

# 論文の要旨

題目 超臨界水ガス化プロセスにおけるタール対策

(Countermeasures against tar for supercritical water gasification process)

氏名 和田 泰孝

本論文は、身近に存在するが有効活用されていない廃棄物「含水性バイオマス」を清浄化するとともに燃料ガスを製造する技術として期待されている「超臨界水ガス化」技術の研究・開発について、学術的な観点から重要かつ新規の知見をまとめたものである。なお、本論文では含水性バイオマスのうち食品廃棄物である「焼酎残渣」に着目した。

第1章「緒言」では、化石燃料に偏った日本の主要エネルギーの構成と先進諸国の中でも最低レベルの低いエネルギー自給率から、国内未利用資源である食品廃棄物等の含水性バイオマスの有効活用の重要性を示した。含有水分の多い含水性バイオマスは、重く腐敗しやすいなどの欠点を持ち利活用が難しい。つまり効果的なエネルギー変換技術の開発が、喫緊かつ重要な課題である。現状確立された含水性バイオマスのエネルギー変換方法としてメタン発酵が有るが、大規模設備設置に伴うスペース・遅い処理速度・発酵残渣の処理と問題点が多い事を示し、脱水・乾燥等の前処理が不要で含まれる有機物をほぼ完全に分解して燃料ガスを発生させ、かつ、処理済み排水から熱回収する事で昇温エネルギーが節約可能な、超臨界水ガス化技術に優位性が有る事を示した。しかし、多発する閉塞トラブルが本技術の実用化を阻んでおり、閉塞抑制方法等の開発が重要である事を示した。

第2章「既往の研究」では、含水性バイオマスに関する超臨界水ガス化技術について既往の研究を確認した。調査の結果から、超臨界水ガス化技術では一般的に反応温度の低下や炭素ガス化率の向上のためガス化触媒が使用され、NiやRuと言った金属触媒(400°C近辺)、活性炭触媒(600°C近辺)、アルカリなどがガス化触媒として使用されており、安価で回収可能な活性炭が超臨界水ガス化における触媒として有望である事を示した。また、実用化にあたり大型のパイロットプラントによる長時間連続ガス化試験が不可欠であるにも関わらず、これまで報告されていない事を示した。技術の実用化を阻む要因として閉塞トラブルが確認されたが、触媒充填層における閉塞は触媒懸濁スラリーによって、ガス化原料由来の無機物による閉塞は焼酎残渣等の無機物含有量が少ないガス化原料を選択し活性炭懸濁量を適正化する事で、それぞれ防止できる可能性がある事を示した。また、オカラの水素発酵残渣の超臨界水ガス化において活性炭使用による炭素ガス化率の向上が報告されており、同様に発酵残渣である麦焼酎残渣においても炭素ガス化率が向上してタールやチャーの生成が抑制される可能性が示唆された。これらから、活性炭を適正量ガス化触媒として懸濁する活性炭懸濁スラリーによって閉塞トラブルの無い安定的な連続運転が可能となり、焼酎残渣の超臨界水ガス化処理実用化に目途が立つ可能性を示した。

第3章「本研究の目的」では、本研究の課題を第1及び2章から具体化した。検討の結果、(1)活性炭懸濁により焼酎残渣由来タールによる熱交換器チューブ出口部閉塞トラブルを解決する、(2)活性炭再利用時が炭素ガス化率に及ぼす影響を確認する、(3)高濃度リアルバイオマスをガス化原料として大型パイロットプラントによる長時間連続ガス化試験行い活性炭による閉塞抑制効果を確認するとともに、タール状物質の付着による二重管式熱交換器の性能低下状況を確認する、(4)超臨界水ガス化プロセスにおける粒子流動による配管内壁におけるチャー付着抑制効果を確認する、と言う四つの課題を抽出し、以降の研究の進め方を提示した。

第4章「超臨界水ガス化プロセスにおける活性炭触媒の閉塞抑制効果」では、超臨界水ガス化プロセスにおけるガス化触媒として期待される活性炭について、焼酎残渣由来タールの二重管式熱交換器チューブ出口付着による閉塞に対する抑制効果の確認を目的として、超臨界水ガス化パイロットプラント(処理容

量 1 t/d) を用い、活性炭懸濁量を変えてガス化試験を行った。その結果、ガス化原料である焼酎残渣固形分重量の二分の一の活性炭を懸濁させることにより、二重管式熱交換器チューブのタール状物質の付着による閉塞を抑制できる事、活性炭はガス化処理水中の TOC 低減に効果があること、無機物と活性炭による二重管式熱交換器アニュラス部における閉塞の懸念は少ない事を示した。

第 5 章「超臨界水ガス化プロセスにおける活性炭触媒再利用の影響」では、ガス化触媒として利用する活性炭の回収・再利用によるランニングコスト低減の可能性を検証した。その結果、活性炭再利用試験における炭素ガス化率の低下は穏やかであり、繰り返しての再利用が可能である事を示した。超臨界水ガス化における活性炭触媒の繰り返し利用特性は、まだ報告されていない。ここで得られた結果は、活性炭の再利用時の特性を示すと共に超臨界水ガス化事業における大幅な運用コスト削減の可能性を示す重要な知見と言える。

第 6 章「長時間連続超臨界水ガス化試験における熱交換器の性能低下」では、長時間の連続ガス化試験における二重管式熱交換器の熱交換性能の低下について、超臨界域・亜臨界域・常温域に分けて確認した。約 1 日の長時間連続ガス化試験を行い確認した結果、二重管式熱交換器の超臨界域においては熱通過率が大きく低下しない事を示した。また、亜臨界域及び常温域では熱通過率が徐々に低下する事を示した。なお熱交換性能低下の主原因として、亜臨界域においてはチューブ内壁の無機物付着を、常温域においてはチューブ内壁へのチャー等の付着を示した。

第 7 章「超臨界水ガス化プロセスにおける粒子流動の利用」では、超臨界水ガス化プロセスにおける内壁へのチャー等の付着抑制方法としての粒子流動の利用について、実験を行って評価した。流動媒体としてアルミナ粒子を用いた。その結果、アルミナ粒子の流動による効果でチャーの粒子径が増大し、内壁への付着が抑制された。この知見から、長時間で連続の超臨界水ガス化運転において、熱交換器チューブ内壁へのチャーの付着を抑制して熱通過率を維持できる可能性を示した。

第 8 章「結論」では、各章の結果の要約について以下の様に述べた。適量の活性炭懸濁は、超臨界水ガス化プロセスにおけるガス化原料由来のタール状生成物による閉塞抑制に効果が有る事を示し、実用化の鍵となる大型のパイロットプラントによる長時間の連続ガス化試験に成功する事で、超臨界水ガス化技術の実現性を明確に示した。また、活性炭再利用によるランニングコストの大幅な低減の可能性を示し、熱交換器のタール汚損による熱交換性能の低下状況と解決策として提案する粒子流動によるチャー付着抑制効果を併せて示す事で、含水系性バイオマスの一つである食品廃棄物「焼酎残渣」の廃棄物処理及びエネルギー変換技術としての超臨界水ガス化プロセスの実用化目途を立てた。