
水素ガス製造工程
石炭
製品ビン
粉砕機
燃料
空気
熱風発生炉
高圧ホッパー
ロックホッパー
高圧フィーダー
酸素（空気）
燃焼器
反応器
サイクロン
チャー
クーラー
チャークーラー
チャー抜き出し
チャー流動冷却器
ガス・ガス熱交
オイル・クエンチ
セパレーター
ベンゼン貯槽
焼却炉
廃熱回収ボイラ
洗浄塔
酸化塔
清水
スラッジ
吸収剤クンク
循環ガス圧縮機
チャーサイロ
加熱炉
原料水素圧縮機
デアレーター
IDファン
改質炉
脱硫器
CO変換炉
CO₂吸収塔
再生塔
都市ガス
圧縮機
BFW
第3．4.−1図 パイロットプラント基本構想フロー図
NEDO
石炭水添ガス化プロジェクト
パイロット・プラント基本構想フロー図
A1
THIRD ANGLE PROJECTION
No. REV.0
ORDER No.
CUSTOMER
PROJECT TEAM
APPROVED
PROJECT
SECTION
APPROVED
CHECKED
DRAWN
DWG. DATE
SCALE NONE
DWG. No.
REV 2
REVISIONS
DESCRIPTION
MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES LTD. HICO

離される。

d．ガス冷却工程

石炭を高温で反応させた場合、炭種による程度の差はあるものの、タール分の生成は不可避的に起こると判断されるので、ガスのオイルクエンチが必要と考えられる。従って、ガスのオイルクエンチャーを設置する。　循環液としては、粗ベンゼンもしくはクレオソート油を使用する。

また、少量とはいえ、チャーが同伴される事は確かであり、此の蓄積を防ぐ方策が必要となる。

e．生成ガス焼却工程

生成ガスの一部は、チャーの流動冷却装置の流動用ガスとして循環利用されるが、その大部分は、一応焼却設備により燃焼し、廃熱をスチームの形で回収する計画で進める。　燃焼ガスは排煙脱硫装置を通す。

f．チャー焼却処理設備

前記e．同様、此処では全てのチャーを焼却し、廃熱をスチームの形で回収する計画で進める。　焼却ガスは排煙脱硫装置を通す。

g．付帯設備

此のパイロットプラントに付帯する設備としては、下記の項目が挙げられる。

g－1．貯炭場

g－2．窒素設備

g－3．酸素設備

g－4．純水装置

g－5．冷却水装置

g－6．計装空気設備

g－7．消火設備

g－8．灰処理設備

g－9．スタート・アップ用ボイラ

g－10．その他

（3）各ユニットの諸元

パイロットプラントの主要部のプロセスフローシートを、第3．4－3図に纏めてみた。　これは、チャーの抜き出し関係のフローを明確にする事と、ユーテイリテイーラインの接続を明確にする事を主眼にしたものである。

各ユニットの諸元について記述すると、次のごとくなる。

a．石炭前処理工程

イ．受入れ

太平洋炭及び、瀝青炭のそれぞれにつき、最低 20 日分のストック・ヤードを必要とする。　即ち、1,000 t ずつ、2 カ所は最低必要とする。

原料炭の貯炭場への受入れは、取扱い量からみて、側線による貨車輸送が現実的であるが、立地によっては、埠頭からの小型船による受入れもあり得る。　しかし、此処では貯炭場での受入れから計画する事とする。　即ち、貯炭場迄の石炭荷役設備は、今回の計画の範囲外とする。

貯炭場からの搬出は、専用の搬出設備が必要であり、石炭微粉砕乾燥装置は 8 h/d の間欠運転であり、時間当たりの搬出量は、100%の余裕を見込み、12.5 t/h程度とみる（ = 100 t/d ）。

貯炭場から、石炭微粉砕乾燥装置のある、パイロットプラントの場所までの距離が問題になるが、此の点は立地により大きく変わるので、此の計画では、貯炭場がパイロットプラントに隣接しているという条件とする。　当然、石炭輸送用の地下コンベヤー等は計画しないという前提で進める。

バケットローダーにより、貯炭場からの石炭を、原料ホッパーを経てベルトコンベヤーで搬送するものとする。　以下に、この付帯設備を列記する。

－バケットローダー（オペレーター　日勤1名必要）

－石炭ホッパー（内容積；2 m^3）

－コンベヤー　（ MAX. 12.5 t/h ）

－バケットコンベヤー（ MAX. 12.5 t/h ），但し、土地が十分にあれば、傾斜型ベルトコンベヤーとする。

－TRAMP IRON MAGNET

－METAL DETECTOR

－石炭予備粉砕機（前処理用）

－コンベヤー

－石炭微粉砕乾燥装置送入用，ベルトスケール付コンベヤー－

貯炭場関連のフローを纏めると、第３．４－２図の如くなる。

ロ．粉砕・乾燥

三菱ＭＲＳミルについて調査した結果は次の通り。

ｉ．石炭投入量 DRY COAL 50 t/d，但し、ミル運転時間 8 h/d とする。

ii．微粉炭機，型番 543 x 1，ミル・モーター容量 115 kw

iii．乾燥用熱風の条件

		太平洋炭	瀝青炭
ミル入口熱風温度	°C	189.6	174.2
ミル出口熱風温度	°C	80	80
熱空気量	kg/h	16,000	16,000

ハ．気流輸送

石炭微粉砕乾燥装置を出る石炭粉は、乾燥用の燃焼ガスに同伴される形で、微粉炭受入れ槽へ気流輸送される。

ニ．機器リスト

主要機器リストを記載すると下表の通りとなる。

機　番	名　　称	設　計　仕　様
V－1	石炭ホッパー	常圧，常温．　内容積；70 m³，　材質；炭素鋼
V－2	微粉炭受入槽	常圧，常温．　内容積；5 m³，　材質；炭素鋼
V－3	製品ビン	常圧，常温．　内容積；70 m³，　材質；炭素鋼
M－1	粉砕機	三菱ＭＲＳミル型番 543 x 1基，ミル・モーター115 kw 運転時間 8h/d で 50 t 処理．

