

二塔式循環流動層ガス化炉 TIGAR[®] による 褐炭・バイオマスのガス化

Gasification of Lignite Coal and Biomass Using Twin IHI Gasifier (TIGAR[®])

須田俊之	技術開発本部基盤技術研究所熱・流体研究部 課長 博士(工学)
劉志宏	技術開発本部基盤技術研究所熱・流体研究部 課長 博士(工学)
高藤誠	技術開発本部基盤技術研究所熱・流体研究部 課長
濱田行貴	技術開発本部総合開発センター化学システム開発部 課長
谷秀久	エネルギーシステムセクター二塔式ガス化炉プロジェクト室 課長

近年の原油や天然ガス価格の高騰に伴い、石炭をガスに変換し利用するガス化技術が注目されている。筆者らは、活性が高くガス化に適している褐炭などの低品位炭に着目し、褐炭に適したガス化炉として二塔式循環流動層ガス化炉 TIGAR[®] を開発した。TIGAR[®] は、循環流動層ボイラの技術を応用したものであり、気泡流動層ガス化炉と高速流動層燃焼炉を組み合わせることで 800～900℃の低温・常圧下で高い水素濃度のガス化ガスを生成することができる。本ガス化炉の設計に当たっては、冷ガス効率などガス化炉の性能を予測することが重要であり、筆者らは性能に大きく影響すると考えられる気泡流動層ガス化炉内の粒子滞留時間を予測する手法を開発した。本稿では、本予測手法とその検証結果について述べる。

The importance of coal gasification technology is increasing around the world due to the rising cost of oil and natural gas. Lignite coal is suitable for gasification because of its high reactivity, and since there are huge reserves of this coal available, simple and cheap gasifier is needed. IHI has developed the TIGAR[®] (Twin IHI Gasifier) process for lignite coal, based on our commercialized circulating fluidized bed technology. TIGAR[®] is a circulating fluidized bed gasifier with twin reactors (a riser combustor and a bubbling bed gasifier), and can produce high calorific syngas at low temperatures (800 - 900°C) and atmospheric pressures. In the development of TIGAR[®], predicting the Residence Time Distribution (RTD) of coal particles inside the gasifier was important because it affects the performance (cold gas efficiency) of the gasifier. This paper demonstrates the numerical model for the prediction of the RTD of coal particles inside the gasifier.

1. 緒 言

近年の原油や天然ガス価格の乱高下から、ほかの化石燃料に比較して価格が安定している石炭の利用技術の重要性が高まっている。石炭をエネルギー源として利用する場合、従来は主に燃焼で蒸気を発生し発電するボイラ燃料として利用されてきた。しかし、将来は IGCC (石炭ガス化複合発電) のようにさらなる高効率化や、ガス化ガスである一酸化炭素および水素からメタノール、メタンなどの燃料を合成し化学原料として利用する手法が重要になる。これら手法の鍵となるのは石炭ガス化技術であり、世界では各種のガス化技術の研究開発が進められている。

石炭ガス化とは、石炭の熱分解とチャーガス化反応によって石炭を一酸化炭素、水素などのガスに変換する技術である。ガス化反応は吸熱反応であり、空気や酸素によって部分酸化することでガス化に必要な熱を供給する。ガス

化剤としては、酸素、水蒸気、空気などが用いられる。ガス化炉としては固定床・噴流床・流動層など各種の型式が開発されており、それぞれ異なる特長をもっている。

筆者らは石炭のなかでも反応性が高い褐炭に着目し、褐炭に適したガス化技術の研究開発を実施している。褐炭に代表される低品位炭は世界の石炭埋蔵量のなかでおよそ半分を占めているものの、その水分の多さから利用率は限られており、高効率に利用する技術が求められている。褐炭は揮発分の多さ、AAEM (アルカリ・アルカリ土類金属) の触媒作用によるチャーの反応性の高さなどから⁽¹⁾、ガス化の原料に適している。筆者らは、褐炭ガス化に適したガス化炉として、循環流動層ボイラ技術を基にした二塔式循環流動層ガス化炉 TIGAR[®] (Twin IHI Gasifier) の開発を進めてきた。二塔式循環流動層ガス化炉は高速流動層 (ライザ) 燃焼炉と気泡流動層ガス化炉を組み合わせたガス化炉であり、高濃度・高発熱量のガス化ガスを発生させ

