



# 躍動

若手研究者・技術者の取り組みと将来の夢

## ハイパーコールの利用技術の概要と その可能性

Overview and Possibility of Utilization Technology of Hyper-Coal

宍戸 貴洋 (株)神戸製鋼所 技術開発本部  
Takahiro Shishido 機械研究所 エネルギー環境研究室  
主任研究員

### 1 はじめに

著者は、石炭エネルギー技術開発部に所属し、主に低品位炭の有効利用に関わる研究開発を行ってきました。石炭エネルギー技術開発部は、1970年代より開始した褐炭石炭液化(BCL)プロジェクトを発端とし、開発した技術を継承・発展させながら、低品位炭や重質油の高効率利用のほか、バイオマス利用や省エネ関連の研究開発を行っている部署です。

褐炭液化プロセス開発の中で確立された技術の一つに、水素化重質成分から触媒、灰分や未反応物等の溶剤不溶成分を重力沈降法により除去する溶剤脱灰技術があり<sup>1,3)</sup>、この溶剤脱灰技術を応用し、開発を進めているのがハイパーコール([Hyper-coal/HPC]、以下HPC)製造技術です。HPCは、有機溶剤を用いた溶剤抽出法と、重力沈降法による固液分離技術を組み合わせて製造される無灰炭です。HPCは、石炭分子の高次凝集構造を熱的に緩和して溶剤可溶性成分を抽出したものであり、石炭利用者にとって不要な灰分や水分を除去し、なおかつ粘結性をも発現する高カロリー、無水の固体燃料、材料であり、燃焼用以外にコークス用粘結材や炭素材料としての活用が有望であると考えられています<sup>4,5)</sup>。本報告では、HPC製造プロセスと、HPCの用途として開発を進めているコークス用粘結材としての可能性について、その概要を紹介させていただきます。

### 2 ハイパーコール製造プロセス

石炭は分子同士が複雑に絡み合った凝集構造を有しているため、室温では溶剤と混合しても、可溶性成分はわずかに抽出されるのみですが、350~400°Cに加熱することで溶剤自身の溶解力の増加、石炭分子の凝集構造の緩和が進行し、高い

抽出率が得られます<sup>6,7)</sup>。この抽出スラリーを高温状態のまま重力沈降して溶剤を蒸発除去することにより、HPCと副生炭(Residue coal、以下RC)を製造することができます。図1にハイパーコール製造プロセスの簡略フローを、図2には現在プロセス開発に活用している石炭処理量0.3トン/日規模のハイパーコール連続製造試験装置(Bench Scale Unit)の全景写真を示します。ハイパーコールの製造プロセスは、1)スラリー調製/脱水工程、2)抽出工程、3)沈降分離工程、4)溶剤回収工程より構成され、抽出工程で生成する油分(ナフタレン環構造を主体とする芳香族)による溶剤循環と、操作圧力2MPa以下の温和な条件を特徴とする石炭転換プロセスです。

### 3 HPCおよびRCの特徴

表1に、発電用一般炭(A炭)と、それを原料にして製造したHPC及びRCの性状を示します。また図3に、A炭と、HPC

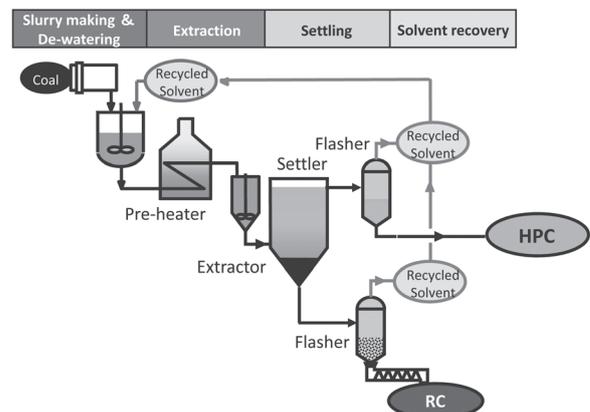


図1 ハイパーコール製造プロセス簡略フロー図

のギーセラー流動曲線 (JIS M8801) を示します。A炭の軟化溶解性は低く、コークス原料には使用できませんが、HPC は230°C 程度から軟化し、測定限界 (logMF = 4.78) を超える高い流動度を480°C 程度で再固化するまで維持することがわかりました。

