

(平成 25 年度 研究実施報告)

国際科学技術共同研究推進事業 (戦略的国際共同研究プログラム)

(研究領域「エネルギー利用の高効率化」)

研究課題名「マイルド熱分解とエクセルギー再生に基づく低品位炭有効
利用プロセスの開発」

平成25年度実施報告書

代表者氏名 堤敦司

(所属・役職) 東京大学生産技術研究所 特任教授

1. 研究実施内容

1-1. 研究実施の概要 公開

平成 25 年度は、本研究プロジェクトに三つのタスクを設け以下のグループ構成で研究を実施した。

タスク1: プロセス設計とエクセルギー解析 (東京大学)

- プロセス設計とエクセルギー解析
 - エクセルギー再生に基づく高効率石炭転換システム設計
 - ◇ エクセルギーの観点から最適化する目的で IGCC/IGFC 用のエクセルギー再生型石炭ガス化システムの再設計を行ため、また、循環流動層ガス化炉コールドモデルに再設計を行ったシステムを適用するために、本年度はコールドモデルを用いて、ガス化/熱分解炉内の基本的特性について検討した。

タスク 2: マイルド熱分解とガス化 (東京農工大学・産総研クリーンガス・群馬大学・弘前大学)

- エクセルギー再生熱分解・ガス化
 - マイルド水蒸気熱分解による低品位炭からの油分生成
 - ◇ 実機で想定される温度で熱媒体粒子と石炭粒子を反応管上部で直接接触し、熱媒体粒子の温度や、熱媒体粒子と石炭粒子の質量流量比や水蒸気流量が可変であるダウンナー型熱分解装置の設計と作製を行った。
 - ◇ 熱媒体粒子と石炭粒子それぞれが設定温度で連続的に反応管内に供給可能であることと、反応後にチャーとタールが生成することを確認した。
 - マイルドな熱分解とガス化を組み合わせた化学基幹物質製造プロセスの開発
 - ◇ 石炭の熱分解、燃焼の様子を直接観察可能な石英製循環流動層装置を試作し、熱分解炉からの生成物(ガス、軽質タール、重質タール)、燃焼炉からの生成ガスを分析した。生成物収率から求めた炭素基準の物質収支は良好で、安定した粒子循環に成功した。
 - 触媒を用いた低炭化度炭の低温熱分解/ガス化
 - ◇ 7種の金属触媒担持褐炭の熱分解実験及び流動状態の金属触媒担持褐炭チャー中での褐炭の熱分解実験を行った。熱分解生成物分布は担持触媒金属に強く影響され、Ni 及び Co を担持した褐炭ではタール収率が低くなりガス収率が著しく増加した。触媒の種類によって液状生成物分布も影響され、条件を選ぶことによって生成物分布を制御出来る可能性がある。
 - 低品質石炭/バイオマスの高効率な共熱分解・共ガス化・共水素化熱分解技術の開発
 - ◇ 固定層反応器を用い、二種類低品質石炭と3種類のバイオマスを不活性ガス及び水蒸気雰囲気の下にマイルド熱分解特性を把握した上、溶剤(DME)処理法でポジティブな物性を強化させる方法を開発した。バイオマス灰及び貝殻など低コスト・高効率な触媒を用い、共熱分解・共ガス化への促進効果を確認した。熔融塩反応器を用い、共熱分解・共ガス化実験を行った。400~650℃の熔融塩の熱媒体効果や触媒効果などを調べ、熔融塩により、反応への促進効果が確認した。

タスク 3: 石炭由来油のリファイナリー体系の構築 (九州大学・産総研新燃料・富山大学)

- ターल高効率分離により高付加価値化学品の製造、タールの改質により高品質燃料の製造及び高性能の触媒の開発など石炭油のリファイナリー体系の構築

- 石炭マイルド熱分解油の分離・精製および改質反応の速度モデリング
 - ◇ 独自に開発した移動床模擬反応器を用いて豪州褐炭のマイルド熱分解(最高温度~600°C)実験を実施し、低温部での原料褐炭への収着・捕捉や生成タールと原料褐炭との共炭化効果により、重質油が留出しない熱分解プロセスを開発した。
 - ◇ マイルド熱分解油の詳細組成分析としてGC/MS分析により230種以上の化合物を検出し、熱分解油中の80%以上を(半)定量し、褐炭マイルド熱分解における生成物分布を明らかにするとともに生成油の化学組成に関する定量的な情報を取得した。
- 低品位炭の水熱抽出・改質技術の開発
 - ◇ 高温高压(≤400°C、≤30 MPa)で操作可能な半連続式抽出装置を設計し製作した。
 - ◇ Loy Yang 褐炭を用い、350°C、20 MPa で水熱抽出試験を安定的に実施することに成功した。
 - ◇ 各抽出物(Deposit、Soluble)の元素組成、工業分析値、分子量分布(LDI-TOF MS)、官能基形態分布(FTIR)、水素・炭素形態分布(NMR)を調べた。
- 石炭由来油の水素化改質
 - ◇ 石炭由来油の改質反応に最適なトリモダル触媒の調製のため、マイクロ細孔径の異なるゼオライトを数種選び、これらのゼオライトを用いてトリモダル触媒調製条件を検討し、最適な調製条件とゼオライト種を調査した。トリモダル触媒調製法を見いだすと共に、ベースゼオライトとしてH-ZSM-5が高い性能を持つことを明らかにした。

