

■ 研究論文 ■

# 核熱による二酸化炭素放出量低減システム

## Nuclear Heat Application Systems for Arresting CO<sub>2</sub> Emission

文 沢 元 雄\*・緒 方 寛\*\*・山 田 誠 也\*\*\*

Motoo Fumizawa Kan Ogata Seiya Yamada

(原稿受付日1997年10月6日, 受理日1998年6月23日)

**Abstract**

The objective of the present study is to investigate the systems for arresting CO<sub>2</sub> emission and for the effective utilization of fossil fuel. We studied the fossil fuel reforming systems to decrease the CO<sub>2</sub> emission rate. Feed materials for reforming system were natural gas, heavy oil and coal. Products by reforming were hydrogen, methane and methanol. The CO<sub>2</sub> emission ratio of ten systems were performed with different feed material and product. The CO<sub>2</sub> emission ratio means the ratio of CO<sub>2</sub> emission rate per unit amount of heat generation between the product and the feed material. As the results, the reforming system from coal to methane using steam gasifier had the lowest CO<sub>2</sub> emission ratio and the highest thermal efficiency. Therefore the system decreased the CO<sub>2</sub> emission effectively. It was clarified that the conversion ratio of carbon was the highest in the SOSE systems with coal gasifier and heavy oil gasifier. The steam reforming system was useful to connect to the small scale high temperature gas cooled test reactor, because it was adopted in the six systems examined in the present study.

1. はじめに

将来的に安定供給可能なエネルギー源の確保, 地球環境保全は重要な課題であり, 省エネルギー化, 化石燃料の有効利用, 熱効率の向上ならびにCO<sub>2</sub>放出量の少ないクリーンエネルギーの生成が必要となる。CO<sub>2</sub>放出量の少ないクリーンエネルギーとしては, 太陽熱, 風力などの自然エネルギーとともに大規模なエネルギー源として核熱が挙げられる。核熱利用の必要性を図-1に示す。具体的な核熱利用法としては, 核熱を利用した水からの水素製造, 水蒸気改質による水素製造, 石炭ガス化等の化石燃料改質, ガスタービンによる高効率発電がある<sup>1~3)</sup>。CO<sub>2</sub>抑制対策には発生予防, 除去, 制度的な方策がある。CO<sub>2</sub>抑制対策における核熱利用の位置付けを同図に示す。核熱が貢献できるのはCO<sub>2</sub>発生削減を行うことである。高温ガス炉を利用すれば核熱利用範囲を拡大することができ, CO<sub>2</sub>抑制に効果

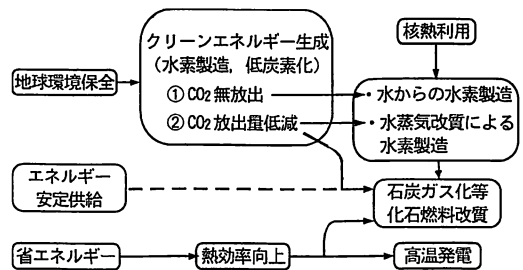


図-1 核熱利用の必要性

的であると考えられる。

本研究では, 化石燃料の有効利用と大気中のCO<sub>2</sub>低減を前提とし, 核熱を利用した化石燃料の改質によるCO<sub>2</sub>原単位の改善システムの検討結果を述べる。改質する化石燃料は天然ガス, 石炭ならびに石油の減圧蒸留残渣, オイルサンド, オイルシュールからの抽出重質油分とし, 改質製品は水素, メタン及びメタノールとした。これらの改質原料・製品を組合わせた10種類のシステムを検討し, CO<sub>2</sub>発生量低減化の評価指標としてCO<sub>2</sub>原単位比, 化石燃料有効利用の評価指標として炭素転換率, エネルギー増加率に加え, システム総合熱効率を用いた評価を行った。

