二塔式ガス化炉で発生したガスの組成： 木質バイオマスと褐炭の比較

Compositions of Volatile Compounds Produced by Dual Fluidized Bed Gasifier : Comparison of Lignite and Wood Pellets

成川 正広*, 坪井 陽介, 熊谷 安造, 高藤 誠, 須田 俊之, 藤森 俊郎

Masahiro Narukawa, Yosuke Tsuboi, Yasuzo Kumagai, Makoto Takafuji, Toshiyuki Suda and Toshiro Fujimori

Received 28 September 2012; Accepted 17 December 2012

Wood pellets were steam-gasified by using the bench-scale dual fluidized bed gasifier (DFBG). The composition of volatile compounds in the effluent gas from the gasifier is compared with that for lignite. The major components for wood were CO, H₂ and hydrocarbons which result mainly from pyrolysis, whereas H₂ and CO₂, which are produced by steam gasification and water-shift reaction, were major components for lignite. For wood, 57% of carbon in volatile compounds originates from pyrolysis, to be compared with 27% for lignite. The results of experiment and numerical calculation suggest that secondary pyrolysis of tar components proceeds in the free-board and that tar components are steam-reformed.

Keywords: Steam gasification, Dual fluidized bed gasifier, Wood pellets, Lignite, Pyrolysis

1. はじめに

2011年の東日本大震災と電力危機を契機として、安全で安定したエネルギー源に注目が高まっている。特に再生可能エネルギーは地球温暖化対策の点からも人々の関心を集めている。バイオマスは、光合成により太陽の光エネルギーを化学エネルギーに変換する植物が源であり、再生可能エネルギー資源としてその有効利用技術が注目されている。

固体バイオマス資源として最も利用されているのが、木質バイオマスである。木質バイオマスは、合板、製紙などのマテリアル利用だけでなく、熱源燃料としてのエネルギー利用に供されている。既存のマテリアル利用を考慮すると、燃料としての木質バイオマスは、未利用な林地残材、もしくは燃料用に育成され

る木材に限定するのが適切であると考えられる。未利用林地残材を利用する場合、少量が広域に賦存しているので収集効率の点から、小規模利用技術が必要となる。このため、バイオマスを利用した発電には、小規模でも高効率な発電技術が求められる。

バイオマスの発電技術の一つとして、ボイラによる木質バイオマス直接燃焼が挙げられる。直接燃焼はランキンサイクルとなり、小規模ではヒートロスが大きくなることなどから効率が低くなる。これらを克服する技術の一つとしてガス化技術があり、小規模でも高効率な技術であるため国内外で研究開発が進んでいる。ガス化ガスはエネルギー生産だけでなく、原料ガスとして様々な用途に利用できる特徴を併せ持つ。

石炭や木質バイオマス等の固体有機資源をガス化する技術として、我々は二塔式循環流動層ガス化技術を研究開発してきた¹⁻³⁾。二塔式ガス化炉は、高速流動層燃焼炉と気泡流動層ガス化炉を組み合わせた循環流動層ガス化炉である。二塔式ガス化炉では、燃料の熱分解・ガス化反応により生成するガス化炉発生ガスとチャーの空気燃焼により生成する燃焼炉排ガスが混

株式会社 IHI 技術開発本部 基盤技術研究所
(〒235-8501 横浜市磯子区新中原町1番地)
Research Laboratory, Corporate Research & Development, IHI Corporation
(1, Shin-nakahara-cho, Isogo-ku, Yokohama 235-8501, Japan)
* 責任著者連絡先 masahiro_narukawa@ihi.co.jp

合しない。そのため、ガス化炉発生ガスへの空気由来 N_2 の混入を最小限とすることができ、高発熱量のガスを得ることが可能である。また、流動層の大きな特徴である燃料に対する適用性が広く、水分の多い固体燃料でもガス化炉に供給することが可能であるため、バイオマスのガス化に有効な技術である。

