

石炭の利用—ガス化、液化技術の研究動向

展 望

真 田 雄 三*・平 野 成 彬*2

Research and Development of Coal Gasification and Liquefaction

Yuzo SANADA and Shigeyoshi HIRANO

1. は じ め に

産業革命以来エネルギーの大宗として近代文明社会の発展に大きく貢献したのは石炭である。単にエネルギー源のみならず鉄鉱石の還元剤としての高炉コークス製造にも石炭はなくてはならない資源であった。しかし1960年代以降安価、豊富な石油が供給されるようになって原料炭を除いて石炭はしだいに斜陽化の道をたどってきた。1978年の石油危機を契機に石炭資源の重要性が再び見直されたことは周知のとおりである。1980年代の後半に入って大気中炭酸ガスの濃度が上昇し気温が上昇するという、いわゆる温室効果がクローズアップしたため石炭の消費が制約をうけるようになってきた。本稿ではこのような環境におかれた石炭は今後どのように利用していくべきかという視点でとくに石炭のガス化、液化の研究動向について述べる。

2. 石炭の使用と炭酸ガスによる地球温暖化

石炭は化学エネルギーの一つであり、これを使用して熱や電気エネルギーに変換すると必然的に炭酸ガスを発生する。表1に化石燃料の二酸化炭素（炭酸ガス）発生原単位を示した¹⁾。表からも明らかなように石炭（瀝青炭）が単位エネルギー当たりもっとも多くの二酸化炭素を発生する。したがって石炭よりも石油、できれば天然ガスを使用した方が望ましいことになる。1988年度における我が国の発電用にむけられた一次エネルギー別

表 1 化石燃料の二酸化炭素発生原単位

燃 料	発熱量 (kcal/kg)	炭素含有量 (wt%)	二酸化炭素発生量 (CO ₂ /1 000 kcal)
天 然 ガ ス	13 300	76	210
C 重 油	10 500	86	300
瀝 青 炭	8 500	83	360

でみると、表2にみられるとおり石油、石炭ならびに天然ガスなど炭素質の化石燃料が58%も占めている。2010年の予想電力需要は18 108万kW²⁾とみられているが、炭酸ガスの発生量を抑制するために石油、石炭の使用を全廃するとすれば100万kW相当の原子力発電設備を70基も新設しなければならないことになる。これは到底不可能であり、また天然ガスに全面的に転換するにしても、需給構造の大幅な転換、資源賦存量からみて現実的でない。

以上述べてきた単純な根拠からも石炭をいかに有効に利用しなければならないかがわかる[†]。

3. 石炭科学に関する研究動向

先にも述べたとおり1978年の石油危機を契機として石炭が見直され、液化やガス化などの種々の転換プロセスの開発が計画され、今日に至っていることは周知のとおりである。これに呼応して石炭の基礎研究も活発になってきたのを受けてIEA国際石炭科学会議の第1回が1981年に西独デュッセルドルフで開催された。引き続き隔年に第2回が米国のピッツバーグ、第3回オーストラリアのシドニー、第4回オランダのマーストリヒトで開催されてきた。そして第5回が昨年東京京王プラザホ

表 2 発電用資源の内訳（1988年度）

(単位: 万 kW)

総発電量	原子力	石炭・石油	天然ガス	水力その他
10 671 (100)	2 988 (28)	3 842 (36)	2 347 (22)	1 494 (14)

[†] 最近地球温室効果に関して数多く論ぜられている。炭酸ガスの大気中の濃度増加についても今後急激に増加するとの予想もある。しかし今地球上にある化石燃料資源中の全炭素量として見積もられる約2兆tを全部消費して炭酸ガスになったとして大気中の濃度は800ppmで飽和すると見積もられている³⁾。これが極限值であり、気温上昇に与える効果は3°Cとの予想である。

平成2年6月7日受付 (Received June 7, 1990) (依頼展望)

* 北海道大学工学部付属金属化学研究施設教授 理博 (Metals Research Institute, The Faculty of Engineering, Hokkaido University, Kita 13-jo Nishi 8-chome Kita-ku Sapporo 060)

*2 新エネルギー・産業技術総合開発機構石炭技術開発室調査役 (Coal Conversion Department, New Energy and Industrial Technology Department Organization (NEDO))

Key words: coal; energy; fuel; gasification; liquefaction.

表 3 第 5 回 IEA 国際石炭科学会議における大会参加者数

オーストラリア	24	イイ	ン	ドル	1	イ	ネ	シ	ア	5
ーストル	1	イ	ス	ラ	1	マ	ド	シ	ア	4
バカ	5	イ	ス	ラ	7	マ	ド	シ	ア	3
中	8	イ	ス	ラ	4	マ	ド	シ	ア	2
西	14	イ	ス	ラ	1	マ	ド	シ	ア	6
フ	23	イ	ス	ラ	12	マ	ド	シ	ア	1
エ	3	イ	ス	ラ	6	マ	ド	シ	ア	287
ニュー	2	イ	ス	ラ	10	マ	ド	シ	ア	
ジー	1	イ	ス	ラ	53	マ	ド	シ	ア	
ランド	1	イ	ス	ラ	17	マ	ド	シ	ア	
		イ	ス	ラ	6	マ	ド	シ	ア	510

