

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 20 日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02658

研究課題名(和文) 高温太陽集熱による未利用炭素資源の流動層ソーラーガス化水素製造システムの開発

研究課題名(英文) Development of hydrogen production system by gasification of carbonous material by high temperature solar heat

研究代表者

郷右近 展之 (Gokon, Nobuyuki)

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号：20361793

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：研究目的は太陽日射の良い海外のサンベルトで得られる～1000 の高温太陽集熱を利用し、未利用炭素資源を連続供給しながら高温熱で熱分解・ガス化を行う「炭素資源供給型の流動層ソーラーガス化水素製造システム」の開発である。研究成果は、1) 5kWth反応器システムの設計と反応システムの試行、集光シミュレーターによる熱分解性能試験・評価、2) 未利用炭素資源としてコーヒー残渣による熱分解温度の探査・評価、3) 5kW流動層反応システムを用いて疑似太陽集光照射による昇温試験・熱分解・ガス化試験、4) 炭素資源の連続供給系の実験的検証、5) 炭素資源の連続供給系を備えた反応器システムによるガス化運転試験である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

太陽熱ガス化水素製造システムはバッチ式反応器が主流であり、炭素資源を連続供給しながら熱分解・ガス化を行う反応システムは開発例が限られている。炭素資源としては、飲料コーヒー廃棄物のコーヒー残渣に注目した。コーヒー残渣は埋め立て処理や廃棄物として燃焼され、CO2排出の一因になっている。コーヒー残渣はリグニンとセルロースを多く含むことから、熱化学的変換(熱分解やガス化など)や生物化学的変換(メタン発酵など)によるバイオ燃料生産やバイオリファイナリー技術が研究されてきた。しかし、疑似太陽集光照射によるコーヒー残渣の熱分解および水蒸気ガス化による水素製造は報告例がなく、本研究が最初の開発事例である。

研究成果の概要(英文)：The purpose of the research is carbon resource supply type that continuously supplies unused carbon resources into reactor system while pyrolyzes and gasifies them with high temperature heat of ~1000 in sunbelt region. It is the development of solar gasification system with the fluidized bed operated at high temperature solar heat to produce hydrogen from unused carbon resources. The research results are 1) design of 5kWth reactor system and trial of reaction system, pyrolysis performance test/evaluation by solar simulator, 2) exploration/evaluation of pyrolysis temperature of coffee residue as unused carbon resource, 3) heating test/pyrolysis/gasification test of 5kW reactor by using solar simulator 4) Experimental verification of continuous supply system of carbon resources, 5) gasification operation test of reactor equipped with continuous supply system of carbon resources.

研究分野：高温太陽熱利用

キーワード：高温太陽熱 バイオマス 水素製造 合成ガス製造 炭素資源 熱分解・ガス化プロセス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

太陽日射が豊富な海外のサンベルトでは、太陽からの直達日射をヘリオスタット等で反射・集光することにより集中タワー型太陽集光システムにおけるソーラーレシーバーにおいて～1000 程度の高温太陽集熱が得られる。高温太陽集熱をエネルギー源とし、炭素資源を太陽熱により熱分解・ガス化し水素を製造するソーラーガス化水素製造システムの開発が欧米諸国で行われている。

未利用炭素資源を高温太陽集熱で熱分解・ガス化する反応システムは、これまでバッチ式反応器に関する研究報告例が多く、炭素資源の連続供給を可能にした反応システムの開発例は限られていた。また、未利用炭素資源としては、海外では木質・草本系バイオマスの太陽熱ガス化の研究開発例はあるが、食品系バイオマスの太陽熱による熱分解・ガス化に着目した太陽熱反応器の開発事例の報告はない。

熱分解反応を進行するには一般に 300 ～1000、ガス化反応を進行するには 950 以上の高温が必要であり、太陽集光によりバイオマスを安定的かつ効率的に加熱することが重要である。従って、バイオマスを太陽集光で加熱して熱分解およびガス化することが有効となる。

