

論文の内容の要旨

論文題目 地球環境保全のための高効率石炭ガス化技術に関する研究

氏名 木曾 文彦

第1章 緒言

2007年の世界全体での一次エネルギー消費量のうち、石炭の割合は29%である。化石燃料の可採年数は石炭が最も大きく122年で、石油42年、天然ガス60年の2倍以上ある。また、石炭の埋蔵量は、欧州・ユーラシア、アジア・オセアニア、北米の3地域にほぼ均等に分布し、中東に60%が集中している石油と異なる。このため、石炭価格は石油に比べて変動が小さく、エネルギーの安定供給に、石炭は今後も欠かせない。

化石燃料の使用に伴うCO₂排出量は約200億トン/年と推定されており、植物の光合成によるCO₂固定量に対して約5%の大きさで、自然の炭素循環に対する人為の影響が無視できない大きさになっている。石炭は化石燃料の中で最も炭素を多く含む燃料であり、省エネルギーのための石炭利用機器の効率向上だけでなく、CO₂排出抑制が求められる。本研究は、石炭利用技術のうち、エネルギーシステムの核となる可能性をもつ石炭ガス化技術に注目し、石炭を有効利用しながら地球環境保全を進める高効率システムの開発を目的とした。

第2章 最適な石炭利用システムを選定するための検討

石炭は主に発電と製鉄に用いられている。現在広く普及している石炭発電方法は、石炭をボイラで完全燃焼し、燃焼熱を水蒸気として回収して蒸気タービンで発電する方法(石炭ボイラ発電)である。この方法では、得られる水蒸気の温度と圧力の制約から、高効率化に限界がある。そこで、石炭を酸素で部分酸化(ガス化)し、COとH₂を主成分とする生成ガスを燃料としてコンバインドサイクル発電する技術(石炭ガス化複合発電、IGCC)の開発が進められてきた。この方法では、生成ガスを燃焼後、直接ガスタービンに供給して発電し、その排ガスの顕熱も水蒸気として回収して蒸気タービンで発電することで、石炭ボイラ発電より高効率化が可能と考えられている。

石炭ボイラ発電から CO₂ を回収する場合、燃焼排ガスから CO₂ を分離するのが適しており、石炭ガス化複合発電では生成ガスに水蒸気を供給してシフト反応 (CO+H₂O→CO₂+H₂) を進め、燃焼前に分離するのが適しているとされている。本研究では、石炭発電における CO₂ 分離に伴う熱損失をシステム科学的に評価し、IGCC の方が石炭ボイラ発電より約 4 割小さく、有利であると評価した。ただし、IGCC ではシフト反応のための水蒸気供給が必要であり、その量はシフト反応が平衡反応であることから量論比より大きい。この水蒸気使用に伴う熱損失の大きさは、上記 CO₂ 回収による熱損失の 1/4 と評価した。高効率化のためにはこの水蒸気使用量の低減が必要である。

石炭をガス化して得られた CO と H₂ を主成分とする生成ガスからは、メタノール、ジメチルエーテル (DME) などの燃料が合成できる。これら燃料の合成前に生成ガス中の硫黄分、窒素分などが ppm オーダーまで除去されるので、これら燃料は石油を精製して得られた燃料よりもクリーンであり、石油代替燃料として期待される。しかし、石炭をガス化して得られるガスの H₂/CO 比が約 0.4 であるのに対し、メタノール合成に適した H₂/CO 比は 2、DME に対しては 1 である。CO₂ を回収する場合と同様にシフト反応による H₂/CO 比調整が必要であり、本研究ではこの水蒸気使用量の低減方法を検討した。

第 3 章 石炭ガス化技術のエネルギーシステムモデルによる評価

石炭ガス化メタノール製造システムでは、シフト反応による H₂/CO 比調整が必要で、石炭の発熱量のうちメタノールの発熱量に変換される割合は約 60% である。本研究では、水素を多く含む天然ガスを原料に加えることで、変換効率が約 80% まで向上されることを見出した。このハイブリッドメタノールシステムが普及する可能性を、日本全体のエネルギーシステムをモデル化した MARKAL (Market Allocation) モデルで評価した。このモデルにはエネルギー源、精製・変換技術、利用技術、最終需要などが組み込まれているが、新たにハイブリッドメタノールシステムなど、本研究で求めた技術を組み込み込んだ。その上で、目的関数として総システムコストに CO₂ 排出量を重み付けして加えたものを用い、NO_x 排出量等に対する制約条件を満たす最適なシステム構成を求めた。