研究成果の報告等として以下の件数を行った。

原著論文 3件

講演等 33件

受賞 4件

ワークショップ等 9件開催

2. 研究実施体制 **公開**

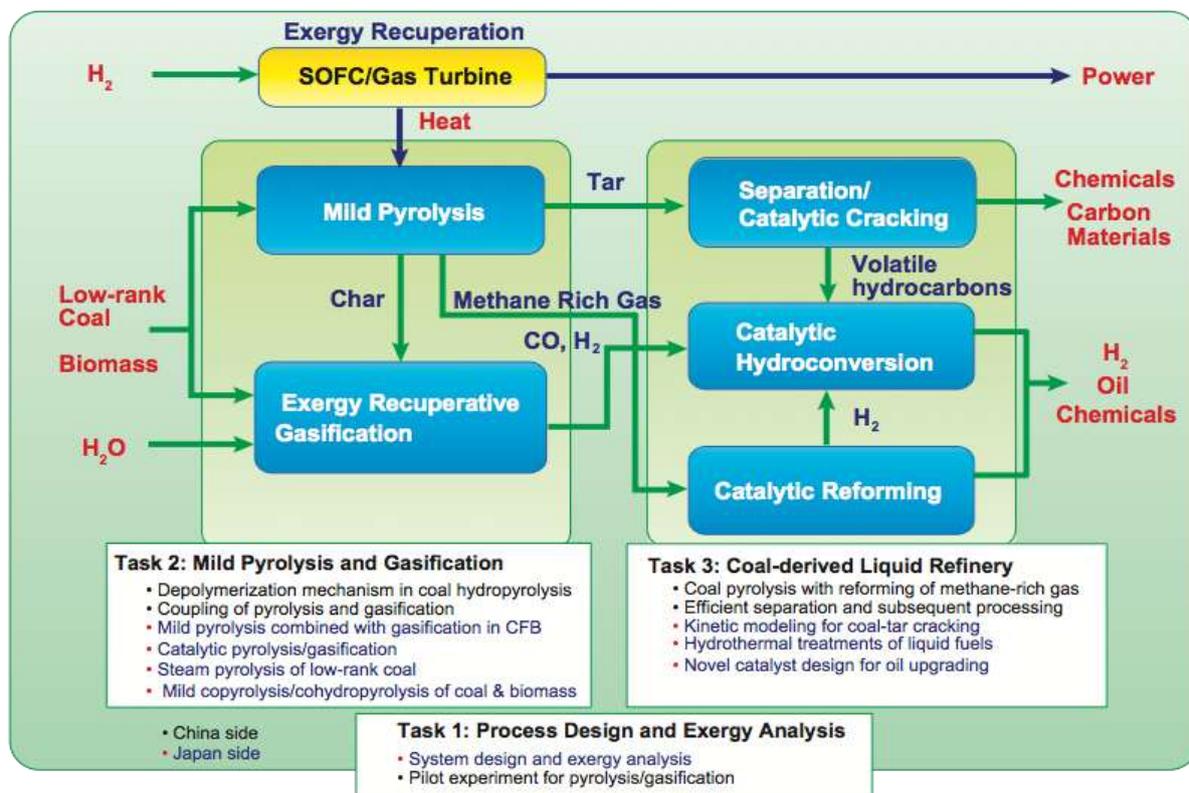
2-1. 日本側の研究実施体制

研究代表者/ 主な共同研究者	氏名	所属	所属部署	役職
研究代表者	堤 敦司	東京大学	生産技術研究所	特任教授
主な共同研究者	伏見 千尋	東京農工大学	大学院工学研究院	准教授
主な共同研究者	鈴木 善三	産業技術総合研究所	エネルギー技術研究部門	グループ長
主な共同研究者	松岡 浩一	産業技術総合研究所	エネルギー技術研究部門	主任研究員
主な共同研究者	宝田 恭之	群馬大学	理工学研究院	教授
主な共同研究者	官 国清	弘前大学	北日本新エネルギー研究所	准教授
主な共同研究者	鷹嘴 利公	(独)産業技術総合研究所	エネルギー技術研究部門	グループ長
主な共同研究者	Atul Sharma	(独)産業技術総合研究所	エネルギー技術研究部門	主任研究員
主な共同研究者	森本 正人	(独)産業技術総合研究所	エネルギー技術研究部門	主任研究員
主な共同研究者	Qingxin Xheng	(独)産業技術総合研究所	エネルギー技術研究部門	産総研特別 研究員
主な共同研究者	則永 行庸	九州大学	先導物質化学研究所	准教授
主な共同研究者	米山 嘉治	富山大学	大学院理工学研究部(工学)	准教授

2-2. 相手側の研究実施体制

研究代表者/ 主な共同研究者	氏名	所属	所属部署	役職
研究代表者	黄偉	太原理工大学	石炭化工研究所	教授
主な共同研究者	高士秋	中国科学院	プロセス工程研 究所	教授
主な共同研究者	郝曉剛	太原理工大学	化学工学学院	教授
主な共同研究者	马淞江	湖南科技大学	化学工学	教授
主な共同研究者	朱愛民	大連理工大学	プラズマ物理化 学研究室	教授
主な共同研究者	胡浩全	大連理工大学	石炭化工研究所	教授
主な共同研究者	魏賢勇	中国鉱業大学	化学工学専攻	教授
主な共同研究者	水恒福	安徽工業大学	化学工学専攻	教授
主な共同研究者	馬曉迅	西北大学	化学工学専攻	教授

2-3. 両国の研究実施体制



タスク	日本側	中国側
1	System design and exergy analysis (東京大学・堤敦司)	Pilot experiment for pyrolysis/gasification (中国科学院、プロセス工程研究所・高士秋)
2	Mild pyrolysis combined with gasification in CFB (産総研・鈴木善三、松岡浩一) Catalytic pyrolysis/ gasification (群馬大学・宝田恭之) Steam pyrolysis of low-rank coal (東京農工大学・伏見千尋) Mild copyrolysis/cohydrolysis of coal & biomass (弘前大学・官国清)	Depolymerization mechanism in catalytic coal hydropyrolysis (太原理工大・黄偉、郝晓刚; 湖南科技大学・马淞江) Coupling of pyrolysis and gasification (西北大学・馬晓迅)