低品位炭の有効利用を目的に、これまで褐炭を燃料のターゲットとして二塔式ガス化炉を研究開発してきた。適用可能な燃料範囲を広げるため、ベンチスケールの二塔式ガス化炉を用いて木質バイオマスを燃料としたガス化実験を実施した。ガス化炉発生ガスを化学プロセスへ利用する場合、 H_2 と CO の比が重要となる。褐炭では H_2 リッチなガスが得られることが分かっている¹⁾。褐炭と比較し木質バイオマスは酸素を多く含むため、発生ガスの組成が異なり、下流プロセスに影響を与えることが考えられる。本研究の目的は、温度および流動状態が同等の試験条件において褐炭と木質バイオマスを燃料とした場合の、ガス化炉発生ガスの組成の違いを把握することである。

2. 実 験

2. 1 試験装置

試験に用いたベンチスケール二塔式ガス化炉の構成図を **Fig. 1** に示す。二塔式ガス化炉は、高速流動層燃焼炉 (A) および気泡流動層ガス化炉 (B) から構成される。燃焼炉 (A) は、高さ 6200 mm、内径 53.5 mm の円筒管で、流動化ガスは空気である。ガス化炉

(B) は矩形流動層で、流動層部の断面積は 370 mm × 80 mm である。ガス化炉底部から 610 mm 上部に流動媒体の排出口があり、気泡流動層の層高を一定に保つことができる。ガス化炉の流動化ガスは水蒸気で、この水蒸気と燃料を反応物質としてガス化炉内で水蒸気ガス化反応が進行する。燃焼炉とガス化炉内ガスの混合を防ぐため、ガス化炉出口と燃焼炉入口の間にループシール (C) を設置してある。ループシールは矩形流動層 (断面積: 140 mm × 80 mm) で、流動化ガスとして N_2 ガスを用いる。燃焼炉サイクロン下部とガス化炉入口の間は、ダウンカマーをガス化炉層内に挿入することによりシールする。

燃焼炉およびガス化炉は、電気ヒーターにより昇温・保温され、炉内最高温度は約 900℃ である。燃焼炉とガス化炉の炉内圧力は独立に PID 制御し、各排気ラインにはサイクロン、熱交換器、バグフィルタおよび誘引ファン (IDF) を設置してある。ガス化炉で発生したガスは、ガス化炉サイクロンを通過したあと燃焼管内で燃やされる。その排ガスは熱交換器で冷やされバグフィルタを通過したのち大気に放出される。ガス組成測定用のガス化炉発生ガスは、ガス化炉サイクロンと燃焼管間の配管からサンプリングされる。

装置内を循環する流動媒体の循環流束 G_s は、燃料供給停止直後にダウンカマーで循環媒体を直接サンプリングすることにより求める⁴⁾。循環流束とガス化炉内粒子質量 W_{pg} から以下の式を用いて、ガス化炉内粒子の平均滞留時間を算出することができる。

Fig. 1 Schematic diagram of the bench-scale dual fluidized bed gasifier (DFBG)

Table 1 Biomass properties

Proximate analysis	[mass% (a.d.)*]	Moisture	9.3
		Fixed C	12.8
		Volatiles	77.6
		Ash	0.3
Ultimate analysis	[mass% (dry)]	C	49.6
		H	6.23
		O	43.8
		N	0.04
		S	<0.01
Higher heating value		[kJ/g (a.d.)*]	17.4

* air-dried basis

$$\tau = \frac{W_{pg}}{G_s \times A} \quad (1)$$

ここで A はライザーの断面積であり、 τ はガス化炉内の砂の流れをプラグフローと仮定した場合の滞留時間となる。滞留時間は、ガス化炉サイズを決定する重要なパラメータの一つである。Eq. (1) に示すように、 τ は循環流束 G_s に反比例する。Fig. 1 に示す二塔式ガス化炉において、 G_s は燃焼炉（ライザー）の空塔速度 U_g の関数だけでなく、循環粒子のサイズや総質量（インベントリ）の関数でもある⁵⁾。実験ではインベントリを一定とし、予め空塔速度と循環流束の関係を調べておいて、循環量を設定する。

