

平成4年度天然ガス高度
開発有効利用調査等委託

石炭水添ガス化技術開発調査

委託業務報告書

平成5年3月

NEDO 図書・資料室

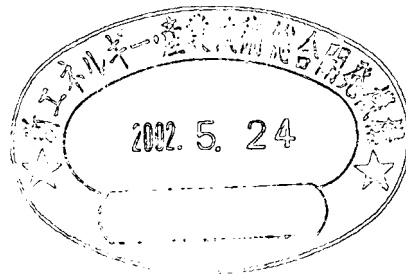


010019798-7

エネルギー・産業技術総合開発機構

平成4年度天然ガス高度
開発有効利用調査等委託

石炭水添ガス化技術開発調査
委託業務報告書



平成5年3月

新エネルギー・産業技術総合開発機構

目 次

まえがき	1
業務の実施計画	2
1. 業務の目的	2
2. 業務の内容	2
3. 業務の実施方法	3
4. 業務の実施期間	3
5. 委員会委員および担当者	4
業務成果	6
第1章 石炭水添ガス化技術開発を取り巻く状況	6
1. 1 天然ガスの新しい役割	6
1. 2 石炭関係の技術開発の新しい動き	11
1. 2. 1 ニューサンシャイン計画	11
1. 2. 2 クリーン・コール・テクノロジー	13
1. 3 電力への適用に関する考察	14
1. 4 プロジェクトとしての要件	18
1. 5 まとめ	21
第2章 石炭水添ガス化プロセススタディ	23
2. 1 本年度の検討の方針	23
2. 2 液収率向上に関するスタディ	25
2. 2. 1 反応器性能の反応シミュレーション予測	25
2. 2. 2 スタディのためのデータ処理	44
2. 2. 3 ARCH-2プロセスの評価	47
2. 3 顕熱利用に関するスタディ	70
2. 3. 1 新しいプロセス構成の考え方および提案	70
2. 3. 2 顕熱利用型プロセスの評価	73
2. 4 今後の検討への提言	92

2. 5	パイロットプラントの必要経費の見直し	95
2. 5. 1	平成3年度報告パイロットプラント費用の分析	95
2. 5. 2	費用削減の考え方	97
2. 5. 3	プロセスの構成について	98
2. 5. 4	各ユニットの諸元	103
2. 5. 5	原料・ユーティリティー使用量のまとめ	116
2. 5. 6	必要経費	116
2. 6	まとめ	122
第3章	水添チャーのガス化特性	124
3. 1	水添チャーのガス化特性に関する基礎実験	124
3. 1. 1	実験装置・方法	124
3. 1. 2	実験結果のまとめ	129
3. 1. 3	考察および評価	136
3. 2	水添チャーの部分酸化に関するスタディ	140
3. 3	まとめ	151
第4章	4年度総括	152
	海外調査報告要旨	154

ま え が き

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

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

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

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

平成2年度はその初年度として、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調査、検討のほか技術的、経済的評価および石炭水添ガス化プロセスの開発課題の抽出等を行なった。

平成3年度は、石炭ガス化プロセスの展望、反応器を含む要素技術の調査および評価、水添ガス化プロセス構成や開発項目などの検討、実用化スケジュールの検討およびパイロットプラントの基本構想で概念設計や必要経費の検討等を行った。

平成4年度は、石炭水添ガス化技術開発を取り巻く状況、石炭水添ガス化の新しいプロセスの開発において液収率向上および顕熱利用に関する可能性の検討のほか、パイロットプラント必要経費の再検討、水添チャーのガス化特性の調査等を行った。

本報告書は平成4年度の業務を報告するものであり、本調査研究の取りまとめに当たっては、多くの方々にご協力を頂いた。ここに深く感謝申し上げる次第である。

業 務 の 実 施 計 画

1. 業務の目的

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

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

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

最近、開発研究が行われている石炭水添ガス化プロセスは、石炭を水素でガス化してSNG原料となるメタンを主に生産するほか、BTX等の芳香族油を副生するものである。本年度の調査では、石炭水添ガス化の新しいプロセスの開発について、液収率向上および顕熱利用に関する可能性の検討を行うほか、パイロットプラント必要経費の再検討、水添チャーのガス化特性の調査等を行う。

2. 業務の内容

石炭ガス化技術のうち水添ガス化技術に的を絞り、平成4年度は次のような項目で調査を実施する。

- (1) 石炭水添ガス化技術開発を取り巻く状況
- (2) 石炭水添ガス化の新しいプロセス開発の調査および評価
- (3) パイロットプラントの必要経費の検討
- (4) 水添チャーのガス化特性の調査

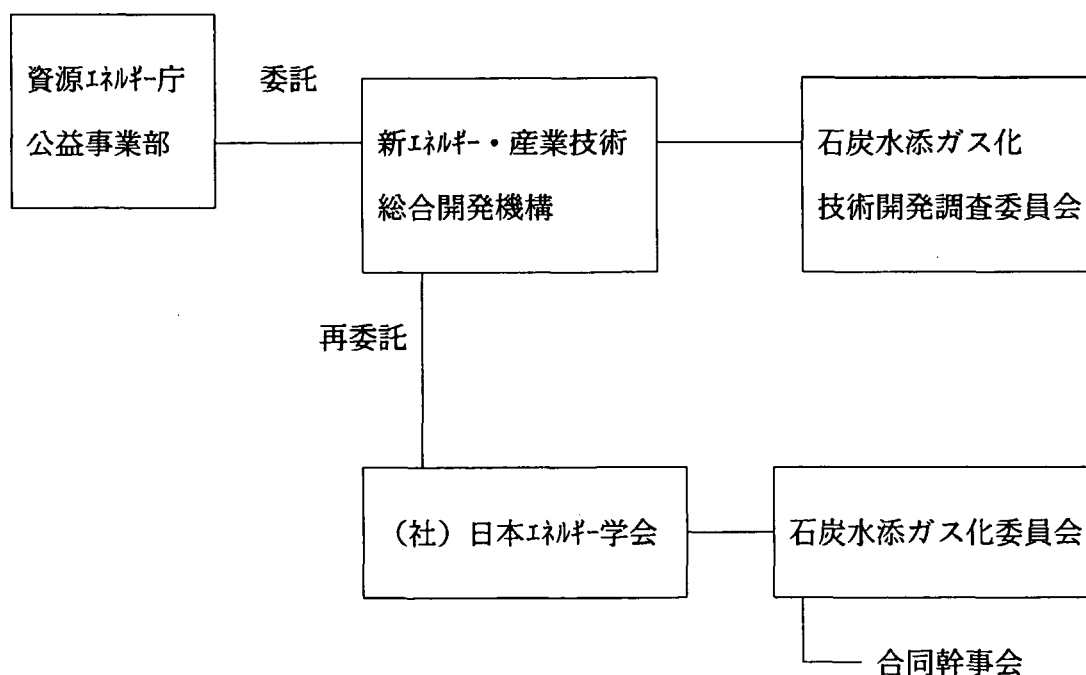
3. 業務の実施方法

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

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

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

調査体制を下図に示す。



4. 業務の実施期間

平成4年4月1日 から 平成5年3月31日 まで

5. 委員会委員および担当者

5. 1 石炭水添ガス化技術開発調査委員会委員

委員長	橋 本 健 治	京都大学 教授
委 員	浅 岡 善 清	大阪ガス(株) R&D企画部プロジェクト室長
"	生 田 義 明	三菱重工(株) エンジニアリングセンター主管
"	海 保 守	資源環境技術総合研究所 ガス化研究室長
"	北 川 三 郎	(社)日本ガス協会 技術部長
"	北 野 邦 尋	北海道工業開発試験所, 主任研究官
"	小 林 繁 鋪	東京電力(株) 開発研究所石炭研究室長
(平成4年10月から新任)		
"	志 鷹 義 明	(財)石炭利用総合センター 技術開発部長
"	竹 中 弘	東邦ガス(株) 総合技術研究所次長
"	津 留 義 通	東京ガス(株) 研究推進部部長付
"	富 田 彰	東北大学 教授
"	藤 元 薫	東京大学 教授
"	村 上 昌 三	新日本製鉄(株) 生産技術部担当部長
"	持 田 勲	九州大学 教授
"	吉 武 邦 樹	出光興産(株) 新燃料部課長

(委員の変更)

・平成4年8月 新日本製鉄(株) 佐々木委員 →村上委員

5. 2 石炭水添ガス化委員会委員

委員長	海 保 守	資源環境技術総合研究所 ガス化研究室長
委 員	加 藤 勝 二 郎	東邦ガス(株) 総合技術研究所課長
"	河 村 隆 文	新日本製鉄(株) プラズマ技術研究所主任研究員
"	瀬 尾 智 之	東京ガス(株) 生産技術部副部長
"	武 松 敏 式	岩谷産業(株) 技術保安本部副本部長
"	中 島 愛 光	三菱重工(株) エンジニアリングセンター主管

”	牧 野 三 則	資源環境技術総合研究所 主任研究官
”	松 井 久 次	大阪ガス(株) 開発研究所マネジャー
”	松 本 亅 郎	九州工業技術試験所 主任研究官
”	三 浦 孝 一	京都大学 助教授
”	森 滋 勝	名古屋工業大学 助教授
”	堀 尾 正 鞆	東京農工大 教授
”	吉 武 邦 樹	出光興産(株) 新燃料部課長

5. 3 N E D O 担 当 者

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

野 村 和 夫 主任研究員

小 林 清 孝 主査

(担当者の変更)

・平成4年7月 二見 英雄 →野村 和夫

・平成4年10月 酒井 正信 →小林 清孝

第1章 石炭水添ガス化技術開発を取り巻く状況

1. 1 天然ガスの新しい役割

総合エネルギー調査部会ガス基本問題検討小委員会（以下ガス基本検と略す）は、本年5月に中間取りまとめを行い、新しいエネルギー情勢の下での天然ガス導入の意義を次のように位置づけ、本格的な導入をすべき時期にきていると指摘している。以下にその答申の主旨について取り上げたい。

（1）天然ガスの位置づけ

① 天然ガスは、これまで石油代替エネルギーとして、その導入が推進されてきたが、平成2年夏の湾岸危機を契機として、埋蔵量が豊富で産出地域や埋蔵地域が世界中に分散化していることから、「わが国のエネルギーセキュリティを高める上で今後、重要なエネルギーである」と再認識されている。

② また、昨年のブラジルで開催された地球サミット等に端を発した地球的規模の環境問題に国際的検討が進められる中で、平成2年10月、わが国は地球温暖化防止行動計画をまとめ、国家目標を掲げてその取り組みを開始したところであるが、天然ガスは低CO₂、SO_xフリーで環境保全性の高いエネルギーであることから、「このような環境問題の対応を図る上で不可欠なクリーンエネルギーである」と考えられている。

「さらに、低NO_xのコージェネレーションや燃料電池など天然ガスを利用した機器の開発が進展した結果、天然ガスの導入は環境に調和した省エネルギーを推進するための基盤である」と期待されている。

③ 天然ガスを需要家サイドに立って見てみると、約75%が電力需要であるが、残りは主に都市ガス需要である。都市ガス需要のうち、家庭用分野では、従来から価格、供給安定性等の点で優れたエネルギーとして評価を受けてきた。

また、これまで導入の進んでいなかった工業用分野や業務用分野においてもコージェネレーションやガス冷房等の技術革新を背景に、天然ガスの利用が可能な地域では、

近年その導入が急速に進んでおり、「家庭用分野に限らず、幅広い分野の需要家からメリットのあるエネルギーである」との評価が定着しつつある。

ガス基本検は、天然ガスを①～③のようなエネルギーとして位置づけており、これらの考え方を踏まえて、

「わが国は主要先進国に比較して、その地理的条件等の差異もあって、エネルギー利用に占める天然ガスの割合が低い水準にとどまってきた。しかし、天然ガスがエネルギー政策上重要な意義を有するのみならず、幅広く需要家から受け入れられる素地が固まりつつあるので、天然ガスをわが国における基幹エネルギーの一つとして位置づけるとともに適切なエネルギー供給構造構築するために一層本格的な導入を行うべき時期に至っている。」として、天然ガスを基幹エネルギーの一つとして位置づけている。

(2) 天然ガスの供給基盤整備と安定的確保

① 天然ガスの供給基盤の整備

天然ガスの導入は、エネルギー政策や環境対策の面からだけでなく、需要家のエネルギー選択の幅を広げるなどの意義を有することから、「幹線パイプラインやLNG基地など天然ガス供給基盤の整備を社会資本整備の一環として、推進すべきである。」としている。また、「その際、天然ガスの供給基盤は潜在的な需要の広がりに応じて拡充することが望ましいが、他方、価格面等を含めて、需要家から評価されるガス供給の確保が必要であるので、潜在的な需要密度や建設コスト等を踏まえた適切な整備に努める必要がある。」としている。

三大都市圏を結んでいる地域では、大規模のエネルギー需要が見込まれる一方、LNG基地等の立地の制約がかなり増加すると予想されている。

このため、「これらの地域とLNG基地とを結ぶ広域の幹線パイプラインを整備することは、天然ガスの地域的な需要ギャップを解消するための有効な手段となる。」としており、また、「このような広域の天然ガスネットワークを形成することにより、この地域において低CO₂、SO_xフリーの天然ガスへの燃料転換が進むことに加えて、燃料電池や低NO_xコージェネレーションなどの導入により、省エネルギー効果

が期待される。」と述べている。その結果、これらの地域で環境改善効果がかなり見込まれるとともに、分散型電源等への燃料ガスの供給基盤として電力需給問題の改善にも資する面がある。

「この観点から三大都市圏及びLNG基地を連系する広域の天然ガスネットワークについて、都市ガス事業者等が更に具体的な検討を行うとともに、これをわが国エネルギーの枢要な基盤として推進していくことが望まれる。」としており、ガス基本検は天然ガスネットワーク等の供給基盤確立の必要性を説いている。

一方、天然ガスネットワークを全国規模に展開した場合の需要推定を「国土縦貫天然ガスパイプライン構想」に関する研究会（座長：平田賢芝浦工大教授）が実施しており、このネットワークが実現されると、現在の3倍弱の天然ガス需要が見込まれるとしている。（第1.1-1表，第1.1-1図）

② 天然ガスの安定的確保

今後の広域天然ガスネットワークの整備や地球環境問題での天然ガスシフトにより、天然ガスの需要が急激に増大することが予想され、天然ガスを安定的に確保していくことがとりわけ重要であり、天然ガスの供給能力の増強及び多様化を図るため、ガス田の探鉱・開発が積極的に促進されることが必要となる。

特に、適切なコストで天然ガスを調達するためには、環太平洋地域等のガス田の探鉱・開発を進めるとともに今後も安定供給が見込まれる石炭から、代替天然ガスを製造する技術を開発しておくことが将来に向けて重要である。

この関連で「緊急時に対応するためのLNG基地能力の増強、代替天然ガス（SNG）設備に関する技術開発および適切な保有、天然ガスの融通体制の整備に努めるべきである。」としている。また、「原料の安定確保の観点から、産ガス国における天然ガス事業に関する技術協力を推進する等、産ガス国との関係強化に努めるべきである。」と述べている。

ガス基本検は、天然ガスの安定供給のためには供給先の多様化に加え、代替天然ガス設備に関する技術開発の必要性も強調している。

これらの総合エネルギー調査会ガス基本問題検討小委員会の中間取りまとめの動きに加え、日本での環境基本法の制定や、米国での環境問題を重視するクリントン政権の誕生等の動きがあり、今後ますます地球温暖化問題に対する厳しい対応が求められることが予想される。これらのことからCO₂排出量の少ない天然ガスの重要性が再認識され、天然ガスへのシフトが一層進み、その需要が急激に増大してることが考えられる。

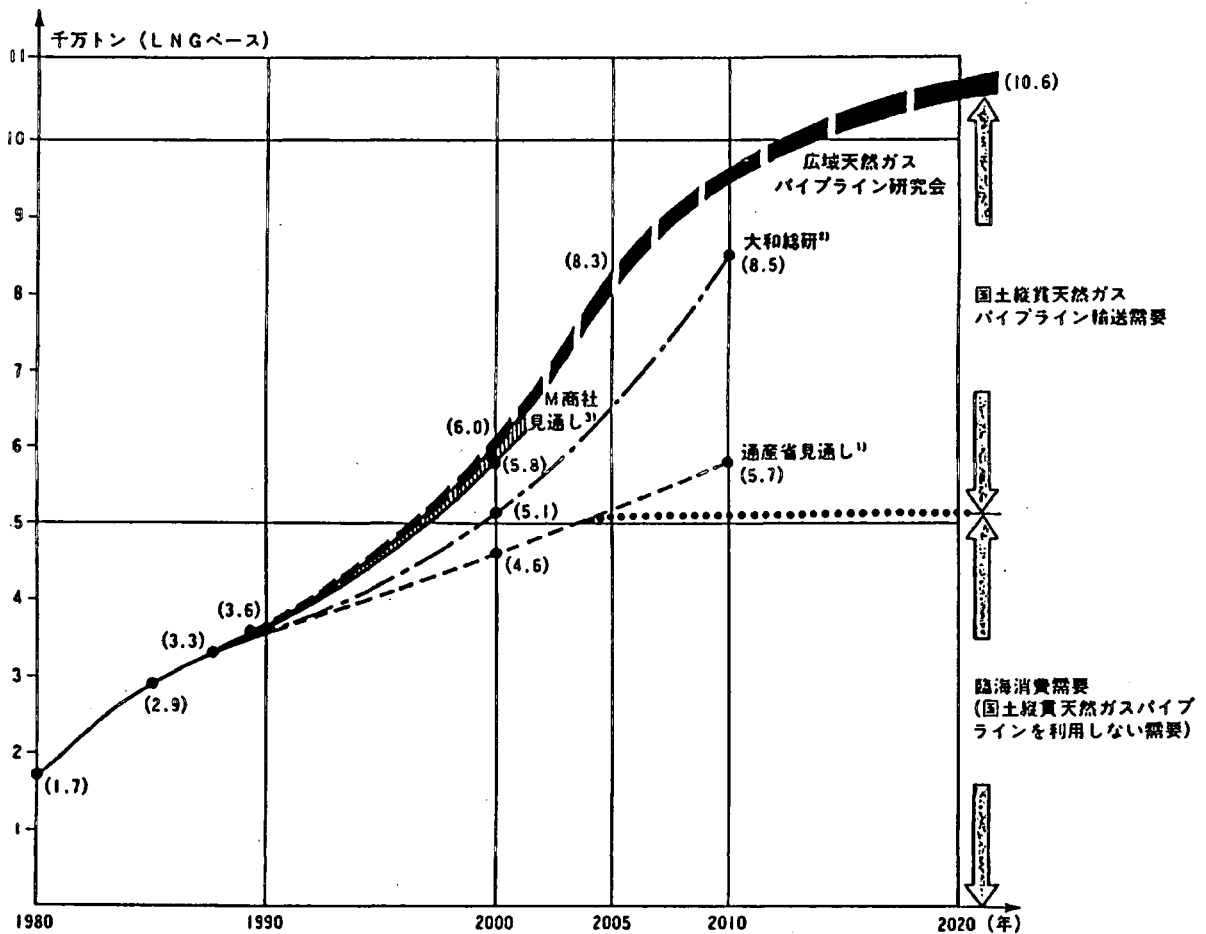
一方、日本では天然ガスの大部分がLNGとして海外から輸入されており、クリーンな天然ガスを将来にわたって安定的に供給していくためには天然ガスの供給基盤の確立を図るとともに、天然ガス源の多様化を実現していくことが今後の重要な課題となる。その一環として、埋蔵量の豊富な石炭から環境問題に配慮しつつ、代替天然ガス(SNG)を製造するプロセスを開発することは非常に重要な意味を持つこととなり、今後の石炭水添ガス化技術の開発が期待される。

第1.1-1表 天然ガスの需要予測

(LNG : 万 t)

用途		1989年	2005年	2020年	備考
電気需要用	LNG火力	2,500	3,300	3,700	
	リパワーリング	0	1,200	1,500	既設のLNG, 石油火力を対象
(電気+熱) 需要用	産業用	1,050	810	1,340	co-gene, repowering, 燃料電池
	民生用		200	460	co-gene, 燃料電池
熱需要用	家庭用・商業用		740	770	地方都市ガス会社の天然ガス化
	工業用		2,010	2,870	一般ボイラー用熱需要
合計		3,550	8,260	10,640	

出典：「国土縦貫天然ガスパイプライン構想」シンポジウム資料（1991年12月）



注) 1) 通産省総合エネルギー調査会、長期エネルギー需給見通しによる
2) 大和総研編「液化天然ガス」(1991年2月)
3) 「特集LNG事情」COMPASS、1991年5月号

出典：「国土縦貫天然ガスパイプライン構想」シンポジウム資料（1991年12月）

第1.1-1図 天然ガスの需要予測

1. 2 石炭関係の技術開発の新しい動き

1. 2. 1 ニューサンシャイン計画

国際的な課題になっている世界経済の持続的成長と地球環境の調和の抜本的解決を目指し、長期プロジェクト「ニューサンシャイン計画」が、平成5年度からスタートする。環境保護に重点をおいて資源の有効利用やクリーンな新エネルギーの本格開発などを行なうもので、先端技術を駆使し、日本の技術力による”国際貢献”を目指す。オイルショック後に、エネルギー基盤を強化する狙いで発足した「サンシャイン」「ムーンライト」の両計画は新計画に吸収・統合される。

ニューサンシャイン計画は、①地球温暖化防止を可能にする資源再利用型エネルギー技術開発②新エネルギーなどの国際的な大型技術開発③発展途上国への技術移転ーが基本的な柱となっているプロジェクトである。

これまで、日本のエネルギー技術開発を担ってきた「サンシャイン計画」は、第1次石油危機後の昭和49年に発足したもので、中長期的なエネルギー供給基盤の強化を図るため、多額の投資を伴う研究開発に政府が資金負担を行ってきた。また、「ムーンライト計画」は、昭和53年から効率的なエネルギー利用のため、革新的な省エネルギーの技術開発分野のプロジェクトを進めてきたものである。しかし、昨年6月の国連環境開発会議（地球サミット）が「アジェンダ21」などの行動計画で地球環境の危機に一致して取り組むことを決めたことから、”成長と環境の両立主義”に発想を転換したものである。

「ニューサンシャイン計画」として、新たなクリーンエネルギーの開発を進めることとしている。

石炭水添ガス化技術開発は、このニューサンシャイン計画の中で、日本および先進国の中長期的研究課題として、今後取り組むべきエネルギー・環境技術の重点研究開発課題の化石燃料高度改質技術の一つと位置づけられている。（第1.2-1 表）

第1.2-1表 ニューサンシャイン計画のエネルギー・環境技術の重点研究開発課題

	日本及び先進国の短・中期的研究開発課題	日本及び先進国の中・長期的研究開発課題	発展途上国の短・中期的研究開発課題	世界規模の中・長期的研究開発課題
1. 再生可能エネルギー	・低コスト・高効率太陽電池製造技術 ・パッシブソーラー技術 ・深部地熱開発技術 ・バイナリーサイクル発電技術 ・大型風力発電システム技術 等 8 課題	・超高効率太陽電池技術 ・有機系（バイオ）ソーラーセル技術 ・高温岩体発電技術 ・水素燃焼タービン技術 4 課題	・太陽光発電システム技術（村落電化等） ・太陽熱利用システム技術（冷凍・乾燥等） ・風力発電システム装置、メンテナンス技術 ・バイオマス燃料化技術 ・海洋温度差発電技術 等 8 課題	・大規模太陽エネルギー利用システム技術 ・宇宙太陽発電技術 ・マグマ発電技術 ・新水素技術 4 課題
2. 化石燃料高度利用	・燃料電池発電技術（リン酸型、熔融炭酸型） ・高温／高効率ガスタービン発電技術 ・石炭ガス化複合発電技術 ・石炭利用水素製造技術 等 6 課題	・固体電解質型燃料電池発電技術 ・超伝導発電機技術 ・石炭液化技術 ・化石燃料高度改質技術（石炭水添ガス化技術等） 等 8 課題	・低品位炭利用技術（液化・ガス化） ・石炭脱灰技術 ・ボイラー等の熱管理システム技術 3 課題	
3. エネルギー輸送・貯蔵技術	・高効率蓄熱技術 ・超高効率ヒートポンプ技術 ・高効率熱輸送技術 等 5 課題	・分散型電池電力貯蔵技術 ・高密度熱輸送技術 ・化学媒体熱変換技術 等 6 課題	・ヒートポンプ排熱利用技術 ・簡易蓄（冷）熱技術 2 課題	
4. 環境対策技術	・ディーゼル脱硫脱硝技術 ・希薄燃焼技術 ・低温燃焼技術 ・触媒燃焼技術 ・金属リサイクル技術 ・複合プラスチックリサイクル技術 ・フロン分散技術 ・汚染物質分解処理技術 8 課題	・細菌・藻類利用CO₂固定・有効利用技術 ・接触水素化利用CO₂固定・有効利用技術 ・人口光合成技術 ・CO₂高温分離技術 ・第3世代フロン技術 ・生分解性プラスチック技術 ・汚染物質微生物分解処理技術 等 15 課題	・バイオマス有効利用技術 ・燃焼空気比改善技術 ・簡易脱硝技術 ・排ガス浄化触媒技術 ・凝集沈澱技術 ・集塵対策技術 ・活性汚泥処理技術 7 課題	・炭素循環メカニズムの解明 ・地球観測システムの構築 ・サンゴ礁の人口造成技術 ・砂漠緑化技術 4 課題
5. システム化技術		・広域エネルギー利用ネットワークシステム技術 ・経済・環境調和型石炭転換コンプレックス技術 等 6 課題	・植林プランテーションシステム技術 1 課題	・水素利用国際クリーンエネルギーシステム技術 ・サンゴ礁再生システム技術 2 課題
6. 基礎的・基盤的技術		・革新的触媒技術 等 3 課題		
課題数	27 課題	42 課題	21 課題	10 課題

(計100課題)

1. 2. 2 クリーン・コール・テクノロジー

石炭は、豊富な埋蔵量、供給の安定性、優れた経済性等の点で重要なエネルギー資源であり、全世界の一次エネルギー供給の約30%を占め、21世紀にはその消費量の増加が見込まれる重要な資源である。特に発展途上国においては、今後高い経済成長率と急速な工業化が予想され、且つ一次エネルギー60%を占めていることから、石炭消費の大きな伸びが見込まれる。しかし、今後石炭の需要増加が見込まれる中、SO_x、NO_xやCO₂等の排出による酸性雨、地球温暖化問題など、地球環境への影響に関心が高まっており、地球環境問題に対する配慮が強く求められている。

一方、平成3年6月に、通産大臣の諮問機関である石炭鉱業審議会からは、

- ①海外炭の安定供給の確保
- ②クリーン・コール・テクノロジー（CCT）の推進
- ③地球的視野に立った国際協力の展開

の3つの重要項目が提言された。

これらを実行するためには、基礎から応用までを含めた技術の開発・普及、国際協力、技術情報交換を総合的に推進できる体制の整備が不可欠である。そこで既に石炭資源開発、石炭液化・ガス化分野の技術開発、IEA（国際エネルギー機関）の活動等において実績を有するNEDOに、平成4年10月1日、クリーン・コール・テクノロジー・センター（CCTセンター）が設置された。CCTセンターでは従来からNEDOで行ってきた石炭液化・ガス化の新エネルギー技術開発に加え、地球環境問題への対応として21世紀初頭におけるCO₂等の環境負荷の低減を図るための革新的な石炭利用技術として石炭利用次世代技術、すなわち

- ①環境調和型石炭燃焼技術〔トッピング 燃焼技術、酸素燃焼技術〕
- ②石炭熱分解技術〔コール・リファイナリー・システム技術〕
- ③高度石炭改質技術〔アドバンス・コール・クリーニング 技術〕

の開発を推進するとともに、地球的視野に立った国際協力などのCCTに関する事業を総合的に展開していくこととしている。

CCTセンターは、21世紀に向け国内におけるCCT事業推進の中核的機関として、またIEA、APEC（アジア太平洋経済協力）等の国際機関に対する国内石炭関連組織の窓口機関として、その役割を担うことが各方面から求められている。

1. 3 電力への適用に関する考察

1. 3. 1 発電用燃料への適用可能性

電力事業にとっては、IEAの新規石油火力に対する規制が存続し、世界的な天然ガス需要の急増に伴うコストの増大が懸念される中で、石炭は平成3年度の報告書記載のとおり、将来の電源用燃料としての重要な位置を占めている。一方、石炭の利用に当たっては石炭特有の燃焼残渣の灰や、SO_x・NO_xなどによる環境問題から、依然として立地上厳しい規制が存在している。日本でみる限りこうした従来型の環境問題は、技術的には解決済みとみなすことが出来るが、新たに議論の対象となった環境問題、特に、地球温暖化問題と絡めた、炭酸ガス発生量の増加に関する議論は、炭酸ガスの回収はできてもその処分について、解決の糸口すらつかめていない現在では課題として極めて大きい。

石炭を燃料としながら、炭酸ガス問題緩和の方法があるとすれば、高い発電効率で使用するしか方法が残されていないため、世界的に各種の高効率な石炭利用発電技術が模索され、競合して開発が進められている。従って、石炭を利用する新しい発電システムとして水添ガス化プロセスを用いた、SNGによる複合発電を評価する場合にも、評価の重点は自ずと効率面にならざるを得ない。以下に石炭を用いた各種の発電システムの効率と比較しながら、水添ガス化プロセスを用いたSNG利用発電方式の可能性を検討した。

(1) 各種石炭利用発電システムの発電効率(%)

石炭を燃料とする発電方式には、実用化に近い開発途上のシステムを含め、以下のような発電システムと効率が考えられる。

- | | | | | | |
|----|---|--|--|--|--|
| *1 | { | A. 微粉炭燃焼火力発電所 (送電端効率 ; 39%)
需要端効率 ; 36.3% | | | |
| | | B. 加圧流動床火力発電所 (送電端効率 ; 42%)
需要端効率 ; 39.1% | | | |
| | | C. 石炭ガス化複合発電所 (送電端効率 ; 43%) *3
需要端効率 ; 40.0% | | | |
| *2 | { | D. 燃料電池発電所 (送電端効率 ; 27%)
需要端効率 ; 27.2% + 11.2%相当の燃料油 + 27%相当の熱 (最大) | | | |
| | | E. 水添ガス化SNG複合発電所 (1) (送電端効率 ; 31.2%) *4
需要端効率 ; 30.7% | | | |
| | | F. 水添ガス化SNG複合発電所 (2) (送電端効率 ; 36.2%) *5
需要端効率 ; 35.8% | | | |
| | | | | | |

*1 火力発電所を需要地から遠隔の地に立地するものとし、送電・配電に伴う損失は相対値で、送電端効率の7%と想定した。

*²発電プラントのみを需要地近傍に設置するものとし、配電に伴う損失は相対値で、送電端効率の1.2%と想定した。

需要端効率には、SNG製造プロセスにおいて発生する0.5%の電力を加算。

*³石炭ガス化複合発電技術研究組合（国家プロジェクト）の開発目標。

*⁴1300℃級ガスタービンと組み合わせた、最新の天然ガス燃焼コンバインド・サイクル発電所の送電端熱効率を47%として計算。

*⁵SNG併産の燃料油を上記と同じガスタービンで燃焼出来るものとした場合のコンバインド・サイクル発電所の効率を適用。

以上の発電システムの他にも、石炭を燃料としたMHD発電、トッピング・サイクル発電など、高い発電効率を目指したシステムが提案されているが、これらはまだ要素研究の域を脱していないため、検討対象から除外した。また、平成3年度に検討した発電コストについては、石炭ガス化複合発電・加圧流動床発電・SNGを用いたコンバインド・サイクル発電など、何れも適用ベースで建設されたことがないため、コストは確定的ではなく、評価は今後に委ねられるべきである。従って、再度細かに言及はしないが、建設コストに大きな差がない限り、定性的には設備の利用率が高いSNGを用いたコンバインド・サイクル発電が有利となってくる可能性がある。

（2）SNGを利用した複合発電システムの評価

発電システムの評価に当たって、第一に考慮する点は発電効率であるが、副産物の燃料油や一定レベル（温度・量）以上の排熱は、評価の対象にすべきである。しかし、化学エネルギーの形でエネルギーを保有している副生油については、評価の方法があっても、エネルギーの最終形態となった低レベルの熱については、必ずしも一定の評価方法が有るわけではない。言い替えると、低レベルの熱は他に転用が難しいエネルギーであり、普遍的な需要がない為に評価が分かれざるを得ない。また、SNGプロセスから副生した燃料油については、エネルギーの変換過程を経ることなく、損失が考慮されていない化学エネルギーを、そのまま単純にカロリー換算で評価するのは妥当でない。言い替えると、何らかの変換手段を経た後の効率をもとに総合的に比較すべきである。

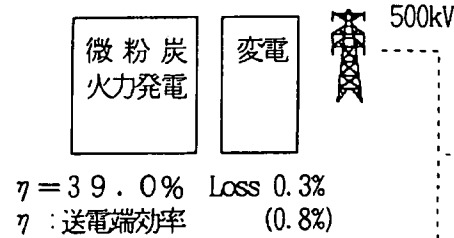
単にエネルギーの形態を変化させるだけであれば、最も効率の高い方法は燃焼による化学エネルギーから熱エネルギーに変換する方法である。電気事業者にとっても、総合的なエネルギー利用効率向上を目指すCO-Generationは重要であるが、我国の気候・風土から見て、電力の需要端における大規模な熱需要の有無は不透明であり、熱と電

気を並行利用しても、電力への変換効率を犠牲にするならば、必ずしも総合的なエネルギー利用効率の向上には直結しない。従って、実質的には需要端における電力変換効率を優先して評価せざるを得ない。この場合、僅かな発電効率の差も評価結果に影響を及ぼす。

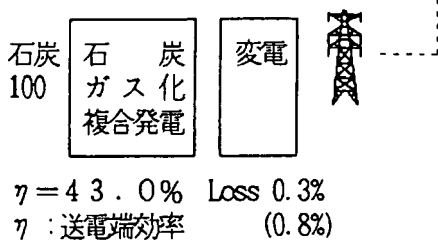
以上の観点から前項の各発電システムについて評価すると、単純比較では、水添ガス化プロセスを経た発電システムは、何れも在来型の微粉炭火力・加圧流動床ボイラを用いた発電システム並びに石炭ガス化複合発電システムより劣る。一方、SNGを用いたシステム内で比較すると、メタンを燃料とした磷酸型燃料電池システムは、エネルギー変換密度が低く大規模電源には向かない。更に、電力と熱を同時に発生するが熱エネルギーの利用効率はサイト依存性が高く、一律に評価できない上、電力の変換効率では長距離送電ロスを検討しても、SNG燃焼によるガスタービン複合発電システムの方が高い。また、複合発電システムでは水添ガス化プロセスで発生した副生油を“燃料油”としてそのままではガスタービンで使用できないが、カロリーで等価な軽油・灯油と置き換えれば、この副生油に相当する発電出力を得ることもできる。副生油による発電量の増加まで考慮したものが前項のケース「F」であり、需要端のエネルギー利用効率は在来型の微粉炭火力ケース「A」と同等になる。従って、水添ガス化プロセスを用いたSNGによる発電システムを、発電効率のみに限定して評価すれば、現在石炭を利用した、発電の高効率化を目指して開発が進められている加圧流動床燃焼ボイラーや、石炭ガス化複合発電技術より劣る。

しかし、発電システムの選定評価に当たっては効率以外に「立地の受け入れられ易さ」「燃料の長期安定性」など重要な判断要素がある。水添ガス化SNGプロセスを利用した発電は、この二つの面で優れた特性を持っていると評価できる。まず立地の受け入れられ易さでは、将来全国的にガスパイプライン網が整備されると言う前提に立てば、LNGと同じメタンを燃料を使いながら、在来の微粉炭火力並の効率で都市近郊の発電所立地も可能になる。また既設発電所のリパワリング用燃料やLNGのバックアップ用としても有効性を発揮する。更に、一次燃料が燃料の中では最も資源量の多い石炭であり、この点から改めて議論するまでもなく、水添ガス化プロセスを用いたSNGを燃料とする複合発電システム用燃料の供給安定性は極めて高く、こうした点を考慮すれば電気事業においても水添ガス化技術の開発は意義がある。

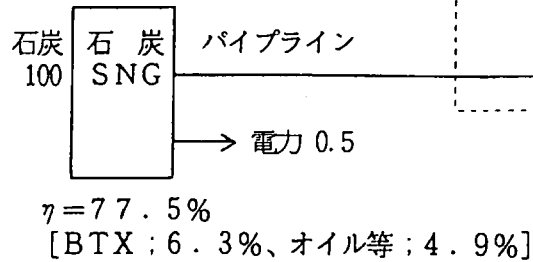
①微粉炭発電（遠隔地）



②石炭ガス化複合発電（遠隔地）500kV

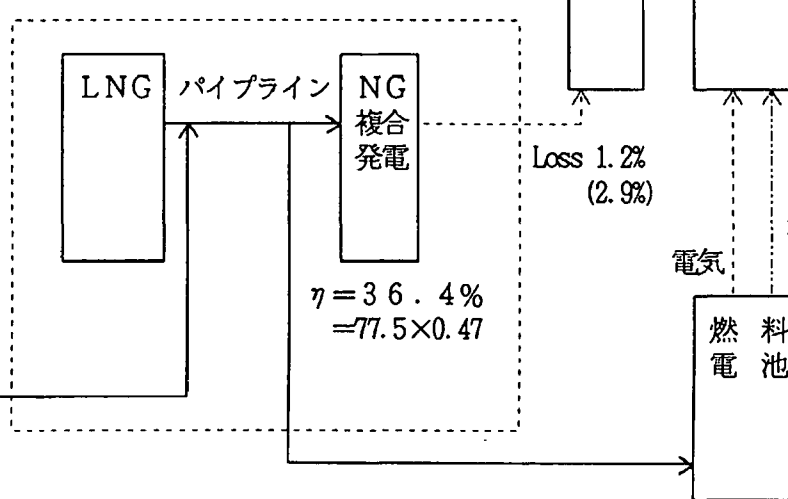


③石炭SNG

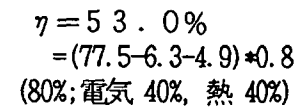


注: 石炭ガス化複合発電とNG複合発電との効率差を4%としている。

コンビナート



④石炭SNG—燃料電池



() 内は各ユニットの効率及びロス

① 利用効率 36.3%
 $= 39.0 \times 0.93$

② 利用効率 40.0%
 $= 43.0 \times 0.93$

③ 利用効率 35.8%
 $= 77.5 \times 0.47 - 1.2 + 0.5$

④ 利用効率 64.2%
 $= (77.5 - 6.3 - 4.9) \times 0.8 + 6.3 + 4.9$

第1.3-1図 石炭ガス化複合発電（遠隔地）／石炭水添ガス化SNG発電／燃料電池効率比較
 微粉炭火力発電

1. 4 プロジェクトとしての要件

まず、国家プロジェクトの意義について考えてみる。国家プロジェクトとして推進する目的は、国民生活の安定と向上のために将来必要となる技術の開発をより効率的に推進する際に、単一の企業や業界では必ずしも十分でない技術開発力を、政府主導の基でより組織的かつ積極的に機能させることにある。この観点から、国家プロジェクトとしての第一の要件は、研究開発テーマが国の政策に合っているか、つまり、そのプロジェクトの開発推進の意義が国民に広く理解され、国の資金で開発する事に対しての国民的合意が得られるかどうかという点であろう。

国民的合意を得るための条件について考えてみると、研究開発すべき技術が、国内外の既存の技術に比べて優位性があること、さらに、開発された技術成果が国内外で広く利用可能であり、多くの業界において波及効果が大きく期待されるものでなければならない。加えて、NO_x SO_x等従来型の環境問題を完全にクリアーしているのみでなく、CO₂等の地球規模の環境問題にも対応可能なこと、つまりその技術が従来の技術よりも高効率かつ地球環境問題に対しても何らかの解決の可能性を含んだものでなければならない。

次に、その研究開発すべき技術の技術水準について考えてみる。国の資金を効率的に使用するという観点から、要素研究等において基礎分野の研究が既に終了し、その要素研究の成果からパイロットプラント規模の運転研究へと移行がスムーズに行える段階にあるかと言う技術の成熟度が問われよう。開発要素・リスクに関しては、純粋に技術的なリスクが大きすぎて単一の民間企業では行えないことのみならず、非常に莫大な資金と長い開発期間がかかるため、民間の技術開発力で対応するには事業的なリスクも大きすぎる。後者のリスクは、費用対効果つまり投資した費用に対して効果が得られるのが非常に長いリードタイムを要し、かつ資金量が莫大であるという事業的なリスクであり、現状のエネルギー価格の低下傾向・先行きの不透明感から、さらに民間での技術開発の可能性は小さくなり、最も国の主導的な技術開発が望まれるポイントであろう。

権利関係では、ノウハウの封印等の手続きは順次行うものとして、基本的にその研究開発すべき技術にその開発を阻害する要因がないこと、つまり、踏み台とする技術に制約がなく、これらの封印した技術を基に開発が推進できることが挙げられよう。技術の新規性からみて、いくつかの特許が出願済で開発すべき技術の基本コンセプトが既に存在する方が望ましいが、従来の国家プロジェクトの例をみても、特許の成果が必ずしも必要と言う

