Original Paper

Characteristics of Gasification Residue in a High Temperature Gasification Process of Woody Biomass

Nobusuke KOBAYASHI^{*1}, Miku TANAKA^{*1}, Guilin PIAO^{*1}, Yoshinori ITAYA^{*1},
Shigenobu HATANO^{*1}, Jun KOBAYASHI^{*2}, and Shigekatsu MORI^{*3}

(Received June 27, 2008)

木質バイオマス高温ガス化プロセスにおけるガス化残渣の性状

小林信介^{*1}, 田中未来^{*1}, 朴 桂林^{*1}, 板谷義紀^{*1}, 羽多野重信^{*1}, 小林 潤^{*2}, 森 滋勝^{*3}

High temperature gasification experiment of woody biomass was carried out in an entrained down flow gasifier. In this experiment, characteristics of gasification residue in a high temperature gasification process were clarified. The highest temperature of gasifier was over 1273 K. Gasification experiment was conducted at different feed stock feeding rates, and gasification residue was collected during the gasification experiment at various dust collection points. Collection point of gasification residue was the gasifier exit, gasifier bottom, cyclone and bag filter of the gasification unit. Characterization of residue was conducted by chemical composition, particle diameter and particle shape. Temperature distribution in the gasifier and produced gas composition was monitored during the gasification experiment. Chemical composition of collected gasification residue was different at different dust collection points. Ash content was the highest in the gasifier bottom residue, and fixed carbon content was the highest in the bag filter residue. Particle diameter and observed particle shape was also different at different dust collection points. Gasification temperature increased with increasing the feeding ratio, chemical composition and particle diameter of residue was changed drastically. Ash ratio increased in the gasifier bottom, and fixed carbon ratio increased in the bag filter. But the differences in particle shapes collected at the same dust collection point were not significant. Calculated carbon conversion values didn't show the big difference in different experimental conditions, but gasification behavior in the gasifier was different, and soot generation increased with increasing the gasification temperature.

Key Words

Woody biomass, High temperature gasification, Gasification residue

1. 緒 言

再生可能な資源である木質バイオマスを利用したリサイクル技術のひとつとしてガス化プロセス^{1) 2)}が注目を集めており、小規模かつエネルギー効率の高いガス化発電に関する研究開発^{3) 4)}や液体燃料の製造を目的としたガス化プロセスに関する研究開発行われている。木質バイオマスのガス化発電技術開発においては、現在高発熱量のガス生成を目的としたより低温でのガス化プロセスの検討・開発が積極的に進めら

れている。ガス化装置としては、固定層、流動層、ロータリーキルン等が用いられており、ガス化温度は約900～1100 Kで高発熱量ガスを生成可能である。しかしながら、ガス化温度が低くなるほどガス化速度が遅くなるため一般に大きなガス化炉が必要となり、またタール質が大量に生成するためタール除去^{5) 6)}あるいは改質のためプロセスが必要となる。タール質除去の方法として、触媒によるタール質の分解技術や酸素吹き込みによる改質技術が検討・実証されているものの、高

* 1 Department of Chemical Engineering, Nagoya University
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya-shi, Aichi 464-8603, Japan

* 2 National Institute for Environmental Studies
16-2 Onogawa, Tsukuba-shi, Ibaraki 305-8506, Japan