二塔式ガス化炉では、気泡流動層ガス化炉に供給した燃料が、熱分解およびガス化することによりガスが発生する。水蒸気ガス化反応は燃焼に比べると遅い反応であるため、ガス化炉の滞留時間では反応しきれないチャーが残る。それら未反応チャーは燃焼炉に供給され、空気と混合し燃焼する。燃焼炉内でおこるチャー燃焼は発熱反応である。一方、ガス化炉内で進行する水蒸気ガス化は吸熱反応であるため熱が必要となる。二塔式ガス化炉を循環している循環媒体は、燃焼炉で発生した熱をガス化炉に供給する熱媒体としての役割を果たしている。

2. 2 試験条件

本研究で使用した木質バイオマスの性状を Table 1 に示す。木質バイオマスとして木質ペレットを選択した。ペレットのサイズは直径約 7 mm、長さ 30 mm 以下である。ガス化炉へのペレットの連続・定量供給には、スクリーフィーダを用いた。ペレットは一定量の Ar（トレーサー）とともに、ガス化炉のフリーボードに供給した。循環する熱・流動媒体は珪砂（ $d_{50} = 225 \mu\text{m}$, $\rho_p = 2600 \text{ kg/m}^3$ ）である。

ガス組成を測定するためのガス化炉発生ガスは、サンプリングしたのちフィルタ等で粒子、タール、

Table 2 Experimental conditions

Wood pellets	[kg/h]	3.2
Steam/Carbon	[mol/mol]	1.5
Temperature of fuel gasifier : T_g	[°C]	800
Temperature of riser combustor : T_c	[°C]	860
Superficial gas velocity in fuel gasifier : U_g	[m/s]	0.14
Superficial gas velocity in riser combustor : U_c	[m/s]	4.2
Solid circulation flux : G_s	[kg/(m ² ·s)]	16

および水蒸気を除去し精製した²⁾。精製ガスをさらに CaCl_2 にて除湿後、ガスクロマトグラフ（3000 micro GC, Agilent 製）を用いて、約 3 分間隔でガス成分を測定した。燃焼炉およびガス化ガス燃焼管の排ガス成分は、排ガス分析計を用いて測定した。

Table 2 に試験条件を示す。ガス化炉温度 T_g : 約 800°C、燃焼炉温度 T_c : 約 860°C の条件で、ガス化試験を実施した。各炉温度における空塔速度はガス化炉 U_g : 0.14 m/s、燃焼炉 U_c : 4.2 m/s である。Steam/Carbon 比が 1.5 となるように、燃料供給量（約 3.2 kg/h）を設定した。

2. 3 回分式流動層

燃料の熱分解ガス組成を調べるため、回分式流動層を用いて熱分解実験を実施した⁶⁾。流動層のサイズは、内径： $\phi 44 \text{ mm}$ 、層高：約 50 mm、フリーボード高さ：630 mm である。流動層を N_2 ガスで流動化した状態で、燃料を高温の流動媒体中に直接投入し熱分解を行う。生成ガスは、フィルタ等で粒子、タールおよび水蒸気を除去した後、アルミニウムバックに捕集し、上述のガスクロマトグラフを用いてガス成分を分析した。

3. 実験結果および考察

3. 1 二塔式ガス化炉の運転状況

ベンチスケール二塔式ガス化炉の実験中の各部圧力を、Fig. 2 に示す。燃焼炉の流動化ガスである空気によって、粒子は燃焼炉最上部まで持ち上げられる。その後、燃焼排ガスと粒子は燃焼炉サイクロンに入り、排ガスと粒子が分離される。分離された粒子はダウンカマーを通過してガス化炉に供給される。ガス化炉出口から排出された粒子はループシールを通過して燃焼炉底部に戻る。実験中、装置各部の圧力は安定していた。燃焼炉の圧力変動は上部より底部のほうが大きく、燃焼炉（ライザー）底部に濃厚層が存在していることを示している。ガス化炉底部圧力： $7.0 \pm 0.2 \text{ kPaG}$

Fig. 2 Pressure loop of the bench-scale DFBG
 A : Bottom of the combustor
 B : Top of the combustor
 C : Bottom of the gasifier
 D : Bottom of the loop-seal