わけでもなく、新規性のある基本コンセプトが調査委員会の活動を通して確立されることが基礎的要件であろう。

重ねて強調しておきたいのは、国の政策の中でエネルギー・セキュリティに関しての技術開発をどう選択し、どの程度積極的に推進しておくかという判断は、非常に容易ならざるものである。政府がどのテーマを優劣つけて選択するかは、その不透明なエネルギー経済状況の中で、その将来での必要性を調査委員会の活動を通じての現状予測し得る開発の意義、需要予測および経済性を基に判断せざるを得ない。

以下に、国家プロジェクトとして立ち上げるための要件について箇条書きでまとめてみた。左側に一般論としての要件を、右側にその具体的な説明と石炭水添ガス化プロジェクトの場合についての記述を行った。その結果、石炭水添ガス化プロジェクトは、これらの国家プロジェクトとして立ち上げるための要件を十分満足していると考えられる。これらの要件は、これまでの国家プロジェクトについて調べた中から共通項として抽出されたものであり、各項目の強弱の重みづけに、立場上あるいは個人的な程度の差があろうが、今一度考え方が整理され、より明確な基準とすることが望まれよう。

プロジェクト立ち上げのための要件

〔1〕開発推進の意義

- | | |
|----------------|--|
| 1) 国の政策と合っているか | 将来にわたる基幹エネルギーとしての天然ガスの確保 |
| 2) 豊富な資源の活用 | 石炭SNGによる天然ガスの安定供給確保
バーゲニングパワー |
| 3) 技術の優位性 | 国内及び諸外国のプロセスに比べて優位 |
| 4) 波及効果 | 開発された技術成果が、国内外で広く利用可能 |
| 5) 環境適合性 | 高効率、SO _x NO _x 等の公害問題なし |
| 6) 参画企業 | ガス業界／その他異業種業界 |

〔2〕技術の評価

- | | |
|-------------|--|
| 1) 技術の成熟度 | 要素研究の成果を生かし P P への移行が十分可能 |
| 2) 開発要素・リスク | 開発要素十分に有り、技術的リスク及び事業的リスクがあり、民間独自では開発が期待できないので
国家資金が必要 |
| 3) 権利関係 | 既存の特許・工業所有権等阻害する要因がない
踏み台とする技術に制約がない |
| 4) 新規性 | 新規性のある基本コンセプトが有る |

〔3〕需要予測

- | | |
|-----------|--|
| 1) 将来需要 | ガス業界／電力業界等での天然ガスの需要増大 |
| 2) リードタイム | P P と D P で 1 0 数年、従って、要素研究に引き
続き P P を立ち上げ、そして着実かつ計画的に遂行 |

〔4〕経済性

- | | |
|----------|-------------------------|
| 1) 競争力 | L N G と比較して十分競合可能 |
| 2) コスト低減 | P P 運転研究によるコスト低減の可能性の追求 |

〔5〕開発方針

- | | |
|------------------|---------------------------------|
| 1) 国の財政状況 | 国の予算枠に、新規プロジェクトを立ち上げる
余裕がある |
| 2) P P 規模、スケジュール | 商業化の時期をにらんだ開発ステップの設定 |
| 3) 予算総額・費用負担 | 特定の民間企業では費用負担が困難なため、
国家資金が必要 |
| 4) 開発体制 | N E D O を中心として、民間技術力を結集 |

1. 5 ま と め

第1章では石炭水添ガス化技術開発調査を取り巻く状況として、最近の動きからガス基本問題検討小委員会の「答申」や、「ニューサンシャイン計画」、「クリーン・コール・テクノロジー」について述べたほか、電力サイドから見た石炭SNGの発電燃料の適用可能性およびプロジェクトとしての要件について述べた。

平成4年5月のガス基本問題検討小委員会の答申の中間とりまとめでは、天然ガスを国の基幹エネルギーとして位置づけている。その理由として、天然ガスは我が国のエネルギー・セキュリティを高める上で今後重要なエネルギーであること、特に環境問題の対応を図るうえで不可欠のクリーン・エネルギーであることや、需要面から見て、3/4が発電用1/4が都市ガス用であるが、都市ガス用では従来の家庭用にとどまらず、コジェネレーションやガス冷房等の技術革新を背景にその導入が急速に進んでいることをあげ、さらに、パイプライン網による天然ガスネットワークの供給基盤確立の必要性を指摘している。この天然ガスネットワークを全国規模で展開した場合は、現在の3倍もの天然ガス需要が見込まれると言う研究会の報告もある。一方、供給サイドから、この莫大な量の天然ガスの安定供給に対応するため、「代替天然ガス設備の技術開発の必要性」が指摘されており、それは石炭水添ガス化技術開発を意識して答申に書かれたものである。埋蔵量の豊富な石炭から代替天然ガスを製造するプロセス開発は重要な意味を持ち、今後の石炭水添ガス化技術開発が期待される。

石炭関係の技術開発の新しい動きとしては、世界経済の持続的成長と地球環境の調和の両立を目指して、平成5年度から「ニューサンシャイン計画」がスタートする。従来の「サンシャイン計画」や「ムーンライト計画」を吸収・統合し、地球環境の保護に重点を置いて、資源の有効利用や新エネルギーの本格開発などを行うもので、石炭水添ガス化技術開発は、この「ニューサンシャイン計画」の中で中長期的研究課題として、化石燃料高度改質技術の一つにとり上げられている。また、平成4年10月、NEDO石炭技術開発室を発展的に改組し、クリーン・コール・テクノロジー・センターが設置された。これは従来からNEDOで行ってきた石炭液化、ガス化の新エネルギー技術開発に加え、地球環境問題の対応として、革新的な石炭利用技術の開発を推進するとともに地球的視野に立って国際協力などのクリーン・コール・テクノロジーに関する事業を総合的に展開していく使命を持っている。

石炭水添ガス化の電力への適用に関しては、昨年度実施した「発電燃料への適用の可能性」のスタディに電力事業サイドから考察をいただいた。効率面では、すべて発電という変換手段で評価した場合、〔石炭SNG＋パイプライン輸送＋天然ガス複合発電〕方式は、〔遠隔地微粉炭火力発電〕方式と同等であり、加圧流動床ボイラーや石炭複合発電よりも劣ることが分かった。しかしながら、コスト面では設備利用率の高い〔石炭SNG＋パイプライン輸送＋天然ガス複合発電〕の方式が〔遠隔地石炭複合発電〕方式よりも有利になる可能性があること、また、都市部での発電所立地の受け入れられ易さや燃料の長期安定供給の面から優れた特性を持ち、電気事業においても石炭水添ガス化技術開発の意義があることが分かった。

最後に、このプロジェクトがさらに進んで行くための要件を整理し、検討した。その結果、石炭水添ガス化プロジェクトは、国家プロジェクトとして立ち上げるための要件を十分満足しているという結論を得た。

第2章 石炭水添ガス化プロセススタディ

2. 1 本年度の検討の方針

平成2、3年度には水添ガス化の基礎的な研究動向を調査すると共に、水添ガス化反応の物質収支と熱収支から反応器の性能や最適操作条件などを推定できる数学モデルを製作した。また、平成3年度に、既に大型化研究に達している内部循環式の水添ガス化炉をベースに効率を出来るだけ高めるプロセススタディを行い、ARCH-1を提案した。ARCH-1の経済性の感度分析を行い、SNGコストがBTX等の液収率に大きく依存することを突き止めた。経済的観点に加えて、資源小国の我国が石炭を有効に利用する立場からも、BTX等の併産は重要との見地から、BTX収率を改善する方策を検討した。その結果、石炭の急速熱分解反応を主とする上部急速昇温ゾーンと水素化分解反応を主とする下部等温ゾーンを持ち、それぞれを独立に制御できる反応器を持つプロセスが適切と考え、その概念をARCH-2として提案した。

本年度は、概念として提案されたARCH-2の可能性を、基礎的検討で作成した数学モデルを用いて検討する。すなわち、ARCH-2の基本概念である熱分解反応と水素化分解反応を独立に制御できたときの生成物分布を予想し、液収率を向上する反応原理の可能性を見極める。同じく数学モデルを用いて、目的とする液収率を与えるARCH-2の反応条件と物質収支、反応器容積などを推定する。この収支関係の数値をもとに、ARCH-1の経済性を解析した手法に従って、プロセス化するときの冷ガス効率や経済性を試算し、プロセスとして評価する。

水添ガス化において、含酸素化合物の生成は大きな発熱反応である。しかし、メタンの生成はそれほど大きな発熱反応ではなく、BTXの生成は吸熱か非常に弱い発熱反応である。このため、水添ガス化反応の発熱量は生成物の持ち出す顕熱を補って余りあるほどの余裕はない。今年度の検討課題としたBTXの収率を高めたプロセスとした場合は、相対的にメタンの生成割合が減るので、反応熱はかなり減少する上に、BTXの熱容量が大きく、持ち去る顕熱も大きいため、その生成が進むほど反応器の温度維持が難しくなると、推定される。もともと、水添ガス化プロセスを組むには何らかの熱補給手段が必要で、生成ガスと原料水素との熱交換の他に、内部循環式では炉内での反応熱の汲み上げを、ロックウェルのワンスルー型では原料水素に酸素を加えて部分的に燃焼してきた。

そこで、プロセスの効率と経済性を改善する試みとして、チャーを部分酸化して得られるガスの顕熱を、水添段階の反応温度を維持するための熱源として利用する場合の効果について、ARCH-1のプロセスデータをもとにスタディする。水添ガス化プロセスに組み込むチャーのガス化は、原料が微粉であり、疎水性が強いことドライフィード・スラグトップ方式の噴流床ガス化を利用するのが最適と考えられる。この場合のガス化温度は1600℃まで上がることが考えられる。従来プロセスではこの高温ガスを熱回収ボイラーで冷却し、ダストや硫黄化合物を除去し、シフト転換、脱炭酸して室温付近の水素に転換して、プロセス内を循環する水素に混合した。本年度は、チャーの部分酸化で得られる高温ガスを冷却せずに循環水素に混入して、その顕熱を水添ガス化の熱補給に使用する方式を検討する。こうしたプロセス構成をとった場合、水添段階での水素分圧が低下して反応に悪影響する事も予想されるが、今回は検討の始めとして、構成を変えた場合のプラントコストや冷ガス効率やSNGコストに及ぼす影響を調べ、プロセスとして評価する。

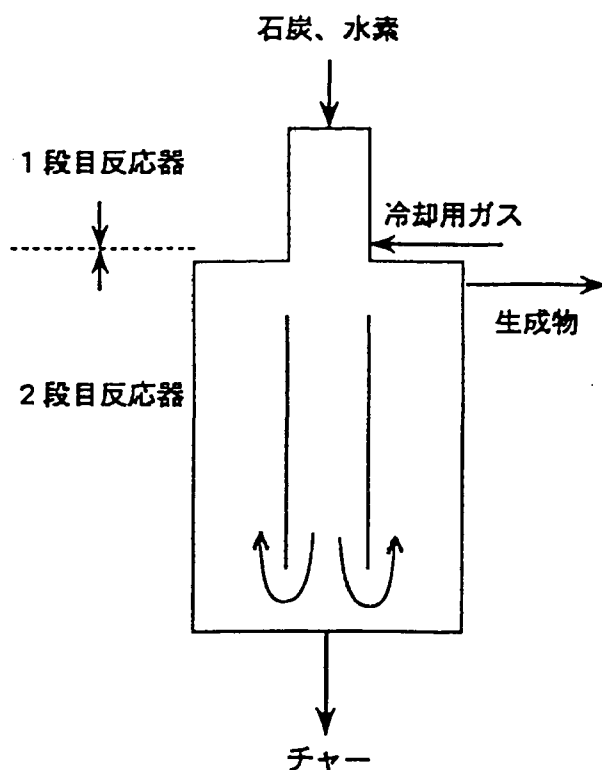
平成2年度から進めてきたARCH-1、2や顕熱利用型のプロセス構成などの検討に基づき、今後我国が開発すべき水添ガス化プロセスのあり方を提案する。地球規模でのエネルギー資源の枯渇と環境保全の認識が高まる中で、従来とは異なる技術への要望が予想される。これに答える技術開発の目標と体制を考察してみる。

平成3年度に報告したパイロットプラントによる試験費用を詳細に見直し、経費の削減の可能性を検討する。既に保有している機器類を運用すると共に、水素製造装置の規模の適性を図り、水素の原料として都市ガスの他に水添ガス化反応器からでる生成ガスを利用するなどの対策の効果を調べる。

2. 2 液収率向上に関するスタディ

2. 2. 1 反応器性能の反応シミュレーション予測

昨年度、水添ガス化において炭素転化率と B T X 収率を共に増加するプロセスとして A R C H - 2 が提案された。本プロセスの想定する反応器形式を第 2. 2-1 図に示す。反応器は上下に直列に接続された 2 つの反応器より成る。ここでは、上段の反応器を 1 段目反応器、下段のそれを 2 段目反応器と呼ぶことにする。A R C H - 2 では、まず 1 段目の反応器を高温（ $\sim 900^{\circ}\text{C}$ ）、短滞留時間（1 $\sim$ 3 秒）で操作してある程度の炭素転化率を達成すると共に高収率でオイルを生成させる。次いで、第 2 段反応器入口に冷却用ガスを導入し、反応器を低温（ $\sim 700^{\circ}\text{C}$ ）、長滞留時間で操作し、B T X の分解を抑制しながらオイル分をできるだけ B T X に変換しようとする



第2.2-1図 ARCH-2 反応器
概念図

ものである。ここでは、反応シミュレーションによって本プロセスの性能の推定を試みる。

(1) シミュレーションの概要

1 段目と 2 段目の反応器を区別して考える。1 段目の反応器は、基本的には昨年度用いた方法によってシミュレートし、2 段目の反応器の入口条件（生成物組成）を決定する。2 段目の反応器内では、オイル、B T X と水素の反応のみが起きると考えられるので、気相反応として解析する。1 段目と 2 段目の反応器のシミュレーションによって、ある程度の炭素転化率を維持しながら、B T X 収率を 15 %（炭素転化率基準）以上にできる操作条件を見いだす。

シミュレーションに際して採用した操作条件を次に示す。

- 反応圧力：70 atm
- 1 段目反応器出口でのガス、チャー、灰分温度：1173K（ 900°C ）
- 2 段目反応器出口でのガス、チャー、灰分温度： $\sim 973\text{K}$ （ $\sim 700^{\circ}\text{C}$ ）

・ガス滞留時間：1 段目 1～3 sec、2 段目 約 10 secを想定するが、シミュレーションにより最適値を定めるものとする。

・冷却用ガス 組成：2 段目反応器出口ガスを精製したガスを用いる

(水素 約70%、 CH_4 約25%、 CO ：約5%)

温度：308K (35℃)

使用量：反応器後段の熱交換器出ガス量の約30%

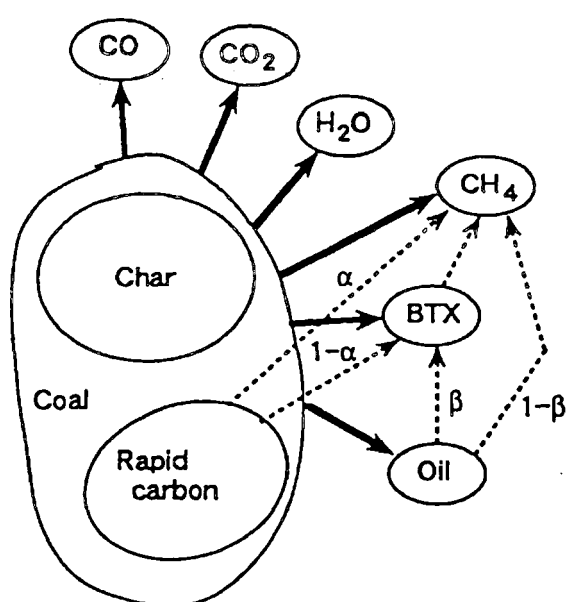
・反応速度データ：東京ガス(株)提供のデータを参考に推定する

(2) 第1 段目反応器の設計

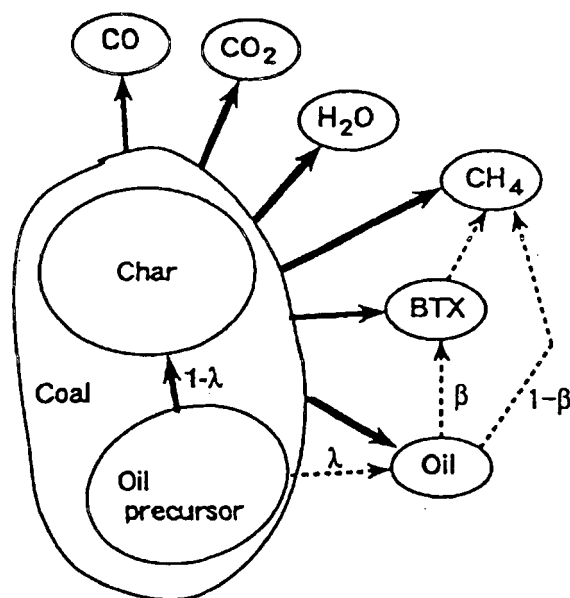
a. モデルの概要

東京ガス提供のデータに基づき、昨年度用いた反応モデルを再検討した。その結果、第2.2-2 図に示すように反応経路を変更した。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。実線は初期熱分解反応経路を、破線は水素存在下での2 次的反応を表す。反応経路変更に伴う主要な変更点は次の通りである。

① 熱分解初期反応によって生成する成分としてOil precursorの代わりにRapid carbonを考えた。Rapid carbonは水素存在下で $\alpha : (1-\alpha)$ の速度比で CH_4 とBTXに水素化分解されるものとした。 α は温度と水素圧によって変化するが、実測値との fittingから次のよ



(a) 今回用いた反応モデル



(b) 昨年用いた反応モデル

第2.2-2図 水添ガス化反応モデルで考慮した成分と反応経路

ように決定した。

$$T=900^{\circ}\text{C} \text{において} \quad \alpha = 1 - \frac{9.26}{P_{\text{H}_2} + 8.33}$$

$$P_{\text{H}_2} = 3.0 \text{ atm} \text{において} \quad \alpha = 0.95 \cdots \cdots T = 700^{\circ}\text{C}$$

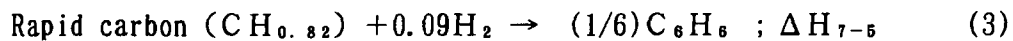
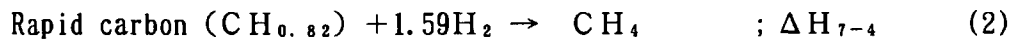
$$\alpha = 0.85 \cdots \cdots T = 800^{\circ}\text{C}$$

$$\alpha = 0.76 \cdots \cdots T = 900^{\circ}\text{C}$$

② Rapid carbonの生成速度はBTX、Oilの生成速度と等しいものとした。Rapid carbonの生成量 f_{Prc} [kg/kg-daf coal] は温度 T [K] と水素圧 P_{H_2} [atm] の関数で、次式で相関した。

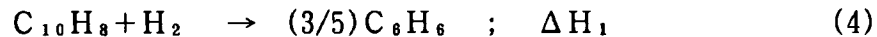
$$f_{\text{Prc}} = 5.00(P_{\text{H}_2})^{0.337} e^{-5245/RT} \quad (1)$$

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



ΔH_{7-4} 、 ΔH_{7-5} はそれぞれの反応の反応熱である。

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



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

その他は昨年度と同様にモデル化した。すなわち、反応器は気流層型とし、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、(2)～(5)の反応とシフト反応のみについて考えた。以上仮定、考察に基づいて定式化した基礎方程式を第2.2-1表に示す。

b. 計算に用いたパラメータ

イ 速度パラメータ

できるだけ文献値を採用することにした。文献値が見あたらない場合、実測値とフィッティングして決定した。第2.2-2表に用いた各パラメータの値を示した。

第2.2-1表 反応シミュレーションに用いた基礎方程式

【使用記号】

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

$$\begin{aligned} \frac{df_{BTX}}{dz} = & \frac{d(f_{BTX})_p}{dz} + (1.0168\kappa_{Oil} f_{Oil} - \kappa_{BTX} f_{BTX})/u_f \\ & + 1.01(1-\alpha)\kappa_{Prc} f_{Prc}^*/u_s \end{aligned} \quad (11)$$

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

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

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

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

$(f_i)_p$: 粒子内における

各成分の累積生成量[kg/kg

-coal]、 f_i : 各成分の収

率(気相における値)[kg/

kg-coal]、 f_i^* : 石炭中で

各成分に変化し得る最大量

[kg/kg-coal]、 $(f_{prc}^*)_p$:

粒子内におけるRapid

carbonの存在量[kg/kg-

coal]、 k_i : 石炭内の反応

の速度定数[1/s]、 κ_i : 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]、

$c_{p,j}$: 比熱容量[J/(kg·K)]、

M_i : 分子量[kg/mol]、 Δ

H_i ($i=1\sim3$) : 反応(4)

～(6)の反応熱[J/mol]、

ΔH_{7-4} 、 ΔH_{7-5} : 反応(2)、(3)の反応熱[J/mol]、 K_{shift} : シフト反応の平衡定数[-]、

z : 反応器軸方向距離[m]

(添字) s : 粒子の値、 g : 気相の値、 j : 成分

第2.2-2表 計算に用いた反応速度パラメータ

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

2次反応の速度定数	決定法
$k_{prec} = 7.5 \times 10^{13} e^{-249,000/RT} s^{-1}$	k_{CH_4} に等置
$k_{oil} = 1.22 \times 10^4 (P_{H_2})^{1.48} e^{-154,000/RT} s^{-1}$	実測値にfitting*)
$(1-\beta)k_{oil} = 5.96 \times 10^4 (P_{H_2})^{0.84} e^{-154,000/RT} s^{-1}$	実測値にfitting**)
$k_{BTX} = 9.75 \times 10^9 e^{-263,000/RT} s^{-1}$	Rockwellのデータ ³⁾

*)活性化エネルギーはナフタレンの分解速度の値を採用

**) P_{H_2} 依存性はHuttingerらの報告⁴⁾に基づき決定

□ 各成分の生成可能量 f_{j^*}

f_{j^*} は、太平洋炭の窒素中での熱分解結果、東京ガス(株)水添ガス化データより第2.2-3表のように定めた。

第2.2-3表 初期熱分解による各成分の生成可能量

成分	CO	CO ₂	H ₂ O	CH ₄	BTX	Oil	Rapid C.
f_{j^*} [kg/kg-daf coal]	0.083	0.062	0.100	0.060	0.012	0.164	式(1)

c. 反応シミュレーションの結果

イ 東京ガスデータとのfitting

まず、第2.2-4表に示す東京ガステスト結果を反応シミュレーションにより表現できるかどうかを検討した。その際に、生成物収率は全て炭素転化率で与えられていたが、太平洋炭の元素分析値（C:77.1%、H:6.1%、daf基準）を用いてdaf基準の収率に変換し、それを反応シミュレーション結果と比較した。なお、低温で生成する C_2H_6 、 C_3H_8 は CH_4 で代表した。

第2.2-3図に、反応温度 $900^{\circ}C$ 、反応圧力 30kg/cm^2 、水素／石炭供給比 $=0.15\text{kg-mol/kg}$ における収率と滞留時間の関係の実測値と計算結果の比較を示す。滞留時間が小さい部分でBTX収率の計算値が若干大きい。全体的に見て反応シミュレーション結果と実測値は良く一致している。第2.2-4図には、反応圧力 30kg/cm^2 、水素／石炭供給比 $=0.15\text{kg-mol/kg}$ 、滞留時間11秒において反応温度の影響を検討した結果を示す。この場合も反応シミュレーションは実測値を非常に良好に表現できている。第2.2-5図には、反応温度 $900^{\circ}C$ 、水素／石炭供給比 $=0.15\text{kg-mol/kg}$ 、滞留時間11秒において反応圧力の影響を検討した結果を示す。圧力 $15\sim 30\text{kg/cm}^2$ の範囲で実測値とシミュレーション結果は非常に良く一致している。

以上の結果から、ここで提出した反応シミュレーション法はテストデータが得られた操作条件の範囲内では非常に有効であると判断できる。この操作条件の範囲外で本シミュレーションが適用できる保障はないが、反応圧力 70kg/cm^2 まで計算を実施してみると第2.2-5図に示す結果が得られた。反応圧力が増加するとOil収率は0になり、BTXと CH_4 の収率が増える結果を与えており、傾向的には納得できる計算結果である。最初に述べたように、 $900^{\circ}C$ 程度で短滞留時間での操作を想定している。第2.2-3図の結果は、短い滞留時間でTotal収率は一定に達することと、Oil収率は非常に短い滞留時間で最大値をとることを示している。最初に述べたように、ARCH-2プロセスでは第1段目の反応器を $900^{\circ}C$ 程度で短滞留時間で操作し、ある程度の炭素転化率を維持しながらOil収率をできるだけ大きくしようと考えているが、本シミュレーションの結果はそれが妥当であることを示している。

ロ 第1段目反応器出口組成の推定

本反応シミュレーション法が反応圧力 $P_r=70\text{kg/cm}^2$ においても適用できるとの前提の下に、ARCH-2で想定する滞留時間1～2秒において反応器出口温度 $=900^{\circ}C$ とな

第2.2-4表 東京ガス水添ガス化テスト結果（太平洋炭）

反応温度〔℃〕	900	700	800	900	900	950	900
反応圧力〔kg/cm ² G〕	30	30	30	30	30	30	30
滞留時間〔s〕	5.0	12.2	10.8	3.5	15.1	10.7	10.7
水素／炭素〔mol/g〕	0.15	0.12	0.15	0.14	0.16	0.14	0.15

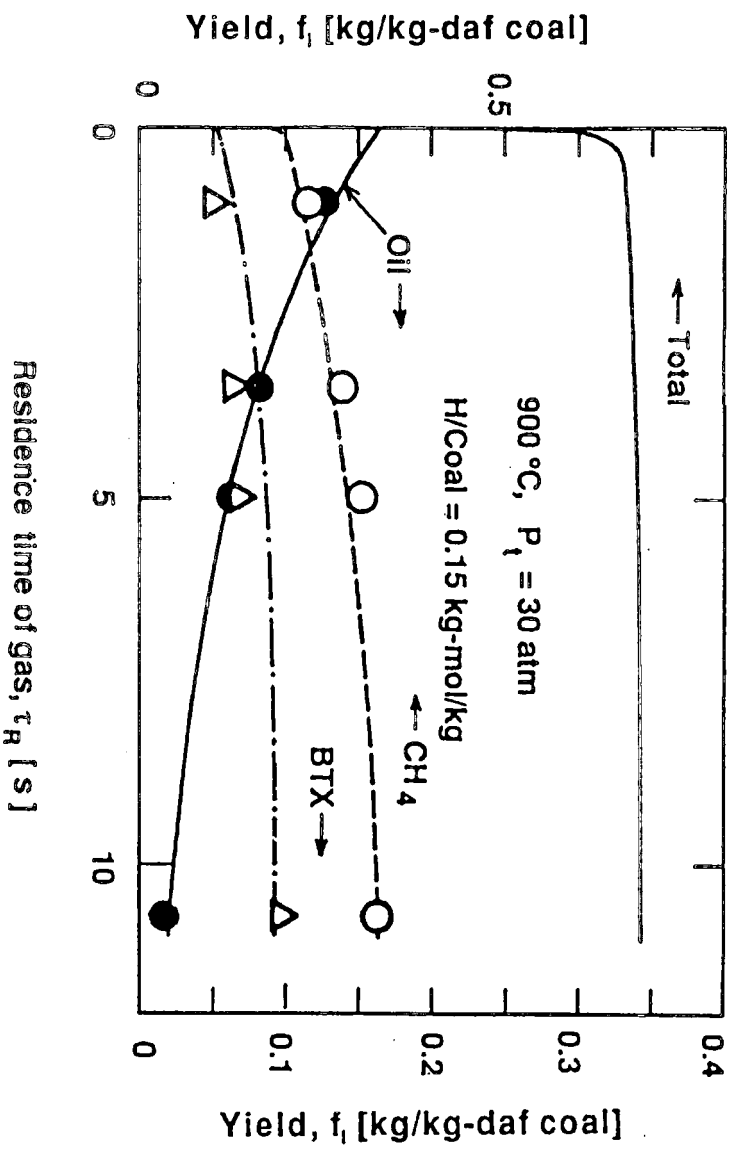
生成物〔質量％〕 上段：炭素転化率、（下段）：daf coal基準

CH ₄	28.1 (28.9)	8.6 (8.6)	14.4 (14.8)	26.6 (26.7)	30.2 (31.0)	34.4 (35.4)	30.9 (31.8)
C ₂ H ₆	1.3 (1.3)	6.8 (6.6)	6.6 (6.4)	1.0 (1.0)	0.4 (0.4)	0.2 (0.2)	0.5 (0.5)
C ₃ H ₈ +	tr	2.3 (2.2)	tr	tr	tr	tr	tr
Benzene	8.3 (6.9)	0.6 (0.5)	5.2 (4.3)	7.6 (6.3)	13.8 (11.5)	10.9 (9.1)	11.7 (9.8)
Toluene	tr	0.3 (0.3)	0.3 (0.3)	0.1 (0.1)	0.1 (0.1)	tr	0.1 (0.1)
non-BTX lip. (Oil)	7.4 (6.1)	18.8 (15.5)	13.2 (10.9)	10.0 (8.2)	0.8 (0.7)	tr	1.8 (1.5)
CO	6.3 (11.3)	3.2 (5.8)	4.7 (8.5)	6.0 (10.8)	6.1 (11.0)	6.7 (12.1)	6.0 (10.8)
CO ₂	0.9 (2.5)	0.6 (1.7)	0.7 (2.0)	0.8 (2.3)	0.6 (1.7)	0.7 (2.0)	0.6 (1.7)
Total	52.3	41.2	45.1	51.5	52.0	52.9	51.6
H ₂ O収率を除いたTotal	(57.0)	(41.4)	(47.2)	(55.4)	(56.4)	(58.5)	(56.2)

反応温度〔℃〕	900	900	900	900	900	900
反応圧力〔kg/cm ² G〕	30	20	15	30	30	30
滞留時間〔s〕	10.7	10.1	10.5	10.1	10.6	1.0
水素／炭素〔mol/g〕	0.23	0.16	0.15	0.085	0.10	0.17

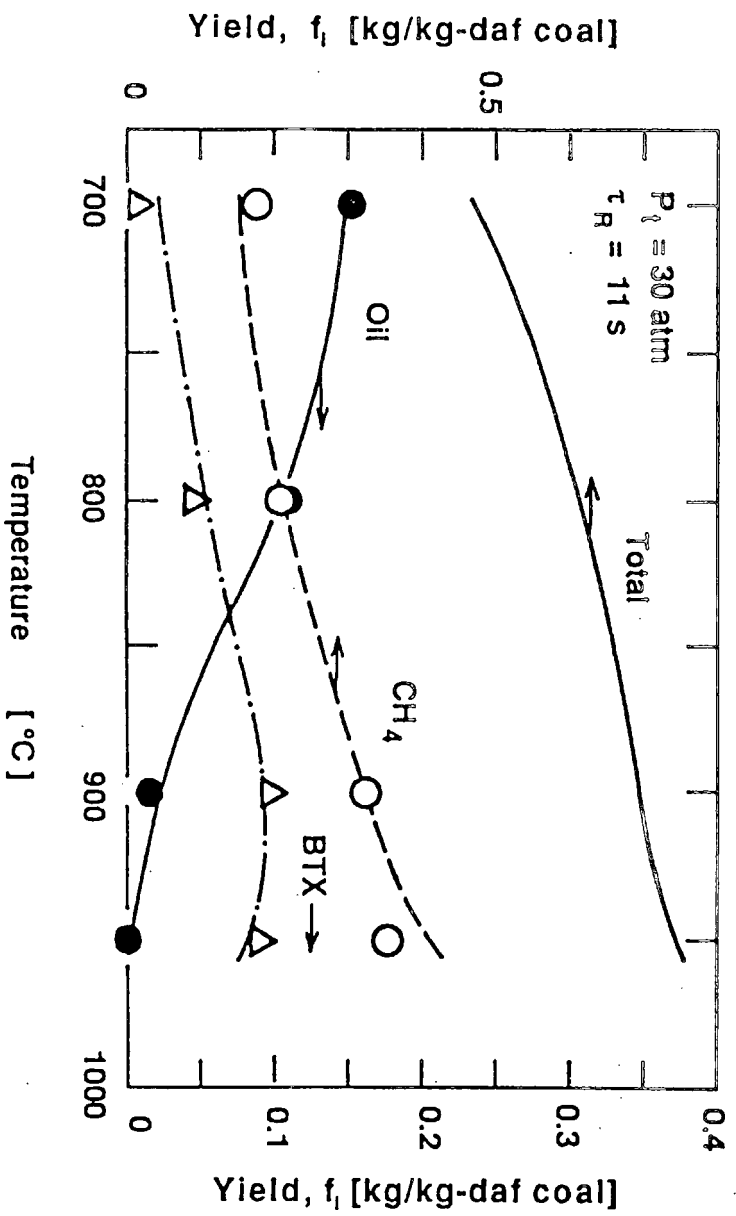
生成物〔質量％〕 上段：炭素転化率、（下段）：daf coal基準

CH ₄	30.5 (31.4)	26.4 (27.1)	25.1 (25.8)	27.8 (28.6)	28.3 (29.1)	17.7 (18.2)
C ₂ H ₆	0.6 (0.6)	0.7 (0.7)	0.6 (0.6)	0.5 (0.5)	0.6 (0.6)	4.9 (4.7)
C ₃ H ₈ +	tr	0.0	0.0	0.0	0.0	0.1 (0.1)
Benzene	10.6 (8.9)	9.0 (7.5)	6.8 (5.7)	6.9 (5.8)	7.4 (6.2)	5.8 (4.8)
Toluene	0.1 (0.1)	0.1 (0.1)	0.1 (0.1)	0.1 (0.1)	0.1 (0.1)	0.3 (0.3)
non-BTX lip. (Oil)	2.1 (1.7)	5.9 (4.9)	9.4 (7.7)	7.8 (6.4)	6.5 (5.3)	15.5 (12.7)
CO	7.1 (12.8)	7.0 (12.6)	6.8 (12.2)	5.7 (10.3)	6.2 (11.2)	4.9 (8.8)
CO ₂	0.6 (1.7)	0.8 (2.3)	0.7 (2.0)	0.8 (2.3)	1.1 (3.1)	0.8 (2.3)
Total	51.6	49.8	49.4	49.7	50.2	50.0
H ₂ O収率を除いたTotal	(57.2)	(55.2)	(54.1)	(54.0)	(55.6)	(51.9)

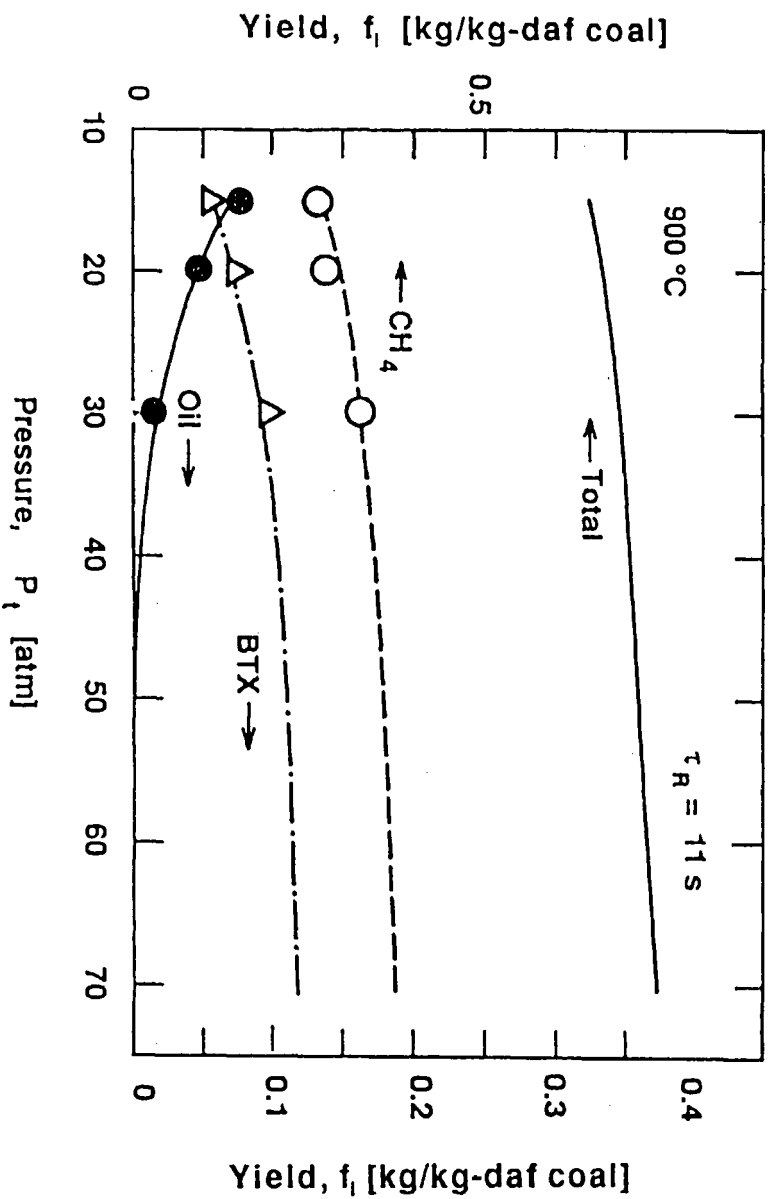


第2.2-3図 実測値とシミュレーション結果の比較 (収率対滞留時間)

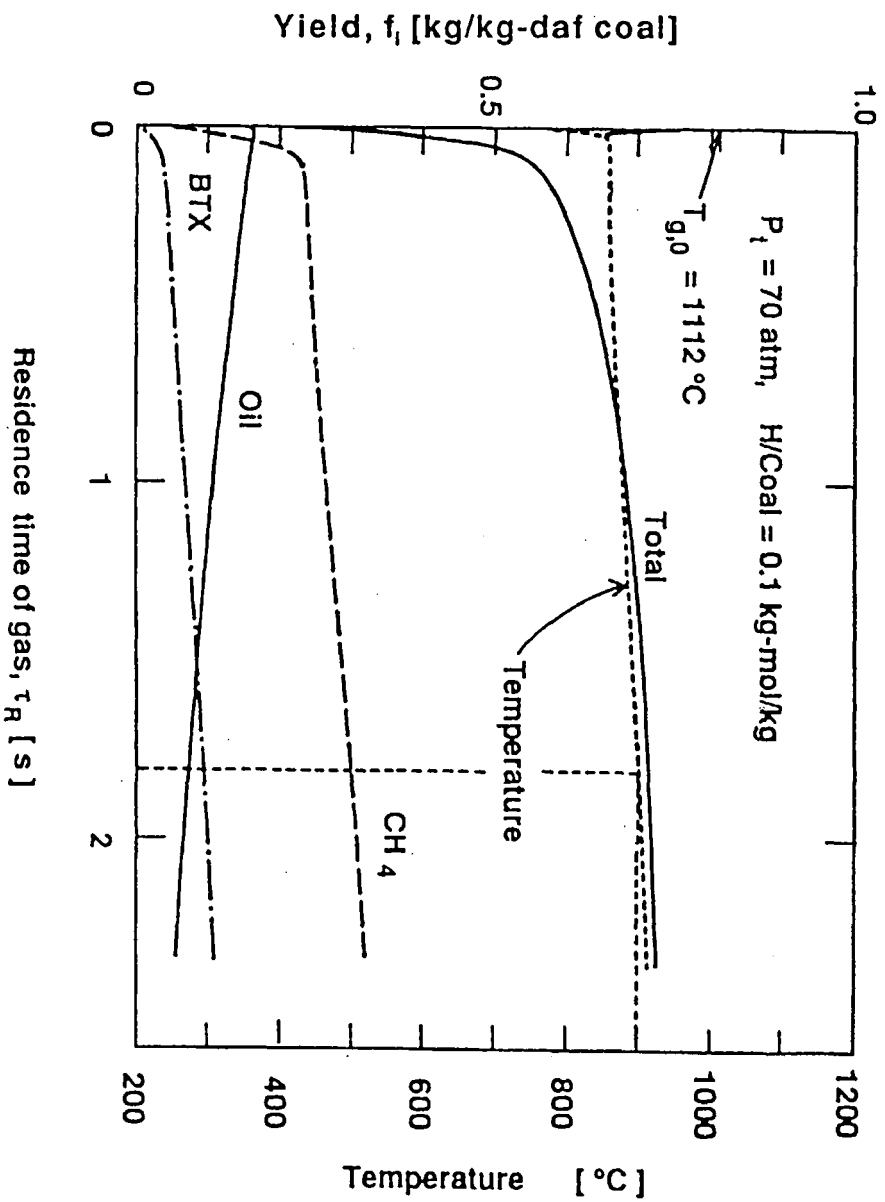
(○●△: 実測値、実線、破線、一点鎖線: 計算値、以下同様)



第2.2-4図 実測値とシミュレーション結果の比較 (収率対反応温度)



第2.2-5図 実測値とシュミレーション結果の比較 (収率対反応圧力)



第2.2-6図 第1段階目反応器の各成分の収率、ガス、粒子温度と滞留時間の関係

る条件を想定した計算結果の一例を第3.2-6図に示す。計算に際して、水素／石炭供給比＝0.1 kg-mol/kg、石炭供給速度＝421 kg-daf coal/(m²・h)とした。図より、反応器出口温度＝1112℃、石炭を200℃に余熱して供給している。図より、反応器出口温度＝900℃になる滞留時間 τ ＝1.81 sであり、そのときの各成分の収率は第2.2-5表のように得られた。このときのBTX収率は0.094kg/kg-coal、Oil収率は0.073kg/kg-coalである。第2段目の反応器ではBTXの水素化分解を極力抑えて、OilをBTXに変換すればBTX収率を増加させることができる。

