流動層ガス化炉における流動媒体によるガス化性能の比較に関する研究

Study on Comparison of Gasification Characteristics by Bed Material in a Fluidized Bed Gasifier

村上高広*・浅井 稔*・鈴木善三*
Takahiro MURAKAMI, Minoru ASAI and Yoshizo SUZUKI

(Received May 1. 2014)

A new type of circulating fluidized bed gasifier, which is called a fluidized bed gasifier with triple-beds and dual circulation, was proposed. Main features are the adoption of a triple-beds structure, the separation of circulation paths for tar-absorbing particle and fuel. Pyrolyzer and gasifier each have a two-stage fluidized bed. Tar can be processed in the gasifier. The two circulation systems each have an independent combustor. The purpose of this study is to evaluate the gasification characteristics of woody biomass by bed material in a fluidized bed gasifier. The bed material used porous alumina and limestone. As a result, the reforming of tar of porous alumina is much higher than that of limestone. Therefore, the porous alumina, which can process the tar in a fluidized bed gasifier, is suitable for the bed material. Additionally, the amount of tar absorbed by porous alumina was elucidated by the gasification experiment through which particles circulate continuously. The tar was generated because the fuel was supplied on the porous alumina particle bed. It is predicted that the amount of tar absorbed by porous alumina is more improved in a practical gasifier because the contact efficiency between the porous alumina and the tar in the proposed gasifier is much higher than that of this experimental condition.

Key Words: Fluidized Bed Gasifier, Gasification Performance, Bed Material, Porous Alumina, Limestone

1. 緒言

石炭やバイオマスのような固体燃料をガス化させる反応装置の一つとして、低温で運転でき、燃料のハンドリングが良い流動層炉が挙げられる。しかしながら、ガス化反応時に合成ガスと一緒に生成するタールが炉外へ排出すると、ガス化炉後段のガス冷却過程で配管に付着するなどトラブルの原因となる。したがって、タールを効率良く処理することが課題となっている。そこで本研究では、Fig. 1に示すような二重循環三塔型流動層ガス化炉を提案した¹⁾。特徴として、燃料が循環する系とタールを処理するためのタール吸収粒子が循環する系をそれぞれ独立させた。これより、運転中に炉内に蓄積するボトムアッシュを炉下部より抜き出す際にタール吸収粒子は混在しないため、長期間の利用が可能となる。また、ガス化炉を二段にすることで、下段でガスと一緒に生成するタールが上段のタール吸収粒子層を通過する際にタール吸収粒子に吸収できるので、ガス化炉内でタールを処理できる。したがって、提案したガス化炉は、タールをタール吸収粒子によりガス化炉内で処理でき、その粒子の長期間の利用を可能とする構造をもつ

Fig. 1 Schematic diagram of a fluidized bed gasifier with triple-beds and dual circulation.

*独立行政法人 産業技術総合研究所 エネルギー技術研究部門 クリーンガスグループ (〒305-8569 茨城県つくば市小野川 16-1)
National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Energy Technology Research Institute, Clean Gas Group
(16-1, Onogawa, Tsukuba, Ibaraki, 305-8569 Japan)

といえる。さらに、ガス化炉を熱分解炉と水蒸気ガス化炉に分離することで、熱分解ガスやタールによるチャーのガス化の阻害²⁾を低減できる。

提案したガス化炉を研究開発するために、燃料は木質バイオマスを対象とし、まずタール吸収粒子として多孔質アルミナを使用した小型二段流動層実験により、従来型（珪砂のみを流動媒体とした条件）よりもガス収率は顕著に向上することを明らかにした¹⁾。つづいて、実験データを基に熱バランス計算を実施した結果、従来型よりも冷ガス効率（反応後に生成した合成ガスの化学エネルギーと木質バイオマス原料の化学エネルギーとの割合で定義）および合成ガス量ともに増加する見込みがあること、さらに熱的に自立運転できる粒子循環量を明らかにした³⁾。つぎに、粒子の循環を目視観察できるアクリル製の二重循環三塔型ガス化コールドモデルにより粒子循環実験を実施し、計算で得られた粒子循環量を取得し、その循環量はライザー圧損で予測できることを明らかにした⁴⁾。

本報では、前報⁵⁾につづき安価なタール吸収粒子適用の可能性について検討するため、石灰石の水蒸気ガス化実験を実施し、同条件での多孔質アルミナの結果と比較した。さらに、タール吸収粒子の循環を模擬した三塔式流動層ガス化炉により、タールの改質性能に関して実験的に検討した。

