

## ■ 研究論文 ■

## アンモニア製造のための核熱利用石炭ガス化システム

## The Coal Gasification System Using Nuclear Heat for Ammonia Production

稲葉良知\*・文沢元雄\*\*

Yoshitomo Inaba Motoo Fumizawa

殿河内 誠\*\*\*・竹中 豊\*\*\*\*

Makoto Tonogouchi Yutaka Takenaka

(原稿受付日1997年10月27日, 受理日1998年4月17日)

## Abstract

Atomic energy utilization is an effective way of solving the global warming by CO<sub>2</sub> emission. Thermal energy utilization accounts for more than two thirds of total energy utilization at present, and therefore it is important to extend the heat utilization of atomic energy because of the reduction of CO<sub>2</sub> emission in the world.

In this report, we studied the coal gasification system using HTGR nuclear heat in an ammonia production plant as the system using the atomic energy directly as well as generating electricity. We selected a steam reforming method as the coal gasification using the nuclear heat and could improve the heat utilization efficiency of secondary helium gas from HTGR by adopting the two-stage coal gasifier. Finally, we clarified that this new system using the nuclear heat could reduce CO<sub>2</sub> emission by about five hundred thousand tons per year compared with the conventional system using fossil fuel, and described the subjects for the realization of the coal gasification system using the nuclear heat.

## 1. はじめに

二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) による地球温暖化は, 近年, 地球規模で問題となっており, 早急にCO<sub>2</sub>排出量を削減する必要が出てきている。

原子力エネルギーの利用は, 化石燃料によるCO<sub>2</sub>問題を根本的に解決する手段として最も有効なもの1つであり, 長期的には不可欠である。しかし現在, 全エネルギー利用の3分の2以上は電力以外の熱エネルギー利用で占められており, 世界全体のCO<sub>2</sub>排出量抑制のためには原子力の熱利用面における拡大が重要となってくる。そこで本研究では, 原子力エネルギーを電気としてだけでなく熱エネルギー源として直接産業利用するシステム, 特に熱利用炉として注目されている高温ガス炉の核熱を用いた石炭ガス化システムについて検討した。高温ガス炉核熱を用いた産業システム

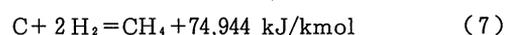
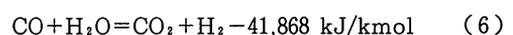
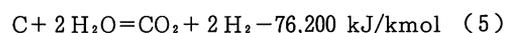
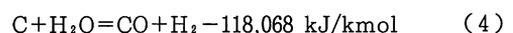
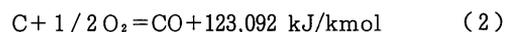
についての検討は, これまでアメリカ<sup>1)</sup>やドイツ<sup>2)</sup>を中心として行われてきた。

対象とするプラントは, 既存の石炭ガス化システムとして実績のある国内の代表的アンモニア製造プラントとし<sup>3)</sup>, そのガス化プロセスの熱源に, 既存システムの加熱源に代えて, 高温ガス炉核熱を用いるシステムについて検討を行った。

## 2. ガス化方式

ここでは, 既存の石炭ガス化プロセスと対比させて, 核熱利用の石炭ガス化方式を検討した。既存のガス化プロセスでは, 石炭・水スラリー (CWS) 及び酸素を原料とし, 高温において部分酸化法により石炭をガス化する。

