解説

豪州褐炭液化(BCL)プロセス 高温高压水添反応による輸送用液体燃料の合成

Brown Coal Liquefaction (BCL) Process:
Synthesis of Liquid Fuel for Transportation by Hydrogenation of Brown Coal

大隈 修
Okuma, Osamu

Victorian brown coal in Australia has huge reserve(202 GT)and is only used for power generation near its mines. This is because it contains more than 60 wt% moisture and ignites spontaneously after drying. Nippon Brown Coal Liquefaction Co. (NBCL) has developed the BCL(Brown Coal Liquefaction) process which converts the brown coal into high value liquid fuel for transportation such as gasoline under high temperature and high pressure conditions. This process is a two-stage direct liquefaction process and consists of four unit sections: dewatering, primary hydrogenation, solvent de-ashing, and secondary hydrogenation. This paper reviews the direct coal liquefaction technology, and the detail of the BCL process which has been confirmed by operation of the 50 T(dry coal)/D pilot plant constructed in Australia.

[brown coal, coal liquefaction, BCL process, coal oil, dewatering, hydrogenation, de-ashing]

1. はじめに

21世紀を目前に控えて、人類は人口の急激な増加と経済活動の拡大に伴う食糧、エネルギー供給確保と環境保全の両立という、資源と環境の有限性に起因する、かつてない地球規模の困難に直面している。OECD/IEAは、各種の政策的対応と技術の進歩を見込んだうえで、一次エネルギー需要が1990年の需要に対して、2000年で約20%、2010年では約50%増加すると予測し、これらの一次エネルギーの大半は依然として石油、石炭、天然ガス等の化石燃料資源に頼らざるを得ないとしている[1]。しかし、これらの化石資源は枯渇性の資源であり、石油、天然ガスは近い将来の供給逼迫すら懸念される状態にある。一方、今後の世界的なモータリゼーションの進展とともに、石油に依存する輸送用内燃機関燃料の需要は、さらに急激に増大するものと考えられる。

したがって、今後中長期的なエネルギー需要の増大に対応するには、埋蔵量の豊富な石炭の役割が一

層重要とならざるをえない。しかし、石炭は化石燃料のなかでも単位発熱量あたりの SO_x 、 NO_x および CO_2 の発生量が最も多く、かつ、多量の灰分を含んでいるため、環境に与える負荷が大きいエネルギーである。また、固体であるため取扱が難しいという欠点もある。したがって、石炭の利用を拡大しエネルギー供給の安定をはかるためには、石炭を高効率、かつ、クリーンに利用し、可能な限り環境への負荷を低減させるとともに、取扱上の難点を克服する技術の開発が必要であり、そのひとつとして、石炭をクリーンな高付加価値の液体燃料に転換することが考えられる。

一般に石炭として工業的に利用されているのは無煙炭と瀝青炭であり、低品位炭の利用は少なく、特に褐炭は現在ほとんど用途がない。しかし、低品位炭である亜瀝青炭、褐炭の埋蔵量は瀝青炭、無煙炭の埋蔵量に匹敵[2]、その活用をはかることはエネルギー供給源の拡大に非常に有効である。したがって、従来利用されることの少なかった褐炭からガソ

〒103 東京都中央区八重洲 1-5 不二ビル 日本褐炭液化(株)企画本部
Nippon Brown Coal Liquefaction Co., Ltd., Yaesu 1-5, Chuo-ku, Tokyo 103
(〒651-22 神戸市西区高塚台 1-5-5 (株)神戸製鋼所 化学・高分子研究所)
(Polymer & Chemical Technology Laboratory, Kobe Steel, Ltd., Takatsukadai 1-5-5, Nishi-ku, Kobe 651-22)

リン等、内燃機関の燃料が経済的に合成できれば、今後の社会の発展と維持に大きく寄与することになろう。また、石炭／褐炭が、中東に偏在する石油と異なり、今後エネルギー需要が大幅に増加すると予測される国々にも広く賦存することも重要な意味を持つ[2]。

本稿は、以上述べた観点から、ほとんど未利用の豪州褐炭を高温高压下で水添分解し、クリーンなガソリン等の液体燃料を合成すべく開発された褐炭液化技術(BCLプロセス)を紹介するものである。