バイオマスはカーボンニュートラルな資源であり、バイオマスからの燃料製造は、温室効果ガスの排出抑制技術の一つとして期待されている。バイオマスの一種であるコーヒー豆は世界で約 1,000 万トン (2021 年) 消費されており、飲料コーヒーの廃棄物であるコーヒー残渣 (年間 800 万トン) は埋め立て処理や廃棄物として燃焼され、CO₂ 排出の一因になっている。コーヒー残渣はリグニンとセルロースを多く含むことから、熱化学的変換 (熱分解やガス化など) や生物化学的変換 (メタン発酵など) によるバイオ燃料生産やバイオリファイナリー技術がこれまで研究されてきた。しかし、高温太陽集熱によるコーヒー残渣バイオマスの熱分解および水蒸気ガス化についてはこれまで研究報告例がない。

2. 研究の目的

本研究の最終目標は大型太陽集光システムで得られる～1000 の高温太陽集熱を利用し、未利用炭素資源の太陽熱熱分解ガス化により水素を製造するソーラーガス化水素製造システムを開発することである。すなわち、未利用炭素資源を連続供給しながら流動層化し高温熱でガス化を行う「未利用炭素資源供給型の流動層ソーラーガス化水素製造システム」の開発を目指している。

3. 研究の方法

1) 5kWth 反応器システムの設計と反応システムの試行、集光シミュレーターによる熱分解性能試験・評価、2) 未利用炭素資源としてコーヒー残渣による熱分解温度の探査・評価、3) 5kW 流動層反応システムを用いて疑似太陽集光照射による昇温試験・熱分解・ガス化試験、4) 炭素資源の連続供給系の実験的検証、5) 炭素資源の連続供給系を備えた反応器システムによるガス化運転試験

4. 研究成果

1) 5kWth 反応器システムの設計と反応システムの試行と、集光シミュレーターによる熱分解性能試験・評価では、疑似太陽集光照射による 5kWth 反応器システムの昇温試験を行い、木質バイオマスペレットをモデル試料として採用し、試料の熱分解時の温度計測手法を確立した。また、疑似太陽集光照射によるバイオマス試料の熱分解により生成するガス種を特定し、それらのガス種を計測する化学的測定手法を確立した。これらの成果に基づいて、5kWth 反応器システムの設計を行った。また、バイオマス試料について集光シミュレーターによる熱分解性能試験を行った結果、～450 で熱分解が進行し、水素を主成分とする熱分解ガス成分を明らかにした。

2) 未利用炭素資源としてコーヒー残渣による熱分解温度の探査・評価では、未利用炭素資源として食品系バイオマスであるコーヒー残渣を選定した。このバイオマス試料の熱分解温度の探査を目的として、熱重量分析器を用いてコーヒー残渣バイオマスの熱分解温度と生成ガス/バイオオイル/固体成分チャーの関係を調査した。昇温速度により熱分解成分の割合が変化することを明らかにした。これらの結果は試料の加熱速度により熱分解ガス構成成分が変化することを示唆していた。

3) 5kW 流動層反応システムを用いて疑似太陽集光照射による昇温試験・熱分解・ガス化試験では、疑似太陽集光照射によるコーヒー残渣バイオマス試料の昇温試験および熱分解試験を行った。流動層反応器に備え付けた電気ヒーターによる低速加熱熱分解と、疑似太陽集光照射による高速加熱熱分解を実験的に比較し、バイオマス試料の熱分解により生成するガス種を計測・特定した。熱分解ガスの生成総量は低速よりも高速熱分解の方が多く、低速に比べて高速熱分解では 2 次分解反応が良く進行することが主要因と推察した。熱分解の前半では、高速熱分解ガスの総量が最も大きく、C₂H₆ は高速熱分解においてのみ生成することを実験的に明らかにした。

