*
気流層石炭ガス化システムの要素技術

Key Technologies of Entrained-bed Coal Gasification System

**
小山 俊 太 郎
KOYAMA Syuntaro

Abstract Due to the wide variety of utilization of entrained-bed coal gasification for chemicals production, hydrogen production and fuel for industry, technology has been developed worldwide. Gasification plants consist of several key technologies such as coal feeding, gasification, dust removal etc. The understanding of solid-gas flow in these fields is required in order to optimize the device configuration. This article introduces the recent R & D activities concerning two phase flow; coal feed rate and void fraction in a transportation tube, particle residence time in a swirl-flow type gasifier, high temperature dust removal technologies.

Key words : Coal, Gasification, Entrained-bed gasifier, Pneumatic conveying, Swirl-flow, Dust removal

1. はじめに

石炭は埋蔵量が多いこと、特定の地域によらず広く分布して産出することから、世界各国で様々な形態で利用されている。微粉炭燃焼はその代表的な技術であるが、石炭の利用拡大を目的とした技術の開発も盛んであり、その内の一つにガス化技術がある。これは、石炭を酸素または空気の部分燃焼し、一酸化炭素、水素、メタン等に富むガスを得、化学合成用原料や産業用および電力用燃料にしようとするものである。

工業的な石炭ガス化技術の開発は1926年西独のWinkler法にまでさかのぼり、それ以来数多くの方式が提案されてきたが、石油の台頭で一時下火となった。1973年の石油危機以来再び活発化し、最近では高効率、環境適合、大規模利用等を目指した新しいガス化法により、アンモニア製造、メタノール製造、水素製造、合成天然ガス製造、石炭ガス化複合発電等の技術が開発されつつある。海外では実証プラントが稼動中であるが¹⁾、我が国ではこれからパイロットプラントの試験に入ろうとしている²⁾。

本稿では、石炭ガス化法の概要と最近主流である気流層法(Entrained-bed Gasification)の開発状況を述べる。微粉炭の供給、ガス化炉内での粒子の挙動、飛散微粒子の処理等において、粉体とガスの混相流という観点から興味ある研究開発の対象が多い。これらに関する技術を、

* 1990.3.13 受付

** (株)日立製作所 日立研究所

〒319-12 茨城県日立市久慈町4026 TEL (0294)52-5111

実用上の問題点を踏まえて展望する。

2. 石炭ガス化法

2. 1 石炭ガスの性状

石炭ガス化反応の基本特性を燃焼反応と関連させてFig.1に示す。燃焼の約半分の酸化剤量で反応させるのがガス化である。主成分以外に油状物（タール）、チャー（未燃焼物、以下ダストと称す）が若干生成する。またアンモニア（ NH_3 ）や硫化水素（ H_2S ）もppmオーダーで生成する。このようにガス化により微量の不純物が副生するのでガスの精製が不可欠である。

ガス化条件範囲内で、温度に対する生成ガス収量の特性をFig.2に示した。温度と共にメタン、油状物が減り、 CO 、 H_2 が増大する。

Fig.1 Difference between coal gasification and combustion.

Fig.2 Effect of temperature on product yield.

2. 2 石炭ガス化炉形式

石炭ガス化炉にはいくつかの形式がある。一般に石炭粒子とガスの接触状態で区分される。Fig.3に代表的なガス化炉を模式的に示す。またFig.4は各種ガス化炉のおおよその操作範囲を示している⁹⁾。Fig.2とFig.4からガス化炉を選択するある程度の基準がわかる。例えばメタンを多く得ようとするれば、1,273K以下の温度が適当であるから固定層か流動層がよい。CO、 H_2 を多く得ようとするれば、1,273K以上がよく気流層が適している。また、油状物を得ようとする873K以下がよく、固定層が適する。実際にはこれ以外に、ガス化炉の制御性、ガスの精製のしやすさ、ガス化プラント規模等を総合的に考慮し形式が選ばれる。

本稿で述べようとする気流層法では微粉炭を1,673～2,073Kの温度で反応させるので、

- ・ 大部分 CO 、 H_2 に転換でき不純物が少ない。
- ・ 適用できる炭種の幅が広がる。
- ・ 反応は秒オーダーで完結し、大容量化に適す。
- ・ 灰は溶解スラグで回収でき、処理しやすい。

等の特長があり、次に述べるシステムに適用されている。

Fig.3 Type of gasifier

Fig.4 Operating condition of gasifier.