表 4 第 5 回 IEA 国際石炭科学会議における国別、研究テーマ別の発表論文数

	A	B	C	D	E	F	G	計
オーストラリア	9	2	6	4	4	1	2	28
ーストル	1		1	1	3	3		9
バカ	3	1	3	5	2	2	2	18
中	7	8	23	14	35	9	6	102
西	1		7	1				9
フ	2	1		2			1	6
エ						1	1	2
ニュー	3		3	3	11	1	1	22
ジー	9	9	4	6	11	4	6	49
ランド	1			2				3
		2			1	4		7
	1			1	1			2
			2			1		3
			2					2
			2					2
	2	1		1	2			6
	1		3	1	2		1	8
			1		1			2
計	40	24	57	44	73	26	20	284

A: 石炭の構造および特性 B: 石炭の基礎反応 C: 石炭の燃焼およびガス化の基礎 D: 石炭の熱分解その反応と生成物 E: 石炭液化 F: 選炭、貯蔵、輸送 G: その他のトピックス

テルにて開催され、表 3 に示すように 29 か国から 510 名の参加者があり、284 の論文（その内日本からは 102）が発表された。表 4 はその分野別の内訳である。液化、ガス化技術の開発のもととなる基礎研究や、今日の問題である燃焼に関する研究も活発であることがうかがえる。もちろん石炭そのものを理解することが何にもまして重要であり、A 分科会に多くの研究報告があった。

原子力が社会的、技術的に完熟して多くの人々に問題なく受け入れられるまでには石炭エネルギーはますますその重要性が増してきたといえる。1978 年の石油危機以来再評価されてきた石炭はその資源賦存量と分布の広いこと、コストなどの側面からであったが、前節でも触れたように今後は環境—単に局部的公害としてではなく、全地球規模として—保全に資するための研究、技術開発をする視点がつけ加えられてきたように見られる。

経済の成長をそこなわないで酸性雨、煤塵を防止し、炭酸ガス発生量を可及的に少なくする二律背反的な事柄を解決しながら石炭の利用を進めていかなければならない。すなわち石炭のクリーンエネルギーへの転換または

クリーンに使用するという要求に応じていくことがもっとも重要である。このためには既存の要素技術にいつそう磨きをかけ、かつこれらをシステム化すると同時に、基礎科学の面から例えば革新的な反応原理の探究をするようなこともきわめて重要なことである。基礎研究への期待はますます大きくなっているといえる。

ここではまず第 5 回 IEA 国際石炭科学会議で発表された石炭利用と炭酸ガス放出に関する論文を紹介する⁴⁾。

3.1 HYDROCARB プロセス

石炭を利用すれば最終的には生成した炭酸ガスを環境へ放出するか、さもなければ全量を（ある程度のエネルギーを投入して）回収するか、いずれかである。この方法として STEINBERG はつぎに述べる方策を提案している⁴⁾。まず石炭を水素と反応させメタンを製造し、ついでこのメタンを熱分解して炭素と水素にする。水素は前段の反応試剤として一部まわされるが、過剰水素のみを燃料として用い、副生する炭素（カーボンブラック）は廃鉱に埋めもどす。将来温暖化対策が十分になされた際に使用しようというものである。表 5 にこのコンセプトの基本反応を示した。石炭中の酸素は水またはメタノールになる。許されるならばカーボンブラックと水、メタノールによりスラリー燃料とすることも可能である。

STEINBERG の提案は石炭以外にも石油や天然ガスなどの化石エネルギーの利用に当たって同様の考え方が適用される。メタン（天然ガス）の場合 CO₂ を全く発生させないプロセスとした場合、メタンの有するエネルギーの 56% しか利用できないことになる。石炭の場合は一例として 24% のエネルギーを利用できると試算されている。しかしこの値は CO₂ を環境へ放出しない代償としてはあまりにも大きい。この提案はまだ机上のものにすぎない。しかし石炭をこれまで石油に代替するエネルギー安全保障上の観点からみてきたことに加えて、地球の環境保全という視点を導入させることで意義がある。エネルギー利用効率の向上を図る研究、技術開発の重要性はますます高まってきたものといえよう。表 6 は石炭、石油、天然ガスなどの化石燃料について燃焼（発生 CO₂ をすべて放出）した場合に比較した HYDROCARB プロセスの有効取得できるエネルギーの割合を示した。石炭の水素添加ガス化、液化プロセスの技術開発指針を樹立するさいに究極値として比較されるべき一

表 5 HYDROCARB プロセスの基本反応

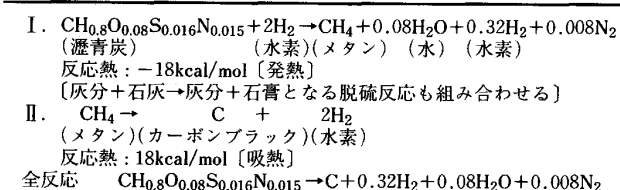
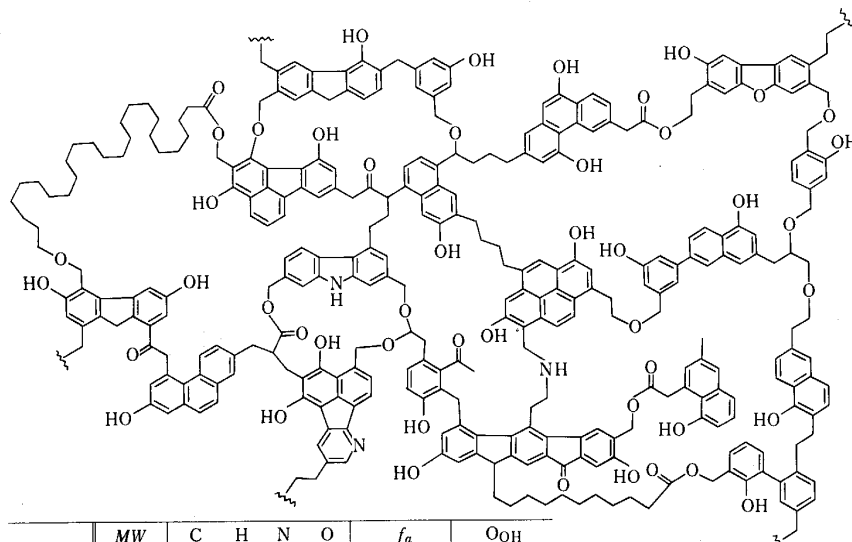


