

石炭資源の高度化利用

石炭地質研究グループ

まえがき

わが国の石炭鉱業は 昭和30年代の前半から顕著となってきた世界的なエネルギーの流体化革命と その後の公害規制の強化などによる需要減退に並行して その生産が逐次縮小し 斜陽化の道をたどってきた。

しかし さきの中東紛争に端を発した原油の供給削減と 急テンポな値上げ攻勢によって生じたエネルギー危機は わが国の経済・社会に重大な影響を与えたため エネルギーの長期的対策として 既存エネルギーに代る新しいクリーン・エネルギーを開発し 供給源の多様化分散化が検討され 通商産業省では昭和49年度からサンシャイン計画を発足させている。この計画のうちには合成天然ガス [Synthetic Natural Gas または Substitute Natural Gas (SNG)] の技術開発がとりあげられている。

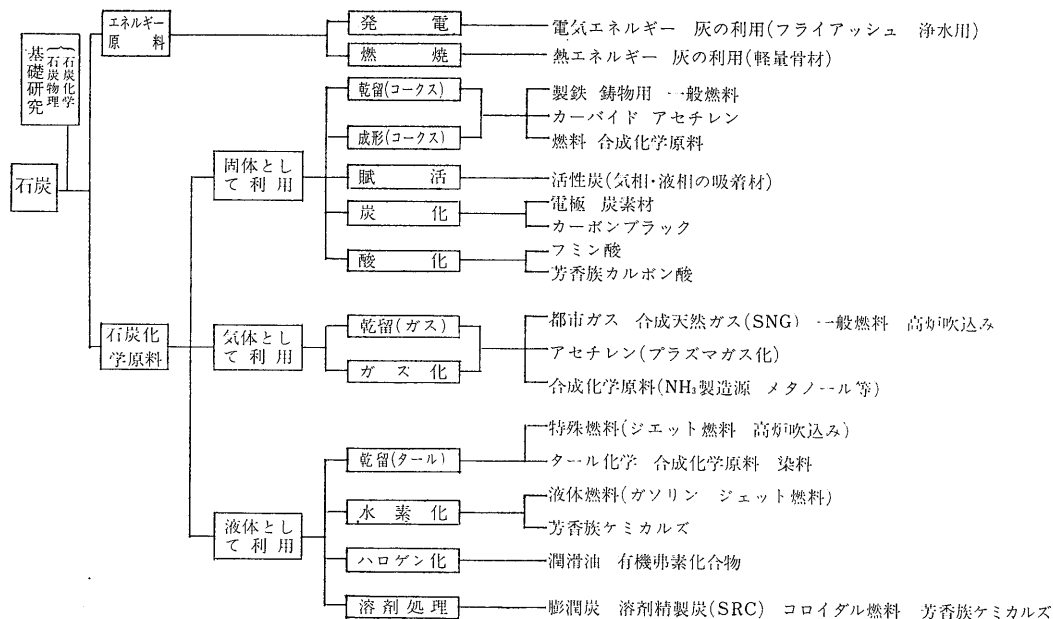
これは 世界的に広範囲に分布し その可採埋蔵量が石油の約9倍もある石炭を ガス化・液化などの手段によって流体化するとともに その処理行程において環境汚染の根源となっている 亜硫酸ガス 窒素酸化物 煤煙などの発生を除去し クリーン・エネルギーとして利用することを目指している。このような石炭資源の見直しムードのなかで 現在における石炭利用技術開発の

概要と 今後エネルギー源としての石炭の探査にはどのようなことが考えられるか また石炭の流体化に役立たせる研究の一環として 地質学の面からどのような実行が必要なのか これらの点にふれてみたい。

I 石炭利用の現状

石炭と石油は ともに炭化水素化合物であって ただ水素と炭素の組成比 (日本炭0.6~0.9) および分子量の違いがあるにすぎない。したがって 石炭は 石油と同じように さまざまの用途に利用することが可能であるが 世界的にエネルギーおよび化学原材料の流体化傾向を反映して わが国における石炭利用の現状も 粘結炭によるコークス製造 (乾留) と 非粘結炭の燃焼による発電ならびに工場用蒸気発生用がその主流となっている。

なお 前者に付随して乾留副産物のガス・タール類が都市ガスあるいは化学工業原料として活用されている。ちなみに 現在までに研究開発あるいは石炭化学工業の主流をなしたものを体系化して示すと 第1図のとおりである。



第1図 石炭の利用系統図

第1表 わが国の石炭需給実績
国内炭の需要

単位 1,000 t

年度	34	40	41	42	43	44	45	46	47	48
電力	12,339	21,432	22,788	25,391	25,942	23,572	18,952	13,474	9,723	7,647
鉄鋼	5,213	6,859	7,524	8,043	7,581	7,585	7,572	9,002	8,632	8,274
その他	35,887	24,564	21,946	19,773	16,711	13,701	11,648	8,784	7,732	7,197
合計	53,439	52,846	52,258	53,207	50,234	44,858	38,172	31,260	26,087	23,118
年度末業者貯炭	2,203	3,427	6,211	3,739	2,866	2,254	2,721	3,317	4,283	2,185

輸入炭の実績

単位 1,000 t

年度	34	40	41	42	43	44	45	46	47	48
入荷	5,671	16,936	20,201	26,459	34,043	43,392	50,950	46,342	50,661	58,049
(うち鉄鋼向)	4,437	14,599	17,877	23,722	30,706	39,971	47,249	43,246	47,565	54,301

48年度通産省 石炭コークス統計年報による。

第2表 都市ガス原料消費量

単位: t kJ

年度	国内原料炭 (1,000 t)			輸入原料炭 1,000 t	コークス 1,000 t	原油 1,000 kJ	ナフサ 1,000 kJ	液化石油ガス (LPG) 1,000 t	液化天然ガス (LNG) 1,000 t
	鉄鋼用	一般用	計						
37	—	—	3,400	1,000	706	777	146	35	—
38	554	2,860	3,360	1,155	485	782	327	37	—
39	724	2,498	3,222	1,665	341	881	581	39	—
40	825	1,983	2,808	1,993	261	1,022	811	37	—
41	980	1,682	2,662	2,410	192	1,129	991	71	—
42	926	1,460	2,386	3,008	100	1,221	1,193	98	—
43	832	1,327	2,159	3,872	90	1,096	1,316	144	—
44	808	1,194	2,002	4,391	62	1,274	1,534	158	75
45	797	1,176	1,973	4,441	38	1,289	1,603	176	241
46	793	1,020	1,813	4,114	68	1,197	1,910	273	251
47	749	855	1,604	3,975	55	951	2,414	441	341

製鉄用原料炭：わが国に産出される約2,300万t(昭和48年度)の石炭のうち 約1/3を占めるコークス用原料炭が製鉄用に 残りの2/3を構成する一般炭が電力用 その他燃料用に供されている。一方 輸入炭は 製鉄用原料として使用されているものが 昭和48年度で 約5,400万tに達している(第1表)。粘結炭の乾留によるコークス製造は 製鉄業の大型化の線にそって今後とも長期にわたって大量需要が予測され 鉄鋼1.5億t生産の時代には7,700万tの粘結炭が必要になると推定されている。このような情勢をふまえて 最近 既存のコークス炉によらない新しいコークス製造法として原料炭を成型 乾留する成型コークス法が開発された。この方法は 粘結炭はもちろん 非粘結炭も原料炭として使用可能とするもので 原料炭使用範囲の拡大および輸

入原料炭の不足を補う技術である。

電力および産業用一般炭：一般炭の需要(第1表参照)は 第2次大戦後急速な増加を示したが 昭和42年度の4,500万tをピークとして その後減少しはじめた。これは 昭和30年代の前半から始まった世界的なエネルギー流体化傾向によるもので 火力発電などを重油専焼に切り換えた結果である。その後 昭和43年大気汚染防止法が制定され 公害規制が強化されるにおよんで 一般炭の消費にも大きな制約が課せられ 昭和48年度の一般炭の需要は 42年度の約1/3の1,480万tに激減している。そのなかでも 電力用炭のおちこみが大きく 48年度には約760万tとなっている。

衆知のように 石炭燃焼には 亜硫酸ガス・灰ふん塵

・窒素酸化物などの発生と その処理の問題があり 諸種の技術開発が行なわれているが 将来における一般炭需要の拡大は 石炭をガス化・液化して クリーン・エネルギーとして利用しようとする石炭流体化の技術開発にかかっているといえよう。

都市ガス用：都市ガスは 石炭・原油・ナフサなどを原料とする製造ガスと 液化天然ガス（LNG）のようにそのまま都市ガスとして使用されるものがある。現在 石炭からの都市ガスの製造は 主にコークス炉によって行なわれており 石炭1 t から約360m³（4,200 kcal/m³）のガスが得られる。都市ガス原料用としての石炭の消費量は 昭和47年度で国内炭約160万 t 輸入炭約400万 t 計560万 t と輸入炭の比率がかなり大きくなっているが（第2表）石油系の原料にそのシェアを奪われつつある。すなわち 昭和47年度の都市ガス生産にシめる各種原料系の比率は 石炭系34% 石油系55% 液化天然ガスその他11%となっており 51年度には石炭系22%と見込まれている（第3表）。

タール・炭素材料などへの利用：石炭を乾留すると4～5%のコールタールが得られるが コールタールは タール化学として多方面に活用されている。タールは 蒸留によって その約55%がピッチコークスとして成型および炭素電極 アルミ精錬などに有効に利用されている。石炭は その他一部に公害対策用として石炭粉による污水处理 石炭系活性炭の製造 酸化によるフミン酸および溶剤処理による膨潤系塗料の製造などがあげられる。

II 石炭エネルギーの転換技術

今後 石炭をエネルギーとして利用するに当っては無公害化を含めた転換技術の確立が必要であり しかも大

第3表 都市ガス生産に占める各種原料系のウェイト表

	単位：%		
	37年度	47年度	51年度 (見通し)
石炭系	67	34	22
石油系	25	55	47
LNG その他	8	11	31
計	100	100	100

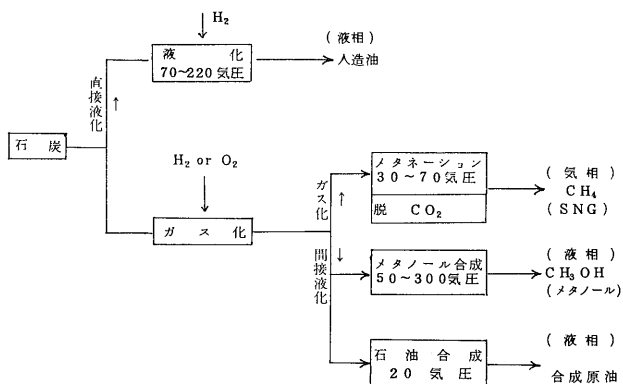
注：熱量換算にて作成した。

量生産の条件が伴わなければならない。石炭のエネルギー転換技術は 流体化の一語につきるが 大きくガス化と液化に2分される。第2図は 石炭のガス化・液化の生産行程の概要を示したものである。一般にガス化は 石炭をガス化剤と反応させてガスを生成し そのガスをメタネーションによって気相のCH₄（メタンまたはSNG）を製造する方法である。一方 液化は 石炭を高圧（70～220気圧）下で水素と反応させて 人造油を製造する直接液化法のほか 一たんガス化したガスをさらに50～300気圧の圧力のもとでメタノール合成を行ない 液相のCH₃OH（メタノール）を製造する方法と同じくガスを20気圧の圧力下で石油合成を行ない 合成原油を製造する間接液化（合成法）とがある。

