

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 11 日現在

機関番号：56401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560248

研究課題名(和文)木質バイオマス材の新規燃料化に関する研究(スラリー状木質油の製造)

研究課題名(英文)Study on Novel Fuel Production from Wood Biomass (Production of Bio Oil/Char-Slurry)

研究代表者

永橋 優純(Nagahashi, Yusumi)

高知工業高等専門学校・機械工学科・教授

研究者番号：80208040

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：木質材から効率的にスラリー状木質油を製造できる装置に関する研究を行った。ヒノキやスギなどの木質材を特定の条件で熱分解し得られる木質油(バイオオイル)と同時に生成する炭(チャー)を摺りつぶし混合したスラリー状燃料がバイオオイル/チャー・スラリーである。本研究では、この主体となるバイオオイルの効率的製造方法に関して検討した。その製造装置である高速熱分解炉に流動層を適用し開発した。反応時間がオイル収率や燃料特性に影響するが、それに係わる運転条件や装置構造の最適条件を明らかにした。また、収量や燃料特性の改善に効果的なチャーの連続的な分離・排出方法も検討し、実用化の可能性の高い方法を提案した。

研究成果の概要(英文)：Bio-oil/char slurry is combined fuel of the bio-oil and the char. It is an attractive and novel fuel from wood biomass. Fluidized bed reactor for fast pyrolysis was developed to produce the bio-oil and char. The residence time is key factors for quality and quantity of yields (bio-oil). This system shows good performance for short residence time close to a few seconds. The optimum configuration of facility and operation conditions were clarified. Moreover, the methods of char separation and removal from bed of binary solids mixture (mixture of silica sand as bed material and char particle) was discussed. It is necessary to obtain both good yields and continuous operation. An effective system of a novel fluidized bed, constructed with two sections connected through a slit bottom of the bed was invented. This system shows good performance of char-particle separation and therefore enables the continuous operation.

研究分野：熱工学，流動層

キーワード：バイオオイル 高速熱分解炉 流動層 滞留時間 流動層熱分解 2成分系流動層 粒子分離 傾斜分散板流動層

1. 研究開始当初の背景

バイオオイルに関する研究は、1980年代初頭のカナダ東部地区大学の研究グループによる活動(D. S. Scott et al., 1982)を発端として現在に至っている。このバイオオイル(またはBTL: Bio-oil To Liquids)に関する研究は、その基本特性や製造原理に関わる報文は国内外で散見されるが、個々のテーマごとの断片的なものであり、具体的な設計資料とし整備されたものは見当たらず、開発は困難な現状にある。インターネット情報として、一部 商用設備の稼働の報告(Dynamotive Energy Systems Corporation, 2011)も見られるが、具体的な技術資料は未公開のままである。

一方、最近注目されている、熱分解時の可燃生成物のすべてを利用しようとするバイオオイル/チャー・スラリー(流動性を有するスラリー状木質重質油:これ以降、スラリー状木質油と称す)に関しても多くの基本的研究が報告されており、Bridgwater(A. V. Bridgwater, 2003)がそれらをまとめているが、設計資料として利用可能な体系化されたものは国内外ともに見当たらない。特に日本国内ではこの研究は緒に着いたばかりである。

バイオオイルにしるスラリー状木質油にしる、基本となる操作は「500℃無酸素下での2sec以内の極短時間熱分解」であり、それを実現するための製造原理が各種考案されているが、その厳しい熱分解条件の故に連続処理や量的な処理に課題を残している。

それらの中でも、流動層熱分解方式は熱分解時間の短縮化やバイオマス材の大量連続処理に大きなメリットがある。一方、この方式では、加熱媒体となるけい砂などが同じ粒状体であるチャーと混合するため分離が難しく、連続運転やオイル品質向上への阻害要因となっている。炉内に残存するチャー粒子がオイル収率やオイル品質への負の触媒的な働きをするためである。チャー粒子は速やかに混合粒子層から分離し炉外へ排出する必要がある。

この流動層方式熱分解炉の実質的な製造装置としての基本情報や設計資料、また、困難が予想されるチャー粒子の層材料粒子からの分離に関する知見はほとんど見られないのが研究開始当初の状況であった。