石炭ガス化の基本反応式は, 以下のとおりである<sup>3)</sup>。



\* 日本原子力研究所 核熱利用研究部熱利用システム研究室研究員

\*\* " " 副主任研究員

〒319-1394 茨城県東茨城郡大洗町成田町新堀3607

\*\*\* 宇部興産(株)環境・化学エンジニアリング部主席

〒755-8633 山口県宇部市西本町1-12-32

\*\*\*\* (株)原子力発電技術機構 原子力安全解析所所幹

〒105-0001 東京都港区虎ノ門3-17-1

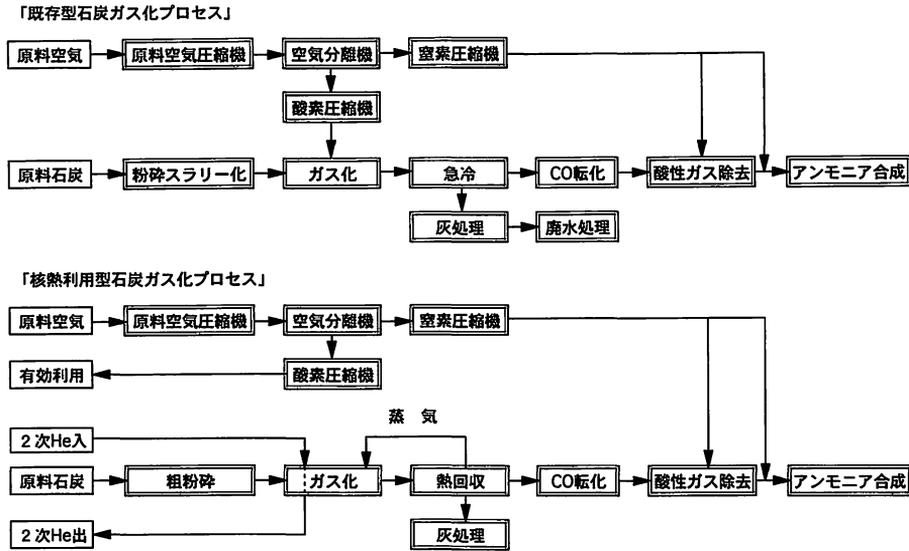


図-1 既存型と核熱利用型のガス化プロセス比較

部分酸化法の場合、ガス化温度（約1,350℃）を維持する熱源は式（1）及び（2）中の酸素による燃焼熱であり、外部からの熱供給を必要としない。これに対し核熱利用の場合には、酸素を供給せず外部から熱供給を行う水蒸気改質法を採用する。この場合、式（3）以降の反応式を主として反応が進むため、吸熱反応となる。

図-1に、部分酸化法（既存型）と水蒸気改質法（核熱利用型）のプロセス比較を示す。既存型では、酸素を石炭ガス化炉に供給し石炭のガス化を行うが、核熱利用型では酸素の供給を行わず、高温ガス炉からの2次ヘリウムガスを供給しガス化を行う。

### 3. ガス化炉型式

石炭ガス化炉型式として、下記の点を考慮し、流動床炉を採用する。

- ・間接加熱が容易な構造で、さらに伝熱係数が高いため伝熱面をコンパクトにできる。
- ・ヘリウムガス温度に制限があるため、低温ガス化が要求される。従って、流動媒体として触媒を用い、均一な温度制御が可能である流動床炉が有利となる。

### 4. ガス化条件

水蒸気改質法の石炭ガス化条件に関するプロセス因子は、次のとおりである。

#### ①ガス化温度

図-2に、ガス化組成に及ぼす温度の影響を示す。ガ

ス化温度が高いほど平衡上有利であるが、核熱利用においては循環ヘリウムガスの入口温度に900℃という制限があるため、ガス化セクション出口ヘリウムガス温度を800℃に設定し、ガス化温度を750℃とした。

#### ②ガス化圧力

図-3に、ガス化組成に及ぼす圧力の影響を示す。ガス化圧力が低いほど改質は進むが、後工程のアンモニア合成で昇圧が必要であり、許容される最低圧力として10atm（1MPa）を採用した。