2. 実験装置および方法

タール吸収粒子のガス化性能比較実験で使用する実験室規模のパブリック流動層ガス化炉の概略図を Fig. 2 に示す。本ガス化炉はステンレス製で、高さ 1420 mm、内径は下部：41.2 mm（高さ方向に 370 mm まで）、上部：78.1 mm となる。燃料は、Table 1 に性状を示す木材ペレットを 3–6 mmH 程度にカットし、30 秒毎に 0.5 g の間隔で最大 60 分間、炉内の粒子層上へ供給した。流動媒体は、多孔質アルミナ（水澤化学工業㈱製、粒径：0.11 mm、細孔容積：0.44 cm³/g、比表面積：200 m²/g）、さらに石灰石を焼成させた生石灰（吉澤石灰工業㈱製）を使用した。生石灰は 1 mm 以下のものを購入し、それを篩分けしたもの（平均粒径：約 180 μm）を使用した。流動ガスは、熱分解では不活性ガスである窒素ガス、ガス化ではガス化炉へ供給する水蒸気量と燃料中の炭素量とのモル比（S/C モル比）で約 1.6 となるように水蒸気を供給し、ガス化炉内でのガスの線速度が熱分解実験と同等となるよう窒素ガスも供給した。温度は 1073 K で実施した。

反応後のガスは、タールトラップによりタールを捕集し、さらに円筒濾紙で微粒子を捕集した後、ガスクロマトグラフ（CP-4900 Varian Inc., CA）によりガス成分を分析した。ガス化実験終了後には、温度を維持したまま流動ガスを空気に切替え、ガス化炉内に残存するチャーを燃焼させ、出口の排ガス濃度を同様のガスクロマトグラフにより分析し

Fig. 2 Schematic diagram of a laboratory-scale fluidized bed gasifier.

Table 1 Wood pellet properties

Proximate analysis [dry, wt. %]	VM	83.7
	FC	16.1
	Ash	0.2
Ultimate analysis [dry, wt. %]	C	51.45
	H	6.01
	N	< 0.01
	Comb. S	< 0.01
	O	42.34
Higher heating value [MJ/kg]		20.26

た。

つぎに、タール改質性能実験で使用する三塔式流動層ガス化ホットモデル実験装置の概略図を Fig. 3 に、主な仕様を Table 2 に示す。本装置はステンレス製で、熱分解炉およびガス化炉内で燃料が反応することによりガス量が増加するため、上部の内径を大きく設計した。炉間の連通部の内径は 21.4 mm、また燃焼炉のライザー部分の内径は 16.1 mm とした。地上からの最大高さは約 5000 mm である。全ての反応炉は電気炉により加熱した。各炉の圧力は、それぞれの炉出口に設置したポンプおよびファンにより調整した。

実験条件として、燃料は前述した木材ペレットを 30 秒毎に 1 g の間隔で最大 60 分間、熱分解炉内の粒子層上へ供給した。流動媒体にはタール吸収粒子循環系を模擬した運転

Fig. 3 Schematic diagram of a hot model gasifier.

Table 2 Specification of a hot model gasifier

Internal diameter × Height [mm]	
Pyrolyzer	41.2×370 + 78.1×1050
Gasifier	78.1×700 + 126.6×700
Combustor	65.9×370
Outlet height of particle above the distributor [mm]	
Pyrolyzer	70
Gasifier	190

を実施するため、前述した多孔質アルミナを使用した。流動ガスとして、熱分解炉へ窒素、ガス化炉へ水蒸気（S/Cモル比として1.6）をそれぞれ供給した。いずれの場合も、燃焼炉へは空気を、各LおよびJバルブへは微量の窒素を供給した。熱分解炉およびガス化炉の温度条件は、熱分解炉 769–982 K、ガス化炉約 1150 K、燃焼炉約 1073 K で実施した。

熱分解炉およびガス化炉での反応後のガスは、前述した方法でガスクロマトグラフによりガス成分を分析した。一方、燃焼後の排ガスは、円筒濾紙を通過後、連続分析計（IR400 横河電機㈱）により O_2 、 CO および CO_2 を分析した^{6)–8)}。水蒸気ガス化実験終了後には、温度を維持したまま熱分解をおよびガス化炉の流動ガスを空気に切替え、炉内に残存するチャーを燃焼させ、出口の排ガス濃度をそれぞ

Fig. 4 Comparison of pyrolysis gas yields by bed material in pyrolysis condition.