表 6 炭酸ガス発生を伴わない化石燃料の利用効率

燃 料	燃 焼 熱 (高発熱量 kcal/mol C)	分解反応 (kcal/mol C)	熱 効 率 (%)	反 応
天 然 ガ ス	-212	18	56	$\text{CH}_4 \rightarrow \text{C} + 2\text{H}_2$
石 油	-165	6	37	$\text{CH}_2 \rightarrow \text{C} + \text{H}_2$
	-142	-3	25	$\text{CH} \rightarrow \text{C} + 1/2\text{H}_2$
石 炭	-116	0	24	$\text{CH}_{0.8}\text{O}_{0.08} \rightarrow 0.96\text{C} + 0.04\text{CO}_2 + 0.4\text{H}_2$



	MW	C	H	N	O	f_a	OoH
原石炭	(5 000)	321	298	5	48	0.52~0.71	22.5~23.1
本モデル	4 976	322	296	3	48	0.67	24

MW: 分子量 [—] f_a : 芳香族炭素率 (石炭中の芳香族炭素の存在割合) [—]
 OoH: OH 基として存在する酸素の全酸素に対する含有割合 [%]

図 1 太平洋炭の化学構造モデル

つの数字を提供しているとみられよう。原子力発電や水の電解による水素製造の熱効率に比較して大きな遜色はないとの見方もとれる。

3・2 石炭の構造

石炭をガス化、液化、燃焼するには石炭そのものの本質を十分に把握し、理解することである。ガス化、燃焼反応は一般に温度も高く、反応は速いが、液化反応はたかだか 450~470°C どまりであって反応速度は小さい。現在液化プロセスにおける反応時間はおおよそ 1 h 程度である。したがってとくに液化を効率的に進めるには石炭がどのようにして溶媒に溶け、そして低分子化していくかについての知見が要求される。本節ではこのような観点から石炭の構造について最近の興味ある研究を 2~3 紹介する。

3・2・1 石炭の化学構造 (1次構造)

石炭有機質は芳香族骨格を中心にナフテン環、脂肪族側鎖、フェノール性 OH 基、カルボキシル基など含酸素官能基が結合した構造単位がお互いに連なった高分子状化合物であると理解されている。図 1 は太平洋炭の化学構造モデルである⁵⁾。このモデルは太平洋炭の構造をできるだけ保ったまま、きわめて温和な条件下で繰り返し繰り返し抽出して大部分を溶媒に溶かし、それらを構

成している化合物を丹念に分析し、得られた結果をもとに組み立てられたものである。従来石炭は芳香族縮合環の塊みたいなものという概念に対して、長い脂肪族側鎖が描かれているのが特徴である。このモデルによれば石炭液化工程でプロセス内を循環する溶剤中にしだいにパラフィン類が濃縮されることをよく説明することができる。

石炭の化学構造モデルとしては米国イリノイ炭を念頭に置いた SHINN のモデル⁶⁾が著名である。最近スーパーコンピュータを用いて蛋白質などの生理活性を理解し、新しい化合物を設計するために開発された分子設計プログラム (Computer Aided Molecular Design, CAMD) が急速に進歩してきた。この CAMD を用いて前記 SHINN の石炭化学構造モデルの外に GIVEN, WISER, SOLOMON らのモデルについて立体構造が計算された⁷⁾。すなわち通常我々が紙上にて平面的に理解しているモデルは真のものからほど遠いものであって、立体的にしてみても初めて応用価値がでてくるものといえる。

CAMD では平面的にえがかれた構造がどのような 3 次元配置をとった際に歪みエネルギーが最小になるかを求める。このようにして莫大な計算を繰り返して歪みエネルギー最小となる原子の位置を求めた。その結果を表

表 7 石炭構造モデルとその歪みエネルギー, 立体構造より求めた比重 (計算値)

モ デ ル 名	Given	Wiser	Solomon	Shinn
原子の総数	193	390	326	1 040
芳香族炭素分率	0.66	0.71	0.74	0.71
芳香族水素分率	0.21	0.29	0.36	0.34
重量分率				
C	0.82	0.76	0.81	0.79
H	0.053	0.057	0.055	0.056
O	0.107	0.112	0.096	0.113
N	0.019	0.014	0.011	0.014
S	—	0.053	0.026	0.020
エネルギー/原子当たり (kcal/atom)	2.01	1.06	1.58	1.55
組成式	$C_{100}H_{77}O_{9.8}N_{2.0}$	$C_{100}H_{89}O_{11}N_{1.6}S_{2.6}$	$C_{100}H_{82}O_{8.9}N_{1.2}S_{1.2}$	$C_{100}H_{85}O_{11}N_{1.5}S_{1.0}$
比重	1.46	1.33	1.35	2.08