#### ③蒸気/炭素比

図-4に、ガス化組成に及ぼす蒸気/炭素比の影響を示す。蒸気/炭素比については、3付近より生成ガス濃度に大きな変化がなくなってくるため、代表値として3を採用した。

#### ④ガス化効率

ガス化効率を評価する炭素転換率については、ガス

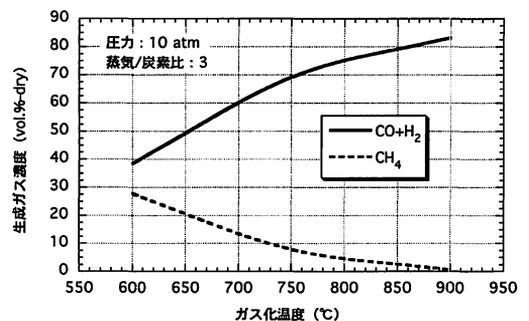


図-2 ガス化温度の影響

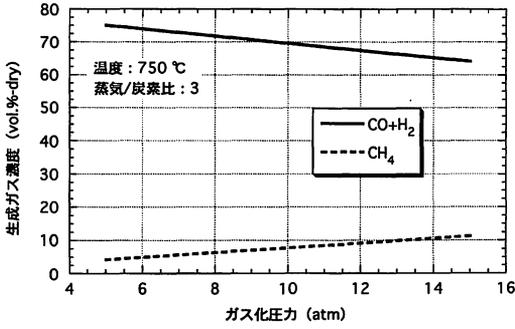


図-3 ガス化圧力の影響

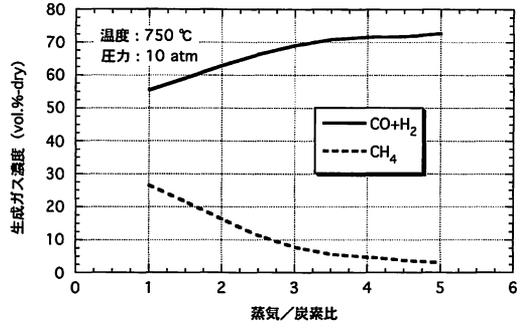


図-4 蒸気/炭素比の影響

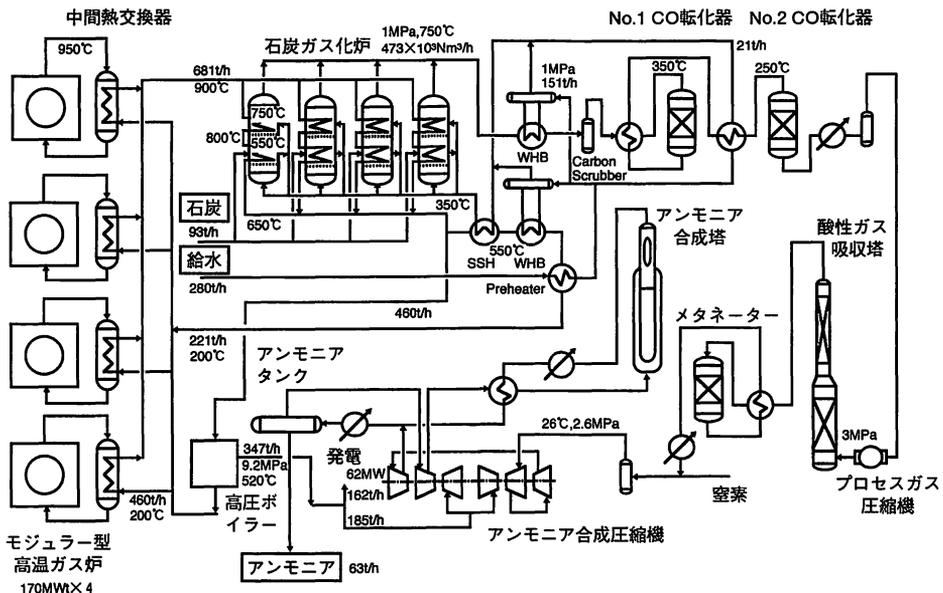


図-5 核熱利用石炭ガス化アンモニア製造プラントのシステムフロー図

化炉特性によって大きく左右される値であり、参照データのない現状においては100%と仮定した。

なお図-2、図-3、図-4のガス化組成の算出には、平衡計算を用いた。

5. システム概念の検討

図-5に、検討した核熱利用石炭ガス化アンモニア製造プラントのシステムフローダイアグラムを示す。図中のSSHはSuper Steam Heaterを、WHBはWaste Heat Boilerを示している。本プラントは、以下のような工程から構成されている。

