

令和 4 年 4 月 27 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04211

研究課題名（和文）産業廃棄物による高効率水素製造・発電のコプロダクションシステム

研究課題名（英文）Co-production system for electricity and hydrogen production from industrial wastes

研究代表者

アズィズ ムハンマッド (AZIZ, Muhammad)

東京大学・生産技術研究所・准教授

研究者番号：40611190

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、エクセルギー回収およびプロセス統合の二つの技術を同時に検討し、産業廃棄物バイオマスに特化した独創的なエネルギー変換システムを提案する。また、高効率なエネルギー変換を実現するために、三つの反応炉を持つケミカルルーピングを主な変換技術として導入する。全体のプロセスを構築し、関連する運転パラメーター等を明確にする。ケミカルルーピング反応のモデル化によって、還元・酸化反応メカニズムを明確になり、適切な運転条件が明らかになる。また、実験とモジュール化の結果を利用し、全体のプロセスを統合する。提案したシステムは約60%程度の高いエネルギー効率を実現でき、経済性の評価結果からも非常に有望である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、産業廃棄物系バイオマスのエネルギー生産とその高度利用が、経済性の観点から強く求められている。通常のバイオマスとは異なり、産業廃棄物系のバイオマスは大量かつ集約的に発生し、かつ安定供給が可能である。一方、現在のエネルギー生産プロセスはほとんどが従来型の熱回収技術によって設計されており、高効率なエネルギー変換プロセスがまだ存在しない。そのため、本研究では高効率な変換プロセスであるケミカルルーピング技術を試験および数値シミュレーションによって解析・評価し、ケミカルルーピングによるクリーンな水素製造システムを開発する。電力だけでなく、水素に変換することで、エネルギーの貯蔵・輸送が容易となる。

研究成果の概要（英文）：In this study, two technologies, exergy recovery and process integration, are considered simultaneously, and an original energy conversion system specialized for industrial waste biomass is proposed. In order to achieve highly efficient energy conversion, chemical looping with three reactors is introduced as the main conversion technology. The overall process is constructed and optimized, and relevant operating parameters are clarified. Modeling of the chemical looping reaction is conducted to clarify the reduction and oxidation reaction mechanisms and identify the appropriate operating conditions. In addition, the results of experiments and modularization are used as the main input data to integrate the entire process. The proposed system can achieve a high energy efficiency of about 60%, and from the results of the economic evaluation, the system is considered promising.

Translated with www.DeepL.com/Translator (free version)

研究分野：エネルギーシステム

キーワード：産業廃棄物系バイオマス エネルギー高効率化 エクセルギー回収 プロセス統合 プロセス設計 ケミカルルーピング

### 1. 研究開始当初の背景

産業廃棄物系バイオマスは含水率が高く熱回収が不十分になることから、これらを原料としたエネルギー生産ではエネルギー変換効率の低下・安定性の維持・保存の困難・輸送費の増大のためにプロセス全体のエネルギー収支比が小さくなり、生産コストが非常に高くなる。これらの課題を解決するには、それぞれの産業廃棄物からのエネルギー生産に特化した革新的なエネルギー変換技術によりエネルギー収支比を高めることが求められる。

通常のバイオマスとは異なり、産業廃棄物系のバイオマスは大量かつ集約的に発生し、かつ安定供給が可能である。特にポテンシャルの観点から、製紙工場で排出される亜硫酸パルプ廃液(黒液)と、パーム油製造工場で排出されるパーム椰子空果房( EFB )が原料として有望である。しかし、これら産業廃棄物系バイオマスを燃料としたエネルギー生産プロセスにおけるエネルギー変換過程には様々な課題があり、エネルギー生産の実現の見通しは立っていない。大きな課題の一つとして、上記のバイオマスは含水率の高いことが挙げられる。このため現状では、EFBの大部分が未利用のまま廃棄されており、エネルギーに変換するケースは依然として少ない。一方、黒液は既に発電の燃料として多く利用されているが、そのエネルギー効率には改善の余地がある。現在のエネルギー生産プロセスはほとんどが従来型の熱回収技術によって設計されており、高効率なエネルギー変換プロセスがいまだ存在しない。また、パーム油製造工場および製紙工場は山間地に建設される事も多く、電力系統が充分でない。そのため、電力だけでなく、水素に変換することで、エネルギーの貯蔵・輸送が容易となる。

