

石炭の鉄浴ガス化法

Coal Gasification by Molten Iron Bath

徳 田 昌 則*

Masanori Tokuda

1. 鉄鋼業における石炭ガス化の位置づけ

高炉—転炉を軸とする一貫製鉄工場は、所要エネルギーの大半を原料炭に依存し、コークス炉、高炉、転炉というそれ自身確立されたガス化装置を有し、副生ガスを発生させて、他部門に分配している。そこで、石炭ガス化という問題に対しては、鉄鋼業の場合他分野と若干異なり、次のように多様な視点からの位置づけがなされる。

1. 一般炭のエネルギー価格面での優位性の享受

これが最も普遍的な位置づけで、高炉メーカーの場合には、その手段として、既に高炉への微粉炭吹込技術がある。しかし、石油系燃料や電力の購入の他に原料炭の使用量を増やして副生ガス量増を企てるという選択肢との対比も必要になる。

2. 原料炭の節約—資源面からの要請

原料炭の資源制約がある場合には、長期的視点に立って、原料炭の一般炭による代替策を検討しておく必要がある。その手段として、成型コークスの開発、高炉への微粉炭吹込み、一般炭ガス化が検討の対象となる。この点からの解析結果も報告されている^{1) 2)}

3. 高炉操業の制御手段—プロセス面からの要請

高炉の安全操業は多大の技術的経済的果実をもたらす。羽口からの天然ガスや重油の吹込みは極めて有効な制御方法として広く活用されていたが、これらの価格高騰により、採用が中止された。微粉炭吹込みにはそれらに代わる効果を期待できることから、技術の確立と採用が着実に進展しつつある。ただし、ガス化後に吹込む方法については、経済的効果が認められていない³⁾。

4. 新製鉄法への展望

原料炭に依存する現行高炉法とは別の途を歩む新製鉄法の実現と結合して一般炭のガス化が展望される。

従来天然ガスに依拠していた還元鉄製造プロセスに、褐炭のガス化を結合する方法には経済的可能性が認められている³⁾。一方、大量スクラップの溶解促進⁴⁾や熔融還元法のような新しい製鉄プロセスの開発が進行しており^{4, 5)}、これらが大量のガス発生を伴うために、石炭ガス化の視点からの技術的検討にも関心が払われている。

2. 石炭の高温ガス化

石炭のガス化法は、相対的に低温型の固定床法や流動床法と高温型の噴流床法や熔融床法に分類されるが、とくに後者の高温型は製鉄技術と多くの面で類似性を有している。たとえば、高炉羽口からの微粉炭吹込技術は噴流床法の一変形とみなすことができる。

その他、スウェーデンで開発中の INRED 法⁶⁾ や日本で提案された日東化学法⁷⁾ などの新製鉄法では噴流床法の技術が根幹を占めている。したがって、将来の噴流床法による高温ガス化技術は、鉄、銅、亜鉛などの新しい製錬技術と結合して発展する可能性も秘めている。

一方、高温の熔融体を熱媒体とし、これに粉炭を吹込んでガス化するという熔融床法の着想は、1902年の特許出願の例⁸⁾ にみられるようにかなり古いが、ガス化専用炉として工業化された例は、融体としてスラグを用いた Otto-Rummel 法があるに過ぎない。本稿の目的は、溶鉄を用いたガス化法を概説するにあるが、例外として実績を尊重して、Otto-Rummel 法をも組み入れることとした。

3. 熔融床法の特徴と開発の試み

3-1. 特徴

熔融床法は次のような特徴を有するとされる。

(1) 炭種の選択範囲が広い

固定床法や流動床法のような粘結性への制約がなく、高硫黄、高灰分の炭種も用い得る。

* 東北大学選鉱製錬研究所 教授

〒980 仙台市片平2-1-1

- (2) 粒度に大きな制約がない。1~3mm以下で良く、整粒も大きな問題にならない。
- (3) 反応速度が大きく、製鉄技術など既存技術の応用や改良を基礎にするので、スケールアップに不安が少ない。
- (4) ほぼ完全にガス化され主成分はCOとH₂になる。
- (5) 硫黄など有害物質のガス化炉内での除去が容易で、運転障害になるタールなどの発生も極めて少ない。
- (6) ガス化効率、熱効率が大きい。
- (7) 始動、休止が容易ではなく、連続運転が必要。
- (8) 高温、長期連続運転に耐える炉材やノズル材料の選択がむずかしい。