第2.2-5表 1段目反応器出口収率 f_j (kg/kg-daf coal)の計算例

成分 j	C O	C O ₂	H ₂ O	C H ₄	BTX	Oil	H ₂	Char	Ash
f_j [kg/kg]	0.116	0.010	0.121	0.299	0.094	0.073	0.184	0.303	0.130

(3) 第2段目反応器の設計

第2段目の反応器ではBTXとOilのみが水素と反応すると考えられる。第1段目の反応器の計算結果より、反応温度700℃程度では反応に伴う温度上昇は無視小であったので、反応器内の温度(T_p)は一定と見なすことにする。また、内部循環反応器の構造から考えても T_p 一定と考えてよいであろう。

T_p を一定と見なし得ると、第2.2-7図に示す実際の反応器を第2.2-8図のように置き換えて考えることができる。すなわち、1段目の反応器からの生成物と冷却用精製ガス、さらに循環ガス流が混合されて温度 T_p となって反応器に供給される。反応器内でOil、BTXが水素と反応してBTX、C H₄を生成する。反応器出口において生成物と循環流は物質質量比(体積流量比) 1 : γ に分割され、生成物流のみが取り出される。チャーは第2段目の反応器では反応しないので、入口で供給されたチャーはそのまま反応器より排出される。

a. 計算の方針

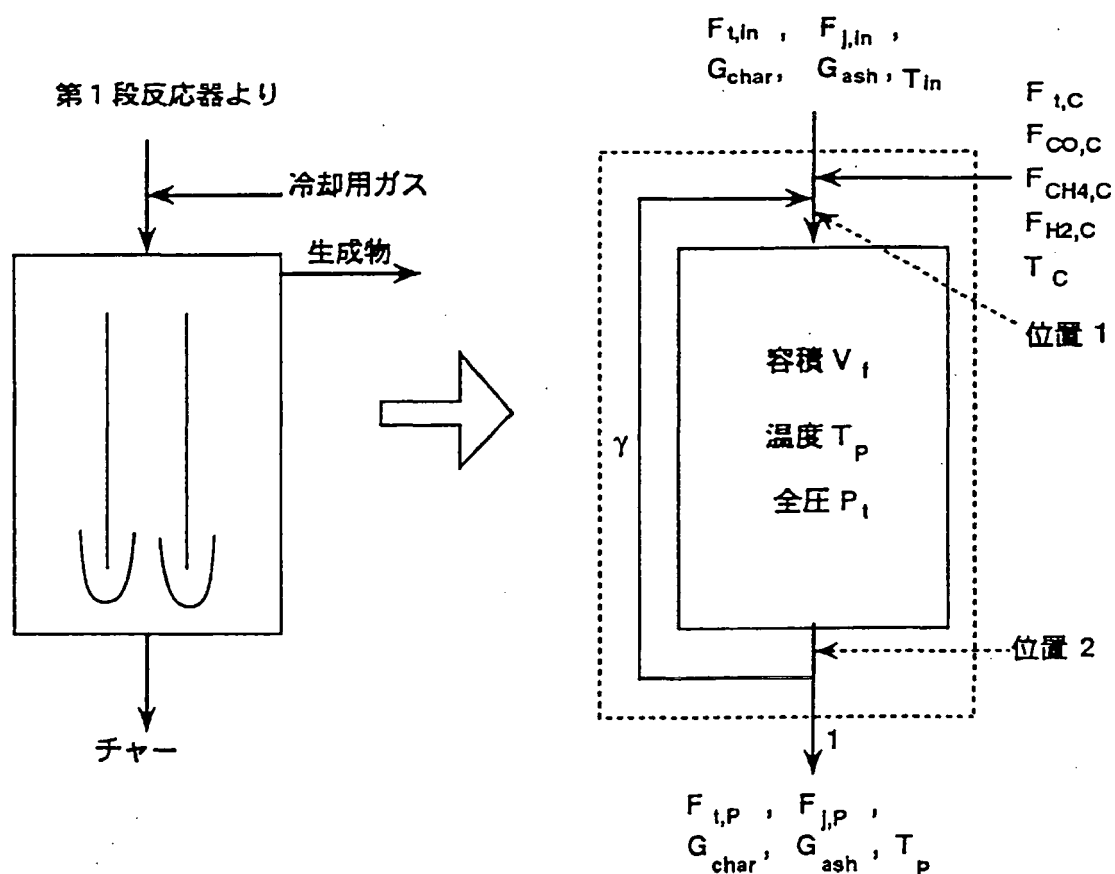
計算に際して次の仮定を設ける。

- ① 反応器は等温(T_p)、等圧(P_i)で操作される。
- ② 反応器内のガス流れは押し出し流れとする。
- ③ ガス流は反応器入口で瞬時に混合されて均一な温度(T_p)になる。

各記号を次のように定義する。

反応器内の位置、各特性値の記号を第2.2-8図のように定める。

F : 物質質量流量 [mol/s] y : 各流れの物質質量分率 [—]



第2.2-7図 実際の2段階反応器

第2.2-8図 リサイクル流れ反応器への近似

G : 質量流量 [kg/s] (チャー、灰分は除く、 $\sum y_i = 1$)

H : エンタルピー [J/mol] h : エンタルピー [J/kg]

T : 絶対温度 [K]

反応器回り、反応器内の各位置（各流れ）と成分は添字で表わす。

位置（流れ）：

in : 第1段階反応器生成物流れ

C : 冷却用精製ガス流れ

P : 生成物流れ

1 : 反応器入口

2 : 反応器出口

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

なお、BTX、Oilは C_6H_6 と C_8H_{10} で代表する。

以上の仮定、条件の下に、温度 $T_{in} = 900^\circ C$ で第1段階反応器から排出された生成物を冷却用精製ガス流、循環流と混合して一定の温度 T_p で反応させて、できるだけ多くのBTXを得る実現可能な操作条件、すなわち、反応器の大きさ V_1 、ガス滞留時間 τ_1 、反応温度

T_P 、循環比 γ 、冷却用ガス量 F_c を見いだす。具体的には、指定された T_P 、 γ に対して $f_{BTX,P}$ 、 V_r 、 τ_r を計算する。既知量、仮定すべき値等を次にまとめる。

① 計算に際して既知の諸量：

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

② 変化させる値：

反応温度 T_P 、循環比 γ 、滞留時間 τ_r

③ 仮定する値：

冷却用精製ガスは反応器出口ガスから CO_2 、 H_2O 、BTX、Oilを除去・精製したガスの一部を利用するので、その組成は次の関係を満足しなければならないものとした。

$$y_{i,c} = y_{i,p} / (y_{\text{CO},p} + y_{\text{CH}_4,p} + y_{\text{H}_2,p}) \quad (i = \text{CO}, \text{CH}_4, \text{H}_2) \quad (7)$$

したがって、 $y_{i,c}$ を仮定し、上の関係が満足されるまで繰り返し計算を行うものとする。

③ 計算で得られる値

反応器容積 V_r 、生成物物質流量 $F_{j,p}$ 、冷却用精製ガス必要量 $F_{i,c}$

b. 設計方程式

イ 総括の物質、エンタルピー収支式

第2.2-8図の破線で囲まれた系について物質、エンタルピーの収支を考える。まず、総括Mass Balance式は次式で与えられる。

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

ここで、

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

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

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

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

総括エンタルピー収支式は

$$\left(\begin{array}{c} \text{in 流れの持ち込む} \\ \text{エンタルピー} \end{array} \right) + \left(\begin{array}{c} \text{冷却ガス流れの持ち込む} \\ \text{エンタルピー} \end{array} \right) = \left(\begin{array}{c} \text{生成物流れが持ち出す} \\ \text{エンタルピー} \end{array} \right)$$

の関係が成立することより次式が得られる。

$$\sum [F_{i, in} H_i(T_{in}) + G_{cbar} h_{cbar}(T_{in}) + G_{abb} h_{abb}(T_{in})] + \sum [F_{i, c} H_i(T_c)] = \sum [F_{i, p} H_i(T_p)] + G_{cbar} h_{cbar}(T_p) + G_{abb} h_{abb}(T_p) \quad (9)$$

ロ 反応器回りの物質収支式

第2-2-8図を参考にして、反応器入口と出口、in流れ、C流れの物質流量の関係を表現する。

$$F_{o1, 1} = \{\gamma / (1 + \gamma)\} F_{o1, 2} + F_{o1, in} \quad (10-1)$$

$$F_{Btx, 1} = \{\gamma / (1 + \gamma)\} F_{Btx, 2} + F_{Btx, in} \quad (10-2)$$

$$F_{CH_4, 1} = \{\gamma / (1 + \gamma)\} F_{CH_4, 2} + F_{CH_4, in} + F_{CH_4, c} \quad (10-3)$$

$$F_{H_2, 1} = \{\gamma / (1 + \gamma)\} F_{H_2, 2} + F_{H_2, in} + F_{H_2, c} \quad (10-4)$$

$$F_{CO, 1} = \{\gamma / (1 + \gamma)\} F_{CO, 2} + F_{CO, in} + F_{CO, c} \quad (10-5)$$

$$F_{CO_2, 1} = \{\gamma / (1 + \gamma)\} F_{CO_2, 2} + F_{CO_2, in} \quad (10-6)$$

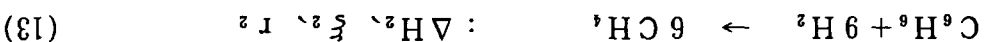
$$F_{H_2O, 1} = \{\gamma / (1 + \gamma)\} F_{H_2O, 2} + F_{H_2O, in} \quad (10-7)$$

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

$$F_{i, p} = \{1 / (1 + \gamma)\} F_{i, 2} \quad (11)$$

ハ 反応器入口と出口の関係式

次に、反応器内で起こる反応の速度を定式化することによって、反応器入口と出口の諸量の関係式が得られる。いま、みかけの反応量論式として、第1段目の反応器と同様に次の3つを考える。



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

$$r_1 = k_1 [C_{10}H_8] \quad (15)$$

$$r_2 = k_2 [C_6H_6] \quad (16)$$

$$r_3 = k_3 [C_{10}H_8] \quad (17)$$

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

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

$$F_{oil, 2} - F_{oil, 1} = -\xi_1 - \xi_3 \quad (18-1)$$

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

$$F_{CH_4, 2} - F_{CH_4, 1} = 6\xi_2 + 10\xi_3 \quad (18-3)$$

$$F_{H_2, 2} - F_{H_2, 1} = -\xi_1 - 9\xi_2 - 16\xi_3 \quad (18-4)$$

$$F_{CO, 2} - F_{CO, 1} = 0 \quad (18-5)$$

$$F_{CO_2, 2} - F_{CO_2, 1} = 0 \quad (18-6)$$

$$F_{H_2O, 2} - F_{H_2O, 1} = 0 \quad (18-7)$$

さらに、反応器内の設計方程式をoilとBTXについて書くと

$$dF_{oil}/d\tau = -(k_1 + k_3)F_{oil} \quad (19)$$

$$dF_{BTX}/d\tau = (3/5)k_1F_{oil} - k_2F_{BTX} \quad (20)$$

$$dV/d\tau = v \quad (21)$$

が得られる。 V 、 v は滞留時間 τ における反応器体積、体積流量を表わす。これらの式は解析的に解けて、次の諸式が得られる。

$$F_{oil, 2}/F_{oil, 1} = \exp \{-(k_1 + k_3)\tau_f\} \quad (22)$$

$$\frac{F_{BTX, 2}}{F_{oil, 1}} = \frac{\kappa_1}{\kappa_2 - 1} \left\{ \frac{F_{oil, 2}}{F_{oil, 1}} - \left(\frac{F_{oil, 2}}{F_{oil, 1}} \right)^{\kappa_2} \right\} + \frac{F_{BTX, 1}}{F_{oil, 1}} \left(\frac{F_{oil, 2}}{F_{oil, 1}} \right)^{\kappa_2} \quad (23)$$

$$V_f = v_1 [\tau_f - y_{oil, 1} \{ (I)/3 + 4(II) + 7(III) \}] \quad (24)$$

ここで、 v_1 は反応器入口 (1) における体積流量 ($= (RT/P_1)F_{t, 1}$) である。

また、式(23)、(24)に含まれるパラメータ、積分項は次式で表される。

$$(I) = \frac{1}{1 + \alpha} \left(\tau_f - \frac{1}{k_1 + k_3} [1 - \exp \{-(k_1 + k_3)\tau_f\}] \right) \quad (25)$$

$$(II) = \frac{5}{3} (I) - \frac{\kappa_1}{\kappa_2 - 1} \left(\frac{1}{k_1 + k_3} [1 - \exp[-(k_1 + k_3) \tau_f]] \right. \quad (26)$$

$$\left. - \frac{1}{k_2} \{1 - \exp(-k_2 \tau_f)\} + \frac{F_{BTX, 0}}{F_{oil, 0}} \left[\tau_f - \frac{1}{k_2} \{1 - \exp(-k_2 \tau_f)\} \right] \right) \quad (27)$$

$$(III) = \alpha (I) \quad (28)$$

$$\kappa_1 = \frac{5}{3} \cdot \frac{k_1}{k_1 + k_3}, \quad \kappa_2 = \frac{k_2}{k_1 + k_3}, \quad \alpha = \frac{k_3}{k_1} \quad (29)$$

ニ 冷却用精製ガス流量

冷却用精製ガスの物質流量 $F_{t, c}$ は、総括のエンタルピー収支式(9)より計算できる。式(9)に上で定義、導出された関係式を代入し、 $F_{t, c}$ について解くと次式が得られる。

$$F_{t, c} = \left(\{ \Sigma (F_{j, in} C_{p, j}) + G_{char} C_{p, char} + G_{ash} C_{p, ash} \} (T_{in} - T_P) + \xi_1 [-\Delta H_1(T_P)] + \xi_2 [-\Delta H_2(T_P)] + \xi_3 [-\Delta H_3(T_P)] \right) / \Sigma y_i C_{p, i} (T_P - T_c) \quad (30)$$

ここで、 $C_{p, j}$ [J/(mol・K)]、 $C_{p, char}$ [J/(kg・K)] などは該当する温度範囲での平均の熱容量を表わす。また、 $-\Delta H_1(T_P) \sim -\Delta H_3(T_P)$ は温度 T_P における反応(12)～(14)の反応熱を表わす。

以上で、反応器設計に必要な関係式が全て導出された。

ホ 計算の手順

① τ_f を与えると、式(22)より $F_{oil, 2}$ と $F_{oil, 1}$ の関係が得られる。反応量論式より、 $\xi_3 / \xi_1 = r_3 / r_1 = \alpha$ の関係が成立することに留意し、式(10-1)と(18-1)を用ると ξ_1 、 ξ_3 、 $F_{oil, 1}$ 、 $F_{oil, 2}$ が得られる。(註： τ_f の代わりに、たとえば Oil の反応率 $= 1 - F_{oil, p} / F_{oil, in}$ 等を与えてもよい)

② 式(23)に $F_{oil, 2} / F_{oil, 1}$ の値を代入し、式(12-2)と連立させて解くと $F_{BTX, 1}$ 、 $F_{BTX, 2}$ が得られる。それを式(18-2)に代入すると ξ_2 が得られる。また、式(11)より $F_{BTX, p}$ が得られる。

③ ξ_1 、 ξ_2 、 ξ_3 と他の諸特性値を式(30)に代入すると $F_{t, c}$ が得られる。 $F_{t, c} = y_{i, c} \times F_{t, c}$ の関係より、 $F_{CH_4, c}$ 、 $F_{H_2, c}$ 、 $F_{CO, c}$ が得られる。

④ ③で得られた値を式(10-3)～(10-5)に代入し、式(18-3)～(18-5)と連立させて解くと、 $F_{CH_4, P}$ 、 $F_{H_2, P}$ 、 $F_{CO, P}$ が得られる。 $F_{CO_2, P}$ 、 $F_{H_2O, P}$ は式(10-6)、(10-7)、(18-6)、(18-7)より得られる。この結果、生成物流の全ての成分の物質量が計算できる。

⑤ $y_{i, c}$ を新たに仮定し、式(7)が満足されるまで計算を続ける。

⑥ 総括Mass Balance式(8)が満足されているか否かをチェックする。

⑦ 式(23)より V_r/v_i と V_r を計算する。

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

へ 太平洋炭を想定した計算例

以上の手順に従い、第2段目反応器出口におけるBTX収率に対する諸操作条件の影響を検討した。計算に採用した操作条件、諸パラメータを以下に示す。

① 操作条件：

[固定した値]

- ・ $F_{i, in}$ ：1段目の反応器出口の値を用いる。1段目のシミュレーションより、石炭1 kg (daf基準) 当りの各成分の生成量・同伴量が第2.2-5表のように得られている。

- ・ 全圧 $P_r = 7.0 \text{ atm}$ 、・ 1段目生成物温度 $T_{in} = 900^\circ\text{C}$ 、・ 冷却用ガス温度 $T_c = 35^\circ\text{C}$

[変化させた値]

- ・ 循環比 $\gamma = 0, 2, 5, 10$
- ・ 反応器温度 $T_P = 700, 750, 800^\circ\text{C}$

② 反応速度パラメーター

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

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

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

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

③ 計算基準

石炭供給速度 = 1 kg-daf coal/s (1段目反応器入口)

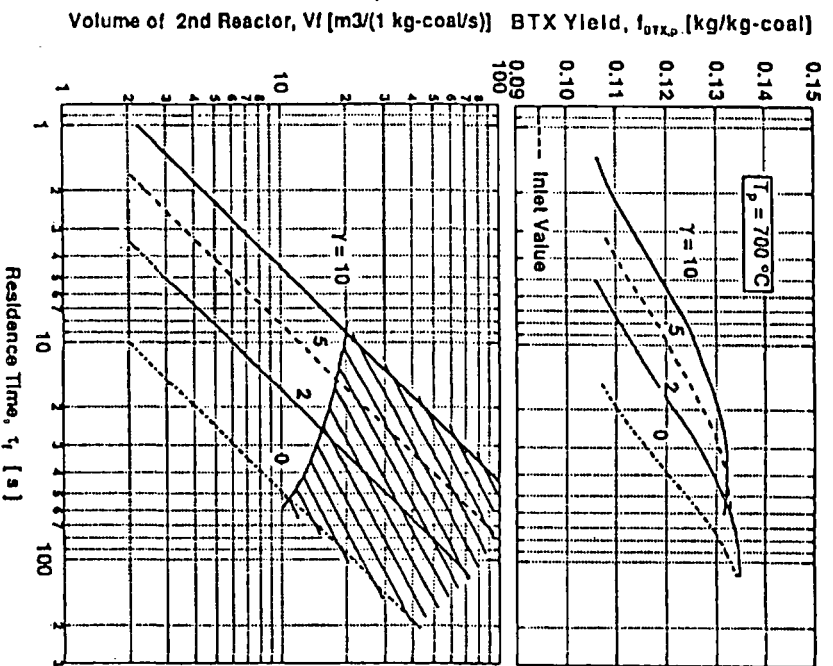
石炭1日当り処理量 (乾量基準) = $1.130 \times 3600 \times 24 / 1000 = 97.6 \text{ ton/day}$ 、すなわち、概略100ton/dayの処理量を想定している。

第2.2-9図～第2.2-11図に、 $T_P = 700, 750, 800^\circ\text{C}$ に対して、生成BTX量 $f_{BTX, P}$ 、反

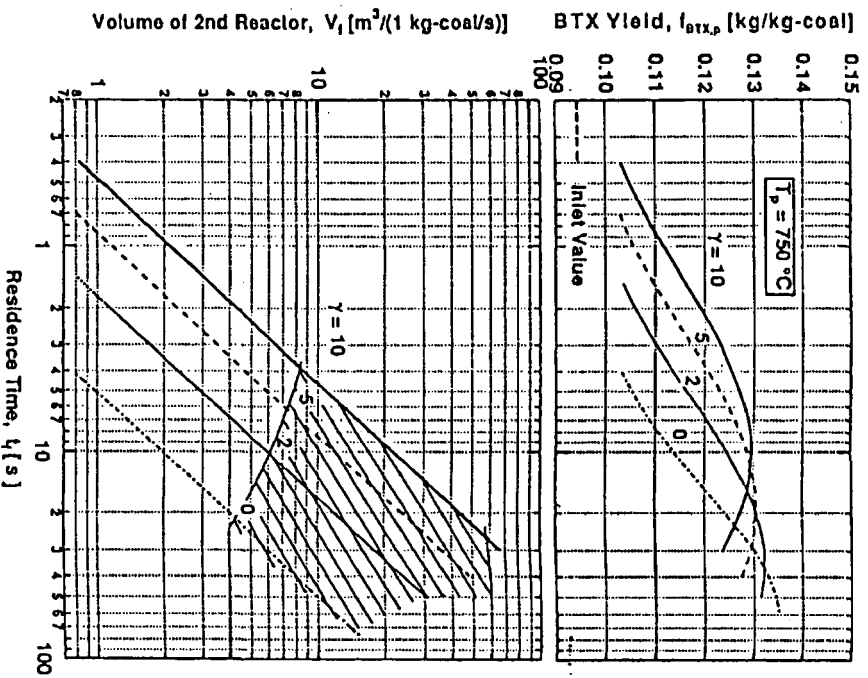
応器容積 V_r と滞留時間 τ_r の関係を示す。また、計算結果印字例として、 $T_p = 750^\circ\text{C}$ 、 $\gamma = 5$ 、 $\tau_r = 15.8\text{ s}$ の結果を第2.2-6表に示す。なお、滞留時間 τ_r は2段目の反応器のみの値である。

いずれの温度 T_p 、またいずれの循環比 γ でも、滞留時間 τ_r の増加とともにBTX収率は増加し、極大値をとった後減少する傾向にある。極大値は温度が低いほど、また循環比が小さいほど大きくなる傾向を示す。極大値を与える τ_r は循環比 γ が大きいほど小さくなる。

目標とするBTX収率は炭素転化率で15%以上であるので、 $f_{\text{BTX}, p} = 0.125$ 以上が達成できればよいことになる。各図に $f_{\text{BTX}, p} > 0.125$ を満足する操作条件をハッチングして示した。温度 T_p が高いほど小さな τ_r 、すなわち小さな反応器容積 V_r で要求が満たされることが端的に示されている。しかし、当然のことながら余り温度を高くし過ぎると $f_{\text{BTX}, p} > 0.125$ を満足できる操作条件が存在しなくなる。また、 $f_{\text{BTX}, p}$ をできるだけ大きくするためには、低温で $\gamma = 0$ で操作すればよい。その意味では2段目の反応器は循環型である必要はないと言える。第2.2-6表には $T_p = 750^\circ\text{C}$ 、 $\gamma = 5$ 、 $\tau_r = 15.8\text{ 秒}$



第2.2-9図 BTX生成量、応力器容積と滞留時間の関係 (700°C)



第2.2-10図 BTX生成量、応力器容積と滞留時間の関係 (750°C)

第 2.2-6表 計算結果印字例 (T p = 750℃, $\gamma = 5$, $\tau f = 15.8$ 秒)

Basis of Calculation---- 1 kg-coal/s(daf)

----Multiply Coal feeding rate to obtain actual F,G,V values!!

Operating Conditions

Tin [K]	Tc [K]	Tp [K]	Pt [atm]	Gamma	Oilconv
1173.15	308.15	1023.15	70.00	5.00	0.90

Mass balance

GINT	GPT	GCHAR	GASH	GCT	
0.89700	1.14142	0.30300	0.13000	0.24442	← 総括 Mass Balance

FINT	FPT	F1T	F2T	FCT
123.555	165.826	996.683	994.955	43.999

Parameters

C1[mol/s]	C2[mol/s]	C3[mol/s]	KAPPA1	KAPPA2
0.36952	0.14965	0.14377	1.01823	0.00626

Composition

	CO	CO2	H2O	CH4	BTX	Oil	Char	H2	
Gin	0.1160	0.0100	0.1210	0.2990	0.0940	0.0730	0.3030	0.1840	← 第 1 段目反応器 出口収率
Fin	4.143	0.227	6.722	18.688	1.205	0.570	0.000	92.000	
F1	34.529	1.364	40.333	172.880	9.562	0.855	0.000	737.160	
F2	34.529	1.364	40.333	175.215	10.028	0.342	0.000	733.143	
Fp	5.755	0.227	6.722	29.203	1.671	0.057	0.000	122.191	
Gp	0.1611	0.0100	0.1210	0.4672	0.1304	0.0073	0.3030	0.2444	← 第 2 段目反応器 出口収率
yp	0.0347	0.0014	0.0405	0.1761	0.0101	0.0003	0.0000	0.7369	[kg/kg-daf coal]

Values of cooling flow

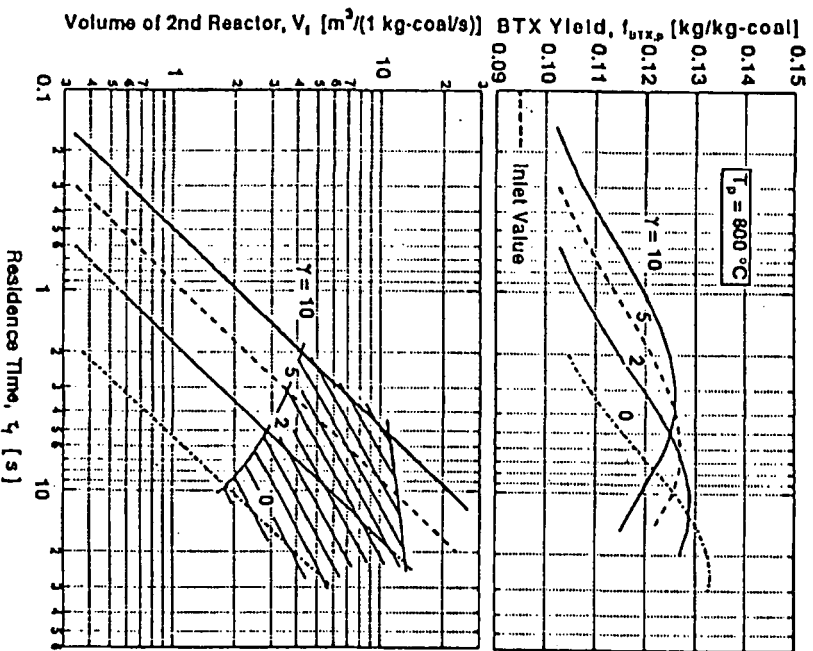
Fct[mol/s]	FCO	FCH4	FH2	YOC	YCH4	YH2	
43.999	1.612	8.180	34.207	0.037	0.186	0.778	← 冷却ガス組成

Resid. time = 1.5750E+01 s

V/v1 = 1.5740E+01 s V = 1.8820E+01 m³

の場合の結果を示している。各位置での物質量、組成、温度が矛盾なく決定されている。たとえば、この場合の冷却ガス量は1段目反応器出口ガスの約1/3、組成は H_2 :77.8、 CH_4 :18.6、 CO :3.7%であり、ほぼ想定した範囲内の値になっている。

このようにして、反応シミュレーションによってARCH-2プロセスの最終収率を推定できることを示した。しかしながら、本シミュレーションでは反応圧力 30kg/cm^2 以下で推定した速度パラメータが 70kg/cm^2 でも用い



第2.2-11図 BTX生成量、応力器容積と滞留

得ることを前提としている。さらに、いったん高温に晒されたOil分が低温

時間の関係 (800°C)

に冷却されたときにも、高温の結果か

ら予測される速度で分解すると仮定している。これらの仮定の妥当性に関しては、今後の検討によって明らかにして行く必要があるであろう。最後に、本節ではシミュレーションの手法を提出したのであって、第2.2-9図～第2.2-11図はあくまでも計算例であることを強調しておく。最適な操作条件は、上述の問題点を明確にするとともに、装置の設計・製作、操作・運転上の種々の因子を考慮して初めて決定し得るものであろう。

文 献

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

2. 2. 2 スタディのためのデータ処理

本款ではARCH-2 反応シミュレーションプログラムを用いて行ったプロセススタディのためのデータ処理方法について述べる。

(1) B T X 収率向上のための条件探索

反応シミュレーションを行うにあたり、実機規模（SNG 300 万 $\text{Nm}^3/\text{日}$ ）で、しかもARCH-1 反応器上部の簡単な改造によりARCH-2 を実現することを想定し、下記に示すような計算条件を設定した。

（設定条件）

- ・ 反応圧力：75 $\text{kg}/\text{cm}^2 \text{G}$ （昨年スタディと同値）
- ・ 水素－石炭比：0.20 kg/kg (daf coal)（昨年スタディと同値）
- ・ 1 段目反応器出口ガス及びチャーの温度：900 $^{\circ}\text{C}$ (1173K)
- ・ 2 段目反応器の反応温度：700～850 $^{\circ}\text{C}$
- ・ 滞留時間：1 段目反応器 約 1～3 秒、2 段目反応器 約 10 秒
- ・ 冷却用精製ガス組成：2 段目反応器出ガスと同等
- ・ 冷却用精製ガス温度：35 $^{\circ}\text{C}$ (308K)
- ・ 反応器サイズ（実プラントを 4 系列とした場合）

1 段目反応器 反応器内径 1～2 m

2 段目反応器 反応器容積 43.8 m^3

（1 kg daf coal/秒あたり反応器容積 3 m^3 ）

上記条件により、1 段目反応器出口ガス温度を900 $^{\circ}\text{C}$ 、滞留時間 1 秒または 2 秒とし、2 段目反応器における反応温度を700～850 $^{\circ}\text{C}$ とした場合の最終生成物への炭素転化率を第 2.2-7 表に示す。

シミュレーションにより 1 段目反応器における滞留時間と各生成物への炭素転化率の関係を調べた結果、1 段目反応器の滞留時間が 2 秒で、2 段目反応器の反応温度が 800 $^{\circ}\text{C}$ （滞留時間 10 秒）のとき B T X 収率（炭素転化率 15.78%）が最大となった。滞留時間が 3 秒以上では 1 段目反応器において O i l 収率が低くなり、2 段目反応器で O i l の分解による B T X 生成反応を促進させても、滞留時間 2 秒の場合よりも B T X 収率が低くなった。また、1 段目反応器におけるいずれの滞留時間（1～3 秒）においても 2 段目反応器の反応温度 800 $^{\circ}\text{C}$ のとき B T X 収率が最も高くなっており、効率的に O i l から B T X を生成するための 2 段目反応器の反応温度は 800 $^{\circ}\text{C}$ 近辺であることがわかった。

第2.2-7表 1 段目反応器の滞留時間と最終生成物炭素転化率との関係

・ 1 段目反応器滞留時間 1 秒

反応温度 (2 段目反応器)	各生成物への炭素転化率 (%)					
	CH ₄	BTX	Oil	CO	CO ₂	Total
700℃	30.84	12.52	6.76	6.45	0.00	56.57
750℃	32.11	14.31	3.69	6.45	0.00	56.57
800℃	33.06	15.66	1.40	6.45	0.00	56.57
850℃	34.52	15.36	0.24	6.45	0.00	56.57
1 段目反応器出口	29.71	10.42	9.99	6.45	0.00	56.57

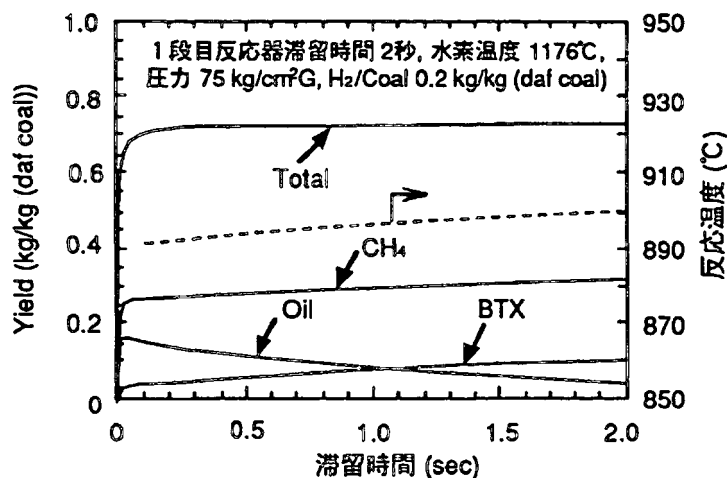
・ 1 段目反応器滞留時間 2 秒

反応温度 (2 段目反応器)	各生成物への炭素転化率 (%)					
	CH ₄	BTX	Oil	CO	CO ₂	Total
700℃	32.22	14.28	3.68	6.45	0.00	56.63
750℃	32.83	15.20	2.14	6.45	0.00	56.63
800℃	33.61	15.78	0.79	6.45	0.00	56.63
850℃	34.69	15.09	0.12	6.45	0.00	56.63
1 段目反応器出口	31.59	13.18	5.41	6.45	0.00	56.63

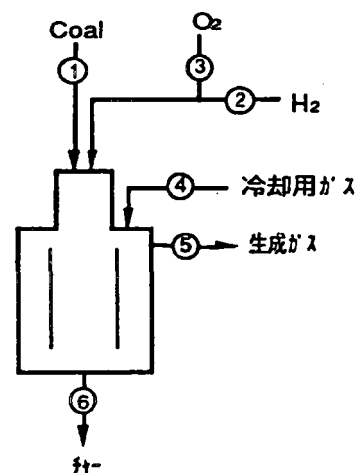
(2) プロセス評価のための基礎データ

ARCH-1 反応器上部の簡単な改造により ARCH-2 を実現することを考えれば ARCH-2 の 1 段目反応器サイズは極力小さいことが望ましい。即ち、1 段目反応器における滞留時間ができるだけ短いほうが望ましいことになる。現に、第2.2-7表より 1 段目反応器の滞留時間 1 秒においても BTX への炭素転化率 15% をクリアーすることができる。しかし、プロセスの評価を行うにあたり滞留時間の抑制、冷却ガス量等実際の操業を考慮し、反応条件として 1 段目反応器の滞留時間を 2 秒、2 段目反応器の反応温度を 800℃

(滞留時間 10 秒) を採用することとした。前記条件における 1 段目反応器の滞留時間と生成物収率及び反応温度の関係を第2.2-12図に示す。また、ARCH-2 反応器概略フローを第2.2-13図に、ARCH-2 の実プラントを 4 系列とした場合の反応器 1 基あたりの物質収支を第2.2-8表にそれぞれ示す。



第2.2-12図 1 段目反応器滞留時間と生成物収率及び反応温度の関係



第2.2-13図 ARCH-2 反応器概略フロー

第2.2-8表 ARCH-2 反応器物質収支 (1 基あたり)

	①	②	③	④	⑤	⑥
CH ₄ kg-mol/h				285.8	1427.9	
CO kg-mol/h				54.5	272.2	
CO ₂ kg-mol/h					11.9	
C ₆ H ₆ kg-mol/h					88.1	
H ₂ kg-mol/h		5615.0		953.1	4761.6	
C ₁₀ H ₈ kg-mol/h					2.8	
H ₂ O kg-mol/h					712.7	
Total gas-dry, kg-mol/h		5615.0	179.7	1293.4	7277.2	
Daf Coal kg/h	52556.4					
Daf Coal kg/h						18140.3
Temp. °C	200	700	25	35	800	

備考：Charの中のC含有率は95.6wt%とする。

この物質収支は昨年のプロセススタディ値を参考に、ガス化炉4基でSNGを300万Nm³/日製造する場合の1基あたりの石炭処理量に合わせて量を算定したもので、ガス化炉廻りの各物量の相対関係を示しているものである。従って、チャーバランス等昨年スタディとは割合が異なるため、最終的にSNG300万Nm³/日製造するための数値への変換が必要であるし、またプログラム上は無視している窒素や硫黄等石炭中の微量成分の補正も必要である。次款ではこれらを考慮してプロセススタディを実施している。

2. 2. 3 ARCH-2プロセスの評価

2. 2. 3. 1 検討の前提について

(1) 検討のためのARCH-1反応器物質収支

ARCH-2のプロセス検討に当たって、東京ガス（株）から提示された条件とマテリアルバランスは、下記の通りである。

<設定条件>

反応シミュレーションを行うにあたり設定した条件は次の通り。

- a 反応圧力：75kg/cm².g.
- b 水素－石炭比：0.20kg/kg (daf coal)
- c ARCH-2上部出口（下部入り口）ガス及びチャーの温度：900℃ (1,173° K)
- d ARCH-2下部の反応温度：700－850℃
- e 滞留時間：ARCH-2上部 約1－3秒
ARCH-2下部 約10秒
- f 冷却用精製ガス組成：ARCH-2下部（循環式反応器）出口ガスと同等
- g 冷却用精製ガス温度：35℃ (308° K)
- h 反応器サイズ（実プラントを4系列とした場合）

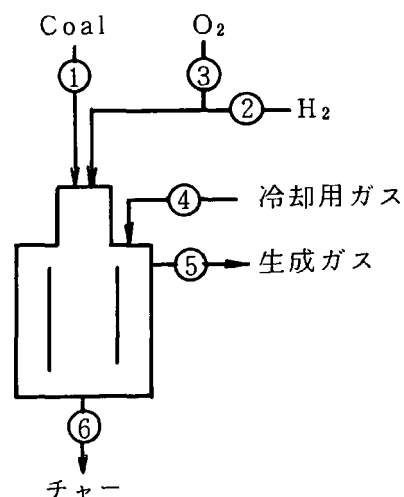
ARCH-2上部 反応器内径 1 m

ARCH-2下部 反応器容積 43.8m³ (1 kg daf coalあたり反応器容積 3 m³)

<ARCH-2反応器1基あたりの物質収支>

	1	2	3	4	5	6
CH ₄ kg-mol/h				285.8	1,427.9	
CO kg-mol/h				54.5	272.2	
CO ₂ kg-mol/h					11.9	
C ₆ H ₆ kg-mol/h					88.1	
H ₂ kg-mol/h		5,615.0		953.1	4,716.6	
C ₁₀ H ₈ kg-mol/h					2.8	
H ₂ O kg-mol/h					712.7	
Total gas-dry, kg-mol/h		5,615.0	179.7	1,293.4	7,277.2	
Daf coal kg/h	52,556.4					
Char (Daf) kg/h						18,140.3
Temp. °C	200	700	25	35	800	

備考：Charの中のC含有率は、95.6wt%とする。



(2) 一般的事項

a. 原料太平洋炭の仕様について

東京ガス（株）、大阪ガス（株）両社で試験研究の際に使用した原料太平洋炭の仕様は多少の差があり、下記の通りであった。

元素分析	東京ガス（株）使用値		大阪ガス（株）使用値
	D r y	D a f	D a f
	W t %	W t %	W t %
C	6 8 . 2	7 7 . 0 6	7 5 . 5 9
H	5 . 4	6 . 1 0	6 . 6 6
N	1 . 3	1 . 4 7	1 . 0 7
S	0 . 2	0 . 2 3	0 . 2 9
O	1 3 . 4	1 5 . 1 4	1 6 . 3 7
C l	----	-----	0 . 0 2
A s h	1 1 . 5	-----	-----
計	1 0 0 . 0	1 0 0 . 0 0	1 0 0 . 0 0

D r y C o a l 発熱量 (HHV) : 6,790kcal/kg 6,650kcal/kg

(Ash:13.80 wt.%)

平成3年度報告書では、上記大阪ガス（株）使用値を使って検討を行った。

平成4年度の報告書では、ARCH-2に関しては東京ガス（株）使用値を、顕熱利用型プロセスについては、大阪ガス（株）使用値を使って検討を進める。

b. その他

－原料：亜瀝青炭とし、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け入れ以降、

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：11,000kcal/Nm³（但し、HHV）のSNGを、3.00x10⁶Nm³/d製造する設備とする。

－SNG性状：発熱量：11,000kcal/Nm³

燃焼性：13A

CO濃度：500ppm以下

水素濃度：5 %以下

ガス露点：0℃以下

送出圧力：35kg/cm², g.

