

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 4月 1日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2012

課題番号：22560836

研究課題名(和文) 炭素資源の直接照射式ソーラーガス化反応器の開発

研究課題名(英文)

Development of a solar gasification reactor of carbon resources by direct irradiation

研究代表者

籾町 剛 (Hatamachi Tsuyoshi)

新潟大学・工学部・技術専門職員

研究者番号：40456356

研究成果の概要(和文)：サンベルトでのビームダウン太陽集光システムでの利用を想定した石炭やバイオマスなどを原料とするソーラーガス化反応システムの構築を目的として、ラボスケールの直接採光式の流動層反応器をステンレスで作製し、石炭コークスおよび褐炭を用いてその有用性を検討した。ガス化反応試験はキセノンアーク灯(放射束3キロワット)によるサンシミュレータにより上部より照射しながらバッチ式で行った。実験の結果、反応器の採光口以外の断熱、水蒸気改質の場合は反応器内へ導入する水蒸気濃度を高くすることが反応速度を向上させるのに効果的であることがわかった。また、流動コークスが反応器内を循環しやすいよう、ドラフト管を取り付けてその内外でガスの線流速を変えることで、コークス温度が均一になり反応域が広がり反応速度が増した。それに併せて、コークスの流動性を上げるための工夫を凝らしたところ、さらに反応性が向上し、光/化学エネルギー転換効率は最大13パーセントときわめて高い値を記録した。

研究成果の概要(英文)：We aimed to validate the usefulness of solar gasification by beam-down solar concentrating system at Sun-belt using coal, biomass and so on. Stainless steel fluidized bed gasification reactors were made for direct lighting to reactant in lab scale. Coal coke and brown coal were tested as reactants by batch method using xenon arc lamp (radiant flux 3kW). As results, its were effective to increase reaction rate to reinforce insulation of reactor and to argument steam concentration in the case of steam gasification. It was effective to install a draft tube for the purpose of circulating reactant, too. Because it occurs to spread reaction zone. Besides, contrivance to increase fluidity of coke reflected that the light-to fuel energy conversion efficiency recorded up to 13%.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成22年度	1,800,000	540,000	2,340,000
平成23年度	600,000	180,000	780,000
平成24年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

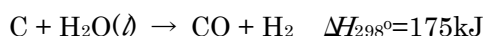
研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・エネルギー学

キーワード：エネルギー生成・変換

## 1. 研究開始当初の背景

近年、集光度 1,000 倍を超える太陽集光システムで大型のものが欧米諸国を中心に開発されており、光レシーバを高所でなく地上に設置できるビームダウン型でも数 100 キロワット出力が達成されている。これにより、サンベルト(あるいはソーラーベルト)と呼ばれる日射の豊富な地域では 1,000°C を超える高温の太陽エネルギーが得られるようになった。この熱を高温化学反応のプロセスヒートに用いる新しいタイプの太陽エネルギー利用法が検討されるようになっており、たとえばスペインやスイスの研究グループにより 500 キロワット規模タワー太陽集光施設等でペットコークス(重油由来グラファイト)の水蒸気ガス化反応の予備試験が行われてきた(SYNPET プロジェクト, 2002~2010, <http://www.psa.es/webeng/areas/ussc/synpet.php>)。



これは固体燃料から、運送、貯蔵、使用に有利な気体燃料に変換する反応であり、従来は原料の一部を燃焼させることでこの熱をまかなってきたが、この反応では太陽熱により増熱されるので、原料コークスよりも 45 パーセント増熱された合成ガスが得られる。

実際には、このガス化燃料用の炭素資源としてはペットコークスでなく豊富に存在する低質の石炭やバイオマスを用いるシステムの構築が望ましいが、これら揮発分や灰分の多い炭素資源についてのソーラーガス化反応については報告が少なく、ことに太陽エネルギーを効果的に供給可能な直接光照射タイプでの反応についてはほとんど報告が無い。

## 2. 研究の目的

石炭やバイオマスなど地域ごと性質が異なるが世界じゅうでひろく得られる炭素資源がガス化反応原料に用いられるようになれば、サンベルトの多くの地域でソーラーガス化プラント設立が適う。こうして得られた合成ガスあるいはそれを原料とした燃料をエネルギー消費地へ運送することによって、