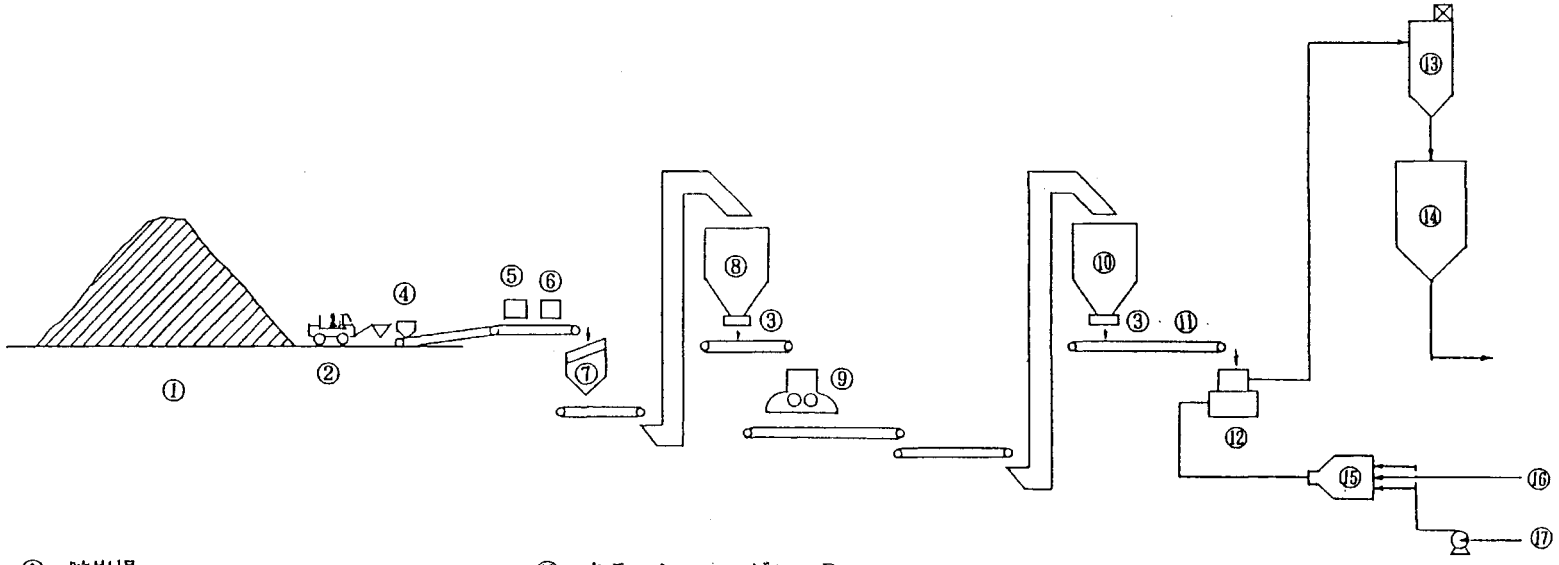
THIRD ANGLE PROJECTION

No. REQ'D

A3

DRAWING No.

第3．4－2図　貯炭場関連フロー



① 貯炭場
② ショベルカー
③ バイブレーテイング・アクテイヴェーター
④ ホッパー
⑤ トランプアイロン・マグネット
⑥ メタルデイテクター
⑦ 篩
⑧ クラッシャー・ビン　A
⑨ クラッシャー
⑩ クラッシャー・ビン　B
⑪ ベルトスケール
⑫ 石炭微粉砕乾燥装置
⑬ V－2　微粉炭受入れ槽
⑭ V－3　製品ビン
⑮ 熱風発生炉
⑯ 燃料
⑰ 空気

REVISIONS

No.	DATE	DESCRIPTION	CH'D	APP'D SECTION	APP'D PROJECT TEAM

ORDER No.

PROJECT TEAM

APPROVED

SECTION

APPROVED

CHECKED

DRAWN

DWN. DATE

SCALE

CUSTOMER

NEDO

PROJECT

石炭水添ガス化プロジェクト

貯炭場関連フロー図

DWG. No.

REV.

配布先

b．水素ガス製造工程

イ．改質

改質の条件を記載すると以下の通りとなる。

原料　；　都市ガス（ 13 A ）

ステイーム／炭素，比；　4.0 （但し、モル比）

改質圧力　；　11.0 kg/cm²,g.

入口温度　；　550°C

出口温度　；　830°C

ロ．脱炭酸

熱炭酸カリによる、炭酸ガスの除去を行う。

ハ．マテリアル・バランス

以下の表の通りとなる。

項目＼場所		原料	脱硫入口	改質炉入口	改質炉出口	脱炭酸入口	脱炭酸出口	RECYC-LE GAS	備考
温度 °C		115	380	550	830	110	100	110	
圧力 kg/cm²,g		12	11.5	11	10	8.6	8.3	1.0	
組成 kg-mol/h	13 A	83.24	——	——	——	——	——	——	
	H_2	——	4.16	4.16	312.35	357.22	357.15	4.16	
	CH_4	——	73.31	73.31	5.13	5.07	5.01	0.06	
	C_2H_6	——	4.99	4.99	——	——	——	——	
	C_3H_8	——	3.33	3.33	——	——	——	——	
	C_4H_{10}	——	1.67	1.67	——	——	——	——	
	CO	——	0.06	0.06	54.48	5.39	5.36	0.06	
	CO_2	——	1.04	1.04	41.44	89.43	7.46	1.04	
	TOTAL	83.24	88.56	88.56	413.40	457.11	374.98	5.32	
	H_2O	——	0.05	399.58	264.31	77.90	46.70	0.05	

ハ．製造ガスの仕様

ガス成分	kg-mol/h	mol %
H_2	357.15	95.21
CH_4	5.01	1.35
CO	5.36	1.44
CO_2	7.46	2.00
計)	374.98	100.00

圧力；　8.3 kg/cm²,g.

ニ．水素製造量

100 % 水素換算で，8,000 Nm³/h

c．水添ガス化工程

パイロットプラントの主要部のプロセスフローを、第3．4－3図に纏めてある。

イ．石炭供給

ここで、シングルインジェクターとマルチインジェクターに分けて記述する。

i．シングルインジェクターの場合

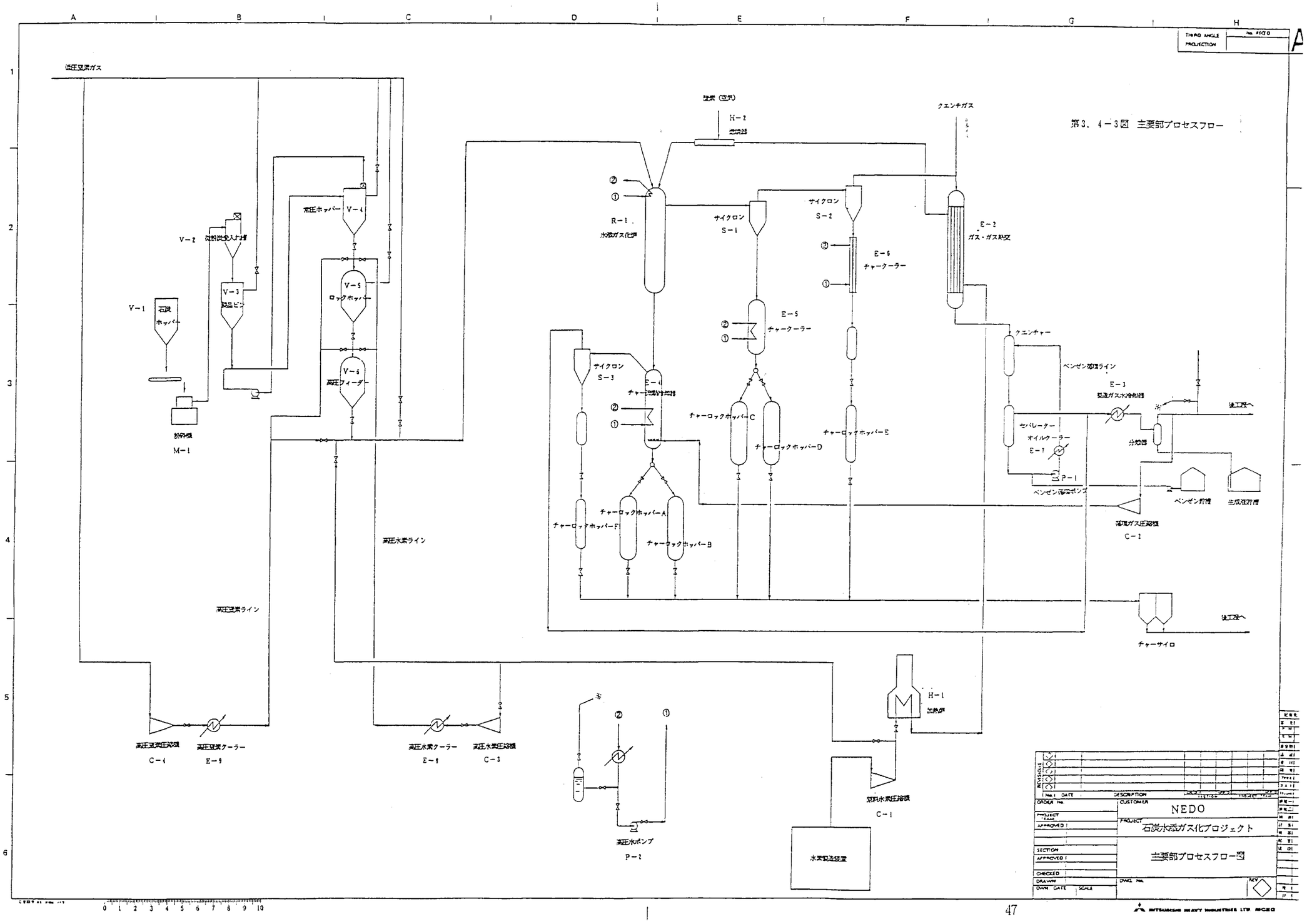
石炭水添ガス化反応器内部のガス圧力と、高圧フィーダー内部の差圧を取り出し、此の差圧が一定に成る様に PDRC(差圧記録調節) 制御を行い、高圧フィーダーへの水素ガスの供給を行う。　即ち、此の反応器内圧力と、高圧フィーダー内圧力との差圧により、流量のコントロールを行う。