4) 炭素資源の連続供給系の実験的検証では、炭素資源の連続供給系についてはコークス粒子を

モデル粒子として採用し、粒子を重力とガスで搬送する粒子供給系について実験的に検討し、反応器システムに組み込み可能であることを実験的に明らかにした。

5) 炭素資源の連続供給系を備えた反応器システムによるガス化運転試験では、コーヒー残渣バイオマス的高速と低速熱分解後のチャーについて、流動層反応器を用いて疑似太陽集光によるコーヒー残渣由来のチャーの水蒸気ガス化試験を行った。高速熱分解チャーと低速熱分解チャーの流動層温度に大きな差は見られなかった。従って、どちらのチャーも同等の高温流動性を有することがわかった。高速熱分解チャーのガス化による生成ガス収量は低速熱分解の約 2.8 倍大きく、今後の研究であるコーヒー残渣の熱分解ガス化の連続プロセスに適用する場合を想定すると、この結果は好ましいと考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Gokon Nobuyuki, Jie Chew Shun, Nakano Yuya, Kodama Tatsuya, Bellan Selvan, Cho Hyunseok	4. 巻 30
2. 論文標題 Thermal charge/discharge performance of iron-germanium alloys as phase change materials for solar latent heat storage at high temperatures	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Energy Storage	6. 最初と最後の頁 101420 ~ 101420
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.est.2020.101420	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gokon Nobuyuki, Hara Kazuki, Ito Naoki, Sawaguri Hiroki, Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Cho Hyun-Seok	4. 巻 2303
2. 論文標題 Thermochemical H ₂ O splitting using LaSrMnCrO ₃ of perovskite oxides for solar hydrogen production	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 170007
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0028720	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sawaguri Hiroki, Gokon Nobuyuki, Ito Naoki, Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Cho Hyun-seok	4. 巻 2303
2. 論文標題 Thermochemical two-step CO ₂ splitting using La _{0.7} Sr _{0.3} Mn _{0.9} Cr _{0.1} O ₃ of perovskite oxide for solar fuel production	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 170013
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0028681	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gokon Nobuyuki, Jie Chew Shun, Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Hatamachi Tsuyoshi, Cho Hyunseok	4. 巻 2303
2. 論文標題 Chemical compatibility of Cu-Ge alloy with container materials for latent heat storage system	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 190014
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0028722	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gokon Nobuyuki, Kumaki Satoshi, Miyaguchi Yosuke, Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Cho Hyunseok	4. 巻 166
2. 論文標題 Development of a 5kWth internally circulating fluidized bed reactor containing quartz sand for continuously-fed coal-coke gasification and a beam-down solar concentrating system	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Energy	6. 最初と最後の頁 1~16
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.energy.2018.10.036	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Matsubara Koji, Gokon Nobuyuki, Cho Hyun Seok, Inoue Kousuke	4. 巻 203
2. 論文標題 Heat transfer and particulate flow analysis of a 30kW directly irradiated solar fluidized bed reactor for thermochemical cycling	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Engineering Science	6. 最初と最後の頁 511~525
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ces.2018.09.012	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gokon Nobuyuki, Yawata Takehiro, Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Cho Hyun-Seok	4. 巻 171
2. 論文標題 Thermochemical behavior of perovskite oxides based on $LaxSr1-x(Mn, Fe, Co)O3-yCoO3-$ redox system for thermochemical energy storage at high temperatures	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Energy	6. 最初と最後の頁 971~980
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.energy.2019.01.081	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Matsubara Koji, Gokon Nobuyuki, Cho Hyun Seok, Inoue Kousuke	4. 巻 360
2. 論文標題 Thermal performance of a 30kW fluidized bed reactor for solar gasification: A CFD-DEM study	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Engineering Journal	6. 最初と最後の頁 1287~1300
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cej.2018.10.111	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gokon Nobuyuki, Hara Kazuki, Sugiyama Yuta, Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Hyun-seok Cho	4. 巻 680
2. 論文標題 Thermochemical two-step water splitting cycle using perovskite oxides based on LaSrMnO3 redox system for solar H2 production	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Thermochimica Acta	6. 最初と最後の頁 178374 ~ 178374
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tca.2019.178374	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gokon Nobuyuki, Nishizawa Aoi, Yawata Takehiro, Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Cho Hyun-Seok	4. 巻 2126
2. 論文標題 Fe-doped manganese oxide redox material for thermochemical energy storage at high-temperatures	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 210003 ~ 210003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5117752	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Matsubara Koji, Gokon Nobuyuki, Cho Hyun Seok	4. 巻 2126
2. 論文標題 Heat transfer and fluid flow analysis of a fluidized bed reactor for beam-down optics	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 180004 ~ 180004
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5117684	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gokon Nobuyuki, Jie Chew Shun, Nakano Yuya, Okazaki Shogo, Kodama Tatsuya, Hatamachi Tsuyoshi, Bellan Selvan	4. 巻 9
2. 論文標題 Phase Change Material of Copper-Germanium Alloy as Solar Latent Heat Storage at High Temperatures	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Frontiers in Energy Research	6. 最初と最後の頁 696213
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 6件）