3-2. 溶鉄ガス化法の開発例

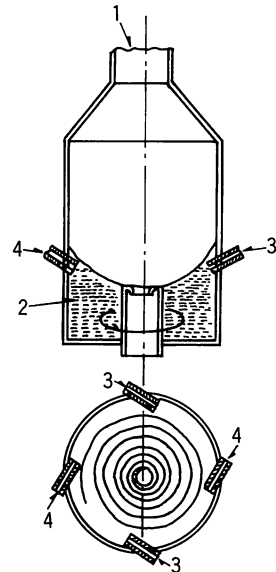
表1に、従来開発された主要な溶鉄ガス化法およびOtto-Rummel法の特徴を一括して示した。

(1) Otto-Rummel法²⁾

熱媒体としてスラグを用い、図-1の概念図に示すごとく、炉周の切線方向下向きに粉炭と酸素+水蒸気を吹込む。このため熔融スラグは回転運動を起こし、1,600~1,800℃の高温と強撹拌により、高速の熱交換と反応が保証される。石炭中のCはスラグに溶解し、スラグの増量分は中心部の排出口から溢れ出して、落下し、水中急冷される。炉壁には水冷パイプを取り付け、スラグの凝固付着による自己保護作用を利用している。

1950年に西独のWesselingで石炭処理能力30t/dの試験設備が建設され、1956年に40万m³/dの工業規模の運転に発展し、アンモニアやメタノール合成原料を生産した。

1962年には円筒状炉にしきりを入れて炉内を2室に分割する方式のパイロットプラント規模のガス化炉



1. ガス出口 2. スラグ排出口
3. 燃料 4. O₂、水蒸気

図-1 Otto-Rummel法のガス化炉

表1 鉄浴ガス化法の試験、開発例

名称 (開始年)	規模 処理能力	吹込み方式 (吹込み深さ)	炉径、浴深 溶鉄保持量	浴温(℃) 鉄中C%	粉炭粒度 吹込み速度	効率* η _g , η _c , η _H	備考
Otto-Rummel (1950)	実験炉 30t/d	上吹込み	0.8m φ	1,600 ~1,800	< 3mm 3~6m/s	η _g >84	熔融スラグ、水冷炉壁 円周切線方向吹込み
" (1956)	実用炉 8~9t/h	上吹込み	1.8m φ	1,600 ~1,800	< 3mm	η _H : 5254 η _{HT} >93	
" (1976)	パイロット 130t/d	上吹込み	1.4m φ	1,600~1,800 (25atm)	< 3mm		加圧型
新日本製鉄化学 (1967)	実験炉 8kg/h	吹付け	32cm φ 65kg	1,300~1,400	300~600m/s	η _g >92.0 η _c >95.0	重質油ガス化用 水冷ランス使用
AT gas (1969)	実験炉	上吹込み (>60cm)	60cm φ, 75cm 1.8ton	2.2~3.5%C	< 3mm	η _c >98	PAT gas法: 低カロリー用 AT gas法: メタン併設
新明和法	実験炉 18g/min	上吹込み (110mm)	65kg	1,600	0.5~1.0mm	η _c : 63	加熱・ガス化2室法 電磁ポンプで循環
RIT	実験炉 10~200g/min	上吹込み 15~20cm	15~30kg	1,500	0.1~1.0mm		
" (1978)	パイロット 12kg/min	底吹込み	50~60cm 6ton	1,500 0.8~1.5%C	< 1mm	η _c >90	4本羽口(1本は石炭 +O ₂ , 3本はO ₂ のみ)
住友式 (1980)	パイロット 60t/d	吹付け	7m ³ 10ton	1,500~1,600	< 1mm, 200#(70~80%)	η _c >98 η _{HT} : 80	連続排滓 η _{HT} は1,500t/dで95%

* η_g: 有効ガス化率=生成ガス中(CO+H₂)/理論(CO+H₂)×100
η_H: エネルギー転換率=生成ガス・カロリー/石炭発熱量×100
η_{HT}: 熱効率=(生成ガス発熱量+熱回収率)/石炭発熱量×100