ii．マルチ・インジェクターの場合

マルチ・インジェクターの設計と、テスト要領は、今回のパイロットプラントのテストに当たって、極めて重要な意味を持つ。　従って、慎重に計画を練る必要があるが、次の二つの場合を進める。

〔独立3系列の場合〕

高圧フィーダーを 3基設け、それぞれ別々のパイプラインにより、石炭水添ガス化反応器への石炭供給を行う。　此の場合、リアクターと高圧フィーダーとの差圧のコントロールを別々に行い、3 系列のラインが独立した形で運転される事になる。　此の場合、3 基の高圧フィーダー内の石炭レベルが、同じに成るようコントロールする必要がある。　ロックホッパーも 3基設ける事が、


第3．4－3図 主要部プロセスフロー
NEDO
石炭水添ガス化プロジェクト
主要部プロセスフロー図
R－1
水添ガス化炉
H－1
加熱炉
H－2
E－2
ガス・ガス熱交
E－5
チャークーラー
E－6
チャークーラー
E－4
E－3
E－7
P－1
P－2
C－1
C－2
C－3
C－4
E－8
E－9
V－1
V－2
V－3
V－4
V－5
V－6
M－1
クエンチガス
クエンチャー
サイクロン S－1
サイクロン S－2
サイクロン S－3
チャーロックホッパーA
チャーロックホッパーB
チャーロックホッパーC
チャーロックホッパーD
チャーロックホッパーE
チャーロックホッパーF
チャーサイロ
ベンゼン貯槽
生成油貯槽
水素製造装置
高圧水素ライン
高圧窒素ライン
高圧窒素圧縮機
高圧窒素クーラー
高圧水素クーラー
高圧水素圧縮機
高圧水ポンプ
原料水素圧縮機
THIRD ANGLE PROJECTION
MITSUBISHI HEAVY INDUSTRIES LTD. KOBE

高圧フィーダーの圧力調整上必要となろう。

〔高圧フィーダー1基の場合〕

高圧フィーダーは1基とし、3本のパイプラインにより、石炭水添ガス化反応器への石炭供給を行う。 この場合、此の反応器と高圧フィーダーの差圧コントロールは、一つとする。 此の場合は、特定のフィーダーに詰まりが発生したりした場合、石炭投入量がアンバランスになり、問題を起こす可能性に留意して置く必要がある。

マルチ・インジェクターの運転に当たっては、石炭フィードは、同時に3系列の供給ラインを動かす必要がある。

ロ. 高圧フィーダーの内部圧力コントロール

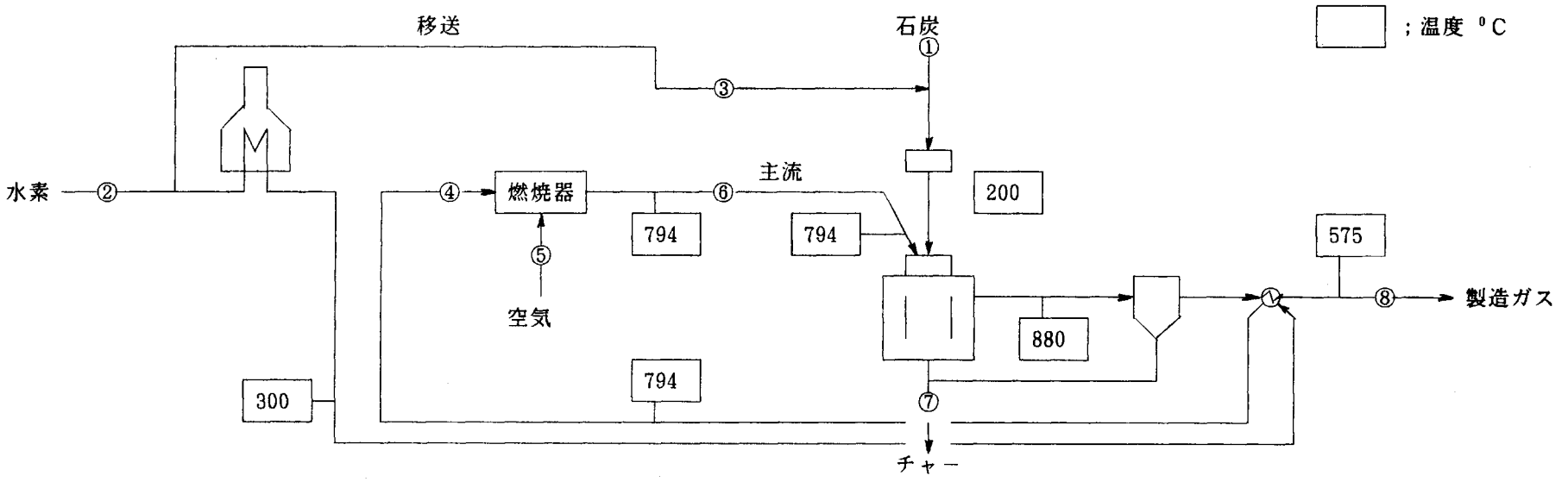
ロックホッパーは先ず窒素置換を行い、その後原料石炭を投入し、投入完了後窒素ガスにより規定圧力迄加圧する。 一方、高圧フィーダーは、水素ガスにより規定圧力迄加圧し続ける。 ロックホッパーが高圧フィーダーと同圧に成れば、ロックホッパーと高圧フィーダーの連通弁を全開し、均圧させる。 従って、圧力コントロールの為の補給ガスは、水素ガスとする。 ロックホッパー内の石炭が無くなった場合、高圧フィーダーとの連通弁を全閉して縁を切った後、ロックホッパー内のガスを空中ブローして減圧し、窒素によるガス置換の後、常圧ホッパーより石炭粉を投入し、次いで窒素ガスによる加圧を行い、上記工程を繰り返す。 PROGRAMABLE LOGIC CONTROLLER による。

ハ. 水添ガス化反応器の反応条件とマテリアル・バランス

反応器の運転条件について、太平洋炭を使用した場合の代表的な一例を挙げると、次の如くなる。 マテリアル・ヒートバランスは次ページ以下の如く成る。

反応条件		生成チャー性状		
温度, °C	880	C	%	64.72
圧力, kg/cm², g.	70	H	%	1.12
水素／石炭, DAF, wt比	0.2	N	%	0.8
反応時間, 秒	10	O	%	3.07
		S	%	0.22
石炭供給量, DRY, kg/h	2,104.1	Cl	%	0.00
チャー生成量, DRY, kg/h	956.8	ASH	%	30.05

