

# ドラフトチューブ付き噴流層による 石炭接触ガス化装置の開発

三原 久正\*・吉見 考弘・伊地知和也・上村 芳三  
大角 義浩・萩原 孝一・幡手 泰雄  
(受理 平成7年5月31日)

## Development of a Draft Tube Spouted Bed Catalytic Coal Gasifier

Hisamasa MIHARA, Takahiro YOSHIMI, Kazuya IJICHI, Yoshimitsu UEMURA  
Yoshihiro OHZUNO, Kohichi HAGIHARA and Yasuo HATATE

The estimated quantity of coal deposits is enormous, hence, an energy supplement system for coal has to be established urgently.

In the present study, to achieve this purpose, catalytic coal gasification with steam using a draft tube spouted bed was carried out under the coal feed rate 1 kg-coal/h. Two levels of tube-cone clearance ( $H_D$ ) were employed, that is,  $H_D = 3$  mm and 6 mm.

Consequently, it was found that tar was not produced. The production rate and content of hydrogen were about 300 cc-NTP/s and 55%, respectively. However, a large amount of nitrogen was observed in annulus exit gas for  $H_D = 6$  mm. This appears to be caused by air dilution through the tube-cone clearance.

### 緒 言

石炭ガス化技術は、固体燃料の流体化を目的として開発されたが、石油エネルギー全盛の時代においては経済性の悪さからその価値を失っていた。しかしながら、1973年の石油危機を契機にエネルギー源多様化の必要性が見直され、可採年数300年以上とも言われている埋蔵量豊富な石炭の有効利用が再び注目されている。

石炭ガス化技術<sup>1)</sup>はエネルギーの安定供給を確保する手段となるとともに無公害型の次世代エネルギーと考えられている水素を製造するためのプロセスとしても期待されている<sup>2)</sup>。これらの目的を達成するためNEDOのHYCOLプロセス<sup>3)</sup>を始めとして多くの研究グループが研究開発に取り組んでいる<sup>4,5)</sup>。

本研究では、石炭ガス化の中でも比較的低温で実施

可能な石炭接触ガス化に着目し、検討を進めている。

先に、図1に示すような石炭ガス化工程にしたがって、コールドモデル<sup>6)</sup>からホットモデルに至る研究結果について説明した。図2にチャーガス化実験結果を示したが、このように水素リッチなガスが得られることが実証された<sup>7)</sup>。本研究では、これを一歩進めて図3に示すように石炭から直接、ガスを得ることを目的として実証試験を実施した。この場合には、予備実験を行った時点で、タール分が発生しない、すなわち図1中で示したタール留分もガス化されることが観察されており、図1の概念図に比べると数段優れていると考えられる。今回は、この概念図を実施できる装置を提案し、長時間の安定運転の実証を目指したので、その結果について報告する。