2. 石炭の種類と性状

石炭は植物を根源とする化石資源であり、その根源植物種および生成年代と環境によって性状は大きく異なっている。そのため、一般的には既に述べたように無煙炭、瀝青炭、亜瀝青炭、褐炭に分類されている。これは、石炭の有機成分中の炭素含有率の高い(炭化度)順にならべた分類であるが、これだけでは石炭の性状を充分表すことはできず、目的に応じてさらに各種の分類/分析法が用いられている[2,3]。上記分類法によって、石炭の代表的な性状の変化を表したのが、Table 1であり、同一の分類に属する石炭であっても性状に大きな幅があることが理解できるであろう。

石炭の構造については、従来から多くの研究がなされており[3]、最も代表的なものとしては、Fig. 1に示すような構造モデル(瀝青炭)がある[4]。しかし、前述のように石炭の性状の変化には大きな幅があり、Fig. 2に示すようにその構造も炭化度によって大きく変化し、低炭化度のものほど芳香族環が小さくなり、側鎖が長く含酸素官能基の含有率が増加することが知られている[3,5]。

Table 1. Variation of coal properties with rank

	Peat	Brown coal	Sub-bit. coal	Bituminous coal	Anthracite
Moist. (wt%)	75-80	50-70	25-30	5-10	2-5
V.M. ¹⁾	60-50	45-55	40-45	20-40	5-7
Ultimate Analysis (wt% on daf coal basis)					
C	50-60	60-75	75-80	80-90	90-95
H	5-6	5-6	5-6	4-5	2-3
O	35-40	20-30	15-20	10-15	2-3
Heating Value (MJ/kg)					
Dry basis	25	25-30	28-32	30-35	35-38
Net wet basis	5	5-15	20-27	24-33	35-38

1) Volatile Matter: wt% on dry basis.

3. 石炭液化技術開発の歴史

固体である石炭から液体燃料を合成する技術開発の歴史は古く[6]、広義の石炭液化技術としては、石炭を溶剤とともにスラリー化して高温高压下で水添する直接液化法と、一旦石炭をガス化し合成ガスから液体炭化水素を合成する間接液化法がある[3,7]。一般には直接液化法を石炭液化技術と称しており、

Fig. 1. Structure of bituminous coal [4].

Fig. 2. Representative partial structure of different rank coals [5].

これは1913年ドイツのベルギウスが、石炭を水素雰囲気下で溶剤とともに高温高压処理することによって、液体炭化水素を合成したことに端を発する。その後、第2次世界大戦前のドイツで、当時最高の高压技術を有したIG社のビエルを中心とした技術陣によって工業化され、最盛時には年間約400万トンのガソリン等が製造された[6-8]。当時、日本でも石炭液化技術は最先端の重要技術の一つとして盛んに研究されたが[5]、戦後中東に大規模な油田が発見されるとともに、急速に世の関心を失っていった。しかし、アメリカおよびドイツにおいては地道に研究が進められ、多くの技術的改良が行われるとともに、新たなプロセスが開発されてきた。日本においても、1970年代の二度の石油危機を契機として石油代替エネルギーの開発の重要性が認識され、通産省サンシャイン計画の一環として石炭液化技術の開発が推進され、今日に至っている[2]。同計画では、瀝青炭液化と褐炭液化についてそれぞれNEDOLプロセスと豪州褐炭液化(BCL)プロセスが開発されている。

現在までに開発された、または開発中のプロセスの主要なものは、Table 2 に示す通りである[2]。これらのプロセスに共通するのは、直接液化の源流であるIGプロセスが鉄触媒を用い、圧力 30～70 MPa、温度460～480℃と過酷な処理条件であったのに対して、いずれも高活性触媒(鉄触媒の高分散化やNi-Mo系触媒)の開発と反応条件の緩和、特に圧力の低減による経済性の向上を目指していることで