日本のようにサンベルトから離れた地域でも太陽エネルギーが利用できる利点がある。

しかし石炭等の炭素資源はガス化反応を起こす固定炭素だけから成るわけではなく、灰分やタールなど揮発成分が混在したものである。灰分は反応に直接関与せず残留するので、迅速な反応進行のためには逐次除去を要する。またタールは、反応のため加熱することで留出して、石炭等の流動を阻害するので流動層反応システムの利用に難がある。加えてタールは有色で採光窓を汚すので SYNPET プロジェクトで採用したような直接光照射反応システムの利用にそれぞれ難がある。

本研究は、こういった欠点をもつ石炭・バイオマス流動層ソーラーガス化反応器の構築を目的とするもので、とりわけ本報告書では、試作した直接光照射型流動層で反応に適したシステムを模索し、その反応器について、主として乾留処理済みの石炭コークスを反応物に用いた場合の評価を試みた。

## 3. 研究の方法

石炭コークスは新日本製鐵(株)より提供されたもので、その組成は下表に示される(JIS 8812, 8813)。その嵩密度は 1.76 gcm<sup>-3</sup> で、燃焼時発熱量は 28.6 MJkg<sup>-1</sup> で粒径は 500~710 μm とした。

ソーラーガス化反応器は、これまでにわれわれが開発してきたものを改良して(Kodama et al., *ASME Journal of Solar Energy Engineering*, **130**, 014504, 2008)設計・作製した(図 1)。このラボスケール実験系は、φ 264mm の採光窓よりビームダウン型集光システムで約 3kW 出力の光を受けることを想定したもので、透明石英窓を通して反応器内のコークス流動層に直接高エネルギー密度の集光を照射する。反応器は、SUS310S 製で内径 62.3mm, 肉厚 7.0mm の円管の内部にガス採り入れ用の分散板を備えたものであり、熱電対差込用の穴があいている。さらにその管上部に透明石英窓とガス排出口の付いた円錐形の採光部(肉厚約 4mm)を接合した。なお反応器は内循環式流動層反応器と単純流動層反応器の 2 種類を用意し、前者は内部でコークスがよく混ざり合うように、ガス分散板はそ

表 石炭コークスの工業分析および元素分析の結果

	工業分析値 / wt%				元素分析値* / wt%				
	水分	揮発分	固定炭素	灰分	C	H	O	N	S
石炭コークス	1.4	0.9	85.4	12.3	83.38	0.13	2.36	1.17	0.66

\* Dry base, ash free

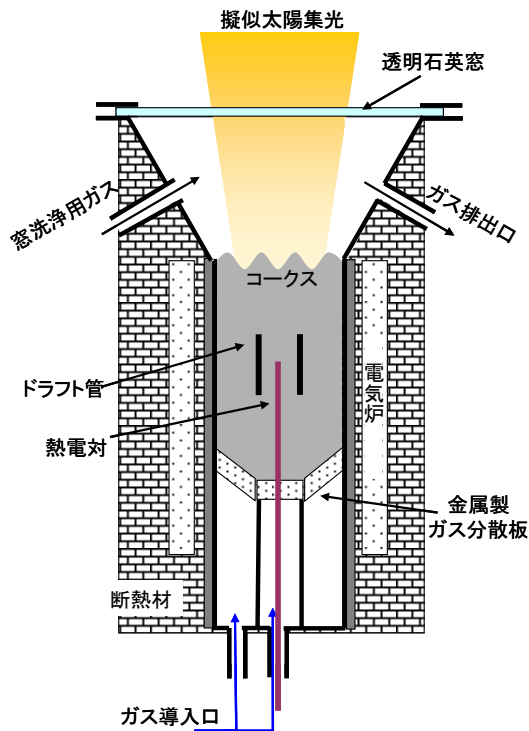


図1 ソーラーガス化反応器による反応の概要  
 (上図は内循環式流動層反応器で強化断熱材を使用  
 この例では熱電対による测温域はベッド中間部)