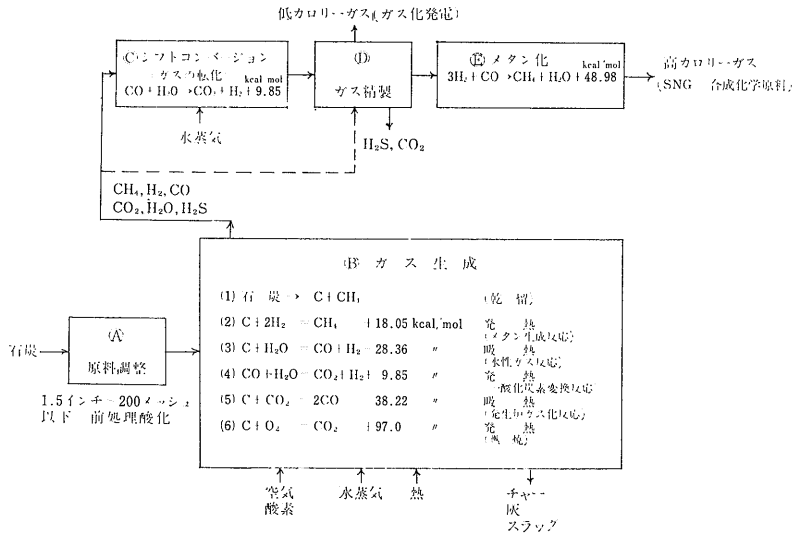
ここでは 近い将来わが国にとって最も必要と考えられ しかも実用化の可能性が大きい転換技術として 高カロリーガス（SNG 8,000kcal/m³）とガス化発電について また液化はメタノール合成と溶剤精製炭製造を含めてその概要を紹介する。ただし 筆者等は この方面の専門家ではなく にわか勉強をしたに止まる。したがって 本章では入門的な予備知識を提供する程度の解説しかできないことを予めお断りしておく。

II.1 石炭のガス化技術

石炭のガス化は 一般に石炭を空気・酸素・水蒸気などのガス化剤と反応させて 水素・一酸化炭素やメタンなどの有用なガスを製造することである。これらのガスのうち単位容積当りの発熱量が高いのはメタンである。メタン（CH₄）のH/C比（原子数比）は4で 石炭のH/C比は0.6～0.9である。この元素組成をみてもわかるように 石炭のガス化とは 石炭の高分子構造をこわして 水素を増加（水素の補給は 普通水蒸気でなされる）させる反応であるともいえる。上記の有用な製造ガスは 燃料ガスとして低カロリーガスおよび高カロリーガスの2種類に分けられるが 製造工程としては互に共通している。



第2図 石炭のガス化・液化の生産工程概要



第3図 石炭ガス化の工程

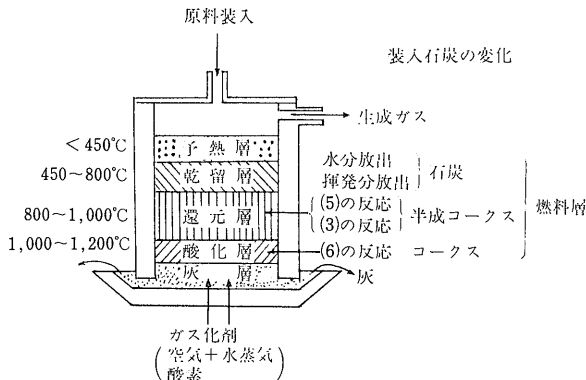
石炭ガス化の製造工程は 第3図のとおりで ④原料調整 ③ガス生成 ②シフトコンバージョン(ガスの転化) ①ガス精製 ⑤メタン化 の5工程の1部か全部の組合せからなる。低カロリーガスの製造プロセスは 通常 ④→③→①の3工程からなり 高カロリーガスの製造には特別の場合をのぞいて②の工程を必要とし 最終的に⑤の工程が加わる。

④原料調整：ガス化の原料は 褐炭から無煙炭までのあらゆる石炭化度の石炭ばかりではなく ポタからコークスまでも適当なガス化法を選択すれば使用できる。石炭の粒度は 固定床ガス化炉に用いる場合の約 1.5 インチの塊炭から 噴流床ガス化炉の 200 メッシュ以下の超微粉までかなりの幅がある。なお 原料に粘結炭を使用する際には 噴流床などの特殊な方式のガス化炉を除いて ガス化過程における粘着・凝結を防ぐために

酸化処理をして 石炭の粘結性を落とさなければならない。

③ガス生成：ガス生成工程は いわば全ガス化プロセスの核心であり ガス生成条件(ガス化炉の選定 ガス化条件の設定 ガス化反応の組合せ方等)のいかんによって粗製ガスの質と量が異なるばかりではなく ひいては高カロリーガス製造の際にシフトコンバージョンの要・不用が決まり さらにガス精製とメタン化の両工程の必要度が異なってくるので 新しいプロセスの研究開発の焦点ともなっている。

そこで ガス化炉の構造および炉内の状況をガス発生炉について模式的に示すと 第4図のとおりである。すなわち 炉体の上部には給炭装置と生成ガスの取り出し口を 下部に灰の取り出し装置とガス化剤(空気 水蒸気 酸素等)の吹込口を有する。燃料床は 下から



第4図 ガス発生炉炉内の状況

- (1) グレート(ロストル)に支持された灰層
- (2) 燃焼反応を主とする酸化層
- (3) 還元を主とする還元層
- (4) 乾留を主とする乾留層
- (5) 上から装入された石炭の予熱層

の5層からなっている。

吹き込まれたガス化剤は まず 灰層で予熱されたのち 酸化層のコークスに触れて燃焼を起こし〔第3図(6)の反応 $C + O_2 \rightarrow CO_2$ 〕多量の熱を発生する。

生成した CO_2 を含むガスは 還元層で赤熱コークス～半成コークスと反応 [(5) $C + CO_2 \rightarrow 2CO$] して CO に還元される。それと同時に水蒸気は 水性ガス反応

第5表

コークス炉ガスの組成

単位：% (燃料便覧による)

CO ₂	C _m H _n エタン・エチレン等	O ₂	CO	H ₂	CH ₄	N ₂	その他 硫化水素等	発熱量 kcal/m ³	備考
2~5	1.5~4.2	0.1~0.3	5~8	42~51	28~32	3~13	2	± 5,500	

〔3) C+H₂O→CO+H₂〕を起こして分解し 炉内温度の過度な上昇をおさえるとともに 水素を生じて その組成を向上させる。CO およびH₂の可燃成分を主体とするこの生成ガスは その顕熱で上部の燃料層を乾留〔(1) 石炭→C+CH₄〕予熱したのち 炉外に取り出される。第4表に発生炉ガスの組成を示す。

第4表 発生炉ガスの組成

ガス化剤	原料	ガス組成%						発熱量 kcal/m ³	備考
		CO ₂	O ₂	CO	H ₂	CH ₄	N ₂		
空気	石炭	1.0	—	31.0	5.0	2.0	61.0	1,190	
空気 +水蒸気	"	6.0	—	26.0	15.0	2.5	50.5	1,390	

以上のように ガス化炉内における石炭は まず予熱・乾留され さらに還元・水蒸気による分解および酸化などで代表される多くの反応〔第3図(1)~(6)の反応〕によって 水素・一酸化炭素およびメタンなどの有効成分ならびに炭酸ガス・硫化水素その他を含んだ粗製ガスを生成する。主反応である水性ガス反応〔(3) C+H₂O=CO+H₂〕は 大きな吸熱反応である。したがって 所要の熱は 一般に石炭を直接ガス化炉内で燃焼させるかあるいは熱媒体(ドロマイト 熔融炭酸ソーダ 熔融鉄等)を介して間接的に供給するかのいずれかの給熱方式によってまかなわれている。

次にガス化反応の主体をなしている乾留 燃焼(酸化)還元反応(コークスのガス化)の特徴およびこれらの関

連性について述べてみよう。

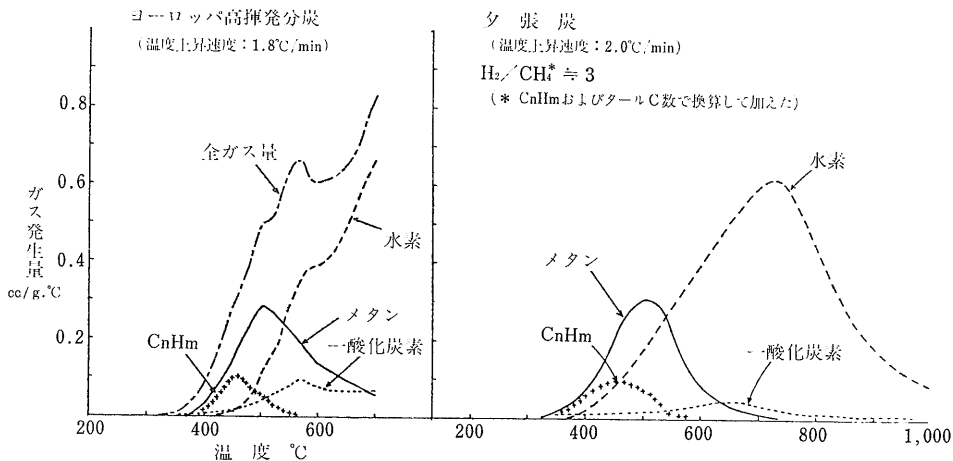
(イ) 乾留：空気を絶って石炭を熱すると まず水分および吸蔵ガスが放出され ある一定温度以上になると分解がはじまって 温度に応じた組成のガスおよびタールを発生し あとにコークスが残る。しかし 石炭の乾留(熱分解)は たとえ同じ石炭を原料にしても熱の与え方(外熱・内熱の別 乾留ガスの導き方など)や昇温速度で変化するので 常に同じ結果が得られるわけではない。第5図は ヨーロッパの高揮発分炭と夕張炭の乾留実験結果であるが 両者の結果はかなり類似している。

この結果から明らかなのは 600°C前後でガス組成が著しく変化すること 水素がガス組成の大部分を占めていることである。これらから暗示される点は

第1に 600°C以下で発生するガスを分離できれば 酸素や水素を用いることなく高熱量のガスが得られる。

第2は 600°C以上で発生する水素を取り出せば これもガス化に欠くことのできない有効な成分である。

現在 工業的に実施されている乾留は コークス炉によるものであるが そのガス(COG)組成を示すと第5表のとおりである。しかし 実際のガス化炉における乾留条件は コークス炉ガスのそれとは全く異なっている。



第5図
石炭の乾留(熱分解)
(分解温度と発生ガスの種類)

注
1. 原典ではヨーロッパ高揮発分炭のガス発生量が CC/g·min で示されていたが夕張炭のそれと単位を一致させるため CC/g·°C に換算した夕張炭の C_nH_m は原典の C₂H₆ C₂H₄ C₃H₈ C₄H₁₀ の各ガス発生量を合計したものである(村田富二郎による)

(ロ) 燃焼(酸化)：石炭を空气中で燃焼するとはじめは急速に燃えてある時点からゆっくりした燃焼に変る。それを重量減で示したのが第6図である。400°C以上の燃焼においては燃焼の性質が2段階に分かれている。その前半の急速な燃焼は石炭が分解して生じた気体が燃える段階を示し分解燃焼という。後半のゆっくりした燃焼は熱分解によって生じた残炭が表面から順次燃えて行く段階を示している。

石炭は350°C付近(第5図)から熱分解が始まる。それで第6図における300°Cの曲線には前段の分解燃焼がない。石炭の熱分解速度は加熱温度の上昇と共に急激になる。それが第6図の立上り曲線の傾斜の差となって現われている。

第5図で示したように加熱によって石炭から分解して発生する気体は600°Cまでのものが高熱量の貴重なガスであり続いて出る気体も石炭のガス化に欠くことができない水素である。これらの有効な気体は分解燃焼ですべて炭酸ガスと水蒸気になってしまう。したがって燃料ガスや合成ガスとして有効な水素およびメタンの生成には反応速度が遅い第2段の反応すなわち炭酸ガスや水蒸気と残炭素との反応によらなければならない。これが分解燃焼が負わなければならない基本的な欠点である。

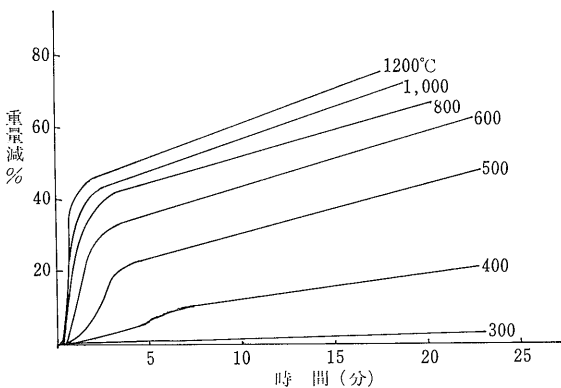
(ハ) 還元反応(コークスのガス化)：残コークスのガス化は乾留や分解燃焼に比較して著しく速度が遅い。また実炉において石炭のガス化速度を決定する支配的な反応(換言するとある運転条件における石炭のガス化率を決める反応)はコークスのガス化反応であることはすでに述べた。またこの反応が遅いことは第6図でも理解されよう。第6図の実験は空気(1/5気圧の酸素)でガス化した結果であるが実炉ではこの段階のガスには酸素が含まれておらず酸素より活性が弱い