構造パラメーターは無水無灰基準

7に示す⁷⁾。表からも明らかなように歪みエネルギーはまだ正の値 (通常の低分子炭化水素化合物では負の値となる) である。この立体配置をもとに計算で求めた比重も併せて表7に示してある。石炭の実測比重に比較して少し大きめに求められているが、将来より良い値になるようモデルそのもの、計算法の進展が期待される。

3.2.2 石炭分子の凝集構造, 非共有結合構造

すべての物質は当然のことながら多くの分子が集合しており, その凝集構造は物性を支配するのでこれを理解することはきわめて重要なことである。にもかかわらず従来あまり研究がなされなかった。石炭を液化することを例にとると, まず石炭粒子は溶剤中に懸濁し, スラリーとなる。石炭粒子は溶剤の作用をうけて膨潤する。この膨潤は液化の第一歩であり, 石炭を構成している分子の凝集力に大きく依存する。凝集力すなわち非共有結合力は水素結合, van der Waals 力または双極子-双極子結合, 極性によって引き起こされる誘起結合, および芳香族環分子の有する π 電子同士の結合 (π - π 結合) とに分けられる。図2は LARSEN (1985) によって提出された石炭の高分子構造をもとにこれらの非共有結合が石炭化度によってどのように変わるかを示したものである⁸⁾。図からわかるように若年炭では水素結合が, 無煙炭領域では π - π 結合がとくに重要である。このようなモデルは主として石炭粒子の溶媒による膨潤現象を観測した結果から組み立てられた。

相田らは石炭化度の異なる種々の石炭の膨潤を測定している⁹⁾。平衡膨潤比 (Q-値) と膨潤速度 (V-値) は必ずしも同じではなく, 測定条件により異なる。THF (Tetrahydrofuran) 中で 20°C のもとで測定した V-値は 80~85% C (% dmmf) の石炭で最大となる。溶媒の溶解パラメーターが 18~30 MPa^{1/2} の範囲で大きな膨潤を示すことは以前から知られているが, ピリジン系溶媒を用いて pK_a (酸解離指数) と Q-値, V-値との関係が明らかにされている。膨潤は水素結合を含む非共有結合が弛緩することであり, 石炭中の局部構造の立体的な規制をまず解放することがその後の高温側の一次結合の

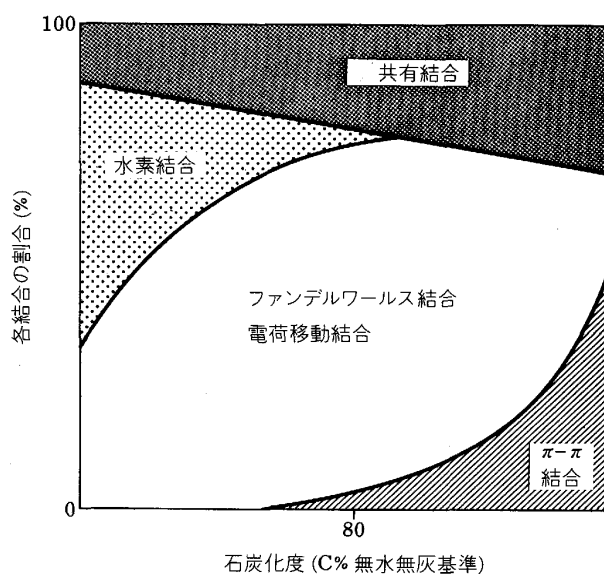


図 2 石炭の 2 次結合力の石炭化による変化 (モデル)

切断, 低分子化を容易にさせることにつながる。このような方面の研究には膨潤測定, 熱測定以外に赤外吸収スペクトルによる極性基の吸収シフト, 分子の振動の第 1 倍音 (OH 基では 3500 cm⁻¹ の第 1 倍音は 7000 cm⁻¹ 付近) の有無から分子間と分子内の結合を分離することが可能である。

3.2.3 共有結合の切断による低分子化-液化の反応設計

石炭液化反応を効率よく, かつ温和な条件で行うことはプロセス全体を組み立てるうえで重要な鍵である。そのためにはまず反応機構を十分に解明することである。石炭構造中のジアリルメタン型架橋 (ϕ -CH₂- ϕ , ϕ は芳香族環を指す) やジアリルエーテル (ϕ CH₂-O) の - で示す結合の切断は一般に困難であると考えられていたが, 水素原子が ipso 位 (芳香族環を架橋している結合部の根元の位置) に付加して進行する場合には容易に反応が進行する。この反応は Solvent Mediated