2. 3 気流層ガス化炉を適用したシステムと開発課題

気流層法を応用した代表的なシステムをFig.5に示す⁴⁾。石炭ガス化複合発電システムでは2 MPa付近でガス化する。精製ガスをガスタービン、蒸気タービン複合発電プラントに導入し電力を発生させる。この方法により微粉炭火力の発電効率38%を上回る、41~43%の効率が期待されている⁵⁾。

合成ガス製造プラントの圧力は後流の化学反応プロセスやガスの利用条件に合わせて決められ、通常2~7 MPaである。精製ガスからアンモニアやメタノールを合成する。

Fig.5 Entrained-bed gasification system.

Table.1 R & D subjects on entrained-bed coal gasification system.

要素技術	課 題	主 要 研 究 開 発 項 目
石炭供給	●乾式供給法	○ 安定気流搬送条件 ○ 複数のバーナへの均等分配法
	●スラリ供給法	○ スラリ高濃度化
ガ ス 化	●高温反応挙動	○ 灰熔融温度付近での反応速度解析 ○ 反応特性と炭種性状の影響及びモデリング
	●炉形状適正化	○ ガス・粒子の流れ挙動及びモデリング ○ 耐高温用炉構造及び石炭バーナ構造
	●スラグ排出	○ 熔融及び安定流下条件 ○ 添加物による灰熔融特性制御法
熱 回 収	●高効率化	○ 熱回収ボイラの温度圧力適正化
	●スラグ付着防止	○ ガス温度適正化／除去装置構造
ガス精製	●乾式脱硫法	○ 長寿命脱硫剤 ○ 脱硫～再生システム
	●高効率脱塵法	○ 脱塵～再生システム及び信頼性向上法
ガス変性		○ (既 存 技 術)
材 料	●高温材料	○ 金属材料の耐腐食性向上 ○ 耐スラグ腐食性セラミクス及び耐火物
	●ガス化炉温度	○ 熱電対信頼性向上／非接触法
計測/監視	●スラグ流下	○ 画像認識法
	●安定運転法	} ○ 実運転データ蓄積 ○ 動特性シミュレータ開発
制 御	●負荷変動法	

これらのシステムに共通する研究開発課題をTable 1にまとめた。石炭ガス化プラントは多くの要素技術が集積したものである。従ってプラント全体のシステムを最適化する研究も重要となっている。

以下、上記課題のうち固気二相流の挙動が関与する要素技術を中心に、最近の研究開発状況について述べる。

3. 微粉炭気流搬送法

Fig. 6にロックホッパシステムと呼ばれる微粉炭供給法の概略を示す。供給ホッパは常にガス化炉に近い圧力に保たれており、ここからフィーダで定量された微粉炭が配管を通してガス化炉へ送られる。石炭がなくなったら加圧ホッパの石炭を供給ホッパに移す。空になった加圧ホッパの圧力を常圧に戻し、常圧ホッパの石炭を入れ、再び加圧しておく。この操作を繰り返して石炭を連続的に供給する。このシステム自体は従来から用いられているが、微粉炭特有の問題として気流搬送の安定化があげられる。搬送用のガスには N_2 、空気、 CO_2 等が用いられるが、ガス化炉にはできるだけ余分なガスは入れたくないのでガス量を少なくした濃厚搬送が望ましい。しかし、圧力が高くなっても必要な管内ガス流速はあまり変らない。その結果、一般的に配管径は小さくなり、粒子による閉塞の問題が生じたり、圧力損失が大きくなり搬送動力が大きくなる。どの程度の管でどの位の石炭が搬送できるのであろうか。

Albright⁶⁾らは常圧で内径11mmの配管により200～500kg/hを搬送した。またSprouse⁷⁾は、7MPaにおいて、内径13.4mmの配管で1,200～2,400kg/hを搬送できることを示している。

サンシャイン計画の中でもFig. 6のような装置で搬送実験が行われた⁸⁾。Fig. 7はその結果の一例である。配管径は14.9mmである。搬送ガス量が少ない領域ではガス量に比例した量の石炭が搬送される（圧力搬送領域）。あるガス量以上になるとガス量に関係なくフィーダの回転数で一義的に定まる量の石炭が搬送される。この実験から、例えば3 MPaのガス化炉では、

Fig. 6 Coal lock-hopper system.

Fig. 7 Pneumatic conveying characteristics of pulverized coal.