この結果、CO₂ 排出量を 1990 年レベルに抑制する場合でも、IGCC やハイブリッドメタノールシステムが導入され得ることがわかった。ハイブリッドメタノールシステムは効率が高いだけでなく、クリーンな燃料が製造でき、NO_x 排出量の低減に寄与する点で導入に有利である。このことから、石炭ガス化技術の普及には、クリーン燃料が製造できること、鉄鉱石の還元や石油精製に必要な水素が供給できることなど、エネルギーシステムの核となる特徴を生せば良いことがわかった。

第 4 章 石炭ガス化技術を核としたエネルギーシステムの高効率化

本研究では、ガス化プロセスで H₂/CO 比を向上し、下流のシフト反応プロセスの水蒸気使用量を低減する方法を、酸素吹き 1 室 2 段旋回型ガス化炉を対象として検討した。このガス化炉は、石炭と酸素をガス化炉の上段と下段に分けて供給し、下段の酸素/石炭比は高めにして石炭中の灰を溶融する高温を維持し、上段の酸素/石炭比は低めにしてガス化炉全体での酸素/石炭比を最適に制御する。このガス化炉内の温度制御が容易な特徴を生かし、本研究では炭層ガスや水蒸気をガス化炉に供給して H₂/CO 比を向上する方法を提案した (図 1)。炭層ガスは CH₄ を主成分とする炭田で発生するガスで、一部はボイラ発電に使用されるが、大気に放出されるものもある。CH₄ の 100 年間の地球温暖化係数は CO₂ の 25 倍であり、本研究のアイデアは、炭層ガスを有効利用する点からも地球温暖化防止に寄与するものである。

この方法の成立性を平衡計算により検討した(図2)。炭層ガスのみで H_2/CO 比を1.0とするためには炭層ガスを68 wt%(石炭比)供給する必要があるが、これは炭層ガスの産出量に対し、大きすぎる値である。水蒸気のみを用いる場合、水蒸気は60 wt%(石炭比)必要であるが、冷ガス効率(石炭発熱量のうち、生成ガス発熱量に変換される割合)が絶対値で10%低下する。炭層ガスの使用量を抑えながら、かつ、冷ガス効率低下を抑えて H_2/CO 比を1.0とする条件としては、炭層ガスを約40 wt%(石炭比)、水蒸気を約20 wt%(石炭比)供給する条件が望ましいと考えられた。ここで、水蒸気自体の H_2/CO 比調整効果は炭層ガスと同等であることから、シフト反応が無触媒で進む温度領域で、かつ、ガス化炉内の温度に影響を与えない部位に水蒸気を供給すれば、冷ガス効率に影響を下げることなく、高い H_2/CO 比調整効果の得られる可能性があることがわかった。この結果に基づき、ガス化炉出口の高温を活用し、ガス化炉下流で水を噴霧して水蒸気とし、シフト反応を進行させることで H_2/CO 比を向上する方法を提案に加えた(図1)。