2. 研究の目的

以上の背景の下に、本研究では次の2点に検討対象を絞り、実験的に研究を進めていく。(1) 先ず、流動層型熱分解炉による熱分解実験で、流動層方式特有の技術的課題、すなわち、運転条件(温度や流動化状態)やバイオマス材の供給方法(流動加速度に直接的に影響される)がオイル収率やオイルの燃料特性にどのように影響を及ぼすかを見きわめ、最適な設計条件を提示することを第一の目的とする。

(2) オイル収率やオイル品質に直接関わるチャー粒子の流動層本体粒子からの分離排出のメカニズムを明らかにし、連続運転(チャーの連続的排出とバイオマス材の連続供給)可能な装置構造を加熱を伴わないコールドモデルによる実験で考案、構築することを第二の実験目的とする。

これ以降では上記2項目、すなわち、熱分解実験によるオイル製造実験とコールドモデルによる粒子分離実験の二つを、その順に結果を示していく。

3. 研究の方法

(1) 熱分解実験

図1に実験装置の概要を示した。装置の全体構成は、電気炉内に収められた熱分解炉(内部寸法: $\phi 80 \times 375$ mm)とガス加熱器、フリーボード、バイオマス材供給タンク、集塵サイクロン、ガス凝縮器などから成る。流動層部分は、分散板として開口比2.4%の多孔オリフィス板に#400のステンレスメッシュを貼り付けたものを用い、加熱媒体粒子には平均粒径 $d_p = 0.11$ mmの珪砂を使用した。

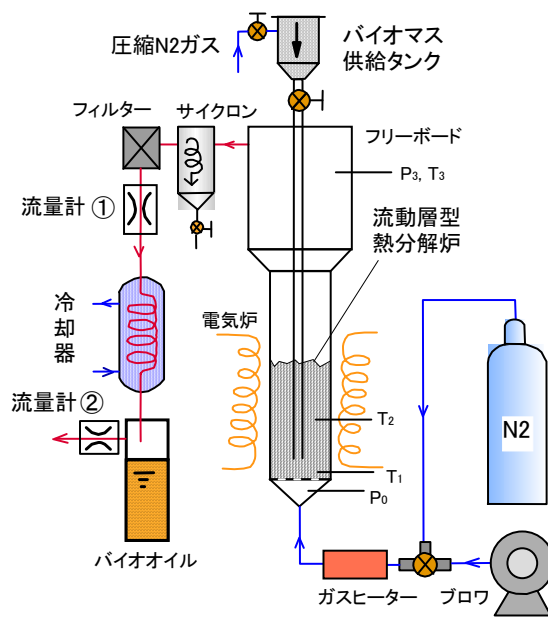


図1 実験装置

実験方法としては、N₂ガスで流動化した500℃一定の珪砂流動層内へ絶乾状態のヒノキ粉末(0.12-0.43 mm)を瞬間的に圧入し熱分解させ、生成ガスを凝縮器で液化しバイオオイルを得る。得られたバイオオイルは燃研式断熱熱量計1013-B型((株)吉田製作所)によりその発熱量を測定し品質を確認した。

(2) 粒子分離実験

図2には粒子分離実験に用いた傾斜分散板を有する2室連結流動層装置を示した。これにより粒子循環制御と粒子分離を実現した。U/U_{mf} = 2~5までの激しい流動化の熱分解・混合セクションと1.5~2U_{mf}までの穏や

かな流動のチャーの分離・排出セクションを層底部のスリット部で連結した構造としている。

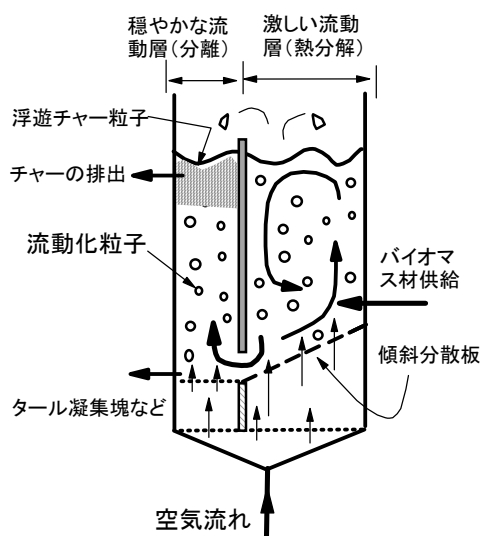


図2 二室連結流動層

基本的な寸法としては、内部寸法で22×160×270（この内、分離・排出セクションは56mm幅）の亚克力製2次元流動層である。この実験では流動化粒子は0.11mmの珪砂1種類で、チャーを想定した粒子は粒径の異なるポリスチレン粒子(PSTL)や活性炭(ActC.)ガラスビーズなど3種類の粒子である。実験方法としては、先ず混合・熱分解室において傾斜分散板により循環を実現させ、その後、分離・排出セクションでの分離の条件を、粒子特性や分離室流動化速度などをパラメータとして最適条件を探る方法を採用した。