一年間稼働日数：330日（年間稼働率を90%と見込む）

2. 2. 3. 2 検討の進め方とその結果

（1）ARCH-2 マテリアルバランス検討要領

前記、東京ガス（株）提示の基本マテリアルバランスから、次の要領で実際の場合のマテリアルバランスを検討してゆく。

a 1時間当たりのガスバランス表作成

東京ガス（株）提示の水添ガス化反応器1基当たりの数字を4倍して、1時間当たりのガス量を求める。

b この生成ガス中のCH₄ガス量が、最終的にSNG 3.00×10^6 Nm³/d（但し、C₃H₈を添加し、高位発熱量11,000kcal/Nm³に調整）の生産に合致するか否かを確認する。この場合、実際に水添ガス化反応器で生成したCH₄ガス量をチェックし、水添ガス化反応器への投入原料を決める。

c ベンゼン回収設備を出たガスを、一部冷却ガスとして水添ガス化反応器に戻すので、この組成見合いのガスを、H₂ガスをベースに規定量抜き、残りのガスをモレキュラーシーブを通して深冷分離器へ送る。

d 深冷分離器で分離される、CH₄、H₂、COガスのそれぞれの成分を求め、この内のH₂ガスは、途中でHYCOL系から出る精製水素ガスと混合され、熱交換器で700℃にまで昇温された後、更に酸素により昇温されて、水添ガス化反応器へ送入される。

従って、あくまでもH₂ガスをベースにして、同伴されるその他のガスはイナートとして加算し水素循環ガスとする。

e 東京ガス（株）提示のマテリアルバランスでは、原料として100% H₂、100% O₂が使用されているが、ここでは实际的にみて、循環H₂ガス以外のガスも含むものとし、この余分のガスが700℃より更に昇温する為に必要な、酸素、水素量を追加計上する。

f 今回の水添ガス化反応器出口ガス中のCO濃度は、かなり高いので、熱効率を上げるためには、この系統にCO変換炉を設備し、一部のCOをH₂に変換する事が必要にな

る。

COリッチガスによる発電量も、自家消費分程度に抑える事が効率向上のためには必要であり、この点を勘案してCO濃度を決めてゆく。

g HYCOLでは、チャーを原料とする場合と、石炭を原料とする場合では、当然の事ながら条件が異なるので、これを勘案して最終的にHYCOL炉での発生ガスの仕様を決める。当面、チャーの仕様はARCH-1と同一とみて検討を進めてゆく。

概略のマテリアルバランスを取り、熱効率を検討する段階で、石炭のガス化率からチャー中の残留炭素を検討し、水素原料としてのチャーの仕様の差を考慮して検討を進める。

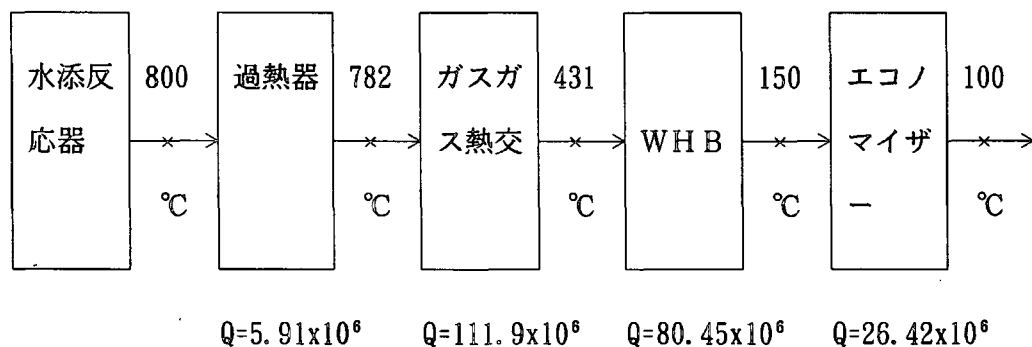
(2) ARCH-2 プロセスフロー

第2.2-14図の通りである。

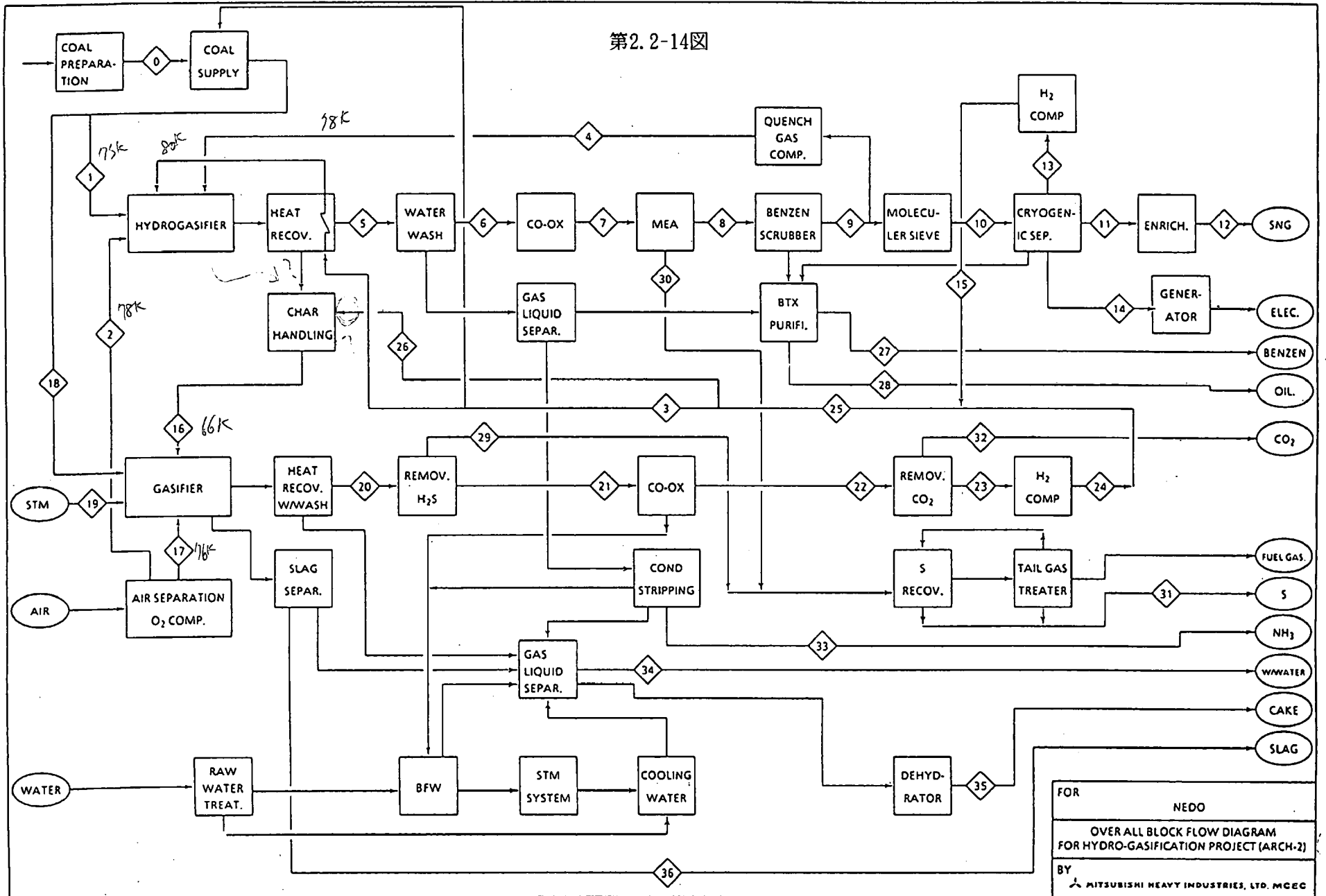
(3) ARCH-2 マテリアルバランス

第2.2-9表の如くなる。

(4) 水添ガス化反応器系のプロセスフロー



第2.2-14図



第2.2-9表 MATERIAL BALANCE FOR PRODUCTION OF SNG BY ARCH-2 PROCESS

	M.W.	實質反應生成物		0		1		2		3		4		5		6		7	
		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	5,147.6								303.5	1.15	1,378.7	22.86	6,829.8	22.16	6,829.8	22.30	6,829.8	21.94
CO	28.01	963.0								384.5	1.46	200.3	3.32	1,542.2	5.00	1,547.0	5.05	995.3	3.20
COS	60.7																		
CO ₂	44.01	53.6								59.1	0.22			112.7	0.37	112.7	0.37	659.6	2.12
C ₂ H ₆	30.07																		
C ₆ H ₆	78.114	397.0												397.0	1.29	397.0	1.30	397.0	1.28
C ₇ H ₈	92.141																		
H ₂	2.016	17,165.5								25,477.3	96.91	4,439.7	73.61	21,650.2	70.26	21,650.2	70.68	22,152.1	71.17
H ₂ S	37.08													16.8	0.05	16.8	0.05	16.8	0.05
HCl	36.461																		
N ₂ -A								4.2	0.50	64.0	0.24	12.9	0.21	64.0	0.21	64.0	0.21	64.0	0.21
O ₂	32							830.5	99.50										
NH ₃	17.031													189.3	0.61				
CS ₂	76.131																		
HCN	27.026																		
C ₁₀ H ₈	128.17352	12.6												12.6	0.04	12.6	0.04	12.6	0.04
C ₁₄ H ₁₀	178.2334																		
Total gas-dry, Kg-mol/h		23,739.3						834.7	100.00	26,288.4	99.98	6,031.6	100.00	30,814.6	99.99	30,630.1	100.00	31,127.2	100.01
Steam, Kg-mol/h		3,212.2																	
Total gas-wet, Kg-mol/h		26,951.5																	
Daf coal Kg/h		236,881.7		253,568.1		236,881.7													
Ash Kg/h		30,781.2				30,781.2													
Water Kg/h																			
Total mass Kg/h		267,662.9				267,662.9													
Temp. °C						200.0		100.0		100.0		35.0		100.0		40.0		35.0	
Press. Kg/cm ² g						75.0		78.0		80.0		78.0		74.0		74.0		73.5	

		8		9		10		11		12		13		14		15		16	
	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	6,795.6	22.43	6,795.6	22.73	5,416.8	22.70	5,020.9	99.99	5,020.9	90.02	303.7	1.68	92.2	11.61	303.1	1.68		
CO	28.01	990.3	3.27	990.3	3.31	790.0	3.31	0.7	0.01	0.7	0.01	299.8	1.66	489.5	61.66	299.2	1.66		
COS	60.7																		
CO ₂	44.01																		
C ₂ H ₆	30.07																		
C ₆ H ₆	78.114	395.0	1.30																
C ₇ H ₈	92.141																		
H ₂	2.016	22,043.9	72.75	22,043.9	73.74	17,604.2	73.78					17,415.7	96.51	187.5	23.62	17,380.9	96.51		
H ₂ S	37.08																		
HCl	36.461																		
N ₂ + A		63.8	0.21	63.8	0.21	50.9	0.21					26.2	0.15	24.7	3.11	25.8	0.14		
O ₂	32																		
NH ₃	17.031																		
CS ₂	76.131																		
HCN	27.026																		
C ₁₀ H ₈	128.17352	12.5	0.04																
C ₁₀ H ₁₀	178.2334																		
Total gas-dry, Kg-mol/h		30,301.1	100.00	29,893.6	99.99	23,861.9	100.00	5,021.6	100.00	5,577.7	100.00	18,045.4	100.00	793.9	100.00	18,009.0	99.99		
Steam, Kg-mol/h																			
Total gas-wet, Kg-mol/h																			
Daf char	Kg/h																	81,281.1	
Ash	Kg/h																		
Water	Kg/h																		
Total mass	Kg/h																		
Temp.	°C		30.0		30.0		30.0		33.0		33.0		33.0		33.0		100.0		350.0
Press.	Kg/cm ² g		73.0		73.0		73.0		36.0		35.0		47.0		35.0		87.0		66.0

プロパン
556.1 9.97
24336

(プロパン 24,520.7kg/h)

[illegible]

(5) ユーティリティーについて

a スチームに関するバランス

平成3年度のARCH-1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回収されるスチームは次の通りである。

スチーム	今回(t/h)			平成3年度報告書(t/h)		
	(1)	(2)	(3)	(1)	(2)	(3)
105kg/cm ² , g. 540℃	33.0	186.1	----	51.1	156.9	----
105kg/cm ² , g. 313℃	145.3	98.9	108.5	79.8	76.2	96.4
3.5kg/cm ² , g. 147℃	----	----	----	----	----	24.7

備考；(1)は水添ガス化反応器系、(2)はHYCOLガス化系、(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3年度報告書
105kg/cm ² , g. 540℃スチーム	219.1 t/h	208.0 t/h
105kg/cm ² , g. 313℃スチーム	352.7 t/h	252.4 t/h
3.5kg/cm ² , g. 147℃スチーム	0.0 t/h	24.7 t/h

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

	今回発生量	平成3年度報告書
HYCOL向け	11.5 t/h	10.4 t/h
ガス精製系 CO変換炉	163.8 t/h	127.7 t/h

大型圧縮機等の動力用に向けられるスチームは次の通り。

	今回	平成3年度報告書
105kg/cm ² , g. 540℃スチーム	219.1 t/h	207.9 t/h
105kg/cm ² , g. 313℃スチーム	71.9 t/h	64.4 t/h

大型のスチーム・タービン駆動機は、次の通り。

	今 回	平成 3 年度報告書
空気圧縮機 2 基計)	34, 857 kwh	26, 396 kwh
酸素圧縮機 2 基計)	21, 363 kwh	16, 178 kwh
No. 1 水素圧縮機	10, 617 kwh	9, 357 kwh
<u>No. 2 水素圧縮機+コンソール</u>	<u>3, 678 kwh</u>	<u>3, 300 kwh</u>
合計	70, 515 kwh	55, 231 kwh

B F Wの必要量は次の通り。

	今 回	平成 3 年度報告書
B F Wフィード量	203. 2 t/h	208. 7 t/h
(デアレーター入り口 B F W	469. 3 t/h	409. 7 t/h)

b 電力に関するバランス

電力使用量についてまとめと次の通りである。単位：k w h。

項 目	今 回	平成 3 年度報告書
1. 石炭前処理工程	8, 3 1 6	6, 6 5 5
2. 水添ガス化工程	5, 2 8 3	3, 4 6 6
3. 同上ガス精製工程	1, 1 6 6	1, 0 4 1
4. H Y C O L	2, 1 3 4	1, 8 0 9
5. 同上ガス精製工程	2, 9 8 1	2, 6 8 9
6. プロセスプラント共通設備	2 0 1	1 7 9
7. ユーティリティー・オフサイト	6, 3 5 2	6, 3 5 2
電力所要量合計	2 6, 4 3 3	2 2, 1 9 1
発 電 量	3 2, 9 7 6	3 1, 5 9 0
売電必要量	6, 5 4 3	9, 3 9 9

(6) 熱効率

総合熱効率を、平成3年度報告書との対比で書くと、第2.2-10表の通りとなる。

第2.2-10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 (%)
A R C H ・ 2	入 石炭DRY	kg	286,517.6	6,790	1,945.45x10 ⁶	100.0
	製造ガス	Nm ³	112,484	9,535.9	1,072.61x10 ⁶	55.13
	ベンゼン	kg	29,310	9,999	293.07x10 ⁶	15.06
	ナフサ類	kg	1,512.3	10,000	15.12x10 ⁶	0.78
	硫黄	kg	793.4	2,220	1.76x10 ⁶	0.09
	NH ₃	kg	2,740.4	5,048	13.83x10 ⁶	0.71
	電力	kwh	5,609	860.0	4.82x10 ⁶	0.25
	出力計				1,401.21x10 ⁶	72.02
総合熱効率：72.02% 70.98%						
平成 3 年 度 報 告 書	入 石炭DRY	kg	243,881.6	6,650	1,621.81x10 ⁶	100.0
	製造ガス	Nm ³	112,625	9,547	1,075.23x10 ⁶	66.30
	ベンゼン	kg	10,146	9,999	101.44x10 ⁶	6.25
	ナフサ類	kg	6,230	10,000	62.30x10 ⁶	3.84
	硫黄	kg	526	2,220	1.17x10 ⁶	0.07
	NH ₃	kg	1,732	5,048	8.74x10 ⁶	0.54
	電力	kwh	9,399	860.0	8.08x10 ⁶	0.50
	出力計				1,256.96x10 ⁶	77.50
総合熱効率：77.50% 76.39%						

(7) ARCH-2 プロセスについての気付き事項

以下に検討過程における気付き事項を記す。

a HYCOL 発生ガスの顕熱の有効利用は出来ない。

HYCOL 炉より発生するガスを、1,500℃の温度で抜き出す事は、スラッグの析出が甚だしく不可能である。しかし、炉内でガス温度を1,000℃程度にまで急冷すれば、その後のスラッグ析出はなく、安定して炉外にガスを抜き出す事が可能な様である。

この事は、ARCH-2で酸素を熱源として使用しないで、出来るだけ水添ガス化反応器の温度を上げる場合でも、HYCOL 炉出口のガス温度は、1,000℃以上には出来ないと考えざるを得ない。従って、HYCOL 出口ガスの高温顕熱の活用により、酸素使用量を減らすという考えは、あまり効果が出ない事になる。

今、HYCOL 炉内で1,500℃のガスに、700℃にまで昇温した循環水素ガスを供給して急冷したとして、混合ガスの温度が何度になるか調べてみると、940℃という事が解る。このガスであれば、HYCOL 炉から安定してガスを抜き出す事が可能であろう。

循環水素ガスの昇温温度は、水添ガス化反応器出口ガス温度が800℃であり、且つ、過熱器を設置して、105kg/cm² g. の過熱スチームを作った後に、原料循環水素ガスの予熱を行う事を考えれば、循環水素の昇温温度は700℃が上限と見るべきであろう。

従って、酸素供給なしに、水添ガス化反応器へ送り込めるガスの最高温度は940℃と判断される。

後で記すデータから、この場合、回収スチームが順当に得られるなら、全体熱効率は、74.7%程度になり、酸素ガス415kg-mol/h程度節約されることになる。即ち、東京ガス(株)の提示の条件の酸素使用量の約半分程度の状態と同じになる。しかし、ここで注意を要するのは、HYCOL 炉の発生ガスの顕熱を利用して、酸素使用量をゼロにする事は、とりも直さず排熱回収により発生される高圧スチームの回収量を、極端に減らすことにつながるということである。

この場合、当初のARCH-2の計画に対し、スチームの形で回収される高圧スチームの熱量が、 129.4×10^6 kcal/h不足してしまう事が解る。従って、この熱量を外部から高圧スチームの形で供給する必要があり、結果的に前記74.4%の効率は得られず、72%をも切ってしまう結果になる。

即ち、HYCOLのガスの持つ高温顕熱を利用して、酸素の使用量を減らすという考えは成立しない事が解る。東京ガス(株)提示の様に、HYCOLであくまでも精製水素を

作り、水添ガス化反応器へ供給するという事しか出来ない。

b 酸素使用量と昇温後のガス温度

水添ガス化反応器で使用する酸素量と、700℃で供給した循環水素ガスの温度が、どの

程度まで上がるかを調べる、次式で表される。即ち、

$$Y = 0.5779X + 700.0$$

ここに、

Y : 循環水素の昇温後の温度 ℃

X : 酸素 (100%) の供給量 (kg-mol/h)

この関係を図示すると、第2-2-15図の如くなる。

c 酸素使用量と全体熱効率の関係

酸素を昇温のために使用すれば、当然の事ながら酸素の2倍の水素が消費される。

従って、酸素により燃焼消費された精製水素を、HYCOL炉への石炭投入を増やして

バランスさせる必要がある。単純にこの考え方に基ずき、酸素使用量と全体熱効率の関係

を求めてみると、次の様になる。

$$Y = -0.008436X + 77.50$$

ここに、

Y : 全体熱効率 (%)

X : 酸素 (100%) の供給量 (kg-mol/h)

しかしながら、前述の通り、東京ガス (株) 提示の条件では、酸素量830.5kg-mol/hで

全体熱効率=72.0%という結果が得られている。これは、水素の燃焼によるスチーム生成

や副製品の影響等の、実局面での影響から、上の単純な検討結果より1.5%程度効率があ

って上がっているものと思われる。従って、酸素ゼロの場合の全体熱効率を77.50%とし、酸素

830.5kg-mol/hの時の全体熱効率72.02%をベースに、直線的に酸素量と効率に変化すると考

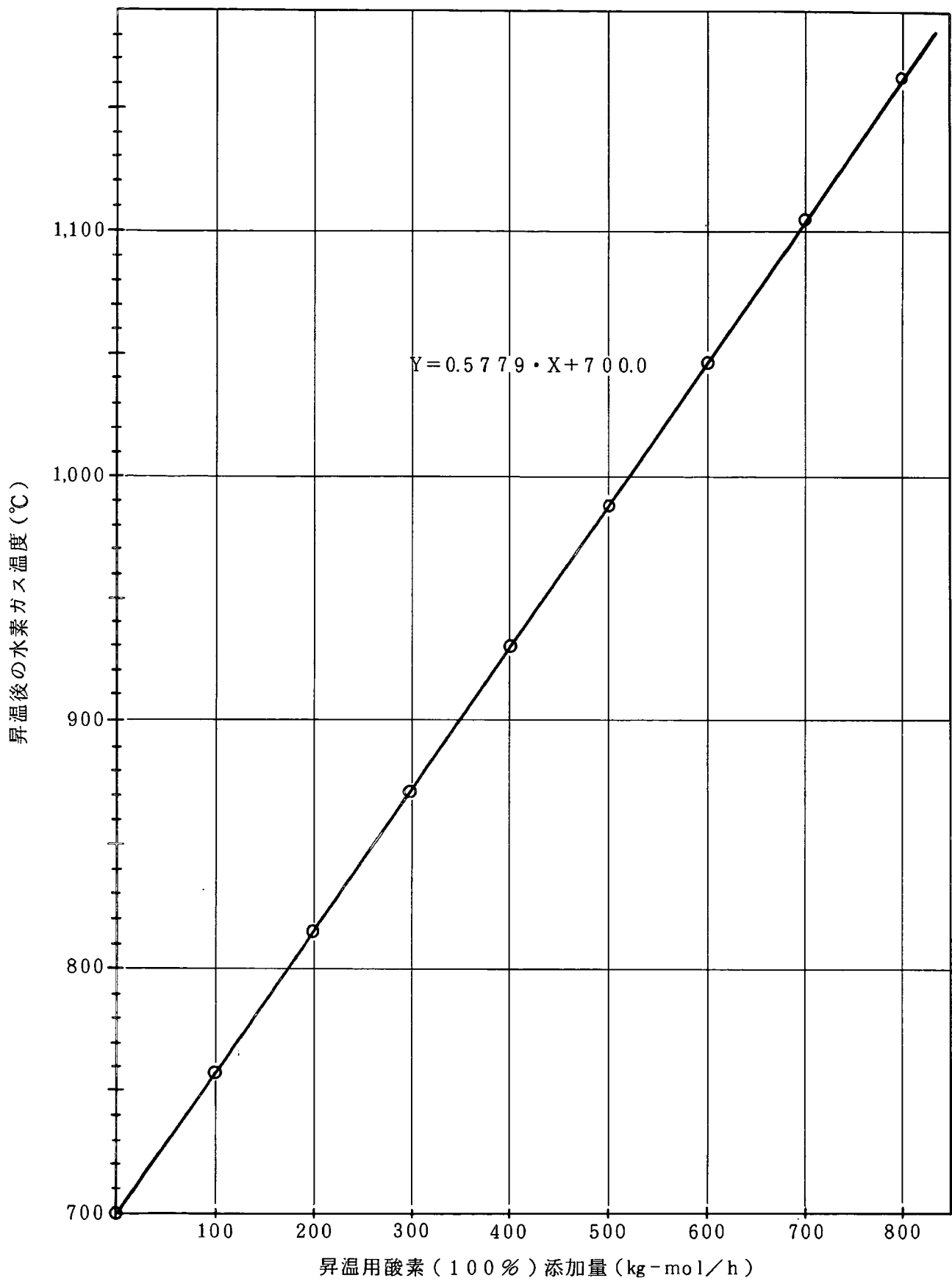
えると、この場合の、酸素量と全体熱効率の関係は次式で表される。

$$Y = -0.006623X + 77.50$$

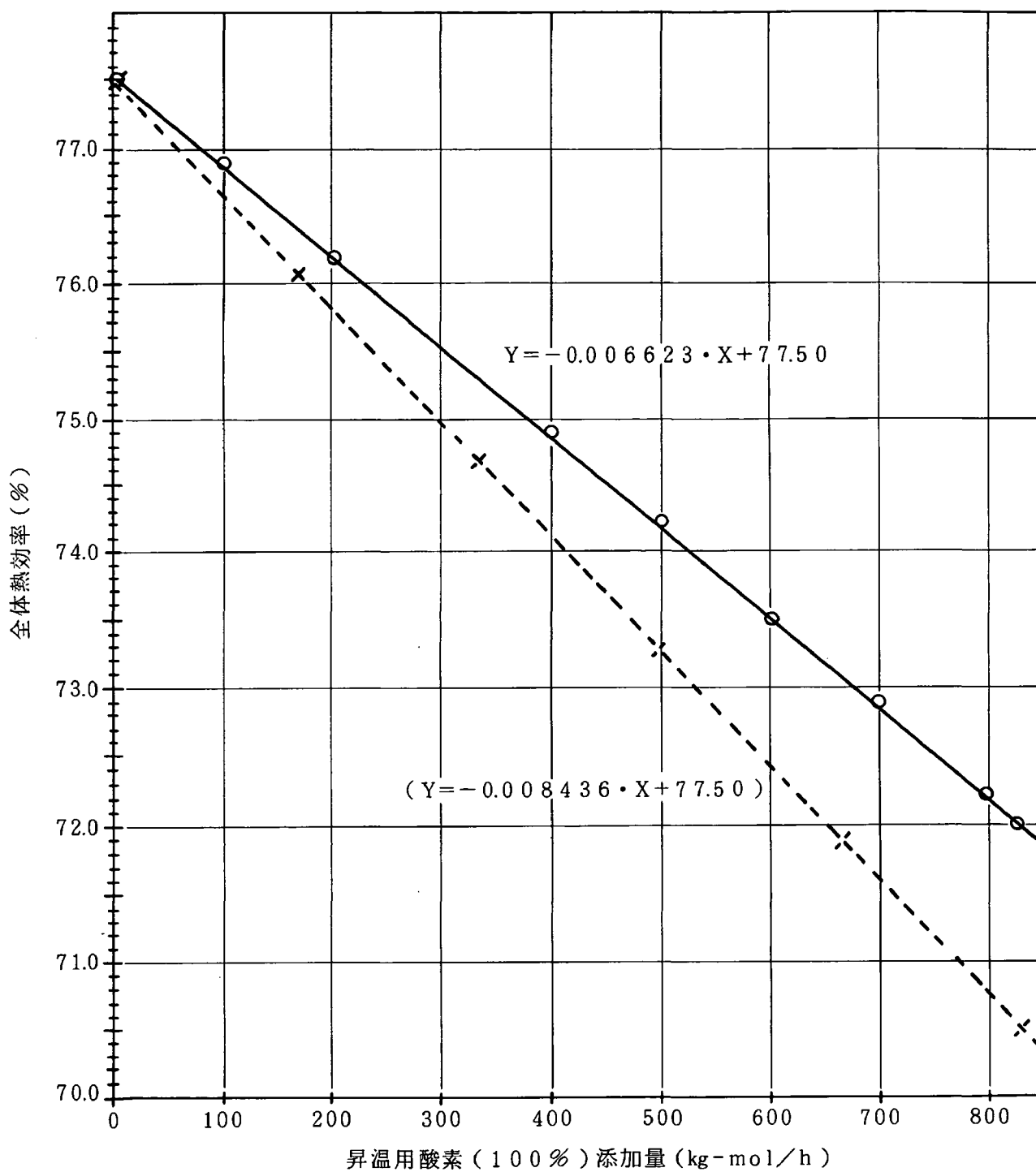
ここに、Y : 全体熱効率 (%)

X : 酸素 (100%) の供給量 (kg-mol/h)

これらの式を図示すると、第2-2-16図の様になる。



第2.2-15図 酸素使用量と昇温後の水素温度



第2.2-16図 水添ガス化反応器昇温用酸素添加量と全体熱効率

(8) 経済性の検討

以下に、運転費、設備費、経済性の順に記述する。

a 運転費

イ 運転資金

平成2、3年度と同様に、運転資金として、下記金利分を「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、ユーティリティー、副産物の単価は、平成2、3年度と同様、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、ユーティリティー

原料石炭 (DRY) 7,140円／t

電 力 18円／kwh但し、売電の場合は、9円／kwh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、昨年同様年間経費として、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重油並とみなす)

硫 黄 25円／kg

アンモニア 120円／kg

b 設備費

平成3年度報告書の値との対比で書くと(0.6乗則を適用)、第2.2-11表の如くなる。

なお、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2.2-11表 ARCH-2 設備費

平成3年度のARCH-1との対比でまとめると次表の通りになる。

種 別	項 目 (金額；百万円)	ARCH-2		平成3年ARCH-1		備考
		設備費	比率 %	設備費	比率 %	
1	100石炭関係	14,266	11.72	12,481	11.61	
2	200ガス発生(1)	14,235		10,500		
	(2)	28,277		25,613		
	小 計	42,512	34.92	36,113	33.60	
3	300ガス精製他	28,403	23.33	24,734	23.01	
4	400空気分離器他	15,730	12.92	13,319	12.39	
5	500ユーティリティ	20,828	17.11	20,828	19.38	
6	600オフサイト					
	合 計	121,739	100.00	107,475	99.99	
	予 備 費	12,174		10,748		
	総設備費	133,913		118,223		

c 固定費

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、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 原料石炭の在庫を1ヶ月分と見て、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 借り入れ金の比率は100%と見込む。
- VIII 土地についてはいっさい費用を計上しない事とした。
- IX 上記を勘案すると、毎年 of 原価償却費 (R) は、当初 of 設備費 (P) の 11.315% となる。即ち、 $R = 0.11315 P$

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

ここに、R : 各年度末原価償却費

P : 残存簿価

L : 残存簿価

i : 金 利

n : 償却年数

d 経済収支計算

今回の経済収支計算を、第2.2-12表にまとめる。

第2.2-12表 経済収支計算

平成3年度報告書と同じ手法で経済性の検討を行う。

固定費についての考え方、原料・予備品在庫、人件費の考え等、単価も含めて同じ値を採用した。なお、原料及び製品の量については、硫黄化合物やアンモニアを考慮した場合の値を採用する。

	項 目	単 価	使 用 量		年間経費 (百万円)
			毎 時	年 間	
変 動 費	1 原料石炭 (Dry)	¥ 7,140 / t	286.5176 t	2.26922x10 ⁶	16,202
	2 ユーティリティ				
	1) 工業用水	¥ 80 / t	1,332 t	10.549x10 ⁶	844
	3 触媒・ケミカルズ				600
	4 プロパン	¥ 50 / kg	24,521 kg	194.206x10 ⁶	9,710
	変動費計				27,356
固 定 費	1 人件費	¥ 7.00x10 ⁶ /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 x P			23,100
	3 原料・予備品費				248
	4 一般管理費				217
	固定費計				25,735
年間経費合計					53,091
	項 目	単 価	生 産 量		年間売上 (百万円)
			毎 時	年 間	
製 品	1 SNG		125,000Nm ³	990.0 x10 ⁶	
	2 ベンゼン	¥ 90 / kg	29,310kg	232.14x10 ⁶	20,892
	3 ナフサ類	¥ 25 / kg	1,512kg	11.98x10 ⁶	299
	4 硫黄	¥ 25 / kg	793kg	6.28x10 ⁶	157
	5 アンモニア	¥ 120 / kg	2,740kg	21.70x10 ⁶	2,604
	6 電力	¥ 9 / kwh	5,609kwh	44.42x10 ⁶	400
	SNG以外の収益				24,352
SNG製造原価:					¥ 29.03 / Nm ³

備考: スラグの処理については、省略した。

設備費は133,913百万円とする。

以上

e 感度分析

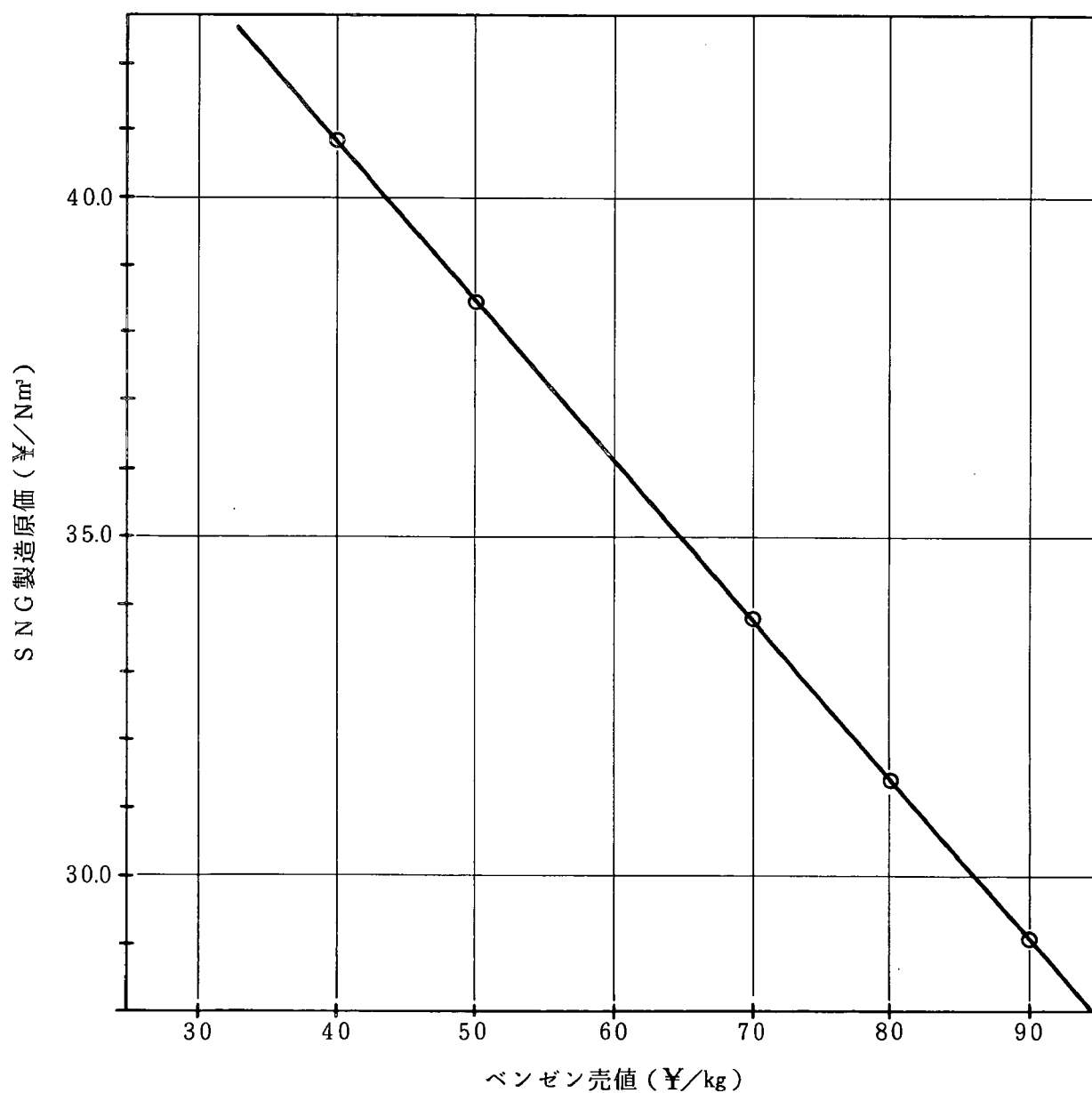
ベンゼンの売値の影響を調べるとつぎのようになる。

ベンゼン売値：円/kg	30	40	50	60	70	80	90
SNG製造原価：円/Nm ³	43.10	40.75	38.41	36.06	33.72	31.37	29.03

$$Y = -0.2345 \cdot X + 50.135$$

ここに、Y：SNG製造原価（円/Nm³）

X：ベンゼン売値（円/kg）



f SNG製造原価計算の為の一般式

いま、

SNGの製造原価	(円/Nm ³)	:	A
設備費	(百万円)	:	P
石炭の価格	(円/t)	:	C
プロパンの価格	(円/kg)	:	D
ベンゼンの価格	(円/kg)	:	B
ナフサ類の価格	(円/kg)	:	N
硫黄の価格	(円/kg)	:	S
アンモニアの価格	(円/kg)	:	M
売電価格	(円/kwh)	:	E

とし、その他は前述の通りとすると、SNG製造原価(円/Nm³)は次式で表される。

$$A = 1.742 \times 10^{-4} \{ P + 13.16C + 1.126 \times 10^3 D + 2.365 \times 10^4 \\ - (1.346 \times 10^3 B + 69.46N + 36.41S + 125.8M + 257.6E) \}$$

(9) 検討結果のまとめ

東京ガス(株)提示のデータを基にARCH-2のプロセスフローを考え、最適と思われる条件でF/Sを行ってきたが、結論的には次の通りになった。即ち、

- a SNG製造原価は、ベンゼン生産量が石炭中の炭素転換率で15.0%程度まで可能となり、ベンゼンの量が増えるので、この評価が大きく影響しSNG製造原価は、ARCH-1較べ、格段に低くなる(ARCH-1 ¥37.37/Nm³に対し、ARCH-2 ¥29.03/Nm³)。

但し、全体熱効率は72.0%程度に下がる。

- b ARCH-2のマスバランスは、シミュレーションにより算出したものであり、実際にどの程度の誤差があるかは、今後実験により実証して行く必要がある。

2. 3 顕熱利用に関するスタディ

2. 3. 1 新しいプロセス構成の考え方および提案

石炭と水素との反応熱は、メタン、BTX、 H_2O 、 CO 、 CO_2 などの生成によって発生する。発生した熱反応により未反応水素も含めた生成物の温度は上昇し、生成ガスや未反応チャーの熱容量分の熱（顕熱）が反応器から持ち出される。反応器の温度は反応熱と持ち出される顕熱と炉壁等からの熱損失との和が釣り合う点に落ち着く。この温度が、目的とする収率を実現できる反応温度と一致すれば、この条件でプロセスが成立することになる。

メタンや含酸素生成物の生成は比較的大きな発熱反応であるが、BTXの生成は吸熱が非常に弱い発熱反応である。また、BTXは熱容量が大きく、持ち去る顕熱も大きいため、その生成が進むほど反応器の温度維持が難しくなると、推定される。もともと、水添ガス化反応の発熱量は生成物の持ち出す顕熱を補って余りあるほどの余裕はない。このため、プロセスの熱損失が最低に迎えられ、冷ガス効率の高いプロセスが組めるともいえる。今年度の検討課題としたBTXの収率を高めたプロセスとした場合は、相対的にメタンの生成割合が減るので、反応熱はかなり減少し、反応温度を維持するには、何らかの熱補給手段をとらねばならないだろう。

従来開発が試みられたプロセスは、熱補給の手段をポイントにして、反応器のタイプやプロセス構成が分かれて来たともいえるだろう。ARCH-1のベースとなったBG/OG方式では、生成ガスと供給水素の間で熱交換を行うと共に、反応器中で生成ガスの一部を循環して、その熱を石炭と水素の加熱に利用することで、酸素を供給しなくても反応器を熱的に自立できるようにした。しかし、熱バランス上のゆとりはそれほど無いので、反応性の低い石炭の場合や運転中に水添ガス化反応を阻害する方向で異常が発生し、生成ガス－原料水素間の熱交換による調節の範囲を超えた場合には、反応温度を回復、維持できなくなる危険も想定される。

一方、ロックウェルでは、生成ガス－原料水素の熱交換に加えて、反応器に供給する水素の一部を燃焼した上で反応器に供給して、熱を補給する。この原理はARCH-2にも応用されたが、水素の燃焼による熱損失がかなり大きいことが予想される。

そこで、熱補給に関するプロセスの構成上の一つの試案として、未反応チャーを部分酸化した直後の、高温の生成ガスが持つ顕熱を水添ガス化炉に供給する方式を検討してみる。

従来のARCH-1、2プロセスでは、未反応チャーを部分酸化し、得られたガスを精製した後シフト転換し、さらに脱炭酸してほぼ純粋な水素とした後、水添ガス化炉に供給するプロセス構成をとった。この場合は、水素は室温付近で供給されるため、未反応チャーの部分酸化生成ガスの持っていた顕熱を、水添ガス化段階への熱補給は出来ない。検討する新しいプロセス構成では、チャーガス化炉からの高温ガスをそのまま水添ガス化炉あるいは水添ガス化炉への水素供給ラインに送り、その顕熱を利用することを、原理とする。

顕熱を利用するプロセス構成には、水添ガス化炉以後の生成ガスの冷却（循環ガスとの熱交換）、生成、シフト転換、脱炭酸、深冷分離など要素との組み合わせで、いくつかのケースが考えられる。大別すれば次の3つになろう。

1. 深冷分離器から水添ガス化炉に循環する水素ラインの適当な箇所に、部分酸化炉からの高温ガスを供給して、水添ガス化炉にはいる水素を昇温する。
2. 部分酸化炉（HYCOLなど）上部の熱回収部分に、循環水素の適当量を送入して部分酸化炉からのガスと混合して昇温する。同時に、気流層スラグトップガス化炉の課題であるフライとなった溶融スラグの冷却・固化を図り、両者の課題を解決する構成。
3. 部分酸化炉と水添ガス化炉を接続して一体のガス化炉とし、部分酸化炉からのガスを直接水添ガス化炉に供給して、その熱を利用する方式。

2は、現在開発中のHYCOL等の課題も一挙に解決できる点で、開発要素に富み、1よりも魅力的といえるかもしれない。3の部分酸化炉と水添ガス化炉を一体化する場合は、従来検討の枠を超えて、チャーの部分酸化炉をまったく新しい視点から開発する必要がある。従来の水添ガス化プロセスの開発では、チャーを水素にする部分酸化工程は既存もしくは開発中の石炭ガス化方式にゆだねることを前提としてきた。一体化した場合の反応雰囲気は、部分酸化炉からの一酸化炭素、二酸化炭素、水蒸気を含む～1600℃のガス中に水素と石炭を噴射することになり、ARCH-1のインジェクターの先端で生じる石炭-水素の接触雰囲気とは異なる。このため、蓄えてきた水添ガス化の知識では、一体化した反応器の開発をバックアップするには不十分で、基礎研究の段階から検討しなおす必要がある。3の構成に関しては、今後の課題と考えられる。

さて、部分酸化炉からの顕熱も利用できる構成としたときに、二次的効果として、プロセスフローの簡素化が挙げられる。従来のARCHの構成では、部分酸化炉からのガスと水添ガス化炉からのガスの両系統にガス精製、シフト転換、脱炭酸等の処理を必要とした。

これが新しい構成になると、部分酸化炉からのガスはダストを除去しただけで水添ガス化炉に送られ、その後一括して処理するので、上述の系統を一本化できる。プロセスの簡素化は設備費や運転費に影響すると考えられ、経済性に関する効果を検討しておく必要がありそう。

一方、新しいプロセス構成としたときの問題点としては、次の5点が挙げられる。

1. 水添ガス化炉に供給する水素の分圧が低下して、急速水素化熱分解によるメタン、B T Xの生成反応に影響する可能性がある。
2. 水添ガス化炉以後の生成ガス量が増加するので、配管の径やガス精製設備が大型化する。
3. 高温のガスを導入するため、反応器インジェクターの材料や構造が制限される。
4. 水素製造段階から回収されるスチームが減少するので、プロセス全体でのスチームバランスがとりにくくなる。
5. プロセスのイニシャルスタートアップが難しくなる。

いずれも、ある程度のプラントによりプロセス構成を技術的、経済的に検討し、可能性を評価する必要があるが、本年の調査の範囲内で、これらの実質的な検証は無理である。そこで、プロセスデータの揃っているARCH-1をベースに、水素製造段階からの顕熱の利用を前提に、上記の問題点の2と4に関して、プロセスとしての設備費や効率に与える影響を推定し、新しいプロセス構成の可能性について検討した。

2. 3. 2 顕熱利用型プロセスの評価

2. 3. 2. 1 検討の前提について

(1) 検討のための顕熱利用型プロセスの内容

a. 顕熱利用型プロセスの定義

- * 部分酸化炉からの生成高温ガスを循環水素と共に直接水添ガス化炉に吹き込み、水添ガス化の熱源として利用し、効率の向上と建設コストの低減をはかるプロセス。
- * 石炭急速昇温に不足する熱源は、水添ガス化反応熱の一部を活用するプロセス。

b. 前提

部分酸化炉からの生成高温ガスは、循環水素ガスにより急冷された後、直接水添ガス化反応器に吹き込まれる。

- * 水添ガス化炉性能：（平成3年度報告書と同一とする。）

反応条件： 温度：850℃、圧力：75kg/cm²、g.