### 2. 研究の目的

本研究では、エクセルギー回収技術およびプロセス統合技術を、製紙工場からの黒液およびパーム油製造工場からのパーム椰子空果房に適用し、独創的な水素製造・発電コプロダクションシステムを構築する。これにより全プロセスにおけるエネルギー損失を最小化し、産業廃棄物からの高効率なエネルギー生産を実現する。高効率なエネルギー変換を実現するために、ケミカルルーピングを主要な変換技術として導入し、最適な運転条件を実験によって明確にする。

### 3. 研究の方法

本研究では、エクセルギー回収およびプロセス統合の2つの技術を同時に検討し、産業廃棄物系バイオマス(黒液、EFB)に特化した独創的なエネルギー変換プロセスを提案するエクセルギー回収では、ある特定のプロセス内のエネルギーや熱を効率的に循環させ、エクセルギー損失を最小化する。本研究によるプロセスは、主に乾燥・ガス化・ケミカルルーピング・水素貯蔵・コンバインドサイクルで構成される。個別のプロセスですべての熱を完全に循環できないため、個別のプロセスで回収しきれない熱は他のプロセスに利用し、プロセス全体のエネルギー損失を最小化する(プロセス統合)。従来の熱回収技術では、熱交換には温度差が必要なため、主に顕熱のみが回収されており、潜熱等の回収・利用はほとんど行われていない。結果として、熱回収が十分とは言えず、エクセルギー回収およびプロセス統合により全体のエネルギー効率をさらに向上させる余地がある

研究は主に二つに区分され、システム全体のプロセス設計とガス化によって生成された合成ガスを利用するケミカルルーピングの実験である。前処理された産業廃棄物系バイオマスは、まず乾燥プロセスによってガス化に適した含水率まで低減させる。本乾燥プロセスでは、基本的にこれまで申請者の研究成果で構築した乾燥技術を適用する。ガス化には、超臨界水ガス化と熱化学的ガス化がある。本研究では、それらをプロセスシミュレーションによって比較する。熱化学的ガス化では乾燥プロセスが必須となるためエネルギー消費は増大するが、超臨界水ガス化ではこれを省略できる。一方、超臨界水ガス化では、試料および水を超臨界状態にするため圧縮と加熱が必要になるデメリットがあるため、エクセルギー回収により熱バランスを最適化するプロセス設計を行う。

ガス化によって生成された合成ガスがケミカルルーピングに入り、還元炉・酸化炉・燃焼炉の三つの反応器で、酸素キャリアと反応し、CO<sub>2</sub>・水素・熱が生成される。酸化炉から生成された

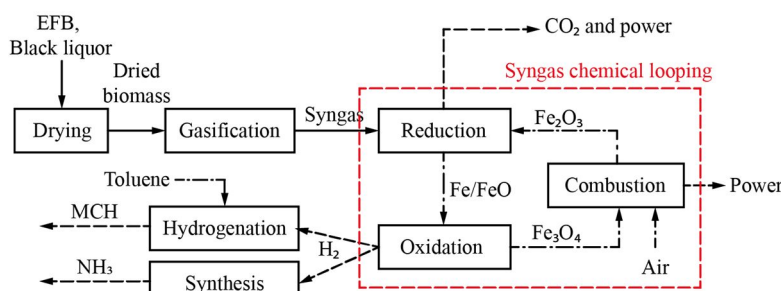


図1 産業廃棄物系バイオマスによる水素製造・発電コプロダクションシステム概念図

水素は水素貯蔵プロセスに入り、高密度の水素キャリア媒体に変換する。本研究では、二つの水素貯蔵プロセス（水素化とアンモニア合成）を検討し、全体のエネルギー効率への影響を図る。また、プロセス全体から得られた熱を用いてコンバインドサイクルで発電を行う。これらに関する総合的なプロセス設計を行い、全エネルギー効率を70%以上（水素製造および発電効率の合計、従来のシステムでは約40%）とすることを目標とする。