4. 研究成果

(1) 熱分解実験におけるバイオガス発生状況：図3に発生したバイオガスの流量の凝縮器前後での変化を示した。図中の①でバイオガスが発生し②で冷却・凝縮が始まり③で凝縮が完了しバイオオイルが生成している状況と推定される。

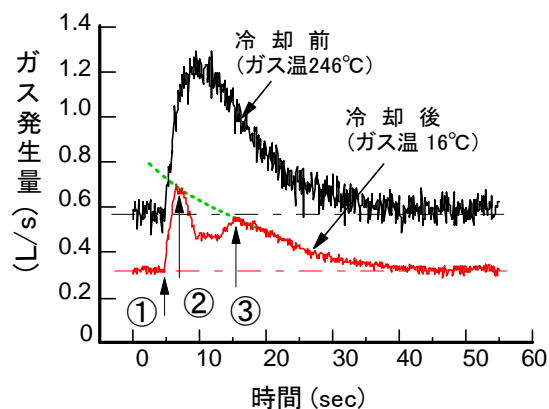


図3 バイオガスの発生状況

全期間を通じてのオイル発生量は凝縮器前後のガス流量の差分の累積として求められ、これと実際得られたオイルとの突き合わせを行いガス発生量とオイル生成量との関連を検討した。

(2) 熱分解実験におけるバイオマス材供給方法や運転条件の影響：本システムは流動層を利用しているため特有の現象が起こる。流動化が不十分な場合には材料供給や熱分解性能に影響を及ぼす。図4にその一例を示す。バイオマス材である粉末のヒノキ材を流動層の炉内に圧入するため、層の流動化状態を決定付ける加熱媒体ガス(N₂ガス)の流量(流速)と投入場所・深さがオイル収量に影響を及ぼす。層の深い場所に供給すると熱分解のガス量は増え、浅い場所に投入すると飛散性の乾燥粉末は短時間で層外へ飛び出て十分な熱分解がなされず、ガス発生量も減少する。一方、深くならずとも供給ノズルと層底部のスペースが狭くバイオマス材の拡散に時間がかり(Z=20mmの場合)不良となる。N₂ガス流量も流動化状態に直結するためバイオガス発生状況に影響する。5L/min辺りが流動化限界となっている。

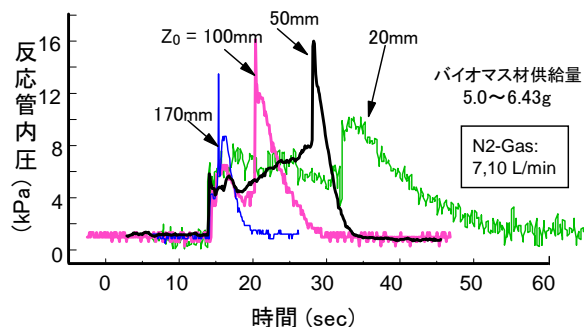


図4 バイオマス材投入場所によるガス発生の違い(温度・N₂ガス流量が一定であるため、管内圧がガス発生量となる)

(3) 熱分解実験における反応温度の影響：基本的には500°C近辺、500 (+/-) 50°C 辺りであればほぼ同様な燃料特性(発熱量)を示すが、それ以外の領域では発熱量は低くなる(450°C以下)か、オイル収量が少なくなる(550°C以上)などの結果となった。このことから、最適温度範囲として450~550°Cが確認できた。

(4) 熱分解実験における運転条件とオイル性状や収量の関係：図5に運転条件(流速=滞留時間)ごとに得られたバイオオイルの外観(色と収量)を示し、表1には図に対応したオイルの燃料特性(発熱量)を示した。装置サイズの大、小2種類の結果だが基本的には滞留時間のみの影響が表れている。滞留時間が短くなるに連れ、水分主体の木酢液状のオイルから濃い黒色のタール状の重質油に変化している。燃料特性(低発熱量LHV)でみると、色の変化がLHVにも直接反映してお