第3．4－4図　パイロットプラント・プロセス　シミュレーション　（太平洋炭の1ケース）



石炭性状				チャー性状		反応条件
近似成分 %		元素分析 %		元素分析%		
揮発分	46．32	C	65．16	C	64．72	温度；880°C
固定炭素	39．88	H	5．74	H	1．12	圧力；70 kg／cm²
灰分	13．8	N	0．92	N	0．80	水素／石炭（DAF）wt.比；0．2 kg／kg
固有水分	1．0	O	14．11	O	3．07	反応時間；10 秒
		S	0．25	S	0．22	熱ロス；80，000 kcal／h
		Cl	0．02	Cl	0．00	
				ASH	30．05	

発熱量；
石炭；6，642．1 kcal／kg－mf
チャー；5，407．8 kcal／kg－mf

第3．4－1表　全体物質収支　　（太平洋炭の1ケース）

組成	分子量	①		②		③		④		⑤	
		kg-mol/h	mol %	kg-mol/h	mol %	kg-mol/h	mol %	kg-mol/h	mol %	kg-mol/h	mol %
CO_2	44.010	—	—	3.751	2.00	0.290	2.00	3.461	2.00	—	—
CO	28.010	—	—	3.001	1.60	0.232	1.60	2.769	1.60	—	—
H_2	2.016	—	—	178.155	95.00	13.775	95.00	164.380	95.00	—	—
CH_4	16.040	—	—	2.625	1.40	0.203	1.40	2.422	1.40	—	—
H_2O	18.020	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
N_2	28.020	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
O_2	32.000	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
H_2S	37.080	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
C_2H_6	30.070	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
C_2H_4	28.050	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
C_6H_6	78.114	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
C_7H_8	92.141	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
ナフサ	128.174	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
アンスラ	178.234	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
COS	60.070	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
CS_2	76.131	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
NH_3	17.031	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
HCl	36.461	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
HCN	27.026	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
全ガス(wet)kg-mol/h				187.532	100.00	14.500	100.00	173.032	100.00	0.00	0.00
daf coal kg/h		1,795.8									
Ash kg/h		287.5									
水分 kg/h		20.8									
全物量 kg/h		2,104.1		650.4		50.3		600.1		0	
温度 °C		25		25		25		25			
圧力 kg/cm^2											

第3．4－1表　全体物質収支（続），　（太平洋炭の1ケース）

組成	分子量	⑥ kg-mol/h	⑥ mol %	⑦ kg-mol/h	⑦ mol %	⑧ kg-mol/h	⑧ mol %
CO_2	44.010	3.461	2.00	——	——	3.807	1.92
CO	28.010	2.769	1.60	——	——	7.747	3.92
H_2	2.016	164.380	95.00	——	——	122.841	62.09
CH_4	16.040	2.422	1.40	——	——	48.071	24.30
H_2O	18.020	——	——	——	——	12.824	6.48
N_2	28.020	——	——	——	——	——	——
O_2	32.000	——	——	——	——	——	——
H_2S	37.080	——	——	——	——	0.085	0.04
C_2H_6	30.070	——	——	——	——	0.175	0.09
C_2H_4	28.050	——	——	——	——	——	——
C_6H_6	78.114	——	——	——	——	1.111	0.56
C_7H_8	92.141	——	——	——	——	0.002	0.00
ナフサ	128.174	——	——	——	——	0.208	0.11
アンスラ	178.234	——	——	——	——	0.148	0.07
COS	60.070	——	——	——	——	0.008	0.00
CS_2	76.131	——	——	——	——	0.002	0.00
NH_3	17.031	——	——	——	——	0.798	0.40
HCl	36.461	——	——	——	——	0.008	0.00
HCN	27.026	——	——	——	——	0.023	0.01
全ガス(wet)kg-mol/h		173.032	100.00			197.857	100.00
daf coal	kg/h						
Ash	kg/h			669.3			
水分	kg/h			287.5			
全物量	kg/h	600.1		956.8		1,797.8	
温度	°C					880	
圧力	kg/cm²					70	

水添ガス化反応器熱バランス

入熱　kcal/h；

石炭	Hc	13,837,523.7
	En（dry）	151,591.9
	En（H_2O）	3,645.8
水素	Hc	12,932,662.0
移送	En	17,772.1
主流	En	962,522.4

出熱　kcal/h；

製造ガス	Hc	20,676,388.6
	En	1,709,644.2
チャー	Hc	5,174,466.8
	En	265,218.2
熱ロス		80,000.0

備考；
Hc；　ポテンシアル熱
En；　顕熱

ニ．ガス・ガス熱交と加熱炉の設計仕様について

ガス・ガス熱交は、開発要素も幾つかあるが、メカニカルには本質的に困難な問題はなく、最初から設計・製作・据え付けを行い、繋ぎ込む事が出来ると判断される。　従って、最初のスタートアップから、このガス・ガス熱交を生かすという考え方で、計画を進めることとする。　このガス・ガス熱交を最初から使用する事になれば、関連する加熱炉の設計条件も変わってくる。　即ち、定常状態の運転では、加熱炉出口温度を 300°C程度にまで加熱すれば良いことになる。
但し、コールド・スタートアップを考えると、リアクター及び系内の昇温には、この加熱炉を活用する事になるので、燃焼器で空気による昇温を行う為には、少なくとも、此の水素温度を、着火温度以上に迄加熱する必要がある。　此の観点から、途中の配管での熱ロスを考えても、加熱炉出口温度は、600°C 迄加熱出来れば良いと判断される。

しかしながら、ガス・ガス熱交のチューブ内面が、予想以上に汚れるという様な、不測の事態が発生する事も考慮して、加熱炉の設計仕様は、この熱交をバイパスしても運転が出来るように設定して置く。

ホ．チャーの冷却・排出

“2．3．3　チャーの分離（冷却），搬送”の所で書いた様に、水添ガス化反応器から分離されるチャーは高温・高圧であり、取扱いが中々厄介である。
此処では、流動冷却器を中心に記述する。

流動冷却器は、水添ガス化反応器の真下に置かれる事になる。　此の反応器は反応に必要な空間を持たせる様に設計され、底部から、流動冷却器へのチャーの移送管を下げ、流動冷却器の下部深くにまで挿入される。　此の場合問題となるのは、水添ガス化反応器との均圧と、チャーの流動性である。

水添ガス化反応器との均圧は、反応器，流動冷却器の間に設けられている、均圧弁を開ける事により行われる。　此の場合、均圧弁のサイジングを慎重に決める必要がある。　反応器底部に堆積するチャーは、前記連通管を通り下部の流動冷却器にグラヴィテイーフローにより移動させる。　チャーは、約 900°Cと高温であり、中間にヴァルブを入れる事が難しいので、堆積したチャーは全て、下部流動冷却器に自動的に送りこまれる様にしたい。　水添ガス化反応器と流動冷却機の均圧が保たれていれば、反応器内に堆積したチャーは、その流動性さえ十分

であれば、水添ガス化反応器内に堆積したチャーは、連通管内にあるレベルを持つて収まる事になる。

チャーは、下部から送り込まれる流動ガスにより、流動性を保持し、冷却されたチャーは、内部に設けられたオーバーフロー管より、外部に抜きだされる。

“2．3．3　チャーの分離（冷却），搬送”の所で書いた様に、連通管内部に詰まりが発生する事の無いよう、予め、この内径に就いての十分な検討が不可欠である。

上記の、圧力均圧弁のサイズ，チャー流動性並びに流動条件，連通管のサイズ等は、要素研究により、条件を把握する事になる。

ヘ．主要機器仕様

次ページの、第3．4－2表の通りである。

d．ガス冷却工程

ガス冷却工程は、オイル・クエンチャーと分離器、並びに生成ガス冷却器から成っている。　そして、此処に、系全体の圧力コントロールの為の、PCV(圧力調節弁）が取り付けられている。

