

Environment Research and Technology Development Fund

## 環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

3RF-1801 マイクロ波加熱を利用した未利用バイオマスの  
高速炭化システムの開発  
(JPMEERF20183R01)  
平成30年度～令和2年度

Development of Rapid Carbonization System of Biomass  
Using Microwave Heating

<研究代表機関>  
研究代表機関 東京工業大学

## ○図表番号の付番方法について

「Ⅰ. 成果の概要」の図表番号は「0. 通し番号」としております。なお、「Ⅱ. 成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。

「Ⅱ. 成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号. 通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和3年5月

目次

I. 成果の概要	・・・・・・・・・・	1
1. はじめに（研究背景等）		
2. 研究開発目的		
3. 研究目標		
4. 研究開発内容		
5. 研究成果		
5-1. 成果の概要		
5-2. 環境政策等への貢献		
5-3. 研究目標の達成状況		
6. 研究成果の発表状況		
6-1. 査読付き論文		
6-2. 知的財産権		
6-3. その他発表件数		
7. 国際共同研究等の状況		
8. 研究者略歴		
II. 成果の詳細		
II-1 マイクロ波加熱を利用した未利用バイオマスの高速炭化システムの開発 （国立大学法人東京工業大学）	・・・・・・・・	16
要旨		
1. 研究開発目的		
2. 研究目標		
3. 研究開発内容		
4. 結果及び考察		
5. 研究目標の達成状況		
6. 引用文献		
III. 研究成果の発表状況の詳細	・・・・・・・・・・	31
IV. 英文Abstract	・・・・・・・・・・	33

## I. 成果の概要

課題名 3RF-1801 マイクロ波加熱を利用した未利用バイオマスの高速炭化システムの開発

課題代表者名 椿 俊太郎 (東京工業大学物質理工学院応用化学系  
助教)

重点課題 主: 【重点課題⑩】 バイオマス等の廃棄物からのエネルギー回収を推進する技術・システムの構築

副: 【重点課題】 非該当

行政要請研究テーマ (行政ニーズ) 非該当

研究実施期間 平成30年度～令和2年度

研究経費

(千円)

	契約額	実績額 (前事業年度繰越分支出額含む)
平成30年度	5400千円	5400千円
令和元年度	6000千円	6000千円
令和2年度	6000千円	6000千円
合計額	17400千円	17400千円

本研究のキーワード バイオマス、マイクロ波、急速熱分解、炭素材料、半導体発振器、空洞共振器

研究体制

(サブテーマ1) マイクロ波加熱を利用した未利用バイオマスの高速炭化システムの開発 (東京工業大学)

他のサブテーマはない。

研究協力機関

研究協力機関はない。

### 1. はじめに (研究背景等)

林地残材や農業残滓などのリグノセルロースや、食品廃棄物といった地域の未利用バイオマス資源は、バイオマス発電燃料や機能性材料として利用の促進が期待される。例えばヤシガラなどのバイオマスに由来する炭素材料 (バイオマスチャー) はすでに活性炭として広く利用されているが、燃料電池の電極材料や触媒として利用可能な黒煙やグラフェンといった高機能炭素材料化を図ることにより、バイオマスの新たな利用方法を開拓することができる。

近年、太陽光や風力発電の普及に伴い、変動が大きく貯蔵が困難な再生可能エネルギー電力を化学品として変換する産業プロセスが期待される。持続可能な開発目標 (SDGs) においても、クリーンなエネルギーの利用の推進が目標に掲げられている。マイクロ波加熱は変動の大きな電力に合わせて瞬時に駆動して被加熱物質を目的温度に急速加熱することで、オンデマンドでの物質生産が可能とな