り、数値的には 7.1MJ/kg から 14.1MJ/kg にまで増大している。この値は、軽油のほぼ 1/3 に相当し、乾燥木材と同等かそれ以上の値を示しており十分工業用（低質）燃料として利用可能となっている。

オイル収量の傾向としては、加熱ガス量の増加につれ収量は減りバイオガス発生量とは傾向が異なっている。今回の実験でオイル収率最大が 30%であり、目標の 50%には達していない。

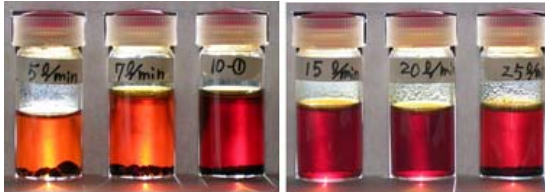


図 5 滞留時間とオイル性状の関係：

上段：大型炉での製造オイル
下段：小型炉での製造オイル
*) 滞留時間が約倍違う

表 1 滞留時間と発熱量の関係

N ₂ ガス 流量	5L/min	7	10	15	
				大型炉	小型炉
滞留時間	7.8 sec	6.7	4.4	3.4	1.8
低発熱量	7.1MJ/kg	10.0	11.1	12.6	13.4

表 2 滞留時間と発熱量の関係(2)

N ₂ ガス 流量	20		25	
	大型炉	大型炉	小型炉	小型炉
滞留時間	4.1	1.8	3.0	1.9
低発熱量	13.1	14.1	12.3	13.8

以上の結果をまとめると、滞留時間 3sec 程度までは滞留時間の減少とともに発熱量は増大するが、それ以下 1.8sec 辺りまでは発熱量は 13~14MJ/kg 程度で一定となる。この値は北米圏で市販されているバイオオイルに比べれば 85%程度しかないが、工業用バーナーで十分に燃料として利用できる水準にあるといえる。収量的には目標の 50%には達していない。

オイル収量やオイル品質（高カロリー化）の改善のためには、他の研究で指摘されているように、オイル生成時に同時に副生されるチャーを炉外に速やかに排出する必要があると考えられる。

これ以降で、その分離実験の結果を示す。

(5) 粒子分離実験における循環・移送・分離・戻りのメカニズム：図 6 には 0.8mm 活性炭と 0.11mm 珪砂との 2 成分系 流動層での粒子循環、戻り、移送の一連の様子を示す。

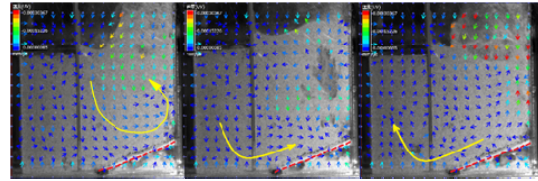


図 6 粒子循環と粒子移送、粒子の戻りの状況

①まず傾斜分散板に沿った粒子循環が起こり、②その循環流に伴われる形で層底部スリット部周辺の珪砂が熱分解セクションへと移動され（元の層へ移動することから”戻り”と表現する）、③その移動された分離セクションのスペースへ混合セクション側から珪砂とチャーの混合粒子が”移送”される。以上の粒子交換（粒子移動）が行われている状況を図 7 と図 8 に示した。図 7 では時間経過とともに、着色 PSTL 粒子が熱分解セクション側で循環し珪砂と混合した後、分離セクション側へと移送されている様子が確認される。④混合粒子は 2 成分系粒子の組合せ方に対応した分離状況（P. N Rowe et al., 1972）の分離パターン）で分離する。すなわち、層材料である珪砂に比べ軽い粒子の模擬チャー（活性炭, PSTL）は緩やかな流動場である分離セクションで分離浮上し、密度は珪砂と同等だが径の大きなガラスビーズは層底部に沈殿する。

次に図 8 では流動化開始とともに熱分解セクション側で循環が発生し、この循環の流れに引き連れられるようにして分離セクション側の粒子が熱分解セクション側へ搬送され（戻り）、その後着色珪砂が混合室側珪砂と混合し拡散している様子が確認できる。