η_c: 炭素 効率=生成ガス中C/石炭中C×100

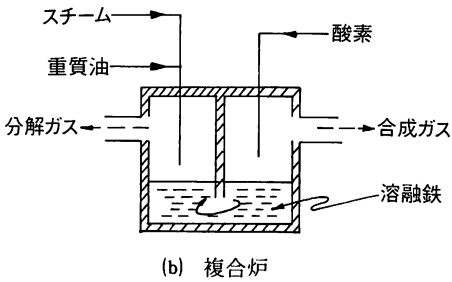
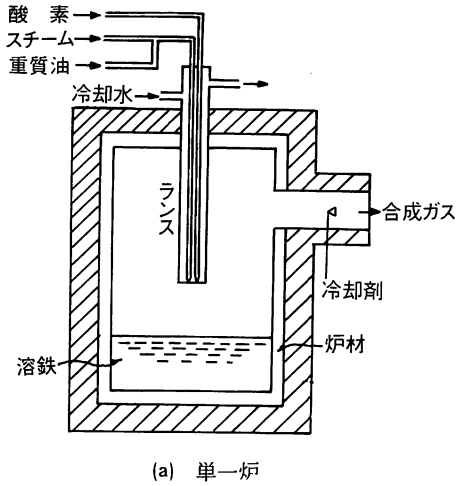


図-2 新日本製鉄化学法のガス化炉

が英国に建設された。これは、一方のガス化室では熱分解と水蒸気との反応による高カロリーガスを発生させ、他方の燃焼室には空気を吹込んでスラグを加熱するというガス化と加熱の機能分離を狙っている。しかし、ノズルやしきり板の位置の制御、ガス化炉室底部への金属鉄沈積による炉底侵食などの問題を未解決のまま、石油へのエネルギー転換の波にのみこまれ、開発は放棄された。

(2). 新日本製鉄化学法²⁾

重質油のガス化法として研究されたもので、熔融鉄を熱媒体とし、図-2aのように重質油、水蒸気、およびO₂を一本のランズを通して溶鉄面に高速で吹付け、ガス化反応を行わせる。

後述の住友金属法と同様に上吹き転炉の反応原理を応用したものとみなせ、水冷ランズを用いて溶鉄中に浸漬しない点が特長である。

また、図-2bのような2室構造の炉も構想されている。この場合、加熱炉側にはO₂を用い、COガスの回収をも狙いに行っている。

(3). A T gas 法²⁾

米国の Applied Technology 社が1969年以後開

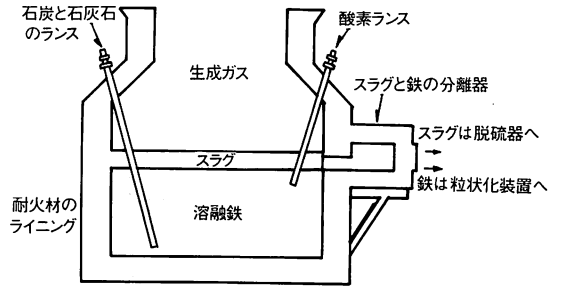


図-3 AT gas 法ガス化炉

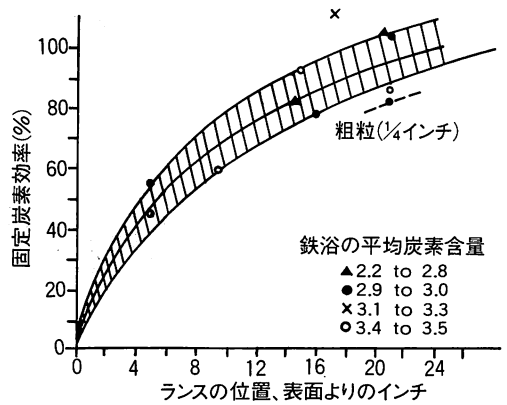


図-4 炭素の固定率に及ぼす吹込み深さの影響

発研究を行った方法で、図-3の概念図に示すように、石炭と石灰石、およびO₂と水蒸気を各々別のランズを用いて同一鉄浴中に吹込む方式である。酸素効率の面では余り問題ないが、炭素の反応効率を保証するには、図-4にみるようにランズを深さ75cmの鉄浴に対し60cm以上も挿入する必要があり、ランズの材質の選択に問題を生ずる。また、炉壁レンガの耐蝕性についても十分な試験はなされておらず、未解決の問題である。

(4). 新明和法¹⁾

サンシャイン計画の一環として、新明和(株)により、溶鉄を熱媒体とするガス化法として研究された方法で、図-5に炉の概念図を示した。

2室法を採用し、ガス化炉には石炭と水蒸気を吹込み、高カロリー・ガスを採取する一方、温度の下った溶鉄は電磁ポンプにより加熱炉に導き、空気を吹込んで昇温する。この排ガスは、高炉ガスなみの低カロリー・ガスとして、燃料に用い得る。ガスや原料の供給は溶鉄中に深く浸漬されたランズを通して行われるが、ランズはスラグや溶鉄との反応と強力な攪拌による振動など苛酷な反応条件にさらされるため、材質の選択は困難を極める。このため新明和法の開発の大半はラ