ることができる。本稿では本ガス化炉の開発に当たって主に取り組んだガス化炉内の粒子滞留時間予測手法について述べる。

2. TIGAR® の特長と性能予測

二塔式ガス化炉自体のアイデアは古く、世界にも主にバイオマス燃料を対象として各種流動層を組み合わせた二塔式ガス化炉の研究開発が行われている⁽²⁾。第1図に流動層型式の違いによる二塔式ガス化炉の組合せを示す。筆者らは褐炭用ガス化炉として第1図-(d)に示す気泡流動層ガス化炉と高速流動層燃焼炉の組合せを採用した。その理由は、①水蒸気ガス化反応速度は燃焼反応と比較して、数桁低くガス化炉として滞留時間を十分長く得る必要がある②二塔式ガス化炉の場合、循環粒子がガス化反応に必要な熱を輸送する必要があり、ガス化炉温度を高く保つためには高濃度粒子循環が必要である、ことである。

粒子混合が比較的緩やかな気泡流動層ガス化炉によってガス化炉内の石炭粒子の滞留時間を十分に確保し、高速流動層によって粒子の搬送量を増やし循環量を大きく保つことができる。特にガス化炉に関しては、水平に粒子が移動するガス化炉としていることが大きな特長である。商用化に成功しているバイオマス用の二塔式ガス化炉の例では、粒子が垂直方向に移動する型式のガス化炉がある。しかし、粒子の偏析や偏流によって燃料粒子の滞留時間が十

分に確保できない可能性があり、褐炭用としては適切でない。

TIGAR® の設計に当たっては、この気泡流動層ガス化炉の性能を予測することが重要である。ガス化炉の性能は基本的には燃料中の熱量をどれだけガスの熱量に変換できるか、つまり冷ガス効率 (= ガス化ガス (シンガス) の熱量 / 投入燃料の熱量) で示されるが、これは主に石炭中の炭素を水蒸気ガス化反応によってどれだけガス (一酸化炭素 + 水素) に変換できるかで決定される。ガスに変換できた石炭中の炭素の割合を炭素転換率と呼び、炭素転換率 = シンガス中炭素量 / 燃料中炭素量で表される。ガス化炉内の石炭粒子の滞留時間分布を $E(t)$ 、時間ごとの石炭粒子の炭素転換率を $X(t)$ と表すと、ガス化炉全体としての炭素転換率 η_c は (1) 式で簡易的に表すことができる。

$$\eta_c = \int_0^{\infty} E(t) \cdot X(t) dt \dots\dots\dots (1)$$

時間ごとの石炭粒子の炭素転換率 $X(t)$ は、たとえば小型流動層にバッチ式で燃料を投入し水蒸気ガス化反応による炭素転換率の時間変化を測定することで得ることができる。ガス化炉内の石炭粒子の滞留時間分布 $E(t)$ は試験などで得ることは可能であるが、 $E(t)$ は流動層スケールの影響を大きく受けることが予想され、特にスケールアップ時の $E(t)$ を予測できるモデルを構築することが必要になる。