* 3 Professor emeritus at Nagoya University

* 1 名古屋大学大学院工学研究科
〒464-8603 名古屋市中種区不老町

* 2 国立環境研究所
〒305-8506 茨城県つくば市小野川16-2

* 3 名古屋大学名誉教授

効率かつ安価な触媒の開発やプロセスの簡素化が実用化のための大きな課題となっている^{7) 8)}。

タール生成の問題を解決する別の手法として1300 K以上の高温領域でのタール質の分解、抑制についても検討・開発が進められており、前報^{9)~11)}では、ダウンフロー型気流層ガス化炉を用いた高温ガス化実験について報告を行なった。実験ではバイオマス原料として反応性に優れた木粉を使用し、1300 K以上の高温ガス化実験において一酸化炭素および水素を主成分とする生成ガスを製造しており、原料ガス製造に適したガス化プロセスの構築が可能であることを示した。また、96~98%程度のカーボンガス化率が達成可能であることを示すとともに、タール質の生成抑制が可能であることも示している。さらに、操作条件として原料中の炭素量に対する全酸素量のモル比 (O/C) を採用し、操作条件とガス化温度の関係およびガス化条件と生成ガス組成、カーボンガス化率、冷ガス効率の関係等を明らかにした。しかしながら、カーボンガス化率と冷ガス効率がともに最大となるガス化条件においてもガスに変換されなかった未反応カーボンやタール質がガス化残渣としてガス化システム内に堆積し、またガス化中に生成されるすすが生成ガス中に微量に含まれていることが明らかとなっている。そのためこれらガス化残渣の堆積やすすの生成がガス化システム内での閉塞原因やガス化における効率低下の要因となることが懸念されていた。高温ガス化プロセスにおける最適制御条件を決定するためには、ガス化条件と生成ガスの関係を明らかにするだけでなく、実際にはガス化条件とガス化残渣の挙動について明確にする必要があり、そのためにはガス化残渣の回収場所や回収量、ガス化残渣の組成などガス化システム内で堆積・生成する固体残渣の性状や挙動について把握しておくことが極めて重要となる。しかしながら、炉内最高温度が1300 Kを超える木質バイオマスの高温ガス化プロセスにおいて、ガス化条件とガス化残渣性状およびガス化システム内におけるガス化残渣の挙動については未だ明確になっていない。

そこで本研究では、前報と同様のダウンフロー型気流層ガ

ス化炉を用いて木質バイオマスの高温ガス化連続運転を行い、ガス化温度や生成ガス組成の測定を行うとともに、異なるガス化条件における残渣回収量やガス化残渣性状を明らかにすることを目的としてガス化炉出口、ガス化炉下部、サイクロン、バグフィルターおよびレシーバータンクのガス精製装置各部分で捕集したガス化残渣の性状分析を行い、高温ガス化プロセスにおけるガス化残渣の挙動について検討を行った。

2. 実験装置および実験方法

本実験で用いたガス化装置の概略図を Fig. 1 に示す。ガス化装置は、原料供給設備、ガス化炉、ガス精製設備、ガス分析設備および生成ガス燃焼炉から構成されている。本ガス化プロセスでは、Table 1 に示す組成のスギの心材を60メッシュアンダーに粉碎した木粉をガス化原料とし、炉の上部の原料バーナーよりロータリーフィーダを用いて窒素搬送で炉内に供給した。原料バーナーからは、原料木粉とともにガス化剤として窒素と酸素からなる模擬空気を供給した。ガス化炉は、外径 800 mm、内径 255 mm、高さ 2000 mm のダウンフロー型気流層である。ガス化炉としては小型であるためヒートロスが大きく、原料供給装置上の制約から原料供給による熱量だけで高温ガス化を行うことが困難なため、ガス化実験時にはメタン燃焼専用の点火バーナーより助燃剤としてメタンを供給し炉内温度を高温に維持した⁸⁾。(ただし、本装置において1時間当たり 30 kg 程度の原料木粉が供給できればメタンの助燃は全く必要としない¹¹⁾。) 炉内温度は炉内の高さ方向8箇所に設置した熱電対温度計で測定した。生成したガスは、ガスクーラーで冷却し、サイクロン、バグフィルターおよびレシーバータンクの各ガス精製設備において脱塵(ガス化残渣捕集)を行なった後、ガス組成分析を行なった。サイクロンは、φ140 mm単純接続入り口形式のサイクロン、バグフィルターサイズは80メッシュである。生成ガス組成の分析には、連続オートガスクロマトグラフ(AG-1, Round Science Inc.)を用い、H₂、CO、CO₂、N₂およびCH₄、C₂H₆、C₃H₈、C₂H₄、C₂H₂など炭化水素の分析を行なった。ガス化後N₂パージにより炉

Fig. 1 Outline of biomass gasification unit in high temperature gasification experiment

Table 1 Properties of woody powder

Proximate analysis	
Moisture* ¹ [wt%]	5.0
Ash* ² [wt%]	0.9
Volatile* ² [wt%]	82.9
Fixed carbon* ² [wt%]	16.2
Fuel ratio [-]	0.20
Ultimate analysis* ²	
C [wt%]	48.6
H [wt%]	6.4
O* ³ [wt%]	44.0
N [wt%]	0.1

*¹ Arrival, *² Dry, *³ by difference

を冷却した後、炉出口付近、炉下部、サイクロン、バグフィルター、レシーバータンクおよびガスホルダーに付着、堆積したガス化残渣を回収した。レシーバータンクは、バグフィルターを通過した微粒子およびタールの捕集が可能なように水封してある。捕集したガス化残渣は、その重量を測定し、組成分析を行なった。また、捕集したガス化残渣の粒度分布測定(LA-920, HORIBA Ltd.)およびSEM(JSM-7000, JEOL Ltd.)による粒子形状観察を行なった。ただし、粒度分布については、捕集したガス化残渣を3分間超音波に曝すことで凝集粒子を壊砕し粒度測定を行なった。