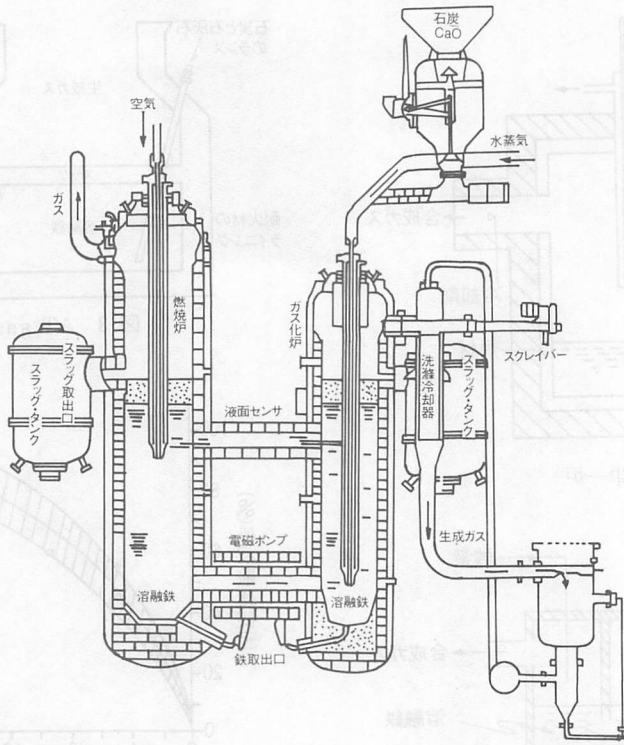


図-5 新明和法のガス化炉

ンスと炉壁耐火物の試験に当てられたが、信頼するに足る材質の開発には至っていないようで、ランスによる吹込み回避の1手段として、原料を固めて連続的に炉内へ挿入し反応させる方式なども着想されている⁹⁾。

(5). RIT法¹⁰⁾
スウェーデンのRoyal Institute of Technologyでは、Eketorp教授を中心に鉄の溶融還元と石炭の溶鉄ガス化を結合したプロセスの基礎研究を行ってきた。溶鉄中に N_2 をキャリアガスとして石炭を吹込み、一方 O_2 を別の羽口より吹込んで強撹拌下でガス化反応を促進させる方法で、1978年には、6 tonの底吹転炉による試験を行った。石炭の溶鉄への溶解速度に硫黄の影響が大きいこと、溶中のS濃度が0.6%に達する場合でも生成ガス中のCOS濃度は100ppm以下(H_2S 10ppm以下)となること、耐火物の侵食により、スラグ中の MgO 濃度が極めて高くなること等を見出している。

(6). 住友式鉄浴ガス化法^{5,11)}

住友金属工業㈱では、1979年に上吹き転炉方式を基礎にした石炭ガス化法の実験を開始し、1980年には60 t/dのパイロットプラント規模での研究を行った。

図-6にフローシートを示した。石炭は1 mm以下(200 mesh70~80%)に粉碎され、アルゴンで搬送される。

図-7は石炭の吹付け方式で炭素の反応効率が大いに異なることを示している¹²⁾。これらの結果より、石炭は最終的には O_2 と同一ランスを通して鉄浴表面に吹付ける方式となった。冷却剤として水蒸気もしくはスクラップが使用され、いずれも炭素効率98%以上、ガスのエネルギー転換効率70~80%を得、この他に、高圧蒸気を回収している。輻射熱損失は20%に達するが、1,500t/d程度の商業プラントではこれを5%程度に低減し得ると評価している。

褐炭、石油ピッチ、液化残漬など各種の炭材を試験し、原料中の硫黄分の大幅な変化にも拘わらず、生成ガス中のS濃度($COS+H_2S$)は、300ppm程度以下に抑え得る。1982年にはスラグの連続排出システムを採用し、将来は加圧型ガス化炉をも構想している。

4. 技術的課題

4-1. ガス化と加熱の機能分離

新明和法等では石炭を吹込んでガス化させる機能と浴中の炭素の燃焼により加熱する機能とを分離している。この方式では加熱に空気を用いることで O_2 を節約できるし、H/C比の高いガスが得られるという利点もある。しかし、装置が複雑化することは工業化に