主要機器仕様は、第3．4－2表の通りである。

e．生成ガス焼却工程

e－1．フィードガス；（設計条件の一例）

ガス組成	mol%
H_2	67.32
CH_4	26.34
CO	4.23
CO_2	2.06
H_2S	0.04
計）	99.99

流量；8,117 Nm^3/h, MAX.

e－2．燃焼熱量　；MAX.　38.1 MMkcal/h（設計条件）

e－3．空気過剰率；　1.1

e－4．燃焼排ガス；MAX.ガス量 44,728 Nm^3/h,（SO_2 含有量　79 ppm）

e－5．脱硫装置入口ガスの状態　；　ガス量，52,790 Nm^3/h　SO_2濃度，92 ppm

（ SO_2最高濃度の時；　ガス量，26,000 Nm^3/h　SO_2濃度，235 ppm ）

第3．4－2表 主要機器一覧表

機番	名称	設計仕様
V－4	常圧ホッパー	常圧，常温、 内容積； 70 m^3， 材質；炭素鋼
V－5	ロックホッパー	100kg/cm^2,g. 常温 内容積； 35 m^3， 材質；炭素鋼
V－6	高圧フィーダー	100kg/cm^2,g. 常温 内容積； 35 m^3， 材質；炭素鋼
R－1	水添ガス化反応器	100kg/cm^2,g. 温度 975°C
E－2	ガス・ガス熱交	100kg/cm^2,g. 与熱体；8,800Nm^3/h, 900°C, 受熱体；8,000Nm^3/h, 300°C, 伝熱面積； 34 m^2。
E－3	製造ガス冷却器	100kg/cm^2,g. ガス量；13,070Nm^3/h, 150°Cより 50°C 迄水冷却、伝熱面積； 580 m^2 。
E－4	チャー流動冷却	100kg/cm^2,g. 975°C, 製造ガスによる循環使用、高圧循環冷却水併用。
E－5	チャークーラー	100kg/cm^2,g. 975°C, 高圧循環冷却水により、チャー温度を200°C 迄冷却する。
E－6	チャークーラー	100kg/cm^2,g. 975°C, 高圧循環冷却水により、チャー温度を200°C 迄冷却する。
E－7	オイルクーラー	100kg/cm^2,g. 循環液量 45,000 kg/h, 入口温度 150°C, 出口温度 40°C 、伝熱面積； 230 m^2 。
E－8	高圧水素クーラ	140kg/cm^2,g. ガス量 3,520Nm^3/h,吸入圧 80kg/cm^2,g. 吐出圧 140kg/cm^2,g. 伝熱面積； 10 m^2。
E－9	高圧窒素クーラ	140kg/cm^2,g. ガス量 8,183Nm^3/h,吸入圧 8.0kg/cm^2,g. 吐出圧 140kg/cm^2,g. 伝熱面積； 25 m^2。
S－1	水添ガス化炉 一段サイクロン	100kg/cm^2,g. 975°C，内面リフラクトリー・ライニング可能な構造とする。 材質；Cr-Mo 鋼。
S－2	水添ガス化炉 二段サイクロン	100kg/cm^2,g. 975°C， 同 上
S－3	チャー流動冷却 出口サイクロン	100kg/cm^2,g. 300°C，材質；Cr-Mo 鋼。
H－1	加熱炉	100kg/cm^2,g. 700°C （但し、出口温度）、ガス量 8,421 Nm^3/h、熱負荷； 1.810x10^6kcal/h。
H－2	燃焼器	100kg/cm^2,g. 1,050°C
C－1	原料水素圧縮機	100kg/cm^2,g. 吸入圧力； 8.3 kg/cm^2,g. 吐出圧力； 80.0kg/cm^2,g. 吸入ガス量； 8,000Nm^3/h 。
C－2	循環ガス圧縮機	140kg/cm^2,g. 吸入圧力；66 kg/cm^2,g. 吐出圧力； 140 kg/cm^2,g. 吸入ガス量； 4,270Nm^3/h 。
C－3	高圧水素圧縮機	140kg/cm^2,g. 吸入圧力；80 kg/cm^2,g. 吐出圧力； 140 kg/cm^2,g. 吸入ガス量； 3,520Nm^3/h 。
C－4	高圧窒素圧縮機	140kg/cm^2,g. 吸入圧力； 8 kg/cm^2,g. 吐出圧力； 140 kg/cm^2,g. 吸入ガス量； 8,183Nm^3/h 。
P－1	ベンゼン循環 ポンプ	100kg/cm^2,g. 循環量； 45,000 kg/h. 入口温度 150°C。
P－2	高圧循環冷却水 ポンプ	100kg/cm^2,g. 100°C, 循環量； 80 t/h 。

e－6．装置概要　；

ｉ）燃焼熱を除去する為、煙道中に廃熱ボイラを設置し、水蒸気として回収する。　尚、このスチームのユーザーは、パイロットプラント内には無いので、殆どを外部に送り出して、利用して貰う事を想定する。　スチームの圧力・温度は、ユーザーの要求に合わせて設定可能であるが、今回は一応、圧力 40 kg/cm²,g. 温度 395°Cの過熱蒸気として、利用価値を確保する。　給水温度，30°C、スタック出口温度 150°Cとする。

ii）この装置とチャー燃焼処理工程の燃焼排ガスは、簡易型排煙脱硫装置を通して SO_2を除去し、環境基準を充たす様に計画する。

iii）上記は、立地により見直しされるべきであり、その際、装置の範囲，仕様も含めて、再検討するものとする。

特に、装置の運転期間が連続的で無い事を考えると、既存設備の大幅な利用を図り、建設費の縮小が望まれる。

e－7．発生蒸気量　　；圧力 40 kg/cm²,g. 温度 395°C，流量,MAX. 46.7 t/h

（f.チャー燃焼処理工程による発生蒸気量を加えると，合計 MAX. 53.7 t/h）

e－8．構成機器

ｉ）燃焼炉

ii）ＦＤＦ

iii）ＩＤＦ

iv）廃熱ボイラ（２胴水管）

ｖ）蒸気過熱器

vi）給水予熱器

vii）排煙脱硫装置

viii）煙突（高さ 20 m ）

f．チャー燃焼処理工程

f－1．供給チャー量　；MAX. 1050 kg/h

f－2．燃焼熱量　　；MAX. 5.72 MMkcal/h

f－3．空気過剰率　　；1.2

f－4．燃焼排ガス　　；MAX. ガス量　8,089 Nm³/h，（ SO_2含有量 200 ppm ）

f－5．装置概要　　；前記ｅ．と同じ

f－6．発生蒸気量　　；圧力 40 kg/cm²,g.　温度，395°C，　流量,MAX.7.01 t/h

f－7．構成機器

i）チャーサイロ

ii）ＦＤＦ

iii）廃熱ボイラ（２胴水管型）

iv）スーパーヒーター

v）エコノマイザー

vi）電気集塵器

vii）ＩＤＦ

viii）灰送り出し装置（スクリューコンベヤー，スライドバルブ）

f－8．灰の排出量　　；MAX. 350 kg/h,　但し、間欠排出とする。

g．付帯設備

g－1．窒素設備

タンクローリーにて液体窒素を受入れ使用する。　このため、下記設備が必要となる。

－液窒タンク　　；　170 m³（ 3日分）

－液窒蒸発器　　；9,000 Nm³/h

更に、120 kg/cm²,g. の高圧窒素供給用の設備として、

－窒素圧縮機　　；8,183 Nm³/h

g－2．酸素設備

タンクローリーにて液体酸素を受入れ使用する。　この為、下記設備が必要。

この場合、ARCH-2のテストを考慮し，これに合わせた酸素設備を考えて置く必要がある。

－液酸タンク　　；　30 m³　　（ 3.5日分 ）

－液酸蒸発器（圧力；10 kg/cm²,g.）　　；能力，300 Nm³/h

－液体酸素ポンプ（圧力；10 kg/cm²,g.),能力；能力，430 kg/h.(液酸として)