Fig. 5 Comparison of producer gas yields by bed material in steam gasification condition

れのガス分析計により分析した。

3. 実験結果および考察

タール吸収粒子のガス化性能比較実験において、Fig. 4 に熱分解条件⁹⁾、Fig. 5 に水蒸気ガス化条件でのガス収率の比較をそれぞれ示す。両条件とも多孔質アルミナを流動媒体とした方が、石灰石よりも得られるガス量が多いことが分かった。また両流動媒体とも水蒸気ガス化により、得られるガス量は熱分解よりも顕著に増加している。これは Eq. (1) および (2) に示すように、水蒸気による改質および水性ガスシフト反応が起こることによると考える。

水蒸気ガス化における炭素収率の比較を Fig. 6 に示す。本図より多孔質アルミナの方が、タールをガスやコークに

Fig. 6 Comparison of carbon balance in steam gasification condition.

Fig. 8 Comparison of producer gas yields at various temperatures.

Fig. 7 Relationship between cold gas efficiency and pyrolyzer temperature.

Fig. 9 Carbon balance at 982 K in the pyrolyzer in Fig. 8.

改質する能力が高いといえる。これは石灰石の比表面積が多孔質アルミナよりも1ケタのオーダーで小さいこと、また石灰石を焼成させると細孔が閉塞し易いことによるものと考え⁹⁾。したがって、石灰石をタール吸収粒子として使用すると、多孔質アルミナよりもガス化炉外へ放出するタール量が増加し、後段のタール処理にかかるコストが高くなる。したがって、タール吸収粒子としては多孔質アルミナの方が適するといえる。

つぎに、タール吸収粒子の連続循環が可能な三塔式流動層ガス化実験を行った。流動媒体は多孔質アルミナを使用した。冷ガス効率について Fig. 7 に、ガス収率について Fig. 8 にそれぞれ示す^{9),7)}。本図より熱分解炉温度が高くなるに連れて、多孔質アルミナのクラッキング効果およびガス化反応が促進するため冷ガス効率は向上し、それとともに水素生成量も顕著に増加している。約 958 K で 70 %

以上の高い冷ガス効率を得られることが分かった。

Fig. 9 に熱分解炉温度 982 K での炭素収支を示す。燃料を粒子層上に供給しているためタール分は生成しているが、提案した二重循環の構造で考えると、ガス化炉内での多孔質アルミナとタールとの接触が本実験条件よりも顕著に高くなるので、実際にはタール分はさらに低減できるものと考え。

4. 結論

流動層によるガス化実験を行い、流動媒体によるガス化性能の比較、さらにタール改質性能に関して実験的に検討した。得られた結果を以下に示す。

- 1) 多孔質アルミナの方が石灰石よりもタールをガスやコークに改質する能力は高いため、流動層ガス化炉の流動媒体に適する。

- 2) 多孔質アルミナを流動媒体とし連続循環させたガス化実験において、粒子層上に燃料を供給したためタールは生成したが、実際のガス化炉では粒子層内をタールが通過する構造であるため、今回の実験よりも多孔質アルミナとタールとの接触効率が顕著に向上し、炉内でタールを処理できるものと考ええる。

謝 辞

本研究は、林野庁からの委託事業「森林資源活用型ニュービジネス創造対策事業（小規模分散型製造システム：マイクロ波応用液化タイプ）」の一環として実施したものである。ここに記して、謝意を表する。

引用文献

- 1) T. Murakami, T. Yang, M. Asai and Y. Suzuki: Adv. Powder Technol., **22** (2011) 433-438.
- 2) B. Bayarsaikhan, N. Sonoyama, S. Hosokai, T. Shimada, J. Hayashi, C-Z, Li and T. Chiba: Fuel, **85** (2006) 340-349.
- 3) T. Murakami, M. Asai and Y. Suzuki: Adv. Powder Technol., **22** (2011) 449-452.
- 4) T. Murakami, M. Asai and Y. Suzuki: J. JSEM, **11** (2011) SS157-SS161.
- 5) 村上高広、浅井稔、鈴木善三：スマートプロセス学会誌、**3** (2014) 60-65.
- 6) 村上高広、浅井稔、鈴木善三：スマートプロセス学会誌、**2** (2013) 78-82.
- 7) T. Murakami, M. Asai and Y. Suzuki: J. JSEM, **13** (2013) s30-s34.
- 8) 平成 24 年度林野庁事業成果報告書：“「森林資源活用型ニュービジネス創造対策事業（小規模分散型製造システム：マイクロ波応用液化タイプ）」” (2013).
- 9) 成瀬一郎、西村喜芳、大竹一友、川辺庭資：化学工学論文集、**21** (1995) 904-909.