3	Kinetic modeling for coal/tar cracking (九州大学・則永行庸) Hydrothermal treatments of liquid fuels (産総研・鷹觜利公) Novel catalyst design for oil upgrading (富山大学・米山嘉治、椿範立)	Coal pyrolysis with reforming of methane-rich gas (大連理工大学・胡浩全、朱愛民) Efficient separation of tar and catalytic hydroconversion (中国鉱業大学・魏賢勇; 安徽工業大学・水恒福)

3. 原著論文発表 公開

3-1. 原著論文発表

① 発行済論文数

	うち、相手側チームとの共著 (※)
国内誌 0 件	(0 件)
国際誌 3 件	(2 件)
計 3 件	(2 件)

※本共同研究の相手側チーム研究者との共著に限る

1. Yuji Yoshie, Masanori Ishizuka, Guoqing Guan, Chihiro Fushimi, Atsushi Tsutsumi, “A novel experimental technique to determine the heat transfer coefficient between the bed and particles in a downer,” *Advanced Powder Technology*, 24 (2013) 487–494
(<http://dx.doi.org/10.1016/j.appt.2012.11.013>)
2. Malinee Kaewpanha, Guoqing Guan, Xiaogang Hao, Zhongde Wang, Yutaka Kasai, Katsuki Kusakabe, Abuliti Abudula, “Steam co-gasification of brown seaweed and terrestrial biomass,” *Fuel Processing Technology*, Vol120, pp106-112, 2014. (DOI:<http://dx.doi.org/10.1016/j.fuproc.2013.12.013>)
3. Yufei Ma, Guoqing Guan, Chuan Shi, Aimin Zhu, Xiaogang Hao, Zhongde Wang, Katsuki Kusakabe, Abuliti Abudula, “Low-temperature steam reforming of methanol to produce hydrogen over various metal-doped molybdenum carbide catalysts,” *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.39, No1, pp258-266, 2014 (DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijhydene.2013.09.150>)

② 未発行論文数

	うち、相手側チームとの共著 (※)
国内誌 0 件	(0 件)
国際誌 0 件	(0 件)
計 0 件	(0 件)

※本共同研究の相手国チーム研究者との共著に限る