は, U_g : 4.2 m/s における気泡流動層高 (610 mm) までの砂層圧を示す。ループシールの底部圧力: 7.1 ± 0.7 kPaG は, 本装置内で最も圧力の高い箇所である。上述したように, 循環流束 G_s は循環粒子の総質量 (インベントリ) の関数でもある。インベントリの増減は, ループシールと燃焼炉の圧力差に影響する。ループシール底部と燃焼炉底部の圧力差 (約 3.5 kPaG) が生じることにより, 圧力の高いライザー底部に循環粒子を供給することが可能となる。

ガス化炉への木質バイオマス供給開始から約30分経過後, ガス化炉発生ガスおよび燃焼炉排ガスの組成・濃度はほぼ一定となった。**Fig. 3** に, ガスが安定してからのガス化炉発生ガスと燃焼排ガスの経時変化を示す。ガス組成・濃度が安定してから60分以上燃料を供給したが, 装置の温度・圧力分布はほとんど変化がなく, 燃料を安定して連続ガス化することができた。

3. 2 ガス化炉発生ガスの成分

木質バイオマスのガス化炉発生ガスおよび回分式流動層で得られた熱分解ガスの組成 (dry) を, **Fig. 4** (a) にそれぞれ示す。ガス化炉発生ガスでは, CO (43 vol%) の濃度が最も高く, 続いて H_2 (29 vol%), CO_2 (13 vol%), CH_4 (11 vol%) となった。一方, 熱分解ガスでは, CO (46 vol%) の濃度が最も高く, 続いて H_2 (18 vol%), CH_4 (16 vol%), CO_2 (10 vol%) とな

(a) Gasifier

(b) Combustor

Fig. 3 Concentration-time series of major gas components in the effluent gases from
 (a) Gasifier
 (b) Combustor

り, ガス化炉発生ガスと同様な濃度分布となった。**Table 1** に示したように, 木質バイオマスの燃料比は 0.16 であり固定炭素より揮発分が多い。このことから, 木質バイオマスではガス化炉発生ガスに占める熱分解ガスの割合が高くなり, 両ガスが同様な濃度分布になる。

木質バイオマスと同試験条件において得られる褐炭のガス化炉発生ガスおよび熱分解ガス (dry) を **Fig. 4** (b) に示す。褐炭は既報告⁷⁾ で用いたものと同じである。ガス化炉発生ガスでは, H_2 (51 vol%) の濃度が最も高く, 続いて CO_2 (19 vol%), CO (18 vol%), CH_4 (9 vol%) となった。一方, 熱分解ガスでは, H_2 (36 vol%) の濃度が最も高く, 続いて CH_4 (28 vol%), CO (14 vol%), CO_2 (10 vol%) となり, ガス化炉発生ガスと比較して CH_4 濃度が 3 倍になるなど濃度分布が異なる結果となった。褐炭の燃料比は 0.96 であり, 固定炭素と揮発分がほぼ同質量含まれている。褐炭ではチャーの水蒸気ガス化および CO の水性シフト反応により, ガス化炉発生ガスの H_2 および CO_2 濃度が高くなるため, ガス化炉発生ガスが熱分解ガスと異なっ

(a) Wood

(b) Lignite

Fig. 4 Molecular distributions of volatile compounds produced by gasification and pyrolysis of wood pellets and lignite at 800°C
Volatile compounds of gasification are components of the effluent gases from the DFBG gasifier, whereas for pyrolysis they come from the batch fluidized bed reactor

た分布になる。

木質バイオマスにおけるガス化炉発生ガスの組成の特徴として、CO および炭化水素の濃度が高く、H₂ 濃度が低いことが挙げられる。このガス組成を反映して、木質バイオマスのガス化炉発生ガスの高位発熱量は約 15 MJ/m³ (約 3100 kcal/m³) となり、褐炭では約 13 MJ/m³ (約 2700 kcal/m³) となる。木質バイオマスのガス化炉発生ガスは炭化水素濃度が高いため発熱量が高くなり、発電 (ガスエンジン等) 向きであると考えられる。