\* (株)出水ガス

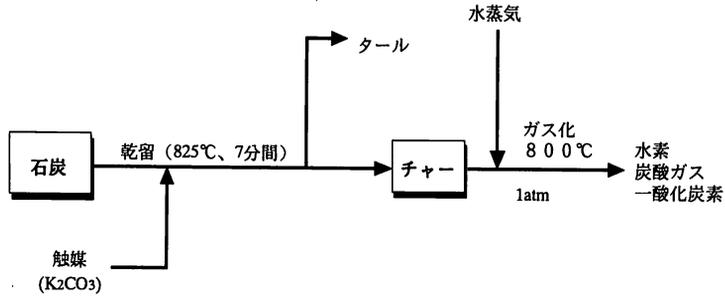


図1 石炭ガス化フローチャート

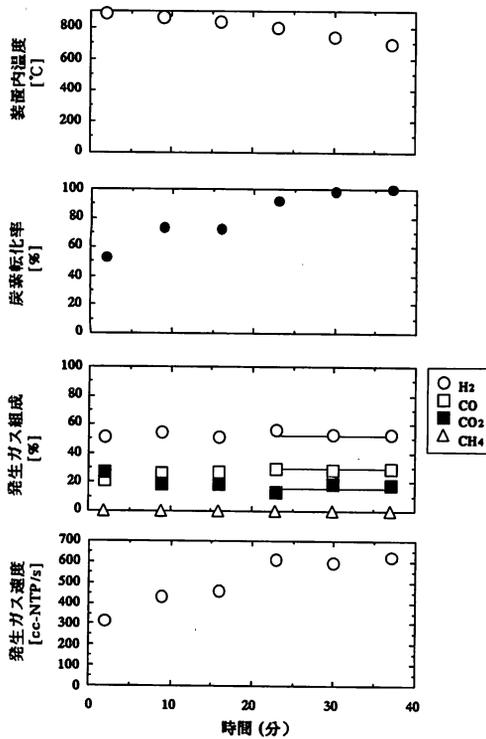


図2 実験結果 (活性炭)

## 1. 実験

### 1.1 石炭の直接水蒸気ガス化装置の概念

図4に、図3の概念図を実現する装置の概念図を示す。本装置は触媒担持石炭と水蒸気を反応させて、水素及び一酸化炭素に富んだ生成ガスを得ることを目的としている。装置の特徴は蓄熱用循環セラミック粒子を用いて、ドラフトチューブ内での燃焼による熱を石炭ガス化反応の熱として供給することにある。また、石炭には通常10%~30%の灰分含まれているので、ガ

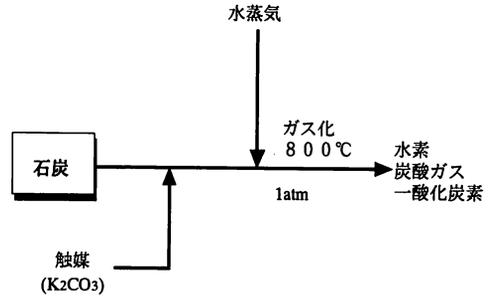


図3 石炭直接ガス化フローチャート

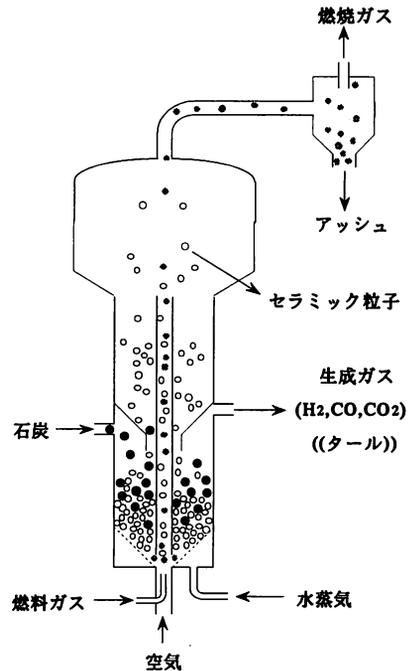


図4 石炭ガス化装置概念図

ス化が終了した後はアッシュが生成されるが、このアッシュはドラフトチューブ内を燃焼ガスに同伴されて上昇し系外へ排出される。実用性を示すためには、通常、このような操作で発生が予想されるタールなどの揮発物質がすべてガス化される必要がある。本装置は環状部で石炭粒子の下向き流れの移動層が形成されるため、流動層プロセスの場合のような微粉の飛び出しや流動状態に影響を与える微粉の含有量を考慮する必要がなく、また、滞留時間を長くとれるので反応速度が遅いガス化反応に対応できる。したがって、この装置は以下の特徴を持つ装置といえる。

- (1) 反応場の流れは「栓流」である。
- (2) 粒子の分級は不必要、かつ微粒子の混入も問題とならない。
- (3) 出口ガスは水素と一酸化炭素（及び水、少量の炭酸ガス）からなる反応生成ガスのみである。