る。バイオマスチャーはバイオマスの熱分解反応により生成するが、含水量が高く熱伝導性の悪いバイオマス資源を500-700℃の高温で反応するため、エネルギー効率が極めて低い。そのため、従来の急速熱分解法では、バイオマスの微粉末化や十分な乾燥などのエネルギー消費量の大きな前処理が必要であった(図0.1、外部加熱)。マイクロ波加熱を用いることにより、バイオマス内部から直接加熱し、低温・短時間・省電力でバイオマスチャーの製造が可能となる。既存のマイクロ波を用いたバイオマスの熱分解反応では、反応低温化や配管内部のタール閉塞の防止などの利点が報告されており、中国などではマグネトロン式の高出力マイクロ波装置を用いた活性炭製造などが行われている。一方、従来のマイクロ波装置では、マグネトロン電源が大きく重いことや、電界強度が低い、消費電力が大きい、マグネトロン電源の寿命が短いなどの課題があった。さらに、バイオマスのマイクロ波吸収性が低いため、活性炭などのマイクロ波吸収性材料を加える必要がある。この場合、マイクロ波吸収材からバイオマスへの伝熱により加熱されるため、依然として昇温速度は十分に速いとは言えない(図0.1、マイクロ波(従来法))。

これまでの化学反応用のマイクロ波装置は発生装置としてマグネトロンを使用してきたが、近年、パワーデバイス技術の向上により半導体型発振器が利用可能となってきた。半導体発振器を用いて高精度空洞共振器に電磁波照射した場合、照射したエネルギーが高効率で被加熱物質に伝搬され、強電界を印加することが可能である。これらの半導体発振器を用いた精密な電磁波制御工学技術を取り入れることで、マイクロ波の強電界をバイオマスに与え、バイオマスの直接加熱による「超」急速な熱分解による炭素化が達成されると期待される(図0.1、マイクロ波(半導体))。バイオマスの直接加熱を促すことで、律速となる熱媒体からの熱伝導を回避するとともに、反応場となるバイオマスは高温に維持しつつも、周囲のキャビティは室温に保つことができる。半導体発振器を搭載することで、小型で可動式のマイクロ波装置とすることが可能であり、効率的にマイクロ波エネルギーを供給することで、消費電力も抑えることができる。また、高速な加熱(高速起動)と、マイクロ波の停止による急速な冷却が可能であり、電力の変動に合わせた運転が可能である。たとえば、再生可能エネルギー由来の電力をもとに駆動し、貯蔵が困難な電力をもとにして、未利用のバイオマス資源から貯蔵可能な有用炭素化合物を迅速かつ省エネルギーで製造することができると期待される。

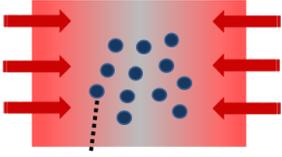
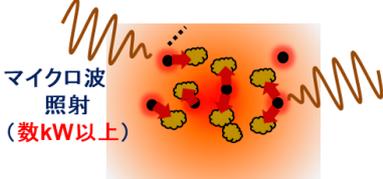
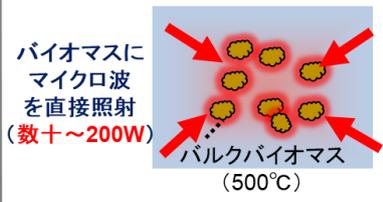
外部加熱(伝熱)	マイクロ波(従来法)	マイクロ波(半導体) 本課題
 <p>微粉碎・乾燥バイオマス</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>熱媒体との接触により加熱</li> <li>バイオマスの低熱伝導性・含水量が課題</li> </ul>	 <p>マイクロ波照射 (数kW以上)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>炭素やSiCをマイクロ波吸収剤かつ熱媒体として利用</li> </ul>	 <p>バイオマスにマイクロ波を直接照射 (数十~200W)</p> <p>バルクバイオマス (500℃)</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>バイオマスを直接加熱</li> <li>律速となる熱伝導を回避</li> </ul>
炉温度 500℃-1000℃	キャビティ温度 >500℃	反応場 500℃以上 キャビティ 室温
Slow: 0.1-1 K/s, 450-550 s Fast: 10-200 K/s, 0.5-10 s Flash: 1000 K/s, 0.5 s	10 K/min ~ 200 K/min たとえばWang et al., J. Anal. Appl. Pyrol. 119, 104-113 (2016)	1000 K/min (応募当初の開発目標)
電気炉を使用 炉体:大 消費電力:大	炉体(マグネトロン):大 消費電力:大 (可動式には不向き)	炉体(半導体):小(可動式) 消費電力:小 高速起動・停止(電力変動に強い)