水蒸気 炭酸ガスまたは水素との反応だけになるためさらに反応速度が遅くなる。

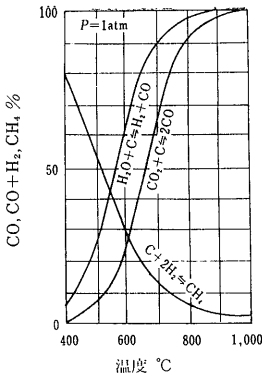
この段階で反応速度を支配する最大の因子は残留炭素(コークス)の表面の状態 いかえるとどれだけ微細孔が多いかにかかっている。この微細孔は使用した原炭の種類と処理温度によって大きく変化するが一般に酸素の多い石炭(低炭化度炭)のガス化速度が最も早く水素の少ない石炭がこれに次ぎ水素が多く酸素の少ない粘結炭が最も遅いといわれている。

石炭から得られる粗製ガス量(水素 一酸化炭素 メタンの和)は概して炭質によって決まり一般に高炭化度炭ほど多い。またガス中の水素と一酸化炭素の比(H/CO)は炭質のほかに使用する水蒸気と空気(酸素)の混合率に影響されるが結果的には水蒸気の多いほどH/CO比が高くなる。なおガス化におよぼす温度 圧力の影響は一般的に知られており第7~8図に示すとおりである。すなわちガス化でメタンリッチな精製ガスをうるためには圧力を高く温度を低くする必要がある。1例として酸素を使用したルルギ式加圧ガス化炉(25気圧)でガス化した際に得られた精製ガスの組成(不純物を除去)は水素53~60% 一酸化炭素25~33% メタン10~15% 発熱量3,770kcal/m³である。しかし現在米国において研究・開発されている高カロリーガスはそのほとんどが発熱量8,000kcal/m³以上であるため上記のガスよりメタン濃度が高い。

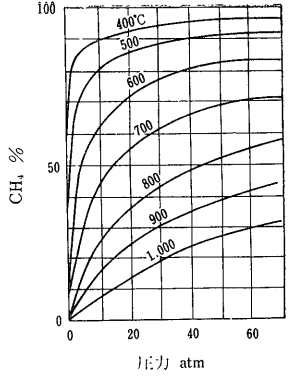
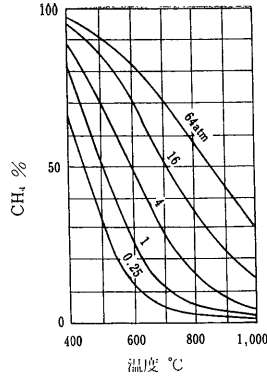
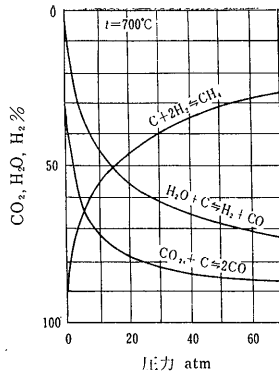
ガス化炉は1920年代から本格的な研究・開発が始められその操作方式やガス化剤の使用条件の組み合わせによって多くの型式がある。またガス化炉は炉内における石炭の運動状態によって固定床・流動床・噴流床(これらについては後述する)などにも分類できる。しかしこれまでに工業装置として実動した代表的なガス化炉はルルギ(固定床) Winkler(流動床) Koppers-Totzek(噴流床)などがあげられる。なかでもルルギ式炉は世界各地で現に50基以上が低カロリーガスまたは合成原料ガス製造用に使われている。なおKoppers-Totzek式炉はもっぱら合成原料ガス製造用として約20基が稼動している。戦後における石炭ガス化炉の研究・開発は米国が最も盛んでとくに大容量処理を前提にメタンリッチの粗製ガス生成を指向して40~100気圧におよぶ高加圧ガス化法やガス化炉外で水素を製造しそれをガス化炉に送入して石炭と反応させる水添ガス化法および間接給熱方式の新規な試みがなされている。



第6図 石炭の燃焼



第7図 ガス化主要反応に対する温度・圧力の影響



第8図 メタン生成反応の等温・等圧曲線

の石炭ガス化炉で生成される粗製ガス中の水素と一酸化炭素の比 (H/CO) は 幅が広く 1 以下から 3 以上に達する。ところで高カロリーガスに必要なメタンの合成は H/CO比が 3 の混合ガスを使って行なわなければならない。したがって H/CO比がこの値に達していない粗製ガスは 一般に 370~430°C で鉄・クロム系触媒を用い さらに 190~230°C の条件で銅・亜鉛系触媒の存在のもとに水蒸気と 2 段階に反応させて 粗製ガス中の一酸化炭素と水蒸気との間に いわゆる一酸化炭素変換反応 ($\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$) を起こさせて水素と炭酸ガスに変え ガス中の水素を調整する。この種の商業プラントは 各種合成化学の原料製造用として世界各地で稼動している。なお H/CO比が 3 以上の粗製ガスは ただちにガス精製工程に移る。

⑩ ガス精製：粗製あるいはシフトコンバージョン後のガスは 有効成分のほかに不純物を含んでいるのでそれを除去・回収するために精製工程が必要である。主な対象不純物は 燃料ガスとしては公害と腐蝕の見地から硫化水素を主とする硫黄化合物であり 高カロリーガスや合成原料ガスでは 触媒毒の他に効率の観点から炭酸ガスが含まれる。

硫化水素と炭酸ガスの除去は 共通の方法が多く 乾式としては酸化鉄法 活性炭やシリカゲル吸着法等があり 湿式では炭酸ソーダ法 エタノールアミン法など非常に多数の方法が確立されている。これらの方法を適当に組み合わせて効果的な精製をすれば 硫黄化合物を 1ppm 以下 炭酸ガスを 1% 以下に落すことができる。

⑪ メタン化：水素と一酸化炭素から メタンを生成する反応は いわゆる Fischer-Tropsch 合成の一環であるが この種の装置はまだ開発途上にある。現在一般的に研究されている方法は 水素と一酸化炭素の比

が 3 の混合ガスをニッケルまたはコバルト系触媒を用いて 170~250°C 常圧ないし高压の条件で反応 (主反応 $3\text{H}_2 + \text{CO} \rightarrow \text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O}$) をさせるもので まだパイロットプラントの段階である。上記の反応は 発熱反応であるため 実用プラントでは反応熱の除去が研究の中心となっており 供給ガス中の一酸化炭素の濃度によって必然的に反応装置の設計が異なってくる。

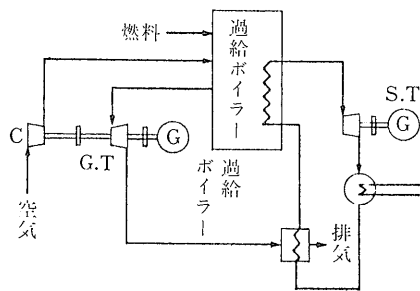
このメタン化工程を経ると 水を除けばメタン濃度が約 95% 発熱量 8,500~9,400kcal/m³ のガスが得られ いわゆる合成または代替天然ガス (SNG) となる。

以上石炭ガス化について概説したが 熱効率は 概して低カロリーガス製造で 75~85% 高カロリーガス製造においては 60~70% といわれている。

II・2 低カロリーガス化発電技術

わが国の電力業会は 従来の火力発電方式よりも公害が極めて少ない発電方式の開発が急務とされており 現在その対策の 1 つとして 液化天然ガス (LNG) を燃料とする液化天然ガス発電所が建設されている。天然ガスの少ないわが国においては いったん天然ガスを液化したタンカーによって輸入する方法がとられており 液化天然ガスの輸入は増大している。しかし 最近における石炭ガス化技術の急速な進展につれて 石炭ガス製造のうへで経済的な低カロリーガスを利用した発電方式を開発しようとする気運にある。その主なる理由は

- (1) 低カロリーガス製造には高カロリーガス化のメタン化工程 (第 3 図の⑩) やガスの転化工程 (第 3 図の⑪) を必要とせず プロセスが簡単なこと。
- (2) 石炭を空気または酸素と水蒸気でガス化すると 発熱量約 1,400~3,560kcal/m³ の低カロリーガスが得られ (第 4 表参照) 高価なガス化剤を使用しないため経済的である。
- (3) 発電用の低カロリーガスは 発熱量 1,000~1,500kcal/m³ でも燃焼が可能なこと また燃焼温度が低いことから窒素酸化物の発生量も少ない。



〔注〕 C：コンプレッサ
 G.T：ガスタービン
 S.T：スチームタービン
 G：発電機

第9図
 複合式火力発電所（過給ボイラー方式）

(4) 石炭のガス化段階（ガスの精製工程）で脱硫や灰の除去が可能な利点などによるものと思われる。

現在石炭の低カロリーガス化技術は ほぼ完成の域に達しており ガス化発電における研究開発の重点は 低カロリーガスの燃焼性 加圧下で生成されるガス圧力の有効利用および熱効率の高い発電方式の開発に集中している。近年世界における効率の高い発電方式は 既存のスチームタービンとガスタービンをとを組合せた複合方式である。わが国においても 液体燃料を使用するこの方式の火力発電所が坂出（出力22.5万 kW）に建設されている。しかし 低カロリーガス用としては 過給ボイラーを使用する複合火力発電方式が適していると考えられている。

それは現在のガスタービンが羽根材料の温度制約から燃焼温度約900°Cが限界となっており 燃焼ガスの冷却をかねて 理論空気量の約4倍を圧縮・送入しているため排ガス量が大きく これが熱効率（最高39%）上のネックとなっている。これに対して 過給ボイラー複合方式（第9図参照）は ガスタービンに燃焼器をつけないで ガスタービンとスチームタービン共用の過給ボイラー（水管を内蔵し 燃焼用空気供給量は理論空気量の約2倍）内で燃焼させて供給されるため効率が良く 近い将来約45%という最高の熱効率が期待されている。

現在 この方法の一例として 西ドイツの Kellermann 複合式火力発電所では17万kWのガス化発電の実験プラントが稼動しはじめている。これらの技術が確立されると これまで石炭利用面における主な柱の1つとなって来た電力用炭の需要も 将来増加するものと思われる。

II・3 石炭の液化技術

石炭は 石油に比較して水素が少なく分子量が大きい炭化水素化合物である。この石炭に水素を添加して分

子を適当に分解すれば 石油状のものをうる事ができる。これが石炭の直接液化法の原理である。実際に直接液化法には上記のような石炭を直接水素添加する方法と 石炭を溶剤で抽出するか乾留して 石炭中の水素添加しやすい成分を取り出して水素添加（水添と言うこともある）する方法がとられている。なお このほか石炭をガス化し その原料ガスから石油合成を行なって 合成原油を製造する合成法（間接液化法）がある。直接液化法は その処理条件によって 生成する油の硫黄分を0.1%以下におとすことが可能である。一方 合成法は ガスの精製によってほとんどクリーン油を合成できる原料ガスがえられる。次に上記の各液化法最近燃料油として注目されてきたメタノール合成および一種の抽出水添に属する溶剤精製炭について その概要を述べる。

(1) 直接水添：石炭を直接水素と高温高圧下で反応させて液化する技術は 1911年 BERGIUS の研究に始まり 1927年 IG 社が工業化した。この方法は 一般に60メッシュ以下に粉碎した褐炭～低度瀝青炭に石炭系重質油を加えてペースト状にし 鉄・ニッケル・モリブデン・コバルト系の触媒を使って200～300気圧 400～500°Cの条件下で水素と反応させると 1tの石炭からカロリー換算では最高約0.5tの合成原油がえられる。第2次大戦中にドイツは この方法によって100万t/年の石油生産を記録した。ただし 戦時中であることから経済性は重視されなかった。なお 各種石炭化度の外国炭を直接水添したとき 炭化度と生成油収量(液化率)との関係は 第10図のとおりである。これは 石炭を処理温度450°C 触媒に硫化第一錫を用いてテトラリン中で水素添化した結果である。液化率は 炭素約88%の石炭が極大値を示している。一方 石炭化度が低い石炭ほど酸素含有量が多いので 水の生成量が多くなっている。したがって 直接水添では炭化度が高く炭素85～88%付近の石炭ほど有利といえる。しかし 液化率の大・小は 石炭の化学的反応性の難・易とは関係がない点に留意されたい。