－酸素圧縮機；能力，300 Nm³/h.　吸入圧力 10kg/cm²,g.，吐出圧力 90kg/cm²,g.

g－3．純水装置関連

下記設備を計画する。

－純水製造装置　　；能力，60 t/h

－純水タンク

－ＢＦＷポンプ

－デアレーター

g－4．冷却水循環設備

－冷水塔　　；能力，1,000 t/h

－循環水ポンプ

－補給水ポンプ

－冷却水濾過器

g－5．計装空気設備

－空気圧縮機　　；能力，400 Nm^3/h x 2

－空気乾燥設備　　；能力，400 Nm^3/h

－計装空気ホルダー

g－6．消火設備

－消火栓，放水銃を法規通り設置する。　ベンゼン貯槽，オイル貯槽回りには、エアーフォーム消火設備を要する（危険物）。　火災報知器，ガス検知システムも要する。

g－7．灰処理設備

立地が決まった所で見直しする事になっているが、原案通り、チャーを焼却処理する場合は、この時の、灰の回収・投棄の問題が出てくる。　此処では、WET ASH の状態での、一時貯蔵場所を設ける程度の計画に止め、灰の搬出は計画の範囲外とする。

g－8．スタートアップ用ボイラ

水素プラントのスタートアップ用に、中圧のスチームが必要になるが、これは、製造ガス焼却用の廃熱ボイラで発生させるものとして計画する。　従い、スタートアップ用には、燃料として、都市ガス（ 13 A 相当）を使用するものとして計画する。

g－9．液製品貯槽

副生する液と、クエンチャーで蒸発してくるベンゼンを合計すると、一日 51 t に達する。　この貯槽も重要である。　ベンゼンの蒸発量 48 t/d の補給用の為にも、

この副生液からの再生を考える事が必要と成ってくる。　外部から、ローリーで引取りに来てもらうよう計画する。

g－10. その他

イ）計器室，電気室以外の建物は、全て計画の範囲外とする。　即ち、分析室，事務室，更衣室，食堂，倉庫，守衛室等は、見積り範囲から外す。

ロ）計装設備は、DCS, DATA LOGGING COMPUTOR とするので、UPS(電源バックアップ）を設備する計画とする。

（4）原料・ユーテイリテイー使用量の纏め

此処で、“3．4．2必要経費”に関連のある、原料・ユーテイリテイーの使用量について整理しておく。　設計条件に於けるピークの必要量と、各運転ケース毎の時間当たりの平準値とを纏めると、第3．4－3表の通りとなる。　但し，此の表はＡＲＣＨ－１の値である。

（5）コールド・スタートアップについて

プラントが完成して、スタートアップを開始する場合の手順は、次の通りとなる。

a．リフラクトリー・ライニングが施工されている部分、例えば、加熱炉，水添ガス化反応器内部，反応器からサイクロンを経由して、ガス・ガス熱交入口迄のライン等は、予めリフラクトリーの乾燥運転を行っておく。

b．系内の空気を、窒素ガスにより置換する。

c．水素製造プラントを稼働し、原料となる水素 95%の製造を始める。

d．加熱炉で、水素ガスの加熱を行い、ガス・ガス熱交をバイパスさせた状態で、水添ガス化反応器へ導入する。　水素ガスの温度が水添ガス化反応器入口部で、500°C に達したら、ガス・ガス熱交を生かし、正常なガスの流れの状態とし、水素ガスの温度が、着火温度の 50°C アップである事を確認の上、燃焼炉に空気を送り込み、水添ガス化反応器入口温度を上げてゆく。　此の反応器の温度が700°C に達したら、水素圧縮機をスタートさせると同時に、製造ガスクーラー後の PRC（圧力調節弁）を作動させ、徐々に圧力を上げてゆく。　圧力は、正常値、即ち、70 kg/cm², g. に保つ。

e．石炭高圧フィーダーの圧力をコントロールし、水添ガス化反応器との間の差圧が、規定値に成るようコントロールする。

第3．4－3表　原料・ユーテイリテイー使用計画

原料・ユーテイリテイー	工程　他	設計条件	毎時，平均使用量		
			採　用　値	最大値	最小値
電力 単位；kwh	石炭処理	300	100	100	100
	水素製造	408	408	408	408
	水添ガス化 ガス冷却	1,200	1,200	1,200	1,200
	生成ガス焼却	354	354	354	354
	チャー焼却	62	62	62	62
	付帯設備	1,976	1,976	1,976	1,976
合　計		4,300	4,100	4,100	4,100
窒素ガス 単位；Nm^3/h	液窒最高使用量； 45.19 t/d =36,122Nm^3/d	8,183	1,300	1,505	1,180
工業用水 単位；t/h	冷水塔補給水	50	50	50	50
	ＢＦＷ原料水	80	80	80	80
合　計		130	130	130	130
石炭 単位；kg/h		2,200	2,104	2,104	1,473
都市ガス 単位；Nm^3/h	13A相当のガス	1,864	1,864	1,864	1,864
酸素ガス 単位；Nm^3/h	液酸受入れ昇圧ガス化	170	100	163	0

f．この時点で、高圧循環冷却水ポンプを起動し、それぞれのクーラーに冷却水を供給し、循環を安定させておく。

g．高圧フィーダーより石炭を抜き出し、水添ガス化反応器に送入する。

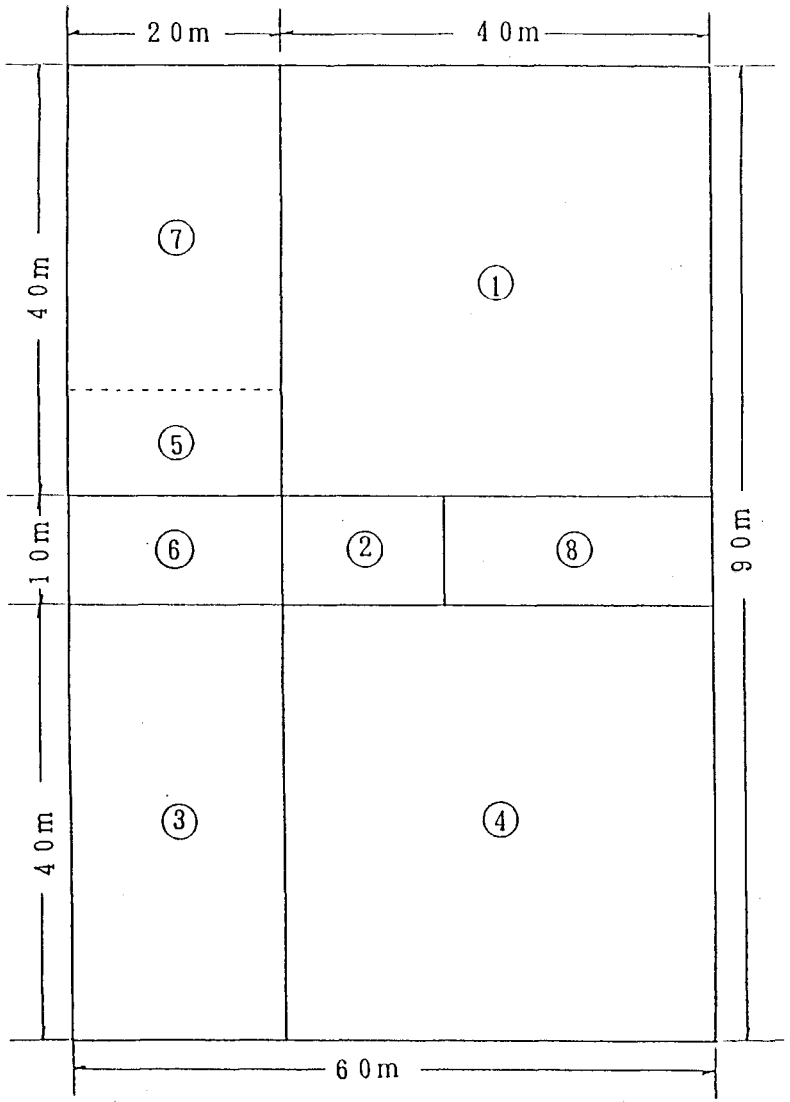
h．水添ガス化反応器への石炭投入に伴い、此の反応器の内部及び、それ以降の各機器に与える状況が大きく変化するので、圧力・温度に充分注意しながら、運転を続けてゆく。

