

# 革新的褐炭・バイオマス改質技術の科学基盤

実施予定期間:平成 22 年度～平成 24 年度

代表機関:九州大学

代表者:平島 剛(炭素資源国際教育研究センター)

国内参画機関:

代表者:

国外参画機関:インドネシア科学院(LIPI)

代表者:Ir. Iskandar Zulkarnaen (Research Centre for Geotechnology)

## I. 概要

褐炭とバイオマスは高含水率の低品位炭素資源であるが、いずれもインドネシアのエネルギー資源戦略上、極めて重要である。本共同研究は、これらを「負物性除去、正物性強化、新物性賦与」をしつつ、無煙・高活性の低温炭化物、軽質油およびコークス・炭素材原料に統合的に改質変換する革新的プロセスの科学基盤を確立すること、さらに、改質物が次世代高効率炭素資源変換の至適原料であることを示すことを目的とする。

### 1. 共同研究の内容

インドネシアの石炭埋蔵量は 500 億トンと推定され、自国の一次エネルギー(現在のシェアは約 30%)として、また、輸出入資源としても極めて重要度が高い。しかしながら、同国の石炭資源の 58%は、含水率が 30～45 重量%と高い褐炭であり、利用に伴うCO<sub>2</sub>排出の低減のためには、省エネルギー型の乾燥技術をはじめとする改質(upgrading)が必要である。現在までに、乾燥技術、乾燥炭着火防止技術が開発され、一部は商用化しているが、改質炭の用途はボイラ、微粉炭火力に限られ、高付加価値改質炭製造技術の実現と普及が国家戦略上の課題となっている(The Indonesian Energy Policy, 2007)。インドネシアは非常に高いバイオマスポテンシャルを有することでも知られるが、未整備インフラの問題に加えて褐炭と同様に高含水率というネガティブ物性を考えると、褐炭との統合的な改質は合理性が高く、温暖化ガス排出削減に対する実効寄与も大きい。いっぽう、石炭はわが国の一次エネルギー供給の18%を占める。発電分野ではガス化複合発電、二酸化炭素回収貯留(CCS)技術が、製鉄分野では高効率コークス製造技術などの開発や実証が進むなか、長期にわたるコークス原料炭、ガス化原料炭の確保にむけた戦略が欠かせず、とくに、産炭国との連携による低品位炭の次世代高効率改質技術の開発は最重要課題の一つに位置づけられる(資源エネルギー庁, 2009)。

インドネシア褐炭は、高含水率であることを除けば、その多くが低灰分含有率、低灰分融点、高ガス化反応性等の特徴を持ち、バイオマスも同様である。これらのポジティブ物性を強化し、さらに、含水率低減のみを目的とした従来技術によっては困難である、特別の物性を賦与する改質技術をわが国とインドネシアが共同で確立できれば、これが両国にもたらす益は顕著であると期待される。

詳細は次項に述べるが、本共同研究では、褐炭とバイオマスと比較的低温で熱分解し、高ガス化反応性無煙炭(tar-free active char = TFAC)を製造、同時に発生するタール蒸気を熱分解炉下流で褐炭と接触させ、重質油を脱水促進剤・自然着火防止剤・可塑剤として選択的に収着し、これにより褐炭をコークス原料炭(brown-coal/biomass derived coking coal; BCBCC)へ改質、さらに、副生する軽質油(ナフサ・軽油相当)を高品位燃料あるいは水蒸気改質原料とする次世代の褐炭・バイオマス共改質プロセスの科学基盤を確立する。TFAC

は、タールフリー、触媒となる金属種の濃縮という二つの新物性を活かした画期的な低温ガス化を可能とする。また、BCBCC 製造プロセスはこれまで存在しない。提案改質プロセスは、熱分解時のタール発生量が多い農業系・林業系バイオマスを取り込むことによる相乗効果を発現させることができる。

本共同研究では、以下の目標を達成するための試験研究およびプロセスシミュレーション研究を実施する。本研究は、インドネシア産褐炭・バイオマスの革新的改質・転換スキームを実現に向けて、それに不可欠である褐炭・バイオマス改質および利用スキームに含まれる改質炭ならびに各種生成物のスペックとプロセス条件の関係を明らかにすることを目標とする。