今回のガス化実験では、ガス側およびガス化残渣側からの物質収支を得るため、炉内最高温度が1273 Kに達するまでゆっくりメタンを用いて昇温し、炉内温度が安定した後、原料供給を開始し一定条件で連続ガス化運転を行なった。Table 2に実験条件を示す。原料供給量は、1時間あたり24.5 kg, 19.4 kgで一定とし連続運転を行なった。木粉供給量の合計は、含水率約5%で117.5 kg, 79.4 kgである。ガス化条件として前報¹⁰⁾のガス化実験結果より空気吹きガス化の最適ガス化条件であるO/Cを約1.6~1.7に制御し運転を行なった。O/Cは原料中の炭素量に対する全酸素量(原料木粉中の酸素+供給酸素)のモル比として定義している。炉内の温度維持を行なうため助燃剤として供給したメタン量は1.8 m³/hで一定とし、メタン燃焼によるすすの生成を防ぐため点火バーナーの空気比は1.2とした。このときの全炭素投入量(原料木粉中の炭素+メタン中の炭素)に対する投入したメタン由来の全炭素量の重量基準割合は7~8.5%である。

Table 2 Experimental condition on woody biomass gasification

	Run 1	Run 2
Wood supply rate [kg/h]	24.5	19.4
Total weight [kg]	117.5	79.4
Gasifying agent	Air	Air
O/C [-]	1.67	1.63
Methane supplying rate during gasification [m ³ /h]	1.8	1.8

3. 結果および考察

Fig. 2に連続ガス化運転時の炉内温度分布を示す。原料供給速度の違いにより炉内温度分布に大きな差が見られ、木粉供給速度が24.5 kg/hの場合(Run 1)、炉内温度は炉頂より485 mm地点で1449 Kに達し、その後徐々に炉内温度は低下、ガス化炉出口付近では1022 Kとなるが、目的とする1273 K以上の高温領域は形成されている。木粉供給速度が19.4 kg/hの場合(Run 2)、炉内最高温度は1325 Kで目的とする1273 Kは超えているものの、Run 1に比べて炉内最高温度は100 K以上低く、高温領域が狭くなっている。Run 1とRun 2の実験において時間あたり約90 MJ程度のエネルギー投入量の違いにより炉内温度分布に顕著な差が生じている。生成ガス組成は、空気吹きガス化であるため搬送用N₂やパージ用N₂を合わせるとTable 3に示すように60%以上がN₂となる。Run 1

Fig. 2 Vertical temperature distribution of gasifier at different feeding rates (Run 1: 24.5 kg/h, Run 2: 19.4 kg/h)

Table 3 Produced gas compositions and calculated gasification results

	Run 1	Run 2
Produced gas composition* ¹		
H ₂ [vol%]	7.08	6.32
N ₂ [vol%]	64.25	66.26
CO [vol%]	16.95	15.67
CO ₂ [vol%]	9.88	8.83
CH ₄ [vol%]	1.47	2.23
C ₂ H ₄ [vol%]	0.18	0.46
C ₂ H ₆ [vol%]	0.00	0.02
C ₂ H ₂ [vol%]	0.19	0.22
C ₃ H ₆ [vol%]	0.00	0.01
Gasification result		
Produced gas volume [m ³ /h]	78.0	65.0
Residence time [s]	1.03	2.05
Carbon conversion* ² [%]	98.6	98.0
Cold gas efficiency [%]	60.0	66.0

*¹ Dry, *² Calculated from produced gas composition

と Run 2 において炉内温度分布には差が見られたものの、O/C がほぼ同じ場合には水素や一酸化炭素の主要生成ガス組成やカーボンガス化率については原料供給量により顕著な差は見られなかった。しかしながら、メタンを含む炭化水素の割合は、ガス化温度の低い Run 2 において増加しており、特に不飽和炭化水素の割合は Run 1 に対して約 2 倍となっている。生成ガス組成は、Fig. 3 に示すように CO シフト平衡の理論値に近い値を示しており、高温領域の広い Run 1 の条件および高温領域の狭い Run 2 においても CO シフト平衡理論値に近い生成ガス組成を示している。しかしながら、温度の低いガス化条件においては CO シフト平衡理論値から外れ、メタン等の炭化水素割合およびタール生成量が増加することになる¹⁰⁾。生成ガスの分析結果より計算したカーボンガス化率⁸⁾については、Run 1 の方が大きくなっている。それぞれの条件での炉内滞留時間は、ガス化炉体積を生成ガス体積で除した値と定義すると、Run 2 は Run 1 の滞留時間の約 2 倍となることから炉内温度が低くても Run 1 と同等のカーボンガス化率が得られたものと考えられる。全投入木粉および助燃メタン発熱量に対する生成ガス発熱量の割合を表す冷ガス効率⁸⁾については、Run 2 の条件が高くなった。これは Run 2 の条件では