図0.1, 既往の外部加熱やマイクロ波によるバイオマスの急速熱分解と、本課題での半導体発振器を用いた新手法との比較。

## 2. 研究開発目的

本研究では、半導体マイクロ波発振器と強電界集中型のシングルモード空洞共振器を用い、省電力で小型マイクロ波炭化炉を開発することを目的とした。半導体マイクロ波発振器と、強電界を試料に集中することができるシングルモード（TM<sub>010</sub>モード）共振器を用いた炭化炉を開発し、高速かつ小型・可搬型の未利用バイオマスの炭化プロセスを確立する。得られたバイオマスチャーは地域分散型バイオマス発電における固体燃料として供給する。本技術によって、地域で発生する種々のバイオマス資源の有効利用の促進に貢献する（図0. 2）。

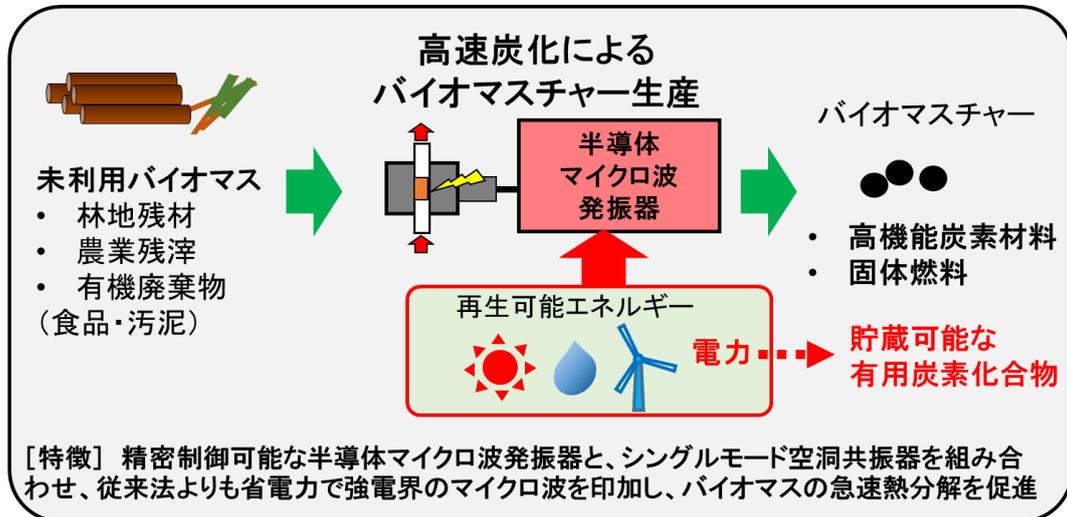


図0. 2, 本研究課題の開発目的をまとめた概要

## 3. 研究目標

全体目標	半導体マイクロ波発振器とシングルモード共振器を用いた炭化炉を開発し、高速かつ小型・可搬型の未利用バイオマスの炭化プロセスを確立する。
サブテーマ1	マイクロ波加熱を利用した未利用バイオマスの高速炭化システムの開発
サブテーマリーダー /所属機関	椿 俊太郎 / 東京工業大学
目標	炭化プロセスのフローシステム化によって、半導体マイクロ波炭化炉を用いた炭化処理効率の向上を図る。共振器内に設置した石英反応管に流通ガスを導入し、連続的にバイオマスを共振器内に導入し、炭化物を生成する。続いて、フローシステムで生成した炭化物の特性を評価する。最終的に、H30-R2で実施した項目を最適化し、省電力のマイクロ波で、バイオマスを1000℃/minで高速で炭化し、固形燃料として有用なバイオマスチャーを生成する条件を明らかにする。