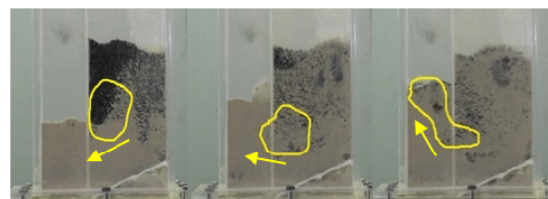


図 7 粒子移送（混合層 → 分離層）

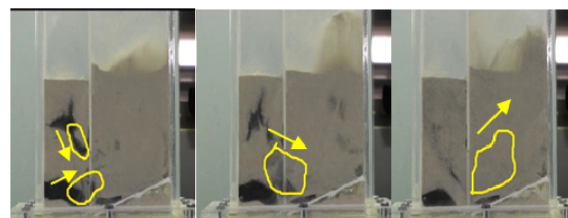


図 8 粒子の戻り（混合層 ← 分離層）

(6) スリット部を通じた粒子交換：スリット部を通じたこれらの粒子交換を確かめるため、スリット部中央点一点における粒子移動の定点観測を行った。図 9 にその結果

の一例を示す。分離粒子として 3.2mm の PSTL 粒子と層材料と 0.11mm 珪砂の場合の結果である。薄く示した高周波成分を有する波形は速度の生データで黒い実線は FFT 解析により 4Hz のローパスを掛けた波形である。この図で、右向きのベクトルが正（戻り）、左向きのベクトルを負（移送）として表記している。

図からも分かるように粒子は細かな往復運動を伴いながら比較的大きな（数 Hz）タイムスパンで往きと戻りを繰り返し、スリット部を通して粒子交換を繰り返しているということが分かる。

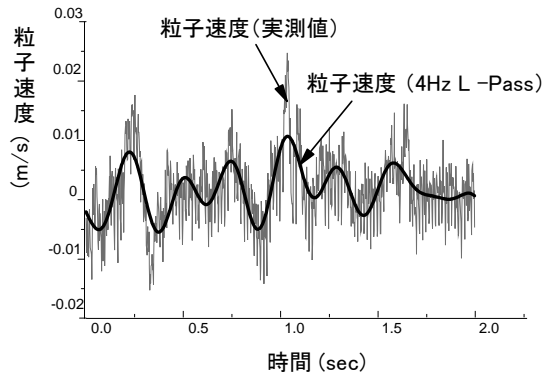


図 9 粒子移送、粒子の戻りの速度ベクトルの時間変化

(7) 粒子分離特性：図 10 にポリスチレン粒子の分離特性を、図 11 に活性炭粒子の分離特性を示した。分離セクションの流動化速度 $U/U_{mf} = 2.3$ 、熱分解セクションの $U/U_{mf} = 6$ と設定して分離度合や分離時間を測定した。図より、大径軽量粒子の PSTL 粒子と微小重粒子の珪砂の組合せでは 90sec で約 90% の粒子分離が可能となっている。

一方で、軽量中径粒子の活性炭と微小重粒子の珪砂の組合せでも同程度の時間で 80% の分離状況となっている。完全な分離を行うためには、ポリスチレン粒子の場合は 180sec で完全分離可能だが、活性炭粒子では 180sec でも完全な分離ができずさらに時間が必要となる。

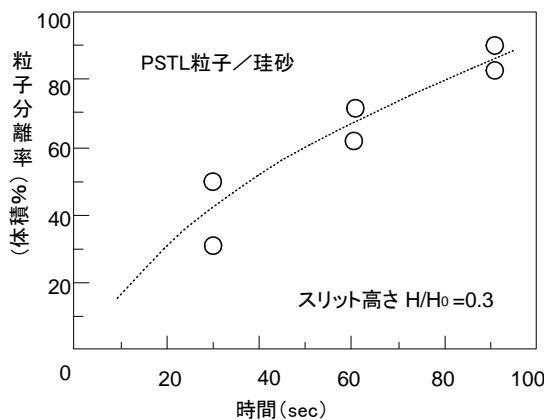


図 10 粒子分離率 (PSTL 粒子)

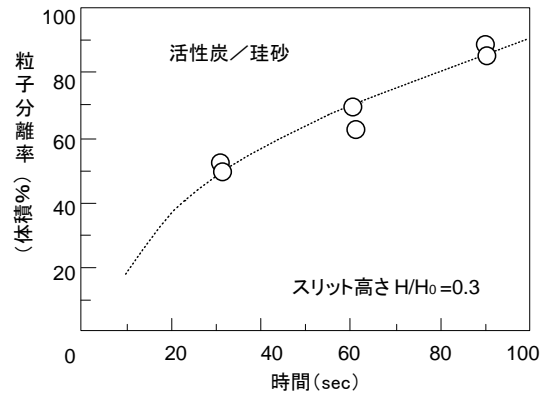


図 11 粒子分離率 (活性炭粒子)