(1) 原子炉系

原子炉系は、定格出力170MW、出口温度950℃のモジュール型高温ガス炉<sup>1)</sup> 4基と中間熱交換器4基から

成る。原子炉と中間熱交換器は、それぞれ円筒状のコンクリート容器内に収められており、それらは地中に埋設されている。4基の原子炉及び中間熱交換器を収納した原子炉建屋に隣接して、原子炉補助建屋、ヘリウム貯蔵建屋、使用済燃料中間貯蔵建屋、電源設備建屋等がある。これら4基の原子炉は、全て共通の運転制御室により運転される。また原子炉と中間熱交換器は、短い2重管クロスダクトで接続され、サイドバイサイドに配置される。

(2) 石炭ガス化系

石炭ガス化炉は4基並列に設置され、4基常時稼働とする。

図-6に、本システムで採用した2段式石炭ガス化炉の概要を示す。ガス化炉本体は2段構造になっており、

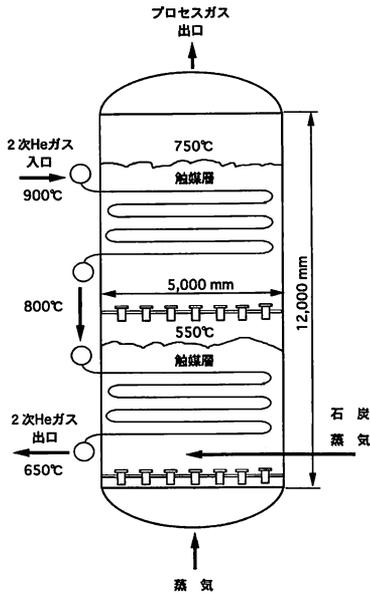


図-6 2 段式石炭ガス化炉概要図

下段が石炭フィード及び熱分解ゾーン，上段が改質ゾーンの役目を担っている。

下段は550°Cで運転され，石炭の熱分解及び揮発分の改質が行われる。改質に必要な蒸気は，下部の分散板から炉内へ均一分散され，石炭を流動化する。流動媒体として触媒を用い，反応を促進させる。ガス化ガス，石炭チャー，未改質ガスは上段のガス化炉へ送られる。また一部の触媒も抜き出され，蒸気と共に上段ガス化炉に送られる。

上段では750°Cで仕上げの改質が行われ，CO及びH<sub>2</sub>リッチな改質ガスが発生する。

なお，上段・下段共に，触媒を流動媒体にした流動床型ガス化炉である。

### (3) 発生ガス精製系及びアンモニア合成系

発生ガスは熱回収により蒸気を発生させた後，カーボンスクラバーにおいて発生カーボンを除去され，一般的なガス精製及びアンモニア合成工程に入る。アンモニアは最終的に，63t/hの割合で生産される。

### (4) 蒸気発生及び発電系

ガス化工程を出た650°Cの2次ヘリウムガスは，改

質に必要なプロセス蒸気の発生，所内動力用の高圧蒸気の発生に用いられる。その後，200°Cまで熱を回収され，中間熱交換器に戻る。

## 6. 核熱利用型石炭ガス化システムの有効性

### (1) システムの特徴

表1に，既存の石炭ガス化アンモニア製造プラントのエネルギー原単位を示す。表中の原料に示された熱量換算値とは，石炭ガス化反応（吸熱反応）に必要な熱量であり，水蒸気改質法では外部から与えてやる必要熱量である。核熱の利用を考える場合，必要全体熱量の44%を占めるこの熱量に，核熱がどう利用できるかが最も重要なポイントとなる。仮に2次ヘリウムガスの使用可能な熱量の内，44%をガス化工程において利用できれば，ほぼ100%の熱利用率となり理想的なプロセスとなる。しかしながら，2次ヘリウムガスの温度には900°Cという制限があり，改質側にも750°C以上は最低限必要という制限があるため，ガス化工程を出る2次ヘリウムガスの温度が下げられないというジレンマに陥る。