## 4. 研究開発内容

本研究では、半導体発振器を用いた高効率なバイオマスの急速熱分解システムを開発するために、以下の3項目を検討した。

- 1) 半導体マイクロ波炭化炉の設計・開発
- 2) 半導体マイクロ波炭化炉を用いた各種バイオマスの炭化反応および炭化物の評価
- 3) 半導体マイクロ波炭化炉のフローシステム化

## 1) 半導体マイクロ波炭化炉の設計・開発

マイクロ波の吸収特性が低いバイオマスを、直接かつ急速に加熱するため、バイオマスのマイクロ波の強電界を供給することができる半導体マイクロ波炭化炉を設計開発した。信号発生器と半導体マイクロ波増幅器を接続し、半導体マイクロ波発振器を作製した。従来のマルチモード型のマイクロ波装置は電場が散逸しており、試料に十分にエネルギーが供給されない。一方、シングルモード空洞共振器の電場最大点に試料を配置することで、マイクロ波の電力を効率よく被照射物に伝えることができる。コヒーレンシーの高い半導体発振器によるマイクロ波照射と、高Q値のシングルモード空洞共振器を組み合わせ、低誘電損失なバイオマスの急速加熱が可能となる(図0. 3)。また、バイオマスの炭化の際には複素誘電率が大きく変化するため、急速加熱にマイクロ波の誘電加熱を用い、その後、炭素化の進行に合わせてマイクロ波磁場での誘導加熱によって、炭素純度を高めるプロセスを開発した。