\* 日本原子力研究所 核熱利用研究部副主任研究員

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

\*\* 三菱重工業㈱長崎研究所主任

〒851-0392 長崎市深堀町5-717-15

\*\*\* 三菱重工業㈱長崎造船所計画主任

〒851-0063 長崎市飽の浦町1-1

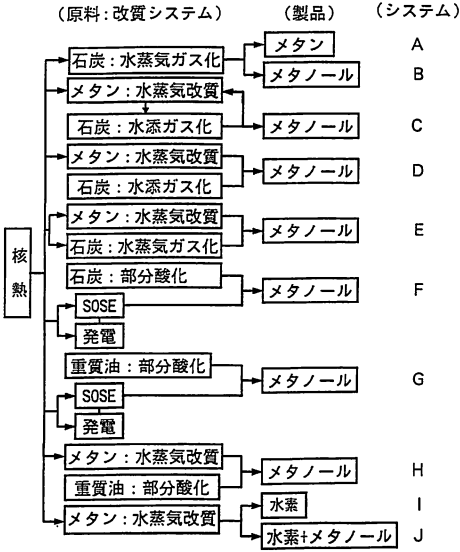


図-2 改質システムの構成

2. 改質システムの構成

検討した改質システムの構成を図-2に示す。同図では原料として炭素含有率の大きい順に検討した。核熱利用改質システムとして、メタンの水蒸気改質、石炭の水添ガス化、水蒸気ガス化の例が報告されており<sup>4~9)</sup>、また、石炭の部分酸化と高温水蒸気電解、メタンの水蒸気改質と石炭の水蒸気改質によるメタノール製造システム<sup>10)</sup>の検討がある。しかし、筆者の知る限り核熱を利用して重質油を改質したシステムの検討

は見あたらないので、これらのシステムに加え、重質油の部分酸化と核熱による水素製造を組合せたシステムについて検討した。以下に各システムについて簡単に記す。

(1) システムA：ドイツInteratom社の石炭の水蒸気ガス化によるメタンを製造システムであり、450MWt熱出力で96t/hの石炭ガスより74000Nm<sup>3</sup>/hのメタンを製造する<sup>4~6)</sup>。

(2) システムB：システムAにメタノール製造設備を付加することにより74t/hの石炭より66t/hのメタノールを製造する<sup>4~6)</sup>。

(3) システムC：ドイツInteratom社の石炭の水添ガス化とメタンの水蒸気改質によるメタノール製造システムであり、450MWt熱出力で82t/hの石炭より70t/hのメタノールを製造する。同システムでは水添ガス化の炭素転換率が低く約30t/hの残渣コークスを生成する<sup>5)</sup>。

(4) システムD：アメリカGA社の石炭の水添ガス化及びメタンの水蒸気改質によるメタノール製造システムであり、450MWt熱出力炉心4モジュール(1800MWt)で162t/hの石炭及び70t/hのメタンより約350t/hのメタノールを製造する<sup>10)</sup>。

(5) システムE：石炭の水蒸気ガス化とメタンの水蒸気改質によるメタノール製造システムである。本システムはシステムAで約50vol%の水素が不足するため、生成ガス中のCO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>の有効利用を考えメタ

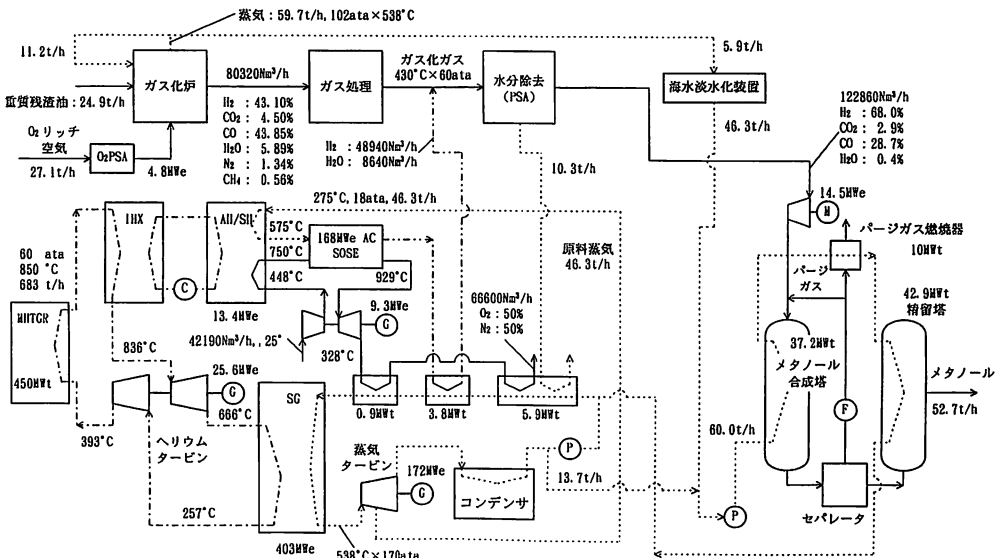


図-3 Shell法による部分酸化重油ガス化と高温水蒸気電解によるメタノール製造システム (システムG)