3. 3 熱分解ガス成分：数値計算による二次熱分解の評価

回分式流動層で得られる熱分解ガス成分の濃度分布は、気相における二次熱分解の影響を受けている可能性がある⁸⁾。気相における二次熱分解を調べるため、熱分解のシミュレーションが可能であるソフト (PC Coal Lab ver.4, Niksa Energy Associates 社製) を用いて数値計算を実施した。PC Coal Lab では、石炭の熱分解モデルとして FLASHCHAIN⁹⁾、バイオマスの熱

(a) Wood

(b) Lignite

Fig. 5 Simulated molecular distributions of volatile compounds in pyrolysis products of wood and lignite at 800°C

分解モデルとして bio-FLASHCHAIN¹⁰⁾ を用いる。計算入力値である工業・元素分析値として、木質バイオマスは Table 1 の値、褐炭 (全水分：32.1%) は既報告の値⁷⁾ を用いた。

木質バイオマスおよび褐炭を 800°C の窒素雰囲気中で熱分解して発生したガス組成の数値計算結果 (dry) を、Fig. 5 に示す。Fig. 5 の横軸は、二次熱分解の進行度を示す。横軸の 0 は初期熱分解生成物のみ、横軸の 1 は二次熱分解が完全に進行した場合、0.2~0.8 は初期熱分解および二次熱分解で生成したガスの混合物となる。

Fig. 5 (b) に示す褐炭の場合、初期熱分解生成物では CH₄ 濃度が 34 vol% と最も高く H₂ は 10 vol% と低い、二次熱分解が進行するにつれ、H₂ 濃度が増加し、一方 CH₄ は減少する。二次反応が完全に進行すると、H₂ は 59 vol% と濃度が最も高くなり、CH₄ は 2 vol% まで減少する。Fig. 5 (b) の数値計算結果を Fig. 4 (b) に示す回分式流動層により得られた熱分解ガスの分布・濃度と比較すると、二次反応の進行度が 0.6 の場合 (H₂ : 36 vol%, CO : 25 vol%, CO₂ : 13 vol%,

CH₄: 22 vol%) が、実験とよく似た値になる。実験と数値計算結果の比較から、回分式流動層で得られた熱分解ガスは、流動層フリーボード内で二次熱分解がある程度進行したガスであることが示唆される。

Fig. 5 (a) に示す木質バイオマスの場合、二次熱分解が進行するにつれ H₂ 濃度が減少し CH₄ 濃度が増加するという、褐炭とは反対の傾向を示す。後述するように、CH₄ 濃度の増加は、タールの二次熱分解を反映している。二次反応の進行度が1.0の場合 (H₂: 32 vol%, CO: 48 vol%, CO₂: 5 vol%, CH₄: 12 vol%) が、Fig. 4 (a) の実験値に最も近くなる。褐炭の場合と同様、回分式流動層で得られた木質バイオマスの熱分解ガスは、流動層フリーボード内で二次熱分解がある程度進行したガスであることが示唆される。

3. 4 熱分解における炭素転化率

気相における二次熱分解が炭素転化率に与える影響を調べるため、熱分解生成物であるガス、チャーおよびタールへの炭素転化率 (800℃の窒素雰囲気) を求めた。実験および数値計算における各炭素転化率を積算したものを、Fig. 6 に示す。炭素転化率は、次式を用いて算出した。

$$X_g = \frac{M_g}{M_0} \times 100 \quad (2)$$

$$X_t = \frac{M_t}{M_0} \times 100 \quad (3)$$

$$X_c = \frac{M_c}{M_0} \times 100 \quad (4)$$

$$M_0 = M_g + M_t + M_c \quad (5)$$

ここで、 M_0 は燃料の炭素含有量、 M_g 、 M_c 、 M_t は熱分解で生成したガス、チャーおよびタールの炭素含有量である。タールには二次熱分解で生成するスス粒子も含む。