1,000kg/h搬送するのに、内径10～13mmの管でよいと推算された。

管の中の様子をもう少し具体的に記述するために粒子濃度について触れてみたい。濃厚の度合を示すパラメータとして管内空隙率 ϵ がある。配管全体の平均的な ϵ を次式⁷⁾で推算しFig. 7に併記したが、圧力搬送領域では $\epsilon = 65 \sim 78\%$ となる。

$$\epsilon = \frac{1}{1 + \frac{Fc \cdot \rho g}{Fg \cdot \rho c}} \quad (1)$$

Fc 、 Fg : 石炭、ガス流量(kg/h)

ρc 、 ρg : 石炭、ガス比重量 (kg/m³)

微粉炭を自然に充填した状態では ϵ は50%前後である。またボイラにおける搬送では $\epsilon = 98 \sim 99\%$ である。いま、身動きがとれない満員電車の中を自然充填時の状態とすると、運転手と乗客1～2名しか乗っていないのがボイラである。圧力搬送領域は満員の状態から30～50%の人が降りた程度のコミぐあいと考えればよい。それでも定員オーバーであろう。こうなると人と人が触れあうことになり、そこに摩擦を生じる。

配管設計において圧力損失の予測法も重要な課題の一つである。固～気二相流であるが、連続流体におけるFanningの式が導入され、管と微粉炭の摩擦抵抗係数 λ を求めることが研究対象となった⁹⁾。 λ はフルード数で整理される場合が多いが、配管径自身や粒子径の影響も大きい。スリ積めからガラ空きまでを一般化した圧力損失の推算法があるとよい。

Fig.8 Gasification characteristics in a tubular reactor.

4. 気流層ガス化炉

4. 1 ガス化特性

高温におけるガス化反応の一例として、微粉炭バーナからの距離に対する単位石炭量当りガス収量の変化をFig.8に示した¹⁰⁾。これより反応初期には式(2)、(3)の燃焼反応が起こり、続いてここで生成するCO₂ (及びH₂O) と残りの石炭が式(4)、(5)のガス化反応を起こしていることがわかる。石炭ガス化反応には多くの素反応があり複雑と言われるが、高温下では比較的単純に考えてよい。

式(2)、(3)の反応速度は大きく、ほとんど完全に進行する。式(4)、(5)の反応をいかにうまく進めるかがガス化効率を決定する。実験室規模のガス化炉では、石炭中炭素のガスへの転換率は90～95%前後である^{11),12)}。これを100%に近づけるために反応条件の最適化が必要であるが、同時にガス化炉構造の選定が重要である。

4. 2 旋回流型ガス化炉内の流れ

代表的な気流層ガス化炉の構造をガス化火炎の流れる方向により分類しFig.9に示す。(a)栓流型はガス化火炎を一方向に形成させる方式で、1,000t/dのTexaco炉が実証されている¹³⁾。またガス化炉のモデル化も進んでいる¹⁴⁾。(b)対向流型は複数個のガス化火炎どうしを水平方向に衝突させる方式で、Koppers炉¹⁵⁾に始まり、最近では2,400t/dのDow炉¹⁶⁾が稼動している。(c)旋回流型はガス化火炎を炉内で旋回させる方式で、昭和30年代に我国で開発された¹⁷⁾。この炉では、遠心力により石炭粒子は長い時間ガス化炉内に留まり、ガス化反応が十分に進行すると期待できる。

旋回流型ガス化炉におけるガス、粒子の挙動は十分に調べられていない。森原ら¹⁸⁾はアクリル製のコールドモデル炉を用いて粒子滞留時間と炉構造の関係について検討した。Fig.10で示

Fig.9 Type of entrained-bed gasifier.

Fig.10 Relation between particle residence time and centrifugal force.

すように遠心効果 Z で粒子滞留時間が整理できるとした。同じガス化炉容積なら、旋回流型は栓流型の3倍程度の粒子滞留時間が得られる。

またスケールアップ手法を確立するため、大型コールドモデルによる研究がなされている。Fig.11に粒子軌跡の写真、Fig.12にこのときのガス速度ベクトルを示した³⁾。炉の中心側は上昇流が存在する強制渦、壁側は下降流が存在する自由渦の領域である。上段バーナから噴出し

Fig.11 Cold-flow model of entrained-bed gasifier.

Fig.12 Gas velocity vector in a swirl-flow type gasifier.