ある。その結果、新しいプロセスでは多段(通常二段)液化法が主流となりつつある。

4. 直接液化反応機構と炭種の影響

石炭直接液化反応は、微粉碎した石炭を溶剤でスラリー化し、高温高压水素気流中で連続的に熱分解水添し、軽質油分にまで低分子化する。Table 2 に示すように、ほとんどのプロセスにおいて、反応条件はほぼ430～450℃、15～30 MPaの範囲にあり、反応のスキームは各種提案されているものの[9]、共通する反応は次に示すものである。

Coal → Preasphaltenes → Asphaltenes → Oil → Gas

実際には各種の並行反応が起こり、詳細にみると炭種と反応条件によって適用できるスキームが異なる。しかし、いずれのスキームをとるにしても、液化反応を制御する基本は、石炭を速やかに熱分解し生成した石炭フラグメントにいかにも水素を効率良く供給し安定化させるかという点にあり、それによって液化油収率が決まる。石炭の熱分解は、Fig. 1 の構造に示した芳香族環をつなぐメチレンやエーテル結合部から起こり、アルキル側鎖や水酸基等の置換基の分解によって、炭化水素ガスや水が生成する。したがって、Fig. 2に示したように単位構造の芳香族環が大きな高炭化度炭ほど、低分子化することが難しい。このため、一般に直接液化の対象となるのは、高揮発性瀝青炭以下の石炭と考えられる。一方、褐炭のような低炭化度炭は単位芳香族環が小さ

Table 2. Coal liquefaction processes in the world(1994, Coal Note [2])

	BCL ¹⁾	NEDOL	EDS	H-COAL	CC-ITSL ¹⁾	SRC II	New IG
Nation	Japan	Japan	USA	USA	USA	USA	Germany
Pilot Plant(t/d)	50 ²⁾	150 ³⁾	250	200-600	6	30	200
Coal ⁴⁾	Brown coal	BT/SB	BT/SB	BT/SB/LG	BT/SB	BT/SB	BT
Liquefaction Conditions							
Temp(°C)	430-450/360-400 ⁵⁾	430-460	438-450 ⁶⁾	455	450/400 ⁵⁾	460	475
Press(MPa)	15/15-20 ⁵⁾	15-17	14-18 ⁶⁾	20-21	17/17 ⁵⁾	14	31
Catalyst	Fe-S/Ca-Ni-Mo ⁵⁾	Fe-S/(Ni-Mo) ⁷⁾	(Ni-Mo) ⁷⁾	Co(Ni)-Mo	Co(Ni)-Mo	(Fe-S) ⁸⁾	Fe-S
Oil Yield ⁹⁾	50	50	38-46 ⁶⁾	46	50	41	51
H ₂ Consumption ⁹⁾	6.0	5.7	4.5-5.0 ⁶⁾	5.0	6.8	4.6	5.5

1)two-stage liquefaction process, 2)dry coal basis, 3)under construction, 4)BT:bituminous coal, SB:sub-bituminous coal, LG:lignite(brown coal), 5)for secondary hydrogenation, 6)variation of operation for changing product yields, 7)for hydrogenation of recycle solvent, 8)FeS₂(Fe_{1-x}S) works as catalyst by bottom recycling, 9)wt% on daf coal.

く熱分解速度が早く、水素の供給速度が充分であれば効率的に液化できる。しかし、水素の供給速度が遅い場合、容易に再重合が起こり液化効率が低下する。また、カルボキシル基の分解による CO_2 の生成が顕著なことも、低炭化度炭の特徴である。

以上述べたように、液化反応を効率良く行うためには、温度、圧力(水素分圧)、時間といった反応条件に加えて、溶剤性状と触媒の選定が重要となる。溶剤は、熱分解によって生成した石炭フラグメントを溶解、分散させるとともに水素を供与し再重合を抑え安定化する[10]。触媒には一般に鉄／硫黄系が使用され(活性種は Fe_{1-x}S)、石炭の水添分解を促進するとともに、溶剤を水添再生する[11]。その結果、溶剤は水素の放出、吸収を繰返す(水素シャトルリング)。この触媒作用は、高温高圧はどまた触媒添加量が多いほど大きく、液化反応を促進し炭化水素ガスの生成量を抑制する。しかし、前述の反応スキームからわかるように、温度が高く反応時間が長くなるに従って炭化水素ガスの発生量が増加し、そのため

Fig. 3. Open cut mine of Victorian brown coal (Morwell).