Fig. 6 (b) に示す褐炭の場合、数値計算における初期熱分解ではガスへの転化率は26%、タールへの転化率は17%である。二次熱分解が進行するにつれ、ガスへの転化率が減少し、一方タールへの転化率が増加する。この結果は、二次熱分解により揮発成分が凝縮成分であるタールに変質することを示している。二次熱分解が完全に進行すると、ガスへの転化率は22%に減少し、一方タールへの転化率は20%に増加する。実験では、ガスへの転化率は16%、タールへの転化率は23%であり、二次熱分解が最も進行した場合の数値計算結果と近くなる。ガス組成での議論と同様に、流動層フリーボード内でガスおよびタールの二次熱分解があ

(a) Wood

(b) Lignite

Fig. 6 Experimental and simulated carbon conversion to gas, char, and tar and soot produced by the pyrolysis of wood and lignite at 800℃

る程度進行していることを、Fig. 6 (b) の炭素転化率の実験および数値計算結果は示唆している。

Fig. 6 (a) に示す木質バイオマスの場合、実験と数値計算の結果では相違がみられた。数値計算における初期熱分解では、ガスへの転化率は47%、チャーへは27%、タールへの転化率は26%である。二次熱分解が進行するにつれ、ガスへの転化率が増加し、一方タールへの転化率が減少する。この数値計算結果は、二次熱分解により凝縮成分であるタールが揮発成分に変質することを示している。実験ではガスへの転化率は45%、チャーへは10%、タールへの転化率は45%である。木質バイオマスにおいて、熱分解による炭素転化率を数値計算で再現するのは、現状のモデルでは困難であることが分かる。開発者が認識しているように、bio-FLASHCAHIN ではモデルをサポートするデータベースが不足しているため、バイオマスの熱分解をシミュレーションするのは石炭の場合より難しい⁸⁾。また、bio-FLASHCHAIN では、セルロースおよびリグニン様成分の共重合体でバイオマスを代表しており、木質バイオマスの主成分の一つであるヘミセルロース

Fig. 7 Contribution of gasification and pyrolysis reactions to the product gases from the DFBG gasifier
The values are estimated at carbon base by using experimental results shown in Fig. 4.

(約 20~30 mass%)¹¹⁾ はモデル内に考慮されていない。バイオマス粒子の熱分解については、未だ半経験的な方法が用いられているため、二次熱分解も考慮に入れた信頼性のある計算モデルの開発が望まれている¹²⁾。

3. 5 ガス化炉発生ガスへの熱分解およびガス化反応の影響

熱分解およびガス化反応由来のガスがガス化炉発生ガスに占める割合を調べるため、炭素ベースで各割合を算出した。**Fig. 7** に、褐炭と木質バイオマスにおける各割合を積算した結果を示す。割合の算出には **Fig. 4** の実験値を用いた。木質バイオマスでは、ガス化由来ガスの占める割合は43%である。一方、褐炭では73%と高くなる。**Fig. 6 (a)** に示すように、実験では木

質バイオマスの熱分解におけるガスおよびチャーへの転化率はそれぞれ45%および10%であり、チャーの水蒸気ガス化だけでは **Fig. 7** のガス化反応由来のガス43%を説明することは困難である。このことは、**Fig. 7** に示すガス化反応由来のガスにはフリーボード内におけるタールの水蒸気改質で生成したガスが一部含まれることを示唆する。

木質バイオマスではチャーの収率は褐炭の約1/3である。チャーの水蒸気ガス化反応は反応速度が遅いため、ガス化炉内でチャーをガス化するにはある程度の滞留時間（反応時間）が必要になる。チャー収率が低い木質バイオマスを燃料とする場合、ガス化に必要な滞留時間を短くすることができる。**Fig. 6** および **Fig. 7** の結果は、木質バイオマスの場合ガス化炉サイズをコンパクトにして滞留時間を短くしても、ガスへの炭素転化率を高く維持できることを示唆している。

4. ま と め

ベンチスケール二塔式ガス化炉を用いて木質バイオマスをガス化し、ガス化炉発生ガスの組成を褐炭の場合と比較した。木質バイオマスでは CO および炭化水素の濃度が高く主に熱分解ガス由来であり、一方、褐炭では H₂ および CO₂ の濃度が高くなり水蒸気ガス化および水性シフト反応由来のガスが主である。炭素ベースで比較すると、初期および二次熱分解由来のガス化炉発生ガスに占める割合は、木質バイオマス：57%に対し、褐炭：27%であった。実験結果と数値計算結果の比較から、流動層フリーボード内においてタール成分の二次熱分解が進行していること、タール成分が水蒸気改質していることが示唆された。