HPCは、無水、無灰であり、高い発熱量や優れた着火性や燃え切り性を有しており、当初は高効率なガスタービンコンバインド発電システムの燃料として活用し、CO<sub>2</sub>排出量削減を図る事を目的としたプロジェクトに参画していましたが、現在はHPCの高い軟化溶解性を活かしてコークス用粘結材としての活用を主として用途開発を行っています。

このような高い軟化溶解性は、原料石炭の品位にかかわらず得られ<sup>8)</sup>、低品位炭のコークス原料としての活用も将来期待できると考えています。高炉用コークスは20種類程度の石炭を種々配合して製造されますが、良質な原料炭の枯渇、高騰が予測される中、低品位炭の利用拡大が課題となっています。一般に低品位炭は軟化溶解性が低く、単純に配合しただけではコークス品質の低下を招くため、粘結材による軟化溶解性の補完が重要であり、現在、粘結材として石油系のアス

ファルトピッチが活用されていますが、これは生産量が少なく、高硫黄分であることがネックであり、低硫黄な石炭を原料とするHPCの活用が有効であり、広く貢献できるものと考えています。なお、副生炭には原料の石炭中に存在した灰分が濃縮するものの、多孔質で着火性が高く、微粉炭火力発電やセメント用原燃料としての活用、あるいは非鉄金属用の還元材としての活用が有効であることがわかっています<sup>9)</sup>。

## 4 コークス用粘結材としての利用可能性

HPCは粘結性の低い非微粘炭の構成比率が多い配合において、特に高いコークス強度向上効果を示すことが確認されています<sup>10)</sup>。図4は、非微粘炭15%、粘結炭85%の配合炭を従来の配合条件のベンチマークとし、一方で非微粘炭を50%に増配し粘結炭を40%に抑え、HPCを10%配合して試験炉で乾留した時の、コークスドラム強度指数 (DI<sup>150</sup><sub>15</sub>) と熱間反応性指数 (CRI) を比べた結果です。ベンチマークではDI<sup>150</sup><sub>15</sub>が84.5、CRIが30程度を示しています。対して非微粘炭を50%まで増配してもHPCの利用によりベンチマークを

