水添ガス化残渣チャーの水素含有率

—1984. 1. 25 受理—

公害資源研究所 牧野 三則, 海保 守, 小林 光雄
加藤 勉*, 山下 安正, 木村 英雄

公害資源研究所では、エネルギー対策ならびに将来の石炭エネルギー有効利用の観点から、石炭の水添ガス化による高カロリーガス製造技術の基礎研究を行ってきた。その一環として、水添ガス化反応の全体像を把握することを目的に、固定床連続装置による実験を行った。結果の一部はすでに報告したが¹⁾、ここでは原料として太平洋炭を用いたときの残渣チャーの水素含有率を決定する因子と、その間の量的な相関についての知見を述べる。

連続装置の詳細と実験方法は既報¹⁾に譲るが概略は

以下のものである。粒径0.5~1.4mmの石炭を、炉上部に設置した給炭機より内径40mmの反応管内へ、一定量で連続的に供給し、下降流で送入される水素と $1023 \pm 10\text{K}$ で反応させた。反応圧力は0.1~5MPa、水素-石炭供給比は150~2000ℓ/kgの範囲とした。残渣チャーの元素分析には、柳本製CHNコーダーMT-2型を用いた。Table 1に実験条件とチャーの元素分析値を示す。Table 1において、反応率は $[1 - (\text{全チャー収量 kg, dry}) / (\text{全石炭供給量 kg, dry})]$ である。

熱分解反応の場合には、チャーの水素含有率は反応

Table 1 Experimental conditions of hydrogasification and ultimate analysis of residual char

Run No.	Press. (MPa)	H ₂ Press. at Exit (MPa)	Conv. (-, dry)	Ultimate Analysis of Char (wt %, dry)	
				H	C
428	0.101	0.06	0.418	1.1	71.4
462	0.101	0.06	0.485	1.1	71.3
383	1.11	0.95	0.562	0.8	66.7
400	1.11	0.92	0.520	0.9	65.4
437	1.11	0.89	0.493	1.0	67.5
413	2.13	1.49	0.479	1.2	66.5
440	2.13	0.76	0.388	1.4	67.8
416	3.14	2.01	0.491	1.2	64.4
419	4.15	2.57	0.467	1.6	67.0
422	4.15	2.23	0.476	1.3	63.5
448	4.15	1.33	0.434	1.5	78.9
456	4.15	1.47	0.449	1.3	69.3
425	5.17	3.30	0.445	2.0	66.0
431	5.17	2.86	0.470	1.6	67.3
434	5.17	2.40	0.441	1.6	65.0

Ultimate analyses of original coal are C 63.3%, H 5.2%, O 16.5%, N 1.1%, S 0.1% and Ash 13.8%

Fig. 1 Correlation between hydrogen content of residual char and hydrogen partial pressure on hydrogasification of Taiheiyō coal

Fig. 2 Correlation between hydrogen content in residual char and coal conversion

温度と反応率に支配されることが知られているが²⁾、水素加圧下のガス化では水素分圧にも影響されると考えられる。この一連の実験では、反応温度を一定としているので、後二者について検討する。ところで、規模が小さいとはいえ、連続装置では、反応率が一定となるような実験を繰り返し行って水素圧力の影響を調べることは困難であった。チャーの水素含有率の変化を検討する立場からすれば、Table 1 の実験条件は妥当なものとはいえないかも知れない。しかし、反応管出口水素分圧とチャーの水素含有率をプロットすると、Fig. 1 のようにかなりのばらつきが見られるものの、水素分圧の増大とともにチャーの水素含有率が增大する傾向が認められる。水素含有率と反応率の関係は、Fig. 2 のように反応率の増大とともに水素含有率が減少する傾向を示す。大まかなながらも、これらの傾向が存在することは、水素分圧と反応率の両因子がチャーの水素含有率に関与することを示すものであり、Fig. 1, 2 に見られるばらつきは、この推定をむしろ支持

するものに他ならないと考えられる。

さて、水添ガス化の反応解析あるいは反応シミュレーションなどを行う際には、チャーの水素含有率を定量的に推定する必要がしばしば生じる。反応シミュレーションなどでは、連立方程式または連立微分方程式を解く作業が含まれているから、チャーの水素含有率を表す数式は可能な限り単純化されたものが望ましい。そこで、以下に簡単な実験式を提出する。

チャーの水素含有率 $Ch(\%, \text{dry})$ は反応率 $X(-, \text{dry})$ の増大とともに減少するから、 a, b を定数として $Ch = aX + b$ ($a < 0$) で表す。また、 Ch は水素分圧 Ph (MPa) とともに増大するから、 u, v を定数として、 $b = uPh + v$ で表す。これから、チャーの水素含有率を反応率と水素分圧の一次結合で表現でき、最小二乗法により定数を求めると、

$$Ch = -3.84X + 0.322 Ph + 2.56$$

を得た。近似の程度を見るために、水素含有率の計算値と測定値をプロットし、Fig. 3 に示した。水素の元素分析値は有効数字二桁であるから、推算式は良い近似を与える。このことはまた、先に述べた推定、すなわちチャーの水素含有率が反応率と水素分圧に支配されることを確認したことになる。しかしながら、以上のことは、水素分圧はともかく、反応率に関しては Table 1 のように 39~56% の狭い範囲でのみいえることである。推算式の適用範囲の拡大と単なる実験式からの脱皮を今後の課題と考えている。

Fig. 3 Comparison of hydrogen content in residual char between observed and calculated one

文 献

- 1) 海保 守, 戸田雄三, 加藤 勉, 加藤仁久, 小林光雄, 牧野三則, 木村英雄, 第 9 回公害資源研究所研究発表会予稿集, 45 (1980)

- 2) Howard, J. B., Chemistry of Coal Utilization 2nd Supple. Vol (Wiley-Interscience), P. 713 (1981)

Hydrogen Content of Residual Char on Hydrogasification of Coal

Mitsunori MAKINO, Mamoru KAIHO, Mitsuo KOBAYASHI,
Yasumasa YAMASHITA, Hideo KIMURA and Tsutomu KATO*

(National Research Institute for Pollution and Resources)
(* Yoshida Seisakusho)

SYNOPSIS:—A series of fixed-bed continuous hydrogasification was conducted at 1023 K and 0.1-5 MPa using Taiheiyo coal as feed-stock.

It was found that hydrogen content of residual char was affected at least by two factors i. e. conversion of coal and hydrogen partial pressure in the gasifier. In the range of experimental conditions, hydrogen content of residual char increases linearly with hydrogen partial pressure, whereas it decreases linearly with coal conversion.

Key Words

Hydrogasification of coal, Residual char, Hydrogen content