（6）負荷変動について

“（5）コールドアップについて”にも記述されている通り、水素ガスの温度状態が安定した所で、石炭のフィードを行う事になるが、石炭のフイード量に関係なく、水素ガス量は常に一定量を流しつずける。　従って，石炭フィード量が基準値より少ない場合は、水素／石炭比は設定値より大きくなる。　石炭フィード量を減らす場合も、石炭量だけ減らし、水素ガス量は一定量を流しつずける。

（7）概略プロットプラン

次ページに、参考資料として、プロットプランの一例を示す。



備考

① 貯炭場

② 石炭前処理設備

③ 水素製造プラント

④ 水添ガス化装置，ガス冷却工程

⑤ コンプレッサー・ルーム，計空設備

⑥ 運転管理室，電気室

⑦ 冷水塔，純水装置，排水装置，液窒・液酸装置

⑧ 精製ガス燃焼，チャー焼却，排煙脱硫装置

THIRD ANGLE PROJECTION

No. REQ'D

A3

DRAWING No.

REVISIONS

No.	DATE	DESCRIPTION	CH'D	APP'D	APP'D
			SECTION		PROJECT TEAM

ORDER No.

PROJECT TEAM

APPROVED

SECTION

APPROVED

CHECKED

DRAWN

DWN. DATE

SCALE

CUSTOMER

NEDO

PROJECT

石炭水添ガス化プロジェクト

〔参考資料〕プロットプラン一例

DWG. No.

REV.

配布先

客先

F H

E H

新分野

品質

測量

河見

P一

P二

C S

排水一

排水二

制計

機器

配管

建設

他

計

3．4．2　必要経費

必要経費を、要素研究費，パイロットプラント設備費，運転経費に分けて記述する。

（1）要素研究費

要素研究に要する設備費及びその運転経費も含めた費用は、第3．4－4表の通りである。

第3．4－4表　要素研究費

項目	研究項目	費　用	比率%	備　　考
1．	流動床チャー冷却抜き出しテスト	100	3.5	単位；百万円，現時点ベース。
2．	チャーのガス化評価テスト	20	0.7	人件費，原材料費，設備費等を含む。
3．	ベンチスケール設備テスト	2,150	74.9	
4．	冷間モデルテスト（ARCH－2）	600	20.9	
合　計		2,870	100.0	

注）上記，各研究項目についてのスケジュールは、第3．3—1図　記載の通り。

（2）パイロットプラント設備費

各工程別の設備費を計上すると、第3．4－5表の通りとなる。

第3．4－5表　パイロットプラント設備費

項目	装　置　名	設備費	比率%	備　　考
a．	石炭処理工程	885	6.1	単位；百万円，現時点ベース。
b．	水素ガス製造工程	3,890	27.0	
c．	水添ガス化工程 （含，ガス冷却工程）	4,140	28.7	
d．	ガス焼却工程	1,630	11.3	
e．	チャー焼却工程	680	4.7	
f． g．	ユーテイリテイー オフサイト	2,490	17.3	
h．	リアクター改造	700	4.9	
総設備費		14,415	100.0	

（3）運転経費

運転経費の算出に当たって問題となるのは、パイロットプラントの運転計画である。従って、パイロットプラント運転計画，所要人員数と期間，必要な運転経費の順に記載する。　此の場合、運転経費については、ＡＲＣＨ－１とＡＲＣＨ－２に分けて記載する事とする。

ａ．パイロットプラント運転計画

パイロットプラントの運転計画は、第3．4－6表の様に表される。

第3．4－6表　パイロットプラント運転計画

	運転の目的	運転回数	日数	課題／備考
ARCH・1	1.ウオーミング・アップ	都度	30日	・運転者にプロセスの内容を理解させる期間
	2.総合試運転	1	5日	・初期トラブルの抽出 ・総合性能の確認
	3.プラント性能評価試験			
	シングルインジェクター	1	10日	・反応温度，H_2/石炭比，滞留時間等、基礎的条件の確認
	マルチインジェクター	3	各10日	・シングルと同条件による性能確認 ・石炭供給モードの変更 ・ノズルアンバランス性能 等
	4.限界性能評価試験	2	各10日	・高反応圧力や低水素／石炭比、等 性能の極限を目指した条件による
	5.炭種拡大試験	2	各10日	・瀝青炭，褐炭等、太平洋炭以外の石炭による性能
	6.長期連続運転性能確認試験	1	30日	・連続運転技術の確認　以上 10 回／2 年
ARCH・2	1.総合試運転	1	5日	・初期トラブルの抽出 ・総合性能の確認
	2.プラント性能評価試験			
	上部反応器性能評価	1	10日	・下部条件は一定に保ち、上部反応条件を変化させ、性能評価
	下部反応器性能評価	1	10日	・上部条件は一定に保ち、下部反応条件を変化させ、性能評価
	3.炭種拡大試験	1	10日	・太平洋炭以外の石炭による性能
	4.長期連続運転性能確認試験	1	30日	・連続運転技術の確立　以上 5 回／年

b．所要人員数と期間

第3．4－6表にもとずき、必要人員数を纏めると、次の様になる。

第3．4－7表　必要人員表

	ARCH－1			ARCH－2		
	人　員	期　間	MAN-YEAR	人　員	期　間	MAN-YEAR
1．管理者	1	5　年間	5	1	1　年間	1
2．管理課	5	6　年間	30	5	1　年間	5
3．研究課	4	2　年間	8	4	1　年間	4
4．運転課	33	2.5年間	82.5	33	1　年間	33
5．設備課	4	2.5年間	10	4	1　年間	4
集　計	47		135.5	47		47

c．必要運転経費

イ．単価の設定

第3．4－8表　単価設定表

項　目	設　定　単　価	項　　目	設　定　単　価
1．人件費	¥ 10.0 x 10^6／年・人	－工業用水	¥ 230.0 ／t
2．原材料費		－電力	¥ 18.0 kw-h
－都市ガス	¥ 40.0／Nm^3	－触媒	
－石炭	¥ 24,000.0／t	－薬品	
－窒素ガス	¥ 80.0／Nm^3	－潤滑油	
－酸素ガス	¥ 90.0／Nm^3	－スチーム評価	

ロ．ＡＲＣＨ－１の運転経費

１）人件費	；	¥ 1,355 x 10^6
２）原材料費	；	¥ 2,935 x 10^6
３）メンテナンス費用	；	¥ 968 x 10^6
		¥ 5,258 x 10^6

ハ．ＡＲＣＨ－２の運転経費

１）人件費	；	¥ 470 x 10^6
２）原材料費	；	¥ 1,453 x 10^6
３）メンテナンス費用	；	¥ 484 x 10^6
		¥ 2,407 x 10^6