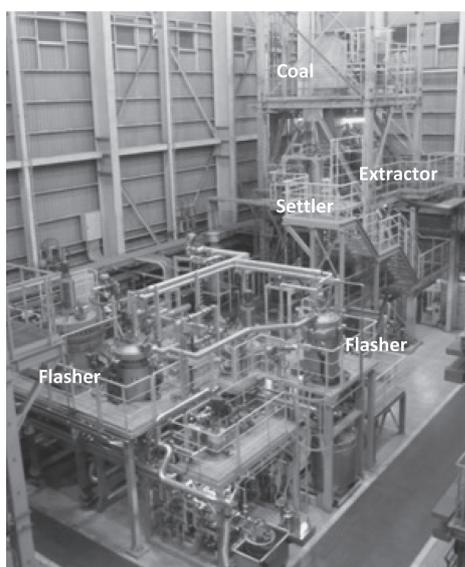


図2 0.3t/d ハイパーコール連続製造試験装置

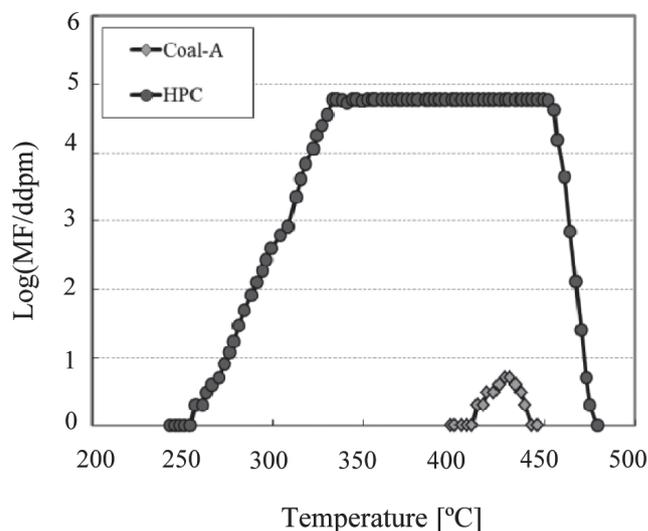


図3 A炭とHPCのギーセラー流動曲線

表1 原料炭およびHPCの分析結果

Sample	Ash	VM	Fuel ratio	C	H	N	S	O <sub>diff.</sub>	H/C *	Heat value [kcal/kg] (gross)	Fluidity
	[wt%] (dry base)	[wt%] (dry base)		[wt%] (daf base)							[logddpm]
Coal A	12.2	36.2	1.4	82.9	5.5	2.0	0.6	9.1	0.80	6,920	0.78
HPC	0.1	51.4	0.9	84.8	5.8	1.9	0.6	6.9	0.82	8,580	>4.78
RC	22.1	22.2	2.5	82.8	4.3	2.0	0.7	10.2	0.62	6,060	-

\* Hydrogen-Carbon ratio

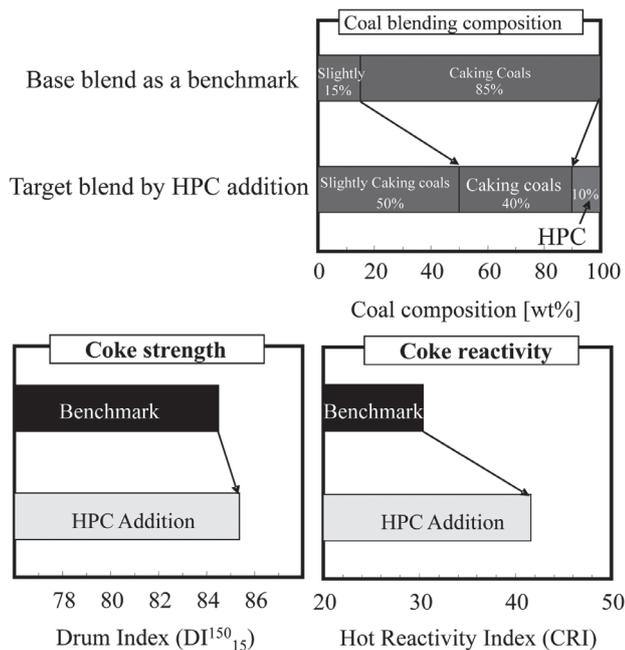


図4 非微粘結炭多配合条件におけるHPC添加効果

越える強度と高い反応性が得られています。

一般にコークスの反応性は配合される個々の石炭単味コークス反応性の加成性が成り立つとされ<sup>11)</sup>、反応性を高く持ち上げる非微粘結炭の配合増とHPCの利用で高強度高反応性コークスの製造が可能となると考えています。

NEDO事業「環境調和型製鉄プロセス技術開発 (COURSE50)」は、CO<sub>2</sub>排出の抑制と、CO<sub>2</sub>の分離・回収により、高炉製鉄所からのCO<sub>2</sub>排出量を約30%削減する技術を開発するプロジェクトで、2030年頃までに技術を確立し、2050年までの実用化・普及を目指しており、我々もコークス改良研究としてここに参画しています。CO<sub>2</sub>排出抑制技術は高炉での水素還元を増幅するものであり、コークス炉ガス (COG) を改質して水素濃度を高め、高炉へ直接吹き込み、還元に伴う炭素消費量を10%削減する事を目標とし、君津に建設した12m<sup>3</sup>規模の試験高炉による実証試験を行っています。我々は、コークス比低減下での通気性確保の観点でDI<sup>150</sup><sub>15</sub>=88レベルの強度を有し、かつ反応性を制御できるコークス製造技術の開発と、実機コークス炉を用いた試験高炉用コークスの製造を目標としています。ここで、反応性の異なる多様な配合条件下で強度を確保するためにHPCを利用しますが、強度制御指標としては、野村等が提唱した空隙充填能力<sup>12)</sup>が有望であり、HPC利用コークスにおいてもこの原則が成り立つ事を確認しています<sup>13)</sup>。ただし、石炭の装入密度が低くなると、装入時に粒子配置の均質性が低下し、これに起因してコークス気孔構造の均質性が低下するなどしてコークスの欠陥頻度が増加し、空隙充填能力のみの設定で所期する強度が得ら