の外縁部を壁ぎわに 60° 傾斜させるとともに管内の分散板上方 28mm 位置に小さなドラフト管(インコネル 600 製, 内径 20mm, 肉厚 3mm, 長さ 44mm)を据えたものである。また、この反応器のガス分散板は中心部と外縁部を区切ることで、内外のガス導入速度を独立に変えられるようにしてある。このようなデザインを採用したのは、ガス分散板の傾斜は流動ガスを横からあてることで粒子を崩れやすくすることを、ドラフト管の取り付けはその内外でガス流速を変えることにより粒子が循環する流れを作ることを、それぞれ狙ったためである。いっぽう、単純流動層反応器はコークス循環を目ざさず、ガス分散板が水平で、ドラフト管も無く、流動ガスの線流束はどの箇所でも同じとなるようにしたものである。

次に、ガス化反応試験の手順を述べる。反応に用いた光はキセノンアーク灯(日本光機製 UXL-6000H, 6kW/灯×3 灯)で構成される太陽光シミュレータを用い、その光の放射束はガードゥン型放射計(メドサム社製 64-1000-20/SW-1C-150)を用いて測定したところ、ランプの使用に伴いわずかず変動し、3.17~3.30kW で、平均密度は 1.12~1.17MW m<sup>2</sup>, 最大位置で 2.09~2.45MW m<sup>2</sup> が得られた。

なお、ガス化ガスは工業的にコスト安の水蒸気を想定したが、研究当初は水蒸気ジェネレータの準備が整っていなかったため、CO<sub>2</sub> による反応を行った。



その後、ジェネレータが整ってからは予定どおり水蒸気を用いた。

ガス化反応試験は、製作した反応器にコークスをオールバッチ式であらかじめガス化反応器に充填し、反応器底部より CO<sub>2</sub> あるいは Ar を導入しながら反応器を電気炉で加熱し、反応器外壁が所定の温度に達したら電気炉加熱を停止し、反応ガスを導入しながら石炭流動層上部に太陽集光シミュレータによりキセノンアーク灯を照射することで行った。この際、コークス由来のフライアッシュが採光窓に付着することによる光量低下を防ぐべく、窓洗浄用吹き付けガスに CO<sub>2</sub> あるいは Ar を流した(通常条件 0.2dm<sup>3</sup>min<sup>-1</sup>)。また、排出ガス組成は TCD 付きガスクロマトグラフで CO<sub>2</sub> や H<sub>2</sub>, CO 等生成ガス濃度を定量し、CO<sub>2</sub> ガス化の場合は 0 収支を、水蒸気ガス化の場合は窓洗浄用の不活性な Ar 収支をもとに H<sub>2</sub>, CO 等の生成速度を定量した。なお、コークス転換率  $X$ , 照射光/化学エネルギー転換効率  $\eta$  各々の値は、以下の関係より算出した。

CO<sub>2</sub> 改質の場合で

$$X = \frac{\frac{1}{2} \int_0^t R_{CO} dt}{W_0}$$

$$\eta = \frac{R_{CO} \Delta H_{CO}}{Q_{lamp}}$$

水蒸気改質の場合で

$$X = \frac{\int_0^t (R_{CO} + R_{CO_2}) dt}{W_0}$$

$$\eta = \frac{R_{CO} \Delta H_{CO} + R_{CO_2} \Delta H_{CO_2} - R_{H_2} \Delta H_{H_2O}}{Q_{lamp}}$$

さらに、反応器内部のコークス充填時の表面から底部までを等分し上層, 中間, 底のそれぞれの中央部 3 点に R あるいは K 熱電対を取りつけ、反応時の温度変化を測定した。

#### 4. 研究成果

##### 4-1 反応器断熱材の影響

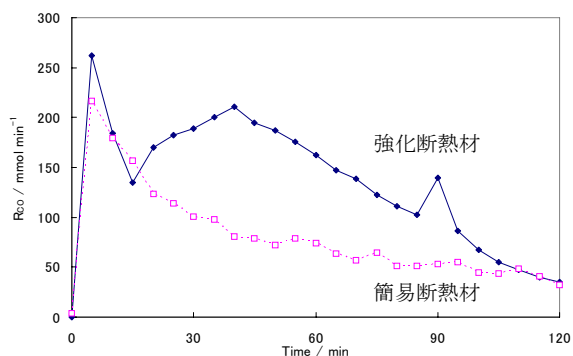


図2 反応器断熱材の違いによるガス化速度の影響

内循環式流動層反応器, キャリアレス式水蒸気発生器使用

石炭コークス投入量: 159g, 予備加熱: 500°C

窓吹き付けガス: 0.2dm<sup>3</sup>min<sup>-1</sup>(CO<sub>2</sub>)