実験ではこれまでまだ実用化されていないケミカルルーピングに注目する。ケミカルルーピングの還元・酸化反応の基礎実験の概念図を図2に示す。還元反応試験では、黒液・EFBのガス化によって得られる合成ガスを模したガスを酸素キャリアと反応させ、還元された酸素キャリアと生成ガスを調べる。一方、酸化反応試験では、還元された酸素キャリアをスチームと反応させ、酸化された酸素キャリアと生成ガスを調べる。本実験では三種類の酸素キャリア（ $Fe_2O_3$ 、 $NiO$ 、 $CaSO_4$ ）および運転温度（700 ~ 各融点以下）・圧力（0.1~2 MPa）の影響を評価する。

#### 4. 研究成果

プロセス設計では廃棄物系バイオマス（EFB）によるアンモニア（水素貯蔵媒体）製造システムを設計し、最適化を行った。廃棄物系バイオマスを最終的に水素貯蔵性が優れたアンモニアに変換した。最適化を行うことで、約60%以上の全エネルギー効率を得られた。また、低品位燃料については、低品位炭を利用し、システムの開発を行った。システムは主に乾燥、個体ダイレクトケミカルルーピング、アンモニア合成、発電システムから構成されている。提案したシステムの最高理論効率が約58%であり、既存のシステムおよび先行研究と比べ、大変高い全エネルギー効率を実現できた。

ケミカルルーピング反応のモデル化については、還元・酸化反応炉に起きる反応メカニズムをモデルによって解析・明確にする。各反応炉における反応をモデル化することで、酸素キャリアと燃料（個体廃棄物またはガス化から製造した合成ガス）との反応メカニズムを明確にし、適切な運転条件に導くことができる。また、ガス化・ケミカルルーピングの基礎実験とプロセスモジュールの結果を利用して、全体のプロセスを統合する。いくつかのシナリオも検討し、それぞれ適切なシステムを構築し、エネルギーの評価を行う。本研究に提案したシステムは約60%程度全エネルギー効率を実現することができる。

また、エネルギー・エクセルギーによるシステム評価を行いながら、経済性の評価も実施する。エクセルギー解析からでは、個体燃料を利用したシステムを導入することで、全体のエクセルギー損失を抑えることができる（28%程度）。最後に、システムの経済性検討から、提案したシステム非常に有望であり、ダイナミックペイバック期間が約8年間である。