具体的には、以下の個別目標を掲げて本研究を推進する。

- (1)省エネ水熱脱水法:非蒸発型の水熱処理によるバイオマス・褐炭の低含水率化と水溶性有用有機化合物の取得の実証。
- (2)マイルド熱分解:TFAC 製造可能な熱分解条件(温度履歴)範囲の提示。
- (3)BCBCC 製造:熱分解・タール収着条件と BCBCC および軽質油の収率・物性との関係解明、沸点+350° C 成分選択収着実証。
- (4)TFAC ガス化:生成ガス反応系出口温度<700° C、グロス冷ガス効率>95%の水蒸気・酸素ガス化の実験室規模実証。
- (5)BCBCC, TFAC 炭化:生成コークスに対するタール収着、成型および炭化条件の複合影響解明、単味コークス化実証、重質油からの高機能バインダ製造の実証、高比表面積炭化物製造の実証。

上記個別目標に対して、以下の7項目(①～⑦)の実験・シミュレーション研究を実施し、最終的に全体システムを提案することによって全体目標を達成する。さらに、全体システムを想定したフィージビリティ調査研究(現地調査を含む)も実施する。

タスク①:非蒸発型省エネ水熱脱水法の開発(上記(1)に対応)○褐炭およびバイオマスの水熱処理試験および生成物物性の評価

タスク②:マイルド熱分解・重質油収着および BCBCC・TFAC 製造プロセスの開発((2)に対応)

タスク③:TFAC ガス化プロセス開発((4)に対応)○基礎ガス化試験(速度解析)および水蒸気・酸素ガス化試験

タスク④:水熱脱水処理、マイルド熱分解において生じる水溶性有機物からの有用物質回収((1)(2)に対応)○吸着、溶剤抽出法などによる有用化学物質の直接回収、○水熱接触改質法による有用化学物質ならびにクリーンガス合成

タスク⑤:褐炭、バイオマスおよび BCBCC の成型・炭化プロセスの開発((5)に対応)○BCBCC の成型・炭化試験と生成コークスの物性評価、○炭化物のシリカ還元用コークスへの適性評価、重質油含有率調整 BCBCC、○TFACを原料とする電池負極材料の調製

タスク⑥:マイルド熱分解により生成する重質油の改質と高機能化((5)に対応)○重質油の熱分解、水素化分解等による化学構造制御とバインダ性能向上

タスク⑦:プロセス・システムシミュレーション((1)～(5)に対応)○集約データを用いた要素工程の定常プロセスシミュレーション、○各プロセスの物質・熱フローダイヤグラム作成

## 2. ネットワーク構築の実現可能性

共同研究機関である LIPI とは、バイオマス、ピートおよび褐炭の水熱前処理に関する共同研究を実施している。(代表者: 平島 剛, 平成 19~21 年度)。また, tekMIRA<sup>\*1</sup> は, 本提案事業が採択, 実施された場合に, その成果に基づく実用化研究を展開する際のパートナー機関の一つであるが, 同機関とは石炭の炭化, 液化等に関する共同研究実績があり, 現在は, 本事業参画者の持田, 尹が, わが国の企業, および tekMIRA と連携して, インドネシア低品位炭の кокス化に関する調査<sup>\*2</sup>を実施中である(平成 21 年度~)。

九州大学側では, 1 年目から開始する実験研究の一部に参画する博士課程学生(平成 22 年度 九州大学総合理工学府への入学が決定済, 3 名)と研究内容について事前のコミュニケーションを行っている。新規に製作, 設置する熱分解炉等の機器は, すでに仕様の詳細と発注~納入期間(3 か月)を確認済みである。LIPI 側では, 褐炭およびバイオマス原料候補を 3 種ずつ暫定済みであり, また, 九州大学が招聘する研究者についても招聘期間中の通常業務体制に支障を生じないことを確認済みである。九州大学と LIPI は, 平成 20 年 8 月に学術交流協定を締結済みであり, 本共同研究成果の取扱いについても支障無く種々の手続きを進めることができる。