本システムでは以上の問題点を是正しており，運転温度の異なる2段式の石炭ガス化炉を設けることにより，2次ヘリウムガスの熱をガス化工程において最大限に利用する所に大きな特徴がある。仮に1段式ガス化炉とした場合には，2次ヘリウムガスのガス化工程出口温度が800°C程度となり，利用回収熱量の内14%をガス化工程で利用しているにすぎない。この結果，アンモニア1トン当たりの製造に必要な2次ヘリウムガス量が増加してしまう。これに対し2段方式では，2次ヘリウムガスの出口温度を650°Cまで下げられるので，ガス化工程での熱利用率は36%に上がる。さらに廃熱利用による必要電気・蒸気の回収を加えれば，システム全体として80~90%の熱利用率となる。

図-7に，2次ヘリウムガスの熱利用状況の代表例として，エンタルピー線図を示す。また表2に，2次ヘリウムガスの熱利用割合を示す。

### (2) CO<sub>2</sub>発生削減量

既存の部分酸化法による石炭ガス化炉において必要

表1 石炭ガス化に必要なエネルギー原単位

項目	適用	製造原単位	熱量換算基準値	熱量換算値
原料	石炭	1,280kg/t-NH <sub>3</sub>	8,374kJ/kg石炭	2,980kW.h/t-NH <sub>3</sub>
燃料	石炭	290kg/t-NH <sub>3</sub>	28,470kJ/kg石炭	2,290kW.h/t-NH <sub>3</sub>
電力	購入	625kW.h/t-NH <sub>3</sub>	2.5kW.h/kW.h	1,560kW.h/t-NH <sub>3</sub>

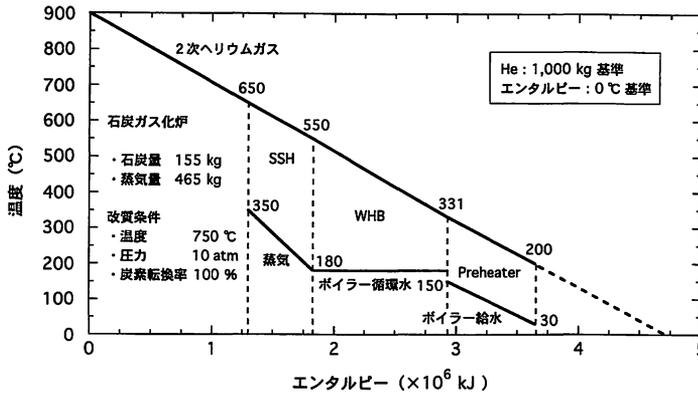


図-7 2次ヘリウムガスエンタルピー線図

表2 2次ヘリウムガスの熱利用割合

用途	割合
石炭ガス化	27.8%
蒸気発生	16.2%
電力発生	33.8%
戻り	22.2%
合計	100%

な燃料石炭による熱エネルギー及びアンモニア製造プラント（生産量63t/h）において必要な電気エネルギーを、石炭火力で発生させる場合に必要となる年間石炭量とCO<sub>2</sub>発生量は、以下のとおりである。

表1に示す部分酸化法による石炭ガス化に必要なエネルギー原単位から、石炭ガス化の熱源として必要な石炭量は、

$$(\text{必要石炭量})_{\text{熱}} = 63\text{t/h} \times 290\text{kg/t-NH}_3 = 18\text{t/h}$$