1. 発表者名 澤栗大樹、原和紀、伊藤直樹、児玉竜也、旗町剛、郷右近展之
2. 発表標題 LaSrCrMn系ペロブスカイト酸化物を用いた二段階熱化学サイクルによるH ₂ O/CO ₂ 分解
3. 学会等名 日本エネルギー学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Gokon Nobuyuki, Hara Kazuki, Ito Naoki, Sawaguri Hiroki, Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Cho Hyun Seok
2. 発表標題 Thermochemical H ₂ O Splitting Using LaSrMnCrO ₃ of Perovskite Oxides for Solar Hydrogen Production
3. 学会等名 25th SOLARPACES International Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Sawaguri Hiroki, Gokon Nobuyuki, Ito Naoki, Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Cho Hyun Seok
2. 発表標題 Thermochemical H ₂ O Splitting Using LaSrMnCrO ₃ of Perovskite Oxides for Solar Hydrogen Production
3. 学会等名 25th SOLARPACES International Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Gokon Nobuyuki, Chew Shun Jie, Bellan Selvan, Kodama Tatsuya, Hatamachi Tsuyoshi, Cho Hyun Seok
2. 発表標題 Chemical Compatibility of Cu-Ge alloy with Container Materials for Latent Heat Storage System
3. 学会等名 25th SOLARPACES International Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中野 裕也, 郷右近 展之, セルバン ベラン, 児玉 竜也, Cho Hyunseok
2. 発表標題 太陽熱発電における熱物性に基づくAl-Si合金潜熱蓄熱体の評価
3. 学会等名 日本太陽エネルギー学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡崎匠吾, 中野裕也, CHEW SHUN JIE, 郷右近展之, 旗町剛, 児玉竜也, Selvan Bellan
2. 発表標題 太陽熱発電の蓄熱システム高度化のための金属系潜熱蓄熱体に関する研究
3. 学会等名 日本エネルギー学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 林 広佑, 旗町 剛, Selvan Bellan, 郷右近 展之
2. 発表標題 次世代太陽熱発電のためのCaMnO3系ペロブスカイト酸化物による化学蓄熱に関する研究
3. 学会等名 日本太陽エネルギー学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yusuke Sasada, Nobuyuki Gokon, Hiroshi Seto, Tatsuya Kodama, Selvan Bellan
2. 発表標題 Effect of Heating Rate on Thermochemical Pyrolysis of Spent Coffee Ground in a Windowed Internally-Circulating Fluidized Bed Reactor
3. 学会等名 SolarPACES2021 International conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hiroki Sawaguri, Nobuyuki Gokon, Hyun-seok Cho, Tatsuya Kodama, Selvan Bellan
2. 発表標題 Temperature Impacts on Reactivity of La _{0.7} A _{0.3} Mn _{0.9} Cr _{0.1} O _{3-d} of Perovskite Oxides in a Thermochemical Two-step H ₂ O/CO ₂ Splitting
3. 学会等名 SolarPACES2021 International conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yoshikazu Iwamura, Nobuyuki Gokon, Hiroki Sawaguri, Hyun-seok Cho, Tatsuya Kodama, Selvan Bellan
2. 発表標題 La _{0.7} Sr _{0.3} XO _{3-d} of Perovskite Oxides for Solar Fuel Production
3. 学会等名 SolarPACES2021 International conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	清水 忠明 (Shimizu Tadaaki) (10211286)	新潟大学・自然科学系・教授 (13101)	
研究分担者	長瀬 慶紀 (Nagase Yoshinori) (90180489)	宮崎大学・工学部・教授 (17601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------