(2) 抽出水添：石炭は 溶剤によって低温でも少量の成分が抽出されるが 石炭系重質油を用いて約400°Cで石炭を処理すると 石炭の熱分解作用も加わって1時間以内に石炭の70～90%を溶解できる。この方法で石炭から無機物と溶けにくい高分子量の成分を除き 溶解した比較的低分子量の成分を水素と反応させて液化する方法である。現在米国やわが国で研究開発されている溶剤精製炭（これについては後述する）は この抽出水

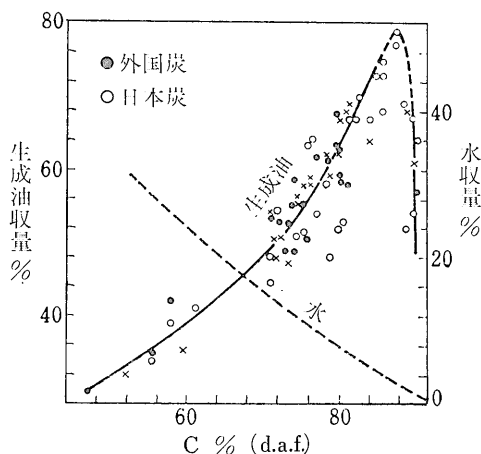
添法に属するものである。

(3) 乾留水添：これは 低温乾留によって石炭に含まれている揮発分をタールとして取り出し これに水添する方法で古くから行なわれている。乾留で得られるタールは 最高で石炭の約20%であるから 油の収率は上記2法に及ばないが 水添するための操作技術が容易で 戦時下のドイツではこの方法が多く採用された。また わが国における最初の石炭液化もこの方式であった。

(4) 合成法：石炭をガス化・精製し 水素と一酸化炭素の比が1対3の合成原料ガスをニッケル・コバルトまたは鉄系触媒を使って 170~250°C 常圧ないし高压の条件で反応させると 高級炭化水素すなわち 合成石油が得られる。この反応は従来 $2nH_2 + nCO = (CH_2)_n + nH_2O$ と $nH_2 + 2nCO = (CH_2)_n + nCO$ の式が示すような2種の反応が考えられている。前者の反応は主としてニッケル・コバルト系触媒 後者は鉄系触媒によってもたらされるが 合成石油の収率を上げるために上記の他にトリウム・マグネシウム・銅系などの助触媒が加えられる。この合成法は 現在南アフリカの SA SOL で順調に稼動中で 13基のルルギ式加圧ガス化炉を用いて 7,000 t/日の石炭から560万 m^3 の合成原料ガスを製造し 2方式の合成プラントによって合成石油をはじめ化学原料から化学肥料までの幅広い合成製品を生産している。しかし 合成法は 純度のよい特定な液体燃料を製造し易い利点がある一方 一般燃料を目的とする場合には直接液化法にくらべて熱効率が劣っている。以上のような点から米国における石炭液化の研究には合成法を取りあげていない。

(5) メタノール合成：これまでメタノールは 主に接着剤 プラスチックの製造 化学原料または溶剤としての用途が大部分であった。しかし近年 メタノールは 硫黄を含まないうえに燃焼温度が低いため窒素酸化物の発生も少ないとされ 最近一般燃料として注目され始めた。

メタノール合成は Fischer-Tropsch 合成法の一つで $2H_2 + CO = CH_3OH$ の化学反応式が示すように 理論的には水素と一酸化炭素の比が2：1の合成原料ガスを反応させる。メタン化と同じように発熱反応であるため 一般に過剰の水素を循環させながら 亜鉛と銅やクロム系触媒を使って370~430°C 50~300気圧の条件で反応させて 生成物を精留すると純度99.9%のメタノールが得られる。なお最近では触媒に関する研究の進歩に



第10図 石炭化度による生成油および収量の変化
注 d.a.f.: dry, ash free (無水無灰)

よって 反応圧力条件は50気圧程度に引き下げられ すでに2,000 t/日の大型プラントが稼動している。米国のバターソン発電所におけるメタノールの燃焼性に関する実験では メタノールがボイラー用燃料として適性を有することが証明されたといわれている。一方 メタノールをガスタービン燃料や自動車燃料に使うことも実験中である。只今の段階ではメタノールの合成原料ガスは 主に天然ガスがもっぱら使われているが 石炭のガス化が実用化すると 石炭からメタノール燃料の製造も有望となる。

(6) 溶剤精製炭：米国 わが国などで開発している 膠状燃料の一種は 常温では固体 加熱すれば液体として扱える。このような石炭と重油の中間的性質をそなえた燃料を溶剤精製炭 [Solvent Refined Coal (SRC)] とよんでいる。これは 石炭を数10ミクロンに微粉砕し このプロセスで生成する288~426°Cの留分の溶剤と混和してスラリーにした後 水素と426°C 約70気圧の条件下(触媒は用いない)で反応させて石炭を溶解し 灰分と不溶有機物を分離除去する。分離された液体はさらに減圧蒸留して溶剤を回収する。石炭中の約90%の炭素が溶剤精製炭となる。しかも製品は 処理条件を調整することによって 原料石炭の品質にかかわらず 灰分0.1%以下 硫黄分0.6%以下に抑えられ かつ発熱量 9,280kcal/kg に規格化することも可能といわれている。製品は 融点が180°Cであるから 加熱すれば液体となってパイプ輸送ができ液体燃料としても使える。溶剤精製炭は 燃料用のほかにコークス製造用の粘結剤や炭素電極の原料にも使え さらに液化・ガス化の中間原料ともなるので現在世界各国で注目されている。

第6表 石炭研究局(OCR)の研究開発費の変遷
(単位:100万\$)

年 度	全運営費	液化研究費 (推定額)	ガス化研究費 (推定額)	備 考
1963	3,450	2.2	0.2	
1964	5,075	3.0	1.5	
1965	6,836	2.5	1.1	
1966	7,220	2.9	1.1	
1967	8,220	3.3	1.3	
1968	10,980	5.3	2.9	
1969	13,700	5.4	5.8	
1970	15,300	6.4	6.6	
1971	17,160	6.5	7.1	第1次 エネルギー書
1972	30,650	11.5	15.8	
1973	43,490	11.7	28.2	第2次 エネルギー書

Ⅲ 世界における石炭高度化利用の研究開発状況

現在 石炭高度化利用の技術開発が最も盛んなのは米国であり 鉱山局と石炭研究局(OCR)がほとんどのプロジェクトを推進している。研究開発の重点は 1960年石炭研究法(Coal Research Act)に基づいて石炭研究局が設立されて以来石炭エネルギーの転換技術におかれ とくに合成天然ガス(SNG)を目指した高カロリー

ガス化と人造石油・原油への液化が2大テーマとなっている(第6表)。その理由は 天然ガスと石油の不足を補うため 20世紀末から21世紀初めにかけて米国におけるエネルギー源として石炭の役割が増大すると見込まれているからである。しかし 1970年代に入って全国にはりめぐらされたパイプライン網によって供給されている天然ガスの急速な需要増を反映して 高カロリーガス化の研究に重点が傾けられた感がある。

現在 米国において進められている石炭のガス化・液化に関する研究開発内容を示すと 第7表のとおりである。

石炭の高カロリーガス化法は 石炭を水素と反応させる HYGA 法 ドロマイトを熱媒体に使う CO₂ Acceptor 法 部分酸化を採用している BI-GAS 法がパイロットプラントの運転を行なっている。なお 流動床で部分酸化を行なう Synthane 法は パイロットプラントを建設中である。この他に各種の方法が研究されているけれども それらはほとんど実験段階である。

主にガス化発電向けの低カロリーガス化法は ガス化装置やガス化技術については上記の高カロリーガス化と相通じており 高カロリーガス化方式がかなり応用され

第7表 米国における石炭流体化の研究内容

分類	名 称	実 施 機 関	プロセスの特徴				備 考
			炉の型式・方法	ガス化剤・熱媒体・触媒	温 度 °C	圧 力 atm	
高 カ ロ リ ー ガ ス 化 (SNG)	Lurgi 法	El Paso National Gas Co.	固定床	酸素・水蒸気	750~850	32	(実用炉 南ア SASOL)
	HYGAS 法	Institute of Gas Technology	流動床・2段	水素・水蒸気	1段 700~815 2段 930	60~100	1970年 パイロットプラント完成 運転中
	Synthane 法	鉱山局	流動床・2段	酸素・水蒸気	上段 400 下段 1,000	70	パイロットプラント建設中
	BI-GAS 法	Bituminous Coal Research Co.	噴流床・2段	酸素・水蒸気	上段 925 下段 1,100	50~100	1972年 パイロットプラント完成
	CO ₂ -Acceptor 法	Consolidation Coal Co.	流動床	水蒸気 ドロマイト(熱媒)	860	10~20	1971年 パイロットプラント完成 運転中
	Molten Carbonate 法	M. W. Kellogg Co. Applied Technology Corp.		水蒸気 溶解炭酸ソーダ 水蒸気 溶融鉄 酸素 石灰石 水蒸気	815 1,370	81	実験段階
ATGAS 法						"	
HYDRANE 法	鉱山局		流動床・2段	水素	900	64	"
低 カ ロ リ ー ガ ス 化	Lurgi式加圧ガス化法	(西ドイツ Steag 社)	固定床	空気・酸素・水蒸気		15~25	実用炉 稼動中
	General Electric 社法	General Electric Co.	固定床の一種 (移動床)	空気			粘結~非粘結炭用 電源開発公社が日本炭の燃焼試験 を依頼中
	低カロリーガス化法	Combustion Engineering Co.	噴流床			1~10	ガス化プラントの概念設計
	低カロリーガス製造 パイロットプラント	Pittsburg & Midway Coal Mining Co.	" 2段	空気			パイロットプラント設計段階
	発電用ガス化法	Westinghouse Electric Co. 他	流動床	空気・酸素・水蒸気	1,080~1,250	20~30	発電プラント設計終了
加圧流動床石炭燃焼	Esso Research & Engineering Co.	流動燃焼	石灰		1~10	パイロット燃焼炉完成	
液 化	Project COED	FMC Corp.	多段階流動乾留 乾留水添		乾留: 320~820 水添: 400	水添: 200	1970年 36 t/日 パイロットプラ ント運転中 商業プラント設計中
	Project Gasoline (CSF 法)	Consolidation Coal Co.	抽出・乾留 抽出水添	Ni-Co-Mo 系触媒	400~500	250~300	1967年 30 t/日 パイロットプラ ント完成 1970年 改修中
	H-Coal 法	Hydrocarbon Research Inc.	直接水添	水素 Mo-Co 系触媒	450	150~130	1970年 3 t/日プラントの実験段 階で中止
	CO-Steam 法	鉱山局	"	一酸化炭素・水蒸 気 触媒なし	425	140	中・低炭化度炭用 プラント建設予定
	Synthoil 法	"	"	水素 Mo-Co 系触媒	450	140~280	パイロットプラント設計中
	Seacok 法	Atlantic Richfield Co.	乾留水添	Ni-Co 系触媒			実験段階
	溶剤精製炭法 (SRC)	Pittsburg & Midway Coal Mining Co.	抽出水添の一種	水素	426	70	1974年 50 t/日 パイロットプラ ント稼動中

ている。米国においてもこの研究開発は数年前から始まったばかりでガス化プラントや発電プラントの設計段階のものが大部分である。

米国の液化は経済的な見地から合成法以外の直接液化法（直接抽出および乾留水添）について研究が進められている。直接水添法に属する各方法は機械的な障害が主因となってパイロットプラントの段階もしくはそれ以前の状態にある。乾留水添法の Project COED はパイロットプラントが順調に運転されておりすでに商業プラントの概念設計に入っている。抽出水添法に属する溶剤精製炭法（SRC）はその製品が低硫黄分の固体燃料であるのみならず溶融状態ではパイプ輸送が可能のためガス化・液化の中間体として注目され日産50tのパイロットプラントが稼動している。