に高価な水素が消費されることは避けられない[12]。これらの関係を、豪州褐炭について0.1 T(daf-c)/Dの小型連続装置[12]で求めた例をTable 3に示す。この炭化水素ガス生成の増大のために、液化油

Table 3. Effects of conditions on brown coal liquefaction

Liquefaction Conditions				Product Yields		
Press. (MPa)	Temp. (°C)	Cat. ¹⁾ (wt%)	S/C ²⁾ (wt/wt)	(wt% on daf-c)		
				ΔH_2 ³⁾	$\text{C}_1\text{-C}_4$ ⁴⁾	Dist. ⁵⁾
15	430	3.0	2.5	3.5	5.6	19.7
↑	450	↑	↑	4.2	11.1	23.6
20	430	5.0	3.0	3.8	4.5	20.5
↑	450	↑	↑	4.7	8.0	30.3
↑	470	↑	↑	6.8	14.2	34.1
25	430	5.0	3.0	4.5	3.8	28.0
↑	450	↑	↑	5.6	7.3	33.8
↑	470	↑	↑	7.7	14.8	45.3

Coal: Morwell brown coal, Nominal reaction time: 1.0

1) wt% on daf-c as Fe (S/Fe atomic ratio 1.2).

2) solvent(b.p.180-420°C)/daf-c ratio of feed slurry.

3) hydrogen gas consumption, 4) hydrocarbon gas yield.

5) distillate(b.p.<420°C) yield.

Fig. 4. Block flow diagram of BCL process.

Table 4. Properties of Victorian brown coal

	Moist. wt% ¹⁾	Ash V.M. wt%(db) ²⁾	Organics(wt% daf basis)					Functional Gr. (meq/g)				Inorganics (wt% dry basis)					
			C	H	N	S	O ³⁾	TA ⁴⁾	FCA ⁵⁾	CLT ⁶⁾	HH ⁷⁾	Ca	Mg	Na	Si	Al	Fe
Yallourn	66.5	1.7	50.3	67.6	4.9	0.6	0.3	26.6	6.86	2.54	0.28	4.07	0.06	0.16	0.07	0.07	0.20
Morwell	61.3	3.0	48.3	69.8	5.0	0.6	0.4	24.2	6.21	1.66	0.75	3.77	0.78	0.32	0.10	0.09	0.22

1)as received, 2)dry basis, 3)difference, 4)total acids, 5)free carboxylic acids, 6)carboxylates, 7)phenolic hydroxyl.

収率には極大値をとる温度、時間が存在し、高压(高水素分圧)ほど高温、長時間で極大値をとる[13]。これが、475℃と高温で液化を行うドイツの新IG法が31 MPaと最も高い圧力を採用している理由であろう。しかし、この液化油収率が極大となる条件は、石炭種、溶剤および触媒の質と量によっても変化する[14]。また、高温高压になるほど設備およびランニングコストは増大する。Table 2 に示した各種の液化プロセスで最適とする反応条件が異なるのは、各々がこれらの多くの反応因子と対象とする石炭の性状(反応性)および製品品質、設備コスト等経済性を考慮したためであり、その結果大半が反応条件緩和と多段化の方向を指向したものと考えられる。

5. 豪州ビクトリア褐炭の特徴 [15]

オーストラリア、ビクトリア州メルボルンの南東部に位置するラトロープバレーには、埋蔵量2020億トンという膨大な褐炭資源が存在する。このビクトリア褐炭は、Fig. 3 に示すような大規模な露天掘が可能であるが、Table 4 に示すように平均60 wt%を超える多量の水分を含み、乾燥すると自然発火するため、現地で発電用に利用されている以外ほとんど用途がない。この褐炭は乾燥炭基準でも、酸素含有量が多く発熱量が小さいが、灰分が著しく少ないという直接液化に適した特徴を持っている。多量に存在する酸素は、カルボキシル基やフェノール基として存在している。

Fig. 5. Flow diagram of dewatering section .