Fig. 3 Calculated $([\text{CO}_2][\text{H}_2]/[\text{CO}][\text{H}_2\text{O}])$ value at different feeding rates (Run 1: 24.5 kg/h, Run 2: 19.4 kg/h)

Fig. 4 SEM photograph of woody powder, and gasification residues collected at different dust collection points; (a) Feed stock, (b) Gasifier bottom, (c) Cyclone, (d) Bag filter

ガス化温度が低く、メタン生成割合が高いためである。

上述のように原料投入量の違いにより炉内温度分布は大きく異なるが、ガス化組成はCOシフト平衡反応に従い、またカーボンガス化率および冷ガス効率がほぼ等しいRun 1およびRun 2の条件におけるガス化残渣の性状について考察を進める。Fig. 4にRun 1およびRun 2の条件でガス化実験を行った後、炉下部、サイクロン、バグフィルターの各部で捕集した粒子および原料として使用した木粉のSEM写真を示す。Run 1の実験条件において炉下部で捕集した粒子の形状は様々であるが、原料木粉に見られるような木質繊維のささくれはなく比較的球状に凝集しており、そのほとんどはポーラスである。中には溶融し球状になった10~20 μm 程度の灰粒子も観測されている。粒子表面には、1 μm 程度の球状粒子が多数付着していることが確認された。サイクロンで捕集した粒子もポーラスの凝集体を形成しており、その形状および表面状態は炉下部で得られた粒子と違いがほとんど見られなかった。また、サイクロンで捕集した粒子の中にも溶融し、球状になった灰粒子が観測された。バグフィルターで捕集した粒子は、炉下部やサイクロンで捕集した粒子の形状や粒子表面状態とは異なっており、非常に細かい粒子が綿状に凝集体を形成している。Run 2において各部で得られた粒子の形状および粒子表面状態については、Run 1と大きな差は見られなかったが、Run 1よりもRun 2の粒子の方が大きな粒子が観測された。Fig. 5に示すように捕集した粒子の粒度分布も捕集場所により大きく異なっており、ガス下流側に向かうにしたがって小さくなっている。50%径で約70 μm の木粉粒子はガス化反応の後、比較的大きな粒子はガス化炉下部に堆積し、50%径で20~40 μm 程度の粒子はサイクロンで捕集され、50%径で3 μm 程度の細かい粒子は最終的にバグフィルターにより捕集されている。Run 1とRun 2において捕集した粒子の粒度分布はほぼ同じ傾向を示しているものの、各捕集部での粒度分布は条件により異なっている。まず、ガス化炉下部で捕集した粒子の50%径は、炉内温度の低いRun 2よりも炉内温度が高いRun 1のほうが15 μm 程度小さくなっている。また、Run 2の粒子は、粒度の小さい範囲では原料木粉の粒度

を大きく上回っているものの、その粒度範囲はRun 1よりも狭くなっている。一方、Run 1の粒子径は原料木粉粒子径よりも小さくなっているものの、粒度分布の傾きは原料木粉の粒度分布の傾きとほぼ同じであった。これは炉内温度が低いRun 2においては比較的均一でかつ大きな一次粒子が凝集体を形成しているのに対して、炉内温度が高いRun 1の条件では反応した小さな一次粒子が凝集体を形成していたためであると考えられる。サイクロンで得られた粒子については、実験条件の違いにより差が見られた。これは、ガス生成量による流速の違いが大きく影響しているものと考えられる。粒度分布の傾向については、Run 2は比較的シャープな粒度分布を持つものに対して、Run 1の粒度分布は原料木粉と同様な粒度分布の傾きを有しており、炉下部で捕集した粒子の粒度分布と同様の傾向が見られる。このことから、比較的粒径の大きい粒子は炉下部に堆積し、粒径の小さい粒子がサイクロンにより捕集されたものと考えられる。バグフィルターで捕集した粒子は、50%径で3 μm 程度の細かい粒子であった。SEM写真と併せて考察するとバグフィルターで捕集された粒子は、非常に細かい一次粒子が弱い付着力により大きな凝集体を形成しているものと考えられる。炉下部やサイクロンで見られた傾向とは逆に、バグフィルターで捕集した粒子は、Run 2においてブロードな粒度分布を持つものに対して、Run 1の粒子はシャープな粒度分布を有している。このような傾向が現れる理由については組成分析結果とあわせて後で説明する。ちなみに、923 Kで灰化させた凝集体を形成していない木粉灰の50%粒子径は0.03 μm であり、非常に細かくバグフィルターで捕集した粒子よりもかなり細かい粒子であることがわかった。