上記の研究から、3年間の研究期間（2019~2021年度）内に得られた研究成果としては、学術論文8件、解説論文3件、図書1件、国際学会7件、国内学会1件である。

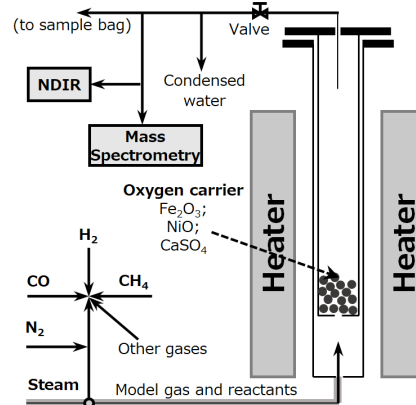


図2 ケミカルルーピングの還元・酸化の基礎実験の概念図

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Darmawan Arif、Lokahita Baskoro、Tokimatsu Koji、Aziz Muhammad	4. 巻 20
2. 論文標題 Direct ammonia production via a combination of carbonization and thermochemical cycle from empty fruit bunch	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Thermal Science and Engineering Progress	6. 最初と最後の頁 100673 ~ 100673
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.tsep.2020.100673	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 該当する
1. 著者名 Juangsa Firman Bagja、Darmanto Prihadi Setyo、Aziz Muhammad	4. 巻 19
2. 論文標題 CO2-free power generation employing integrated ammonia decomposition and hydrogen combustion-based combined cycle	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Thermal Science and Engineering Progress	6. 最初と最後の頁 100672 ~ 100672
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.tsep.2020.100672	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 該当する
1. 著者名 Hoque Md. Emdadul、Rashid Fazlur、Aziz Muhammad	4. 巻 13
2. 論文標題 Gasification and Power Generation Characteristics of Rice Husk, Sawdust, and Coconut Shell Using a Fixed-Bed Downdraft Gasifier	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Sustainability	6. 最初と最後の頁 2027 ~ 2027
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/su13042027	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 該当する
1. 著者名 Sun Zhuang、Wang Shukun、Aziz Muhammad	4. 巻 251
2. 論文標題 Highly integrated system for ammonia and electricity production from biomass employing direct chemical looping: Exergy and exergoeconomic analyses	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Energy Conversion and Management	6. 最初と最後の頁 115013 ~ 115013
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.enconman.2021.115013	査読の有無 無
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 Sun Zhuang, Aziz Muhammad	4. 巻 321
2. 論文標題 Comparative thermodynamic and techno-economic assessment of green methanol production from biomass through direct chemical looping processes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Cleaner Production	6. 最初と最後の頁 129023 ~ 129023
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jclepro.2021.129023	査読の有無 無
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 Sun Zhuang, Aziz Muhammad	4. 巻 244
2. 論文標題 Thermodynamic analysis of a tri-generation system driven by biomass direct chemical looping combustion process	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Energy Conversion and Management	6. 最初と最後の頁 114517 ~ 114517
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.enconman.2021.114517	査読の有無 無
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 Khasani, Prasadha Willie, Widyatama Arif, Aziz Muhammad	4. 巻 235
2. 論文標題 Energy-saving and environmentally-benign integrated ammonia production system	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Energy	6. 最初と最後の頁 121400 ~ 121400
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.energy.2021.121400	査読の有無 無
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 Hakandai Chanin, Sidik Pramono Hari, Aziz Muhammad	4. 巻 51
2. 論文標題 Conversion of municipal solid waste to hydrogen and its storage to methanol	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Sustainable Energy Technologies and Assessments	6. 最初と最後の頁 101968 ~ 101968
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.seta.2022.101968	査読の有無 無
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7件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 6件）

1. 発表者名 Muhammad Aziz
2. 発表標題 Advanced Developments in Hydrogen Storage and Utilization
3. 学会等名 11th International Conference on Thermofluids 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Muhammad Aziz
2. 発表標題 Adoption of Carbon-Free Energy Sources Toward Sustainable and Smart Energy System
3. 学会等名 4th International Conference on Artificial Intelligent in Renewable Energetic System (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Arif Darmawan, Muhammad W. Ajiwibowo, Koji Tokimatsu, Muhammad Aziz
2. 発表標題 Efficient ammonia production from empty fruit bunch via hydrothermal gasification, syngas chemical looping and NH3 synthesis
3. 学会等名 International Conference on Applied Energy (ICAE 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Muhammad Aziz
2. 発表標題 Advanced hydrogen production and storage: Feasible scenarios and efficient technologies
3. 学会等名 7th International Conference on Fuel Cell & Hydrogen Technology (ICFCHT 2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kyohsuke Miyahira, Muhammad Aziz
2. 発表標題 Hydrogen Production from Low-Grade Agricultural Waste: Integrated Drying, Gasification, and Chemical Looping
3. 学会等名 24th Conference on Process Integration for Energy Saving and Pollution Reduction (PRES'21 (国際学会))
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Muhammad Aziz
2. 発表標題 Empowering biomass utilization and integration in future energy system
3. 学会等名 13th International Conference on Applied Energy (ICAE 2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Muhammad Aziz
2. 発表標題 Biomass as Essential Player in Future Green and Sustainable Energy Systems
3. 学会等名 The 4th International Conference on Agricultural Engineering for Sustainable Agriculture Production (AESAP 2021) (招待講演)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Muhammad Aziz, Arif Darmawan, Muhammad W. Ajiwibowo	4. 発行年 2020年
2. 出版社 Elsevier	5. 総ページ数 32
3. 書名 Towards Sustainable Chemical Processes: Applications of Sustainability Assessment and Analysis, Design and Optimization, and Hybridization and Modularization	

〔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
--	---------------------------	-----------------------	----

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			
インドネシア	ガジヤマダ大学	バンドン工科大学	インドネシア技術評価応用庁	