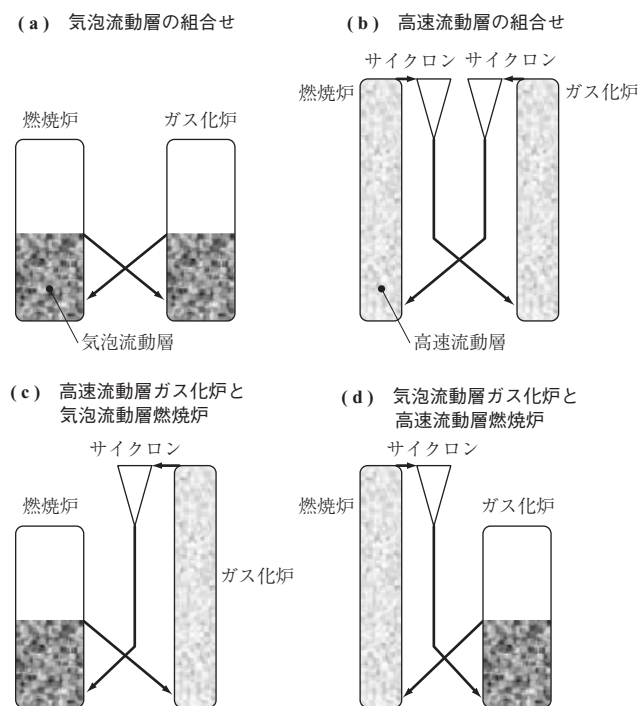
そこで、気泡流動層ガス化炉内の石炭粒子の移動をモデル化し、モデルに基づいて滞留時間分布 $E(t)$ を計算する手法を構築した。計算結果は試験結果によって検証し、その精度を確認した。最終的には、パイロット炉のガス化炉炭素転換率を予測し、実際に計測された炭素転換率との比較を行った。以下にその詳細を述べる。

3. 方 法

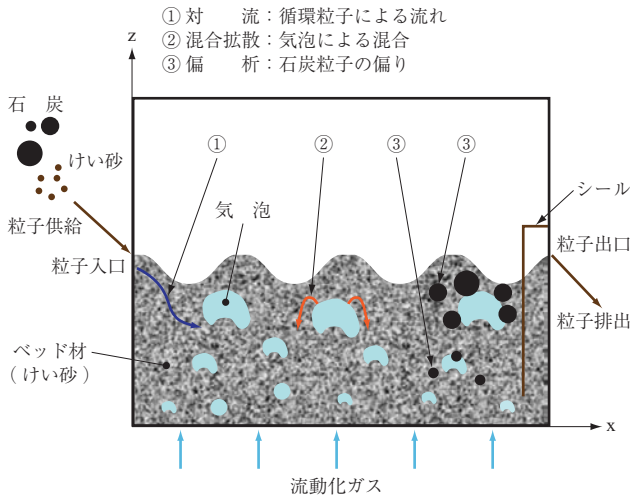
3.1 モデリング

第2図に気泡流動層ガス化炉内の石炭粒子の移動に影響する因子を示す。粒子は主に、①循環している粒子 (ベッド材) による対流②気泡による混合拡散③垂直方向の偏析、によって気泡流動層内を移動する。したがって、粒子の x - z 方向の二次元濃度分布は簡易的に (2) 式で表される。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial x} + wS \frac{\partial C}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) \dots\dots\dots (2)$$



第1図 二塔式ガス化炉の型式
Fig. 1 Configuration of twin fluidized bed gasifier

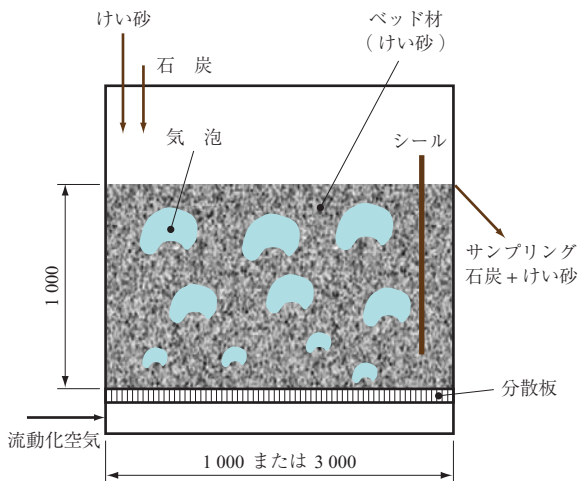


第2図 気泡流動層ガス化炉内の石炭粒子の移動
Fig. 2 Flow of coal particles inside the gasifier

ここで C は石炭粒子濃度, u は水平方向の粒子速度, w は垂直方向の粒子速度, D_x, D_z はそれぞれ水平・垂直方向の混合拡散係数である. S は偏析の程度を表すパラメータである. 流動層内の粒子の移動は非常に複雑であり, S, D_x, D_z を理論的に求めることは困難なため, 横幅 1 m の気泡流動層のコールドモデルによって試験的に S, D_x, D_z を求め, その値を用いることで粒子濃度分布を計算し, 最終的には出口から排出される石炭粒子濃度の時間変化, すなわち滞留時間分布を求めた.