ガス化ガス: CO<sub>2</sub>, 8.0dm<sup>3</sup>min<sup>-1</sup>

(ドラフト内部 5.1m min<sup>-1</sup>, 外部 0.16m min<sup>-1</sup>)

ステンレス製のガス化反応器は剥き出しのまま用いると外壁より放熱するので、断熱材で被覆して用いたが、まずは用いた断熱材による影響を示す。ガス化反応器用の断熱材は2種類用意し、それぞれを便宜じょう簡易断熱材、強化断熱材と呼称する。前者は、市販の多孔性の耐火断熱煉瓦(イソライト工業株製 B5, 230mm×114mm×65mm)を一部削って組み合わせたもので、隙間は不燃綿で塞いだ。これは組みやすく製作コストがきわめて低い。いっぽう後者は、反応器の形状に合わせ断熱素材(T/#5462-16MD, アルミナ-シリカ系)を型どりして作ったもので、パーツ数が少なく隙間がほとんど無い。断熱材の厚みも前者の約5センチから約20センチに増している。加えて、簡易断熱材では裸であった上方の採光部も集光面を除き覆っている点で大きく異なる。これら断熱材の違いによるガス化反応速度の違いを図2に示す。断熱性の向上により、CO生成速度が長時間高いレベルを維持するようになった。これは、反応器内の温度上昇によりガス化反応速度が増したためと考えられるが、粒子流動性が上昇して原料コークスがよく攪拌されたことも一因であろう。この2時間の反応の結果、ほぼ同じ投入エネルギー量で炭素転換率は45%→73%と大幅アップした。

#### 4-2 水蒸気発生器種類の影響

水蒸気発生器の違いによるガス化反応速度の差異を調べた。水蒸気の導入法としては、以下に詳細を述べる2つ方式を採用し、それぞれを便宜じょうバブリング式、キャリアレス式と呼称する。バブリング式は、水の入った容器を加熱し、そこへアルゴン等の不活性ガスを流すことで最大で飽和蒸気圧の水

蒸気を押し出すもので、水蒸気導入速度は、バブリング温度における飽和水蒸気圧とフローメータが示すキャリアガス導入速度をもとに算出できる。この方式は、加熱温度が水の沸点に近くなればほぼ全量が水蒸気になるものの、キャリアガスで押し流すため水蒸気濃度を上げにくい欠点がある。もう一方のキャリアレス式は、キャリアガスを用いずにマイクロフィーダで押し出した水を螺旋

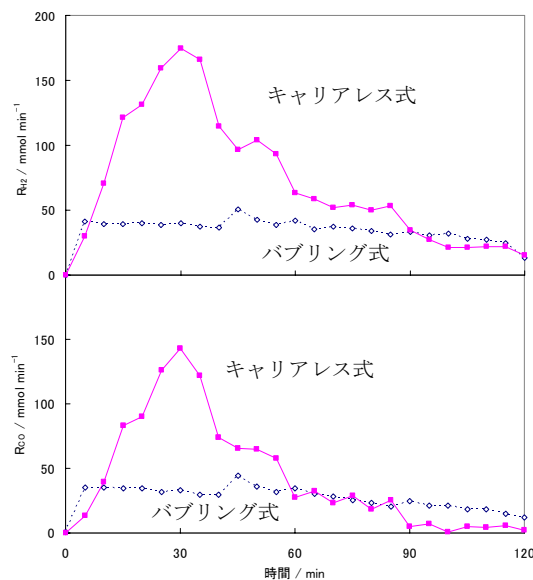


図3 水蒸気発生器の種類によるガス化速度の違い

内循環式流動層反応器, 強化断熱材使用

石炭コークス投入量: 159g, 予備加熱: 500°C

窓吹き付けガス: 0.2dm<sup>3</sup>min<sup>-1</sup>(Ar)

ガス化ガス: H<sub>2</sub>O, 8.0dm<sup>3</sup>min<sup>-1</sup>

(ドラフト内部 5.1m min<sup>-1</sup>, 外部 0.16m min<sup>-1</sup>)