<sup>\*1</sup> インドネシア国立鉱物石炭研究開発センター  
(<http://www.tekmira.esdm.go.id>)。

<sup>\*2</sup> この調査事業には, 本共同研究が提案する改質プロセスに関連するものは含まれない。

## 3. 本制度により取組を支援する必要性

本共同研究が本制度による支援を必要とする理由は下記の 3 点である。

- (1) 本共同研究は, 一方的な技術供与ではなく, 先端技術の科学基盤構築を目指すものであり, ODA をはじめとする既存の国際協力プログラムに申請することが困難と判断される。
- (2) 本共同研究は, 産業界による主導が可能な技術開発プログラムへの数年以内の移行のための確固たる科学基盤確立を目的とする。
- (3) 本提案と類似の提案等が採択, 実施された経緯はない。

## 4. 継続性

本事業の成果が研究期間内に得られた場合, 現在の共同研究体に, 日本国内の企業(候補: 神戸製鋼, 新日鐵, 新日鐵化学, JFE ケミカル, トクヤマ, 昭和電工等), インドネシア国立機関(LIPI, tekMIRA)を加えた技術開発共同体を構成し, 両国の技術開発支援プログラムへの開発費助成を申請する。技術開発共同体参画機関については, 本研究期間内(2 年目)からその準備を開始する。代表者および共同研究者が兼任, 専任する九州大学炭素資源国際教育研究センターは, 内部に産業界との連携組織(炭素資源コンソーシアム, 本年度に発足)を形成しているため, 産学連携の取組を容易に開始できる。

## 5. 相手国・地域との政府レベルでの協力関係の強化・構築への発展性

The Indonesian Energy Policy(2007)には, 自国が持つ低品位炭の有効な開発と改質を含む効率の利用が資源政策の中でも重要であることが示されている。いっぽう, 同国ではバイオマス燃料に対する補助金がこの 2 年間に 2 倍に増額され, これは, 政府の関心の高さを示す事例である。本共同研究が提案するシステムは, できれば集中的, 効率的にバイオマス(特に固体資源)を利活用したい, という同国のニーズに答えるものであり, 低品位炭の有効利用を駆動する技術であることも無論である。現在インドネシアにおいては, UBC, K-fuel,

Syncoal 等の脱水, 加熱前処理プロセスがわが国や欧米諸国の技術供与によって実証(一部は商用)段階にあるが, そのいっぽうで, 石炭需要が急増するインドなどへ「多量の水分を含むまま」輸出されている。このような状況を打破するには, 低品位炭を従来技術によるよりも高付加価値の原料へと改質する技術の導入が必要である。

わが国では, 石炭ガス化複合発電が実証段階にあり, 国産ガス化技術の国際マーケットへの進出が始まろうとしているが, 世界的に設備容量が増大しているガス化の技術をわが国がリードしてゆくためには, 既存技術を効率で圧倒的に凌駕するガス化法の確立が必要(Cool Earth- エネルギー革新技術計画, 2008)であり, それは, 石炭資源の確保の観点からも極めて重要である。他方, コークス原料炭の長期の確保が急務であることは, 前述した通りである。本提案技術は, インドネシアとわが国の双方に益をもたらす技術の一つとして両国の協力関係強化に資すると期待される。

本共同研究実施期間終了時点の目標は, 冒頭に述べた大目標達成に相違ないが, これは言い換えれば, 産業界との連携による技術開発に必要な十分な科学基盤を確立した状態である。その後の目標は, 4. 継続性に述べた通りである。

## 6. 生命倫理・安全面への配慮について

本共同研究は本項目の記述対象に該当する内容を含まない。

## 7. 研究実施体制

研究手法, 知識および成果の共有化を実効的なものとするため, 褐炭・バイオマス原料の現地調達(LIPI 担当), 九州大学での試料調製を除いたすべての研究タスク①~⑦について, インドネシア科学院の研究者を九州大学に一定期間招聘して共同で実験研究を実施する。さらに, 年 1 回の全体会合を日本あるいはインドネシアにて開催し, 知財に関する事項を含めた種々の確認を行う。研究資金の適切な配分と執行については, 事務局と代表者の定期的な打ち合せに加えて, 進捗状況を九州大学炭素資源国際教育研究センターの運営委員会において定期的に報告し, 学内第三者からの評価, 改善のアドバイス等を受ける。

## 8. 各年度の計画と実績

### a. 平成 22 年度

#### (1) 計画

共同研究者の緊密な連携によって前記研究タスクのうち①~⑥を実施する。

(a) タスク①: 現有設備に加えてボンベ式熱量計(発熱量測定装置)およびカールフィッシャ水分計を新規導入し, 褐炭およびバイオマスの水熱処理プロセスを実験的に検討し, 処理操作条件と改質原料(低水分原料), 水溶性有機物および低級ガス収率の関係, さらに, 改質原料の諸物性との関係を明らかにする。