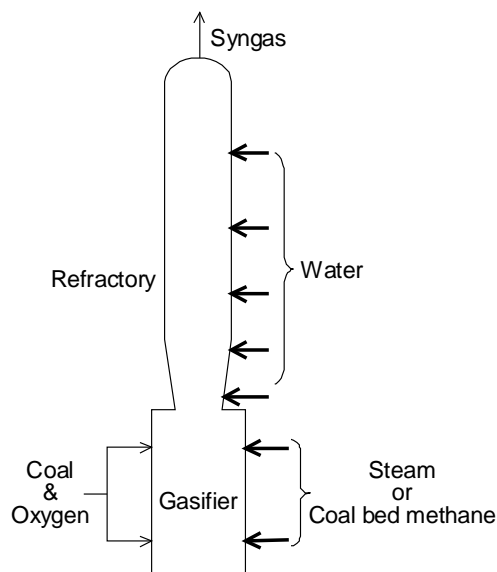


図1 ガス化炉での H_2/CO 比向上方法

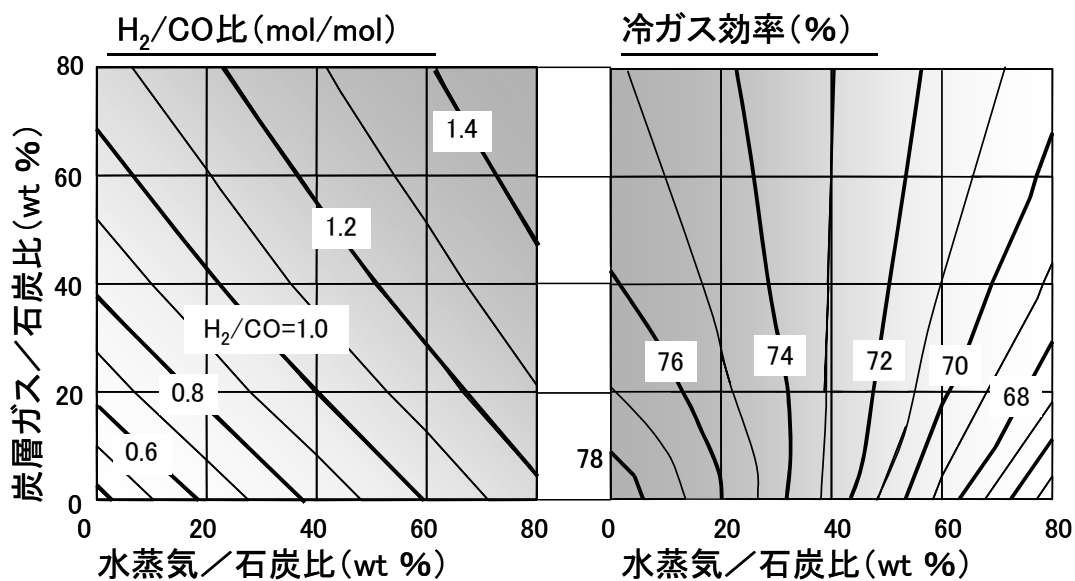


図2 炭層ガス、水蒸気供給時の H_2/CO 比と冷ガス効率

第5章 ガス化プロセスにおける H_2/CO 比向上技術の開発

ガス化炉内の温度分布やガス流れは複雑であり、ガス化炉へ炭層ガス、水蒸気供給を供給しても、未反応のまま炉外へ流出する可能性がある。そこで、ガス化炉への炭層ガス、水蒸気供給による H_2/CO 比向上効果は、内径0.7 m、高さ1.5 mの石炭処理量3 t/d 常圧1室2段旋回型ガス化炉で検証した(図3)。 CH_4 、 H_2O の供給がない場合、 H_2/CO 比は0.39~0.43であるが、 CH_4 を石炭に対する質量比で0.27供給することにより、 H_2/CO 比は0.73~0.89まで向上した。また、水蒸気を石炭に対する質量比で0.38まで供給することで、 H_2/CO 比は0.62まで向上した。

CH_4 をガス化炉に供給すると、 CH_4 と O_2 の部分酸化反応が進行するので温度低下がなく、特に CH_4

を高温の下段に供給した場合、一部の CH_4 は水蒸気改質されたと考えられる。また、水蒸気をガス化炉に供給すると、巡回型ガス化炉では旋回流の効果で水蒸気が速やかに拡散するため、局所的なガス温度低下がなく、シフト反応が平衡まで進行したと考えられる。