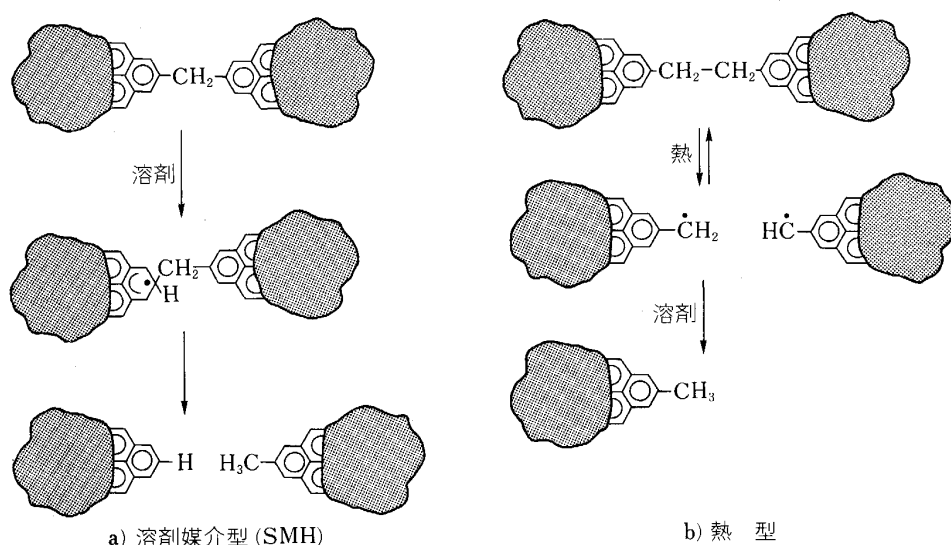


図3 石炭中の架橋結合の水素化分解様式

Hydrogenolysis (SMH) として McMILLAN, MALHOTRA らによって提唱されたものである¹⁰⁾。図3は SMH a) と従来考えられていた熱反応ラジカルモデル b) とを比較して示した¹⁰⁾。高温高压下でも熱分解してラジカルとなりえないような強固な架橋結合が溶媒中からの水素原子が ipso 置換することによって液化が進行する機構は学問的にも興味があるが、水素の有効利用する工業面からも意味深い。すなわち液化溶剤の水素供与能を評価し、循環溶剤の最適化をするうえで有用な指針となる。今後さらに触媒存在下での水素移動過程の定量的理解へと向かうことが待たれる¹¹⁾。

3.3 微生物を用いた石炭の改質, 低分子化

石炭は天然の高分子化合物であり、これを低分子化してガス状または液状燃料をうるのが、いわゆる石炭のガス化, 液化である。低分子化する方法として、細かく分割した石炭分子の破片を水素, 酸素, 水などと反応させることが通常行われている。石炭分子を細分化するには熱エネルギーを投入しなければならない。通常はガス化で 700~1300°C, 液化で 450°C 前後の温度のもとで行われる。触媒を用いることにより反応速度を増大させるとか、そのほかいろいろと工夫がなされていることは周知のとおりである。

反応温度, 圧力を低下させることは、それだけ材料への負担が軽くなり、したがってプラント建設のための投資を下げることになる。このことは現在の技術開発目標の大きな柱の一つであることもまた疑いのないところである。理想的には常温, 常圧で石炭をガス化, 液化することである。微生物の助けを借りて石炭を構成する有機高分子を分解したり, または鉱物質(灰分)とくに硫化鉄を水溶性に変えることによって除去することが最近注目されてきた。

表8 微生物を用いた石炭の処理

A	1	細菌, 真菌による石炭の脱有機いおう
	2	石炭, 石炭誘導体の微生物分解プロセス
	3	石炭の可溶化, 液化反応の微生物化学的研究
	4	微生物処理した石炭可溶化物の化学構造, 分子量, キャラクタリゼーション
	5	微生物を用いた合成ガスからの流体燃料の合成
B	1	石炭中の硫化鉄のバクテリアリーチング
	2	高温バクテリアによる高いいおう炭の処理
	3	微生物を用いた石炭の脱灰
	4	微生物による排煙中の SO ₂ の還元
	5	坑内メタンの微生物分解 (鉱山保安)

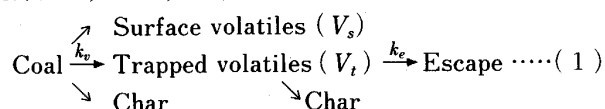
表8は1990年5月にアメリカで開催された微生物を用いる石炭処理に関する会議¹²⁾に発表された論文を分類して示した。カテゴリー A は石炭質自身の分解を目指したものであり、液化の初段に位置づけられないだろうかということ注目されている。微生物による分解反応は一般に遅いことが欠点であるが、例えば *in situ* で応用し、地下で液化した石炭をポンプで汲みあげる程度になるようにすることが究極的目標である。

カテゴリー B はすでに硫化銅鉱石で応用されているバクテリアリーチング法と類似のプロセスとみられ、近いうちに実用化が期待される。

このような細菌, 真菌など微生物を用いて石炭中の鉱物質の水への可溶化, ガス化, 液化が成功できればあたかも石油のように地下の石炭層にむけて設置した井戸から分解物を汲みあげられるようになるので経済的にも十分魅力のあるプロセスとなろう。

3.4 石炭の急速熱分解

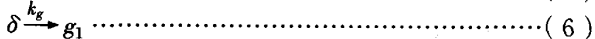
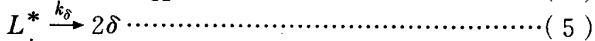
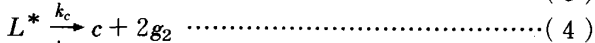
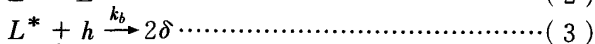
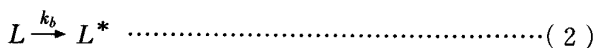
石炭を燃焼, ガス化する場合には加熱速度はきわめて大きい。加熱下ではまず石炭粒子は(1)式に示すように脱揮発し, ガス, 液状生成物と固体のチャーになる¹³⁾。



