

瀝青炭液化—250t/日パイロットプラントの概要

Coal Liquefaction—Outline of 250t/D Pilot Plant

北岡 洋治*・田辺 正紀**

Yoji Kitaoka Masanori Tanabe

1. はじめに

我が国の瀝青炭液化技術は、昭和50年度以降通産省のサンシャイン計画のもとに(1)ソルボリシス法(2)溶剤抽出液化法(3)直接水添液化法の3法について、基礎研究、0.1t/日のベンチスケール装置(BSU)、1~2.4t/日のプロセス開発装置(POU)による研究開発が行われた。昭和55年に新エネルギー総合開発機構(NEDO)が発足して以来、NEDOが瀝青炭液化技術開発の主体となり、昭和58年、NEDOはこれらの成果を取りまとめて、3法それぞれの特徴を活かしてNEDOLプロセスとして統合した。NEDOLプロセスは(1)比較的温和な反応条件において液収率が高く、かつ軽中質留分の多い液化油製品を生産する、(2)プロセスとして信頼性のある要素工程から構成され、プラントとしての安定性が高い、(3)瀝青炭から重質瀝青炭までの幅広い炭種に適合できることなど、諸外国のプロセスに比べて特徴がある。このためNEDOは商業化への可能性の高いプロセスと判断し、パイロットプラント(PP)段階へ研究開発を進めるよう基本計画を策定した。

PPによる研究は、サンシャイン計画に参画した民間会社等によって昭和59年に設立された日本コールオイル㈱(NCOL)がNEDOの委託を受け、ナショナルプロジェクトとして推進している。NCOLでは現在PPの基本・詳細設計を終了している。

本稿ではNEDOLプロセスの概要について述べ、次いで250t/日PPの概要およびPP運転研究課題等について述べる。

2. NEDOL プロセスの概要

NEDOLプロセスによるPPのフローは図-1¹⁾に示

* 日本コールオイル㈱取締役技術審議役

〒100 東京都千代田区霞ヶ関3-3-1 尚友会館

** 日本コールオイル㈱企画部次長

す如く、スラリー調製工程、液化反応工程、液化油蒸留工程および溶剤水素化工程の主要4工程とアップグレーディング工程より構成されている。すなわち、NEDOLプロセスは予め水素化された中・重質油溶剤(B. P. 220~538℃)で石炭をスラリー化し、これに鉄系触媒を加え、水素とともに予熱後加圧下で反応させて液化し、その後得られた粗液化油を分離、精製、改質する方法であり、次の技術的特徴を有している²⁾。

①水素供与性溶剤の効果および液化触媒による反応促進の効果を両立させる1段液化法である。

②液化反応工程においては、廉価で高活性の鉄系触媒を使用する。液化反応条件は、圧力15~20 MPa、温度430~460℃、滞留時間60分程度で水素供与性溶剤効果と触媒効果を最大限活かせる範囲である。

③液化生成物の固液分離は、スケールアップが容易な蒸留方式を採用する。

④溶剤水素化工程では、減圧蒸留塔での留出温度538℃以下の中・重質留分を、触媒の存在下、圧力10~15 MPa、温度330~370℃、LHSV 1.0 h⁻¹程度の条件で水素化をおこなって水素供与性溶剤を作る。

⑤熱効率を高めるためスラリー熱交換器など熱回収システムが考慮されている。

⑥液化油収率は、軽質油(C₅~220℃)と中質油(220~350℃)とで50wt% (無水、無灰ベース)以上を目標とする。

3. 250 t / 日 PP の概要

3.1 PP の設計

基礎研究やBSUおよびPDUによる研究成果に基づきPPの基本・詳細設計が実施された。なお、設計基準炭として豪州ワンドアン炭、設計基準触媒としてCGS触媒(後述)が選定されている。

3.2 NEDOL プロセス PP の主要工程

(1) 石炭前処理工程(スラリー調製工程)