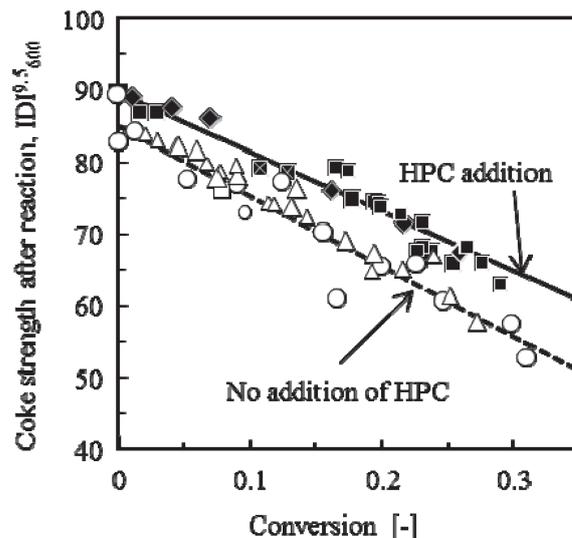


図5 コークス反応率と強度の関係

れなくなるケースが見られ、石炭の粉碎強化による石炭粒子配置の均質性確保などを行うことで、低い装入密度 (<0.73g/cm<sup>3</sup>) 条件下でも安定的に目標強度が得られる目処が得られています。なお、HPCは、コークス化反応の過程で先行溶融し、周辺の石炭粒子間の空隙に浸透してネットワークを形成し、周辺炭と相互作用しながら膨張して粒子間空隙を埋め一体化するものと考えており、この作用がコークス強度の向上をもたらしていると考えています。またコークスの反応性への影響として、HPC添加有無のコークスのガス化反応率に対する反応後強度の変化を図5に示します。図より同一反応率においてHPCを添加して製造したコークスの方が高い反応後強度を維持することが示唆されていました。また小谷野らが提案したコークスの画像解析より得られる基質連結度という強度評価指標<sup>14)</sup>を用いてコークス反応後の強度をHPC添加有無で比較した結果、HPC添加コークスは、同程度反応して損耗した状態において相対的に高い基質連結度が維持されていることが示されています。HPC添加におけるこのような効果は高炉下部での通気性維持の観点でも有利だと考えられ、現在COURSE50における試験高炉で使用するためのコークスを、HPCを利用して実機コークス炉で製造する準備を進めています。

## 5 むすび

図6にHPC製造プラントを製鉄所内に建設した場合の工業化イメージを示します。ハイパーコールの原料としては製鉄所内の自家発電用一般炭を用い、非微粘結炭の配合比率を増加させた原料炭配合を基本にコークスを製造し、また副生炭は一般炭と混合し自家発電用燃料として活用するシナリオ