米国が開発している石炭のガス化・液化に共通した特徴は第1に目標プラントの規模が大きいことである。商業プラントの規模はガス化の場合1.5万t/日の石炭を処理して2.5億ft³の合成メタンガスを液化の場合2.5万t/日の石炭を使って10万bblの人造原油を生産するのが標準となっている。第2の特徴は情勢に則して各プロセスの修正や相互の組み合わせを行ないより合理的なプロセスに変えていることである。そのよい例は溶剤精製炭法（SRC）がBI-GAS法を取り入れて液化とガス化を合せたCoal-Oil-Gas多目的プラントの構想を進めていることなどである。

米国は予定通りに開発が進むと1980年代前半に上記規模の商業プラントが出現するはずである。

その他の国々におけるガス化・液化の研究開発も総じて上記の範囲を出ていない。第2次大戦前この方面で世界をリードした西ドイツは伝統的な強みを持ち高～中カロリーガス化を目的としたルルギ加圧ガス化炉（50基以上）が現在世界各地で稼動しておりとくに南アのSASOLでは合成法によって合成原油各種化学原料を生産しているのは有名である。またガス化発電にしてもすでに1969年から自国内のKellermannで実験プラントを動かしていることはすでに述べたとおりである。なお1974年西ドイツ政府はエネルギー資源開発4ヵ年計画を発表し石炭の流体化に6.16億マルク支出することを決定しており今後の研究開発の進展が注目される。

最近の英国では流動燃焼の研究が目立っている。これは石炭を直接燃焼して無公害かつ低コストのエネルギー源として利用しようとするもので発電向けの

流動床ボイラーの開発に重点がおかれている。このボイラーは従来のものと異なり流動床内に伝熱面を持っており粒度1.6～3.2mmの石炭と不活性粒子（例えば硫黄分を吸収する石灰等）からなる流動床内で石炭を燃焼する方式である。この炉の特徴は伝熱効率が良く小型化が可能なことおよび不活性粒子の存在によって亜硫酸ガスや窒素酸化物の排出量が少ないことが魅力となっている。なお英国(British Gas Corp.)では石炭を用いてのSNGの製造は装置が高額となるうえにナフサなどを原料とする場合に比較してガス化率の低下をまぬかれないとする意見もある。しかしBGCでは米国ガス協会の依頼によってLurgi式プラントの改善を行ない石炭のメタネーションを研究中でその工業化の可能性を証明し得る段階まで進んだといわれている。

一方わが国では戦前産炭地で石炭液化技術の企業化（年産10万kl）が行なわれたが第2次大戦終了とともに放棄された。また昭和30年末までは国内資源を活用するという観点から液化やガス化などの研究や開発が大学・研究所などで行なわれていたが昭和40年代に入って研究開発も基礎的研究と製鉄用コークス製造分野を除き全面的な中断状態となっていた。しかし最近の世界的なエネルギー危機に対処するためわが国においても昭和49年度からナショナルプロジェクトとしてサンシャイン計画が企画され現在工業技術院傘下の研究所や民間会社などで石炭流体化の技術開発が強力に進められている（文献3を参照して下さい）

IV 国内炭と外国炭の炭質の差異

石炭はいろいろの地質時代に地球上に繁茂した植物が堆積して地中に埋没し地熱と地圧の作用を受けて長い地質時代のうちに石炭化したものであることは定説となっている。したがってその品質はその根源となった植物の違いにもよるが主に石炭化の主要条件である温度・圧力および時間の総合的な効果によって差異をもたらしているといえる。

石炭の分類は石炭化度すなわち“成熟度”を規準にする方法があるが最も一般的には石炭中に含まれる炭素成分の割合をもって指標としている。これによって石炭は若い方から褐炭 低度瀝青炭 高度瀝青炭 無煙炭というように分類されている。

世界各国に分布している石炭は地質年代的にみると古生代の石炭紀（約3億年前）から新生代の第三紀（約4,000万年前）に生成したものでなかでも主に蔭花植物（ヒカゲノカズラ類）が繁茂した二畳～石炭紀の地層に

は最も良質な石炭を挾有しており 世界の主な炭田の多くはこの時代のものである。

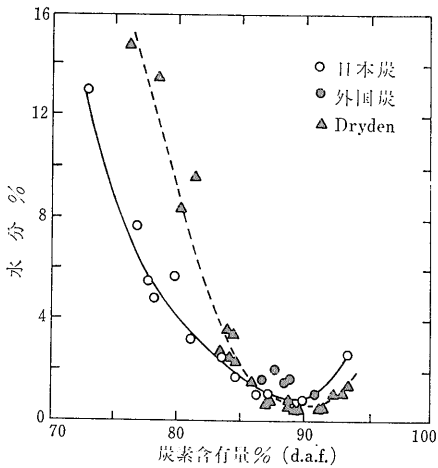
一方 わが国の石炭は 大部分が被子植物 裸子植物が栄えた新生代とくに第三紀に属しており 褐炭から無煙炭までの炭質のものを含んでいるが 低度瀝青炭が最も多い。 わが国の石炭が地質年代的に若いのに比較して石炭化度が高いのは 石炭化過程において 地殻変動や火山活動による圧力と温度の影響が大きかったためと考えられている。 以上述べたように国内炭と外国炭との最も大きな差異は わが国の石炭の地質年代が若いことと 石炭となった根源植物の差異が挙げられよう。

炭質（炭質の比較は 同一組織成分のものについて行なうのが理想的である。 この分析・試験に用いた試料は 原炭を20～60メツシュに粉碎後 ベンゼン・四塩化炭素の比重液によって揮灰（ピトレイン）を分取し 揮灰成分の灰分が3%以下になるようにした）的にみると 国内炭は 一般に無煙炭より石炭化度が低い石炭 とくに低度瀝青炭から瀝青炭の

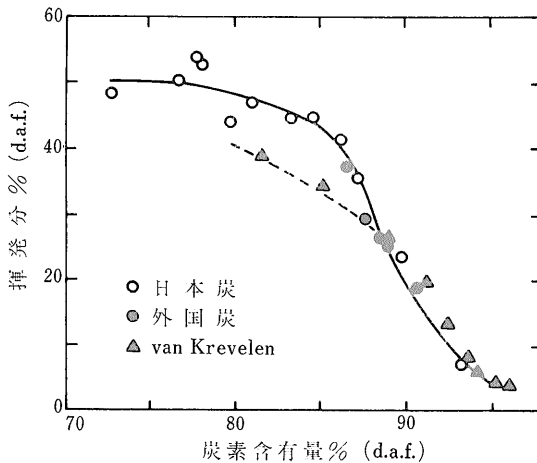
範囲において同一石炭化度の外国炭に比較すると 分析値の上で次のような大きな差異が認められる。 すなわち 工業分析の上で 国内炭は 概して外国の代表的石炭より水分が少なく（第11図参照）揮発分が多い（第12図）。 また元素分析における原子数比 H/C が大きく（第13図参照） 第三紀に属する日本炭は 海外の中・古生代の石炭に比して水素に富んでいる。

国内炭と外国炭との根源植物の差異については先にふれたが 石炭組織成分上の特性を述べる。 国内炭は ミクリニット（無定形・無組織）・菌核・木炭質状物（フジニット）からなるイナーチニット（不透明物質で輝度が高く 揮発分や発熱量が低い）がきわめて少なく 胞子・花粉・葉の表皮・小枝の角皮・樹脂などからなるエクジニット（揮発分と発熱量が高い）が多い。 これに対して外国炭は イナーチニットの含有量が比較的多い（第8表）。 したがって 国内炭は揮発分が多く 発熱量が概して高い（第14図）。

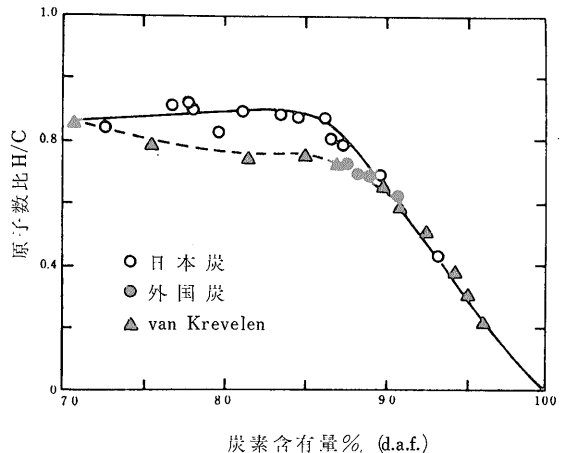
粘結炭を加熱処理すると 軟化 溶解してガスとタールを発生し 最後に固形物残渣としてコークスを形成する。 このような性質が粘結性である。 石炭の粘結性は 石炭化度に関係があり 元素分析における炭素が80～91%の弱～強粘結炭にのみ限定された特性である。 国内炭の熱的挙動（物理性）の特徴は 外国炭に比較して高揮発分粘結炭（第14図の B₂ 級）が高流動性を示すことである。 流動性の測定は ギーゼラー・プラストメーターによる最高流動度が主流となっており JIS で規定されている。 この測定による最高流動度は 第15図のように石炭化度の進むにつれて流動度が高くなり 炭素86%付近の石炭で最大値を示し 以後急激に低下する傾向がある。 しかも 国内炭のそれは 外国炭よりも高いことが特徴となっている。 これは 日本炭の水



第11図 石炭化度と水分との関係 (石炭技研特別報告より抜粋)



第12図 石炭化度と揮発分との関係 (石炭技研特別報告より抜粋)



第13図 石炭化度と原子数比 H/C との関係 (石炭技研特別報告より抜粋)

素含有量 揮発分 溶剤抽出量などが多いことに由来しているためと考えられている。

石炭を有機溶剤で処理して種々の成分に分別して それらの物性・化学構造を追求して 石炭の構造組成を解明する研究が行なわれている。 ピリジンによる抽出量は 第16図のように石炭化度が進むにつれて増加し 炭素85~87%の石炭で極大(36~43%)となり さらに石炭化度が増加すると急激に減少する。 国内炭の抽出量は 外国炭より一般に多い。 これは 国内炭が外国炭よりも原子数比 H/C の値が大きく 水素含有量の多い

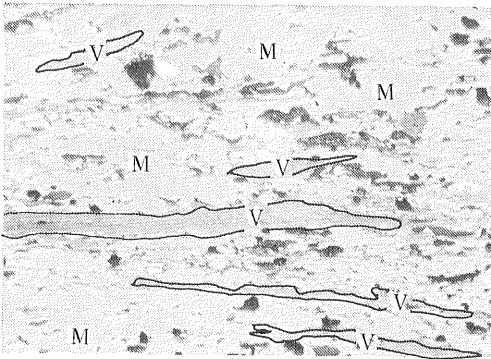


写真1 ドイツ ルール炭田 油浸×200
ミクリニット(白色部M) ビトリニット(灰白色部V)

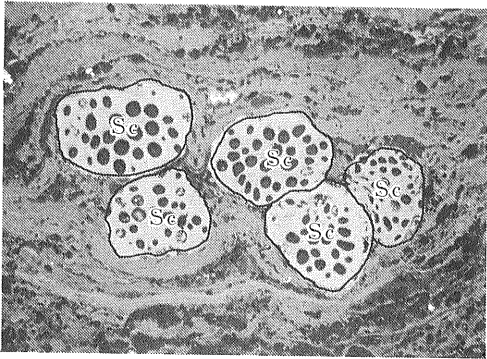


写真2 北海道 奔別炭鉱 幾春別9番層 油浸×200
菌核 (Sc)