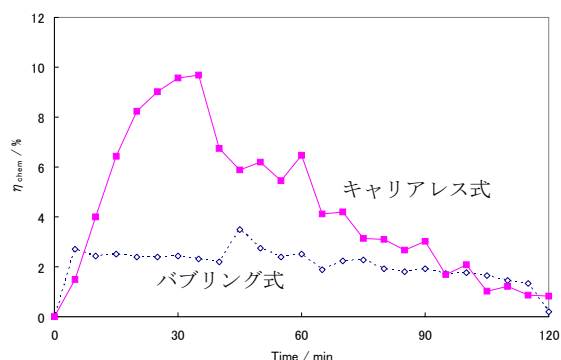


図4 水蒸気発生器の種類による光/化学エネルギー転換率の違い

内循環式流動層反応器, 強化断熱材使用

石炭コークス投入量: 159g, 予備加熱: 500°C

窓吹き付けガス: 0.2dm<sup>3</sup>min<sup>-1</sup>(Ar)

ガス化ガス: H<sub>2</sub>O, 8.0dm<sup>3</sup>min<sup>-1</sup>

(ドラフト内部 5.1m min<sup>-1</sup>, 外部 0.16m min<sup>-1</sup>)

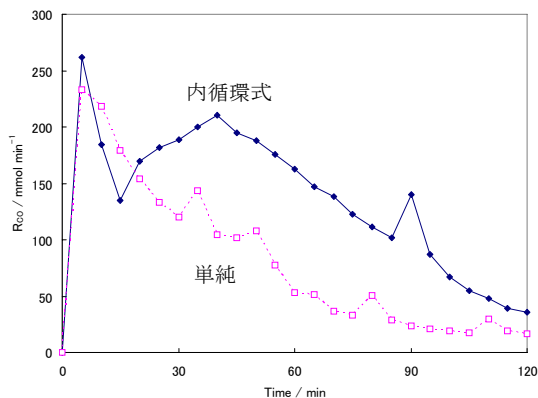


図5 流動方式の違いによる  
ガス生成速度の影響

内循環式流動層反応器，強化断熱材使用  
石炭コークス投入量：159g，予備加熱：500℃  
窓吹き付けガス：0.2dm³min⁻¹(CO₂)  
ガス化ガス：CO₂，8.0dm³min⁻¹  
(ドラフト内部 5.1m min⁻¹，外部 0.16m min⁻¹)

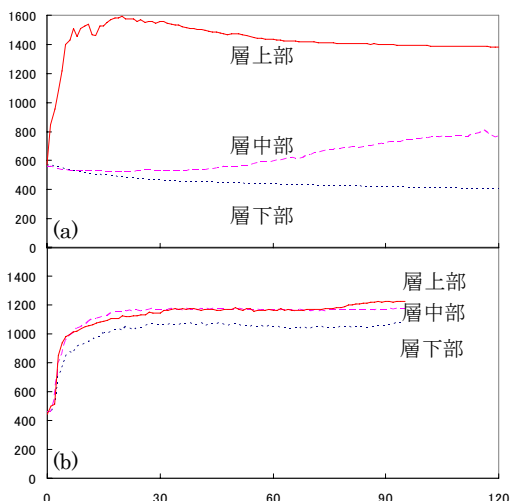


図6 流動方式の違いによる温度変化

(a) 内循環式流動層反応器

(b) 強化断熱材使用

石炭コークス投入量：159g，予備加熱：500℃  
窓吹き付けガス：0.2dm³min⁻¹(CO₂)  
ガス化ガス：CO₂，8.0dm³min⁻¹  
(ドラフト内部 5.1m min⁻¹，外部 0.16m min⁻¹)

形に巻いたステンレス管内で加熱して気化した後に導入するものである。

これら水蒸気導入法の違いによる生成ガス速度への影響を示したものが図3である。CO、H₂の生成速度はキャリアレス式のほうが高い。これは反応器内の水蒸気濃度の違いに

よる影響と説明できる。反応時間2時間での炭素転換率は、バブリング式で33%，キャリアレス式で58%を示し、光/化学エネルギー転換率はキャリアレス式で最大2.8倍になった(図4)。