Table 4にRun 1, Run 2の条件において各部で捕集したガス化残渣の乾燥重量およびガス化実験時の各部の温度を示す。また、ガス精製装置各部で得られたガス化残渣の工業分析および元素分析も示す。Run 1については乾燥基準での供給木粉総量111.6 kgに対してガス化残渣のほとんどはサイクロンおよびバグフィルターで捕集され、レシーバータンクでは、0.003 kgのガス化残渣が得られた。ただし、レシーバータン

Fig. 5 Cumulative particle diameter distribution of gasification residues collected at different dust collection points

Table 4 Properties of gasification residues collected at different dust collection points

	Run 1				Run 2		
	Gasifier exit	Gasifier bottom	Cyclone	Bag filter	Gasifier bottom	Cyclone	Bag filter
Temperature [K]	1033	1022	714	426	967	668	459
Solid weight [kg]	0.08	0.1	1.14	2.57	0.10	1.43	0.48
Solid ratio* ¹ [wt%]	2.0	2.6	29.3	66.1	5.0	71.1	23.9
Proximate analysis							
Moisture* ² [wt%]	0.52	2.9	47.1	17.2	2.4	47.0	39.7
Ash* ³ [wt%]	89.0	62.6	42.2	8.3	44.3	35.8	14.6
Volatile* ³ [wt%]	5.5	20.0	23.1	16.9	21.6	21.4	21.7
Fixed carbon* ³ [wt%]	5.5	17.4	34.8	74.8	34.1	42.9	63.7
Fuel ratio [-]	0.9	0.9	1.5	4.4	1.6	2.0	2.9
Ultimate analysis* ³							
C [wt%]	7.5	23.9	38.2	83.0	38.7	46.0	75.4
H [wt%]	0.4	1.1	1.3	1.8	1.4	1.1	2.1
O* ⁴ [wt%]	3.1	12.3	18.2	6.8	15.2	16.8	7.5
N [wt%]	<0.01	0.08	0.08	0.14	0.3	0.2	0.3

*¹ Solid ratio = captured solid weight / total solid weight × 100, *² Arrival, *³ Dry, *⁴ by difference

クの捕集重量は、333 Kで水分を蒸発させた後の乾燥重量である。レシーバータンク後のガスホルダーでは、ガス化残渣は全く捕集されなかった。ガス化残渣の成分については、ガス化炉出口付近で捕集したガス化残渣の約9割が灰分であり、揮発分および固定炭素がそれぞれ5%程度であるのに対して、バグフィルターで捕集したガス化残渣の約75%が固定炭素であった。捕集残渣中の灰分の割合は、ガス下流側に向かうほど少なくなり、残渣中の固定炭素の割合はガス下流側に向かうほど大きくなる傾向が見られた。これは炉出口で捕集された残渣は、高温に曝された灰粒子が炉出口付近の壁に付着したため灰分割合が多くなっているのに対して、サイクロンやバグフィルターでは、未反応チャーや生成したすすなどの炭素分の捕集割合が灰分捕集割合に対して多くなっているためである。炉下部、サイクロンおよびバグフィルターで捕集したガス化残渣中の揮発分は16~23%であるが、捕集したガス化残渣の燃料比を比較するとガス下流側に向かうほど燃料比が高くなっている。ガス化残渣の元素分析をあわせて考察すると、サイクロンで捕集した残渣は揮発分が多いことから高温のガス化炉内での脱揮発およびガス化が十分でない比較的大きな未反応チャー粒子がサイクロンで捕集されたものと考えられる。一方、バグフィルターで捕集したガス化残渣の燃料比は他の捕集残渣に比べて高く、元素中の炭素に対する酸素の割合が非常に小さいこと、また捕集した粒子の粒度が非常に小さくかつ粒度が比較的均一であること、さらには灰分や揮発分の割合が小さいことから、バグフィルターにより捕集した粒子のほとんどはガス化過程で生成したすすであると考えられる¹²⁾。