3.2 検証試験

検証のため, 小型の二次元流動層コールドモデルを用いて石炭粒子の滞留時間分布を測定した. コールドモデル試験装置の模式図を第3図に示す. 流動層の片側から流動砂を連続投入し, さらに石炭粒子をパルス状に投入し, もう片側においてオーバーフローする粒子を一定時間ごとに



第3図 コールドモデル試験装置の模式図 (単位: mm)
Fig. 3 Cold model test apparatus (unit: mm)

サンプリングした. サンプリングされた粒子内の石炭粒子濃度を, ふるいを用いて測定し, その時間変化をプロットすることで石炭粒子の滞留時間分布を測定した. なお, ベッド材としては平均粒径 300 μm のけい砂, 石炭粒子としては平均粒径 1 mm 程度に分級した褐炭粒子を用いた.

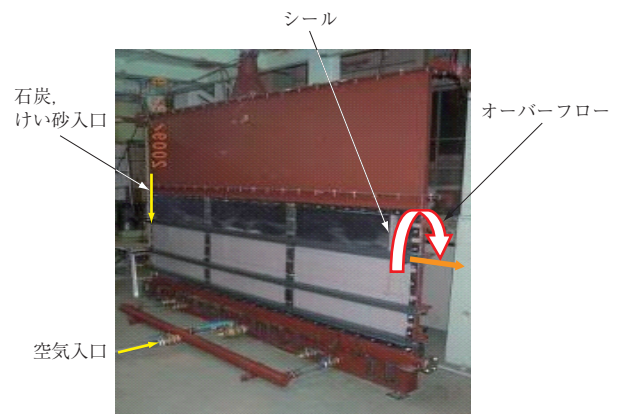
コールドモデルとしては水平方向長さ 1 m のものと 3 m のものを用いた. 横幅 1 m の試験結果から (2) 式に示した S, D_x, D_z を求め, 滞留時間分布を計算した. 本モデルがスケールアップ時も妥当であることを示すため, 水平方向長さ 3 m のコールドモデルによって滞留時間分布に対するスケールの影響を把握し, 本モデルによる予測試験結果との比較を行った. 長さ 3 m のコールドモデル試験装置の概観を第4図に示す.

4. 結果および考察

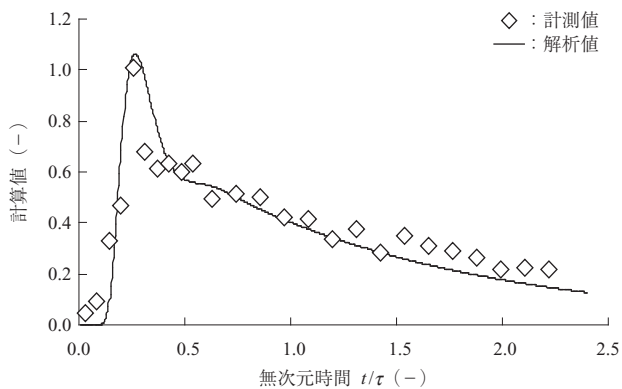
4.1 モデルを用いた滞留時間分布の計算結果

長さ 1 m の流動層を対象にした石炭粒子の滞留時間分布の試験結果と, 本試験結果から求めた S, D_x, D_z を基に計算した滞留時間分布の比較結果を第5図に示す. 横軸は平均滞留時間 τ (= 流動層内の粒子が連続投入される流動砂によって置換される時間) によって無次元化した.