Nomenclature

A : Cross-sectional area of riser combustor	[m ²]	U_c : Superficial gas velocity in riser combustor	[m/s]
G_s : Solids circulation flux	[kg/(m ² ·s)]	U_g : Superficial gas velocity in fuel gasifier	[m/s]
M_0 : Mass of carbon in fuel	[kg]	W_{pg} : Mass of particles in gasifier	[kg]
M_c : Mass of carbon in char	[kg]	X_c : Carbon conversion to char	[%]
M_g : Mass of carbon in gas	[kg]	X_g : Carbon conversion to gas	[%]
M_t : Mass of carbon in tar and soot	[kg]	X_t : Carbon conversion to tar and soot	[%]
T_c : Characteristic temperature of riser combustor	[°C]	τ : Nominal residence time of particles in gasifier	[s]
T_g : Characteristic temperature of fuel gasifier	[°C]		

References

- 1) Suda, T., M. Takafuji, M. Narukawa, Y. Matsuzawa, G. Xu and T. Fujimori: "Gasification of lignite coal using twin circulating fluidized bed gasifier", *J. Soc. Powder Technol. Japan*, **46**, 436-441 (2009)
- 2) Xu, G., T. Murakami, T. Suda, Y. Matsuzawa and H. Tani: "Two-stage dual fluidized bed gasification: its conception and application to biomass", *Fuel Process. Tech.*, **90**, 137-144 (2009)

- 3) Zhang, J., W. Gao, Z. Zhao, Z. Liu, M. Narukawa, T. Suda and G. Xu : "Adaptability verification of scaling law to solid mixing and segregation behavior in bubbling fluidized bed", *Powder Technol.*, **228**, 206-209 (2012)
- 4) Xu, G., T. Murakami, T. Suda, Y. Matsuzawa and H. Tani : "Particle circulation rate in high-temperature CFB : measurement and temperature influence", *AIChE J.*, **52**, 3626-3630 (2006)
- 5) Liu, X., X. Cui, G. Sun, T. Suda, M. Narukawa, Y. Liu, G. Sun and G. Xu : "Buildup of high solids flux conveying flow by coupling a moving bed to the riser bottom", *AIChE J.*, **55**, 2477-2481 (2009)
- 6) Rapagna, S. and G. Mazziotti di Celso : "Devolatilization of wood particles in a hot fluidized bed : Product yields and conversion rates", *Biomass Bioenerg.*, **32**, 1123-1129 (2008)
- 7) Huang, Z., J. Zhang, Y. Zhao, H. Zhang, G. Yue, T. Suda and M. Narukawa : "Kinetic studies of char gasification by steam and CO₂ in the presence of H₂ and CO", *Fuel Process. Tech.*, **91**, 843-847 (2010)
- 8) Hayashi, J. -i., T. Kawakami, T. Taniguchi, K. Kusakabe, S. Morooka and M. Yumura : "Control of molecular composition of tar by secondary reaction in fluidized-bed pyrolysis of a subbituminous coal", *Energy Fuels*, **7**, 57-66 (1993)
- 9) Niksa, S. and A. R. Kerstein : "Flashchain theory for rapid coal devolatilization kinetics. Part 1. Formulation", *Energy Fuels*, **5**, 647-664 (1991)
- 10) Niksa, S : "Predicting the rapid devolatilization of diverse forms of biomass with bio-FLASHCHAINB", *Proc. Combust. Inst.*, **28**, 2727-2733 (2000)
- 11) Ogi, T. : in "Biomass Handbook", pp. 12-15, Ohm-sha (2002) (in Japanese)
- 12) Gomez-Barea, A. and B. Leckner : "Modeling of biomass gasification in fluidized bed", *Prog. Energy Comb. Sci.*, **36**, 444-509 (2010)