Run 2の条件においては、ガス化炉出口付近では分析可能な量のガス化残渣は捕集されず、ガス化残渣のほとんどがサイクロン、バグフィルターにより捕集された。生成ガス流量がRun 1の場合より小さいRun 2の条件におけるサイクロン分離効率やRun 1よりも低温であるRun 2の灰の付着性を考

えると、Run 1とRun 2の粒子捕集割合を一概に考察することはできないが、捕集割合についてはRun 1とRun 2で大きく異なっており、Run 1ではバグフィルターでの捕集割合が最も多く、Run 2ではサイクロンでの捕集割合が最も多くなっている。工業分析および元素分析の結果より、Run 2のガス化条件においても、サイクロンで捕集したガス化残渣は、未反応チャーを多く含んでいるものと考えられる。バグフィルターで捕集したガス化残渣については、Run 1の結果と同様にすすを含んでいるものと考えられるが、灰分割合および揮発分の割合から推測すると、バグフィルターではすすとともに灰や未反応チャーも捕集されているものと考えられる。そのためFig. 4に示したRun 2のバグフィルター捕集粒子の粒度分布がRun 1に対してブロードであった理由として、粒度の小さい灰およびサイクロンで捕集されなかった粒度の小さい未反応チャーがバグフィルターにより捕集されたためであると考えれば矛盾がなくなる。揮発分の割合については、各捕集場所においてRun 1、Run 2ともに顕著な違いが見られないことから、Run 2のガス化条件においてもRun 1と同程度に脱揮発は進行しているものと考えられる。しかしながら、炉出口付近、サイクロンで捕集したガス化残渣の固定炭素割合は、Run 1とRun 2で異なっており、Run 2で得られたガス化残渣の方が固定炭素の割合が大きくなっている。サイクロンで捕集された粒子の粒度分布を合わせて考察すると、ガス化温度の低いRun 2の条件においては、チャーのガス化がRun 1の条件に比べて進んでおらず、未反応チャーがサイクロンで捕集されたためと考えられる。

ガス分析および固体分析より得られた結果を用いて高温ガス化における炭素挙動を重量基準での炭素収支で表すとTable 5のように表される。Run 1のガス化条件においては、供給した原料木粉の炭素分93%および助燃メタンの炭素分7%の合計を全供給炭素分として計算すると、ガス化残渣として捕集した炭素分は、全供給炭素重量の約4.4%である。ガス化残渣

Table 5 Calculated carbon balance of gasification residues collected at different dust collection points

	Location	Run 1	Run 2
Carbon ratio*1 [wt%]	Gasifier exit	0.2	-
	Gasifier bottom	0.9	3.7
	Cyclone	16.7	62.1
	Bag filter	82.0	34.3
Gasification results			
Carbon conversion*2 [%]		95.6	97.3
Carbon conversion (excluding bag filter carbon) [%]		99.2	98.2

*1 Carbon ratio = Captured carbon weight in residue / total carbon weight in feed stock × 100,

*2 Calculated from gasification residue analysis

側からの収支計算の結果は、ガス分析から得られたカーボンガス化率とはほぼ一致している。各捕集場所で捕集した炭素分は、約82%はすすとしてバグフィルターに、約17%が未反応チャーとしてサイクロンにより捕集され、残りの約1%は炉出口付近、炉下部およびレシーバータンクで捕集されている。レシーバータンクで捕集したカーボンは、水溶性タールで、その重量はガス化残渣中カーボンのわずか0.13%であり、この値は供給全炭素重量の0.01%に満たないわずかな量である。バグフィルターで捕集した炭素はガス化過程で気相生成されたすすであるとすると、サイクロンおよびレシーバータンクで未反応チャーやタールとして捕集した炭素重量の合計は、供給全炭素重量の1%以下であり、このときの原料木粉のカーボンガス化率は99.2%となる。一方、ガス化温度が低いRun 2においても、ガス分析、ガス化残渣側分析より得られたカーボンガス化率は一致している。捕集した炭素割合は、Run 1ではバグフィルターで最も多く、Run 2ではサイクロンで最も多くなっている。これはガス化温度が高く、燃料投入量が多いRun 1の条件では、すすの生成および成長が顕著となり^{13) 14)}、ガス化温度の低いRun 2ではすすの生成は抑えられるものの、未反応チャーの割合が増加し、炭化水素の割合も増加するものと考えられる。その結果として、Run 2におけるすすの生成を除いた原料木粉のカーボンガス化率は、Run 1より僅かに小さくなっている。ガス化条件が異なるRun 1およびRun 2において生成ガス組成、カーボンガス化率はほぼ同じ値を示しているものの、ガス化残渣の回収率および性状は異なっていることから、炉内でのガス化挙動はガス化条件により大きく異なることが示唆された。