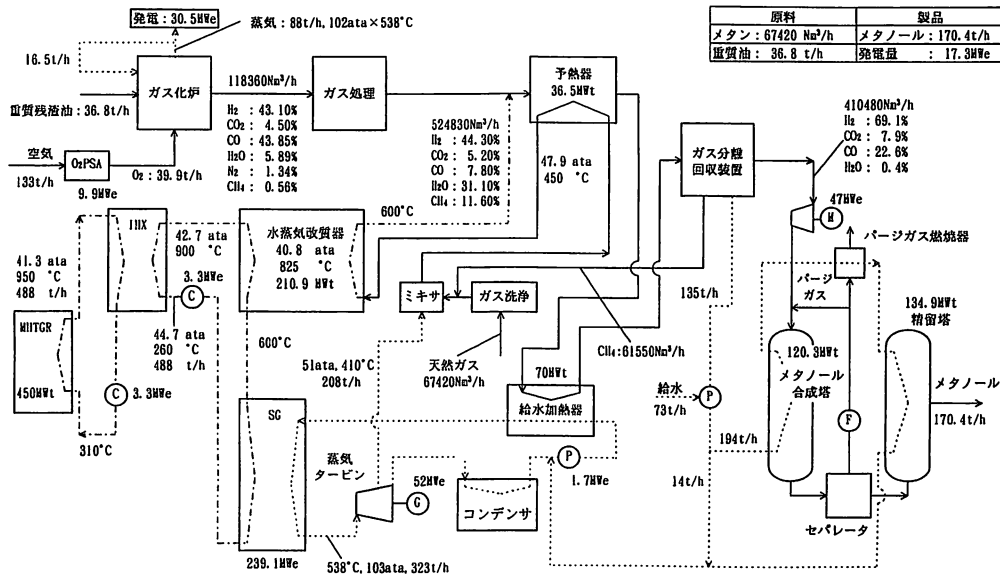


図-4 Shell法による部分酸化重油ガス化とメタンの水蒸気改質によるメタノール製造システム (システムH)

ンの水蒸気改質による水素を補ったシステムであり、450MWt熱出力で35t/hの石炭、27500Nm<sup>3</sup>/hのメタンより101t/hのメタノールを製造する<sup>10)</sup>。

(6) システムF: 石炭の部分酸化と高温水蒸気電解(SOSE: Solid Oxide Steam Electrolysis)によるメタノール製造システムであり、450MWt熱出力で27t/hの石炭より42t/hのメタノールを製造する<sup>10)</sup>。

(7) システムG: Shell法による重質油の部分酸化<sup>11)</sup>とシステムFのSOSEによるメタノール製造<sup>10)</sup>を組み合わせたシステムであり、図-3に示す。同システムは、重質残査油のSHELL法を用いた部分酸化による改質ガス製造サブシステム、高温水蒸気電解による水素製造サブシステム及び、メタノール合成サブシステムの各サブシステムから構成される。部分酸化による改質ガス製造サブシステムでは、25t/hの重質残査油から80000Nm<sup>3</sup>/hの改質ガスを製造し、SOSEによる水素製造サブシステムでは、450MWtの核熱を用いて46t/hの蒸気から49000Nm<sup>3</sup>/hの水素を製造し、メタノール合成サブシステムでは、上記改質ガスと水素から53t/hのメタノールを製造する。

(8) システムH: Shell法による重質油の部分酸化<sup>11)</sup>とシステムEのメタンの水蒸気改質によるメタノール製造<sup>10)</sup>を組み合わせたシステムであり、図-4に示す。同システムは、重質残査油のSHELL法を用いた部分酸化による改質ガス製造サブシステム、メタンの水蒸気改質による水素製造サブシステム及び、メタノール