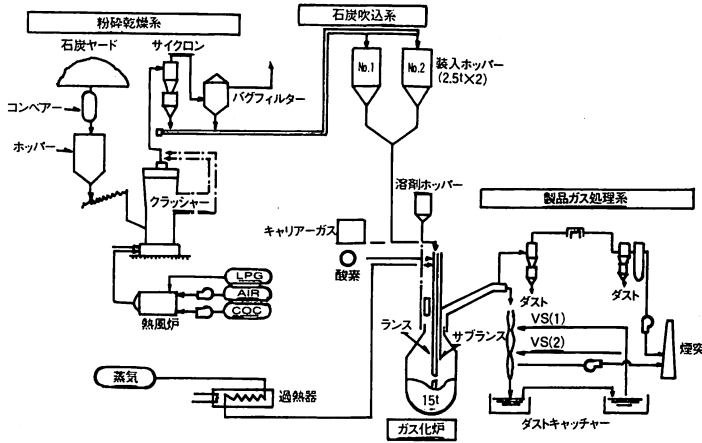
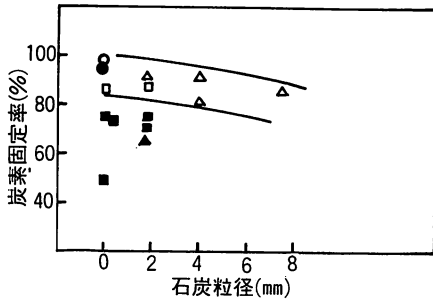


図-6 住友式鉄浴ガス化法のフローシート



吹込法	低硫	高硫
O ₂ と分離	□	■
O ₂ と同一	○	●
散布	△	▲

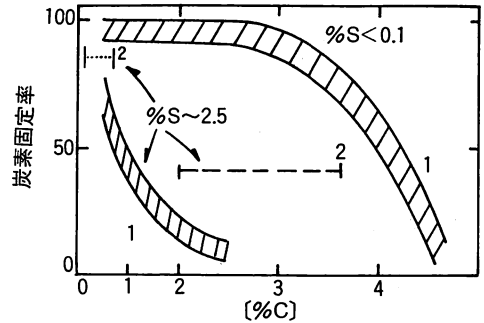
図-7 炭素の固定率に及ぼす粒度と吹込み方式の影響

として不利とされ、さらに次節で述べる問題点も含む。

4-2. 石炭の吹込み方式

図-8は石炭吹込み時の炭素の固定率に及ぼす溶鉄の炭素および硫黄濃度の影響を示したものである¹⁰⁾。

(浴深15~20cm)。実線はN₂をキャリア・ガスに用いて石炭のみを吹込んだ場合で、高炭素濃度では固定率が下がり、硫黄濃度が高くなると固定率は極端に悪くなっている。これを改善するには、図-4のように、浴深を深くする必要がある。しかし、O₂と共に吹込む場合は破線のように炭素の固定率は大幅に向上する。吹付けの場合も図-7に示したように、同様の効果が認められるので、高反応率を保證する点からは、前節のような加熱とガス化機能分離方式は不利と言える。



1: O₂吹込みなし 2: O₂同時吹込み
図-8 炭素の固定率に及ぼす炭素及び硫黄濃度の影響

吹付け方式は、反応方式の点では噴流床法と溶鉄への吹込み方式の中間に位置すると思われるが、新日本製鉄化学法の試験で、鉄浴の存在により有効ガス化率が8%、炭素のガス化率が16%向上する事が確認されており、鉄浴の有効性が明らかである。この効果を発揮させるには、高速ジェットを用い微粒子の侵入溶解を保證する必要があるが、新日本製鉄化学法ではランス先端での重質油粒子の速度を300~600m/secと推定している。ただし、このような高速では、石炭を用いる場合、灰分が捕捉されずに生成ガスと共に飛散する可能性を問題視しているが、住友方式ではとくに問題になってはいない。

4-3. ノズルおよび羽口部の構造

ランスを鉄浴中に深く挿入して、原料やO₂を吹込む方式は、信頼性の高い材質が見付からず、工業化には多くの困難を乗り越えなければならない。これに対

し、底部に設置した羽口を通して吹込む方式には既に石灰石と O_2 を吹込む底吹転炉の実績があり、他にも多くの試みが成功を収めている。図-9は Krupp が開発した熔融還元プロセス (COIN法) に採用されている二重管羽口で石炭と O_2 の同時吹込みを可能にすると同時に中心部の O_2 を周辺の石炭粒子流が遮断することにより、羽口先端部を保護する構造となっている¹³⁾。