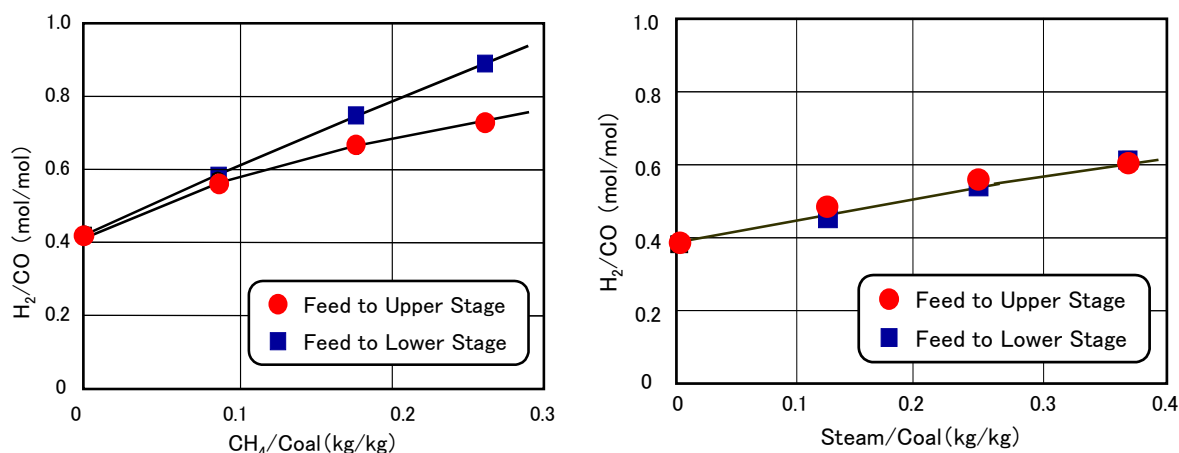


図3 CH_4/Steam 供給による H_2/CO 比向上効果

要素試験装置は、常圧で石炭処理量が少ないことから、ガス化炉出口でガス温度が急速に低下するため、ガス化炉下流での水噴霧による H_2/CO 比向上効果は検証できない。そこで、これはシフト反応の反応速度を組み込んだモデルを新規に開発し、石炭処理量 1000 t/d のガス化炉を対象として検討した。この結果、水は多段噴霧として水供給による温度低下を緩やかにすることで、CO 転化率を高められることを明らかにした。段数と CO 転化率の解析結果を図4に示す。各ケースとも水/生成ガス比は CO 転化率最大を与える値である。1 段供給では CO 転化率は 8.5%だったが、5 段供給では 9.9%まで向上し、それ以上の段数では大きな差がなかった。段数は少ないほど設備コストを抑えることができるので、5 段供給が適していることがわかった。

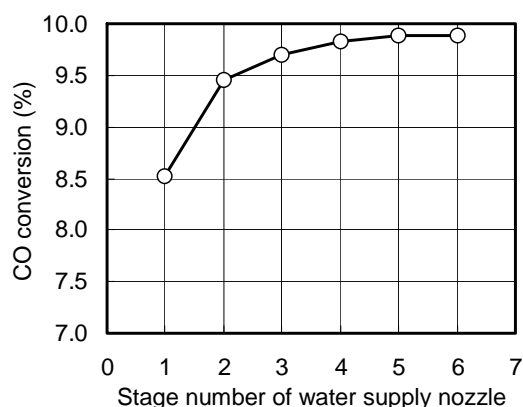


図4 水噴霧によるシフト反応促進効果

第6章 結言

石炭ガス化システムを産炭地、あるいは天然ガスのパイプラインが設けられている地域に建設する場合、ガス化炉へこれらを供給し、ガス化炉出口で水噴霧することで、 $\text{H}_2/\text{CO}=1$ の生成ガスを得ることができると考えられる。石炭からメタノールや DME を製造するシステムに対し、本研究の方法を適用することで、下流のシフト反応器に供給する水蒸気量を減らす、あるいはシフト反応器を削減することができ、ガス化プロセス側も伝熱管を用いた熱回収が不要になることから低コスト化される。また、炭素回収率 90% の CO_2 回収型 IGCC に対し、本研究のガス化炉出口に水を噴霧する方法を適用すると、この部位でシフト反応を進めることによりシフト反応器に供給する水蒸気が削減でき、その分、蒸気タービンによる発電出力が増加することから、発電効率が絶対値で 0.35% 向上する。本研究で開発した方法は、石炭を利用するシステムの効率向上、コスト低減を図ることで、今後のエネルギー安定供給に寄与するものである。