木質バイオマスは石炭に比べて原料中に含まれる灰分は少ないものの、長時間の高温ガス化においては石炭同様に灰の付着・堆積による閉塞が懸念される¹⁵⁾。そこで木質バイオマス高温ガス化における灰の挙動について把握するためガス化残渣中の灰成分についても同様に検討を行った。Table 6に捕集した灰の重量および木粉中灰重量基準での灰の捕集割合について示す。灰重量は各ガス精製設備で回収した残渣を空気雰囲気下873 Kで処理した後、測定を行った。Run 1の場合には、木粉に含まれる全灰分の約82%、Run 2の場合には約92%が回収され、Run 1およびRun 2において回収量に差が

Table 6 Calculated ash balance of gasification residues collected at different dust collection points

	Location	Run 1	Run 2
Ash weight [kg]	Woody powder	1.00	0.68
	Gasifier exit	0.06	-
	Gasifier bottom	0.07	0.04
	Cyclone	0.48	0.5
	Bag filter	0.23	0.07
Ash ratio*1 [wt%]	Gasifier exit	6.9	-
	Gasifier bottom	6.2	6.4
	Cyclone	47.8	75.5
	Bag filter	21.2	10.4

*1 Ash ratio = Captured ash weight in residue / total ash weight in feed stock × 100

見られた。灰分の50～75%はサイクロンで捕集されており、バグフィルターで10～20%、炉下部で6%程度捕集されており、レシーバータンクおよびガスホルダーにおいても水に溶け込んだ状態で微量の灰分の存在は確認されている。このことから木粉中の灰の多くは炉壁や炉出口付近に付着するのではなく、後段のサイクロンやバグフィルターで捕集されたことになる。Table 5の結果と灰の回収割合を併せて推察すると、サイクロンでは灰成分が未反応チャーに含まれた状態で捕集され、サイクロンで捕集できなかった細かい灰粒子がバグフィルターで捕集されたものと考えられる。そのため、Run 2の条件においてはサイクロンでの灰の捕集割合が非常に高くなっている。一方、Run 1の条件においてはRun 2に比べてサイクロンでの捕集割合が減少し、バグフィルターでの捕集割合が増加している。これはRun 1の条件の方が高温であるためチャーのガス化が進行し、サイクロンで捕集できない細かい灰粒子が後段のバグフィルターで捕集されたためであると考えられる。捕集した灰重量の割合および工業分析の結果をあわせて考えると、高温ガス化条件においては、炭素分が完全にガス化し、非常に細かい灰粒子の一部が炉出口付近に付着しており、サイクロンでは、灰は凝集した未反応チャーに含まれた状態で捕集され、バグフィルターではすすとともにサイクロンで捕集できなかった細かい灰粒子が捕集されることになる。ただし、ガス化温度条件により粒度や粒子の組成が大きく異なるため、ガス精製各部での捕集割合は大きく異なることが明らかとなった。これはガス化条件によりガス化残渣の性状が大きく異なることから、木質バイオマス中に含まれる灰成分のガス化システム内での挙動も大きく異なるものと考えられるが、木質バイオマス中に含まれる灰成分のガス化時の挙動解明については今後の検討項目としたい。

4. 結 言

気流層型ガス化炉を用いて木質バイオマスの原料投入量を変えてガス化実験を行なった。原料に対する酸素投入量が変わらない場合には、高温ガス化生成ガス組成はほとんど変わらないものの、炉内でのガス化挙動は大きく異なっており、捕集したガス化残渣の回収量および性状はガス化条件により大