6. 豪州褐炭液化(BCL)プロセス

BCL (Brown Coal Liquefaction) プロセスは、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託を受けて、日本褐炭液化株式会社 (NBCL) が豪州褐炭を対象として開発した二段液化法であり [2]、KOMINIC(神戸製鋼所、三菱化学、日商岩井)が開発したコークスバインダーピッチを製造するC-SRC法を基礎にしている。本プロセスは、Fig. 4 に示すように、脱水、一次水添、脱灰、二次水添の四つの基本工程で構成されている。各工程の基本的条件とその特徴を以下に述べる。

6. 1 脱水工程

高温高压(標準条件 15 MPa、450℃)水素流通下で処理する液化(一次水添)工程に、60 wt%を超える水分を含む褐炭をそのまま持ち込むと、水蒸気分圧が著しく高くなり、その分水素分圧が低下する。そこで、褐炭に含まれる水分の約95%以上を除去するため液化の前処理工程として、Fig. 5 に示す油中脱水法(スラリー脱水法)を開発した。本工程の特徴は、プロセス内で循環使用する液化溶剤(後述する重質物を含む)中で褐炭を粉碎、水分を蒸発分離することである。これによって、伝熱効率が高く、かつ、発生した水蒸気を圧縮昇温し熱源として再利用することが

Fig. 6. Flow diagram of primary hydrogenation section .

1: Slurry pump, 2: Preheater, 3: Reactors, 4: Sludge withdrawing line, 5: Gas-liquid separators, 6: Atmospheric distillator, 7: Vacuum distillator, 8: Gas-oil separator, 9: Gas purifier.

可能となり、通常の気流乾燥法等に比べてエネルギー消費量を大幅に削減することができた。

標準の脱水温度条件は、発生水蒸気の圧縮効率から140～150℃(3～5 ata)とし、スラリーの標準組成は、溶剤の重量比を無水無灰炭(以下、daf-c と略す)に対して2.5(生褐炭に対してほぼ1:1)としている。また、脱水(乾燥)過程で褐炭が空気に触れることがなく、液化溶剤との馴染もよいため、気中で乾燥した褐炭に比べて液化反応性の高い脱水褐炭が得られることも本脱水法の大きな特徴である[16]。

6. 2 一次水添工程

本工程は、BCLプロセスの中心となる褐炭を高温高压で水添分解する工程である。脱水工程で得られたスラリーに安価な鉄／硫黄系使い捨て触媒を添加し、Fig. 6 に示すように、予熱器の直前で高压水素と混合し水添反応が始まる400℃前後まで予熱した後、複数の気泡塔(懸濁床)反応器を用いてさらに高温で褐炭を液化する。反応温度の制御は、反応器に吹き込む冷ガス(主成分は水素)によって行う。標準反応条件は、15 MPa、450℃、見かけ滞留時間(反応時間、供給スラリー体積と反応器体積の比)1 h である。触媒添加量は鉄として3 wt% on daf-c、S/Fe(原子比)1.2 である。既に述べたように高压、かつ、添加触媒量が多いほど液化油収率が高くなり炭化水素ガスの生成は抑制されるものの、標準条件値を超えるとこれらの効果は飽和傾向を示す。また、適切な水素分圧と触媒が存在すれば高温ほど液化反応が促進されるが、温度が460℃を超えると高価な水素の消費量と炭化水素ガスの生成量が顕著に増加する(Table 3 参照)[12-14]。

一方、反応器に吹き込むガス量も液化油収率に大

Fig. 7. Flow diagram of de-ashing section.

Fig. 8. Flow diagram of secondary hydrogenation section 1: Dissolver, 2: Preheater, 3: Reactors, 4: Gas-liquid separator, 5: Distillator.