た粒子はまず遠心力により壁側に移動し、その後ガスの下降流に乗り炉内を下降する。遠心効果が大きいと下降距離が長くなり滞留時間が増大するようである。この大型コールドモデル実験の結果を反映してパイロットプラント(20~50t/d)が設計された。

先に述べたように、気流層ガス化炉では灰は熔融スラグとなるが、これがガスと一緒に飛散すると後流機器に付着し、閉塞を起こす。旋回流型ガス化炉では遠心力の作用により飛散スラグ量は少なく大部分炉壁に付着するが、その捕捉の機構は解明されていない。

鈴木ら¹⁹⁾、中部ら²⁰⁾はボイラや石炭焚MHD発電用の燃焼器を対象として旋回流型反応器の研究を行っている。コールドモデル炉の上部から投入した粒子を濡れ壁で捕捉する実験により、バーナ配置法やガス出口径に適正值を見出した。同時に渦流れの解析も進めており、旋回流炉のスケールアップ確立に貴重な研究となっている。

5. ダスト捕集技術

石炭の研究にはダスト捕集という課題が必ず伴い、まさに古くて新しい問題である。石炭ガスは水洗浄によりほぼ完全に除塵されるが、プラント熱効率を高めるため高温で高効率な除塵技術の開発が進んでいる。

気流層ガス化炉から出るダストの粒径分布の一例を、原料の微粉炭と比較してFig.13に示す。ガス化によって粒径が細くなることやススが形成するなどして、原料より粒径が小さくなる。その真比重は0.1~0.3と微粉炭の1.2~1.4に比べ非常に小さい。平均的な化学組成は炭素分が20~40%、残りが灰分である。

Fig.13 Particle size distribution of entrained dust.

一方、ダスト濃度の許容値は厳しく、例えば石炭ガス化発電で要求される濃度はガスタービン保護の観点から $10\text{mg}/\text{m}^3\text{N}$ 以下でかつ $10\mu\text{m}$ 以上の粒子が0%である²¹⁾。これは環境規制値より厳しい。著者らの実験によればガス化炉からの排出濃度は $20\sim60\text{g}/\text{m}^3\text{N}$ であるから、99.9%以上の脱塵効率が必要である。このような目標を達成するための最近開発中の方法をTable 2に示した。

サイクロンは“textbook technology”で改良の余地が少ないように思えるが、高効率化のため壁付近の乱流の影響等を研究しているようである²⁰⁾。他方式に比べて構造が単純であることから、高効率化ができれば極めて有用である。

フィルタ法は高効率化には最も有効であり、条件により99.99%以上の脱塵効率が可能である。高温化のための構造や材料、目づまり防止の検討がなされている。セラミックスには β -

Table.2 Dust removal device comparison.

Device	Cyclone	Ceramic Filter	Granular Bed	Agglomeration	HTEP*
Scheme → Dusty gas ⇒ Cleaned gas
Temperature range	1070~1300 K	720~1150 K	720~1100 K	720~1030 K	720~1030 K
Outlet dust load	100mg/m ³ N <	1mg/m ³ N >	5mg/m ³ N >	—	50mg/m ³ N >
Pressure drop range	1~2 kPa	4~30 kPa	4~8 kPa	0.1 kPa >	0.1~0.3 kPa
Feature	Simple Low cost	High efficiency	Plugging resistant	Pretreatment	Low press. drop
Status	Advanced ²⁶⁾	Ceramic tube ²²⁾ Candle type ²¹⁾ Cross flow ²³⁾	KHI type ²³⁾ Screenless ²¹⁾	Acoustic cyclone ²¹⁾ Electrostatic granular ²⁵⁾	NYU ²¹⁾ IGC ²⁴⁾

* HTEP : High Temperature Electrostatic Precipitator

コーライト、SiC、アルミナ等が使用されている。フィルタに捕捉されたダストは付着方向と逆の方向から流されるガスにより払い落とされる。

グラニューラーベッド法では移動する粒子層にダストを付着させる。粒子には1~3mmのシリカやアルミナのボールが用いられる。ダストの付着した粒子は移動層と別の場所で振動や高速ガスとの同伴により再生される。

凝集法は以上述べた方法の前処理として有効である。超音波凝集法では、微粒子がガスと同じ動き（相対速度≒0）をすることを利用し、気体の振動により微粒子同志を衝突させる。これにより10μm以下のダストの割合を65%から20%程度に減らすことができた²¹⁾。