(b) タスク②: 現有設備と新規導入の重質油収着装置を組み合わせるマイルド熱分解・重質油収着プロセスを実験的に検討する。熱分解と重質油収着条件の最適組み合わせによって重質油の捕捉, 軽質油の選択的排出, TFAC および BCBC の同時製造が可能であることを示す。

(c) タスク③: クラスタ用 PC および GPGPU 計算機を新規導入し, TFAC 粒子移動層からなるガス化反応器のシミュレータを構築する。粒子移動層における TFAC ガス化を実験的にも模擬検討し, ガス生成特性を新規導入の赤外線式ガス分析装

置等を用いて調べ、ガス化基本特性を明らかにする。

(d) タスク④:マイルド熱分解および水熱処理において発生する有機物含有水を新たに調製する炭素ベース触媒を用いて接触改質し、有機物の亜臨界水における迅速改質、ガス化を明らかにする。

(e) タスク⑤:BCBCC、褐炭、バイオマスの炭化試験を行い、炭化物の諸物性検討によって高性能炭化物(コークスならびに電極材料)調製のための必要条件と成型等の前処理条件を系統的に調べる。

(f) タスク⑥:褐炭、バイオマスの熱分解によって得た重質油等をクラッキング、水素化熱分解等によって改質し、粘結材(バインター)としての性能向上に必要な条件を見出すための評価試験・分析を実施する。

## (2)実績

(a) タスク①:インドネシア産褐炭とバイオマスの水熱処理により、炭素含有量 70%以上の高発熱量改質物が得られることを示すとともに、処理温度の上昇に伴う平衡含水率の低下、芳香族炭素分率の増加など、改質物物理・化学物性と処理条件の関係を明らかにした。さらに、ココナッツシェル等のバイオマス適切な条件下で処理して得られる水相中には、フルフラールや HMF 等の高付加価値化学原料が常法で回収可能な高濃度で含まれることも明らかにした。

(b) タスク②:褐炭、バイオマスをそれぞれ 600℃、450~550℃をピーク温度とするスクルーコンベア反応器における熱分解に供し、無煙化チャー(TFAC)を連続製造することに成功し、同時に生成する軽・重質油、ガス等の収率を明らかにした。反応器下流に設置した原料粒子充填層において重質油をほぼ全量捕捉し、含酸素化合物をほとんど含まないガソリン・灯油相当の軽質油と無着色の水を選択的に取り出すと同時に重質油保持改質褐炭(バイオマス)の製造に成功した。

(c) タスク③:バイオマスのマイルド熱分解によって得た TFAC の水蒸気ガス化特性を速度論的に調査した。ガス化速度が 0 次の反応式で近似できることや活性化エネルギーが水蒸気分圧によらず約 190kJ/mol であることなどを明らかにし、ガス化速度を水蒸気分圧および温度の関数として定式化した。さらに、本式を取り込んだ移動床ガス化を対象とする反応シミュレータを開発し、炉内の温度場、濃度場、流れ場に加え、測定が困難な局所反応速度に関する知見を得た。

(d) タスク④:バイオマスの熱分解タールから水溶性有機物(原料の 12 wt%)を抽出し、水熱接触改質反応に供した。Pt 添加 Ni-炭素触媒を用いたとき、原料水中の有機炭素(濃度 10,000 ppm-C)を 99.94%ガスへと転換しつつ、水素とメタンを高濃度・高収率で得ることに成功した。熱的に自立したクリーン排水・クリーン合成ガス製造プロセスの開発の基盤となる知見を得た。

(e) タスク⑤:200℃程度の加熱を伴う簡便なバインダレス熱間成型法によってブリケットから、引張強度が 40 MPa(現行コークスの 6~8 倍)に達する炭化物を調製できることを見出した。インドネシア産のバイオマスおよび褐炭(アダロ炭)を適切な熱処理によって改質し、リチウムイオン電池用負極材としての可能性を検討した。その結果、バイオマスおよび褐炭のいずれについても、高容量でありしかも通常の電池用ハードカーボンより高い電気化学特性を持つ炭化物を調製できる改質等の条件を見出した。商業化へ向けた重要な成果を得た。