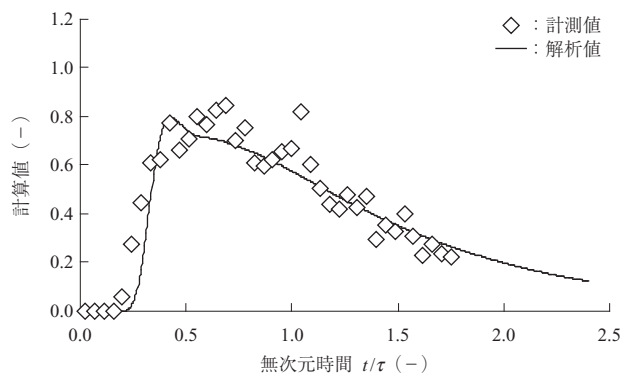
第5図から, 石炭粒子の滞留時間はブロードな分布をもつことが分かる. 流動層内の流れがプラグフローであれば, 滞留時間は分布をもたず $t/\tau = 1$ のところにピークをもつパルスとなる (t = 滞留時間). 実際はそれよりもかなり早い時間において粒子が排出されている. これは第2図の②に示した流動層の気泡による混合拡散の影響が大きく, パルスで流動層内に投入された石炭粒子が早い段階で流動層内に混合拡散し, 連続投入される流動砂によって押



第4図 長さ 3 m コールドモデル試験装置の概観
Fig. 4 Overview of cold model test apparatus with a 3 m width



第 5 図 滞留時間分布 (流動層長さ 1 m)
Fig. 5 RTD of coal particles (width: 1 m)



第 6 図 滞留時間分布 (流動層長さ 3 m)
Fig. 6 RTD of coal particles (width: 3 m)

し出されることで第 5 図に示す分布をもつと考えられる。
なお、計算でも試験と同様な分布図を描くことができた。これは、第 2 図および (2) 式に示すガス化炉内の石炭粒子移動モデルが必要十分な因子を網羅していることを示している。

4.2 長さ 3 m コールドモデルによる検証結果

第 4 図に示した長さ 3 m のコールドモデル試験装置で計測した滞留時間分布と予測結果との比較を第 6 図に示す。スケールに影響されないと考えられる S , D_x , D_z などのパラメータを特に変更することなく試験結果と予測結果が良く一致した。

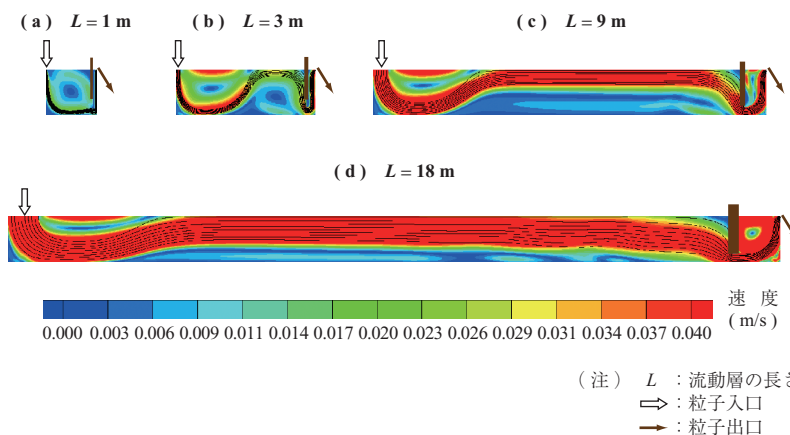
本結果から、構築したモデルが気泡流動層内の粒子の移動を精度良く表現していること、本モデルがスケールアップ時にも利用可能なことが示された。第 5 図と第 6 図とを比較すると、長さ 3 m の場合の滞留時間分布は長さ 1 m の場合に比較して滞留時間が増加している (ピーク位置が右側にずれている) ことが分かる。これは第 2 図に示した混合拡散と対流に対するスケールの影響で説明できる。つまり、粒子の混合拡散は基本的には流動層内の気

泡の移動に影響されるが、流動化の強度 (空塔速度/最小流動化速度) などの運転条件が変わらない限り、気泡の大きさは流動層のスケールには影響されず、したがって混合拡散係数にもスケールは影響しない。