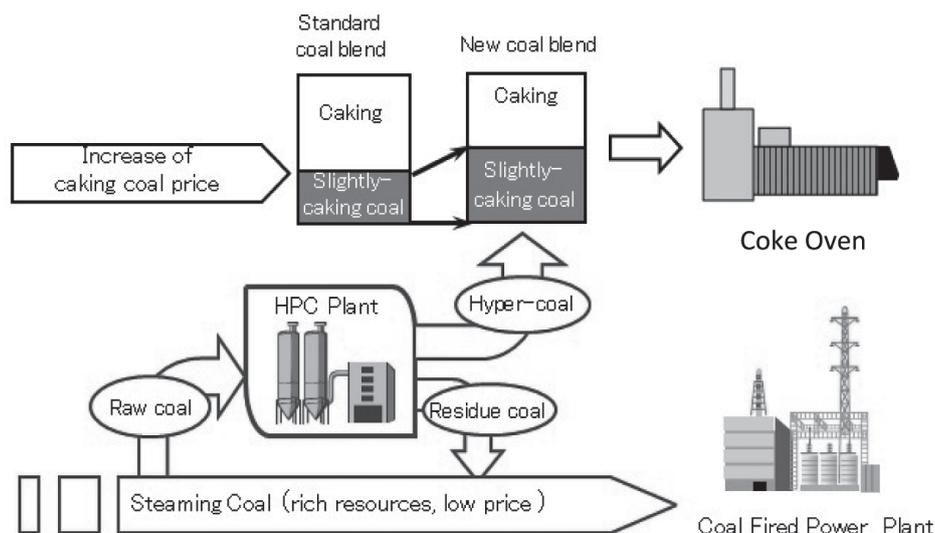


図6 HPC製造プラントの工業化イメージ

を想定して、更なるコスト削減や安定化を狙ったプロセス改良研究も実施しながらスケールアップ実証を目指して活動しています。

なお本研究は、平成14年度から19年度にかけて行われたNEDOプロジェクト「石炭エネルギー開発事業 石炭利用次世代技術開発調査 ハイパーコール利用高効率燃焼技術の開発」および現在継続しているNEDO事業「環境調和型製鉄プロセス技術開発 (COURSE50)」における成果より記述しています。

参考文献

- 1) O.Okuma, K.Masuda, N.Okuyama and T.Hirano : Fuel Processing Technology, 51 (1997), 177.
- 2) O.Okuma, K.Masuda, N.Okuyama and T.Hirano : Fuel Processing Technology, 56 (1998), 229.
- 3) O.Okuma, N.Okuyama, T.Hirano and K.Masuda : Fuel Processing Technology, 60 (1999), 119.
- 4) 奥山憲幸, 古谷敦志, 小松信行, 重久卓夫 : R & D 神鋼技報, 56 (2006) 2, 15.
- 5) 宍戸貴洋, 堺康爾, 奥山憲幸, 濱口眞基, 小松信行 : R & D 神鋼技報, 60 (2010) 1, 62.

- 6) 吉田貴紘, 鷹觜利公, 坂西欣也, 斎藤郁夫, 藤田将治, 真下清 : 資源と素材, 118 (2002), 136.
- 7) 斎藤郁夫 : 最近の化学工学55, 21世紀の循環型社会を支えるエネルギー化学工学, 化学工学会編, 化学工業社, (2003), 108.
- 8) N.Okuyama, N.Komatsu, T.Shigehisa, T.Kaneko and S.Tsuruya : Coal Preparation, 25 (2005), 295.
- 9) 宍戸貴洋, 奥山憲幸, 濱口眞基, 菊池直樹 : 第13回北海道エネルギー資源環境研究発表会, (2013), 6.
- 10) 宍戸貴洋, 堺康爾, 奥山憲幸, 濱口眞基, 小松信行 : CAMP-ISIJ, 23 (2010), 62, CD-ROM.
- 11) T.Yoshida, K.Sakai, N.Okuyama, M.Hamaguchi and N.Kikuchi : ICCS & T (2015), CD-ROM.
- 12) 野村誠治, 有馬孝, 加藤健次, 山口幸一 : 新日鉄技報, 384 (2006), 43.
- 13) N.Okuyama, T.Shishido, K.Sakai, M.Hamaguchi and N.Komatsu : ICCS & T, (2011), c48, CD-ROM.
- 14) 小谷野耕二, 鷹觜利公, 宍戸貴洋, 奥山憲幸, 小松信行 : 石炭科学会議発表論文集, 47 (2010), 88.

(2017年3月2日受付)

## 先輩研究者・技術者からのエール

北海道大学 大学院工学研究院 附属エネルギー・マテリアル融合領域研究センター 准教授

坪内 直人

**我**が国の石炭液化技術開発は、1973年のオイルショックを契機に活発化し、多額の研究費を費やし褐炭や亜瀝青炭を液化する手法を確立した。その技術は、経済性や安全性などの問題のため商業化には至らなかったが、宍戸氏は方法論を継承し発展させ、溶剤抽出と固液分離から成る無灰炭〔ハイパーコール (HPCと略す)〕製造プロセスの開発とHPCの利用技術の構築に取り組んでいる。

その内容に関しては、宍戸氏の躍動記事を是非お読み頂きたいが、前者のプロセス開発では、0.3ton/dayのHPC連続製造プラントにて、2.0MPa以下の温和な条件下で、多種類の石炭をナフタレン構造主体の石炭由来油分に可溶化することに成功し（一部は産業技術総合研究所との共同研究）、一方、後者の利用法開発では、先ずガスタービン燃料としての可能性や石炭火力への適応性を検討し、現在はコークス製造用粘結材として利用する原理の確立を推し進めており、いずれも独創的研究である。