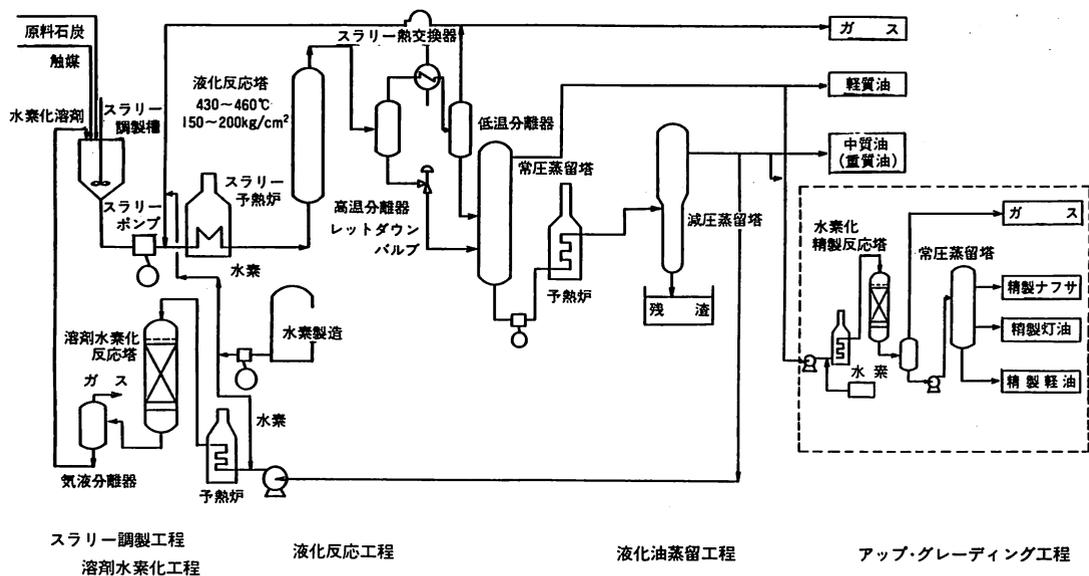


図-1 パイロットプラントのフローダイヤグラム

原料石炭は受入ホッパーより石炭リフトを経て石炭ホッパーに移送される。石炭は金属片を除去した後、粉碎、分級され(-32 mesh)、低O₂濃度の乾燥用循環ガスで乾燥、移送され微粉炭ビンに貯蔵される。微粉炭は定量払出し後触媒が添加され、スラリー混合機で溶剤と混合されスラリー化される。この石炭スラリーにはCGS触媒または天然鉄系触媒を使用する場合は助触媒(硫黄)が添加されてスラリー貯槽に移送される。

(2) 液化反応工程および蒸留工程

本工程は250t/日瀝青炭液化パイロットプラントの中心部を成すもので、図-2にその主要設備を示す。

石炭前処理設備にて所定の条件に調製された石炭スラリーは、高圧スラリーポンプにより昇圧され、

高温分離ガスと熱交換を行った循環ガスと混合され、スラリー予熱炉にて所定の温度に加熱後、液化反応塔に送り込まれる。

スラリー予熱炉としてはヘアピン型とレーストラック型の2種類の予熱炉が備えられている。

また、スラリー予熱炉の上流側にはスラリー熱交換器を配置し、反応生成物から分離された高温分離ガスとの熱交換により予熱を行わせることを計画している。

スラリー予熱炉で加熱された高温石炭スラリーは循環ガス加熱炉で加熱された高温循環ガスと混合され、第1、第2および第3液化反応塔で液化反応が行われる。基本設計ベースでの液化反応の基準条件を表1に、反応生成物収率を表2に示す。反応生成