大きく異なることが明らかになった。以下に本研究で得られた結果をまとめて示す。

- 1) 原料投入量の違いによりガス化炉内の温度分布は異なるが、O/Cの値がほぼ同じである場合には、一酸化炭素、水素などの主要生成ガス組成はほとんど変化せず、その組成はCOシフト平衡反応により説明できる。
- 2) 捕集した粒子形状および粒子表面状態は捕集場所により大きく異なり、炉下部、サイクロンにおいてはポーラスな粒子が多いのに対して、バグフィルターでは凝集した綿状の粒子が多く捕集された。捕集したガス化残渣の粒子径については、原料投入量、炉内温度の違いにかかわらずガス下流側に向かうにしたがって小さくなっている傾向が見られたが、同一の捕集場所においては炉内温度が高い方が粒子径は小さくなっている傾向が見られた。
- 3) 粒子の捕集割合は捕集場所により大きく異なり、炉内温度が高い場合、バグフィルターでの捕集割合が多く、炉内温度が低い場合にはサイクロンでの捕集割合が多くなった。また、捕集された粒子組成は、捕集場所により大きく異なり、炉下部やサイクロンで捕集した粒子の多くは未反応チャー、バグフィルターで捕集した粒子の多くはすすであると考えられる。
- 4) 捕集粒子の組成は、原料投入量、炉内温度により大きく異なり、原料投入量が多く、炉内温度が高い場合には、すすの生成量が多くなる。
- 5) 捕集粒子のカーボンバランスから計算したカーボンガス化率とガス分析から計算したカーボンガス化率はほぼ一致しており、炉内温度が高い場合、木質バイオマス中のカーボンのタールへのガス化率は1%以下であった。ただし、ガス化条件により炉内でのガス化挙動は異なる。
- 6) 木粉中の灰分のほとんどはサイクロンおよびバグフィルターで捕集される。また、サイクロンでは灰成分は未反応チャーに含まれた状態で捕集され、サイクロンで捕集できなかった細かな灰粒子がバグフィルターにより捕集される。

Acknowledgment

この研究は平成15年度NEDO産業技術研究助成事業の助成により実施した。

文 献：References

- 1) 湯川英明, バイオマスエネルギー利用の最新技術, (シーエムシー出版), p. 310(2006): Yukawa, H., Technological Trends in Energy Generation from Biomass, (CMC), p. 310(2006)
- 2) 吉川邦夫, 森塚秀人, バイオマス発電の最新技術, (シーエムシー出版), p. 63(2006): Yoshikawa, K., Moritsuka, H., Advanced Technologies for Biomass Power Generation, (CMC), p. 63(2006)
- 3) NEDO, バイオマスエネルギー導入ガイドブック(2005): NEDO, Biomass Energy donyu Guide Book, (2005)
- 4) NEDO, 平成17年度「バイオマスエネルギー高効率転換技術開発」成果報告会予稿集(2007): NEDO, Heisei 17 Nendo Biomass Enerugi Koukouritsu Tenkanngijyutu Kaihatsu Seika Houkokusyu, (2007)
- 5) Rabou, L., *FUEL*, **84**, 577(2005)
- 6) Knoef, H., Koele, H., *BIOMASS & BIOENERGY*, **18**, 55(2000)
- 7) Chirone, R., Miccio, F., Scala, F., *CHEMICAL ENGINEERING JOURNAL*, **123**, 71(2006)
- 8) Vamvuka, D., Troulinos, S., Kastanaki, E., *FUEL*, **85**, 1763(2006)
- 9) 朴桂林, アグン ヘンダルサ, 足立康夫, 板谷義紀, 浜井満彦, 森滋勝, 化学工学論文集, **30**, 385(2004): Piao, G., Hendarsa, A. S., Adachi, Y., Itaya, Y., Hamai, M., Mori, S., *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **30**, 385(2004)
- 10) 小林信介, 田中未来, 朴桂林, 烏曉江, 板谷義紀, 羽多野重信, 小林潤, 森滋勝, 日エネ誌, **86**, 904(2007): Kobayashi, N., Tanaka, M., Piao, G., Wu, Y., Itaya, S., Hatano, S., Kobayashi, J., Mori, S., *J. Jpn. Inst. Energy*, **86**, 904(2007)
- 11) Kobayashi, N., Tanaka, M., Piao, G., Kobayashi, J., Hatano, S., Itaya, Y., Mori, S., *Waste Management* (Available online 23 July 2008)
- 12) 森康夫, 燃焼に伴う環境汚染物質の生成機構と抑制法, (日本機械学会編), p. 116(1980): Mori, Y., Nenshyo ni tomonau Kankyouosenbusitu no Seiseikikho to Yokuseihouhou, (JSME), p. 116(1980)
- 13) 北野三千雄, 河村太郎, 日本機械学会論文集B編, **61**, 1540(1995): Kitano, M., Kawamura, T., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers. B*, **61**, 1540(1995)
- 14) 中西和雄, 角田敏一, 広安博之, 日本機械学会論文集B編, **46**, 1203(1980): Nakanishi, K., Kadota, T., Hiroyasu H., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers. B*, **46**, 1203(1980)
- 15) Amand, L.E., Leckner, B., Eskilsson, D., Tullin, C., *ENERGY & FUELS*, **20**, 1001(2006)