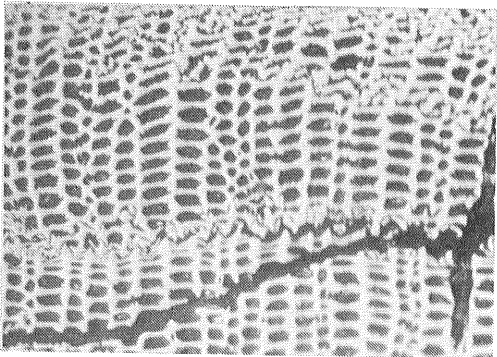
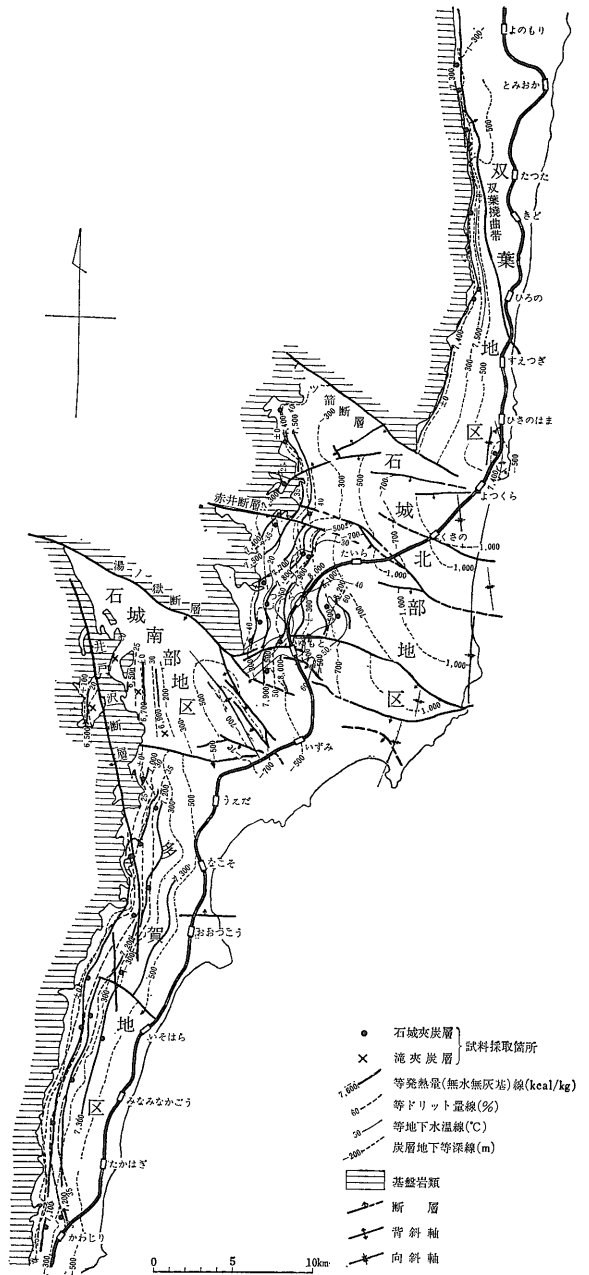


写真3 常磐炭鉱 下層 フジニット 油浸×200



第18図 常磐炭田下層の等発熱量 等ドリット量 等地下水温線図
ことによると考えられている。

これまでに述べた国内炭の特性は すでに活用され工業的に利用されているものもある。 すなわち 加熱時の流動性が大きいことからコークス製造用配合炭や成型コークス用バインダーとしての効能がある。 なお 将来の利用面では 抽出率が高いことから抽出水添法による液化には有利と考えられる。

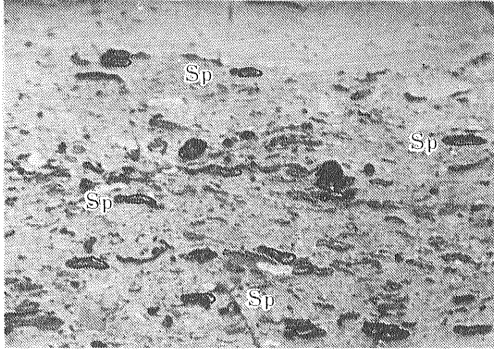


写真4 高島炭 18尺層 油浸×250
孢子 (Sp)

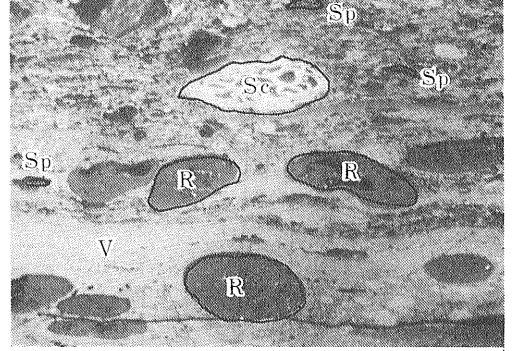


写真6 雄別炭 雄別下層 油浸×280
樹脂 (R) 菌核 (Sc) 孢子 (Sp) ビトリニット (V)

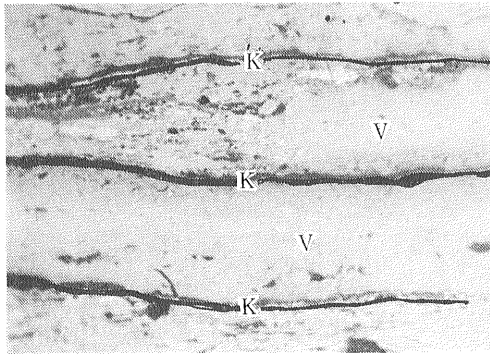


写真5 北炭夕張炭 夕張本層 油浸×250
角皮 (K) ビトリニット (V)

V 炭質特性と利用分野

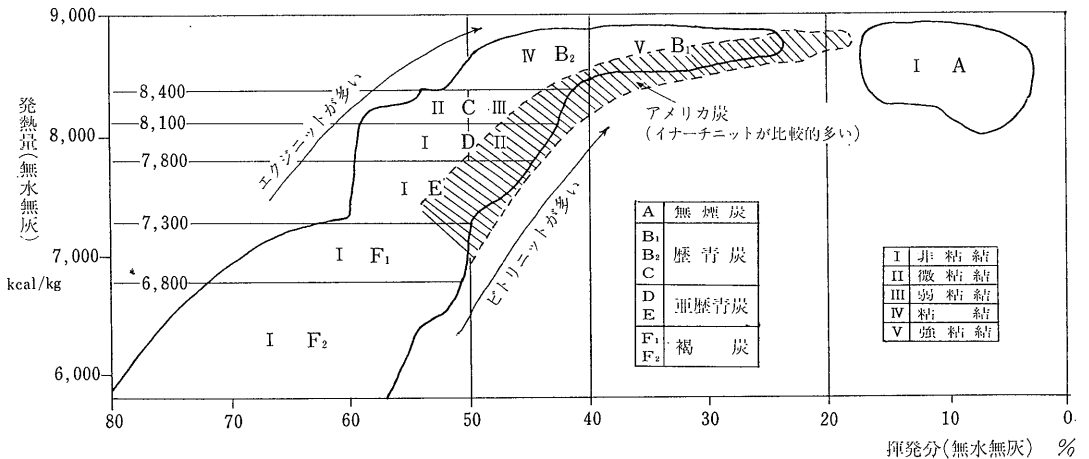
流動性の高い国内粘結炭が製鉄用コークス製造の配合炭として利用されているように、炭質特性が利用分野やその分野におけるプロセスの採択に密接に関係していることはいうまでもない。また 第II章で述べたことから石炭流体化の個々のプロセスに適する炭質は かなり

の制約があることが推定されよう。

ここで 将来における石炭高度化利用の主流をなすと考えられている 石炭のガス化・液化に要求される炭質特性について利用分野別に要約してみよう。

(1) ガス化：現在 一般的なガス化法の分類は 生成ガスの種類や用途によってではなく ガス化炉内における石炭の運動状態によって固定床 流動床 噴流床に別けられている。

固定床ガス化は 炉底に石炭を層状に固定し 燃料層（第4図の酸化層から予熱層までを含む）に対して通風が平らに均一に行なわれることを特徴としている。したがって 原料石炭は 粉炭をさけ できる限り粒度のそろった中塊炭（15~40mm 最低3mm）が望ましく 粘結性の強い石炭は乾留層において軟化・熔融して通風に強い抵抗を与えるので不適である。また 非粘炭のうち急熱によって粉化し易いものや灰の融点の低い



第14図 日本炭の揮発分と発熱量との関係

第8表 石炭組織分析表

組織成分 試料炭	ビトリニット	エクジニット	イナーチニット
日曹天塩炭鉱	91.4	8.6	
太平洋炭鉱 本層	72.4	26.6	1.0
赤平炭鉱 美唄8番層	87.6	11.4	1.0
夕張炭鉱 10尺上層	90.4	8.0	1.6
三池炭鉱 宮浦本層	94.5	5.5	
Moura炭鉱 Moura炭層	89.6	0.5	9.9
New Rivev炭鉱 Sewell炭層	88.8	3.3	7.9

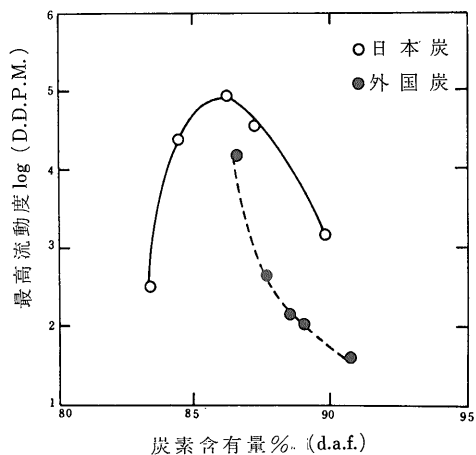
石炭技研特別報告より抜萃

ものは好ましくない。結局 微粘結の中塊炭(発生炉用炭)が最適である。しかし このガス化方式においては 乾留・予熱両層の温度(450~800°C)が概して低く 大部分の揮発分がガス化せず タールとなって分離するので 微粘結炭のなかでも揮発分の少ない石炭が有利と考えられている。

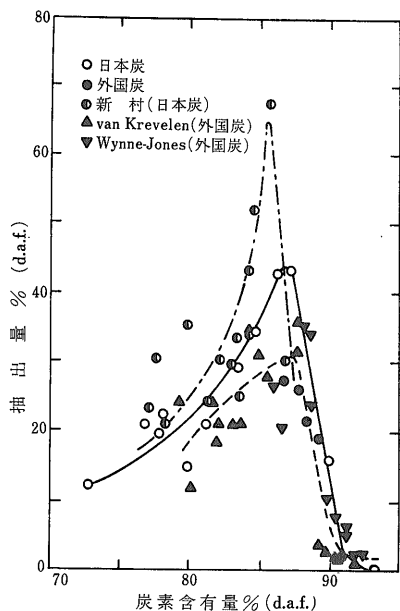
流動床ガス化は 石炭を流動状態で処理しようとする方法である。石炭はその比重と粒径に応じて最小流動速度と終端速度が決まるが その範囲の流動気流中では完全に気相中に懸垂して連続的な不規則運動を継続する。このような状態で石炭を処理するのが流動法である。流動床は 固定床に比較して

- ① 粉体を処理できること。
- ② 粉体は反応表面積が大きく かつ運動中の粉体と気体との相対速度が大きいため反応速度が著しく増大すること。
- ③ 反応が均一に行なわれるので自動制御が容易である。

などの特徴を有している。一方 この特徴から必然的に生ずる次のような制約がある。



第15図
石炭化度と最高流動度との
関係(石炭技研特別報告より
抜萃)
注 D.D.P.M.: Dial Di-
vision Per Minute
(円周を100等分した目
盛数/分)



第16図
石炭化度とピリジン抽出量
との関係(石炭技研特別報
告より抜萃)

1つは 石炭粒子の運動の関係からクリンカー(セメント製造において粘土 石灰等を窯でほとんど熔融する程度に焼成されて造られた塊をいう)障害をさけるため灰分の軟化点より少なくとも100°C以上低い温度でガス化しなければならないので ガス化速度に限界がある。したがって 比較的低温でガス化する高揮発分炭が良い。なお粘結炭は クリンカー障害の原因となるので不適であるが 酸化の前処理をすれば使用可能となる。しかし この処理による石炭の損失はまぬかれない。他は 原料石炭を粉砕して用いるので 粒度分布の広い石炭や高熱にさらされると粉化する石炭などは炭塵となって炉外に飛散する量が一層大きくなるので不適である。

噴流床ガス化は 微粉砕した石炭をガス化剤の高速気流と共にバーナーのノズルから噴射させ 灰がスラッグとなるような高温でガス化する。したがって 原料石炭の炭質の制約は少ないが 微粉炭を使用するので粉砕性が良いこと スラッグ排出のためにスラッグ分離を行ない易い灰の特性(低融点 高流動性など)をもつことが条件となる。このガス化法は 高温でガス化するために反応速度が大きく炉の容積が小さくてすむ。また 生成ガスは メタン含有量が少なく合成原料ガスに適する。