きく影響し、ガス流量が増加すると著しく液化反応が促進され、液化油収率が大幅に増加する。例えば、前述の小型連続装置では、標準反応条件で反応系内のガスを循環し(予熱器前の水素供給量は10 wt% on daf-c と一定)、反応器内のガス流量を約3倍にすることによって、液化油(b.p.<420℃)収率が23から40 wt% on daf-c に増加した。これは、ガス流量の増加に伴って反応器内の溶剤が気相に移行し、液相の実質滞留時間(反応時間)が長くなるためである[17]。

反応生成物は、高压下の気液分離を経て、生成液(触媒等を含む重質液)の一部が溶剤として循環され、残部は蒸留によって、ナフサ(軽質油)、溶剤留分(中質油)、ボトム(重質物、Coal Liquid Bottom, CLB)に分画される。軽質油と余剰の中質油は製品として系外に抜き出され、重質物(CLB、通常b.p.>420℃)は脱灰工程に送られる。溶剤留分は、一部が二次水添工程の溶剤として、残部は一次水添工程の溶剤として循環使用される。

本工程の大きな特徴は、溶剤の一部として一次水添重質生成物(触媒成分を含む)と重質油を含む水素供与性の高い二次水添生成液を用いることであり(ボトム循環)、これによって標準条件で液化油(b.p.<420℃)収率が15～20 wt% on daf-c 増加させることができる。これは、溶剤中の重質物がそれ自身油分に転化し、その中に含まれる触媒成分(Fe_{1-x}S)とともに褐炭の転化反応を促進するためである[18]。また、二次水添生成液の供与性水素は、褐炭の予熱工程から始まる熱分解初期の反応を促進するとともに、反応圧(水素分圧)の低減に有効であり、触媒は生成したブレアスファルテン、アスファルテンの油分への転化を著しく促進している[14]。

以上述べたように、液化反応では温度、圧力(水素分圧)、反応時間、ガス流量、さらには触媒、溶剤性状等多くの因子が相互に複雑に影響しあっている。

この複雑な相関関係を明らかにした結果、15 MPa、450 °Cという比較的温和な温度圧力条件で、50 wt%近い高液化油収率(Table 5参照)が得られ、最適条件として決定されたのが前述の標準条件である。

6. 3 脱灰工程

一次水添工程で得られた重質物(CLB)は、常温で固体のピッチ状のものであり、15~20 wt%の灰分(大半は触媒成分)を含む。そのため、さらにこの重質物を高活性金属触媒を用いて二次水添するためには、触媒毒となる灰分と重質なプレアスファルテン(THF不溶分に相当)を除去する(以下、脱灰と略す)必要がある。そのため、BCLプロセスでは、Fig. 7に示す一次水添で生成するナフサを平均沸点 160 °C程度に調製して溶剤として用いる溶剤脱灰法を開発した[19]。標準操作条件は、250~270 °Cであり、脱灰溶剤の気化を抑制するために、3~5 MPa 程度に加圧する。脱灰溶剤は、重質物との沸点の差を利用して蒸留等によって回収し再使用(循環)する。

本工程の特徴は、CLBを高温加圧下で脱灰溶剤に溶解し、触媒被毒物質を不溶物として凝集沈降分離することによって、これらをほぼ完全に除去した二次水添原料(De-ashed oil, DAO、残留灰分量 1000 ppm以下)を調製できることである。また、プラントの大型化と安定した連続操作を可能にしたことも大きな特徴である。

6. 4 二次水添工程

脱灰工程で処理された重質物(DAO)を、Fig.8 に示すように固定床反応器で高活性触媒を用い、さらに水添軽質化する。標準反応条件は 380 °C、15 MPa である。得られた生成液は、蒸留によってナフサ(軽質油)を製品として分離した後、中/重質油(通常b.p.> 250 °C, hydro-deashed oil, HDAO)を溶剤として一次水添工程に循環する。

本工程の特徴は、新規に耐プレアスファルテン性の高い Ca で修飾した Ni-Mo 系触媒を開発し、固定床反応器による安定した長時間運転(8,000 h)を可能にしたことである[19]。また、水素供与性の高い溶剤を一次水添に供給し、その反応条件の緩和と高液化油収率の同時達成を可能としたことも大きな特徴である。