1. 2 ホットモデルの実証実験

図5にホットモデル実験装置の概略図を示す。また表1、2に今回使用した石炭の分析結果と粒子の特性について示す。塔本体は外径166mm、内径156mmの外筒と、外径17.3mm、内径10.9mmのドラフトチューブから成っており、材質はステンレスである。開角60度のコーン部には、直径2mmの水蒸気注入口が1段に20個、

2段にわたり40個設けた。またチューブ間距離は3mmとした。石炭粒子は、ホッパー下のロータリーフィーダーにより一定量の連続供給を行った。装置の昇温は、ジャケットヒーター（半円筒2基×2段）の外熱とLPG及び水素と空気の燃焼による内熱により行い、蓄熱粒子としては、セラミック粒子を使用した。装置の温度測定のために、3ヶ所熱電対を差し込んだ。差し込んだ位置は、装置内のアニユラスセラミック移動層、装置外の一段目と二段目のジャケットヒーターの間及びサイクロン内である。操作手順としては、先ずジャケットヒーターのみで昇温を行い、装置内の温度が約300℃に達したところであらかじめ充填しておいたセラミック粒子を循環させた。約520℃（プロパンの自然発火温度）に達するとLPGを供給し、また約610℃（水素の自然発火温度）に達すると水素を供給し燃焼させ、内熱より昇温を行った。温度が800℃になったところで水蒸気を供給し、温度が一定になると

表1 アラスカ産亜歴青炭の分析値

灰分 [%]	揮発分 [%]	固定炭素 [%]	燃料比	元素分析 [%]						
				硫黄	炭素	水素	酸素	窒素		
8.7	42.2	35.0	0.83	0.02	62.9	4.5	21.3	0.9		
鉱物 [%]										
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	SO <sub>2</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	MnO	V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
14.9	42.3	5.98	23.3	3.42	0.58	1.16	4.95	0.14	0.24	0.01

表2 使用粒子の特性

使用粒子	球形セラミック粒子	石炭粒子
平均粒子径 [μm]	500	1015
粒子密度 [kg/m <sup>3</sup> ]	6.0×10 <sup>3</sup>	1.2×10 <sup>3</sup>
終末速度 [m/s]	7.05	4.92
最小流動化速度 [m/s]	0.48	0.41
特性	成分 ZrO <sub>2</sub> 95% Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 5%	アラスカ産亜歴青炭 触媒としてK <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> 2.0[meq-k/g-coal] 含浸担持

表3 実験条件

ガス化温度	1023	[K]
セラミック粒子：充填量	4.5	[kg]
：循環量	5.0×10 <sup>-3</sup> 8.0×10 <sup>-3</sup>	[kg/s] (推定値)
石炭供給速度	0.010	[mol-C/s]
空気供給速度	0.035	[mol/s]
LPG供給速度	1.2×10 <sup>-3</sup>	[mol/s]
水蒸気供給速度	0.019	[mol/s]
チューブ間距離	3.0×10 <sup>-3</sup> 6.0×10 <sup>-3</sup>	[m]

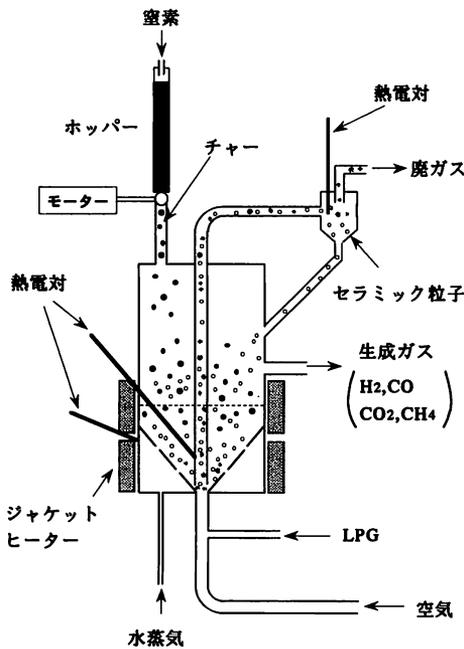


図5 ホットモデル実験装置

石炭を供給して実験を開始した。サンプリングは、アニュラス側出口、サイクロン側出口より適時行い、ガスクロマトグラフによりガス組成を分析した。表3に今回の実験条件を示す。