（４）ＡＲＣＨプロセス開発の為の必要経費

以上を集計したものが、ＡＲＣＨプロセス開発の為の総必要経費となる。

要素研究費	；	¥ 2,870 x 10^6
パイロットプラント設備費	；	¥ 14,415 x 10^6
ＡＲＣＨ－１運転経費	；	¥ 5,258 x 10^6
ＡＲＣＨ－２運転経費	；	¥ 2,407 x 10^6
合　計		¥ 24,950 x 10^6

従って、ＡＲＣＨプロセス開発の為の総必要経費は、¥２４，９５０ｘ１０^6　となる。

3．4．3　今後の検討課題

以上の如く、ＡＲＣＨプロセス開発の為の総必要経費は、本報告書に記述されている基本構想にもとずいて算出されたものであるが、設備費、運転経費のそれぞれについては、更に検討の必要が有ると思われる。

今回のパイロットプラントの計画では、この種のパイロットプラントの性格上、多様な試験が行えるように、可なり余裕のある設備能力を前提とした。　従って、計画された試験項目を十分にこなし、尚且つ、設備能力を何処まで下げられるか、という事が一つの課題になると考えられる。

一方、運転経費の面でも、更に節約出来る所があるのではないか、という目で、原料消費量の節約の可能性がないかどうか、具体的には、人件費，都市ガス，窒素，電力等を対象に見直すことも一つの課題になる。

設備費，運転経費共に、立地条件により大きく影響を受けるが、運転経費の面をとっても、立地により生成ガスの効果的な利用法や、スチームの形での有効利用も可能となる筈である。　此の計画では、一切無評価としている。　従って、生成ガスを水素製造原料用に利用する事等も含めて、検討する価値があると判断される。

その外、検討の対象となるであろう項目について挙げてみると、次の通りとなる。

○　水添ガス化反応器系の未反応水素を、分離回収して再循環使用するとどうなるか。

○　それにより、水素製造装置の規模縮小と、水素回収装置の設備費アップを検討して、経済性に及ぼす影響を見てはどうか。

○　水添ガス化反応器系への、窒素の送入を極力避け、製造ガスを水素製造装置の原料として、都市ガスの節約を図る計画は出来ないか。

○　水素プラントの原料として、メタノールを使用した場合の効果はどうか。

○　ＡＲＣＨ－２については、Ｆ／Ｓの進展により、ベンチスケール・テストの試験内容の見直しがあり得る。

○　当然の事ながら、立地条件がはっきりしてくれば、設備の範囲も生成物の活用の仕方も、再度検討を要する。

第4章　まとめ

第４章　まとめ

（１）調査の方針

平成２年度は水添ガス化の基礎理論と研究動向、水添ガス化法を含むＳＮＧ製造技術の開発状況、水添ガス化副生成物とその利用技術を調査し、今後は、微粉炭を用いる噴流床方式が主流になるとの結論を得た。また、部分酸化－メタン合成法と水添ガス化法の理論効率を比較すると共に、それぞれのプロセスデータを用いてＳＮＧ製造のフィージビリティスタディを行い、熱効率と経済性を評価し開発課題を抽出した。平成２年度の調査を踏まえて、本年度は、我国で噴流床方式の水添ガス化プロセスを実用化するために、①基礎研究からのアプローチについて現状での見解を出す、②反応器およびその周辺における要素技術を調査し研究開発課題を抽出する、③プロセスの効率向上の方策を検討する、④プロセス開発の計画を検討する、⑤パイロットプラントの概念設計を行う、ことを目標に調査した。

（２）基礎研究調査のまとめ

ガス化条件の影響では、ロックウェルのＡＦＨＰとＢＧ／ＯＧの運転データの中から操業条件（炭種、温度、圧力、昇温速度、滞留時間、水素／石炭比など）と炭素転換率や生成物分布との関係を調査した。タールの熱分解やコークスの生成とこれら２次反応に対する温度、滞留時間、灰分や触媒の作用などとの関係を調べた。また、反応器の形式や操作条件によって生成物の収率や温度分布が変化する様子を数学モデルを用いたシミュレーションにより推定した。これまでに提案された熱分解過程に関するシミュレーション・モデルについて調べた。増熱用のエタン、プロパンなどの合成法も調査した。

（３）反応器とその周辺要素技術の調査のまとめ

噴流床水添ガス化の反応器として、従来開発が進んでいるワンスルー式と内部循環式について、反応の達成率、液状生成物の収率、石炭処理量、反応制御の方式などの点から見直し、技術開発の現状を調べ、今後の課題を抽出した。

反応器周辺の要素技術では、石炭供給方式、ガス化剤水素を生成ガスで予熱する熱交換器、チャーの分離、冷却、搬送技術、高温高圧バルブを検討項目にとり上げた。石炭供給やチャーの搬送に使用される濃厚相輸送技術と、濃厚相での分流技術や予熱技術の開発要素を探った。熱交換器では、耐圧耐熱の構造と材質を検討した。チャーの分離では、反応器の内部構造と、生成ガスに同伴するチャーの収集方法を検討した。反応器から出る高温

チャーを流動床方式で冷却するための技術上の課題を摘出した。高温高圧バルブに関しては、ＩＧＣＣなどで開発中のガス用・粉体用各種バルブについて調査した。

（４）プロセスの効率向上のための検討のまとめ

熱効率を高めるため、昨年度フィージビリティスタディで検討したプロセス構成を最適化し、冷ガス効率は昨年度の75.2%から、78%前後に向上できることを確認した。また、プロセスの経済性を上げるには、ＢＴＸなど液状成分の収率向上が必要との見解を得た。水添ガス化反応は初期の熱分解と続く水素化分解からなるが、液収率の向上には両分解反応の個別制御が望ましい。従来のワンスルー式は初段の熱分解を重視した反応器であり、内部循環式は水素化分解の制御を特徴とするので、両反応器の特質を活かせば、個別制御式反応器を構成できると考え、新しい反応器の概念として提案した。この液収率を改善したプロセスをＡＲＣＨ（ Advanced Rapid Coal-Hydorgenation ）プロセスと名付けた。

（５）プロセス開発計画のまとめ

ＡＲＣＨプロセスを商業化するまでのスケールアップの指針を策定し、各階発段階の課題を抽出した。特に、パイロット試験では、ＡＲＣＨ－１とＡＲＣＨ－２からなる効率的な開発計画を検討した。ＡＲＣＨ－１は新しい反応器の開発の基本となる内部循環式反応器を大型化するために必要な構成要素の試験と、反応器周辺の要素技術を組み合わせ、プロセスとして構成可能かどうかを見極める試験を行う。ＡＲＣＨ－２ではＡＲＣＨ－１で確立した反応器を基本に、インジェクターを酸素部燃型に換え、熱分解用急速昇温ゾーンを設けた反応器に改造し、熱分解・水素化分解の個別制御の実証を行う。ＡＲＣＨ－２は基本となる内部循環式とワンスルー式のデータはかなり蓄積されているが、全体としては概念の段階にあるので、ＰＤＵやコールドモデル実験でその可能性を検証し、ＡＲＣＨ－１からＡＲＣＨ－２にスムースに試験を移行出来るよう、計画の概略を策定した。

（６）パイロットプラントの概念設計

パイロットプラントによる試験は、まず内部循環方式によるＡＲＣＨ－１を終え、次に反応器の一部を改造して、ＡＲＣＨ－２の試験を行うこととする。パイロットプラント試験の目的や試験項目や設備の範囲を明らかにして、内部循環式反応器のエンジニアリングデータを基に、パイロットプラントの概念設計を行った。概念設計で検討したプラント設備は、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、チャー燃焼処理工程、その他の付帯設備などである。パイロットプラントの試験項目をクリアーするための試験回数および期間と、プラントの設備費や運転経費を試算した。

本報告書の内容を公表する際はあらかじめ新エネルギー・産業技術総合開発機構石炭技術開発室の許可を受けてください。

電話　03−3987−9445