となり、またアンモニア製造プラントの運転に必要な電力を石炭火力で発生させるのに必要な石炭量は、石炭火力でのボイラー効率を0.92として、

$$(\text{必要石炭量})_{\text{電力}} = 1,560\text{kWh/t-NH}_3 \times 3,600\text{kJ/kWh} \div 63\text{t/h} \div 0.92 \div 28,470\text{kJ/kg} = 13\text{t/h}$$

となる。よって、全体で必要な石炭量は、

$$(\text{必要石炭量}) = 18\text{t/h} + 13\text{t/h} = 31\text{t/h}$$

となる。さらにCO<sub>2</sub>発生量は、石炭中の炭素分が約60%であるので、

$$(\text{CO}_2\text{発生量}) = (18\text{t/h} + 13\text{t/h}) \times 0.6 \times (44 \div 12) = 68.2\text{t/h}$$

となる。稼働率を84%とすれば、年間運転時間は7,360時間となるので、年間に必要な石炭量は約23万トン、CO<sub>2</sub>発生量は約50万トンになる。従って、化石燃料を用いない核熱利用型では、年間約50万トンのCO<sub>2</sub>発生量を削減することが可能である。

(3) システムの利点

本システムは、既存型システムと比較して以下のような利点を有している。

- ・核熱利用により燃料石炭及び電力購入が不要となるため、燃料及び電力のエネルギーを削減できる。
- ・アンモニア合成の原料である窒素を製造する空気分離機より副生する酸素が不要となるため、酸素の全

量を別用途に利用できる。

- ・化石燃料を使用しないため、CO<sub>2</sub>の発生量を年間約50万トン削減できる。

7. 核熱利用型石炭ガス化システムの課題

核熱を利用した石炭ガス化プラントを実現に移すためには、以下のような課題が残されている。

①原子炉及び原子炉と石炭ガス化プラントのインターフェース設計

石炭ガス化炉に適した原子炉設計（原子炉出口温度、出力）及び両者のインターフェース設計（両者は熱的挙動が大きく異なる等）の具体的検討。

②最適改質触媒の開発

石油精製に用いられているFCC（流動接触分解装置）触媒に近い形で、より高温強度が高い触媒の開発（流動層ガス化炉の場合、触媒は有効成分を担持させたセラミック系流動媒体とすることが望ましい）。

③ガス化システムの確立

開発した触媒のデータをプロセスにフィードバックした検討（所定のガス組成を得るための温度・圧力条件については、上記の触媒活性による所が大き）。

④最適ガス化炉の開発

装置寸法の決定から構造検討、材料選択、強度計算に至るまでの詳細な検討（採用する石炭ガス化炉は、既存の石炭ガス化炉とは全く異なった形式のものである）。

⑤付帯設備の開発

石炭のドライフィード方法（固体ハンドリングにおける圧力シールの方法等）の確立及び石炭ガス化炉内生成チャー、タールの抜き出し方法（触媒再生方法等）確立のための検討。

## ⑥自動化システム及び安全システムの確立

主に原子炉側との安全面での双方向インターロックの確立及びガス化プラントと原子炉プラントとのフェイルセーフレベル統一のための検討。

## ⑦プラント合理化と製品コストの低減

建設費、製品コストの低減を図るための最適化/合理化の検討。

## 8. まとめ

原子力エネルギーを電気としてだけでなく、熱エネルギー源として直接産業利用するシステムとして、高温ガス炉核熱を用いたアンモニア製造プラントにおける石炭ガス化について検討した。

既存の石炭ガス化プラントでは、酸素を用いた部分酸化法により石炭をガス化するが、核熱を利用した石炭ガス化プラントでは、高温ガス炉からの2次ヘリウムガスを用いた水蒸気改質法により石炭をガス化することにした。また、石炭ガス化プロセスでの2次ヘリ

ウムガスの熱利用率を上げるために、ガス化炉として2段式の流動床炉を採用した。CO<sub>2</sub>問題に関しては、化石燃料を用いる必要がないことから、その発生量を既存のアンモニア製造プラントと比較して年間約50万トン削減できる。しかしながら、実用化のためには新たな石炭ガス化炉の開発や経済性の問題等、解決すべき課題も多く残されている。