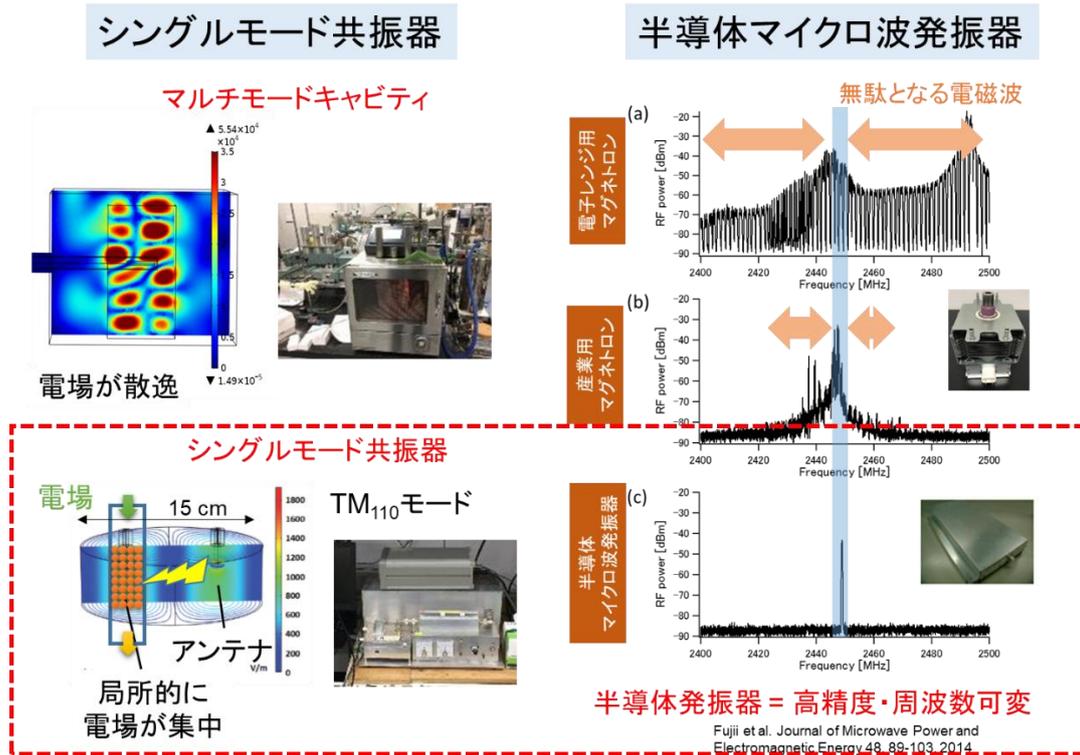


図0. 3、シングルモード共振器と半導体発振器の併用による高効率なマイクロ波加熱。電場強度を高めることができるシングルモード空洞共振器と、コヒーレンシーの高いマイクロ波を照射することが可能な半導体発振器を組み合わせることで、被照射物に高効率でエネルギーを供給できる。

## 2) 半導体マイクロ波炭化炉を用いた各種バイオマスの炭化反応および炭化物の評価

1) で作製した装置内に石英反応管を設置し、不活性ガス流通下で種々のバイオマス基質の熱分解反応を行い、半導体式マイクロ波装置の性能を評価した。生成したバイオマスチャーは、CHNS測定およびラマン測定、窒素吸着測定などにより炭化の進行を評価した。得られた結果について、通常の外部加熱などの従来法との差について、*in situ*質量分析や*in situ*共振周波数により解析し、マイクロ波照射下でのバイオマスの炭化が促進する機構を考察した。

## 3) 半導体マイクロ波炭化炉のフローシステム化

半導体マイクロ波熱分解炉のスケールアップとして、915MHzTM<sub>010</sub>モード型空洞共振器の大型化および高Q値型に改良した。さらに、磁場キャビティを用いた半炭化バイオマスのマイクロ波磁場加熱とスクリュューフィーダーを組み合わせ、原料を連続的に処理するフローシステムを開発し、処理能力の向上を図った。

## 5. 研究成果

### 5-1. 成果の概要

#### 1) 半導体マイクロ波炭化炉の設計・開発

### 1-1) マイクロ波電場加熱

バイオマスの急速熱分解マイクロ波炉として、2.45GHzおよび915MHzの周波数帯の $TM_{010}$ モード型空洞共振器および半導体発振器を搭載したマイクロ波装置を開発した(図0.4)。本装置内部にバイオマス試料を配置した石英管を通し、不活性ガス( $N_2$ やAr)流通下でマイクロ波を照射することができる。一般的なマイクロ波加熱には2.45GHz(波長:約12.2cm)が用いられるが、浸透深さが小さいことが課題である。そこで、本研究では浸透深さが大きい915MHzについても検証した。マイクロ波加熱中はスラグチューナーを用いてインピーダンス整合を行うとともに、フィールドセンサーを介したS21測定により空洞共振器内部の共振周波数を自動的に追従することで、反射電力を最小化した。反応中の温度は、石英透過型放射温度計を用いて、試料温度を直接測定した。