以上の高温脱塵技術は石炭ガス化や加圧燃焼技術成立の鍵と言っても過言ではなく、発展が多いに期待されている。

6. おわりに

気流層ガス化システムにおける要素技術開発の一端を展望した。その他にTable 1に示したものがあがるが、紙面の都合で割愛させていただいた。高温脱硫技術²⁶⁾²⁷⁾、材料²⁸⁾については文献を記しておく。

このシステムはまさに巨大であり、その完成には機械工学、化学工学を始め多くの工学を駆使する必要がある。しかし、石炭は物性や流動、化学反応挙動が多様なので答は一つとは限らない。ここが難しいところで、いくつもの方式が生れるゆえんである。石炭プラントに接した人は、そこに工学の塊とほんのわずかの“芸術”を見るだろう。これは設計者が間違っただけではなく、迷った末に決めた最良の答えなのである。本稿が芸術家の生れる一助となれば幸いである。

〔謝辞〕本稿の微粉炭搬送研究、ガス化炉大型化研究は新エネルギー・産業技術総合開発機構の委託研究として行なわれた。記して謝意を表する。

参考文献

- (1) Proceedings of 8th Annual EPRI Conference on Coal Gasification, EPRI GS-6485, Aug. (1989)
- (2) 橋本正義：サンシャインジャーナル、Vol. 7、Nos.1 & 2、1-3(1986)
- (3) 小山俊太郎：日本学術振興会、石炭利用技術第148委員会、第20回研究会資料、14-21(1988)
- (4) 小山俊太郎、他：日立評論、Vol. 66、No.2、27-32(1984)
- (5) 北見恒雄：新エネルギー総合開発機構第6回事業報告会分科会予稿集、63-71(1986)
- (6) Albright, C.W. et al: Ind. Eng. Chem. Eng. Proc. Dev. , Vol. 43、No.8、1837-1840(1951)
- (7) Sprouse, K. M. and Schuman, M. D. : AIChE Journal、Vol. 29、No.6、1000-1007(1983)
- (8) 野北舜介：新エネルギー総合開発機構第5回事業報告会分科会予稿集、115-132(1985)
- (9) 例えば、Lippert, A. : Chemie-Ing-Techn., Vol. 38、350-351(1966)
- (10) 小山俊太郎、松尾光広、宮寺 博：燃協誌、Vol. 65、No. 8、660-669(1986)
- (11) 小山俊太郎 他：燃協誌、Vol. 65、No. 9、746-755(1986)
- (12) 芦沢正美、他：化学工学会第22回秋季大会研究発表講演要旨集、684(1989)
- (13) Gluckman, M.J. and Spencer, D.F.: Proceedings of 7th Annual EPRI Contractor's Conference on Coal Gasification、6-3~6-29(1988)
- (14) Wen, C.Y. and Chung, T.Z.: Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., Vol. 18、No.4、684-695(1979)
- (15) 香取良一、酒井弥太郎：工業化学雑誌、Vol. 61、No.8、911-917(1958)
- (16) Webb, R.M. and Sundstrom, D.G.: Proceedings of 7th Annual EPRI Contractor's Conference on Coal Gasification、7-3~7-10(1988)
- (17) 池田米一：燃協誌、Vol. 60、No.645、12-20(1981)
- (18) 森原 淳、小山俊太郎、野北舜介：化学工学論文集、Vol. 12、No.3、427-432(1986)
- (19) 鈴木孝治、他：化学工学協会第53年会研究発表講演要旨集、506(1988)
- (20) 中武靖仁、成瀬一郎、大竹一友：化学工学会第22回秋季大会研究発表講演要旨集、288(1989)
- (21) Bossart, S.J.: Joint ASME/IEEE Power Generation Conference, Dallas, Texas, Oct. (1989)
- (22) 東勝美、織田紀之：石炭技術研究所第11回石炭利用技術研究発表会講演集、86-98(1989)
- (23) 亀井健治、他：化学工学、Vol. 50、No.8、570-572(1986)
- (24) 石炭ガス化複合発電技術研究組合パンフレット
- (25) Ishimori, M. and Senchu, S.: Proceedings of 7th Annual EPRI Contractor's Conference on Coal Gasification、15-3~15-14(1988)
- (26) Pitrolo, A.A. and Bechtel, T.F.: Proceedings of 7th Annual EPRI Contractor's Conference on Coal Gasification、5-3~5-58(1988)
- (27) 内田 洋：燃協誌、Vol. 62、No.678、792-801(1983)
- (28) 森本忠興：日本鉄鋼協会第133回西山記念講座、147-178(1990)