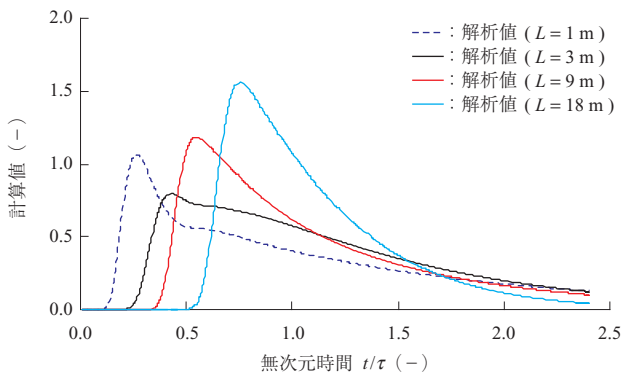
一方、対流については、平均滞留時間 τ が一定ならスケールアップに伴い水平方向速度 u は増加することになり、相対的に対流に対して混合拡散の影響が小さくなる。この結果、滞留時間分布はスケールが大きくなるほどプラグフローである $t/\tau=1$ に近づくと考えられる。

4.3 滞留時間分布に対する流動層スケールの影響

長さ 18 m まで流動層を拡大した場合に対して、石炭粒子流れの計算結果を第 7 図に、滞留時間分布の計算結果を第 8 図に示す。第 7 図から、石炭・流動砂投入口近傍においては主に下向きの流れが発生するが、それ以降は比較的水平的の流れによって粒子が運ばれることが分かる。流れのパターン自体はスケールによってそれほど変化していない。第 8 図から、滞留時間分布は、スケールが大きくなるほどピークの位置がより滞留時間が大きいほうにシフトしていくことが分かる。これは 4.2 節で述べたように、



第 7 図 流動層内流れに対するスケールの影響
Fig. 7 Effect on particle flow of increasing the scale



(注) L: 流動層の長さ

第 8 図 滞留時間分布に対するスケールの影響
Fig. 8 Effect on RTD of increasing the scale

スケールアップに伴い混合拡散の影響が小さくなっていくことが理由と考えられる。ただし、幅 18 m のような大きな流動層であっても滞留時間は分布をもち、混合拡散の影響は相対的には小さくなるが無視できるほどまでには小さくならない。

本モデルによって、スケールアップ時も滞留時間分布が計算可能な手法を構築することができた。計算手法としては、離散要素法 (DEM) のように粒子一つ一つを計算する手法なども存在する。しかし、スケールアップに伴い計算対象の粒子数が大幅に増加するため、計算時間が非現実的なものになってしまう。適用範囲の限界があるものの、本モデルのように、粒子を連続体として扱い、簡易的な対流・拡散モデルによって粒子の滞留時間分布を表すことは最適設計のためにも重要な課題と考えられる。

5. パイロット炉の性能予測

最終的には石炭粒子の滞留時間分布からガス化炉としての性能を予測することが必要であり、パイロット炉を用いた試験によって、性能予測結果と試験結果の比較を行った。

TIGAR® パイロット炉の概観を第 9 図に示す。本パイロット炉は石炭供給量 6 t/d (250 kg/h) のガス化炉であり、石炭供給を自動で行うことで連続運転が可能になっている。ガス化炉以外に、ガス精製を行う装置と水処理装置が設置されており、ガス化プロセス全体としての性能確認を行える装置になっている。

試験においては、石炭を連続投入しガス化炉温度・燃焼炉温度などプラントが定常状態となったときのガス発生量・ガス組成を分析し、投入炭素量とガス化ガス中の炭素量を比較することで炭素転換率を算出した。