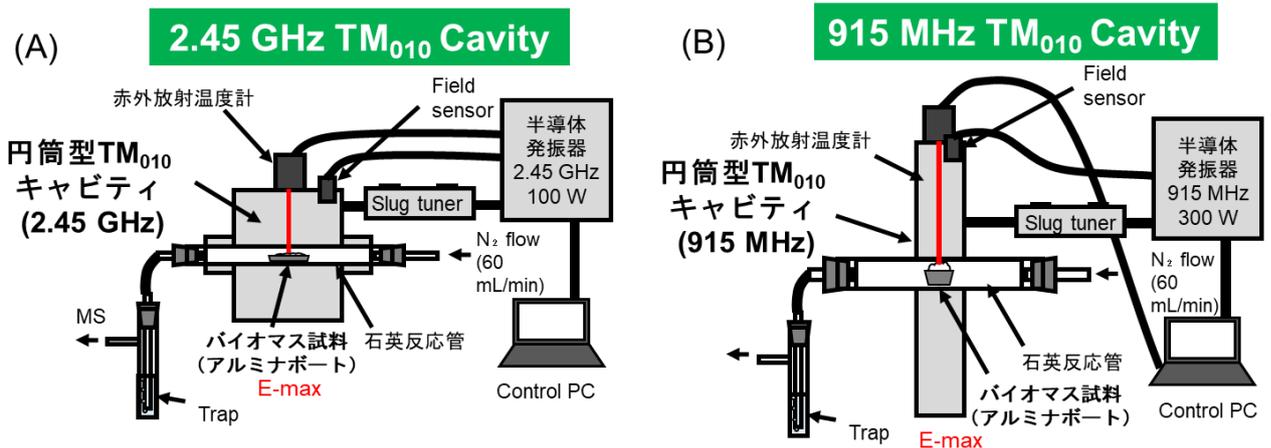


図0.4、本研究で開発した半導体式マイクロ波急速熱分解装置 (A) 2.45GHz、(B) 915MHz。

本装置を用い、まず、モデルバイオマス試料として結晶性セルロース (Microcrystalline cellulose, Sigma Aldrich) のマイクロ波加熱を行った。セルロースはマイクロ波吸収特性を示す誘電損率が0.052と低いいため市販の電子レンジでは加熱することができない。従来の導波管型のマイクロ波装置を用いた場合は、マイクロ波を吸収する物質を添加せずとも、30Wにおいて300秒程度で180°C程度まで加熱された(図0.5)。一方、本課題で開発したマイクロ波装置を用いた場合には、20秒とわずかな加熱時間で300°C以上に昇温した。一方、セルロースの熱分解も進行し被加熱物質が減少するため、それ以上の温度には昇温せず、徐々に温度は低下した。電気炉(100W)による加熱と比較した場合、マイクロ波40Wでも8倍の急速な加熱が可能であった。平均の昇温速度は960°C/minであり、当初開発目標の1000°C/minをほぼ達成した。

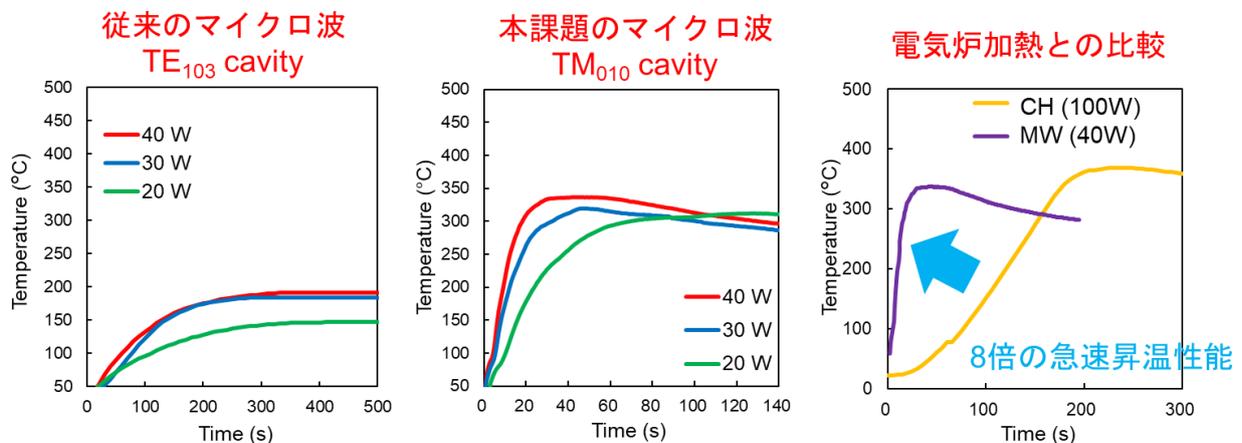


図0.5、結晶性セルロースのマイクロ波加熱特性(2.45GHz)の比較(従来のマイクロ波加熱、本課題のマイクロ波加熱、および電気炉と本課題のマイクロ波加熱の比較)