私と宍戸氏は、2015年3月から日本鉄鋼協会の新規コークス製造プロセス要素技術研究会（主査：東北大学・青木秀之教授）において、HPCの高い軟化溶解性能を生かして「架橋反応抑制による軟化溶解成分増幅」に取り組んでおり、更に、当センターのテクノロジートランス

ファーイニシアティブ研究でも共同で行っているが、宍戸氏の高い研究遂行力と優れたデータ解析力には驚かされることが多い。また、控えめな性格であるが、講演大会等では他の発表者へ積極的に意見・コメントを述べ、その姿は実に頼もしい。昨年、某研究発表会において、私の隣に座られた著名な先生が“いま質問しているのは宍戸さん？積極的で良いね！”と言われていたのが特に記憶に残っており、見習うべき点である。

コークス製造用の粘結炭は、埋蔵量が石炭全体の約10%と少なく、更に、アジア諸国における石炭利用量の大幅な増大から価格高騰が懸念され、このような石炭の枯渇も現実味を帯びてきている。また、製鉄業はCO<sub>2</sub>の排出量が多いため、現在その削減を目指したNEDO事業「環境調和型製鉄プロセス技術開発 (COURSE50)」が行われているが、ここでは高炉へ高濃度のH<sub>2</sub>を導入するため、さらに高強度で反応性も制御できるコークスが望まれている。このような資源とCO<sub>2</sub>の問題は、我が国の製鉄業が抱える3問題（残りは、エネルギー問題）の2つであり、宍戸氏のHPC関連研究は少なくとも両問題の解決に貢献できると考えられ、今後の益々の飛躍を心から期待する。

関西熱化学（株） 経営企画部

西村 勝

**先**輩研究者からのエールとしてコメント執筆のご依頼を頂いた。筆者は研究職を離れ6年を経過しており、本件ご依頼に些かの疑問を感じながら以前ハイパーコール（以下HPC）のコークス製造利用の共同研究をさせて頂いたこともあり今回お受けさせて頂いた。なお、HPCは広い利用可能性を示される中、ここではコークス利用についてコメントさせて頂く。

高炉に求められるコークスの品位としては冷間強度、CO<sub>2</sub>反応性/反応後強度、粒径等があり、その制御は主に石炭配合により行われる。一方で、品位を満足させた上で競争力強化のため原料コスト削減が常に求められている。原料コストの削減は、高価な粘結炭の配合比を下げ、低価格であるが劣質な非微粘結炭を如何に多配合できるかということであり、多くの研究が行われている。HPCの研究結果では、非微粘結炭増配の可能性を示されつつ冷間強度を高めCO<sub>2</sub>反応性も高くする内容も示されており、HPCのコークス製造への利用は、高炉操業にとっても良い方向に繋げるものであることが感じられる。

コスト削減は、粘結炭と非微粘結炭の比率とその炭種間の値差に影響される。コークス製造に重要な強粘結炭の過去10年の価格を見ると300ドル/T超急上昇した後

に低下し100ドルを下回った。ここ2年では中国の炭鉱政策に影響され再び300ドルを超え急上昇したが今年に入り200ドルを割り込むという大きな変動が見られた。HPCの物理、化学的な効果は不変で種々期待される場所であるが、HPCの実用化の判断には金銭的效果も一つの大きな材料であろう。そのため原料炭の動きは注視されているものと考えている。

ところで、コークスに利用の瀝青炭の可採埋蔵量は100年を切るというデータもあり、コークス製造に重要な加熱時に軟化溶解し再固化する性質を持つ瀝青炭が将来不足することは必至である。高炉法ではコークスは不可欠であり、瀝青炭不足時には劣質な石炭種から粘結性を引き出すHPCは必ずや重要な位置付けになろう。過去にも原料が入手できない、入手困難の予想下で種々石炭の処理によるX炭や溶剤精製炭 (SRC) 等の研究が行われた。HPCは溶剤処理では後者と同じだが、SRCは水素下約10MPaの厳しい条件で製造される。HPCは大きく緩和されたものでありコスト面もあるが、今後一層に製造法、副生炭含む利用法の検討を進められ、近い将来に実用化されていくことを大いに期待している。