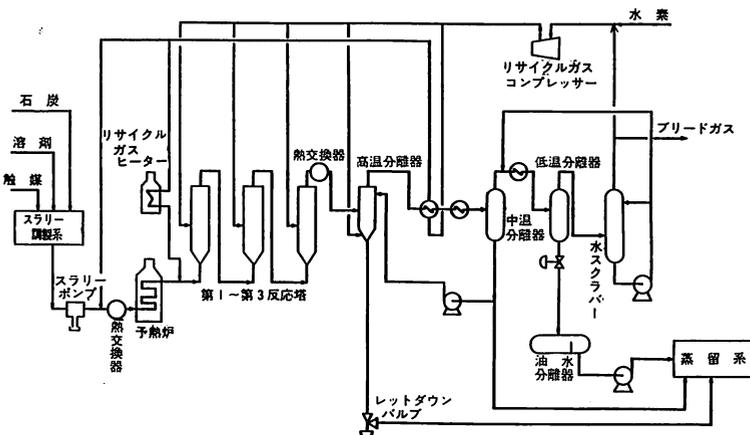


図-2 液化反応工程プロセスフロー

表1 基準液化条件 (基本設計ベース)

反応温度	450°C
圧力	170 kg/cm ² G
見掛けの滞留時間	60 min
石炭供給量	10.417 t/h
石炭スラリー濃度	40 wt%
ガススラリー比	0.7 Nm ³ /kg
リサイクルガスの水素純度	85 mol%
触媒	3 wt% / dry coal
硫黄	1.2 wt% / dry coal

表2 反応生成物収率 (wt% daf coal)
(基本設計ベース)

水素消費量	6.30
水	12.15
ガス	19.60
油分	52.04
軽質油 (ナフサ)	26.08
中質油	24.75
重質油	1.21
残渣 (含灰ベース)	34.06

物収率には後述する溶剤水素化工程での生成物も含めている。

各液化反応塔には冷却用水素ガスを供給する設備、緊急時液抜き設備、液化反応塔内に蓄積する固形物を抜出す設備およびブローダウン設備が備えられている。液化反応塔および高温分離器の材料には、NEDOが開発した新材料³⁾ (3Cr-1Mo-1/4V-Ti-B, オーバレイ SUS347) を使用している。

液化反応生成物は高温分離器で気液分離され、高温分離ガスは冷却器を経て順次中温分離器、低温分離器にて気液分離が行われ、低温分離液は油水分離される。油水分離液、中温分離液およびレットダウ

ンバルブで降圧された高温分離液は常圧蒸留塔でナフサ、常圧軽油および常圧塔底油に分離される。常圧塔底油はさらに減圧蒸留塔で減圧軽質軽油、減圧重質軽油および液化残渣に分けられる。

(3) 溶剤水素化工程

NEDOL プロセスでは生成液化油の350~538°C留分の全てと220~350°Cの留分の一部を水素化して循環溶剤として使用する。溶剤水素化工程のプロセスフローを図-3に示す。

3.3 NEDOL プロセス PP その他の工程

(1) アップグレーディング工程

液化油を最終製品とするためには、混在しているS, N, O等のヘテロ原子を含む化合物を水素化精製等により除去する必要がある。NEDOは液化油のアップグレーディングに関する基礎研究を実施中であり、液化油を石油と混合して製品化することを検討している。

(2) 液化触媒製造工程

PP 運転段階では液化触媒²⁾としてCGS触媒、合成硫化鉄触媒および天然鉄系触媒等を用いることを計画している。これらは将来、各々の特徴に基づき商業プラント (CP) の立地や炭種等により使い分けられることとなる。

I) CGS 触媒

鉄浴式ガス化法 (CGS 法) は現在開発途上にあるが、ここで副生するダストは粉砕・乾燥すれば高活性液化触媒となることが見出された^{4,5)}。

鉄浴式ガス化炉に微粉炭、液化残渣粉、酸素を吹き込みガス化する。また、副原料として生石灰、鉄スクラップなども送入する。ガスに同伴されるダストは冷却後湿式集塵機でスラリー状となり、