(2) 液化: 直接水添の場合には 石炭化度の低い石炭ほど揮発分含有量・水素含有量が多く 化学反応が容易である。粘結性の強い高度瀝青炭は 液化率が高いけ

れども 粘着して装置の障害をおこす欠点があり 無煙炭は液化率がおちる。一方 亜炭は 原料調製の微粉化が困難であるうえに 酸素含有量が多いために高価な水素の損失（石炭中の酸素と添化剤の水素が反応して水を生成する 第10図参照）をまねくほかに液化率が低いので 経済性が劣る。したがって 上質の褐炭から粘結性の強くない瀝青炭が原料の対象となる。なお 石炭の灰分中の硫化鉄は 水添の際に触媒の役目を果すので これを含有する石炭はむしろ液化反応には有利となる。

抽出水添の場合には 炭質の制限は少ないが 一般に高炭化度炭ほど抽出量が多い。

乾留水添では 石炭を低温乾留して得られるタールを原料とするので 石炭は高揮発分の褐炭から低度瀝青炭が適している。

VI 炭質の変化状況

これまでに述べたように 石炭の利用分野およびそのプロセスに適する炭質は かなりの制限があり また原料石炭の選択の決め手として多くの指標があることが理解されたことと思われる。

これら多数の指標を必要とする理由は 石炭が不均一で複雑な有機化合物の集合体からなるうえに 生成した環境条件によって炭質に相当な差異を生じたためである。現在使われている炭質の指標は 需要部門の実用的な観点から工業分析 発熱量 破砕性 灰の融点 乾留とこれに関連した試験などがある。また 化学的には 元素分析 硫黄 灰の組成分析など多数の規格が定められている。このほかに規格化されていないが 抽出 燃焼性 熱分解などの試験が多く行なわれているほか 石炭を有機変成岩として取り扱い 石炭を根源植物の面から解析しようとする組織分析もある。

ところで これら炭質指標の間には 例えば工業分析値や元素分析値から発熱量が算出されとか 揮発分 水素含有量 タール量 抽出量などの間には比例関係があるというように 互に密接な相関関係が存在している。すなわち 灰分や硫黄等のように二次的成分に由来するものを除いて ほとんどの炭質指標は 石炭化度との間に或る程度の連続的な関係が存在することが判明している。この石炭化度の変化（有機物の変成作用）は 主に石炭が受けた熱（温度）と圧力 とくに時間要素を加味した全熱量に関係して変化すると考えられている。

ところで この温度と圧力は 地下深部ほど高くなることはよく知られているが 現在各国の炭田において炭化度が深度に比例して変化している事実が各地で報告されている。次に炭質変化の実態について述べる。

ヒルトの法則で有名な C. Hilt は フランスのパ・ド・カレー炭田において 下位の炭層ほど石炭化度が高くなっていることを報告している。また Hickling は 深さ 100 ヤード（約90m）下るごとに炭素は1.45%増加し 水素は0.18% 揮発分は2%それぞれ減少することを立証している。

一方 わが国の主要炭田における稼行炭層については多くの指標にもとづいて 各種の分析・測定・試験などが行なわれ その時点およびその深度における炭質特性と地域的な炭質の分布状態がかなり明らかにされているが 深度に対する系統的な調査研究は比較的少なく わづかに佐世保炭田 常磐炭田などの研究があるにすぎない。

佐世保炭田は 北松の強粘炭産出地として知られ また佐々川断層を挟んで 東・西両地域で炭質に著しい差異があることで古くから有名な炭田である。この炭田の佐世保層群（中新世）基底に挟有されている大瀬五尺層の炭素量の分布は 第17図のとおりで 東方から西方に次第に増加しており 粘結性も微粘結から強粘結に変化している。また この傾向は 断層の落差を復元した炭層の伏在深度にほぼ相関していることが明らかにされている。

炭層が東に傾斜している常磐炭田では 双葉・石城北部・石城南部・多賀のいずれの地区においても それぞれ西方（炭層堆積盆地の周辺部）から東方〔盆地の中心部（深部）〕に向かって 石城夾炭層の下層炭の発熱量と地下水温（石城北部地区）は高くなっている。なお 石炭組織成分のドリット〔主として微細な木質部からなるビトリニットとエクジニット（孢子・花粉・葉の表皮・角皮・樹脂等）からなり 揮発分が多く 発熱量が高い〕量は 東方に増加しているが ビトリット〔本質部からなる〕量は逆に減少している（第9表 第18図参照）。したがって 上記各地区における発熱量の変化は 主として炭層の伏在深度や石炭組織成分などの差異に由来していると考えられる。しかし 石城北部地区の石炭は 温泉熱の影響もかなり受けているものと思われる。

上記の他に 現在閉山している石狩炭田の奔別炭鉱では 当時深部採掘を目的として海水準下 1,100m における幾春別夾炭層中の炭層別石炭流動度が報告されている。その結果は 第10表のとおりで 浅部における非粘結炭が深部では粘結炭に変化しており 一部のものは三池クラスの流動度を示している。

以上のように炭質は 地域的にも深度的にもかなり変化しているが 比較的炭層が急斜しているわが国の炭

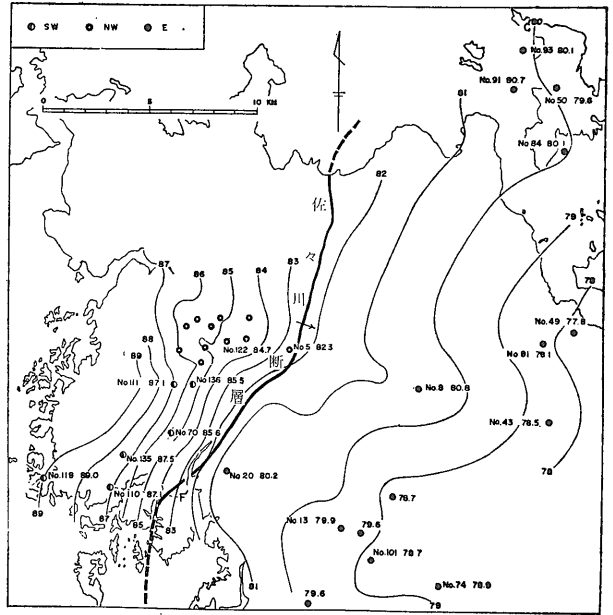
田においては 特に深度に対する炭質変化を重視する必要がある。それで 各炭鉱は これまでに蓄積した炭質資料を基礎として 炭質指標やその各種成分について深度別の変化傾向を把握しておく必要がある。

VII 炭質研究の必要性と地質学的問題点

国内において石炭の高度化利用工業を興す際 対象となる石炭の埋蔵量と炭質特性が基本的な要素になることはいうまでもないことである。もちろん埋蔵量は 経済的に可採という前提がつくが 利用工業の規模はこれによって左右されることがある。また 石炭利用工業の成否は 炭質に対する利用法の適否に大きくかかっていることはすでに述べたとおりである。

わが国の石炭埋蔵量は 昭和31年通商産業省による全国埋蔵炭量・炭質統計調査によってほぼ明らかにされているが 炭質については各指標に基づく体系的な調査が行われていないというえに とくに深度に対する炭質変化はほとんど実施されていない状況である。

それでは今後石炭の高度化利用に当って 原料となる石炭の質の問題にはどのように取り組むべきであろうか。先ず第1に考えられることは 石炭化学構造の解明を進めることである。この構造が解明できれば 炭質の完全な体系化が可能となり 石炭利用工業に画期的な発展をもたらすことは疑いない。これは 石炭の利用に関心を持つ者が均しく抱く夢であり 事実これまで内外を問わず数多くの研究者がこの点に努力を注いできた。また 近年は分析機器の発達によって X線回折や赤外・紫外・核磁気共鳴吸収・高圧示差熱分析および反射率・誘電率・弾性測定その他の物理的手段が導入されたほか 統計的解析手段なども加わって飛躍的な成果を挙げた。その結果 かなり納得のいく石炭の化学構造



第17図 佐世保炭田大瀬五尺等炭素量線図 (岩崎徹による)

が描かれるようになったが 石炭のありのままの構造とはほど遠く 石炭構造に基づいた炭質の体系化は いまなお至難の域を出ていない。

それで 現在石炭化学・地質学の両分野で実施すべき炭質の研究は 各工業利用面に合せた実用分析法や試験法を補強または新規に開発して規格化することであろう。この意味から 間接的に石炭の構造解明の一助ともなりかつ炭質表示の各種指標と連続的な関係を有する石炭化度に関する研究が最も重要と考えられる。このような観点から地質調査所では 石炭化度についての新指標の開発と石炭化作用の要因解明を目的として 石炭組織成分のビトリニットの反射率やエクジニットの蛍光性を利用しようとしている。

第9表 常磐炭田各地区における下層炭の発熱量 組織成分 地下水温度変化表

地区	カローリ組織成分 深度(海水準) m	発熱量 kcal/kg	ドリット量		地下水温 °C
			%	%	
双葉	+70	7,300	45 ↓	35 ↓	
	-100	7,450	55 ↓	30 ↓	
石城北部	+80	7,300	25 ↓	40 ↑	20 ↓ 60 ↓
	-490	8,200	60 ↓	20 ↑	
石城南部	+110	6,500	20 ↓	60 ↑	
	-170	6,900	30 ↓	50 ↑	
多賀	±0	7,000	25 ↓	55 ↑	8 17 ↓
	-400	7,300	30 ↓	45 ↑	

第10表 奔別炭鉱における各炭層の流動性試験結果 (住石鉱業KKによる)

炭層名	最高流動度 D.D.P.M.	備考
2番層	27,500以上	海水準下 1,100m
5番層	628~2,010	-1,050~-1,100m
6番層	4,100	-1,110m
7番層	27,500	-1,000m
9番層	3,200~5,500	〃

従来 石化炭度の指標は 元素分析成分中の炭素 水素 酸素や工業分析成分のうちでは低炭化度炭については発熱量が 高炭化度のものについては揮発分がよく使用されてきた。しかし これらの分析は 各石炭組織成分の混合割合が異った石炭を対象としてきたので その数値にはかなりの幅があった。

近年 石炭化度の指標としてビトリニットの反射率が炭素含有量よりも正確であろうといわれており また最近ヨーロッパでは反射率よりも精度の高いエクジニットの蛍光性が利用されるようになった。ただし 後者は無煙炭のような高炭化度のものについてはエクジニットが変質して蛍光性を失なうので適用できなくなる。なお 両者は きわめて微量の試料でも測定が可能なので 炭層以外の地層中にも広く含有されているので 両者を併用することによって きわめて精度の高い地層別石炭化度の尺度が作成され 石炭化作用の過程や 温度(古地温)・圧力条件などが解明される。また 蛍光性を利用することによってエクジニット中の藻類の同定・定量が可能となる。これは 今後石炭組織学の発展に大きな貢献をもたらすとともに炭層堆積環境の解明に役立つ。なお ビトリニットの反射率は 風化による影響をほとんど受けないので 露頭炭でも炭化度の測定ができる利点がある。次にこれらの測定法や炭質指標との関連性について述べる。

ビトリニットの反射率: 石炭は32メッシュ以下に粉碎し(岩石は粉碎後 比重液でビトリニットを分離する) アクリル樹脂などで2個のブリケットを作製 研磨して測定試料とする。当所の測定装置は ライツ製 MPV 型で 反射率(油浸)の標準試料はアメリカ W. F. Berry Association Inc. 製を用いている。反射

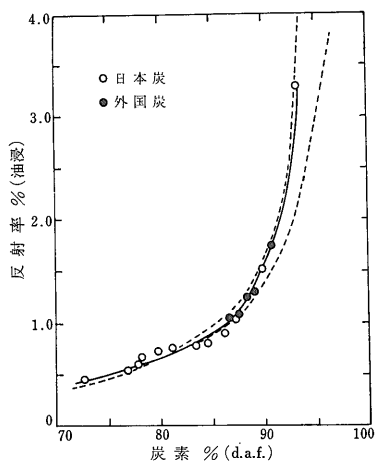
率の測定においては 反射光の強弱を電流に換えて 標準試料の換算図から各ビトリニットの反射率を求める。なお 測定数は 2個のブリケットについてそれぞれ50点おこない これらの平均値をその試料の反射率とする。

反射率は 石炭化度の上昇に伴ってほぼ連続的に高くなっているが 炭素約86%以上では反射率が急激に増加している(第19図)。カナダ・オーストラリアの試錐で確認された石炭の反射率と深度との関係は 第20図のとおりである。これによっても明らかなように 反射率と深度とは直線的な比例関係を示しており 炭化度が深度の増加に伴って変化している状況がみごとに表現されている。