### 2. 実証試験結果

図6, 7に  $H_D=3$  及び  $6\text{ mm}$  での実験結果を示す。また、図8, 9にアニュラス側出口流出ガス組成を示す。装置内温度の経時変化から、 $H_D=3$  及び  $6\text{ mm}$  のどちらの場合においても、燃焼ガスからセラミック粒子への熱供給がうまくいき、安定な運転ができたといえる。発生ガスのほうは、約  $300\text{ cc-NTP/s}$  もの水素が発生し発生ガス中の50%以上を占めた。しかしながら、炭素転化率は、100%を超えている。これについては現在検討中である。以上に述べたように、ほぼ完全な定常運転(装置内温度、炭素転化率、発生ガス組成、発生ガス速度)が実現され、一応本研究の大きな目的であった安定操作が達成されたといえる。しかしながら、図9で明らかのように、 $H_D=6\text{ mm}$  では多量

の窒素がアニュラス部取り出し口より流出しており、大きなバイパス流(空気、燃焼ガス吹き込みノズルからアニュラス部への側流)が存在したことを示している。すなわち、緒言で述べた3つの本装置の特長のう

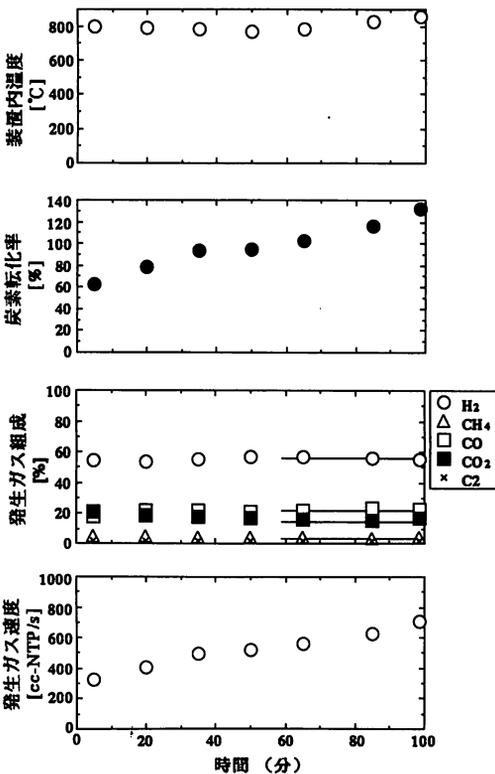


図6 実験結果 ( $H_D=3\text{ mm}$ )

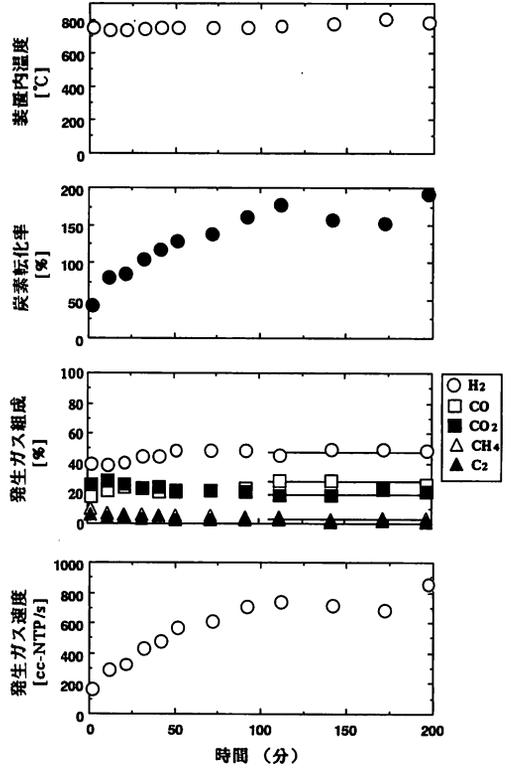


図7 実験結果 ( $H_D=6\text{ mm}$ )