一方、吹付け方式の場合には、水冷ランスの使用が可能であり、ノズル部寿命の点では大幅に有利になる。

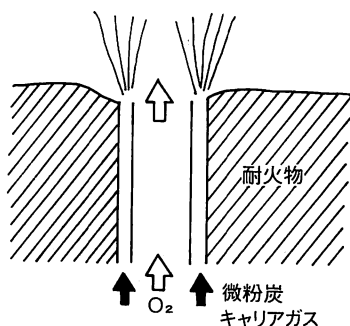


図-9 COIN法の二重管羽口

4-4 炉内のガスと鉄およびスラグの運動

鉄浴ガス化法は製鋼用転炉と同じ反応原理に依るが、異なる点はそのガス発生速度が大きいということにある。製鋼炉の場合は溶鉄 ton 当たり $5 \text{ N m}^3/\text{min}$ 程度のガス発生速度であるが、ガス化炉の場合、住友式の実績で溶鉄 ton 当たり $10 \text{ N m}^3/\text{min}$ と 2 倍大きい。ガス発生速度の増大は、炉内でのスラグ浴の泡立ち、炉外への一部スラグ浴の飛び出し (スロッピング)、あるいは炉の振動などの現象を引き起こし、操業を不安定あるいは不可能な状態に追い込む。とくに吹付けの場合底吹きに比べ、スロッピングを起し易い。

鉄浴ガス化方式での生産速度の増大にこのガスと鉄浴の運動の制御は重要な課題となるであろう。

4-5 石炭の吹込み速度

鉄浴ガス化法生産速度の今一つの主要制約要因に石炭の吹込み速度がある。住友式では $5 \text{ kg}/\text{min.t}$ 鉄浴、RIT の底吹き試験転炉では $2.5 \text{ kg}/\text{min.t}$ が採用されている。限界値への試みは未だなされていないが、設計上重要な要因である。

4-6 耐火材

古来、溶鉄を処理するプロセスの成否は耐火物に左右される例が多い。鉄浴ガス化法の場合、通常の条件では、スラグは SiO_2 の高い中～弱酸性の組成で製鋼用

の塩基性耐火物にとっては著しく不利である。一方、 FeO をある程度含む点で通常の高炉スラグとは異なっており、高炉用耐火物にとっても、本系のスラグは厳しい使用条件にある。すなわち、従来の耐火物をそのまま適用するには問題があり、水冷の強化など新しい使用方法あるいは新材料の開発が必要である。

以上、鉄浴ガス化法の技術課題を概説してきた。これらの他にも、ダストの発生機構の解明、ダストを含む高温ガスからの熱回収、加圧型の開発などの課題がある。しかし、いずれも従来技術の延長上にある上、3章で挙げたような利点により、本方式の経済的な実現性も明らかになりつつあり、商業規模の生産設備が稼動に入る時期は遠くはないと期待される。

文 献

1. 「鉄鋼業の石炭ガス化利用技術調査報告書」；日本鉄鋼協会原子力部会第5小委員会，昭和51年4月
2. 「石炭の高カロリーガス化技術の研究開発」；日本鉄鋼協会石炭ガス化利用委員会，昭和53年3月
3. W. Sitte and F. H. Franke; Stahl Eisen, 99 (1979) No. 11, p. 543
4. J. Hartwig, D. Neuschutz, D. Radke, H. F. Seeling; Stahl Eisen, 100 (1980), p. 535.
5. 田上豊助, 他5名: 住友金属, Vol.34(1982), 13.
6. H. I. Elvander, I. A. Edenwall and S. C. J. Hellestam: Ironmaking and Steelmaking (1979), No. 5, p. 235.
7. 池田米一; 燃料協会誌, 60 (1981) p. 12
8. W. J. Faulkner; US Patent. 701186 (1902).
9. 特許広報; 昭和54年—129005.
10. O. Wijk and P.-O. Mellberg: The 2nd Japan—Sweden Joint Symp. on Ferrous Metallurgy, 1978, Tokyo.
11. T. Tanoue, S. Okamura, M. Sueyasu, M. Fukuda, S. Furujo, and K. Okane; 4th Miami Int. National Conf. on Altern. Energy Sources, 1981, Miami
12. 田上豊助, 他5名: 鉄と鋼, 68 (1982), S. 75
13. J. Hartwig, D. Neuschutz, D. Radke: Schmelzmetallurgische Prozesse Symposium (1981. 8. 26).