合成サブシステムの各サブシステムから構成される。部分酸化による改質ガス製造サブシステムでは、37t/hの重質残査油から120000Nm<sup>3</sup>/hの改質ガスを製造し、水蒸気改質による水素製造サブシステムでは、450MWtの核熱を用いて67000Nm<sup>3</sup>/hの天然ガスから520000Nm<sup>3</sup>/hの水素を製造し、メタノール合成サブシステムでは、上記改質ガスと水素から170t/hのメタノールを製造する。

(9) システムI: メタンの水蒸気改質による水素製造システムであり、85MWt熱出力で約5000Nm<sup>3</sup>/hのメタンより20000Nm<sup>3</sup>/hの水素を製造する<sup>9)</sup>。

(10) システムJ: メタンの水蒸気改質水素を用いたメタノール製造システムであり、450MWt熱出力で76000Nm<sup>3</sup>/hのメタンから約87t/hのメタノール、63200Nm<sup>3</sup>/hの水素を製造する<sup>4)</sup>。

上記のシステムG, Hは本研究で考案したシステムである。

### 3. システムの指標

各改質システムに対し以下で定義した4つの指標を用いて評価を行った。

#### (1) CO<sub>2</sub>原単位比

CO<sub>2</sub>原単位比 $\eta_{CO_2}$ は、原料の発熱量当たりのCO<sub>2</sub>発生量に対する改質製品の発熱量(発電量を含む)当たりのCO<sub>2</sub>発生量を示す。評価指標としては、CO<sub>2</sub>原単位比を最重要指標とした。CO<sub>2</sub>原単位比は次式で表

される。

$$\eta_{CO_2} = \{ \sum K_p W_p / (\sum Q_p W_p + E_p) \} / \{ \sum K_r W_r / \sum Q_r W_r \} \quad (1)$$

ここで、K：CO<sub>2</sub>原単位 (kg-CO<sub>2</sub>/kg) のことで単位質量当たりのCO<sub>2</sub>発生量、Q：高位発熱量 (J/kg)、W：質量流量 (kg/s)、E<sub>p</sub>：システム発電量 (J/s)、(添字) f：原料、p：製品

(2) 炭素転換率

炭素転換率  $\eta_c$  は、原料中の炭素質量に対する製品中の炭素質量の割合であり、化石燃料中の炭素の有効利用ならびにCO<sub>2</sub>原単位の改善の指標を示し、次式で表される。

$$\eta_c = M_{Cp} / M_{Cr} \quad (2)$$

ここで、M<sub>Cp</sub>：原料中の炭素質量 (kg)、M<sub>Cr</sub>：製品中の炭素質量 (kg)

(3) エネルギー増加率

エネルギー増加率  $\eta_e$  は、原料発熱量に対する改質製品発熱量の増加を示し、次式で表される。

$$\eta_e = \{ \sum W_p Q_p - \sum W_r Q_r \} / \sum W_r Q_r \quad (3)$$

(4) プラント総合熱効率

プラント総合熱効率  $\eta_T$  は、製品発熱量にシステム発電量 (E<sub>p</sub>) を加え、核熱、原料発熱量、補機動力等の入力熱量に対する割合を示し、次式で表される。

$$\eta_T = \{ \sum W_p Q_p + E_p \} / \{ N_n + \sum W_r Q_r + N_a \} \quad (4)$$

ここで、N<sub>a</sub>：補機動力等 (J/s)

N<sub>n</sub>：核熱量 (J/s)

4. システムの評価

各システムの内A～F, I, Jは該文献に記載のデータに基づき解析評価を行った。システムA, B, Cの熱物質収支データは、該文献の実験値に基づいたものである。各システムの内G, Hは本研究で考案したシステムであり、性能データは理論解析により行った。各システムについて、核熱450MWt当りの原料使用量及び製品生成量を求め、それらをまとめて表1に示す。次いで行ったシステムの指標の評価を以下に示す。