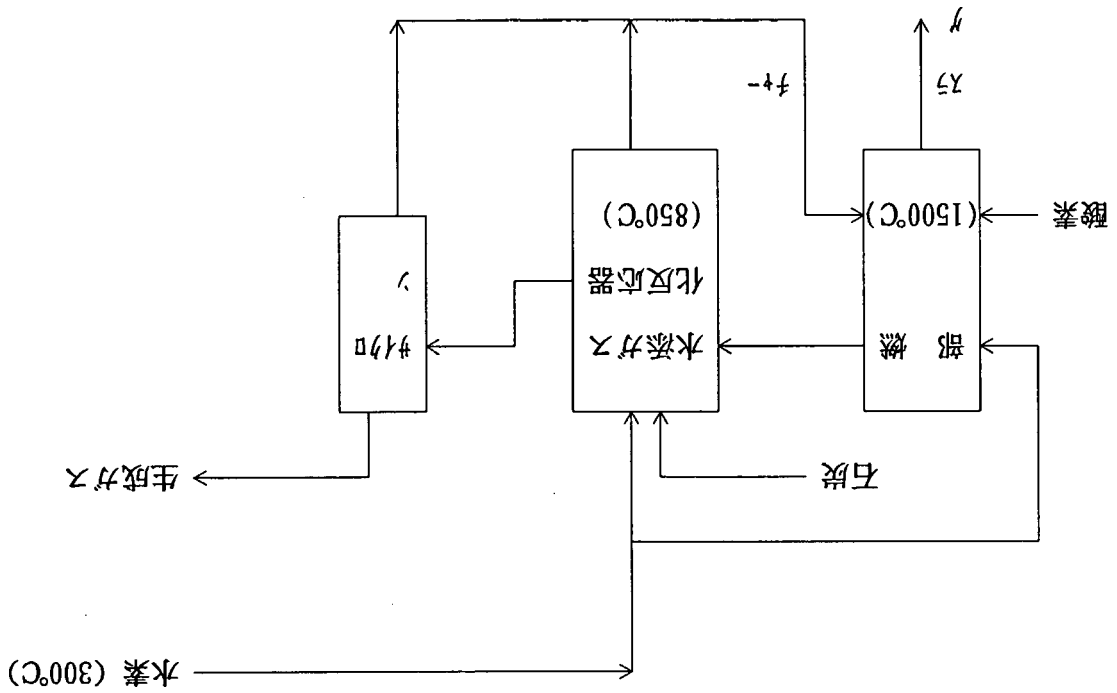
H₂/DAF Coal重量比：0.2、滞留時間：12sec

炭素転化率：メタン 38.5、他ガス 2.8、BTX 6.2、タール 3.9

- * 水添ガス化炉内の平均水素分圧は、50kg/cm²程度とする。

- * 石炭急速昇温のため一部生成ガスを内部循環する。

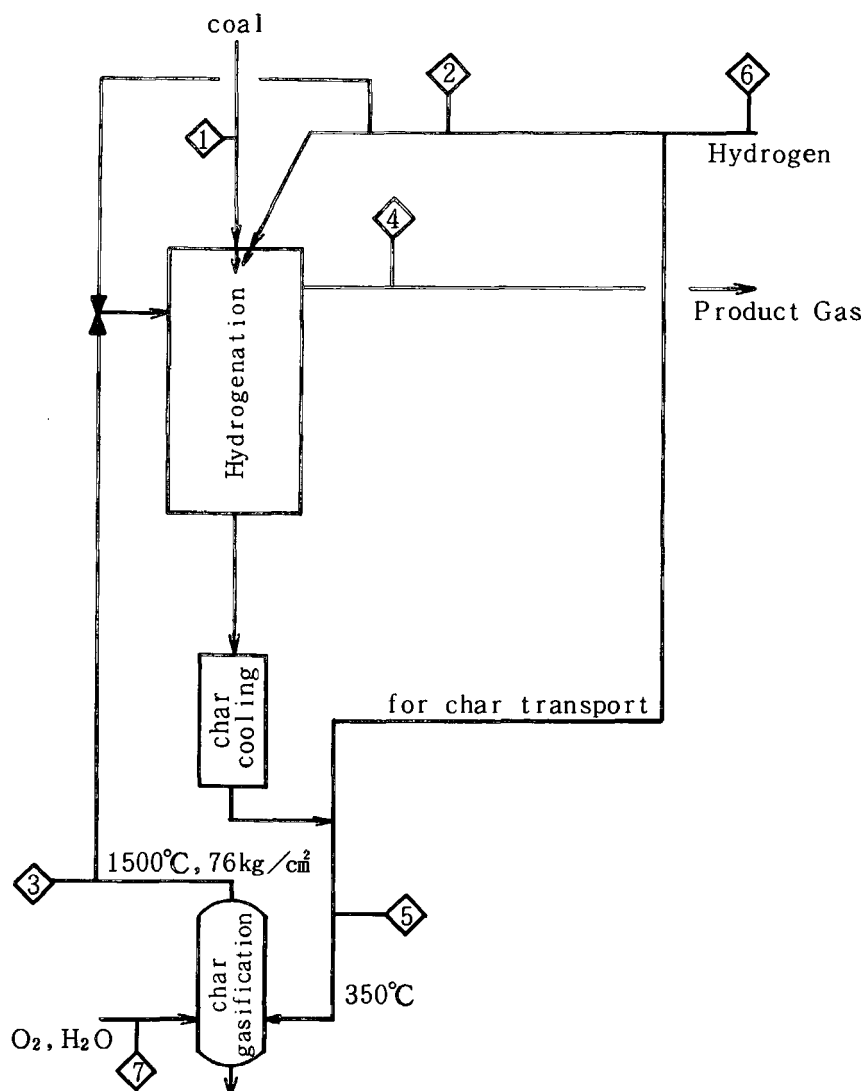
- * 水添ガス化炉出口では、シフト平衡が成り立っている。



c. マテリアルバランス

下表の通りである。

		1	2	3	4	5	6	7	8	9
CO ₂	kgmol/h		11.64	405.09	585.45	.22	11.86			
CO	kgmol/h		468.65	5937.81	6592.98	8.96	477.61			
H ₂	kgmol/h		21511.17	1346.28	16673.87	411.19	21922.37			
CH ₄	kgmol/h		343.63	57.25	5500.90	6.56	350.21			
H ₂ O	kgmol/h			225.77	1636.61			580.92		
N ₂	kgmol/h		46.70	19.46	66.16	.89	47.60	3.10		
O ₂	kgmol/h							3084.59		
H ₂ S	kgmol/h			8.52	16.76					
C ₂ H ₄	kgmol/h		.01		7.02		.01			
C ₃ H ₆	kgmol/h									
C ₆ H ₆	kgmol/h				137.42					
C ₇ H ₈	kgmol/h				.02					
C ₁₀ H ₈	kgmol/h				25.80					
C ₁₄ H ₁₀	kgmol/h				18.43					
COS	kgmol/h			.80	1.73					
NH ₃	kgmol/h			2.17	124.47					
HCL	kgmol/h			0.49	1.37					
HCN	kgmol/h			2.16	5.92					
AR	kgmol/h		14.14	12.67	26.38	0.27	14.41	12.40		
Coal(DAF) kg/h		210,255.9				82,723.9				
Coal(DAF) kg/h		33,655.7				33,655.7				



d. 一般事項

前記、2. 2. 3. 1. (2) 一般事項と同様とする。

2. 3. 2. 2 検討の進め方とその結果

(1) 顕熱利用型プロセス検討要領

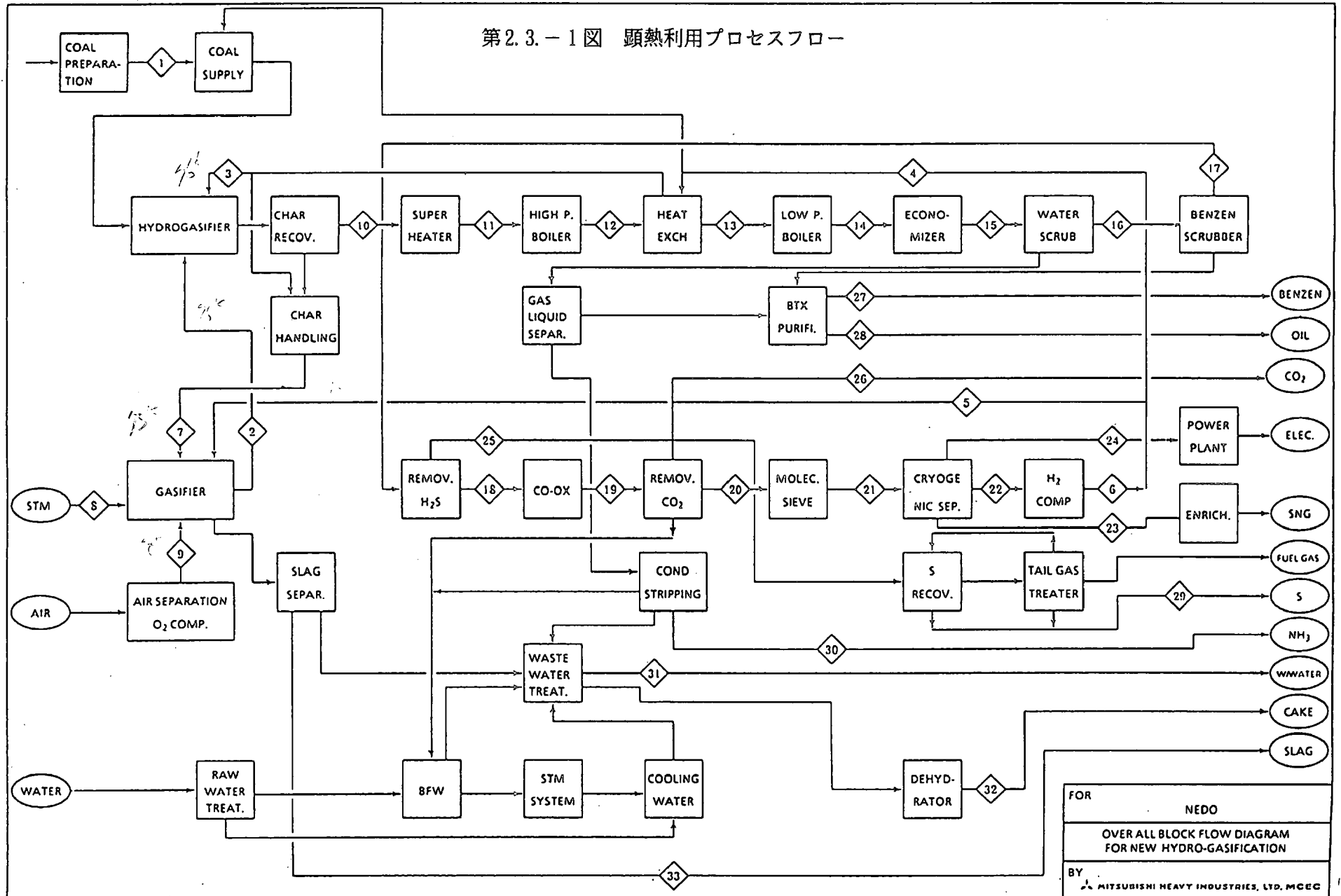
前記マテリアルバランスの様に、当初はチャー部分酸化炉からの発生ガスを、1,500℃で取り出し、水添ガス化反応器へ送り込む様になっているが、スラッグの析出を考慮し、1,000℃にまで急冷した後、水添ガス化反応器に送り込むように配慮してマテリアルバランスを考える。また、循環水素ガスの組成については、深冷分離後のガス組成に応じて修正するものとする。

(2) 顕熱利用型プロセスのプロセスフロー

第2.3-1図の通りである。

(3) 顕熱利用型プロセスのマテリアルバランス

第2.3-1表の如くなる。



第2.3.-1表 顕熱利用型プロセスのマテリアルバランス

	M.W.	1		2		3		4		5		6		7		8		9	
		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			115.74	0.87	183.70	1.10	188.37	1.10	60.38	1.11	248.75	1.11	4.67	1.10				
CO	28.01			6,001.54	45.37	206.22	1.24	211.45	1.24	67.46	1.24	278.91	1.24	5.23	1.23				
COS	60.7			0.80	0.01														
CO ₂	44.01			404.87	3.06														
C ₂ H ₆	30.07																		
C ₆ H ₆	78.114																		
C ₇ H ₈	92.141																		
H ₂	2.016			6,652.86	50.29	16,211.02	97.50	16,624.78	97.50	5,304.00	97.50	21,928.78	97.50	413.76	97.51				
H ₂ S	37.08			8.52	0.06														
HCl	36.461			0.49	0.00														
N ₂	28.02			39.79	0.30	25.96	0.16	26.62	0.16	8.16	0.15	34.78	0.15	0.66	0.16			15.50	
O ₂	32																	3,084.59	
NH ₃	17.031			2.17	0.02														
CS ₂	76.131																		
HCN	27.026			2.11	0.02														
A	39.748																		
C ₁₀ H ₈	128.17352																		
C ₁₀ H ₁₀	128.17352																		
Total gas-dry, Kg-mol/h				13,228.89	100.00	16,626.90	100.00	17,051.22	100.00	5,440.00	100.00	22,491.22	100.00	424.32	100.00			3,100.09	
Steam, Kg-mol/h																580.92			
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				1,000		364		100		100		100		350		313		100	
Press, Kg/cm ² g				76		76		85		86		86		75		105		78	

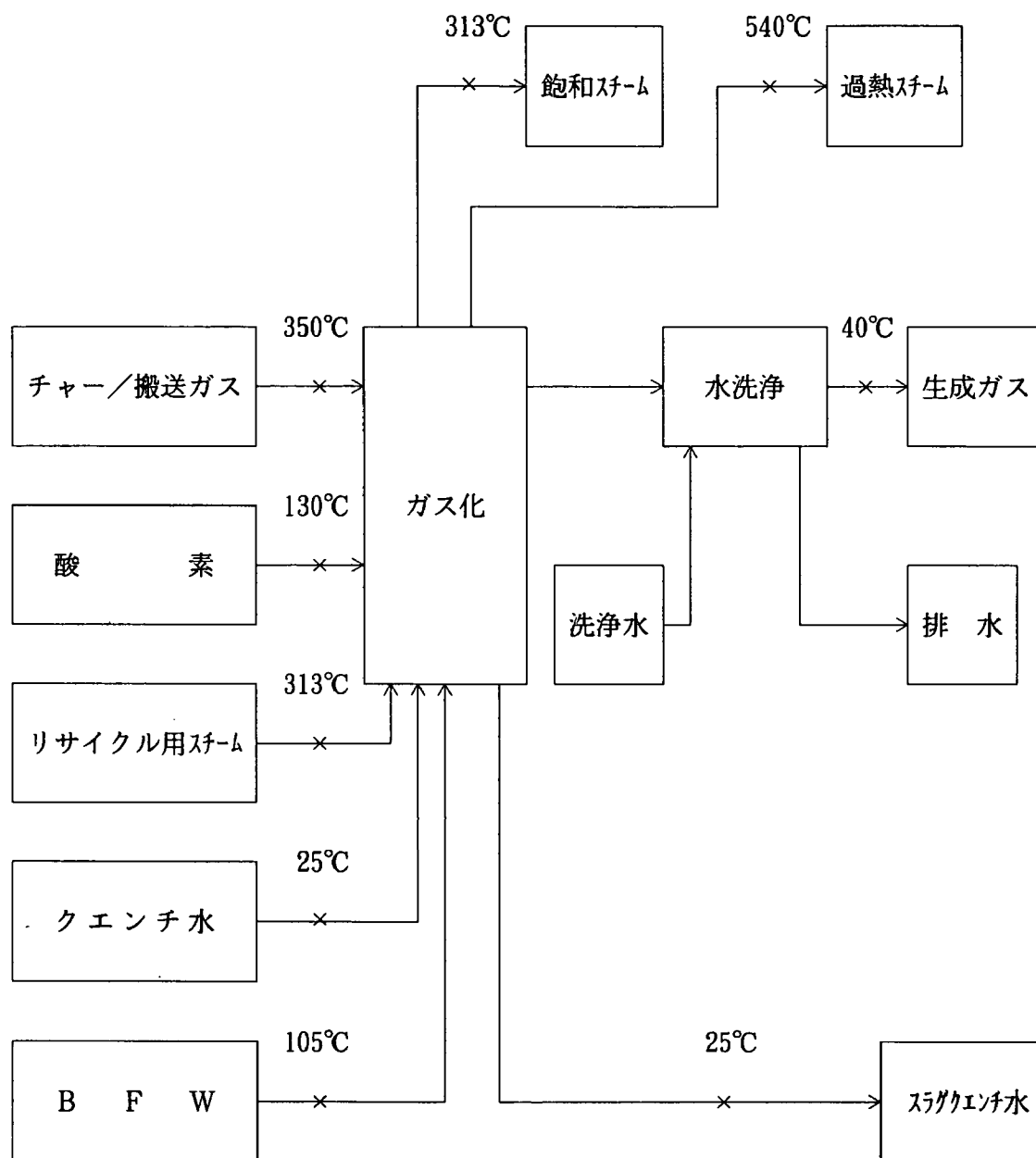
[illegible]

[illegible]

[illegible]

(4) ユーティリティについて

a. HYCOL系での熱回収量とスチーム発生量について



HYCOL系でのプロセス・フローは、ARCH-1でチャーを原料とした時のものとして、上記のものが与えられている。即ち、

スチーム発生量： 105 kg/cm², g. 540℃, 156.9 t/h
 105 kg/cm², g. 313℃, 76.2 t/h

上記フロー図から解るように、HYCOLから生成されるスチームは、 $105 \text{ kg/cm}^2, \text{g.}$ の過熱スチームと飽和スチームだけで、エコマイザーも設けていない。従って、排熱を可能な限り低い温度まで、 $105 \text{ kg/cm}^2, \text{g.}$ 飽和スチーム発生に利用している。

BFWの温度が 105°C であるので、この利用下限温度を 150°C とすると、HYCOL出口ガス温度 1500°C の場合、熱バランスをとると、スーパーヒーターの後流でWHBにより回収される熱量は、

$$Q = 66.261 \times 10^6 \text{ kcal/h}$$

となる。

この熱量で発生する $105 \text{ kg/cm}^2, \text{g.}$ 飽和スチーム量は、 121.5 t/h となる。

$$(66.261 \times 10^6 / 0.54524 \times 10^6 = 121.526 \text{ t/h})$$

不足する $105 \text{ kg/cm}^2, \text{g.}$ 飽和スチーム量は、 111.574 t/h となる。

$$(233.1 - 121.526 = 111.574)$$

従って、ガス温度が炉内で 1500°C まで下がるまでに、飽和スチームとして回収される熱量は、

$$Q = 111.574 \text{ t/h} \times 0.545424 = 60.83 \times 10^6 \text{ kcal/h}$$

従って、この熱量を 60 MMkcal/h と見なす事とする。

この熱量により発生する、 $105 \text{ kg/cm}^2, \text{g.}$ の飽和スチーム量は、 110.04 t/h に相当する。顕熱利用型プロセスの場合は、HYCOLで回収されるスチームはこれだけになる。

b. スチームに関するバランス

平成3年度のARCH-1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回収されるスチームは次の通りである。

スチー ム	今 回 (t/h)			平成3年度報告書(t/h)		
	(1)	(2)	(3)	(1)	(2)	(3)
105kg/cm ² , g. 540°C	208.0	----	----	51.1	156.9	----
105kg/cm ² , g. 313°C	44.3	110.0	136.3	79.8	76.2	96.4
3.5kg/cm ² , g. 147°C	----	----	----	----	----	24.7

備考；(1)は水添ガス化反応器系、(2)はHYCOLガス化系、(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3年度報告書
105kg/cm ² , g. 540°Cスチーム	208.0 t/h	208.0 t/h
105kg/cm ² , g. 313°Cスチーム	290.6 t/h	252.4 t/h
3.5kg/cm ² , g. 147°Cスチーム	0.0 t/h	24.7 t/h

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

	今 回	平成3年度報告書
HYCOL 向け	10.4 t/h	10.4 t/h
ガス精製系 CO変換炉	172.7 t/h	127.7 t/h

大型圧縮機等の動力用に向けられるスチームは次の通り。

	今 回	平成3年度報告書
105kg/cm ² , g. 540°Cスチーム	208.0 t/h	207.9 t/h
105kg/cm ² , g. 313°Cスチーム	135.1 t/h	64.4 t/h

大型のスチーム・タービン駆動機は、次の通り。

	今 回	平成 3 年度報告書
空気圧縮機 2 基計)	26,396 kwh	26,396 kwh
酸素圧縮機 2 基計)	16,178 kwh	16,178 kwh
No.1水素圧縮機	12,686 kwh	9,357 kwh
コンソール+No.2水素圧縮機	600 kwh	3,300 kwh
合計	55,860 kwh	55,231 kwh

BFWの必要量は次の通り。

	今 回	平成 3 年度報告書
BFWフィード量	240.0 t/h	208.7 t/h
(デアレーター入り口BFW	450.6 t/h	416.4 t/h)

c. 電力に関するバランス

電力使用量についてまとめると次の通りである。単位：kwh。

項 目	今 回	平成 3 年度報告書
1. 石炭前処理工程	6,655	6,655
2. 水添ガス化工程	2,366	3,466
3. 同上ガス精製工程	2,630	1,041
4. HYCOL	1,809	1,809
5. 同上ガス精製工程	-----	2,689
6. プロセスプラント共通設備	179	179
7. ユーティリティー・オフサイト	4,668	6,352
電力所要量合計	18,307	22,191
発電量	26,611	31,590
売電必要量	8,304	9,399

(5) 熱効率

総合熱効率を、平成3年度報告書との対比で書くと、第2.3-2表の通りとなる。

第2.3-2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 (%)
顕熱利用型プロセス	入 石炭DRY	kg	243,881.6	6,650	1,621.8x10 ⁶	100.0
	製造ガス	Nm ³	112,631.3	9,546.2	1,075.2x10 ⁶	66.3
	ベンゼン	kg	10,196	9,999	101.9x10 ⁶	6.28
	ナフサ類	kg	6,262	10,000	62.6x10 ⁶	3.86
	硫黄	kg	526	2,220	1.17x10 ⁶	0.07
	NH ₃	kg	1,799	5,048	9.08x10 ⁶	0.56
	電力	kwh	8,304	860.0	7.14x10 ⁶	0.44
	出力計				1,257.09x10 ⁶	77.51
	総合熱効率：77.51%					77.51%
平成3年度報告書	入 石炭DRY	kg	243,881.6	6,650	1,621.81x10 ⁶	100.0
	製造ガス	Nm ³	112,625	9,547	1,075.23x10 ⁶	66.30
	ベンゼン	kg	10,146	9,999	101.44x10 ⁶	6.25
	ナフサ類	kg	6,230	10,000	62.30x10 ⁶	3.84
	硫黄	kg	526	2,220	1.17x10 ⁶	0.07
	NH ₃	kg	1,732	5,048	8.74x10 ⁶	0.54
	電力	kwh	9,399	860.0	8.08x10 ⁶	0.50
	出力計				1,256.96x10 ⁶	77.50
	総合熱効率：77.50%					77.50%

(6) 顕熱利用型プロセスについての気付き事項

以下に検討過程における気付き事項を記す。

a. H Y C O L 発生ガスの水添ガス化反応器へのガス導入要領

H Y C O L 発生ガスは、炉内で循環水素ガスにより急冷されて、1,000℃の温度で水添ガス化反応器に導入されるが、このガスは直接反応器の上部に4方向から分割導入されるものと考えた。石炭と直接接触反応する循環水素ガス量をなるべく多量にするために、H Y C O L ガスの急冷用の水素ガスの温度は極力抑え、循環水素圧縮機出口の100℃とし、ガスの内部循環量の確保に務める。

急冷後のガスは、1000℃の状態で反応器の上部に導入すれば、反応器内の内部循環ガスと共に熱補給が十分に行われて、364℃の水素と石炭が接触反応しても、問題はないものと判断する。

b. 水添ガス化反応器内における水素分圧

A R C H - 1 の場合に比べ、水添ガス化反応器入り口での水素分圧が少し低くならざるを得ない。その程度は、A R C H - 1 の $71.9\text{kg}/\text{cm}^3, \text{g.}$ に比べ、 $57.5\text{kg}/\text{cm}^3, \text{g.}$ に下がる。水素分圧が約8割程度になるが、水素の絶対量は僅かながら増加しているので、ここでは、顕熱利用型プロセスの前提に書かれてある通り、A R C H - 1 と同等の反応が起きるものと考えて検討を進めた。

c. 回収スチームの動力源としての有効利用の徹底

顕熱利用型プロセスでは、 $100\text{kg}/\text{cm}^3, \text{g.}$ の飽和スチームが A R C H - 1 より多く発生するので、余剰の $40\text{kg}/\text{cm}^3, \text{g.}$ 過熱スチームを背圧タービンの動力源として活用し、電力使用量の節減を図る。即ち、 $40\text{kg}/\text{cm}^3, \text{g.}$ 過熱スチーム (380℃) を、 $3.5\text{kg}/\text{cm}^3, \text{g.}$ の背圧タービンの動力源として利用するのである。これにより、3,884kwhの電力が節減される。

(7) 経済性の検討

以下に、運転費、設備費、経済性の順に検討を行うが、運転費についての前提条件は全
て前記「2. 2. 3. 2. 検討の進め方とその結果 (8) a. 運転費」、と同一とする。

重複するのでここでは省略する。

a. 設備費

平成3年度報告書の値との対比で書くと (0.6乗則を適用)、第2.3-3表の如くなる。な
お、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。
顕熱利用型プロセスでは、HYCOL炉内発生ガスを、1,500°Cの状態から、多量の循
環水素ガスを添加して急冷し、1,000°C程度のスラッシュ析出の面で安定した状態にした後
炉外に取り出し、水添ガス化反応器に導入する事を考えている。従って、HYCOL炉は、
炉内における排熱回収装置も含めて上部が不要となり、大幅に設備費が減少する事になる。
種々検討の結果を織り込んで、まとめたものが第2.3-3表である。

第2. 3-3表 顕熱利用型プロセスの設備費

種 別	項 目	顕熱利用型プロセス		平成3年度報告書		備 考
		設 備 費	比率 %	設 備 費	比率 %	
1	1 0 0 石炭関係	12,481	12.21	12,481	11.61	単位は 百万円
2	2 0 0 ガス発生(1)	12,503		10,500		
	(2)	17,294		25,613		
	小 計	29,797	29.14	36,113	33.60	
3	3 0 0 ガス精製他	25,829	25.26	24,734	23.01	
4	4 0 0 空気分離器他	13,319	13.03	13,319	12.39	
5	5 0 0 ユーティリティ	20,828	20.37	20,828	19.38	
6	6 0 0 オフサイト					
	合 計	102,254	100.01	107,475	99.99	
	予備費	10,225		10,748		
	総設備費	112,479		118,223		

b. 固定費

固定費の考え方も、前記「2. 2. 3. 2. 検討の進め方とその結果(8) c. 固定費」、
と同一とする。従い、ここでは省略する。

c. 経済収支計算

今回の経済収支計算を、第2.3-4表にまとめる。

第2. 2-4表 経済収支計算

平成3年度報告書と同じ手法で経済性の検討を行う。

固定費についての考え方、原料・予備品在庫、人件費の考え等、単価も含めて同じ値を採用した。

	項 目	単 価	使 用 量		年間経費 (百万円)
			毎 時	年 間	
変 動 費	1 原料石炭 (Dry)	¥ 7,140 / t	243.8816 t	1.93154x10 ⁶	13,791
	2 ユーティリティ				
	1) 工業用水	¥ 80 / t	1,332 t	10.549x10 ⁶	844
	3 触媒・ケミカルズ				600
	4 プロパン 変動費計	¥ 50 / kg	24,364 kg	192.963x10 ⁶	9,648 24,883
固 定 費	1 人件費	¥ 7.00x10 ⁶ /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 x P			19,403
	3 原料・予備品費				248
	4 一般管理費 固定費計				217 22,038
年間経費合計					46,921
	項 目	単 価	生 産 量		年間売上 (百万円)
			毎 時	年 間	
製 品	1 SNG		125,000Nm ³	990.0 x10 ⁶	
	2 ベンゼン	¥ 90 / kg	10,196kg	80.75x10 ⁶	7,268
	3 ナフサ類	¥ 25 / kg	6,262kg	49.60x10 ⁶	1,240
	4 硫黄	¥ 25 / kg	526kg	4.17x10 ⁶	104
	5 アンモニア	¥ 120 / kg	1,799kg	14.25x10 ⁶	1,710
	6 電力	¥ 9 /kwh	8,304kwh	65.77x10 ⁶	592
SNG以外の収益					10,914
SNG製造原価： ¥ 36.37 / Nm ³					

備考：スラグの処理については、省略した。

設備費は112,479百万円とする。

d. 感度分析

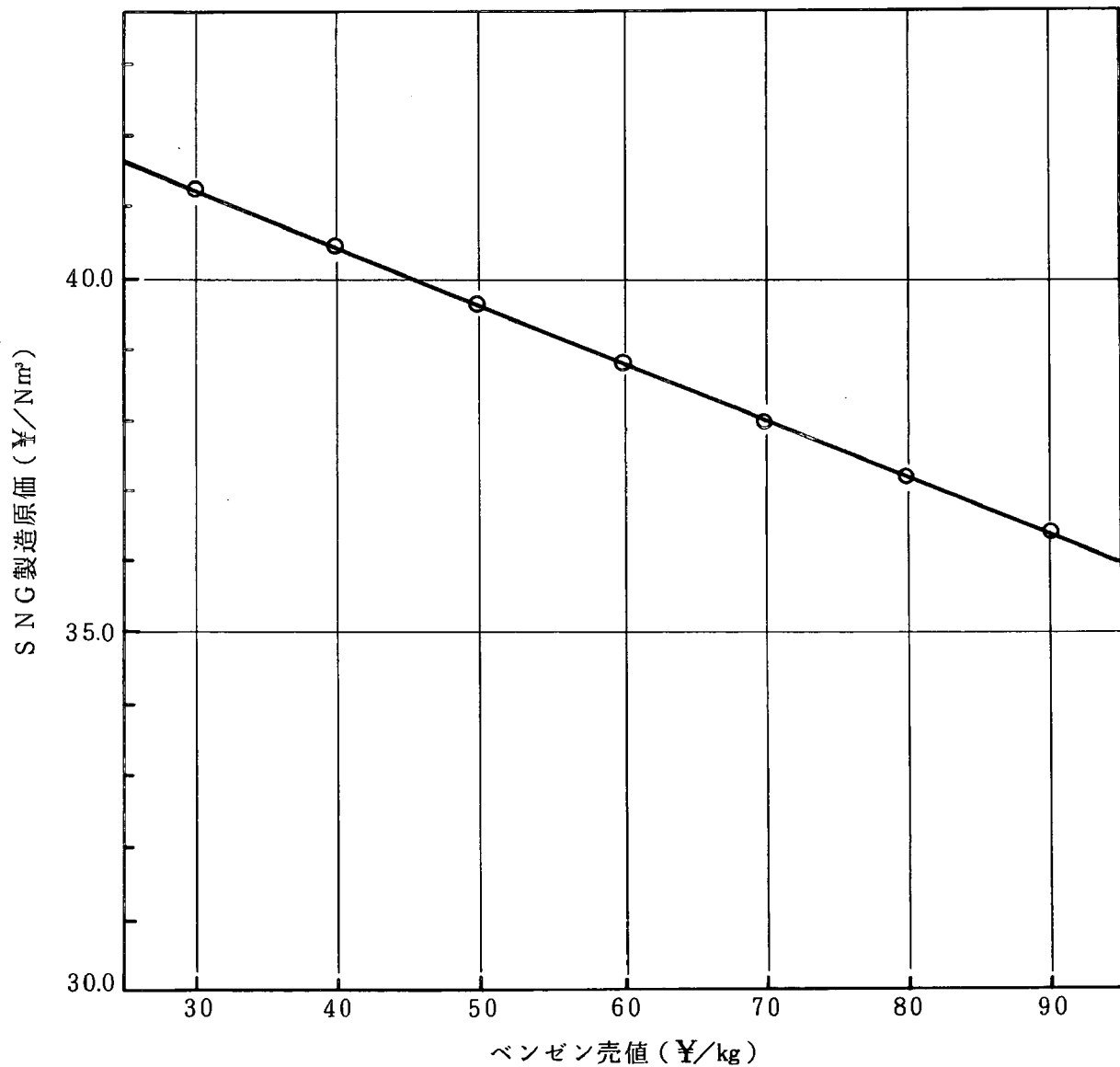
ベンゼンの売値の影響を調べるとつぎのようになる。

ベンゼン売値：円/kg	30	40	50	60	70	80	90
SNG製造原価：円/Nm ³	41.26	40.45	39.63	38.82	38.00	37.19	36.37

$$Y = -0.0815 \cdot X + 43.705$$

ここに、Y：SNG製造原価（円/Nm³）

X：ベンゼン売値（円/kg）



e. SNG製造原価計算の為の一般式

いま、

SNG製造原価	(円/N m ³)	:	A
設備費	(百万円)	:	P
石炭の価格	(円/t)	:	C
プロパンの価格	(円/kg)	:	D
ベンゼンの価格	(円/kg)	:	B
ナフサ類の価格	(円/kg)	:	N
硫黄の価格	(円/kg)	:	S
アンモニアの価格	(円/kg)	:	M
売電価格	(円/kwh)	:	E

とし、その他は前述の通りとすると、SNG製造原価(円/N m³)は次式で表される。

$$A = 1.742 \times 10^{-4} \{ P + 11.20C + 1.119 \times 10^3 D + 2.365 \times 10^4 \\ - (468.3B + 287.6N + 24.18S + 82.61M + 381.3E) \}$$

(8) 検討結果のまとめ

与えられたデータを基に、顕熱利用型プロセスのプロセスフローを考え、最適と思われる条件でF/Sを行って来たが、結論的には次の通りになった。即ち、

- 全体熱効率ARCH-1の場合と殆ど同じである。
- 設備費については、ガス精製系は一系列になるが、ガス量が増えるので、ARCH-1の場合よりかえって設備費が増えるが、HYCOLでのガス化炉周りの設備費が大幅に減額できるので、全体としては設備費を節約出来る。
- ARCH-1では、ガスからの排熱回収を十分に行っており、新プロセスでHYCOLからの発生ガスの顕熱を利用しても、ガス全体から回収される排熱量はそう変わらない事が、前記”a”につながっている。
- 水添ガス化反応器入り口における水素分圧が、ARCH-1の場合に較べ低くなるので、ATCH-1と同等な反応が起きるか否か、多少問題があるが、これは今後の実験により確認して行く必要がある。

2. 4 今後の検討への提言

平成2年から続けてきた水添ガス化の調査研究は、初年度に、OG/BG方式に基づく水添ガス化プロセスとBG/Lurgiの部分酸化炉とメタネーションを組み合わせたプロセスとを、技術と経済の両面から比較し、水添ガス化プロセスの優位性を明らかにした。2年度には初年度に検討したプロセスの省エネルギー化を図り、さらに高効率のARCH-1として、提案した。また、BTX等の液収率を高め、ARCH-1の経済性を改善する試みとして、ARCH-2の概念を提出した。

本年度は、初年度、2年度の基礎検討の成果として構築されたモデルを基に、ARCH-2の反応シミュレーションを行い、石炭の熱分解と水素化分解を個別に制御すれば、液収率を向上できるとの、結論を得た。また、プロセスの簡素化やプラントコスト低減の観点から、水添未反応チャーをガス化して得た生成ガスを高温のまま水添炉に供給することでガスの顕熱を利用する方式も検討し、設備費低減による経済性向上に一応の効果があるとの計算結果を得た。

こうしたスタディを進める一方、石油・天然ガスの資源量の制約や地球規模での環境問題の認識が深まるなかで、どのようなプロセスが望まれるかを検討した。我国が開発すべきプロセスのあり方を整理して、次の3つのケースを想定した。

- ① SNG収率最大
- ② ~~冷ガス~~^{水素}効率最大
- ③ 液収率最大

すなわち、BTX等の副生成物の需要等に影響されることなく、安定した操業を必要とする場合は、①の方式が望ましいといえる。地球環境の維持や資源の有効利用を図る立場からは、②が適している。また、BTX等の付加価値に着目して、プロセスの経済性が優先されるならば③を選択すべきだろう。

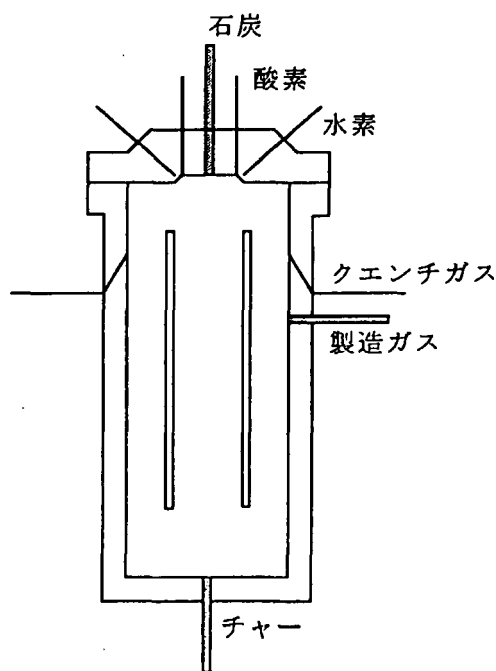
将来、石油・天然ガスの供給が減退するときの石炭、原子力、再生可能エネルギーを含めた需給バランスのあり方、資源保有国と消費国との政治的緊張など、エネルギーをめぐる世界の将来動向には、あまりにも不透明な部分が多い。①、②、③の3ケースの1つを特定して、プロセス開発の方針を決定することは、難しく危険ですらある。従って、将来

の水添ガス化プロセスとしては、①～③のケースを運転モードとして自在に選択できる、フレキシビリティに富んだプロセスを開発すべきといえよう。

SNGに対する都市ガス、電力、鉄鋼その他の産業で需要は、毎日の時間帯において、あるいは毎年の季節によって変動することが予想され、プロセスはこれに追随しなければならない。こうしたプロセスの負荷変動が求められたときに、SNGとBTXの収率バランスを調節しながら対応できれば、我国にとってメリットが大きいであろう。また海外炭に依存する我国としては、炭種を変更した場合にも、SNGとBTXを安定して生産する必要があり、フレキシビリティの高いプロセスを開発する意義は大きい。

過去2年の調査により、SNG生産に有利であり、反応器を熱的に自立させ、冷ガス効率を高めたプロセスとして、ARCH-1を提案した。一方で、SNG収率を高くし、経済性を改善したARCH-2の可能性を検討した。両者の特徴を生かし、各種の運転モードを実現できるフレキシブルなプロセスをARCHの目標として掲げ、今後の開発を方向づけることを提案する。開発したい反応器は、熱分解と水素化分解を個別制御してメタンとBTXの収率比を調節できる方式である。すなわち、炉内に供給された石炭を高温で急速熱分解するための酸素補給機構と、熱分解後の生成ガスに冷水素を添加して、水素化分解温度に調節できる設備とを備えたものである。熱補給用酸素と冷却用水素の量を加減して、上述の①～③の運転モードを実現できる反応器とする。

開発目標とするべき反応器の一つのイメージを第2.4-1図に示す。またこの反応器で得ようとする成績について、BTX収率と熱効率関係をグラフに示すと第2.4-2図のようになる。高効率を目指す場合酸素をゼロとして循環効果を利用し、液収率向上を目指す場合酸素を注入し反応開始温度を高めクエンチガス量の調整により反応を制御しようとするものであるが、一つの反応器でこれだけ幅広い成績を目指すものは未だ開発されておらず、開発のためにはベンチプラントを用いての反応の実証を始めとして各種要素開発