#### 4-3 流動方式の影響

単純流動層反応器とドラフト管の付いた内循環式流動層反応器の性能比較を行ったところ、後者のほうが長時間高い反応性を示した(図5)。炭素転換率は初め20分間はほぼ等しいが、反応2時間でそれぞれ40%，73%と大きく差がついた。また、同条件で温度測定を行った結果を図6に示す。単純流動層反応器では、表面付近で最高1,600℃近い温度になるいっぽうで、その下方では700～1,000℃低い。CO₂のガス化反応は、熱重量分析によると900℃程度から起こり始めるので、この条件では光が照射される表面付近でしか反応が起こらない。そのいっぽうで、内循環式流動層反応器では表面付近の温度が1,200℃程度とやや低いかわりに、中間部や底部でも概ね1,000℃以上を示している。単純流動層反応器と比べて内循環式流動層反応器では、粒子がよく循環するために光が照射される層上部の熱が下部によく伝わり、反応域が広いことが理由であろう。

くわえて、詳細はここに記載しないが、そのほかにコークス流動性の向上や熱伝達を良好に行うための工夫を採り入れたところ、その結果コークス転換率58%→88%(2時間)、光/化学エネルギー転換率9.7%→12.6%(最大値)と大幅な増加がみられた点もここに言及する。われわれは褐炭についてもこの方法を試み、ガス化反応が進行していることを確認しており、その内容については現在特許出願準備中である。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計12件、査読あり)

- ① Nobuyuki Gokon, Ryuta Ono, Tsuyoshi Hatamachi, Li Liyun, Hee-Joon Kim, Tatsuya Kodama "CO₂ gasification of coal cokes using internally circulating fluidized bed reactor by concentrated Xe-light irradiation for solar gasification", *International Journal of Hydrogen Energy*, **37**[17] (2012) 12128- 12137.
- ② Tatsuya Kodama, Nobuyuki Gokon, Shu-ich Enomoto, Shouta Itoh, Tsuyoshi Hatamachi, "Coal Coke gasification in a windowed solar chemical reactor for

beam-down optics”, *ASME Journal of Solar Energy Engineering*, **132**[4], (2010) 041004-1-6.

ほか 10 件

[学会発表] (計 45 件)

- ① Liuyun Li, Nobuyuki Gokon, Tatsuya Kodama, Tadaaki Shimizu and Hee Joon Kim, “The basic study about reforming biomass-tar using catalysts for solar energy biomass gasfication”, *SolarPACES 2012, Marrakech, Morocco*, September 11-14, 2012.
- ② Nobuyuki Gokon, Ryuta Ono, Kei Omori, Tsuyoshi Hatamachi, Li Liuyun, Hee Joon Kim, Tatsuya Kodama, “Steam gasification of coal cokes using fluidized bed reactor for solar thermochemical conversion”, *SolarPACES 2012, Marrakech, Morocco*, September 11-14, 2012.
- ③ Nobuyuki Gokon, Ryuta Ono, Tsuyoshi Hatamachi, Li Liuyun, Hee Joon Kim, Atsushi Sakurai, Koji Matsubara, Tatsuya Kodama, “3kW<sub>th</sub> Internally circulating fluidized bed reactor for solar gasification of coal cokes”, *SolarPACES 2011, Granada, Spain*, 20-23 September, 2011.

ほか 42 件

[図書] (計 1 件)

- ① 吉田 一雄, 郷右近 展之, 児玉 竜也 (著), 日本エネルギー学会(編), 太陽熱発電・燃料化技術—太陽熱から電力・燃料をつくる(2012年, 174ページ)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

籾町 剛 ( Hatamachi Tsuyoshi )  
新潟大学・工学部・技術専門職員  
研究者番号：4 0 4 5 6 3 5 6

### (2) 研究分担者 (2010 年度のみ)

児玉 竜也 ( Kodama Tatsuya )  
新潟大学・自然科学系・教授  
研究者番号：6 0 2 7 2 8 1 1

### (3) 連携研究者 (2011, 2012 年度のみ)

児玉 竜也 ( Kodama Tatsuya )  
新潟大学・自然科学系・教授  
研究者番号：6 0 2 7 2 8 1 1