

Studies on Potassium-Catalyzed Pyrolysis and Gasification of Woody Biomass

サン, ハオ

<https://hdl.handle.net/2324/7363844>

出版情報 : Kyushu University, 2024, 博士 (工学), 課程博士
バージョン :
権利関係 :



氏 名	SUN HAO			
論 文 名	Studies on Potassium-Catalyzed Pyrolysis and Gasification of Woody Biomass (カリウムを触媒とする木質バイオマスの熱分解・ガス化に関する研究)			
論文調査委員	主査	九州大学	教授	林 潤一郎
	副査	〃	准教授	宮脇 仁
	〃	〃	〃	工藤 真二

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

バイオマスのガス化は、グリーン電力生産技術としてだけでなくカーボンニュートラルな水素 (H_2)、一酸化炭素 (CO) およびこれらの混合物である合成ガスを製造する技術として注目されている。現在までに開発されたバイオマス転換量が 100 t/day 未満である中小規模のガス化プロセスによる冷ガス効率 (原料化学エネルギー基準の合成ガス収率) は 60–80% に留まっており、その主因は発熱的酸化剤である酸素 (O_2) の多消費と吸熱的酸化剤である水蒸気 (H_2O) あるいは二酸化炭素 (CO_2) の消費不足である。冷ガス効率の向上には O_2 消費の低減、 H_2O あるいは CO_2 消費の増大が必要であるが、これは必然的に反応温度の低下とこれによる中間生成物 (タールおよびチャー) の残留率増大を招く。本論文著者は、高冷ガス効率と低タール・チャー残留率を両立できる熱化学再生型バイオマス触媒ガス化プロセスを提案し、概念実証した。本論文は、概念実証に至る要素研究において得られた知見をまとめたものである。

第一章では、バイオマスガス化とその初期反応である熱分解に関する既往の研究をレビューし、上述の課題を抽出しており、加えて、冷ガス効率向上のための反応温度低下とタール・チャー残留率増大のトレードオフ関係を打破するために安価で繰り返し利用が可能な触媒、とくにカリウムを適用することの重要性を提示している。

第二章では、既往の研究において提案された様々な形態のガス化反応プロセスの定常シミュレーションを実施し、原理的に得られる性能をバイオマスのガスへの完全転換、断熱反応器などの仮定のもとで評価した。その結果、バイオマスの転換を熱分解とタール・チャーの改質ガス化に二段化し、後者によって生成した合成ガスの顕熱によって前者を駆動する熱化学再生型ガス化が最も高い冷ガス効率 ($\geq 97\%$ 、ただし改質・ガス化反応器出口温度 $\leq 800^\circ\text{C}$) を与えることを述べている。

第三章では、炭酸カリウム (K_2CO_3) をガス化触媒前駆体として担持した木質バイオマスの熱分解を検討し、カリウムが高分子間の架橋反応 (脱水縮合、脱水素縮合) を促進することを見出し、 H_2O および H_2 の生成量と架橋形成量の線形関係を仮定すると K_2CO_3 担持率の増大に伴うタール生成量の低下を定量的に記述できることを明らかに

している。

第四章では、熱分解によって生成したカリウム担持チャーの CO_2 によるガス化速度論を検討し、カリウムの触媒活性がガス化進行時のカリウム濃度上昇に伴って増大すること、増大の傾向と程度がガス化開始時のカリウム濃度に依存することを初めて明らかにし、それらカリウムクラスターの生成機構によって説明している。さらに、本章と第三章の知見を総合し、バイオマスへの最適カリウム担持率を 1 mol-K/kg-原料 とすることを提案している。

第五章では、熱化学再生型ガス化反応系（酸化剤； $\text{O}_2\text{-CO}_2$ ）を模擬した熱分解・改質ガス化二段反応器においてカリウム担持バイオマスを連続的にガス化する試験を実施し、バイオマス炭素転換率 = 100%、冷ガス効率 > 94%、残留タール濃度 < $10 \text{ mg/Nm}^3\text{-dry-gas}$ 、CO 収率 > 94%、副生炭化水素収率 < 3%を同時に達成したことを述べている。

第六章では、改質ガス化炉からのチャー連続抜き出し、水洗によるチャーからのカリウム回収、バイオマスへの担持およびチャーへの再担持から成るプロセスを熱化学再生型ガス化反応系に導入して連続ガス化試験を実施し、冷ガス効率の更なる向上（96%）と残留タール濃度の更なる低減（< $1 \text{ mg/Nm}^3\text{-dry-gas}$ ）に成功しており、その主たる理由がリサイクルしたカリウム担持チャーによる熱分解時のタール分解促進であると結論している。

第七章は、第二章～第六章に述べた新知見をまとめるとともに、本論文によって熱化学再生型ガス化を概念実証できたことを結論している。

以上要するに、本論文はバイオマスの熱化学再生型触媒ガス化による高冷ガス効率・低残留タールの同時実現を概念実証したものであり、反応工学的価値が高い。よって本論文は博士（工学）の学位論文に値すると認める。