(8) スリット高さの影響：実験ではスリット高さの影響も $H/H_0 = 0.3 \sim 0.6$ の間で調べた。いずれも図は省略するが、スリット中央部の一点で粒子移動の動画解析をした結果、極めて短い時間間隔 (0.02sec) で粒子は振動しながら左右に動き、全体としては図 9 に示される傾向と同様に、比較的長い時間間隔 (0.3sec, 3Hz 程度) で”移送”と”戻り”を繰り返す。短い間隔での粒子移動はスリット高さに逆比例するが、分離性能に対しては系統だった影響は見られず、 $H/H_0 = 0.3$ 程度で十分であることが確認できた。

(9) 熱分解実験と粒子分離実験のまとめ

以上、大きく二つに分けた実験の結果、すなわち加熱を伴うバイオオイル製造実験とコールドモデルによる粒子分離実験の結果、次のような設計指針を研究成果として得た。

① バイオオイルの燃料品質（発熱量）は滞留時間に大きく依存する。2 秒程度の滞留時間が総合的に見て最適といえる。

② 反応温度（熱分解温度）としては、 $500^{\circ}\text{C} (\pm 50^{\circ}\text{C})$ が最適範囲である。

③ バイオオイルの収量の面から見ても、最適条件として①、②が言える。

④ 高品質のオイルを得るための必要条件となる滞留時間数秒程度を実現するためには、粘着質のバイオマス材（木質粉はそのままでは圧入時、パイプ内に詰まり易い）を円滑に流動層内に供給する方策が必要。その効果的な方法として、加熱媒体粒子の珪砂をある割合で混ぜて供給すればよい。その適用範囲が把握できた。（本報告書では詳細割愛）

⑤ バイオオイルの品質を高め収量を多くするには、炉内に残存するチャーを速やかに分離除去する必要がある。それを可能とする 2 室連結式流動層熱分解炉の基本構造や特性を明らかにした。同時に、その分離メカニズムも実験的にほぼ特定できた。

⑥ 上記④と⑤の結果を総合して、木質材をスムーズに炉内へ送り込み、かつ生成するチャーを連結する分離炉で分離・排出することで、高品質、高収率、そして連続運転可能な流動層型熱分解炉の基本的な設計指針を提示した。

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 0件)

[学会発表] (計 6件)

1. 永橋優純, 濱田祥平, 是松孝治, J. R. Grace, 流動層型熱分解炉による木質材からのバイオオイルの生成, 日本機械学会熱工学コンファレンス 2012, 熊本, I211, 473-474 (2012).
2. 浅野智寛, 永橋優純, 是松孝治, J. R. Grace, 流動層型熱分解炉によるバイオオイルの生成 (滞留時間の影響), 日本高専学科第19回講演会, 高知, 119-120, (2013).
3. Y. Nagahashi, K. Korematsu, N. Ellis, J. Grace, Characteristics of Fluidized-Bed Fast-Pyrolysis Reactor for Bio-Oil, International Workshop on Fluid-Particle Systems, p.31, UBC, Vancouver, CA, (2014).
4. 永橋優純, 浅野智寛, 是松孝治, J. R. Grace, バイオオイル製造のための流動層型高速熱分解炉の開発 (基本特性), 日本混相流学会混相流シンポジウム 2014, 札幌, B-314 (CD-Rom), (2014).
5. 永橋優純, 山崎諒, J.R. Grace, 浅古豊, チャー／流動化粒子・2成分系流動層におけるチャーの分離, 流動化・粒子プロセスシンポジウム 2014, 岡山, 207-210, (2014).
6. 永橋優純, 浅野智寛, 雑賀高, John Grace, 流動層型熱分解炉によるバイオオイルの製造 (燃料特性とオイル収率), 日本機械学会 中国四国支部 第53期総会・講演会, No. 1106 (CD-Rom), (2015).

[図書] (計 0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

永橋 優純 (NAGAHASHI Yusumi)
高知工業高等専門学校・機械工学科・教授

研究者番号：80208040