(1) CO<sub>2</sub>原単位比

[原料の主成分が石炭の場合] システムA, B, C, D, E, F

各システムと二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) 原単位比の関係を図-5に示す。同図では製品製造途中の発生CO<sub>2</sub>は除去されるものと想定した。CO<sub>2</sub>原単位比は石炭を高発熱量のメタンに改質するシステムAが51%であり、製品

表1 核熱450MW当りの各システムにおける原料使用量と製品生産量

システム番号		A	B	C	D	E	
原料	メタン	Nm <sup>3</sup> /h	—	—	24200	27500	
	石炭	t/h	95.7	74.0	74.2	40.5	34.5
	重質油	t/h	—	—	—	—	—
製品	メタン	Nm <sup>3</sup> /h	74000	—	—	—	—
	水素	Nm <sup>3</sup> /h	—	—	—	—	—
	メタノール	t/h	—	66.0	69.8	86.7	101.3
	発電量	MWe	55.6	55.6	47.6	75.0	31.7
システム番号		F	G	H	I	J	
原料	メタン	Nm <sup>3</sup> /h	—	—	67420	26630	76100
	石炭	t/h	27.1	—	—	—	—
	重質油	t/h	—	24.1	36.8	—	—
製品	メタン	Nm <sup>3</sup> /h	—	—	—	—	—
	水素	Nm <sup>3</sup> /h	—	—	—	105900	63200
	メタノール	t/h	42.1	52.7	170.4	—	87.8
	発電量	MWe	—	—	17.3	—	39.0

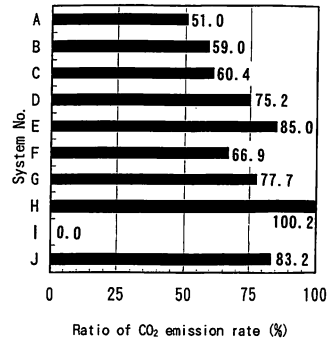


図-5 二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) が大気中に放出されない場合の各システムでのCO<sub>2</sub>原単位比

に炭素を含むシステムとして最も低い。すなわち、このシステムでは単位発熱量当たり製品のCO<sub>2</sub>発生量が原料のCO<sub>2</sub>発生量の51%であり、CO<sub>2</sub>放出量の削減効果が最も高いことを示す。この理由は製品メタンのCO<sub>2</sub>原単位が水素を除いて最も低いからである。次にCO<sub>2</sub>原単位比は石炭をメタノールへ改質するシステムB, C, Fの順で59~67%となる。この理由は製品メタノールのCO<sub>2</sub>原単位がメタンの約1.25倍であるためであり、システムFがシステムB, CよりCO<sub>2</sub>原単位比が高いのは部分酸化によるCO<sub>2</sub>発生があるからである。

[原料が石炭以外の場合] システムG, H, I, J

重質油を部分酸化・SOSEによりメタノールに改質するシステムGは78%となる。重質油のCO<sub>2</sub>原単位は石炭の場合より小さいので、システムFよりシステム

GのCO<sub>2</sub>原単位比は大きくなる。メタンを水蒸気改質するシステムIのCO<sub>2</sub>原単位比は0%であるが、改質による発生CO<sub>2</sub>は大気へ放出されるものとする、78.6%となる。システムJはメタノール（一部水素）を製品とした場合でCO<sub>2</sub>原単位比は約83%である。この理由はメタノールのCO<sub>2</sub>原単位がメタンの場合より大きいからである。また、システムD、EではCO<sub>2</sub>原単位比は75%、85%となる。両システムは各々石炭の水添ガス化、水蒸気ガス化に、原料メタンの水蒸気改質による水素を供給するシステムであるので、システムB、Cに比べてCO<sub>2</sub>原単位比が大きくなる。原料メタンの量はシステムEがシステムDより大きいので、システムEのCO<sub>2</sub>原単位比が大きくなる。重質油の部分酸化・メタン水蒸気改質によるメタノール製造システムHは、CO<sub>2</sub>原単位比が100.2%と最も高く、改質による改善がない結果となった。この理由は、重質油の量に対しメタンの使用量が多いためである。

[CO<sub>2</sub>が大気中に放出される場合]