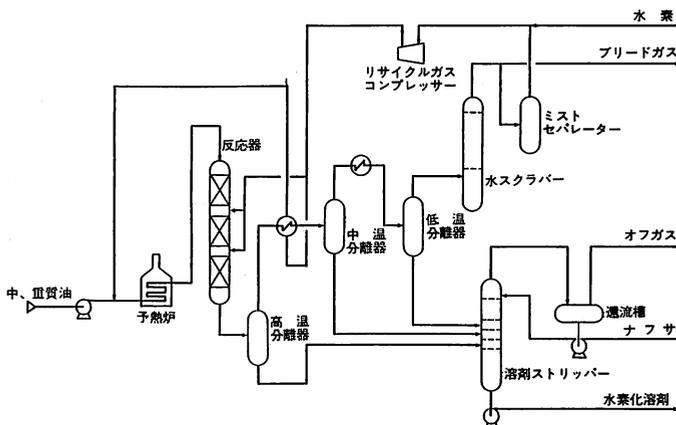


図-3 溶剤水素化工程プロセスフロー

次いで濃縮、分級、脱水、乾燥されてCGS触媒となる。

CGS法は、液化残渣の処理と液化触媒の製造が同時に達成できることが特徴である。

II) 合成硫化鉄触媒

合成硫化鉄触媒製造法としては、湿式および乾式の両法が研究されたが、PPでは1段で微粉触媒が製造できる乾式法が採用される。流動焙焼炉で硫酸第1鉄、硫黄、燃料ガスおよび酸素(空気)を反応させた後、サイクロンで合成硫化鉄触媒を回収する。

合成硫化鉄触媒は、スラリー予熱管内でのコーキング防止機能を併せ持つことが認められている。

III) 天然鉄系触媒

NEDOLプロセスでは、触媒として粉碎・乾燥したラテライトや鉄鉱石を使用することも考慮している。しかし、この製造工程には開発要素は少ないので、PP内に製造設備を設置することは考えられていない。

(3) 水素製造工程

将来CPにおいては、副生する軽質ガスまたは石炭や液化残渣等をガス化後水蒸気改質して水素を製造することが考えられる。しかし、PPでは隣接する製鉄所からコークス炉ガス(COG)を受け入れCOGから吸着分離法(PSA法)で水素を分離する方法を採用している。

(4) プロセス排水処理工程

将来CPでは排水処理法としては、活性汚泥法あるいはNEDOが基礎研究を行った接触湿式酸化法の採用が検討されている。

しかし、PPでは液中燃焼法を採用し、排水処理と余剰液化油処理を同時に行うことにしている。

(5) 廃棄物処理工程

PPで発生する種々の固形廃棄物、一部の液化油、副生軽質ガス等を焼却処理するためにインシネレーターが設置される。

インシネレーターの後流には水酸化マグネシウム法排煙脱硫設備が設置される。本法はSO₃も同時に処理できることが特徴である。

3.4 250t/日PPの立地点と各設備の配置

250t/日PPは、国内数ヶ所の候補地を比較検討した結果、茨城県鹿島臨海工業地帯の一面に敷地約16万㎡(400m×400m)を借用し建設することとなった。

PPの完成予想図と設備配置図を各々図-4、図-5に

示す。

なお、残渣処理・CGS触媒製造設備は、鉄浴となる溶銑受け入れの関係で、隣接する製鉄所構内に設置される。アップグレーディング設備の設置場所については検討中である。

4. 250t/日PPにおける研究課題

PPはその設計、建設、運転を通じてプロセスを実証し、運転技術を確認し、実証・商業プラントに必要な幅広いエンジニアリングデータおよび情報を収集、蓄積することを目的としている。

PPの運転研究を通じ、実証・商業プラントに向けて実証または開発すべき主な研究課題は次の通りである。

- ①スラリー予熱炉、液化反応塔の如き気液固三相流部での諸データ取得、およびスケールアップに関する解析技術の修得。
- ②合成硫化鉄触媒、CGS触媒等高活性液化触媒の実用性能の実証