V_s は加熱に際して熱分解により容易に粒子外部表面または開いた孔隙より揮発する成分である。ここで V_s の揮発抵抗は無視できる。一方 V_i は微細孔や泡中の成分で揮発に伴う抵抗は大きい。したがって(1)式に示される速度式は一次とみなされ、 k_e は圧力に大きく依存する。

チャーの形状が中空状の球体 (Cenosphere) か、それとも多孔体であるかは石炭粒子の粘性や、揮発分の出方の情報となる¹³⁾。高揮発分の瀝青炭を 700°C で急速加熱した際の揮発分の出方、すなわち揮発速度は加熱速度に依存する¹⁴⁾。

加熱速度が 10^3 K/s にもなるとタール、ガスなどの揮発分の量について信頼性のあるデータを取得するのは容易ではない。このような条件のもとで脱揮発ガス、タールの生成量に関していくつかのモデルが最近提出されている。ここでは CPD (Chemical Percolation Devolatilization Model) モデルを紹介する。石炭は芳香族構造単位 (クラスター) が連結、配列をした高分子と考え、加熱によって切断される架橋 L 、反応中間体 L^* 、これを安定化させる水素 h とする。反応中間体の不安定なものは再結合しチャー c 、揮発して出てくるガス g_2 、架橋の切断によって生成する側鎖 δ 、 δ がさらに切断されガス g_1 が生成すると(2)~(6)式に示す過程に整理される。



石炭の架橋構造を Bethe 格子 (図4に示すような木の枝のように架橋がループとはならない格子) に置きかえて Percolation statics の手法を用いタール、揮発分、チャーの生成量を計算するのが本モデルの基本である。このモデルで実測値と計算値を比較した結果を図5に示した。図からわかるようにほぼ満足するシミュレーションがなされたとみてよいであろう。

ここで石炭の化学構造パラメーター (クラスターの大

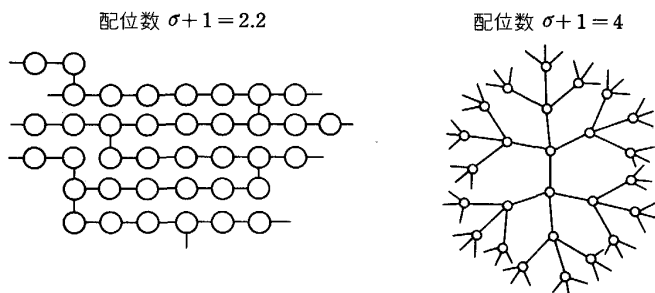
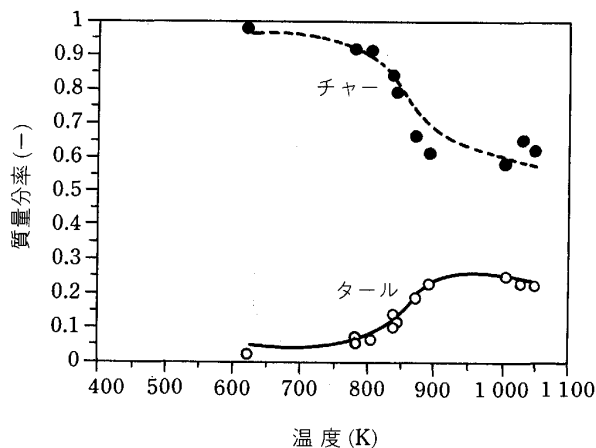


図4 Bethe 格子による石炭高分子の架橋構造モデル



加熱条件 1000°C/s L_0 0.311 c_0 0.138

図5 米国高揮発分瀝青炭 (PSOC 1451D) の熱分解実測値と CPD モデルによる計算値の比較

きさ、芳香族炭素分率、芳香族ならびに脂肪族結合炭素の様式、架橋度)などが上記モデルを解くときに入力データとなる。図5で示したようにクラスターが何本の架橋で連結しているかを示す配位数 σ も重要なパラメーターである。

以上本節で石炭科学に関する研究動向について限られた論文について紹介した。表4に示したそれぞれの分科会における全般的な研究動向は別にレビューされているのでそれらを参照されたい¹⁵⁾。

4. 液化技術の動向

現在世界各国で石炭の液化プロセスに関して技術開発中のもののうち代表的なものを表9に示した¹⁶⁾。米国で開発された SRC II (Solvent Refined Coal の改訂方式)、EDS (Exxon Donor Solvent)、H-COAL (Hydrocarbon Research 社開発の液化プロセス) は第2世代として位置づけられ、これに対して CC-ITSL (Catalytic Cracking-Two Stage Liquefaction) は我が国で開発中の NEDOL (我が国の NEDO (新エネルギー・産業技術総合開発機構) の液化プロセス) と同じく第3世代と位置づけられる。

SASOL (South African Coal, Oil and Gas Corporation Ltd. の液化プロセス) は石炭をいったんガス化し合成ガス ($H_2 + CO$) を得る。この合成ガスから液体燃料とするので間接液化法である。

直接液化プロセスを経済的なものに仕上げるためには種々の要因がからまっているが、基礎科学的な面からみれば

- 原料石炭の選定、脱灰の程度
- 水素消費量、反応温度、圧力
- 触媒の質と量
- 液化油収率 (反応塔容積当たり)、液化油の比重、蒸留性状、ガスおよび液化残渣の収率