## 参考文献

- 1) "HTGR-Process Steam/Cogeneration and HTGR Steam Cycle Program", GA-A 16239 (1981).
- 2) Jager, W., Weisbrodt, I., Horning, H.; Nuclear Process Heat Applications for Modular HTR, Nuclear Engineering and Design, Vol.78 (1984), 137~145.
- 3) 日本エネルギー学会ガス化委員会編; 石炭の高温ガス化とガス化発電技術 (1994), アイピーシー社.
- 4) Leuch, U., Steinwar, W.; Modular High Temperature Reactor for Various Applications, Kerntechnik, Vol. 52, No. 2 (1988), 96~100.

## 次号予定目次「エネルギー・資源」1月号(113号) (刊行:平成11年1/5)

## 〔巻頭言〕

地球環境技術への期待 ..... 芝浦工業大学 越後 亮三

## 〔新春座談会〕

## 環境ホルモン問題とその対策

国立環境研究所 森田 昌敏 日本経済新聞社 楢谷 晋雄  
 関東学院大学 川本 克也 住友化学工業(株) 松尾 昌季  
 \*司会 東京大学 吉田 邦夫

## 〔展望・解説〕

我が国のエネルギー政策について ..... 通商産業省 資源エネルギー庁 佐々木宣彦  
 低品位炭を対象とした石炭液化技術(II) ..... 神戸大学 松村 哲夫  
 ドイツの廃棄物マネージメント(1) - 混合家庭ゴミ処理の動向  
 .....INFA (廃棄物廃水マネージメント研究所) 鹿島技術研究所 間宮 尚 他

## 〔特集〕

## ダイオキシンその問題点と対策の方向

(1)ダイオキシン類によるリスクの評価 ..... 第一薬科大学 増田 義人  
 (2)ダイオキシンの健康影響 ..... 広島大学 安田 峯生  
 (3)ダイオキシン類による環境汚染とリスク ..... 摂南大学 宮田 秀明  
 (4)ダイオキシン類の生成機構と物性 ..... 国立環境研究所 安原 昭夫  
 (5)ダイオキシン等の分析法の進歩とモニタリング ..... 国立環境研究所 森田 昌敏  
 (6)ダイオキシン類の生成抑制方法 ..... 京都大学 酒井 伸一  
 (7)ダイオキシン類の分解技術 ..... 関東学院大学 川本 克也

## 〔研究論文〕

核熱による二酸化炭素放出量低減システム ..... 日本原子力研究所 文沢 元雄 他  
 産業連関表による実態を反映した環境分析-部門別直接燃料消費量の推計と輸入財の取扱い-  
 ..... 財団法人中央研究所 本藤 祐樹 他

## 〔ショート・ノート〕

マテリアルサイクルかサーマルリサイクルか-紙のリサイクルのエネルギー評価-  
 ..... 東京大学大学院工学系研究科電気工学専攻博士課程 藤野 純一 他

## 〔見聞記〕

ビットバグCoal Conferenceに参加して ..... 京都大学 三浦 孝一  
 第11回国際伝熱会議に参加して ..... 東京工業大学 吉田 英生  
 キリンビール(株)横浜工場見学会を終えて ..... 東京理科大学 森 俊介

## 〔書評〕

「ファクター4」(エイモリー, B. ロビンズ他著) ..... 財団法人中央研究所 内山 洋司  
 「固体酸化物燃料電池と地球環境」(田川 博章著) ..... 大阪市立工業研究所 小山 淳

## 〔グループ紹介〕 日商岩井(株)

〔技術・行政情報〕 ..... 日刊工業新聞社 兼子 宗也  
 〔談話室〕 海洋深層水と海洋植林 ..... 佛東芝 渡辺 裕  
 〔編集委員会便り〕 ..... 京都大学 武田 信生  
 〔編集後記〕 ..... 大阪大学 野村 正勝