(f) タスク⑥:褐炭およびバイオマス原料の熱分解により得た重質タールの改質による粘結材製造の可能性を探索するため、多様な分析手法を用いて重質タールを分析した。バイオマス原料由来の重質タールは褐炭由来の重質タールに比べて低分子量であるにもかかわらず、高い炭化収率や熱的安定性を示し、粘結特性に優れる粘結材原料としての可能性を確認できた。

## b.平成 23 年度

前年度研究成果を踏まえ、タスク①~⑥の研究を継続して実施する。

(a) タスク①:水熱処理プロセスの実験的検討を継続する。新規導入する液体クロマトグラフシステムを活用し、改質によって発生する水中の有機物の化合物組成を詳細に調べ、有用化合物取得のための必要操作条件範囲を示す。

(b) タスク②:マイルド熱分解・重質油収着プロセスを実験的に検討する。当年度は、複数のインドネシア褐炭とバイオマスについての生成物分布を定量的に明らかにし、知見を蓄積するとともに、提案プロセスが褐炭・バイオマス種によらず適用できることを示す。

(c) タスク③:TFAC 粒子移動層からなるガス化反応器のシミュレータを改良するとともに、電気環状炉を導入して粒子移動ガス化模擬炉を作製し、移動層モードにおける TFAC ガス化特性を明らかにする。実験・シミュレーション相互のフィードバックによってターゲット情報を常に更新する。

(d) タスク④:炭素ベース改質触媒の性能を高め、発生水中有機物の完全ガス化を試みる。高効率実験のために流動砂浴を新規導入する。

(e) タスク⑤:前年度検討の結果を踏まえ、褐炭、バイオマスからの高性能コークスおよび電池電極材料、Si 還元材としての炭化物製造を実験室規模で実証する。

(f) タスク⑥:褐炭、バイオマス由来重質油の改質によって得た粘結材を適用したコークする製造を検討する。

## c.平成 24 年度

タスク①~⑥を継続するとともに、タスク⑦では、それまでに蓄積した成果に基づいて個別プロセスと全体システムのプロトタイプを提案する。

(a) タスク①:前年度研究を継続するとともに、蓄積したデータをもとにプロセスの熱・物質フローを描き、有用化学物質回収を含めた水熱処理プロセスのパフォーマンスを予測する。

(b) タスク②:前年度研究を継続するとともに、蓄積したデータをもとにプロセスの熱・物質フローを描き、マイルド熱分解と重質油収着を含めたプロセスのパフォーマンスを予測する。

(c) タスク③:前年度までに構築したプロセスシミュレータの高精度化を行い、TFAC ガス化のプロセスパフォーマンスを予測する。これに加えて、実用化に当たってクリアすべき技術課題を示す。

(d) タスク④:耐腐食・耐圧ステンレス製反応器システムを導入した接触改質試験を実施し、それまでに開発した炭素ベース触媒の性能を検証する。より温和な条件の接触改質による有