第2.4-1 図 反応器イメージ図

試験等ステップを踏んだ手順が必要である。幸いなことに本プロセスについては、反応器本体基本構造、反応器周辺技術等既に開発済みの部分もあり、これらを最大限有効活用することにより、開発の効率化を図って行きたい。

このことを踏まえパイロットプラント運転研究に至るまでに必要な主要要素開発課題を列記すると以下の通りとなる。

①ベンチプラントテスト

高温水素による反応の実証

②バーナー（インジェクター）テスト

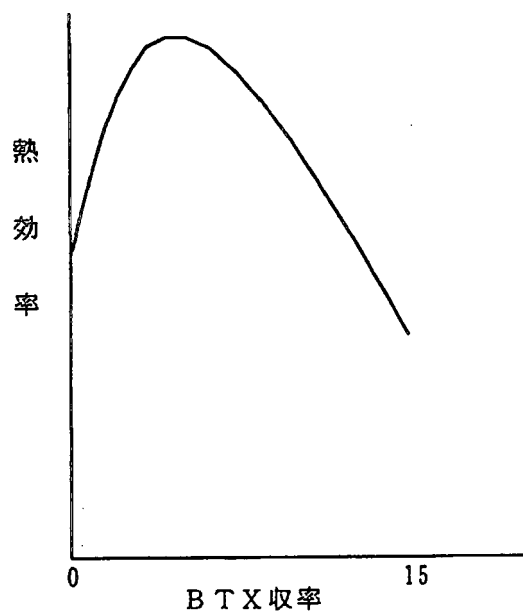
大型化対応

③コールドモデルテスト

②のバーナーを用いての流動状態確認。

④反応器周辺要素技術の開発

チャー冷却流動拔出テスト等



第2.4-2 図 BTX収率 vs 熱効率

これらは現時点で考えられる一例であり、
これら要素開発試験の必要項目、具体的な内容、スケジュールについて、次年度詳細に検討し、平成6年度からの要素開発試験、将来のパイロットプラントによる運転研究につなげて行きたい。

2. 5 パイロットプラントの必要経費の見直し

2. 5. 1 平成3年度報告のパイロットプラント費用の分析

平成3年度報告書中の、パイロットプラント費用の内訳は次の通りになっている。

ここでは、分かり易くするために、ARCH-1に関する費用を(A)、ARCH-2に関する費用を(B)として、まとめてみる。単位は百万円とする。

	(A)	(B)	合計
設備費	13,715	700	14,415
人件費	1,355	470	1,825
原材料費	2,935	1,453	4,387
メンテ費用	968	484	1,452
要素研究費	120	2,750	2,870
小計	19,093	5,857	24,950

このパイロットプラントは、同報告書に記述されている通り、太平洋炭と瀝青炭の2種類の石炭を原料としてテストする、石炭量 50 t/d の規模のものである。

今回、NEDO所有機器を有効に活用するという考え方で、適当な場所にパイロットプラントを作り、前回と同じ内容のテストを行う前提で、どの程度費用を削減出来るか検討する事にした。

なお、平成3年度報告書の中にも書かれているが、今一度概念設計のベースに就いて以下に記述して置く。

(1) パイロットプラントに就いての考え方

先ず、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)の成果を織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、ARCH-2のテストを行う事を前提とする。

(2) パイロットプラントの能力と連続運転時間について

石炭投入量 50 t/d の能力のものとする。この場合、連続運転時間をどの程度に設定するかと言う事が、設備費に影響してくるので、良く詰めて置く必要がある。

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、仕様を決めて行く事とする。そして、最後には、1ヶ月ないし 1,000時間程度のテストが行える様に考えて行く。

(3) 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の性状は次の通りである。

項 目	太平洋炭	瀝青炭
揮発分 %	4 6 . 3 2	3 4 . 0
固定炭素%	3 9 . 8 8	5 2 . 1
灰 分 %	1 3 . 8 0	1 3 . 9
C %	6 5 . 1 6	7 0 . 0 9
H %	5 . 7 4	4 . 6 0
N %	0 . 9 2	1 . 7 0
O %	1 4 . 1 1	9 . 0 8
S %	0 . 2 5	0 . 6 0
C l %	0 . 0 2	0 . 0 3

(4) 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、環境規制値を十分クリアーする様設計する。

(5) 適用法規

高圧ガス取締法に準拠するものとする。

2. 5. 2 費用削減の考え方

費用を削減する目的で、主として下記項目についての検討を行った。即ち、

(1) 水添ガス化反応器入り口 H_2 ／石炭DAF, wt比の検討と、水素製造装置の能力

平成3年度報告書では、水素製造装置の能力は、都市ガス(13A)を原料として、 H_2 を8,000Nm³/h製造出来る設備になっている。この能力は、パイロットプラントにおける高圧フィーダーにおける水素ロスを少し多めに見込んだもので、太平洋炭の H_2 ／石炭DAF, wt比が0.3の水素maxの場合でも、水添ガス化反応器入り口 H_2 は6,824.0Nm³/hで良い。費用節約を検討する立場から、今回は出来るだけ規模縮小を考え、 H_2 ／石炭DAFwt比は同じ0.3をテストするという前提で、水素製造装置の能力は6,824.0Nm³/hに修正する事とする。

(2) NEDO所有設備の活用

下記設備は、NEDO所有設備を転用する。

- a 石炭前処理設備
- b 排ガス及びBTX・オイル燃焼ボイラ及び脱硫設備
- c その他、オフサイト・ユーティリティー設備で、転用可能と思われるもの

(3) 新たに設ける設備

- a 石炭高圧輸送設備(低圧部分はHYCOL設備を転用する)
- b 水添ガス化反応器(平成3年度報告書と同じ)
- c 生成ガス冷却設備(平成3年度報告書と同じ)
- d BTX／オイル貯槽(平成3年度報告書と類似)
- e 原料プロセスガスの脱硫設備(平成3年度報告書と類似)
- f 改質炉(炭化水素の改質・平成3年度報告書と類似)
- g CO変換炉(平成3年度報告書と類似)
- h PSA装置
- i H_2 ホルダー
- j オフガスホルダー
- k 水素圧縮機(平成3年度報告書と類似)
- l H_2 ガス加熱炉(平成3年度報告書と類似)

(4) 原料・ユーティリティー使用量の削減

- a H_2 原料用の都市ガス(13A)の節約
- b N_2 使用量の節約

2. 5. 3 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、次の様になる。

- 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ために、今回のパイロットプラントの範囲を、第2.5-1 図の如く計画した。これに、オフサイト・ユーティリティー設備を含めて、計画のB/Lとする。先ず、それぞれの工程について説明する。

(1) 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、微粉碎乾燥機に送入し、200メッシュ・アンダー 70 % 以上とする。その後、製品ビンを経由し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。

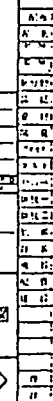
石炭微粉碎乾燥機的能力は、日中 8時間の運転で、24時間分 (50 t/d) の使用量を賄える能力を持たせる。

(2) 水素ガス製造工程

瀝青炭を使用する場合は、反応温度を上げ、且つ、 H_2 /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 に近い状態で H_2 /DAF COAL wt. 比が 0.3のケースもテストする計画であるので、水素プラントの能力をいくりにするかが、設備費節約上大きな問題になる。

石炭投入量 50 t/d で、 H_2 /DAF COAL wt. 比 0.2の時の水素の所要量は、高圧フィーダーへの補給を行わなければ、約 4,000Nm³/h であり、 H_2 /DAF COAL wt. 比を 0.3にする場合も、同様な運転を行えば、水素プラントの能力が 6,824 Nm³/hあれば、 H_2 /DAF COAL wt. 比 0.3のテストが出来る。従って、この能力に決める。

また、平成3年度報告書の中では、水素ガスの原料はすべて都市ガス(13A)で賄う事としたが、原料費節約の為、今回は水添ガス化反応器出口ガスを全量回収し、水素製造原



料として利用し、不足する部分を都市ガス（13A）で補う事とした。

また、ガス中に窒素が含まれて来る事もあり、水素の精製には、P S A方式を採用し、高純度の水素を製造する事とした。これにより、ほぼ 100 %の水素が製造される。

（３）水添ガス化工程

石炭は高圧フィーダーを経て、水添ガス化反応器に送入される。一方、水素ガスは、圧縮機により $80 \text{ kg/cm}^2, \text{g.}$ にまで昇圧後、外部加熱炉で 300°C 前後に加熱され、ガス・ガス熱交換器を経て水添ガス化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離される。

（４）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免的に起こると判断されるので、この種のパイロットプラントの運転では、ガスのオイルクエンチが必要と考えられる。そのため、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、小量とはいえ、チャーが同伴される事は確かであり、この蓄積を防ぐ方策が必要となる。

（５）オフガス燃焼・脱硫工程

P S A装置から出てくるオフガスを、ボイラで燃焼させるが、熱量変動がかなりあるとはいえ、改質炉の燃料の一部としても活用する。また、外部加熱炉の熱源としても活用する。このボイラでの燃焼ガスは、排煙脱硫工程を経て、大気中に放出される。

（６）付帯設備

こ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。これらは、極力N E D O所有の設備を転用する事を考えるが、能力的に不足するものもあり、最終的には詳細な検討を必要とする。

- a 貯炭場
- b 窒素設備
- c 酸素設備
- d 純水装置

- e 冷却水装置
- f 計装空気設備
- g 消火設備
- h 灰処理設備
- i その他

ここでは、設備の現在の状況がハッキリ解らないので、今後の調査が必要であるが、大まかに転用可能と思われるものを選び、更に、全転用品を対象として、転用品の取り外し・輸送費も含めた費用を、整備費の形で必要経費の中に計上して置く事とする。

2. 5. 4 各ユニットの諸元

主要な工程につき記述すると下記の如くなる。

(1) 石炭前処理工程

下記の如く修正する。

処理能力	: 7.5 t/h (稼働時間 8h/d)
粉砕機型式	: ローラーミル型 200メッシュ (74 μ) パス 70 % 以上
乾燥方式	: 熱風発生炉方式 残留水分 3.0 %以下
製造炭貯蔵容量	: 100 t (2日分)

(2) 水素製造工程

a 改質

改質の条件は、平成3年度報告書と殆ど同じであるが、原料ガスの主体を水添ガス化反応器出口ガスとし、補充分を都市ガス (13 A) で補う方式とする。

原料	: 水添ガス化反応器出口ガス+都市ガス (13 A)
外熱燃料	: オフガスの一部と都市ガス (13A)
スチーム/炭素比	: 4.0 (モル比)
改質圧力	: 11.0 kg/cm ² , g.
入り口温度	: 550 °C
出口温度	: 830 °C

平成3年度報告書と同じ

b ガス精製方式

ガス精製方式はP S A方式とし、ほぼ純粋な水素ガスを製造する。

このP S A装置により、圧力9.0 kg/cm², g. の水素と、圧力0.5 kg/cm², g. のオフガスとに分離される。

c 製造ガスの仕様

水素純度	: 99.9 %以上
圧力	: 9.0 kg/cm ² , g.

d 水素製造量

100 %水素、304.65 kg-mol/h (=6,824 Nm³/h)

e マテリアルバランス

水素MAX・CASEと、水素ノーマル・CASEの二つに分けてマテリアルバランスをまとめると、第2.5-1 表と、第2.5-2 表の如くなる。

(3) 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2.5-2 図にまとめて置く。

a 石炭供給

シングルインジェクターとマルチインジェクターのそれぞれに分けて記述する。

イ 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この差圧が一定になる様に 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、この反応器内圧力と、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。

ロ 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列系の場合」

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。この場合、リアクターと高圧フィーダーとの差圧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。この場合、3基の高圧フィーダー内の石炭レベルが、同じになる様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、高圧フィーダーの圧力調節上必要となろう。

「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、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。この場合は、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があるので、注意して置く必要がある。

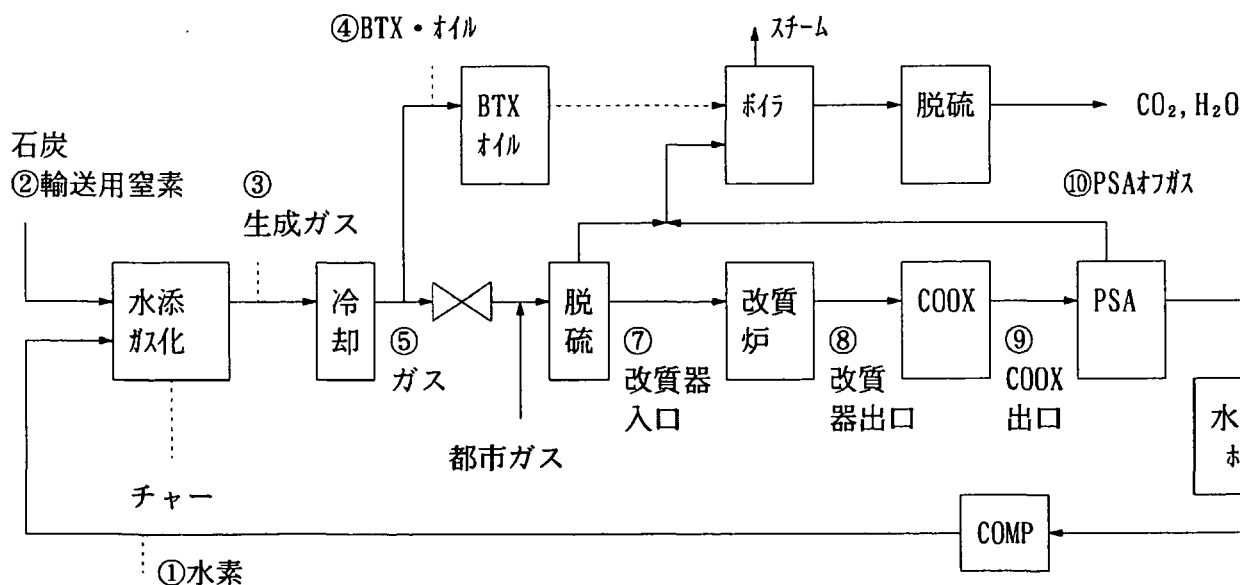
マルチインジェクターの運転に当たっては、石炭フィードは、同時に3系列の供給ラインを動かす必要がある。

第2.5-1 表 水素MAX・CASEのマテリアルバランス

分子量	①水素	②輸送 用窒素	③生成 ガス	④BT XOIL	⑤ガス	⑥ H ₂ S	⑦改質 器入口	⑧改質 器出口	⑨COOX 出口	⑩PSA おガス
CH ₄ 16.04			77.72		77.72		88.20	7.52	7.52	7.52
CO 28.01			8.12		8.12		8.12	38.17	3.81	3.81
CO ₂ 44.01			0.10		0.10	0.10			34.35	34.35
C ₂ H ₆ 30.07			0.31		0.31		1.03			
BTX 78.11			1.90	1.90						
H ₂ 2.02	304.65		210.06		210.06		210.06	371.48	405.83	101.18
H ₂ S 37.08			0.15		0.15	0.15				
N ₂ 28.01		24.80	24.80		24.80		24.80	24.80	24.80	24.80
NH ₃ 17.03			1.37							
OIL 128.17			0.62	0.62						
C ₃ H ₈							0.48			
C ₄ H ₁₀							0.24			
全ガス (DRY)	304.65	24.80	325.15	2.52	321.26	0.25	332.93	441.97	476.31	171.66
H ₂ O			21.92				403.08	317.96	283.60	
全ガス (WET)	304.65	24.80	347.07	2.52			736.01	759.93	759.91	

	原料石炭投入量	チャー排出量
DAF COAL kg/h	1,795.8	669.3
DRY COAL kg/h	2,083.3	
ASH kg/h	287.5	287.5
水分 kg/h	20.8	
TOTAL kg/h	2,104.1	956.8

改質炉入り口S/C = 4.0 (硫比)、出口温度：830°C、入り口圧力：11 kg/cm², g.
都市ガス (13A) 補給量：11.92 kg-mol/h

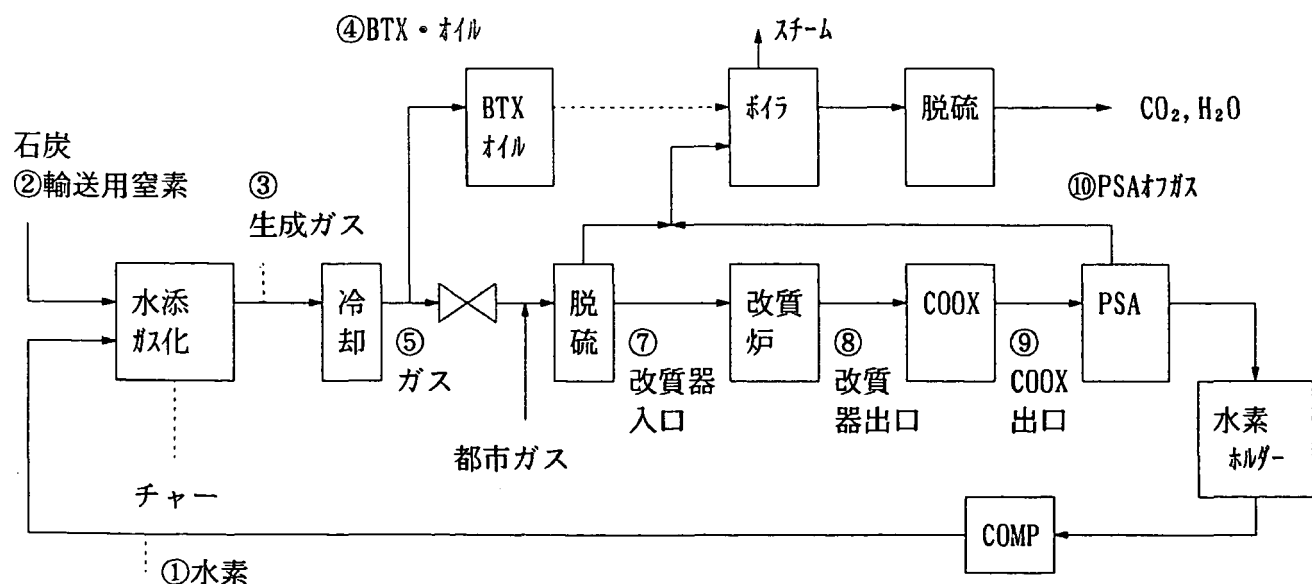


第2.5-2 表 水素ノーマルCASEの材料バランス

分子量	①水素	②輸送 用窒素	③生成 ガス	④BT XOIL	⑤ガス	⑥ H ₂ S	⑦改質 器入口	⑧改質 器出口	⑨COOX 出口	⑩PSA ワガス
CH ₄ 16.04			45.45		45.45		51.58	4.40	4.40	4.40
CO 28.01			4.75		4.75		4.75	22.32	2.23	2.23
CO ₂ 44.01			0.06		0.06	0.06			20.09	20.09
C ₂ H ₆ 30.07			0.18		0.18		0.60			
BTX 78.11			1.11	1.11						
H ₂ 2.02	178.16		122.84		122.84		122.84	217.24	237.33	59.17
H ₂ S 37.08			0.09		0.09	0.09				
N ₂ 28.01		14.50	14.50		14.50		14.50	14.50	14.50	14.50
NH ₃ 17.03			0.80							
OIL 128.17			0.36	0.36						
C ₃ H ₈							0.28			
C ₄ H ₁₀							0.14			
全ガス (DRY)	178.16	14.50	189.43	1.47	187.87	0.15	194.69	258.46	278.55	100.39
H ₂ O			12.82				235.72	185.94	165.85	
全ガス (WET)	178.16	14.50	202.25	1.47			430.41	444.40	444.40	

	原料石炭投入量	チャー排出量
DAF COAL kg/h	1,795.8	669.3
DRY COAL kg/h	2,083.3	
ASH kg/h	287.5	287.5
水分 kg/h	20.8	
TOTAL kg/h	2,104.1	956.8

改質炉入り口S/C = 4.0 (モル比)、出口温度: 830°C、入り口圧力: 11 kg/cm², g.
都市ガス (13A) 補給量: 6.963 kg-mol/h



b 高圧フイーターの内部コントロール

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まで加圧する。一方、高圧フイーターも、窒素ガスにより規定圧まで加圧し続ける。ロックホッパーが高圧フイーターと同圧になれば、ロックホッパーと高圧フイータ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ための補給ガスは、窒素ガスとする。ロックホッパー内の石炭が無くなった場合、高圧フイーターとの連通弁を全開して縁を切った後、ロックホッパー内のガスを空中フロアして減圧してから、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。

PROGRAMMABLE LOGIC CONTROLLER による。

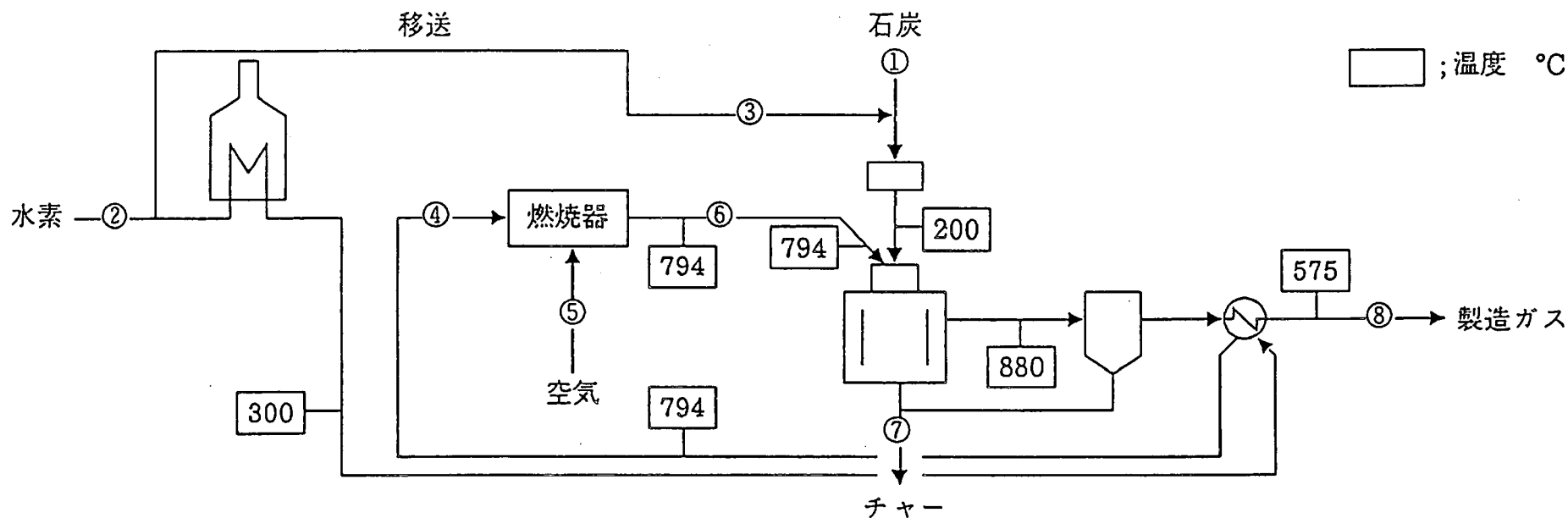
但し、 H_2 /石炭DAF, wt比を 0.2でテストする場合は、余裕のある窒素ガスを使用して、原料石炭のキャリアーガスとしての使用と高圧フイーターの加圧も窒素で行える様、高圧水素圧縮機、高圧水素クーラー及び配管を繋いで置く事にする。

c 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。

反応条件		生成チャ-性状	
温度 °C	880	C %	64.72
圧力 kg/cm ² , 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	C I %	0.00
チャ-生成量 DRY, kg/h,	956.8	A S H	30.05

マテリアル・バランスは次頁以下の通りである。



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℃ 压力 ; 70kg／cm ² 水素／石炭（D A F）wt. 比 ; 0.2kg／kg 反応時間 ; 10秒 熱ロス ; 80,000kcal／h
固定炭素	39.88	H	5.74	H	1.12	
灰 分	13.8	N	0.92	N	0.80	
固体水分	1.0	O	14.11	O	3.07	
		S	0.25	S	0.22	
		C l	0.02	C l	0.00	
				A S H	30.05	
発熱量 石炭 ; 6,642.1kcal／kg-mf チャー ; 5,407.8kcal／kg-mf						

第2.5-3 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)

2000/10/14

第2.5-3 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	
		kg-mol/h	mol/h	kg-mol/h	mol/h	kg-mol/h	mol/h	kg-mol/h	mol/h
CO ₂	44.010								
CO	28.010								
H ₂	2.016			178.16	100.00	13.78	100.00	168.38	100.00
CH ₄	16.040								
H ₂ O	08.020								
N ₂	28.020								
O ₂	32.000								
H ₂ S	37.080								
C ₂ H ₆	30.070								
C ₂ H ₄	28.050								
C ₆ H ₆	78.114								
C ₇ H 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				178.16	100.00	13.78	100.00	168.38	100.00
daft 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		359.2		27.8		331.4	
温度 °C		25		25		25		794	
圧力 kg/cm ²									

第2.5-3 表 全体物質収支（続）（太平洋炭の1 ケース）

組成	分子量	⑤		⑥		⑦		⑧	
		kg-mol/h	mol/h	kg-mol/h	mol/h	kg-mol/h	mol/h	kg-mol/h	mol/h
CO ₂	44.010							0.06	0.03
CO	28.010							4.75	2.52
H ₂	2.016			164.38	100.00			122.84	65.17
CH ₄	16.040							45.45	24.11
H ₂ O	08.020							12.82	6.80
N ₂	28.020								
O ₂	32.000								
H ₂ S	37.080							0.09	0.05
C ₂ H ₆	30.070							0.18	0.10
C ₂ H ₄	28.050								
C ₆ H ₆	78.114							1.11	0.59
C ₇ H ₈	92.141							0.00	0.00
ナフサ	128.174							0.21	0.11
アンスラ	178.234							0.15	0.08
COS	60.070							0.01	0.01
CS ₂	76.131							0.00	0.00
NH ₃	17.031							0.80	0.42
HCl	36.461							0.01	0.01
HCN	27.026							0.02	0.01
全ガス(wet)kg-mol/h		0.00	0.00	164.38	100.00			188.50	100.01
daft coal kg/h									
Ash kg/h						669.3			
水分 kg/h						287.5			
全物量 kg/h		0		331.4		956.8		1,501.5	
温度 °C								880	
圧力 kg/cm ²								70	

d 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無く、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事とする。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事になる。

但し、コールドスタートを考えると、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、この水素温度を、着火温度以上にまで加熱する必要がある。この観点から、途中の配管での熱ロスも考えても、加熱炉出口温度は 600°C まで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。

e チャーの冷却・排出

水添ガス化反応器から分離されるチャーは高温高压であり、取扱いはなかなか厄介である。ここでは、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。こ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、流動冷却器下部深くにまで挿入される。こ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。この場合、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ビティ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、中間にバ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込まれる様にしたい。水添ガス化反応器と流動冷却器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って収まる事になる。

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出される。

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、チャーの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。

f 主要機器仕様

第2.5-4 表の如くなる。

(4) 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なっている。そして、この出口に、系全体の圧力コントロールの為に PCV（圧力調節弁）が取り付けられている。

主要機器仕様は、第2.5-4 表の通りである。

(5) 付帯設備

可能な限り、NEDO所有の既設設備を転用する。なお、能力が不足するものに付いては、不足分だけ能力を増やす事にする。

第2.5-4 表 主要機器仕様

機番	名 称	設 計 仕 様
V 4 V 5 V 6	常圧ホッパー ロックホッパー 高圧フィーダー	常圧、常温、内容積：74 m ³ x 3 基、 100 kg/cm ² , g. 常温、内容積：8 m ³ x 2 基、 100 kg/cm ² , g. 常温、内容積：35 m ³ 材質：炭素鋼 材質：炭素鋼 材質：炭素鋼
R 1	水添ガス化反応器	100 kg/cm ² , g. 温度 975° C
E 2 E 3	ガス・ガス熱交 製造ガス冷却器	100 kg/cm ² , g. 与熱体：7,774Nm ³ /h, 900°C, 受熱体：6824Nm ³ /h, 300°C 100 kg/cm ² , g. ガス量：11,546Nm ³ /h, 150°Cより50°Cまで水冷却、 伝熱面積：512 m ²
E 4 E 5 E 6 E 7	チャー流動冷却器 チャークーラー チャークーラー オイルクーラー	100 kg/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 100 kg/cm ² , g. 975°C, 高圧循環冷却水により、チャーを200°C迄冷却 100 kg/cm ² , g. 975°C, 高圧循環冷却水により、チャーを200°C迄冷却 100 kg/cm ² , g. 循環液量40,000kg/h, 入口温度150°C, 出口温度40°C, 伝熱面積：204 m ²
E 8 E 9	高圧水素クーラー 高圧窒素クーラー	140 kg/cm ² , g. ガス量3,000Nm ³ /h, 吸入圧80kg/cm ² , g. 吐出圧 140kg/cm ² , g., 伝熱面積：8 m ² 140 kg/cm ² , g. ガス量1,500Nm ³ /h, 吸入圧8.0kg/cm ² , g. 吐出圧 140kg/cm ² , g., 伝熱面積：5 m ²
S 1 S 2 S 3	水添ガス化炉 一段サイクロン 水添ガス化炉 二段サイクロン チャー流動冷却 出口サイクロン	100 kg/cm ² , g. 975°C, 内面リフラクトリーライニング可能な構造。 材質：Cr-Mo鋼 100 kg/cm ² , g. 975°C, 同 上 100 kg/cm ² , g. 300°C, 材質：Cr-Mo鋼
H 1 H 2	加熱炉 燃焼器	100 kg/cm ² , g. 700°C (出口) ガス量6824Nm ³ /h, 熱負荷1.47x10 ⁶ kcal/h 100 kg/cm ² , g. 1,050°C,
C 1 C 2 C 3 C 4	原料水素圧縮機 循環ガス圧縮機 高圧水素圧縮機 高圧窒素圧縮機	100 kg/cm ² , g. 吸入圧力：8.3kg/cm ² , g. 吐出圧力：80kg/cm ² , g. 吸入ガス量：6,824 Nm ³ /h 140 kg/cm ² , g. 吸入圧力：66kg/cm ² , g. 吐出圧力：140kg/cm ² , g. 吸入ガス量：3,770 Nm ³ /h 140 kg/cm ² , g. 吸入圧力：80kg/cm ² , g. 吐出圧力：140kg/cm ² , g. 吸入ガス量：3,000 Nm ³ /h 140 kg/cm ² , g. 吸入圧力：8kg/cm ² , g. 吐出圧力：140kg/cm ² , g. 吸入ガス量：1,500 Nm ³ /h
P 1 P 2	ベンゼン循環 ポンプ 高圧循環冷却水 ポンプ	100 kg/cm ² , g. 循環量：4,000 kg/h, 入口温度 150°C 100 kg/cm ² , g. 100°C, 循環量：80 t/h

2. 5. 5 原料・ユーティリティー使用量のまとめ

設計条件にお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まとめると、第2.5-5 表の通りである。

2. 5. 6 必要経費

必要経費を平成3年度報告書と同じく、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。ここでは、要素研究費・所要人件費・メンテナンス費用等、平成3年度報告書と全く同じ値をとるものも、一応記述しておく。

(1) 要素研究費

要素研究費は、第2.5-6 表の如く表される。

(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2.5-7 表の通りとなる。参考の為、平成3年度報告書の数字も併記しておく。

(3) 運転経費

運転経費の算出に当たって問題になるのは、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述する。この場合、運転経費については、ARCH-1とARCH-2に分けて記述する事とする。

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平成3年度と同じと考え、第2.5-8 表の通り。

b 所要人員数と期間

第2.5-8 表にもとずき、必要人員数をまとめると、第2.5-9 表のようになる。これは、平成3年度報告書と同じである。

第2.5-5 表 原料・ユーティリティー使用計画

系列	原料等	工程他	設計条件	毎 時 使 用 量			全運転時間	所要量 x10 ⁶	単価 円	金額 10 ⁶ 円
				採用値	最大値	最小値				
A R C H ・ 1	電力 kwh	石炭処理	300	195	195	195				
		水素製造	450	330	450	182				
		水添ガス化	1,600	1,455	1,455	851				
		ガス冷却								
		炉内燃焼	650	543	543	543				
		付帯設備								
		計	3,000	2,523	2,643	1,771	6,960	17.56	18.0	316
	窒素	Nm ³ /h	3,000	1,102	1,271	1,017	6,960	7.67	80.0	614
A R C H ・ 2	工業用水	t/h	130	130	130	130	6,960	0.90	230	207
	石炭	kg/h	2,200	2,104	2,104	2,104	6,960	14.64	24.0	351
	都市ガス	Nm ³ /h	2,628	663	1,197	535	6,960	4.61	40.0	184
	酸素	Nm ³ /h	200	100	163	0	6,960	0.70	90.0	63
	ケミカル・他									500
	合 計									2235
	電力 kwh	石炭処理	300	195	195	195				
		水素製造	450	330	450	182				
		水添ガス化	1,600	1,455	1,455	851				
		ガス冷却								
		炉内燃焼	650	543	543	543				
		付帯設備								
		計	3,000	2,523	2,643	1,771	3,120	7.87	18.0	142
	窒素	Nm ³ /h	3,000	1,102	1,271	1,017	3,120	3.44	80.0	275
A R C H ・ 2	工業用水	t/h	130	130	130	130	3,120	0.41	230	94
	石炭	kg/h	2,200	2,104	2,104	2,104	3,120	6.56	24.0	157
	都市ガス	Nm ³ /h	2,628	663	1,197	535	3,120	2.07	40.0	83
	酸素	Nm ³ /h	200	150	180	0	3,120	0.47	90.0	42
	ケミカル・他									200
	合 計									993

第2.5-6 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 人件費、原材料費、設備費等 を含む
2.	チャーのガス化評価 テスト	20	0.7	
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	

第2.5-7 表 パイロットプラント設備費

項目	装 置 名 (単位：百万円)	今 回		平成3年度報告書	
		設備費	比率 %	設備費	比率 %
a	石炭処理工程	100	0.9	885	6.1
b	水素ガス製造工程	3,199	29.8	3,890	27.0
c	水添ガス化工程 (含、加冷却工程)	4,140	38.6	4,140	28.7
d	ガス焼却工程	100	0.9	1,630	11.3
e	チャー焼却工程	0		680	4.7
f	ユーティリティー	1,992	18.6	2,490	17.3
g	オフサイト				
h	転用品整備費	500	4.7	0	
i	リアクター改造	700	6.5	700	4.9
総 設 備 費		10,731	100.0	14,415	100.0

第2.5-8 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
A R C H ・ 1	1. ウォーミング・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
A R C H ・ 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、性能試験
	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、性能試験
	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／1 年

第2.5-9 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2.5-10表 単価設定表

項 目	設 定 単 価	項 目	設 定 単 価
1.人件費	¥10.0x10 ⁶ /年・人	*工業用水	¥ 230.0/ t
2.原材料費		*電力	¥18.0/kwh
*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	

	今 回	平成 3 年度報告書
ロ ARCH-1 の運転経費		
1) 人件費	¥ 1,355x10 ⁶	¥ 1,355x10 ⁶
2) 原材料費	¥ 2,236x10 ⁶	¥ 2,935x10 ⁶
3) メンテナンス費用	¥ 918x10 ⁶	¥ 968x10 ⁶
	¥ 4,509x10 ⁶	¥ 5,258x10 ⁶

	今 回	平成 3 年度報告書
ハ ARCH-2 の運転経費		
1) 人件費	¥ 470x10 ⁶	¥ 470x10 ⁶
2) 原材料費	¥ 994x10 ⁶	¥ 1,453x10 ⁶
3) メンテナンス費用	¥ 434x10 ⁶	¥ 484x10 ⁶
	¥ 1,898x10 ⁶	¥ 2,407x10 ⁶

(4) ARCHプロセス開発の為に必要経費

以上を集計したものが、ARCHプロセスの開発の為に総必要経費となる。

即ち、

	今 回	平成 3 年度報告書
要素研究費	¥ 2,870x10 ⁶	¥ 2,870x10 ⁶
パイロットプラント設備費	¥10,731x10 ⁶	¥14,415x10 ⁶
ARCH-1 運転経費	¥ 4,509x10 ⁶	¥ 5,258x10 ⁶
ARCH-2 運転経費	¥ 1,898x10 ⁶	¥ 2,407x10 ⁶
	¥20,008x10 ⁶	¥24,950x10 ⁶

従って、NEDO所有設備の活用という考え方で、極力必要経費を節約して、平成3年度報告書に書かれたテストとほぼ同様なテストを行う為の費用は、¥20,008百万円となった。これは、平成3年度報告書に書かれた費用、¥24,950百万円と較べると、約、50億円の節約になっている。

今後、パイロットプラントでの試験内容を具体的に決めた段階で、もう一度見直されて
 しかるべきものである。 以上

2. 6 ま と め

第2章では、石炭水添ガス化技術開発の新しいプロセスとして、液収率向上に関するスタディと顕熱利用に関するスタディを実施して結果を総合的に評価し、今後我が国が開発すべき石炭水添ガス化プロセスを提言した他、平成3年度のパイロットプラントの必要経費を見直し、費用の削減の可能性を調査した。

まず、液収率向上に関するスタディでは、平成3年度概念として提出されたARCH-2の可能性を、数学モデルを用いて反応器性能の反応シミュレーション予測により検討した。すなわち、ARCH-2の基本概念である熱分解と水素化分解反応を独立して制御できたときの生成物分布をシミュレーション予測し、その結果、2段で反応を行えば液収率が向上するとの結果を得た。その数学モデルを用いて、目的とする液収率を与えるARCH-2の反応条件と物質収支ならびに反応器容積などを推定した。この物質収支のデータを基に昨年と同様のプロセス・スタディを実施し、総合熱効率や経済性を試算した。その結果、ベンゼン収率は炭素転化率で15%程度まで可能で、ベンゼンを90円/KgとしたときのSNG製造価格は29.03円/Nm³であることがわかった。しかし、総合熱効率は72.0%に低下し、急速熱分解の熱補給用に、燃焼で消費される水素による効率低下が大きいことが分かった。

また、プロセスの熱効率の改善とプラント建設費の削減の試みとして、チャーの水素製造段階の部分酸化ガス的高温のガス顕熱を水添ガス化炉の反応温度を維持するための熱源として利用する顕熱利用型プロセスのスタディを実施した。その結果、従来部分酸化炉のガス冷却系から回収していたプロセス動力に必要なスチームを水添ガス化反応器系から回収する等のプロセス変更が必要であること、ガス精製系が一本化できプロセスが簡略化されるが精製ガス量が増加することによりプラントが大型化すること、部分酸化炉の熱回収部を省略できることで建設費が削減できることが分かった。冷ガス効率は77.51%でARCH-1とほとんど変わらないが5%程度建設費の削減が可能でSNG製造価格は36.37円/Nm³と低下した。しかしながら、この顕熱利用型プロセスの問題点として水添ガス化炉内の水素分圧が低下することが挙げられた。

ARCH-1、ARCH-2、顕熱利用型プロセスなどの検討に基づき、今後我が国が開発すべき水添ガス化プロセスの目標としては、①SNG収率最大、②冷ガス効率最大、③BTX収率最大の3つのケースが考えられる。将来のエネルギー、資源、環境をめぐる

政治、社会情勢は不透明であり、①～③の目標を一つに限定してプロセスを固定することは得策ではなく、その時々社会情勢、負荷変動や炭種の変更に順応して、運転モードを自由に選択できるフレキシブルな反応器を持つプロセスを開発すべきと提言した。

平成3年度に調査を実施したパイロットプラントの運転研究の必要経費について見直し、費用の削減の可能性を検討した。既にNEDOが保有している機器類を活用するとともに、水素製造装置の規模の最適化を図り、水素の原料を都市ガスのほかに水添ガス化炉出口ガスを利用することなどの対策を施した場合は、50億円程度の削減が可能で200億円程度になるとの見通しを得た。

第3章 水添チャーのガス化特性

3. 1 水添チャーのガス化特性に関する基礎実験

3. 1. 1 実験装置・方法

(1) 試料分析法

本検討に用いた試料は、何れも太平洋炭の大阪ガス水添ガス化チャー、東京ガス水添ガス化チャーであり、比較のためにそれぞれの原炭を以下の方法で熱分解したチャーについても同様の試験を行った。

比較試験のための試料は、原料石炭（それぞれの原料太平洋炭）を直径50mm、高さ250mmの石英製反応管によりアルゴンガス雰囲気下で乾留したものである。本装置による乾留方法は、まず粒径 60 メッシュ以下の原料石炭約 50gを反応管に充填し、アルゴンガスを約 100ml/min流しながら、昇温速度約 10K/minで所定の温度(1173K)まで加熱して、その温度に 1 時間保持したのち反応管を急冷した。得られた乾留チャーは60メッシュ以下に調製して実験に供した。

原試料、原炭、比較用チャーはそれぞれ以下の手順で分析を行った。

① 工業分析

工業分析値を求めるに当たっては、下記に示すように J I S 法に従った。

・水分定量

空气中乾燥減量測定法を用いた。即ち試料を 1 0 7 °Cで 1 時間加熱乾燥し、減量の試料に対する質量百分率をもって水分とした。

・揮発分定量

試料をふた付きのるつぽに入れ、空気との接触を避けるようにして 9 0 0 °Cで 7 分間加熱する。試料質量に対する加熱減量百分率を求め、これから先に定量した水分を減じて揮発分とした。