エクジニットの蛍光性: 石炭についての測定試料調整は 上記反射率と同じような方法を用いる。一方岩石からエクジニット(主として花粉・孢子)を分離する場合には 化学薬品を使用しないで 粉碎試料を水比あるいは遠心分離機などで分離して スライド・ガラスに封入する。

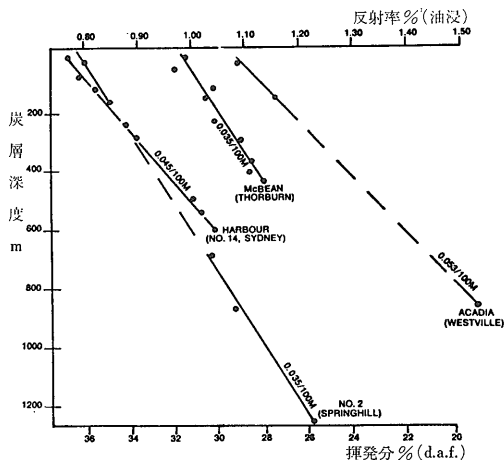
蛍光性の測定は 顕微分光光度測定装置(昭和51年度から研究開始の予定 第21図)を用いて行なう。

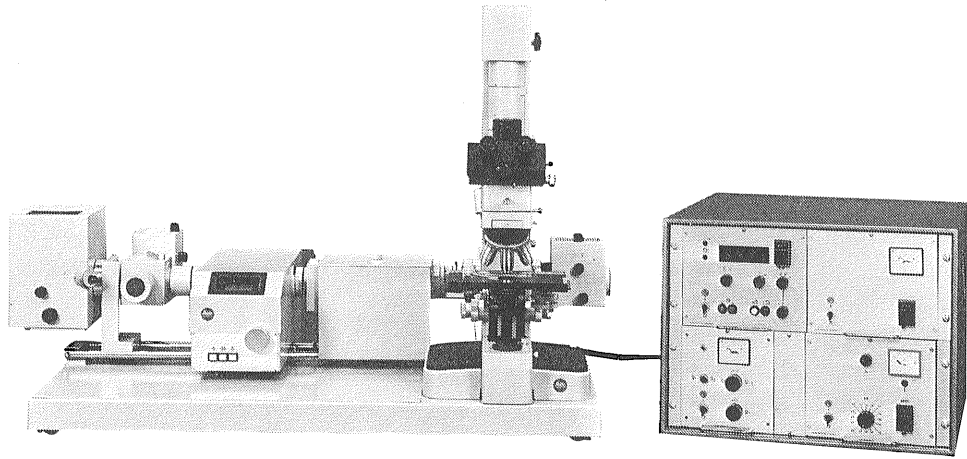
エクジニットは 波長410~700nmの落射光を受けると蛍光を発する性質があり 電動式干涉連続フィルターで 短波から長波へと順次波長を変えて 蛍光光度が最高を示す時の波長(最大スペクトル λ_m)を測定する。また エクジニットをある波長(ここでは300~400nm)で長時間露出(30分間)した時のフェーディング(光度が時間とともに変化する現象)は エクジニットの種類によって蛍光光度が増加(+)または減少(-)したりあるいは変化しないものなどがある。したがって λ_m の測定には 同一種類のものについて測定することが望



第19図
炭素量と反射率の関係
(石炭技研特別報告より
抜粋)

第20図
炭層深度と反射率 揮発
分の関係(HACQUEBARD
& DONALDSON による)





第21図
顕微分光光度測定装置 MPV2
右より データ処理表示装置 オルトプラン 連続波長選択格子モノクロメーター 高圧水銀ランプ

ましい。なお フェーディングは 初期の蛍光光度に対する比率で表現される (第22図)。

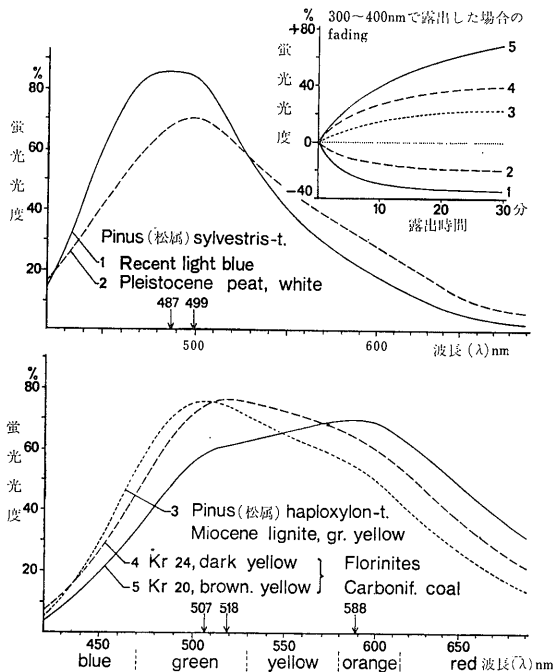
深度とビトリニットの反射率は ほぼ正の相関関係があるが λm は反射率と比較して 測定値のばらつきがきわめて少なく直線的に変化していることが利点となっている (第23図)。

以上述べてきたことは 石炭高度化利用についての最も切実な需要面からの炭質の問題であり それが地域・深度的に変化することと 炭質の新しい指標として反射率や蛍光性の効用についてであった。

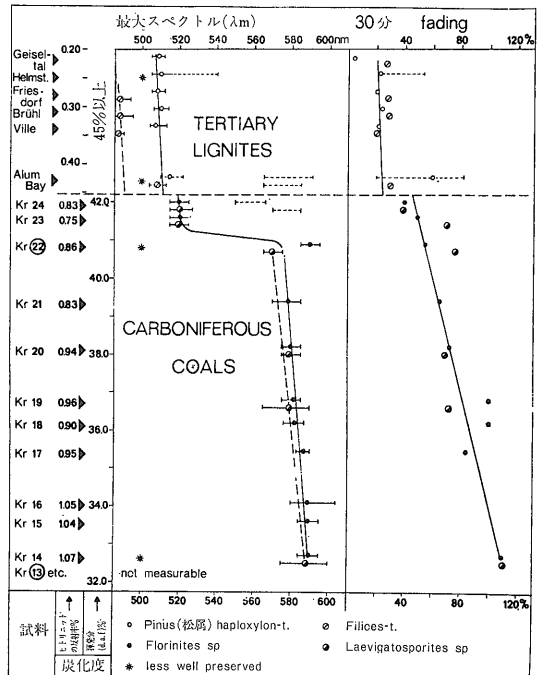
最近 石炭鉱業審議会は 昭和60年度までの見通に立った新しい石炭政策として

- (1) 今後10年の間の国内炭の生産水準を年産2,000万t以上維持する。
- (2) 海外からの一般炭の開発・輸入も昭和60年度には1,500万tに拡大し 発電所などに使用する。
- (3) 石炭利用技術開発の推進など。

を提言し これまでの石炭縮少政策の方向転換を打ち出した。



第22図 蛍光光度と波長およびフェーディングの関係 (GIJZEL and BLESS 1974)



第23図 石炭化度と蛍光性 (GIJZEL and BLESS 1974)

この線に沿って今後政策が進められるにしても 国内ではまだある程度の閉山は避けられないので 生産水準の維持のためには新規炭鉱の開発が必要になるし 海外炭の開発・輸入においても 炭質とその埋蔵量が問題となる。まして 石炭をエネルギーとして利用する際には 大量消費が伴うので 現在国民的課題となっている環境保全のためにクリーンエネルギーであることが前提となり 石炭流体化利用とそれに適する炭質特性調査が今後ますます重要度を加えてくるものと思われる。しかも 石炭は 不均一な有機化合物の集合からなり 生成した環境条件などによって炭質に相当な差異があり かつ 深度・地域的に変化することなどを考慮すると 今後炭質を調査するに当って最も大切なことは 炭田全域にわたる炭質の総合調査ではなからうか。

すでに述べたように 各炭田の炭質は 現時点において石炭のスポット的試料あるいは炭鉱の稼行炭層についてかなり炭質特性が調べられてはいるが 概して個々の資料として報告されているにすぎない。とくに海外からの石炭についてはこの傾向が強い。まして その石炭がどのような地史的背景をもった地点から産したものか また どの炭層のいかなる深度からのものかなどが明らかにされているものは少ない。

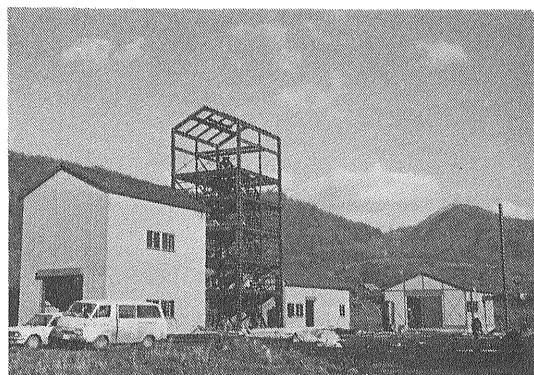
それで 炭質の総合調査は 既存炭質資料のうち地質的データが明示されているものを参考としながら 炭質指標の根幹となっている炭素含有率や新規に開発された反射率・蛍光性などを中心として 現在炭質の表示に使われている全指標について 分析・測定・試験などを総合的に行ない 各成分の地域・深度的変化の規則性を見出し 深部における炭質が予測できるような調査法の体系化が必要である。もちろんその際に いわゆる地質学的手段で得られる炭層の堆積環境 炭層発達規則性 埋積深度および地質構造条件などの資料と石炭化作用との関連づけを行なって その要因の解析が当然必要になってくる。

わが国の炭田について このような調査技術・手法が確立され 炭田全域とくに深部における炭質の予測が可能になると 炭田全般にわたる炭質特性が把握される。このような炭質特性に基づく石炭資源の再評価は 将来における石炭利用工業のプロセス採択や採掘区域の選定などの基礎資料として大いに役立つものと思われる。また 海外炭の開発・輸入に際しても この技術が活用されるばかりではなく 海外技術協力にも貢献できよう。

(主な執筆者 曾我部正敏・佐々木 実)

参 考 文 献

- 1) 馬場有政ほか6名(1960)：石炭化学工業 産業図書KK
- 2) 岩橋 徹(1963)：佐世保炭田炭の石炭化度の地質学的研究 九大理報 vol 6, no. 2
- 3) 科学技術庁研究調整局(1974)：石炭資源とガス化・液化特性に関する特別報告
- 4) 科学技術庁資源調査所(1973)：我が国エネルギー経済に占める石炭の評価に関する調査報告 科学技術庁資源調査会報告 no. 65
- 5) 燃料協会編(1974)：新版・燃料便覧 コロナ社
- 6) P. A. HACQUEBARD and J. R. DONALDSON (1979)：Coal metamorphism and hydrocarbon potential in the Upper Paleozoic of the Atlantic Provinces, Canada. Geol. Surv. Canada
- 7) P. VAN GIJZEL(1973)：Polychromatic UV-fluorescence microphotometry of fresh and fossil plant substances, with special reference to the location and identification of dispersed organic material in rocks. 6th International Cong. Organic Geochemistry, Paris
- 8) 佐々木 実(1959)：日本炭の分類に対する修正案について 石炭利用技術会会議録
- 9) 佐々木 実(1967)：石炭組織からみた常磐炭田における炭質の相違と炭層の生成 燃料協会誌 vol. 46 no. 488.
- 10) 石炭技術研究所(1973)石炭化および炭化初期段階における諸性状の解明と日本炭の特徴 石炭技術研究所特別報告
- 11) 産業技術審議会エネルギー技術特別部会(1974)：新エネルギー技術開発の進め方について(分科会報告)



石炭ガス化の試験プラント(石炭技術研究所提供)

北海道夕張市に石炭技術研究所が建設を進めていた石炭ガス化の試験プラントは 昭和50年1月から運転されている これは 通産省のサンシャイン計画の一環として建設されたもので 石炭から発電用低カロリーガスの製造を目的としている このプラントは 原料石炭をガス化適正粒度に調整する前処理装置 空気 水蒸気と石炭とを反応させて COH CH_4 などを製造する二段加圧流動ガス化炉とガスの除じんおよび脱タール装置からなっている 現在の石炭処理量は 5t/日であるが昭和57年頃までに 石炭処理能力 2,000t/日級の実用化プラントおよびこれと連けいするガスタービン スチームタービン複合サークル発電システムなどを開発して 出力20万kW級の発電を行なう予定である