7. 液化油の収率と品質

BCLプロセスの標準条件における無水無灰炭(daf-c)あたりのビクトリア褐炭からの生成物の収率と液

化油の品質を、それぞれ Table 5 と Table 6に示す。全液化油収率は約 51 wt% であり、液化油(留出油)の大半は一次水添工程で得られる。一次水添液化油は、褐炭の性質を反映して酸素含有量が多く、特に軽質油にはフェノール類が大量に含まれている。一方、二次水添液化油は比較的ヘテロ化合物が少なく高品質である。全体的に硫黄分が少なく窒素分が比較的多く、石油系に比べて芳香族性が高いため、ガソリン基材として優れている。しかし、いずれもこのままではガソリンおよび灯、軽油として市場に出せるものではなく、さらにアップグレーディング処理が必要である。その方法としては、液化油を既存の石油精製ルートで混合精製する方法と、液化油単独で水素化精製する方法が検討されている[2]。

Table 5. Product yield of BCL process

Product	Yield (wt% on daf coal)
Inorganic gas (CO, CO ₂)	12.7
H ₂ O	17.0
Hydrocarbon gas (C ₁ -C ₄)	10.9
Distillate Oil (C ₅ -b.p. 220°C)	16.7
(b.p. 220-340 °C)	26.4
(b.p. 340-420 °C)	8.0
H ₂ consumption	-5.6
Total oil yields	51.1
Primary hydrogenation (15 MPa, 450 °C)	47.1
Secondary hydrogenation(15 MPa, 380°C)	4.0

Table 6. Properties of distillates from BCL process

	PH ¹⁾ Oil			SH ²⁾ Oil
	Light	Middle	Heavy	Light
b.p. range (°C)	C ₅ -260	220-300	300-420	C ₅ -260
Density (g/cm ³ , 15 °C)	0.81	0.95	1.00	0.86
Viscosity (cP, 30 °C)	0.87	3.98	26.4	0.9
Ultimate Analysis (wt%)				
C	82.1	84.4	88.1	87.2
H	12.3	10.1	9.2	11.9
N	0.2	0.4	0.6	0.4
S	0.12	0.04	0.02	0.01
O (diff.)	5.3	5.1	2.1	0.5

1) primary hydrogenation, 2) secondary hydrogenation.

8. 50 トン/日 パイロットプラント

NBCLは、BCLプロセスを実証するため、ビクトリア州モーウェル炭田の近傍に、乾燥炭基準で50 トン/日(生褐炭 150 トン/日)のパイロットプラントを建設し、豪州現地法人BCLV(Brown Coal Liquefaction of

Vic-toria, Pty., Ltd.)を設立、運転研究を行った。Fig. 9に本プラントの全景を示す。建設は二期にわたり、一期工事として1981年より主要工程である一次水添工程が建設され、二期工事(脱水、脱灰、二次水添)と並行して1985年から運転が開始された。全工程を結合した総合運転は、1987年から1990年にわたって行われた。ただし、脱水プラントのみは2トン/日の規模であり、運転およびスケールアップに関するデータの採取のみを行い、本運転にはチューブラードライヤーによる乾燥炭を用いた。このパイロットプラントの全運転時間は約15,000 h (総合運転時間 4,400 h)におよび、生褐炭処理量は約 70,000 トンであった。この運転によって、技術を実証するとともに、運転等に関する膨大なノウハウが蓄積された[19]。

9. おわりに

豪州褐炭液化技術(BCLプロセス)は、30,000 T/Dの商業プラントを想定して6,000 T/Dの実証プラントの概念設計を行っており、技術的には既に確立されている[19]。しかしながら、現行の石油価格では経済的に成立せず、その実用化は2010年頃と予想されている。しかし、今後のエネルギー需要の増大と石油供給の逼迫、さらに環境問題の深刻化を考えると、埋蔵量の豊富な石炭、特に用途の限られた褐炭を、取扱が容易で高品質(クリーン)のガソリン等の液体燃料に転換する液化技術は、近い将来石炭を高度に利用する技術として重要な位置を占めるであろう。また、エネルギー資源の拡大のみならず、石炭利用上の大きな問題である灰処理、酸性雨の原因となるSO_xや煤塵等、環境負荷の観点からの貢献も見逃すことはできない。

しかしながら、石油価格の低位安定という経済的理由で実用化に時間がかかる現状では、将来にむけて現行のプロセスをさらに改善(熱効率/経済性)するために地道に研究開発を継続することが重要である。そのため、NBCLでは新たに兵庫県高砂市に研究所を設置し、21世紀初頭の実用化に向けて研究を継続している。

謝 辞

褐炭液化技術(BCLプロセス)は、NEDOおよびNBCLをはじめとして、(株)神戸製鋼所、三菱化学(株)、出光興産(株)、コスモ石油(株)および日商岩井

(株)の多くの方々の努力によって開発された。ここに、これら関係者の方々および本稿の発表を許可して戴いたNEDOに感謝の意を表します。

Fig. 9. Pilot plant (50 T-daf coal/D) in Australia.