・灰分定量

試料を空气中で電気炉を用いて 8 1 5 °Cに加熱灰化し、残留する灰の量の試料に対する質量百分率をもって灰分とした。

② 元素分析

元素分析は、以下に示す操作によって行った。

・炭素および水素の定量

柳本製MT-500HC型HCコーダを用いた。本分析では初めに助燃剤（酸化コバルト）と共に測定試料を加熱分解する。熱分解によって生成した分解物は高温の酸化銅と接触して H_2O 、 CO_2 、 N_2 、 NO 、 NO_2 等になる。試料中のハロゲン、硫黄等はスルフィックス層で吸収除去され、窒素酸化物及び余剰の酸素は還元銅で吸収除去される。従って還元管をでるガス組成はHe（キャリアガス）、 H_2O 、 CO_2 、 N_2 の4成分となる。その後ガスを吸収部を通過させることによってHe及び測定成分のみを熱伝導度検出器に送り、参照用検出部との間に生じる不平衡電圧を記録し、あらかじめ標準試料から求めた検量線をもちいて分析値を求めた。

・窒素の定量

測定に用いた装置は柳本MT-500型窒素分析装置と微量窒素分析用高感度TCDユニットから構成されている。測定原理は前述のHCコーダと同様であるが、本装置では試料中のハロゲン、硫黄等の除去にAg層を、 H_2O および CO_2 の吸収剤には各々無水過塩素酸マグネシウム、ソーダアスベストを用いた。

・酸素の定量

測定に用いた装置は、柳本OコーダーMO-10型である。本装置は、キャリアーガス供給部、燃焼分解部、吸収セル、光源、受光部及び記録計より構成されている。測定の基本原理は、試料中の酸素から生成する一酸化炭素で I_2O_5 を還元し、遊離してくる気相状態のヨウ素を定量することによって試料中酸素の定量を行うものである。

・硫黄の定量

用いた測定装置は堀場製作所製EMIA-1120硫黄分析装置である。本装置は、試料を酸素気流中で助燃剤と共に高周波燃焼室内で燃焼させ、発生する SO_2 を非分散赤外線分析計により定量分析するものである。

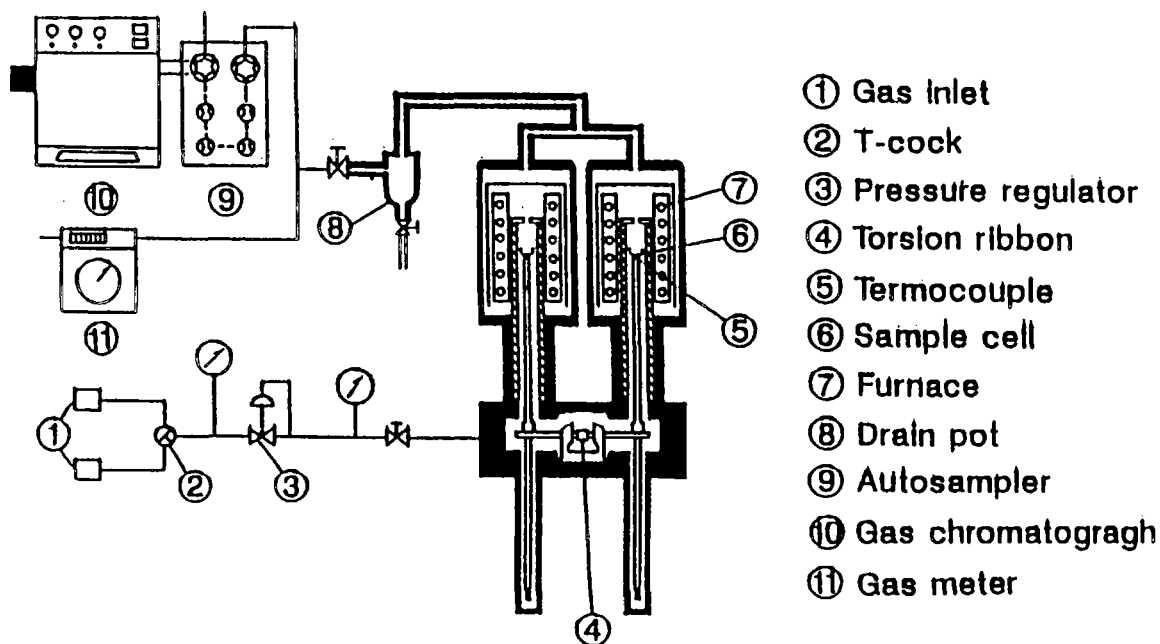
③ 表面積

本検討では、カルボーエルバ社製ソープトマティック1800型を用いてBET法による窒素吸着法を用いて表面積を測定した。即ち予め脱気した試料に液体窒素温度で吸着する窒素量を測定し、BETの吸着等温式に基づいて表面積を推算した。

(2) 反応性、活性点の評価

① 反応性評価

各試料のガス化反応性の比較には、チャーと二酸化炭素との反応を用いた。本測定に用いた実験装置は、上皿型二塔式高温高圧熱天秤であり、その概略を第3.1-1図に示す。反応部は内熱加熱方式であり、ヒーターの炉材には窒化ケイ素を使用し、発熱部を覆う炉の鋼材は外側に巻いた銅パイプにより水冷して 1573K、10MPa の耐熱、耐圧の実験ができる仕様となっている。試料の反応温度はサンプルセル支持棒と一対となっている熱電対により測定した。また、反応による重量変化はトーション型零位法マイクロバランスによる電気変位から求められた。本実験で使用した試料セルは、数種の材質、形状のものについて検討した結果、8.0mm ϕ x 2.5mm の石英製皿型で底部は試料と反応ガスとの接触を高めるためフィルター構造とした。また、セル中のチャー試料にはガス対流による飛散を防ぐため、メッシュの白金製金網を載せて使用した。尚、ガス化ガスとしては、二酸化炭素を用いた。



第3.1-1図 上皿型二塔式高温高圧熱天秤

実験操作は次の手順によった。まず、60メッシュ以下に調製してある石炭チャーを試料セルに約 20mg 秤量した。つぎに、全装置をセットし、1)アルゴンガスで加圧しガス漏れのないことを確認、2)不活性ガスの充填（約0.5MPaまで）と放出を 3回繰り返す、装置内

の空気を置換、3)所定の圧力まで加圧し、③の調圧電磁バルブおよび出口ニードルバルブにより送入ガス流量を調整、4)所定の温度まで 10K/minで昇温し、目的の反応温度で②の三方コックを反応ガス経路に切り換え、ガス流量、圧力をチェックした後、一定温度、圧力下でガス化反応を行った。

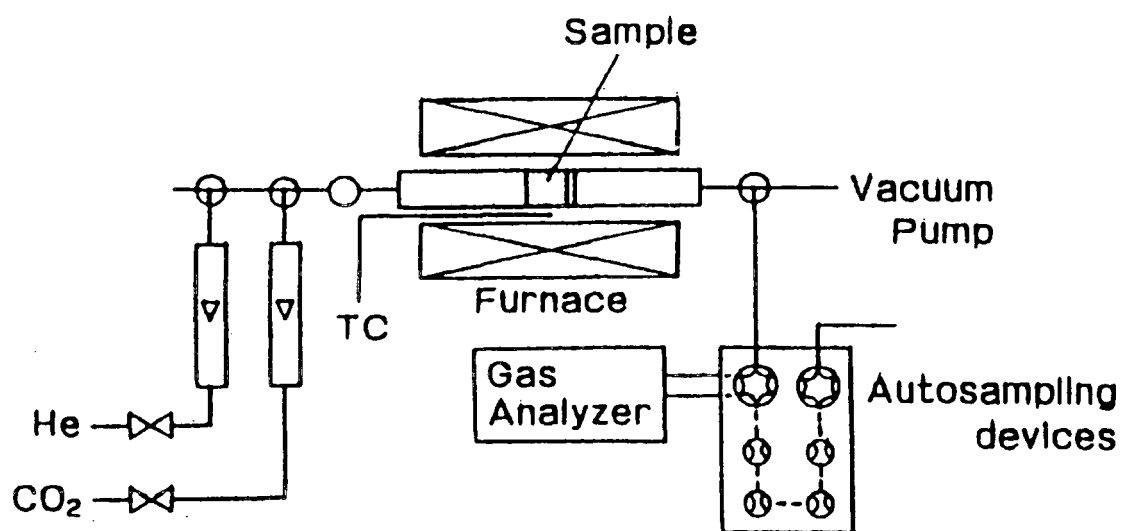
② TPD法

石炭類のチャーのガス化反応性に影響を与える因子として表面積を指摘する研究者は多いが、表面積とガス化反応性の間に定量的な関係は明確では無い。周知の用に石炭は均一な化合物では無く、表面に何らかの不均一性を導入しようとする試みがなされている。その一つが表面活性点の概念の導入である。表面活性点の評価法としては、吸着酸素量を用いるもの、過渡応答法を用いるもの等が提案されているが、本検討では二酸化炭素の昇温脱離法（TPD法）を用いて表面活性点の評価し、試料間の反応性の差を説明することを試みた。

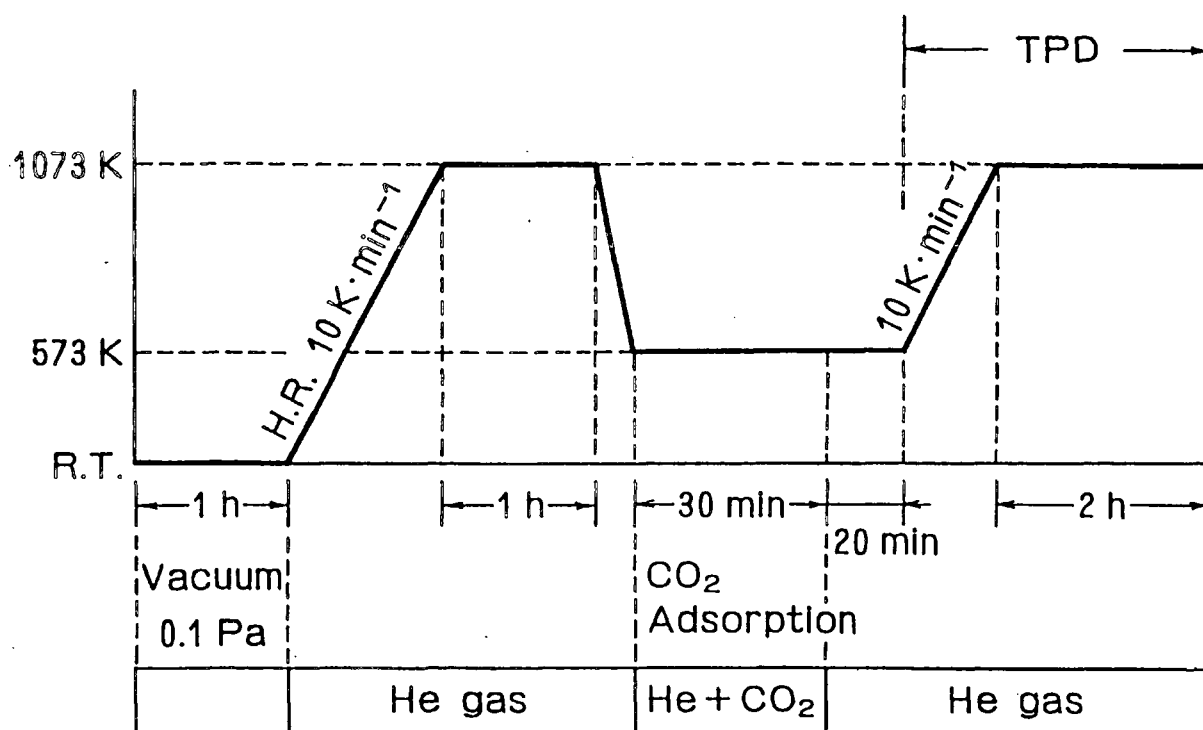
第3.1-2図にTPD装置の概略、第3.1-3図にTPD操作の手順を示した。測定には約200mgの試料チャーを内径8mmの石英反応器内に保持した。反応器は始めに試験以前に既に吸着している酸素等の影響を避けるため、室温で0.1Paまで減圧し1時間保持し、その後常圧ヘリウム30cm³/minの気流中で10K/minの昇温速度で1073K加熱後1時間保持した。その後反応器を573Kまで冷却し、二酸化炭素とヘリウムの混合気を導入して二酸化炭素を試料に吸着させた。その後再び試料を10K/minで1073Kまで加熱し、この間に試料から脱着してくる二酸化炭素および一酸化炭素をガスクロマトグラフィーで定量した。二酸化炭素、一酸化炭素の脱着機構については、いくつか仮定が成り立つが、本検討では吸着二酸化炭素が、化学吸着した表面から一酸化炭素の脱着が起こるものと考え、その発生量から表面の活性点数（N_{co}）を以下の式から推算することとした。

$$N_{co} = M_{co} \cdot A_{vo} / W_t \quad (1)$$

ここでM_{co}は一酸化炭素脱離量、A_{vo}はアボガドロ数、W_tは試料の初期重量である。



第3.1-2図 昇温脱離法 (TPD) 測定装置



第3.1-3図 TPD法、ガス・温度条件

3. 1. 2 実験結果のまとめ

(1) 化学分析値

第3.1-1表に本検討に用いた試料の工業分析値および元素分析値を示した。表中にはガス化反応性の比較検討に用いたアルゴン気流中で熱分解チャーの分析値も併せて示してあるが、水添チャーはこれらの比べて揮発分が残存量が比較的高く、熱分解が完了していないものと考えられる。

(2) 表面積

第3.1-2表には、水添チャー、比較用熱分解チャーのBET表面積の測定結果を示した。表面積の絶対値は異なっているものの、それぞれの試料の絶対値は類似している。

(3) 反応性

第3.1-3表～第3.1-10表に各試料の高圧熱天秤による二酸化炭素ガス化の測定結果を示した。ここで炭素未反応率， $1 - X$ ，は、元素分析で求めた初期炭素濃度に基づいて重量減少量、残存炭素量から以下のように計算した。

$$1 - X = 1 - (C_0 - C) / C_0 \quad (2)$$

C_0 ; 石炭チャー中無水無灰基準炭素重量 [g]

C ; 未反応炭素重量 [g]

第3.1-4図には、大阪ガス水添チャーと原炭チャー（参照チャー）の二酸化炭素、1.5M Pa、1127Kにおける反応性の違いを示した。また第3.1-5図には東京ガス系試料についての同条件での測定結果を示した。

これらの図からも分かるように、大阪ガス水添ガス化チャー、東京ガス水添ガス化チャー共にそれぞれの原炭からアルゴン気流中で調整した参照チャーよりも、重量の減少速度が大きく、参照チャーよりも高いガス化反応性を示したことになる。さらに反応はほぼ最後まで完結しており、太平洋炭等で観察される炭素構造の変化による反応性の低下も観察されなかった。

第3.1-1表 試料化学分析結果

炭 種 名		東京ガス太平洋炭				大阪ガス太平洋炭			
		原 炭	乾留チャー		水 添 ガス化 チャー	原 炭	乾留チャー		水 添 ガス化 チャー
			900℃	1000℃			900℃	1000℃	
工業 分析	水分	1.1	0.7	0.5	2.6	5.9	0.4	1.6	1.4
	灰分	11.2	18.3	18.5	22.2	12.5	19.0	23.2	29.8
	揮発分	44.8	1.3	1.1	11.3	43.6	1.4	0.7	6.4
	固定炭素	42.9	79.7	79.9	63.9	38.0	79.2	75.5	62.4
元素 分析	C	66.4	78.9	79.4	69.6	62.6	74.8	73.5	61.0
	H	5.3	1.1	0.8	2.8	6.1	1.7	0.3	2.5
	O	15.8	2.0	1.3	4.1	16.2	2.2	1.5	3.8
	N	0.8	0.6	0.7	0.6	0.5	0.6	0.7	0.3
	S	0.3	0.3	0.3	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
	Dry Ash	11.3	18.4	18.6	22.8	13.3	19.1	23.4	30.2

第3.1-2表 B E T 表面積測定結果 (窒素)

試 料	B E T 法窒素吸着面積	
	m ² /g - c h a r	
東京ガス太平洋水添ガス化チャー	1 5 . 8	
“ “ 900℃チャー	3 2 . 1	
1000℃チャー	1 0 . 7	
大阪ガス太平洋水添ガス化チャー	3 0 . 4	
“ “ 900℃チャー	2 4 . 3	
1000℃チャー	9 . 4	

第3.1-3表 東京ガス水添ガス化チャー反応性試験結果
(二酸化炭素、1173K、1.6MPa)

	反応時間 (分)	炭素未反応率 (-)
1	0.007	0.981
2	0.173	0.932
3	0.754	0.821
4	1.496	0.699
5	2.179	0.624
6	3.114	0.552
7	4.556	0.443
8	5.692	0.346
9	7.538	0.244
10	9.530	0.163
11	12.375	0.075
12	15.911	0.028
13	21.741	0.000

第3.1-4表 東京ガス太平洋炭900℃チャー反応性試験結果
(二酸化炭素、1173K、1.6MPa)

	反応時間 (分)	炭素未反応率 (-)
1	0.003	0.992
2	0.311	0.973
3	0.976	0.938
4	1.741	0.894
5	2.818	0.818
6	3.843	0.747
7	4.814	0.685
8	5.482	0.632
9	6.250	0.580
10	6.866	0.533
11	7.533	0.485
12	8.608	0.415
13	9.730	0.355
14	10.902	0.299
15	12.380	0.225
16	14.104	0.158
17	16.075	0.098
18	18.537	0.058
19	22.497	0.022
20	26.200	0.002
21	31.047	0.000

第3.1-5表 大阪ガス水添ガス化チャー反応性試験結果
(二酸化炭素、1173K、1.6MPa)

	反応時間 (分)	炭素未反応率 (-)
1	0.103	0.976
2	0.312	0.918
3	0.622	0.844
4	1.086	0.750
5	1.704	0.621
6	2.671	0.490
7	3.841	0.333
8	5.104	0.221
9	6.116	0.132
10	7.426	0.059
11	9.081	0.019
12	10.734	0.000

第3.1-6表 大阪ガス太平洋炭900℃チャー反応性試験結果
(二酸化炭素、1173K、1.6MPa)

	反応時間 (分)	炭素未反応率 (-)
1	0.146	0.973
2	0.477	0.901
3	1.045	0.834
4	1.769	0.828
5	2.491	0.807
6	3.005	0.760
7	3.771	0.712
8	4.525	0.655
9	5.230	0.601
10	6.317	0.525
11	7.306	0.453
12	8.213	0.403
13	9.252	0.335
14	10.354	0.282
15	11.457	0.229
16	12.900	0.166
17	14.556	0.119
18	16.411	0.072
19	18.135	0.049
20	20.662	0.031
21	23.997	0.028
22	27.537	0.030
23	30.829	0.028
24	34.122	0.029
25	37.667	0.056
26	39.565	0.000

第3.1-7表 東京ガス水添ガス化チャー反応性試験結果
(二酸化炭素、1273K、1.6MPa)

	反応時間 (分)	炭素未反応率 (-)
1	0.001	0.986
2	0.203	0.844
3	0.382	0.710
4	0.687	0.559
5	0.990	0.488
6	1.320	0.438
7	1.800	0.368
8	2.104	0.285
9	2.758	0.178
10	3.687	0.100
11	4.814	0.056
12	6.365	0.015
13	7.914	0.012
14	9.464	0.006
15	10.988	0.012
16	12.962	0.013
17	14.662	0.011
18	16.261	0.012
19	17.810	0.015
20	18.810	0.000

第3.1-8表 東京ガス太平洋炭1000℃チャー反応性試験結果
(二酸化炭素、1273K、1.6MPa)

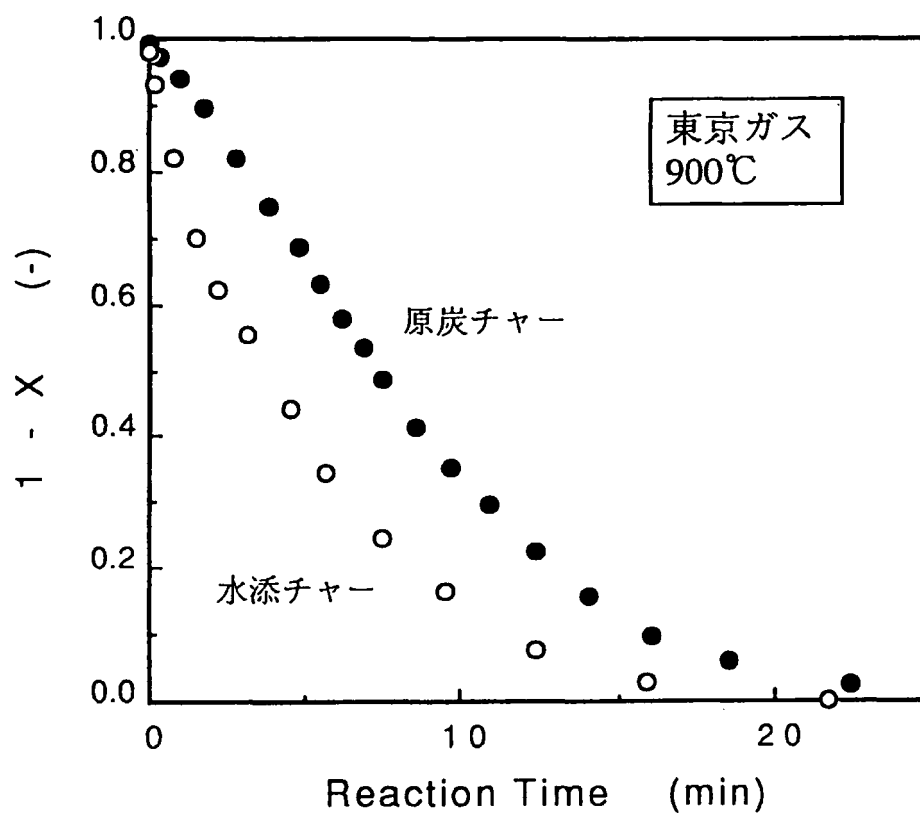
	反応時間 (分)	炭素未反応率 (-)
1	0.102	1.015
2	0.357	1.039
3	0.997	1.054
4	1.562	0.994
5	2.154	0.885
6	2.848	0.743
7	3.670	0.583
8	4.515	0.455
9	5.232	0.347
10	6.203	0.221
11	7.118	0.130
12	8.709	0.038
13	10.543	0.009
14	14.052	0.007
15	17.911	0.012
16	21.494	0.002
17	26.253	0.015
18	31.313	0.011
19	36.247	0.009
20	40.556	0.013

第3.1-9表 大阪ガス水添ガス化チャー反応性試験結果
(二酸化炭素、1273K、1.6MPa)

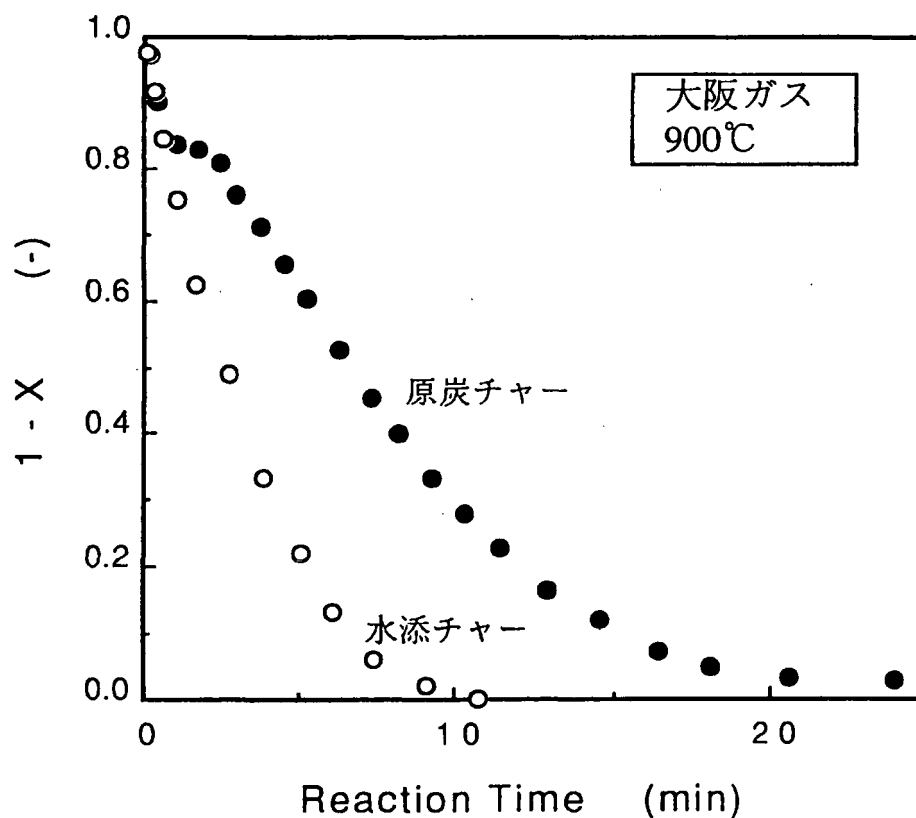
	反応時間 (分)	炭素未反応率 (-)
1	0.101	0.905
2	0.227	0.778
3	0.379	0.662
4	0.481	0.592
5	0.758	0.524
6	0.910	0.481
7	1.138	0.449
8	1.391	0.395
9	1.694	0.321
10	2.048	0.223
11	2.400	0.142
12	3.054	0.053
13	4.032	0.000

第3.1-10表 大阪ガス太平洋炭1000℃チャー反応性試験結果
(二酸化炭素、1273K、1.6MPa)

	反応時間 (分)	炭素未反応率 (-)
1	0.003	0.992
2	0.288	0.970
3	0.603	0.935
4	0.873	0.889
5	1.243	0.844
6	1.543	0.786
7	1.943	0.729
8	2.376	0.651
9	2.623	0.600
10	3.104	0.529
11	3.429	0.470
12	3.809	0.400
13	4.497	0.314
14	4.981	0.234
15	5.561	0.165
16	6.423	0.082
17	7.421	0.037
18	8.735	0.014
19	10.042	0.009
20	11.673	0.009
21	13.428	0.007



第3.1-4図 東京ガス系試料二酸化炭素ガス化減量曲線
(二酸化炭素、1173K、1.6MPa)



第3.1-5図 大阪ガス系試料二酸化炭素ガス化減量曲線
(二酸化炭素、1173K、1.6MPa)

第3.1-6図、第3.1-7図には、1273Kにおける減量曲線の測定値を示した、この温度においても水添ガス化チャーは、参照チャーに比べ高い反応性を示しており、試料間の差も1173Kにおいて求められた結果と同様の結果を示している。

(4) TPD法測定結果

昇温脱離法(TPD)の測定の際には、工業分析の測定値からも明らかなように、東京ガス、大阪ガス水添チャー試料には、相当量の揮発分が残存しており、このことによる、試料重量の変化や、測定系の閉塞等の困難があった。特に東京ガス系水添チャーでは測定系内へのタールの付着が見られ、このことによる測定結果への影響も懸念される。

第3.1-8図には、TPDの昇温過程における各脱離ガスの速度の変化を示した。尚、第3.1-9図に示すとおり、東京ガス系、大阪ガス系の参照チャー(どちらも太平洋炭)の反応速度の差は小さいので、TPD試験では、参照チャーとして東京ガス系900℃乾留チャーを参照チャーとして用いた。

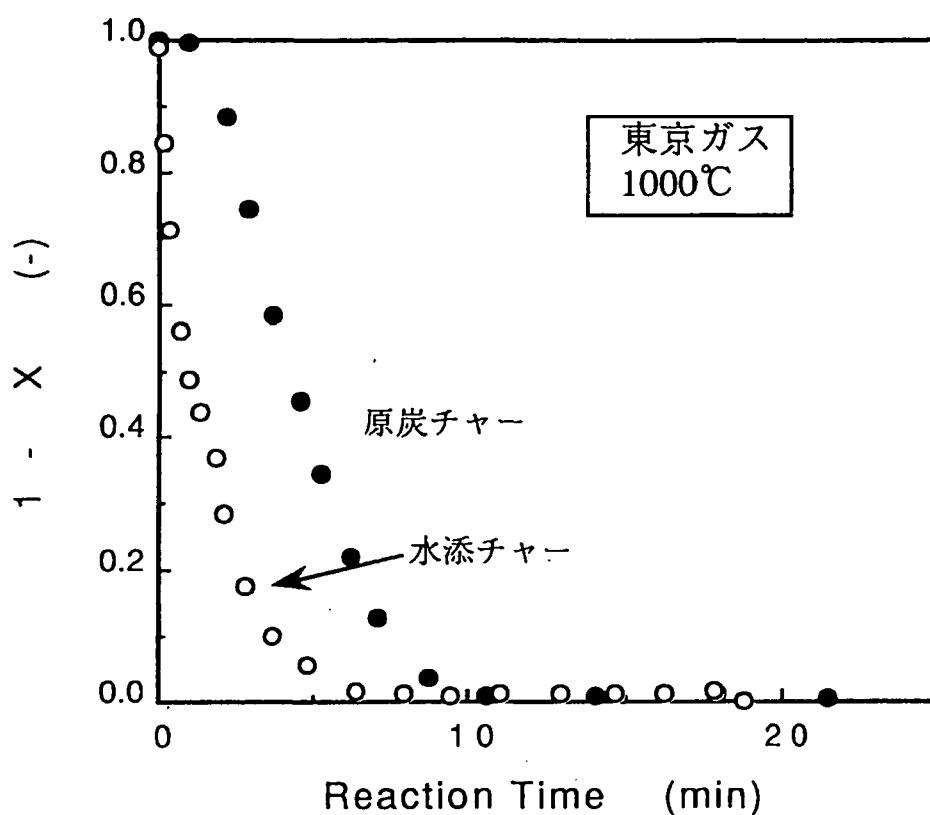
測定結果が示す様に各試料とも二酸化炭素が先に脱着し、その後一酸化炭素の脱着ピークが現れる点では同様であるが、脱着量は大きく異なっており、特に参照用原炭チャーに比べ、大阪ガス、東京ガス両水添チャーの一酸化炭素脱着量が多いことが分かった。

3. 1. 3 考察および評価

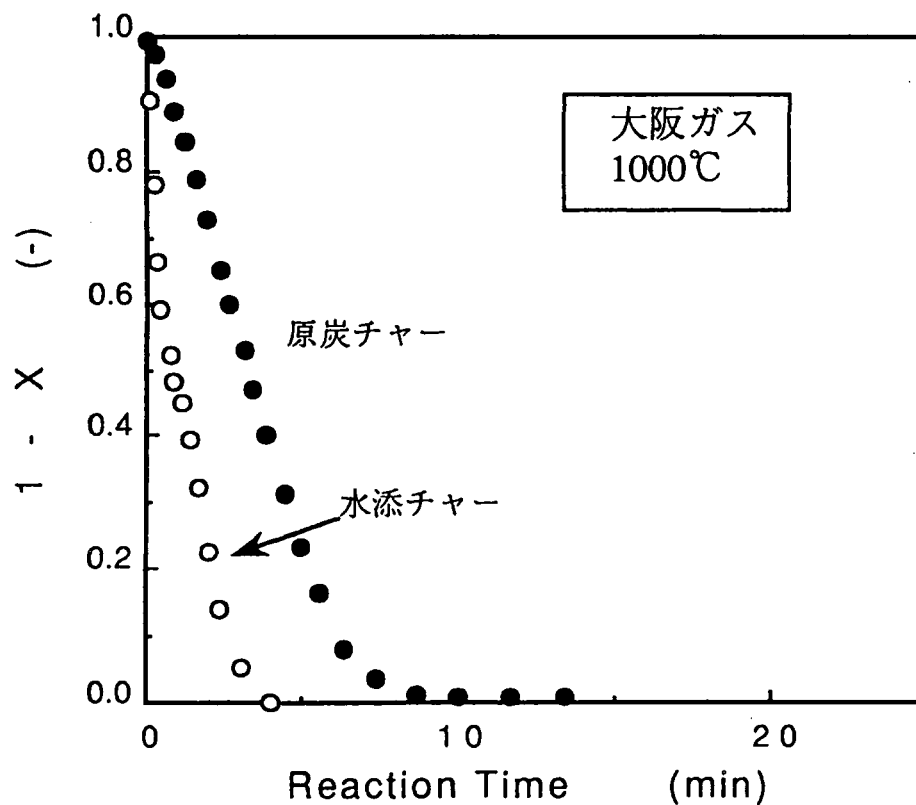
石炭を熱処理した場合、石炭の炭素構造が変化や、表面活性点の劣化等による反応性の低下が見られる場合がある。太平洋炭はこの様な炭種の一つであり、水添ガス化過程で熱処理することによって、反応性の低下が懸念された。

二酸化炭素ガス化試験の結果、本検討で用いた水添チャー試料は何れも、原炭からアルゴン気流中で比較的低速の昇温速度で調整したチャーに比べ高い反応性を示した。また、反応の進行に伴う反応性の低下も観察されなかった。

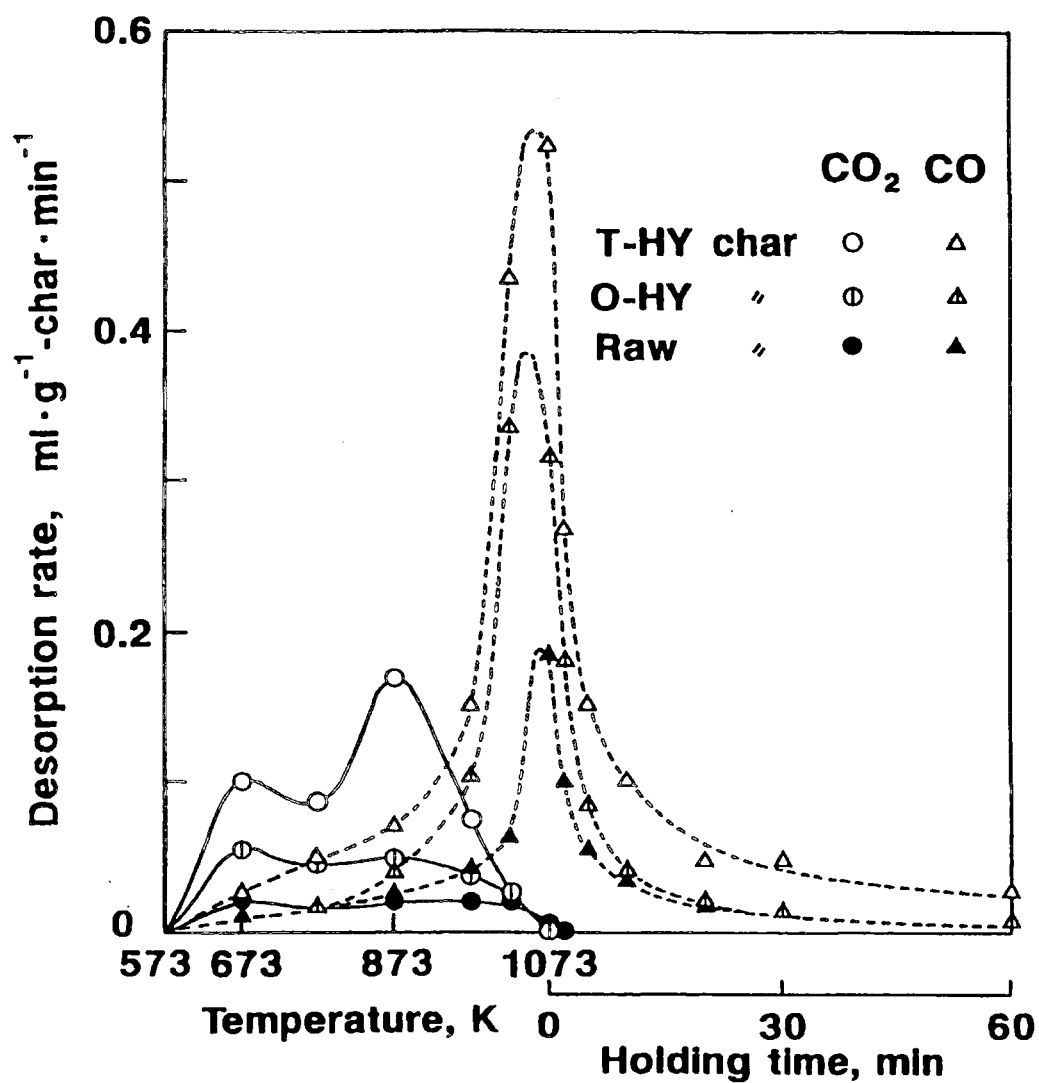
第3.1-11表には、TPD法における脱離ガス量と、(1)式から計算した表面活性点数を示した。結果が示す様にガス化反応性の高い水添チャー試料は、参照用の900℃乾留チャーより多くの活性点を持っていることが分かる。一般に、チャー条の活性点は反応の進行や、加熱によりシンタリング等によって劣化するものと考えられるが、水添チャー試料を採取したガス化炉が気流型のガス化炉であることを考えると、粒子の高温部での滞留時間が短く、熱的な加熱時間が短いことが、炭素構造の変化や反応活性点の劣化が起こりにくい理由になっているものと考えられる。



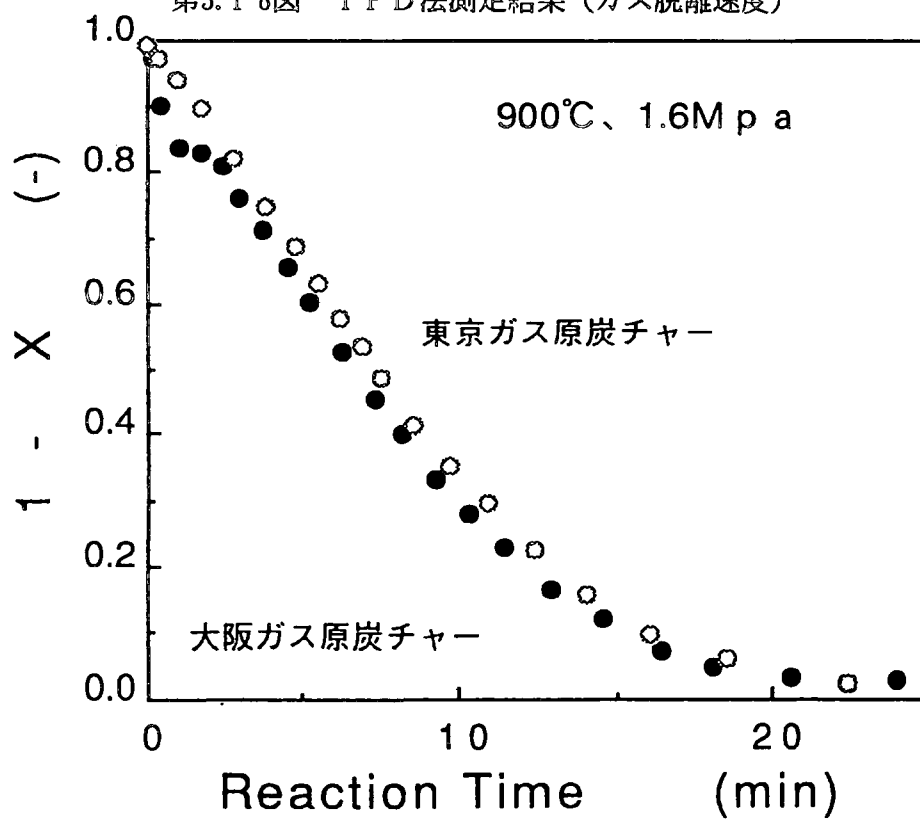
第3.1-6図 東京ガス系試料二酸化炭素ガス化減量曲線
(二酸化炭素、1273K、1.2MPa)



第3.1-7図 大阪ガス系試料二酸化炭素ガス化減量曲線
(二酸化炭素、1273K、1.2MPa)



第3.1-8図 TPD法測定結果 (ガス脱離速度)



第3.1-9図 参照試料反応性比較

第3.1-11表 TPD法測定結果（ガス脱離量と活性点数）

試料	吸着脱離量		活性点数
	CO ₂ , ml/g	CO, ml/g	s ⁻¹ (×10 ¹⁹)
東京ガス太平洋水添ガス化チャー	10.05	4.23	11.4
大阪ガス太平洋水添ガス化チャー	5.66	1.94	5.21
太平洋炭 900℃乾留チャー	3.09	0.88	2.37

従って、水添ガス化によって生成するチャーを部分酸化型のガス化炉で処理して、水素源や熱源とすることは、反応性の面からは問題が無いものと考えられる。

尚水添ガス化チャー間の比較では大阪ガス水添ガス化チャーが、東京ガス水添ガス化チャーに比べて若干高い反応性を示したが、その原因については、表面積の若干の違いがあるものの、活性点の測定値は反対の結果が得られており、残存揮発分や石炭チャー粒子の熱履歴を考えたより詳細な検討が必要である。

① 1400℃の温度で処理済み。
② 1400℃の温度で処理済み。
③ 1400℃の温度で処理済み。
④ 1400℃の温度で処理済み。
⑤ 1400℃の温度で処理済み。
⑥ 1400℃の温度で処理済み。
⑦ 1400℃の温度で処理済み。
⑧ 1400℃の温度で処理済み。
⑨ 1400℃の温度で処理済み。
⑩ 1400℃の温度で処理済み。

3. 2 水添チャーの部分酸化に関するスタディ

水添ガス化プロセスでは、水添段階で生成するチャーを酸素で部分酸化し、生成する一酸化炭素をシフト転換して水素とし、水添段階にフィードバックする。今後は、微粉炭を使用する急速水素化熱分解が主流となることから、水添チャーも微粉状で生成する。プロセスの効率向上を目指す立場からは、微粉のチャーを成型するなどせず、そのままガス化炉に供給できる、気流層ガス化炉が適しているように思われる。