用化学物質製造の事例も示す。

種にも適用し、高性能粘結材等の製造条件を示す。

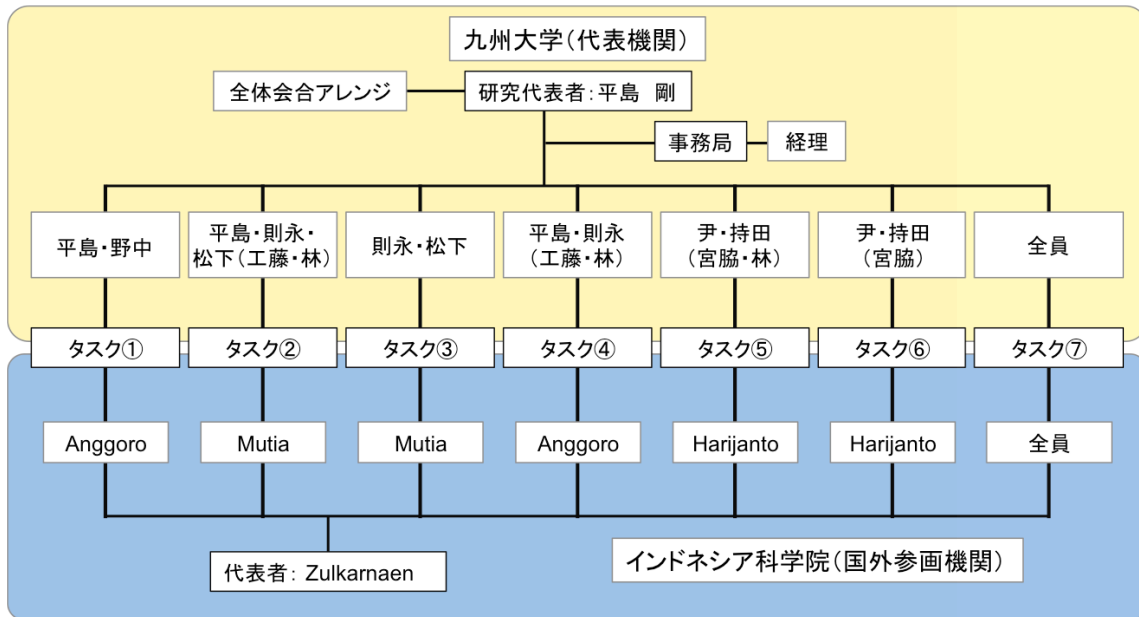
(e) タスク⑤:前年度に得た知見を未検討の褐炭・バイオマス種にも適用し、高性能炭化物調製のための前処理、炭化条件を確定するとともに、プロセス設計を実施する。

(g) タスク⑦:タスク①～⑥において得られたプロセスフローを統合し、褐炭・バイオマス改質システムの全体フリーを描く。さらに、現地調査を含めた適合性評価(フィージビリティー研究)を実施する。

(f) タスク⑥:前年度に得た知見を未検討の褐炭・バイオマス

参画研究者リスト

氏名	所属部局・職名	提案課題における役割
平島 剛	九州大学炭素資源国際教育研究センター	研究総括, タスク①②④⑦の分担
尹 聖昊		タスク⑤⑥⑦の分担
持田 勲		タスク⑤⑥⑦の分担
則永 行庸	九州大学先導物質化学研究所	タスク②③⑦の分担
松下 洋介	九州大学炭素資源国際教育研究センター	タスク②③⑦の分担
野中 壯泰	九州大学大学院工学研究院	タスク①⑦の分担
Ir. Harijanto Soetjijo	Research Centre for Geotechnology (RCG), Indonesian Institute of Sciences (LIPI)	タスク⑤⑥⑦の分担
Anggoro Tri Mursito		タスク①④⑦の分担
Mutia Dewi Yuniati		タスク②③⑦の分担
※表中の参画者に加えて、以下の3名が研究協力者として本事業に協力する。宮脇 仁(九州大学先導物質化学研究所, タスク⑤⑥), 工藤真二(九州大学炭素資源国際教育研究センター, タスク②④), 林潤一郎(九州大学先導物質化学研究所, タスク②③④)		



研究体制図

9.年次計画

研究項目	1年度目	2年度目	3年度目
(1) (代表機関・九州大学)	単位(万円) 1万円未満切り下げ		
タスク①(水熱処理)	387(設備・実験)	400(設備・実験)	200(実験)
タスク②(マイルド熱分解・重質油収着)	500(設備・実験)	200(実験)	200(実験)
タスク③(TFAC ガス化)	387(設備・実験)	400(設備・実験)	300(実験)
タスク④(水熱接触改質)	225(設備・実験)	300(設備・実験)	300(設備・実験)
タスク⑤(高性能炭化物製造)	250(設備・実験)	300(実験)	400(実験)
タスク⑥(高性能粘結材製造)	137(設備・実験)	200(実験)	200(実験)
タスク⑦(全体システム設計)			200(調査含む)
インドネシア科学院研究者の招聘 その他(代表者の共同機関訪問等)	334 80	350 150	350 150
(2) (インドネシア科学院)			
タスク①(水熱処理)	100(人件費)	100(人件費)	100(人件費)
タスク②(マイルド熱分解・重質油収着)	50(人件費)	50(人件費)	50(人件費)
タスク③(TFAC ガス化)	50(人件費)	50(人件費)	50(人件費)
タスク⑤(高性能炭化物製造)	50(人件費)	50(人件費)	50(人件費)
タスク⑥(高性能粘結材製造)	50(人件費)	50(人件費)	50(人件費)
タスク⑦(全体システム設計)			0