製品製造途中にCO<sub>2</sub>が大気中に放出される場合、一般にCO<sub>2</sub>原単位比は図-5に示した値より増加する。この要因を考慮すると、システムA~JのCO<sub>2</sub>原単位比は図-6に示すようになる。その結果システムAの場合、図-5の場合と比べてCO<sub>2</sub>原単位比は増加し63.8%となるが、検討したシステムの中で最も小さい。システムIの場合、CO<sub>2</sub>原単位比は78.6%となり、システムAより増加する。

(2) 炭素転換率

各システムと炭素転換率の関係を図-7に示す。炭素転換率はシステムIでは製品が水素で、原料メタン中の炭素は改質段階でCOまたはCO<sub>2</sub>として排出されるため0%となる。次に、システムBで47%、石炭の水

添ガス化でメタンを使用しないシステムCが50%と低く、石炭を水蒸気ガス化するシステムAは約60%となる。その他のシステムではいずれも炭素転換率は80%以上であり、システムE、Hでは水蒸気ガス化ならびにメタンの水蒸気改質でメタンの循環を行っているため92%~94%と高い炭素転換率となる。システムF、Gではガス化ガス（石炭・重油等から製造された気体）にSOSEより製造した水素を添加するために95%と最も高い炭素転換率となる。すなわちシステムF、Gは化石燃料中の炭素を最も有効に利用するシステムである。尚、石炭を改質するシステムにおいて石炭中の炭素含有率は以下の通りとした。

- ・システムF：太平洋炭として62wt%
- ・システムC、E：文献（4）、（5）の石炭水蒸気ガス化質量バランスより76.8wt%
- ・その他：ブレアソール炭、大同炭の平均値70.5wt%

(3) エネルギー増加率

各システムとエネルギー増加率の関係を図-8に示す。エネルギー増加率はシステムFで約35%と最も高く、次にシステムG、I、A、Eの順となっている。その他のシステムではエネルギー増加率はマイナスであり、システムBが約-23%と最も低い値となっている。この原因は、システムAで製造するメタンに比べてメタノールは高位発熱量が小さいためと考えられる。化石燃料の改質法に着目してみると、水添ガス化の場合にエネルギー増加率が低く、これは水添ガス化法の炭素転換率が低いことに起因している。メタンの水蒸気改質を行うシステムI、JにおいてシステムIのエネルギー増加率が高いのは、システムIの製品が高位発熱量が大きい水素のみであるのに対し、システムJは水

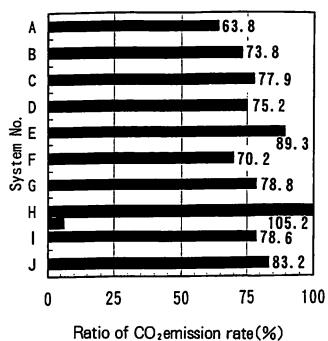


図-6 二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) が大気中に放出される場合の各システムでのCO<sub>2</sub>原単位比

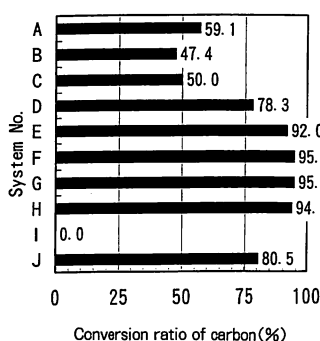


図-7 各システムでの炭素転換率

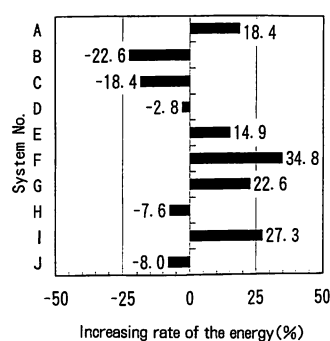


図-8 各システムでのエネルギー増加率

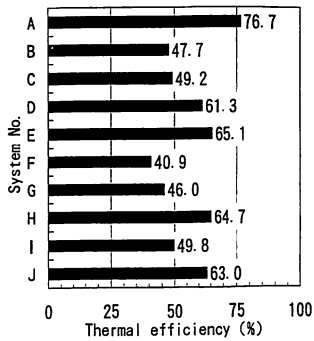


図-9 各システムでのプラント総合熱効率

素と高位発熱量が小さいメタノールが製品であるためである。部分酸化・SOSEの同一システムの組み合わせであるシステムF, Gは中間段階で電解により製造した水素を原料からのガス化ガスに添加するシステムであり、炭素転換率が高いので、エネルギー増加率が高い。両システムを比較した場合、システムFのエネルギー増加率が大きいのは石炭の高位発熱量が重質油の値より小さいためである。