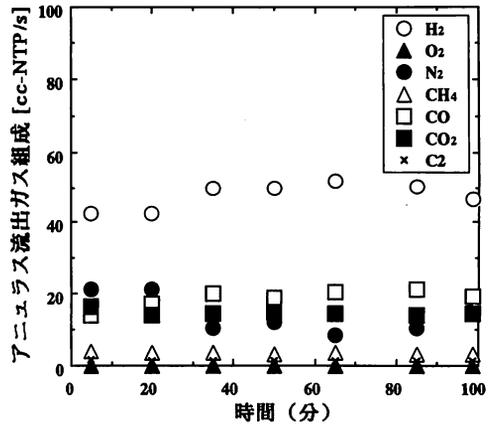


図8 アニュラス側出口組成 ( $H_D=3\text{ mm}$ )

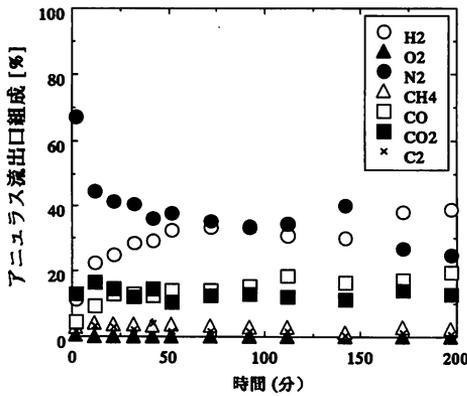


図9 アニユラス側出口組成 ( $H_D = 6 \text{ mm}$ )

ち(3)の“出口ガスは水素と一酸化炭素（及び水、少量の炭酸ガス）からなる反応生成ガスのみである”が達成されていないことが明らかになった。図8から明らかのように、これは $H_D = 6 \text{ mm}$ としたためと考えられる。

### 結 言

石炭ガス化水素製造装置として、図4の概念図に示すドラフトチューブ付き噴流層を提案した。今回は、 $H_D = 6 \text{ mm}$ として、石炭換算  $1 \text{ kg/h}$  供給速度の実証試験を行った。その結果、 $H_D = 6 \text{ mm}$ ではバイパス流（ノズル本体からアニユラス部への流れ）が30%程度もあり、安定的な運転は実現したが、大きな問題を残

した。すなわち、アニユラス部へ酸素が含まれたガスが流入することから、生成ガスの水素の一部がアニユラス部で反応してしまい、水素収率の低下が生じ、さらにアニユラスの生成ガス中に多量の窒素が存在することがわかった。

### 文 献

- 1) Nishikawa Y., K. Hashimoto: "Energy Conversion and Utilization with High Efficiency" (B), 3-132 (1990), 3-152 (1993)
- 2) Sears, R. E., M. K. Heidt, S. J. Cisney and M. A. Musich: Int. J. Hydrogen Energy, 16 (8), 521-529 (1991)
- 3) NEDO NEWS, 10 (103), 30-37 (1990)
- 4) 遠藤元治：出光技報, VOL. 33, NO. 5, 469-488 (1990)
- 5) 保泉, 高木, 古江：燃料及燃焼, VOL. 61, NO. 5, 11-21 (1994)
- 6) Uemura, Y., S. Churei, M. Miyauchi, S. Imamura, K. Ijichi, Y. Tanaka, D. F. King and Y. Hatate: Circulating Fluidized Bed Technology III, Pergamon Press, 645-650 (1991)
- 7) 幡手泰雄, 上村芳三, 田中茂穂, 徳増康弘, 田中安彦, Desmond F. King, 伊地知和也：化学工学論文集, VOL. 20, NO. 6, 758-765 (1994)