参考文献

- [1] OECD/IEA編：「2010年、世界のエネルギー展望」、資源エネルギー庁長官官房国際資源課監訳、通商産業調査会、1993年
- [2] 資源エネルギー庁石炭部監修：「1994年版、コール・ノート」、資源産業新聞、第4章「海外石炭資源開発」、第5章「石炭利用技術の開発」、第9章「石炭の基礎知識」
- [3] 木村英雄、藤井修治：「石炭化学と工業」、1977年、第1章「石炭」、第3章「石炭の構造」、第9章「石炭の液化工業」
- [4] J. H. Shinn: Fuel, **63**, 1187-1196 (1984), "From coal to single-stage and two-stage products: a reactive model of coal structure"
- [5] I. Wender: Sci. Eng. **14** (1), 97-129 (1976), "Catalytic synthesis of chemicals from coal. Catalysis Reviews"
- [6] 大内公耳：「石炭エネルギー読本」、大内公耳、真田雄三編、1982年、第2章「石炭はどのように利用され研究されてきたか」
- [7] 森憲二：ibid. 第5章「石炭液化の技術」
- [8] 中子敬夫：浮選、**29**, 108-117(1982)
- [9](財)エネルギー総合研究所石炭研究会編著：「石炭技術総覧」、1993年、第3章第4節「石炭液化技術とは」
- [10] 神谷佳男：燃料協会誌、**63**, 224-238 (1984), "石炭液化反応における水素供与性溶媒の促進効果"

- [11] 神谷佳男：燃料協会誌、**61**、968-979 (1982)、
"石炭液化反応における鉄系触媒の促進効果"
- [12] O. Okuma, K. Saito, A. Kawashima, K. Okazaki,
Y. Nakako: Fuel Process. Technol. **14**, 23-37(1986),
"Characterization of heavy organic products derived
from brown coal in BCL process (1)"
- [13] 大隈修、井上聡則、安室元晴、松村哲夫：第31
回石炭科学会議発表論文集、東京、p.83-86
(1994)、"褐炭液化反応における水素移行と生成物の
収率とその性状"
- [14] 大隈修、井上聡則、安室元晴、松村哲夫：第3回
日本エネルギー学会大会発表論文集、東京、p.172-
175(1994)、"褐炭二段液化(BCL)プロセスの一次水
添液化工程における水素移動-反応操作因子の水素
移行量に及ぼす影響"
- [15] The Science of Victorian Brown Coal, ed. R.
A.Durie, Butterworth Heinemann, 1991
- [16] O. Okuma, Y. Sugino, S. Yanai, H. Yoshimura, K.
Saito, Y. Nakako, Proceedings of 1985 ICCS, Oct.
28-31, Sydney, p.27-30, "Dewatering and
liquefaction of Victorian brown coal in BCL process"
- [17] O. Okuma, S. Yanai, K. Mae, K. Saito, Y. Nakako,
Proceedings of 1987 ICCS, Oct.26-30, Maastricht,
p.307-310, "Effects of liquefaction conditions on
vaporization of solvents and liquefaction of Victorian
brown coal in reactors"
- [18] O. Okuma, M. Yasumuro, Y. Kageyama, T.
Matsumura, Proceedings of 10th Ann. Int. Pittsburgh
Coal Conf., Sep.20-24, p.235-240 (1993),"Bottom
recycling effects in Victorian brown coal liquefaction
process"
- [19] 平成4年度ニューサンシャイン計画「石炭技術
開発」、AIST/NEDO 合同成果発表・討論会(第1分
冊)、1993年

[1994年12月26日受理]