近年、気流層ガス化の高圧操業の要請が強く、各種の加圧層ガス化方式の開発が進められている。これらのガス化法の開発では、微粉炭の加圧ガス化炉への送入が重要なポイントとなっている。この技術は、スラリーフィード系とドライフィード系に大別でき、スラリーフィード系では、Texaco法が実用段階にある。ドライフィード系は、Shell法やHYCOL法など各種のプロセスが開発中である。

水添チャーは、高圧、高温の水素と反応したため、化学組成として酸素等が少なく、表面の親水性が小さいようで、スラリーフィードが困難とされている。したがって、利用可能な技術としては、ドライフィードのShellやHYCOL法と考えられる。

ガス化原料の石炭と同様に、水添チャーも複雑な化合物で、分子式で表せない。原料と全生成物を網羅するようにガス化反応系路を想定し、反応次数や速度定数を決め、全体の物質・熱収支を満たすバランスをとることはかなり難しい課題といえる。ここでは、ガス化原料の元素分析値と発熱量から、炭素転換率と冷ガス効率を仮定した場合の、ガス化に必要な酸素量や各生成物の収率を理論的に推測する手法も検討されている。ここでは、ガス化の物質収支、熱収支関係からのガス化特性を推測し、ガス化温度における生成ガスの顕熱やガス化炉からスチームとして回収される熱を試算し、水添チャーをガス化する時の問題点を検討する。

第3.2-1表 水添チャーの分析結果

	C	元素分析値 H	% N	(d. a. f.) O	S	C l	Ash	発熱量(d. a. f.) (Kcal/Kg)
太平洋炭	65.16 (75.59)	5.74 (6.66)	0.92 (1.07)	14.11 (16.37)	0.25 (0.29)	0.02 (0.02)	13.8	6,642 (7,705)
水添チャー	64.72 (92.52)	1.12 (1.60)	0.80 (1.14)	3.07 (4.39)	0.22 (0.32)	0.00 (0.00)	30.05	5,408 (7,731)

水添チャーの分析値を第3.2-1表に示す。比較のため、原料の太平洋炭の分析値も載せる。d. a. f. ベースで比較すると、水添チャーは炭素に富み、水素と酸素の含量が少ない。第3.2-1表から、各試料の分子式と分子量を求めると、

太平洋炭	$\text{CH}_{1.05}\text{O}_{0.162}\text{N}_{0.0121}\text{S}_{0.00144}$	分子量 15.86
水添チャー	$\text{CH}_{0.2077}\text{O}_{0.0355}\text{N}_{0.0106}\text{S}_{0.00127}$	分子量 12.82

となる。石炭やチャーの一般式を CH_mO_n とする時、これを酸素だけでガス化する時の必要最小量は $(1-n/2)$ モルである。この値は石炭ガス化特性を評価する重要な指標と見られる。第3.2-1表の太平洋炭とそのチャーについて、この指標値を計算すると、

太平洋炭	0.4190 mol/mol (0.8454Kg/Kg d. a. f coal)	
水添チャー	0.4823 mol/mol (1.204 " char)	(1)

この指標値で、d. a. f 1Kgの石炭または、チャーをガス化すると得られる一酸化炭素と水素の総量は、次のようになり、水添チャーから生成するガス量が少ない。

太平洋炭	2.154m ³ /Kg d. a. f coal
水添チャー	1.929m ³ /Kg d. a. f char

このガス量をもとに、ガス化の冷ガス効率を求めると、

太平洋炭	84.8%
水添チャー	75.7%

すなわち、酸素だけでガス化する場合は、水添チャーでは効率が75.7%しかない。これはチャー中の水素量が石炭よりかなり少ないためと思われる。目標とする78%以上の効率を発揮するには、ガス化炉に供給する酸素量を(1)の値以下に抑え、水蒸気を供給・分解し、その吸熱反応により不足するガスの熱量を補う必要がある。

両者の発熱量と理論燃焼酸素量をモルベースで表すと、次のようになる。

	発熱量 (kcal/mol)	理論燃焼酸素量 (mol/mol)
太平洋炭	$h_{\text{coal}} = 122.2$	$\eta = 1.182$
水添チャー	$h_{\text{char}} = 99.11$	$\eta = 1.034$

ガス化の冷ガス効率は、 $E = K \{ (1 - \mu) - \chi \}$ で表される。ここで $(1 - \mu)$ は炭素転換率、 χ は酸素比を示す。Kは $K = 2 \eta h_{\text{co}} / h_{\text{coal}}$ 定義される値で、

太平洋炭	$K = 1.309$
水添チャー	$K = 1.411$

と、計算される。Kの値だけを比較すると、チャーの方がガス化に有利と判断される。ちなみに、HYCOLの公称能力である $E = 78\%$ 、 $(1 - \mu) = 98\%$ を発揮する酸素比は上記の式に従って、以下のようになる。

太平洋炭	$\chi = 0.384 \text{ mol/mol-coal}$ (0.775 kg/kg-coal)
水添チャー	$\chi = 0.427 \text{ mol/mol-coal}$ (1.063 kg/kg-coal)

すなわち、水添チャーでは、同じ冷ガス効率を出すために、単位重量あたり太平洋炭より37%も多い酸素を必要とすることが分かる。このとき発生する一酸化炭素と水素の総量 $[\text{CO} + \text{H}_2]$ は $2\eta \{ (1 - \mu) - \chi \}$ で求められるから、

太平洋炭	$[\text{CO} + \text{H}_2] = 1.409 \text{ mol/mol-coal}$ ($1.989 \text{ m}^3/\text{kg-coal}$)
水添チャー	$[\text{CO} + \text{H}_2] = 1.143 \text{ mol/mol-coal}$ ($1.997 \text{ m}^3/\text{kg-coal}$)

$[\text{CO} + \text{H}_2]$ はモル基準では違っているが、d. a. f. 重量基準で見ると、ほとんど差がみられない。これは、d. a. f. 基準の発熱量が、太平洋炭では7705 kcal/kg、水添チャーでは7731 kcal/kgで、両者がほぼ等しい事実と、矛盾しない。

HYCOLなど高温の部分酸化ガス化炉の性能は炭素転換率、冷ガス効率、酸素比などから検討される。化学平衡からみれば、高温ガス化では生成ガス中の二酸化炭素濃度は非

常に小さいはずであるが、ガス化炉内における温度分布、石炭の反応性、石炭粒子の滞在時間、石炭と反応ガスとの接触時間などの状況に応じて、二酸化炭素は還元されずに生成ガス中に混入する。従って、二酸化炭素の生成はガス化炉の性能や運転状態を見積もる重要な指標となり得るが、現在の科学水準ではガス化炉の形状、温度圧力、石炭－ガス化剤の接触方法状態などから、二酸化炭素濃度を推定できるまでには至っていない。高温ガス化では、転換した石炭中の炭素のほとんどが、一酸化炭素と二酸化炭素になる。そこで、一酸化炭素と二酸化炭素の生成割合をあらかじめ仮定して、各生成ガスの生成量を推定した。その一例を第3.2-2表に示す。あわせてE=0.78を達成する水蒸気分解量も載せる。

第3.2-2表 水添チャーをガス化するときの各生成ガス量

生成割合 CO : CO ₂	生成量 (mol/mol-coal)			水蒸気分解量 (mol/mol-coal)
	CO	CO ₂	H ₂	
1 : 0	0.9800	0.0000	0.1631	0.0593
0.98 : 0.02	0.9604	0.0196	0.1827	0.0788
0.97 : 0.03	0.9506	0.0294	0.1925	0.0886
0.96 : 0.04	0.9408	0.0392	0.2023	0.0984
0.95 : 0.05	0.9310	0.0490	0.2121	0.1082
0.94 : 0.06	0.9212	0.0588	0.2219	0.1180
0.93 : 0.07	0.9114	0.0686	0.2317	0.1278
0.92 : 0.08	0.9016	0.0784	0.2415	0.1376
0.91 : 0.09	0.8918	0.0882	0.2513	0.1474
0.90 : 0.10	0.8820	0.0980	0.2611	0.1573
0.89 : 0.11	0.8722	0.1078	0.2709	0.1671
0.88 : 0.12	0.8624	0.1176	0.2807	0.1769
0.87 : 0.13	0.8526	0.1274	0.2905	0.1867
0.86 : 0.14	0.8428	0.1372	0.3003	0.1965
0.85 : 0.15	0.8330	0.1470	0.3101	0.2063

第3.2-2表から、水添チャーをガス化するときの水蒸気分解量は、二酸化炭素の生成割合に応じて増加する。SNGプロセスでは水添チャーは可能な限り高温で部分酸化炉に搬送されるので、チャーに付随する水分はないであろう。従って、チャーのガス化には部分酸化炉内に水蒸気を供給して運転せざるを得ない。

ガス化炉内での水蒸気の利用率は、1000℃前後で操業される流動床や固定床では、約30%位と報告されている。しかし、1300～1600℃で運転されるドライフィードの気流層方式でどの程度になるか、明かではない。流動床や固定床では灰がクリンカーに成るのを防ぐため、大過剰の水蒸気がガス化剤に混入するため、炭素との反応のほかに一酸化炭素とのシフト反応も起こる。ガス化結果から両者の寄与を分離検討することは出来ないで、これらのガス化における水蒸気利用率は今回の検討の指針にはできない。しかし、基礎研究の示すところでは、炭素による水蒸気の分解は反応温度が高いほど進み易い。また平衡関係から推定しても、高温生成ガス中の水蒸気分圧は低くなる傾向がある。そこで、スラグトップ方式の気流層ガス化などでは、50%以上の水蒸気利用率があると仮定して、各ガスの生成量と、1600℃における生成ガスの顕熱を求めた。HYCOLなど気流層を用いるスラグトップガス化炉では、炉の内壁を水冷してスラグを固化させ、耐火壁構造を確保する、セルフコーティング方で構成される。必然的に炉壁の冷却にともなう熱損失が発生する。通常はこの熱損失はスチームとして回収される。水添ガス化プロセスではこのスチームを空圧機等の動力として利用するので、どの程度の熱がスチームとして回収されるかは重要なファクターとなる。ここでは、(1-E)で計算される熱損失から1600℃における生成ガスの顕熱を差し引いた量を、スチーム回収率として原料チャーの発熱量に対するパーセントで示した。結果を第3.2-3～14表に示す。

以上の計算では、二酸化炭素の生成割合と水蒸気分解率の両者を仮定するため、13枚の表からも分かるように結果は分散して、水添チャーのガス化に関する特性を明解に表せない。二酸化炭素の生成割合と水蒸気の分解率は、試料のガス化反応性や灰の熱溶解性から決まるガス化温度などに関連していて、PDU規模の実験など何らかの試験を経なければ、信頼性のある形で推定することは不可能である。表から、水蒸気分解量毎に計算したスチームとしての熱回収率を水蒸気分解率に対してプロットした関係を第3.2-1図に示す。なお、熱回収率は水添チャーの熱量に対する割合で示した。水蒸気回収率は、水蒸気分解量、換言すれば二酸化炭素の生成割合が大きくなるほど、また水蒸気利用率が小さくなるほど、低下すると予想される。これは、二酸化炭素の熱容量が大きいこと、未反応水蒸気の持ち出す顕熱が大きいことによる、と解釈できる。

一方、平成3年度の調査において、日立製作所に依頼し、ARCH1プロセスの解析に使用したHYCOLによる水添チャーガス化の成績(CO; 75.63%、H₂; 4.87%、CO₂; 19.38%)は、CO:CO₂ = 0.93:0.07とした時の第3.2-8表のガス組成と非常に

第3.2-3表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	82.60	15.71	1.69	0	1.1627	14.40	7.47
90	81.98	15.60	1.67	0.75	1.1715	14.64	7.29
80	81.22	15.45	1.66	1.67	1.1824	14.93	6.94
70	80.26	15.27	1.64	2.82	1.1965	15.30	6.56
60	79.03	15.03	1.61	4.32	1.2152	15.79	6.07
50	77.36	14.72	1.58	6.35	1.2415	16.49	5.36

CO : CO₂ = 0.98 : 0.02 水蒸気分解量 = 0.0788 (mol/mol)

第3.2-4表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	81.07	16.42	2.51	0	1.1725	14.60	7.27
90	80.40	16.28	2.49	0.83	1.1823	14.86	7.01
80	79.57	16.11	2.46	1.86	1.1947	15.19	6.67
70	78.53	15.90	2.43	3.14	1.2105	15.60	6.26
60	77.19	15.63	2.39	4.80	1.2316	16.16	5.69
50	75.38	15.26	2.33	7.03	1.2611	16.94	4.91

CO : CO₂ = 0.97 : 0.03 水蒸気分解量 = 0.0886 (mol/mol)

第3.2-5表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	79.57	17.11	3.32	0	1.1823	14.79	7.08
90	78.84	16.95	3.29	0.91	1.1923	15.08	6.78
80	77.95	16.76	3.25	2.04	1.2069	15.44	6.42
70	76.83	16.52	3.20	3.45	1.2245	15.90	5.96
60	75.39	16.21	3.14	5.26	1.2479	16.52	5.33
50	73.46	15.80	3.06	7.68	1.2807	17.39	4.45

CO : CO₂ = 0.96 : 0.04 水蒸気分解量 = 0.0984 (mol/mol)

第3.2-6表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	78.10	17.79	4.11	0	1.1921	14.98	6.89
90	77.32	17.61	4.07	1.00	1.2041	15.30	6.56
80	76.36	17.40	4.02	2.22	1.2192	15.70	6.16
70	75.17	17.13	3.96	3.75	1.2385	16.20	5.65
60	73.64	16.78	3.88	5.71	1.2642	16.88	4.97
50	71.60	16.31	3.77	8.32	1.3003	17.83	4.01

CO : CO₂ = 0.95 : 0.05 水蒸気分解量 = 0.1082 (mol/mol)

第3.2-7表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	76.65	18.46	4.89	0	1.2019	15.17	6.69
90	75.82	18.26	4.84	1.08	1.2150	15.52	6.34
80	74.81	18.02	4.78	2.40	1.2314	15.95	5.91
70	73.55	17.72	4.69	4.04	1.2525	16.51	5.34
60	71.94	17.33	4.59	6.15	1.2806	17.25	4.60
50	69.79	16.81	4.45	8.94	1.3199	18.28	3.55

CO : CO₂ = 0.94 : 0.06 水蒸気分解量 = 0.1180 (mol/mol)

第3.2-8表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	75.22	19.12	5.66	0	1.2117	15.36	6.50
90	74.35	18.90	5.60	1.16	1.2259	15.74	6.12
80	73.28	18.63	5.52	2.57	1.2437	16.21	5.64
70	71.96	18.29	5.42	4.32	1.2665	16.81	5.04
60	70.28	17.87	5.29	6.57	1.2969	17.61	4.23
50	68.04	17.30	5.12	9.54	1.3395	18.73	3.10

CO : CO₂ = 0.93 : 0.07 水蒸気分解量 = 0.1278 (mol/mol)

第3.2-9表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	73.81	19.77	6.42	0	1.2215	14.48	7.39
90	72.90	19.53	6.34	1.24	1.2368	14.86	7.01
80	71.79	19.23	6.24	2.74	1.2559	15.34	6.52
70	70.41	18.86	6.12	4.61	1.2805	15.96	5.90
60	68.66	18.39	5.97	6.99	1.3132	16.78	5.07
50	66.34	17.77	5.77	10.12	1.3591	17.94	3.90

CO : CO₂ = 0.92 : 0.08

水蒸気分解量 = 0.1376 (mol/mol)

第3.2-10表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	72.43	20.41	7.16	0	1.2313	15.74	6.12
90	71.48	20.14	7.07	1.31	1.2477	16.18	5.67
80	70.32	19.82	6.96	2.91	1.2682	16.72	5.13
70	68.89	19.41	6.81	4.88	1.2945	17.41	4.43
60	67.07	18.90	6.63	7.39	1.3296	18.34	3.50
50	64.68	18.23	6.40	10.69	1.3787	19.63	2.19

CO : CO₂ = 0.91 : 0.09

水蒸気分解量 = 0.1474 (mol/mol)

第3.2-11表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	71.06	21.04	7.90	0	1.2411	15.94	5.92
90	70.08	20.75	7.79	1.39	1.2586	16.40	5.45
80	68.88	20.39	7.65	3.07	1.2804	16.97	4.88
70	67.40	19.95	7.49	5.15	1.3085	17.71	4.13
60	65.53	19.40	7.28	7.79	1.3460	18.70	3.13
50	63.07	18.67	7.01	11.25	1.3984	20.08	1.74

CO : CO₂ = 0.90 : 0.10

水蒸気分解量 = 0.1573 (mol/mol)

第3.2-12表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	69.73	21.66	8.62	0	1.2509	16.13	5.73
90	68.70	21.34	8.49	1.47	1.2695	16.63	5.22
80	67.47	20.96	8.34	3.23	1.2927	17.23	4.62
70	65.95	20.48	8.15	5.42	1.3225	18.01	3.83
60	64.02	19.89	7.91	8.18	1.3623	19.06	2.77
50	61.51	19.10	7.60	11.78	1.4180	20.53	1.29

CO : CO₂ = 0.89 : 0.11 水蒸気分解量 = 0.1671 (mol/mol)

第3.2-13表 水蒸気利用率とガス化成績

水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	68.41	22.27	9.33	0	1.2607	16.32	5.53
90	67.35	21.92	9.18	1.54	1.2804	16.84	5.01
80	66.09	21.51	9.01	3.39	1.3049	17.48	4.36
70	64.53	21.00	8.80	5.67	1.3365	18.31	3.53
60	62.55	20.36	8.53	8.55	1.3786	19.42	2.41
50	59.99	19.53	8.18	12.31	1.4376	20.98	0.83

CO : CO₂ = 0.88 : 0.12 水蒸気分解量 = 0.1769 (mol/mol)

第3.2-14表 水蒸気利用率とガス化成績

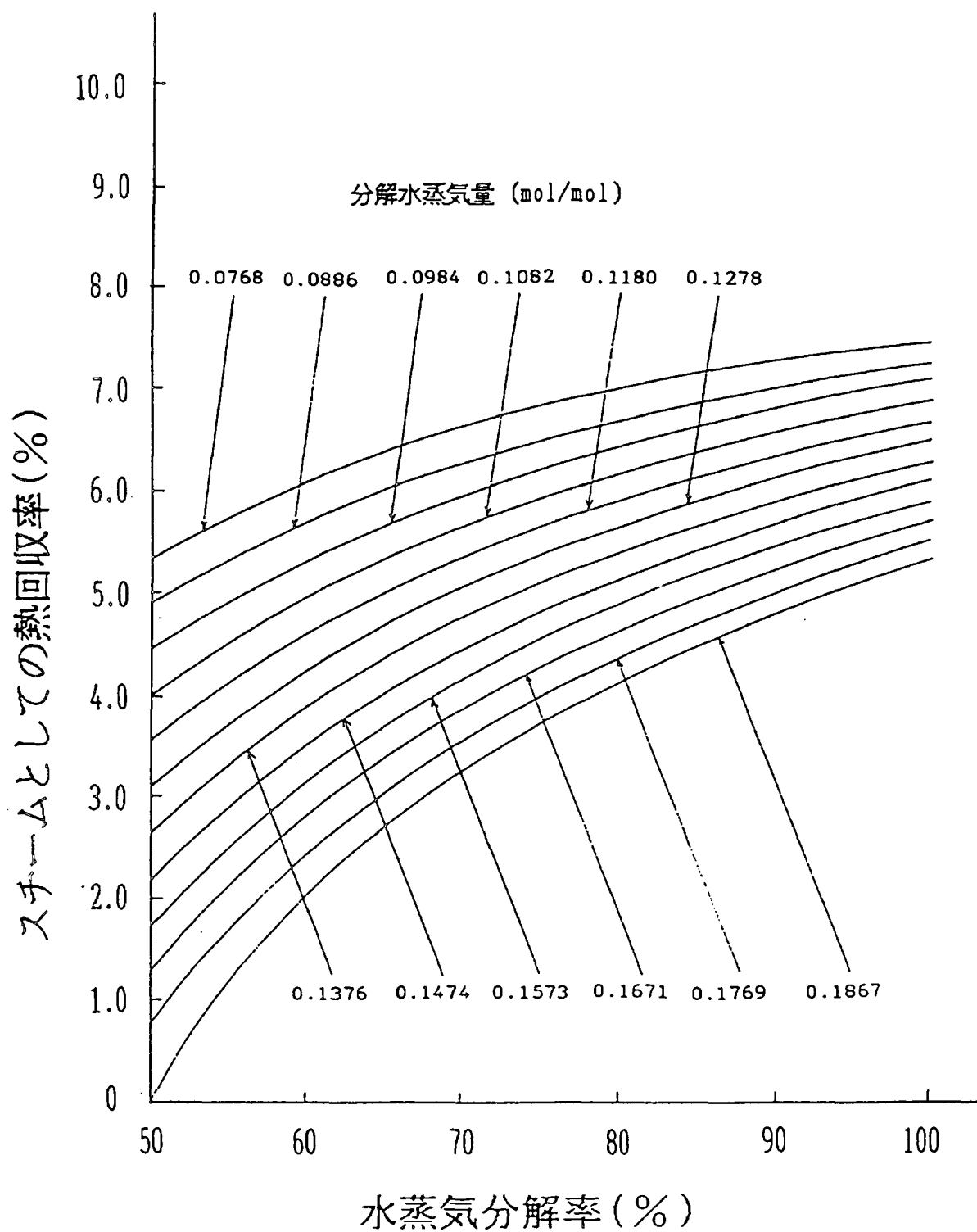
水蒸気 利用率 (%)	生成ガス組成 (%)				生 成 ガス量 (mol/mol)	生成ガス 顕 熱 (kcal/mol)	水蒸気 回収率 (%)
	CO	H ₂	CO ₂	H ₂ O			
100	67.11	22.87	10.03	0	1.2705	16.51	5.34
90	66.03	22.50	9.87	1.60	1.2912	17.05	4.80
80	64.73	22.05	9.67	3.55	1.3172	17.74	4.10
70	63.13	21.51	9.43	5.92	1.3505	18.62	3.21
60	61.12	20.82	9.13	8.92	1.3950	19.79	2.03
50	58.51	19.94	8.74	12.81	1.4572	21.45	0.36

CO : CO₂ = 0.87 : 0.13 水蒸気分解量 = 0.1867 (mol/mol)

近い。分解率100%でのガス組成は、平成3年度での調査に近く、水蒸気利用率が低下するにつれ、湿基準での生成ガス量は未反応水蒸気分だけ増加し、 CO 、 H_2 、 CO_2 の生成割合は低下する。ただし、ガス化炉に供給したスチーム量は、 0.0915 mol/mol と報告され、第3.2-8表の 0.1278 mol/mol より少ない。また、ガス化に必要な酸素量は、平成3年度の報告では 0.477 mol/mol で、先に計算した推定値 0.427 mol/mol より、かなり多い。両者の不一致は、水添チャーの分析結果、推定手法の違いに基づくものと思われる。

第3.2-8表の分解水蒸気量 0.1180 mol/mol での変化を第3.2-1図で追うと、水蒸気分解率が100%では熱回収率は6.50%であるが、水蒸気利用率が50%に成ると3.10%に低下する。ガス化炉回りの熱損失を約3～5%程度に見込んでいるようである。ガス化炉回りから回収されるスチーム量は、ガス化炉壁を囲む水管群と炉内との温度差にのみ関係し、ガス化炉の石炭処理量には、余り影響されないと考えられる。従って、ガス化炉がスケールアップし、炉1基あたりの石炭処理量が増加したときには、回収されるスチーム量は供給したチャーの単位量あたりに換算すれば相対的に小さくなり、その分冷ガス効率は向上すると見込まれる。

以上、ここではチャーを部分酸化して水素に転換するときに、予想される酸素負荷量、水蒸気分解量、部分酸化炉からのスチーム回収率、生成ガス組成、などと、生成ガス中の二酸化炭素濃度と水蒸気利用率との関係を示した。生成ガス中の二酸化炭素濃度と水蒸気利用率は、ガス化炉の性能と未反応チャーのガス化に対する反応性に依存している。今後反応性に関しては基礎的に、ガス化炉の性能に関してはある程度の規模のプラントで試験して、全体のプロセスを設計する必要があるだろう。



第3.2-1図 水蒸気分解率とスチーム回収率との関係

3. 3 ま と め

第3章では、水添チャーのガス化の基礎実験および理論的考察により、水添チャーのガス化特性を調査し、評価を行った。

検討に用いた試料は、いずれも太平洋炭の東京ガス㈱および大阪ガス㈱の水添チャーと、比較のためにそれぞれの原炭をアルゴン気流中で熱分解した原炭チャーであり、工業分析、元素分析および表面積を測定し、高圧熱天秤による CO_2 雰囲気下でのガス化特性を調査した。その結果、水添チャーは原炭チャーに比較して、揮発分が多く残っていること、水素、酸素の含有率が高いこと、ガス化反応性は優れていることが確認された。部分酸化炉でガス化する際にも反応性の面では何ら問題ないことが分かった。

また、ガス化原料の元素分析値と発熱量をもとに、ガス化の物質収支、熱収支の関係からガス化特性を推測した。炭素転換率98%と冷ガス効率78%を想定した場合のガス化に必要な酸素量や水蒸気分解量、ガス化炉からのスチーム回収率などを試算し、水添チャーのガス化原料としての特性を明らかにした。その結果、水添チャーのガス化には、石炭よりも多量の酸素を必要とすること、および水蒸気を吹き込まねば高いガス化効率が維持できないことが分かった。

第 4 章 4 年度総括

平成 2 年度では、石炭から SNG を製造することの必要性、水添ガス化を含む SNG 製造プロセスの調査、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の実施および開発課題の抽出・検討等を行った。

平成 3 年度では、石炭水添ガス化プロセスの展望、反応器を含む要素技術の調査および評価、水添ガス化プロセス構成や開発項目等の検討、実用化スケジュールの検討およびパイロットプラントの基本構想において概念設計や必要経費の検討を行った。

一方、平成 4 年度の調査結果のポイントを整理すると以下のとおりである。

- ①ガス基本問題検討小委員会の答申から、天然ガスが我が国の基幹エネルギーとして位置づけられ、代替天然ガス設備の技術開発の必要性が指摘されたことにより、今後の石炭水添ガス化技術開発の促進が期待されている。
- ②石炭水添ガス化技術開発を取り巻く状況の変化があり、ニューサンシャイン計画、クリーン・コール・テクノロジー等環境保護に重点を置いた政策が展開され、その中で石炭水添ガス化プロセスの開発は、ニューサンシャイン計画の中長期的研究課題として、今後取り組むべきエネルギー環境技術の化石燃料高度改質技術にとり上げられている。
- ③石炭 SNG の発電燃料への適用可能性について、電力事業サイドから考察をいただき、〔石炭 SNG + パイプライン輸送 + 天然ガス複合発電〕方式は、〔遠隔地石炭複合発電〕方式と比較して、すべて発電の変換手段を経た後の効率で評価した場合、発電効率は低いものの、発電所設備利用率を高くすることができ経済性の面で優れている可能性があること、および、都市近郊の発電所立地の受け入れられ易さや、燃料の長期安定性の面から、電気事業においても石炭水添ガス化技術開発の意義があることが分かった。
- ④これまで 3 年間での調査での検討不足がないかを確認する目的で、国家プロジェクトとして立ち上げるための要件について検討を行った。その結果、石炭水添ガス化プロジェクトは、その要件を十分満足していることが分かった。
- ⑤液収率向上に関するスタディでは、前年度概念として提出された ARCH-2 の可能性を、数学モデルを使用して反応器性能を反応シミュレーション予測により検討を進めた。その結果、ベンゼン収率は、炭素転化率で 15 % まで可能であることが分かった。
- ⑥チャーガス化炉の部燃高温ガスを水添ガス化炉に導き、水添ガス化反応の反応温度を維持するための熱源として利用する顕熱利用型のプロセス・スタディを実施した。

⑦石炭水添ガス化の新しいプロセス開発として、液収率向上型および顕熱利用型の二つのプロセス・スタディを行い、評価した。平成3年度のスタディ結果と比較すると以下のとおりである。

	平成3年度	平成4年度	
	ARCH-1	液収率向上型	顕熱利用型
熱効率(%)	77.50	72.02	77.51
ガスコスト(円/Nm ³)	37.37	29.03	36.37

液収率向上型では、ベンゼン価格90円/kgとしたときのガスコストは29.0円/Nm³と経済性が優れているが、水素昇温のための酸素使用により効率低下が大きいことが分かった。また、顕熱利用型では、熱効率の改善の余地は少なく、建設費コスト削減も5%程度であることが分かった。

⑧今年度のスタディ結果を踏まえ、我が国の開発すべき水添ガス化プロセスの目標としては、①SNG収率最大、②冷ガス効率最大、③BTX収率最大の3つを掲げ、製品収率のフレキシビリティのある反応器を持つプロセスを開発すべきと提言した。

⑨平成3年度に調査を実施したパイロットプラントの運転研究の必要経費について見直し、既にNEDOが保有している機器類を活用、水素製造装置の規模の最適化、水添ガス化炉出口ガスを水素製造の原料に再利用を行った場合は、50億円程度のコスト削減が可能で200億円程度になるとの見通しを得た。

⑩水添チャーのガス化反応性は、熱分解の原炭チャーと比較して優れていることが確認され、部分酸化炉でガス化する際にも反応性の面では何ら問題ないことが分かった。

⑪水添チャーの部分酸化に関する理論的考察を行い、ガス化原料としての特性を明らかにした。その結果、水添チャーのガス化には、石炭よりも多量の酸素を必要とすること、および水蒸気を吹き込まねば高いガス化効率が維持できないことが分かった。

平成4年度石炭水添ガス化技術開発調査 における海外調査概要

1. 概要

石炭水添ガス化技術開発調査の一環として、昨年に引き続き、海外調査を行った。過去2年間は各種石炭ガス化プロセスの開発先を調査したが、本年度はプロセスの原料・資源面と製品・利用技術面にポイントを置いて、インドネシアやオーストラリアにおける石炭や天然ガス資源の開発動向、エネルギーに関する情報を調査し、資源面から水添ガス化技術の必要性等を調査した。また、APEC（アジア太平洋経済協力）の新エネルギーセミナーにも参加した。昨年同様、民間会社の方々も多く参加して頂き、充実した調査を行うことが出来た。以下に、各訪問先での調査概要をまとめる。

2. 訪問先

- | | |
|-----------------------|--------------------|
| ①APEC新エネルギーセミナー | (NEDO主催のセミナー) |
| ②LNG基地 | (天然ガス資源情報関係) |
| ③CSIRO | (石炭ガス化、エネルギー情報他) |
| ④シドニー大学 Warren Centre | (コールバット・メタン資源情報関係) |
| ⑤三菱ガス化学 | (コールバット・メタン資源情報関係) |
| ⑥エベネザ炭鉱 | (石炭資源情報関係) |

3. 調査日程

平成4年11月16日 ～ 11月28日 (13日間)

4. メンバー (順不同)

藤元 薫	(東京大学)	武松 敏弌	(岩谷産業)
津留 義通	(東京ガス)	朝倉 光雄	(三菱重工業)
浅岡 善清	(大阪ガス)	小林 清孝	(NEDO)
吉武 邦樹	(出光興産)		以上 7名

5. 調査報告要旨

5-1. APEC新エネルギーセミナー

- a) 会期： 11月17日(火)～19日(木) (3日間)
- b) 場所： インドネシア バリ・ヒルトンインターナショナル
- c) 主催： 新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)
- d) 協力： 外務省、通産省およびインドネシア鉱山エネルギー省
- e) 参加者数： APEC参加15か国・地域より約200名
- f) 参加国： オーストラリア、中国、インドネシア、韓国、マレーシア、
フィリピン、シンガポール、タイ、台湾、米国、日本およびIEA
- g) 発表数： 24件(セレモニースピーチ：6件、基調講演：2件、一般：16件)
その内日本人の発表は8件。

5-2. PT Badak LNG基地

LNGバダック・プロジェクトは、1972年ハフコグループによるバダックガス田の発見により始められた。インドネシア石油ガス公社・プルタミナは、1974年6月からバダックLNG基地の建設を開始した。ベクテルの総指揮のもとAPCI(Air Products and Chemical Inc.)法の液化プラントが選択された。バダック液化基地の資本比率は、プルタミナ55%、ハフコ35%、ジルコ(日本ユーザー代表)15%である。プロジェクトの第1カーゴは、1977年8月に大阪ガス(株)泉北LNG基地に出荷された。また、1988年12月よりLPGが日本に輸出されている。現在、1993年春を目標にFトレーンの建設が進められている。LNG販売量は、A～Eの5トレーンで1160万t/年、LPGは40万t/年である。天然ガスの井戸は、9つの地区から発見され、その内3カ所が石油随伴ガス、残り6カ所が天然ガス井戸である。井戸から60Km離れたところに液化基地があり、60Kg/cm²の圧力でパイプラインにより液化基地に輸送される。天然ガスの平均ガス組成は、メタン:83.5%、エタン:5.3%、プロパン:3.1%、ブタン以上:2%、CO₂:6%、N₂:0.1%である。液化基地では、まずアミン吸着法によりCO₂が除去され、モレキュラーシーブによって乾燥される。液化の熱交換器を守るためにHgが除去され、APCIの液化プラントに送られる。APCIではプロパンとMCR(混合媒体)で冷却され、-160℃のLNGが製造される。途中、C₃、C₄成分は抽出され、別途LPGとして日本へ輸出される。LNGの組成は、メタン:90.8%、エタン:5.7%、プロパン:2.5%、ブタン以上:1.0%であり、LPG抽出のためかなり熱量は低い。バダックLNGは、125,000m³/船のLNG専用船で日本及び台

湾へ輸出される。航海日数は 4,400Km離れた日本へは 6 日で、 2,900Km離れた台湾へは 3 .5日である。日本の受入れ基地は、知多、泉北、姫路、戸畑、四日市の 5 ヵ所である。F トレーンの LNG は、韓国にも輸出される計画である。インドネシア・プロジェクトのバダック、アルン両基地を合計すると、日本の LNG 需要の 50%以上を供給している。L N Gバダック基地は、その規模から世界最大の LNG 基地である。

また、バダック LNG 基地は、東カリマンタン島の西ボンタン湾の熱帯ジャングルに位置するため、2060haの広大な土地に、L N G基地に関連するメンテナンスエリア、発電設備、用役設備および 950haの居住区を配置している。基地設備と居住区の間には緩衝地帯が設けられている。この近代的なコミュニティエリアには、 7,500人を収容するために、病院、学校、モスク、教会、ゴルフコース、テニスコート、スイミングスクール等がある。

5-3. CSIRO

オーストラリアの国立の研究機関である CSIRO の石炭・エネルギー研究所を訪問した。現在、オーストラリアでは、石炭の 80 %は燃料として使われており、また、石炭の輸出は年間 \$ 6 Billion 程度で年々増加している。オーストラリア石炭は市場に対して競争力があるが、しかし、一方で各種の研究が行われている。大事なことは、環境面を配慮しての使用方法の研究で、例えば、灰分の沈降分離等がある。発電には、オーストラリアでは石炭が使われているが、今後は I G C C などの、新しい発電方式が是非とも必要である。I G C C の技術を学ぶことがオーストラリアにとって大事であり、この面で日本の通産省や N E D O、民間会社の関係者の協力を得たいと考えている。現在は、小規模なベンチスケールでの研究を行っている。その実験規模は、石炭投入量 1 Kg/h 程度であるが、 30 Kg/cm²程度の圧力で、高温によるスラッキング法である。石炭を燃焼させた場合、ミネラル物質を如何に除去する事が大きな問題となる。このために、1,000 °Cの高温で灰分捕集する電気集塵機の開発も行っている。ミーティングの後、石炭投入量 1 Kg/h のガス化装置および灰分捕集実験装置等の見学をさせていただいた。

5-4. シドニー大学 Warren Centre

ニューサウスウェイルズ州のコールベッドメタン・プロジェクトの推進役として活動している Warren Centre を訪問した。ニューサウスウェイルズ州は、現状のエネルギー需給を天然ガスの受入れに依存しており、すなわち Cooper 地区よりパイプラインで天然ガスを

受け入れている。Cooper地区の天然ガス資源量から将来の拡大は見込めず、2006年を境にしてその供給は減少するものと予想されている。西オーストラリア海岸地区の天然ガス利用は大陸をまたがるパイプラインの敷設が必要であり、非常に長い年月がかかり、コストも高い。従って、ニューサウスウェイルズ州の市場に近いシドニー炭田のコールベッドメタンガス資源に着目し、ガス資源としてのコールベッド・メタンの開発を開始している。その資源量は、ニューサウスウェイルズ州鉱山資源省の調査では 炭層の厚さとガスの含有率から2兆m³と予測されている。シドニー炭田の特異な地質学的条件から、オーストラリア石油共同研究センター(APCRC)が指摘するように、低いガス浸透性(Permeabilities)がニューサウスウェイルズ州のコールベッドメタン開発の障害になっている。炭層からのコールベッドメタン抽出は将来のエネルギー供給不足の問題のみならず、将来の地下炭層の石炭掘削の安全性の点でも重要である。水圧刺激法は10年前にも行われたが、炭田層が安定しているオーストラリアでは良い結果が得られておらず、現在、APCRCによって引き続き研究開発が続けられている。アメリカでの経験に基づき、平均2600m³/日・井戸のガス生産量と仮定すれば、600井戸でニューサウスウェイルズ州のエネルギー需要の25%を供給する事が出来る。コールベッドメタン・プロジェクトは経済的な利点もあり、10%安く供給出来るとして、15百万\$の経済効果がある。コールベッドメタン・プロジェクトは、委員会組織を結成して進められている。産業界、大学、政府からの委員のほか昨日訪問したCSIROからも委員が選出されている。デモンストレーションとして国立公園の敷地内で井戸を掘削し、調査を開始しようとしている。3年間の実験テストを実施し、5年後から10年後までにはコールベッドメタンを商業化したい。

5-5. RGC Resources

RGC Resources Australia PTY. LTD.(三菱ガス化学の子会社)は、クィーンズランド州ボーエン堆積盆地の石炭層からメタンガスを取得する目的で試掘権を取得している。その鉱区は14,000Km² 可採量は1兆8000億m³、商業的に有望なものは6000億m³を見込んでいる。三菱ガス化学はユニークな会社で、天然ガス開発と化学工業の両分野に事業を展開している。本プロジェクトの最終的な目標は国際競争力のあるメタノールプラントをクィーンズランド州に設置することである。クィーンズランド州では石炭発電を行っているが、これをCBM原料に転換したい。州政府がCBM開発の許認可権を持っている。現在15カ所の試掘を行っており、来年から本格的なテスト計画に入る。1本の井戸から10,000m³/日寿

命は7～8年、採掘コストが1\$/MMBTUまでなら 経済的に payできる。将来の石炭掘削の安全のためにC B M開発の記録を残すことが要求されている。試掘のスイートスポットは1割～2割、炭層が背斜構造やスラストホール構造になっている所が良い。1本の井戸で570m*570m=80エーカーをカバーする。井戸から最初水が出てきてその後ガスが出る。石炭は若い炭は青炭が適している。ガスの含有量は5～17m³/t。圧力が高いほどすなわち深度が増すほど吸着量が多くなるが、開発対象深度は300m～1,000mが適当である。2,500t/日のメタノールプラントとして、10億m³/年のメタンが必要、日本のメタノール需要は170万t/年。C B Mが商業ベースになるのは10年後の見込み。

5－6. エベネザ炭鉱

エベネザ炭鉱はブリスベンより車で1時間ほど西へ移動した所に位置し、内陸部と比較して石炭の積み出しに有利である。1988年12月 Idemitsu South Queensland Coal PTY. LTD. (出光興産100%出資)は連邦政府より鉱山操業の許可を得た。89年2月より、10月に選炭工場、ブリスベンへの鉄道を完成させ、89年10月より操業開始している。従業員は260名(日本人2名)。1991年のエベネザ炭販売量は、ほぼ全量日本輸出向け122万t/年で、今年7月よりオーストラリア・スワンバング発電所向けヘトラック輸送による44万t/年の供給も開始している。石炭資源量は鉱区全体(392Km²)で、7億t 内エベネザ鉱区(8.9Km²)で96百万t である。炭質は、高揮発分(39%) 高カロリー(6,700kcal/kg)低硫黄(0.48%) 低窒素(1.1%)で燃焼性は良好、電気集塵性能が良く一般産業用ボイラーに好適である。露天掘りであり、トラックとフロントエンドローダーにより採炭している。炭層は地下40m 程度のところに位置し、薄いシーム(25cm以上) 別に選炭して貯炭し、品質を一定にするように混炭して出荷している。鉄道(80Km)にてブリスベン港まで輸送され、8万t 級の大型船で輸出される。採炭オペレーションは、24時間3交替で月～金の週5日操業である。FOBの値段は、39\$/t, コスト内訳は、鉄道が1/3, プラント操業管理が1/3, 利益が1/3 であるという。環境対策、品質管理を徹底して行っており、年間4,000人の見学者がある。今年6月エベネザ鉱山は、地元の商工会議所から最優秀企業に選ばれている。

*詳細な内容については、「平成4年度石炭水添ガス化技術開発調査における海外調査報告書」を参考にして頂きたい。

以 上

本報告書は関係者の責任において保管するとともに、原則として、その内容の公表は避けてください。やむをえず、公表の必要が生じたときは、あらかじめ新エネルギー・産業技術総合開発機構の許可を受けてください。

電話 03-3987-9445