#### (4) プラント総合熱効率

各システムとプラント総合熱効率の関係を図-9に示す。プラント総合熱効率は石炭をメタンに改質するシステムAが77%と最も高く、システムE, H, J, Dでは59~67%である。一方、システムCは石炭の水添ガス化の炭素転換率が低いことからプラント総合熱効率は低くなる。システムF, Gは水素製造のためにSOS Eへの電力を供給する発電設備の熱効率が支配的となり、プラント総合熱効率はさらに低下する。

またメタンの水蒸気改質システムは、検討した10種類のシステムの中の6種類のシステムに組み込まれており、核熱利用の共通技術として位置づけられる。メタンから水素のみを製造するシステムIは、メタン資源の枯渇が懸念される場合、エネルギーの安定供給の観点からは推奨できないが、製造した水素を石炭に添加するシステム(システムC, D)などと組み合わせることは有意義なことである。

## 5. 結論

核熱を用いた化石燃料改質システムとして10種類のシステムを検討した。評価指標としては、CO<sub>2</sub>原単位比を最重要指標とし、炭素転換率、エネルギー増加率、システム総合熱効率の4種類を用いた。その結果以下

の知見を得た。

(1) 原料に対する製品のCO<sub>2</sub>原単位比は、石炭の水蒸気ガス化によるメタン製造システムが最も低くCO<sub>2</sub>低減効果が最も大きい。

(2) 上記システムはプラント総合熱効率が最も高い。

(3) 炭素転換率は石炭及び重質油の部分酸化と高温水蒸気電解またはメタンの水蒸気改質による水素を組み合わせたシステムが90%以上と高く、化石燃料の有効利用に効果的である。

(4) メタンの水蒸気改質システムは検討した10種類のシステムの中の6種類のシステムに組み込まれており、核熱利用の共通技術として位置づけられる。したがって、メタンの水蒸気改質による水素製造システムを試験研究を行う小規模の高温ガス炉に接続するプラントとして計画することは有意義なことと言える。

謝辞

本研究を進めるに当たり、貴重な助言を頂いた千葉大学工学部の菱田誠教授、日本原子力研究所の小川益郎氏並びに稲葉良知氏に深く感謝いたします。

## 参考文献

- 1) 日本原子力研究所編；高温工学試験研究の現状，(1996)，65-70.
- 2) 稲葉他；核熱利用システムの現状と将来動向，JAERI-Tech 96-007 (1996)，日本原子力研究所.
- 3) 文沢他；ガスタービンを用いた原子力コージェネシステム，エネルギー・資源，18巻，5号(1997)，485-490.
- 4) Baust E., et al. ; The HTR for process Heat Application According to the BBC/HRB-Concept, Nucl. Eng. and Design (1984), 119-127.
- 5) Jager W., et al. ; Nuclear Process Heat Application for the Modular HTR, Nucl. Eng. and Design (1984), 137-145.
- 6) 角田；西独における高温ガス炉とそのプロセスヒート利用(その3)，FAPIG, 111巻，(1985)，76-91.
- 7) Schleicher R. W., et al. ; Modular High Temperature Gas-Cooled Reactor or Heat Source for Coal Conversion, US DOE Rep., 16 (1992) US DOE.
- 8) Singh J., et al. ; The Nuclear Heated Steam Reformer-Design and Semitechnical Operating Experience, Nucl. Eng. and Design (1993), 179-194.
- 9) 宮本；原子力熱エネルギーを利用した水素製造について，北海道石炭研究会，54巻(1993)，71-84.
- 10) 文沢他；核熱・石炭によるメタノール製造システムの概念検討”，JAERI-Tech, 96-002 (1996)，日本原子力研究所.
- 11) 石油学会編；新石油化学プロセス，(1986) 幸書房.