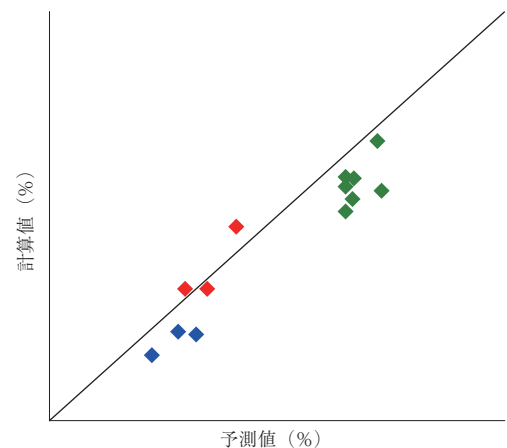


第 9 図 TIGAR® パイロット炉
Fig. 9 TIGAR® pilot plant

ガス化炉の予測においては、実際の運転条件をインプットデータとして、3.1 節に述べたモデルによってガス化炉内の石炭粒子の滞留時間を計算した。石炭そのものの反応性はバッチ式の小型流動層ガス化試験装置によって炭素転換率の時間変化を求めた。また、(1) 式によって滞留時間分布と炭素転換率時間変化を掛け合わせたものを積分しガス化炉全体としての炭素転換率を計算した。

第 10 図に、横軸を予測した炭素転換率、縦軸を実測の炭素転換率として予測結果と試験結果の比較を示す。原点を通る傾き 1 の直線が予測結果 = 試験結果となる場合となる。試験結果としては、ガス化炉温度などを変化させた各種の運転条件下で実施した結果 (長時間の運転結果を平均化したもの) を複数載せた。

第 10 図から、おおよそ予測結果と試験結果の傾向が一致することが分かる。実際の流動層ガス化炉内の粒子の移動や化学反応は非常に複雑であり、その詳細をすべてモデル化できるような手法は存在しない。しかし本結果は、ガス化性能はガス化炉内の滞留時間分布と石炭の反応性に



第 10 図 炭素転換率の予測結果と試験結果比較
Fig. 10 Comparison of predicted and experimental values for carbon conversion

よって表現できること, (1) 式のような簡易的なモデルであってもおよそのガス化炉の性能予測が可能であることを示している.

6. 結 言

TIGAR[®] の設計に当たってはガス化炉の性能を予測することが重要であり, 性能に大きく影響すると考えられる気泡流動層ガス化炉内の粒子滞留時間を予測する手法を開発した. コールドモデル試験による検証によって, スケールアップ時でも予測手法と実測値が良く一致すること, また, スケールアップに伴い混合拡散の影響が小さくなり滞留時間分布がプラグフローに近づくことを明らかにした. また, パイロット炉を用いた試験結果によって, ガス化炉の炭素転換率の予測結果と実測値がおおよそ一致することを明らかにした.

実際のガス化炉においては, 水蒸気ガス化反応に伴い粒子径は変化すると考えられること, また流動層内部でのガス発生によって混合拡散への影響が考えられること, など非常に複雑な現象になっていることが予想される. 計算モデルのなかにすべての現象を網羅することは大変困難であるが, 本モデルは重要な現象に着目しモデル化することによって, 現実的な計算時間でガス化炉の性能を予測することが可能になっている.

なお, 本稿では褐炭を用いた場合について述べているが, バイオマス燃料を用いた場合でも反応性などを変更するのみで適用可能である. 今後, バイオマス・褐炭を含む各種燃料を用いたガス化試験を実施し, 本モデルの適用性拡大, また精度向上を目指す予定である.

— 謝 辞 —

TIGAR[®] パイロット炉を用いた連続ガス化試験については, 経済産業省の支援のもとに試験を実施している. ここに記し, 深く感謝の意を表する.

参 考 文 献

- (1) Xiaojiang Li, Hongwei Wu, J. Hayashi and Chun-Zhu Li : Volatilisation and catalytic effects of alkali and alkaline earth metallic species during the pyrolysis and gasification of Victorian brown coal. Part VI. Further investigation into the effects of volatile-char interactions Fuel Vol. 83 Issue 10 (2004. 7) pp. 1 273 - 1 279
- (2) J. Corella, J. M. Toledo and G. Molina : A Review on Dual Fluidized-Bed Biomass Gasifiers Ind. Eng. Chem. Res. Vol. 46 No. 2 (2007. 9) pp. 6 831 - 6 839