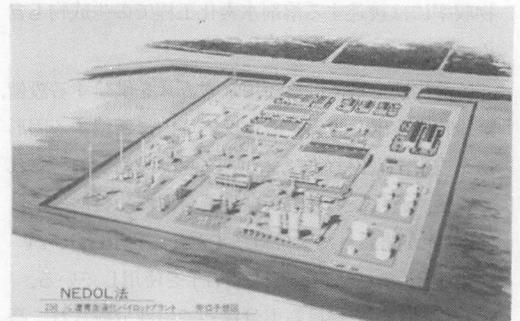


図-4 250t/日パイロットプラント完成予想図

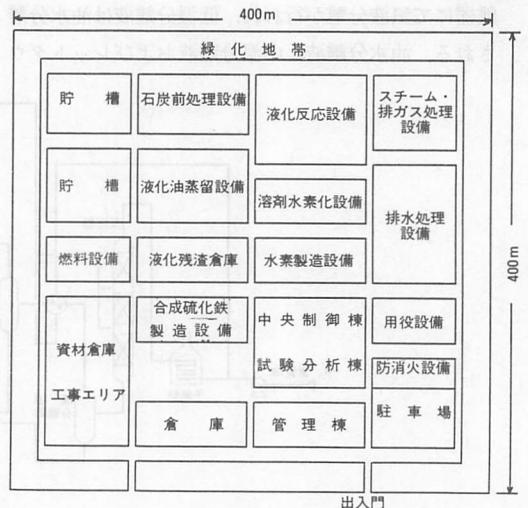


図-5 パイロットプラントの設備配置図

- ③液化反応塔など高温高压用容器材料として開発された 3Cr-1Mo 系新材料のテストデータ取得と実用性の確認。
- ④スラリー昇圧ポンプとして開発されたハイドロホイストおよび多段遠心ポンプのテストデータ取得と実用性の実証。
- ⑤液化油のアップグレーディングに関するデータ取得と液化油の実用性の確認等。

上記の諸研究課題は、基礎から応用まで幅広い専門分野にまたがっており、機器としての開発要素も多い。さらに高温高压下でのスラリーを含む計測・制御技術を含めると、石炭液化技術は現在技術を集約した1つの総合技術であり、上記の研究課題は商業プラントの建設までに実証確認しておかねばならない。

5. 結び

石油需給が緩和基調にある今日、代替エネルギー開発に関する業務にはかなり風当たりが強い。石炭液化も当面厳しい環境におかれるものと考えられる。しかし、長期的には石油の不足、入手困難、価格の上昇は必至であり、今日のような恵まれた時期にこそ積極的に技術開発を推進し、後顧の憂いを払拭すべきであると考ええる。

既に3件のパイロットプラント規模での石炭液化研究を終えた米国は、合成燃料商業化の機が熟するのを注視しており、また現状に甘んずることなく絶えず経済性の向上を目指した新技術の開発を継続している。

歴史のある西独でもパイロット規模の研究を続行中である。日本だけが蚊帳の外にいることは許されまい。

NCOLは鉄鋼、石油精製、エンジニアリング、重機械、電機、化学、鉱業、自動車等幅広い業種が協力して設立したプロジェクト推進会社であり、その成果は国内だけでなく、世界的にも注目されている。諸賢のご理解とご支援をお願いする次第である。

引用文献

- 1) 照沼清; 燃料協会誌, 65, (1986), 710
- 2) 吉田諒一; 化学工学協会編, 最近の化学工学38; 石炭化学工学, (1986), 174, (化学工業社)
- 3) 石黒徹, 大西敬三, 渡辺十郎; 鉄と鋼, 第71年, 8号, (1985), 986
- 4) TAKUJI HOSOI, YOSHIHIKO SUNAMI, KEIICHI HAYAKAWA, TAMIO SHIRAFUJI AND RYOHEI MINAMI; Proceedings of 1983 International Conference on Coal Science, 122
- 5) 南良平, 角南好彦, 早川恵一; サンシャインジャーナル, 6, (1985), No. 3, 6

追記

本稿投稿後に国の開発方針に変更があり、パイロットプラントの規模を縮小の上、設計から再スタートすることになった。したがって、本文の内容にも一部変更が生ずることを付記する。