表 9 海外各プロセスの特徴と NEDOL プロセスの比較

世 代	プロセス名	代 表 的 適合炭種	代表的反応条件		液化油収率 (C ₄ ～重質収率： l/100 kg・coal)	液化油収率 (wt%)	触 媒	溶剤の 水素化 の有無	特 徴
			温度 (°C)	圧力 (気圧)					
第 1 世代	IG	瀝 青 炭	485	700	50 (3.1)*	50	赤 泥 安 価	無	・超高压装置の使用
第 2 世代	新 IG	瀝青炭中心	485	300	55～60 (3.4～3.8)	50～55	赤 泥 安 活 性	無	・ドイツ産の瀝青炭向きの技術 ・過酷な反応条件 ・れんが内張りの反応器のため運転中の材料試験が不可能、保守点検が煩雑
	EDS	亜瀝青炭中心	450	170	55 (3.6)	48	無	○	・蒸留残渣の循環により、循環系が複雑 ・全液収率、ガソリン・軽油収率が低い
	SRC-II	米国東部 高いおう炭	460	140	55 (3.6)	47	無	無	・米国東部産高いおう石炭向きの技術 ・全液収率ガソリン・軽油収率が低い ・スラリー循環により循環系が複雑
	H-COAL	亜瀝青炭中心	450	200	61 (3.9)	53	Co-Mo 高 価	無	・高価な Co-Mo 触媒を使用 ・触媒の再生、再使用技術が未確立 ・全液収率、ガソリン・軽油収率が低い
第 3 世代	NEDOL	低石炭化度瀝 青炭から亜瀝 青炭まで幅広い炭種に適合	450	170	62～70 (3.9～4.4)	54～58	FeS ₂ (合成硫化鉄) 安 価	◎	・高活性鉄系触媒と水素供与性重質溶剤との併用 ・温和な条件で高い液収率、ガソリン・軽油収率
	CC-ITSL (Willsonville)	亜瀝青炭中心	450	170	60～70 (3.8～4.4)	52～62	Co-Mo Ni-Mo 高 価	無	・高価な Co-Mo, Ni-Mo 触媒を使用 ・触媒の再生、再使用技術が未確立 ・触媒抜出し、運転（反応器）制御が難しい

* () 内は bbl/t・coal

・いおう、窒素などの脱ヘテロ元素率と石油製品との相性、水素の分配率（水、メタンのようなもの）にできるだけいかにするようにする）

などがあげられる。これらは石炭の基礎科学の進歩に負うところが大きい。さらに最近では 2 節で述べたようにプロセス工程中から炭酸ガスの発生をできるだけ抑制する視点が要求されてきた。石炭のみからプロセスを組み立てた場合には 1.4 t CO₂/t・coal 程度の炭酸ガスが発生することになるが、プロセス内の高濃度炭酸ガスを回収したりして低減を図ることも可能である。プロセスに必要な電力、水素を他から求めるいわゆるベストミックスを行った場合には 0.2 t CO₂/t・coal にまで低下できるとの試算もある。電力、水素は非化石燃料（すなわち CO₂ 発生を伴わない）から供給されるとした究極的数字とみてよいだろう。

表 10 に NEDOL プロセスの実用化規模の予想される姿を示した。表からもわかるとおり液化プロセスは大規模なものとなり、初期投資額もきわめて大きい。経済的な試算は種々の前提条件のもとになされているが、21 世紀には石油と十分競合できる価格で供給可能であるといわれている。反応温度、圧力のいっそうの低下、安価で活性の大きい触媒の開発、液化反応の容易な石炭と脱

表 10 NEDOL プロセスの実用化規模予想

プラント規模	30 000 t/d
液化油など製品	15 470 t/d (11.6×10 ³ bbl/d)
液化油収率	58%以上 (4.4 bbl/t 以上)
水素消費量	6.1～7.2wt%
熱効率*	60%以上（推定値）

* 直接液化法ではこのような表示は一般にしない。間接液化法（SASOL 法）では 38～50%とみられる。

灰等の前処理などがコスト低下の鍵となるといわれている。このほか日豪 2 国間協力プロジェクトとして褐炭液化プロセスが 50 t/d の規模で開発中である。平成 2 年 10 月まで総合運転が実施され、石炭性状、触媒、運転条件、装置材料の腐食、摩耗など詳細なデータが取得され、現在データの取りまとめが行われている。

5. ガス化技術の動向

石炭をガス化する技術についてもいろいろなプロセスが開発中である。目的とするガスの発熱量により低カロリー、中カロリー、高カロリーガス化にそれぞれ分類される。高カロリーのハイブリッドガス化はメタンを主成分とするもので我が国のサンシャイン計画でも最初にとりあげられた。NEDO の委託により現在開発中のプロ

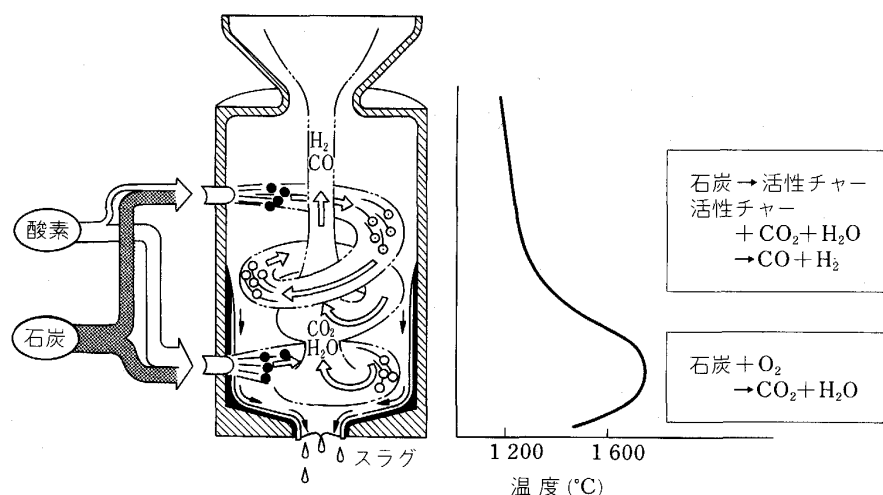


図 6 HYCOL 炉の原理

表 11 石炭ガス化発電 (実用化目標)

規模 (単機容量)	250 MW
送電端効率	43% 以上
燃焼器出口温度 (ガスタービン)	1 300°C 級
炉内圧力	27 kgf/cm ²
ガス発生量	45 t/h
石炭処理量	2 000 t/d

表 12 石炭ガス化反応条件と転換効率

カーボン転換率	98% 以上
冷ガス効率	78% 以上
ガス化圧力	10~30 kgf/cm ²
ガス化温度	1 500~1 800°C
石炭処理量	20~50 t/d

表 13 生成ガス組成

ガ ス	容量百分率
CO	61.3
H ₂	31.0
CO ₂	3.3
H ₂ O	0.3
N ₂ +Ar	3.9
H ₂ S	0.2

原料: 太平洋炭

セスは石炭ガス化複合発電技術 (低カロリーガス化) で、将来石炭を燃料とする発電方式のなかでもっとも重要なものとして位置づけられている。現在 200 t/d の噴流床石炭ガス化複合発電プラントが調整運転中である。ここではガス化炉への微粉炭気流搬送方式、空気酸化加圧 2 室 2 段噴流床炉、高温乾式の高圧精製装置、1 300°C 級、12.5 MW のガスタービン、実証機用ガスタービン燃焼試験機などについて試験されている。表 11 に本プロセスの開発目標を示した。

もう一つの中カロリーガス化は石炭液化用、石油精製用他の多方面に利用が期待される水素を製造することに主眼を置いている。ガス化炉は 1 室 2 段旋回型ハイコル炉 (HYCOL) (NEDO 開発の石炭ガス化プロセス) の

原理を図 6 に示した¹⁸⁾。この炉は酸素吹き 2 段旋回流方式を特徴としている。表 12, 13 にハイコルプロセスの反応条件、転換効率、生成ガス組成を示した。本プロセスは 1991 年から運転研究が行われる予定である。1 000 h 以上の連続運転をして信頼性の確認、炭種の拡大による技術転移を図る。また石炭液化残渣を用いた試験も予定されている。テキサコ法石炭ガス化による水素製造は実用化されているが、いろいろな情勢を想定した場合、技術メニューは複数用意されるべきである。このような観点から我が国では急速水添熱分解による石炭の完全ガス化または有用な化学品を併産するガス化プロセスも調査、試験中である。

6. お わ り に

石炭のガス化、液化はいずれも大型技術であり、また操業条件も過酷である。このようなプロセス開発は材料、補機器類、計測なども含めて関連する裾野は非常に広い。エネルギーという我々が生存していくうえで必須のものが、安定に豊富に供給されるためには今後とも開発努力を怠ってはならない。併せて次世代の革新的プロセスとなる萌芽の基礎研究もいっそう隆盛になっていくことが期待される。

文 献

- 1) 富永博夫: エネルギー・資源, 11 (1990), p. 97
- 2) 電気事業連合会資料 (1990)
- 3) 志鷹義明: 私信 (1990)
- 4) M. STEINBERG: 1989 Intern. Conf. Coal Sci., Proceedings (1989), p. 1059
- 5) 加藤 隆: 北海道大学学位論文 (1987)
- 6) J. H. SHINN: Fuel, 63 (1984), p. 1187
- 7) G. A. CARLSON and B. GRANOFF: Amer. Chem. Soc., Div. Fuel Chem., Preprint, 34 (1989), p. 780
- 8) 相田哲夫: 第 45 回北海道石炭研究会講演要旨集 (1989), p. 11
- 9) T. AIDA, Y. SHIMOURA, N. YAMAWAKI, M. FUJII, M. YOSHIHARA, T. MAESHIMA and T. G. SQUIRES: 1989 Intern. Conf. Coal Sci., Proceedings (1989), p. 221

-
- 10) R. MALHOTRA and D. F. McMILLAN: *Energy and Fuels*, **4** (1990), p. 184
 - 11) 二タ村森: 最近の石炭科学の動向 (新エネルギー・産業技術総合開発機構編) (1990), p. 3
 - 12) First Intern. Symp. on Biological Processing of Coal, Program, Florida, USA (1990 年 5 月)
 - 13) G. HUANG and A. W. SCARONI: *Amer. Chem. Soc., Div. Fuel Chem., Preprint*, **34** (1989), p. 1329
 - 14) T. H. FLETCHER, A. R. KERSTEIN, R. J. PUGMIRE and D. M. GRANT: 同上, **34** (1989), p. 1272
 - 15) 二タ村森, 大塚康夫, 斉藤郁夫, 請川孝治: *燃料協会誌*, **69** (1990), p. 32
 - 16) 新エネルギー・産業技術総合開発機構資料 (1990)
 - 17) 吉田諒一: *エネルギー (ENERGY)*, **9** (1988), p. 20
 - 18) 辻 芳治, 西田隆弘: *燃料協会誌*, **69** (1990), p. 239
-