さらに、マイクロ波加熱中の共振周波数をモニタリングすることで、反応物質の分解挙動を直接観測した。空度共振器の共振周波数は、物質の誘電特性に大きく依存する。バイオマスの熱分解においては、炭素化が進行するにつれて誘電体から導体に物性が変化する。すなわち、バイオマスのマイクロ波加熱中の共振周波数から、バイオマスの炭化の状態を観測することができる。図0. 6にセルロースの加熱中の共振周波数の変化を示した。セルロースの急速加熱に伴う炭素化により、加熱開始直後に大きな共振周波数の低下が生じた。さらに、ガス化が進むと共振器内部の試料が少なくなるため、共振周波数は上昇に転じた。こうした挙動は、ネットワークアナライザを用いたS<sub>21</sub>測定からも確認された。これより、共振周波数を用いることで、バイオマスの炭素化の度合いをモニタリングしながら、マイクロ波加熱をすることができると示された。本手法を用いることによって、実プロセスに展開した場合においても、バイオマスがいつどの程度炭素化したか、共振周波数を用いて観測することができる。

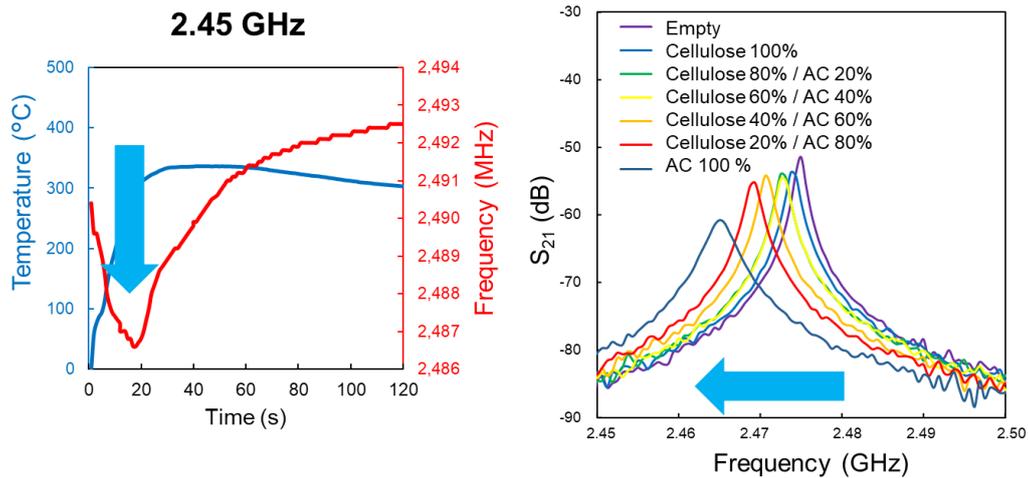


図0. 6、結晶性セルロースのマイクロ波加熱特性 (2.45GHz) 中の共振周波数の変化、および、ベクトルネットワークアナライザによるS<sub>21</sub>特性評価を用いた共振周波数変化の帰属

続いて、実際のバイオマス試料として、イナワラ粉末を用いて本装置の効果を検証した。図0. 7は2.45GHzおよび915MHzでのイナワラのマイクロ波加熱特性を示す。2.45GHzでは、周波数の自動追従が物性変化に十分に追従せず、30秒で600°Cに到達した。一方、915MHzでは滑らかな昇温挙動を示し、その最大昇温速度は330°C/secに到達した。これは、915MHzの波長が長いこと、および、用いた空洞共振器のQ値が300と低いことで、試料の物性変化に鈍感であったと考えられた。

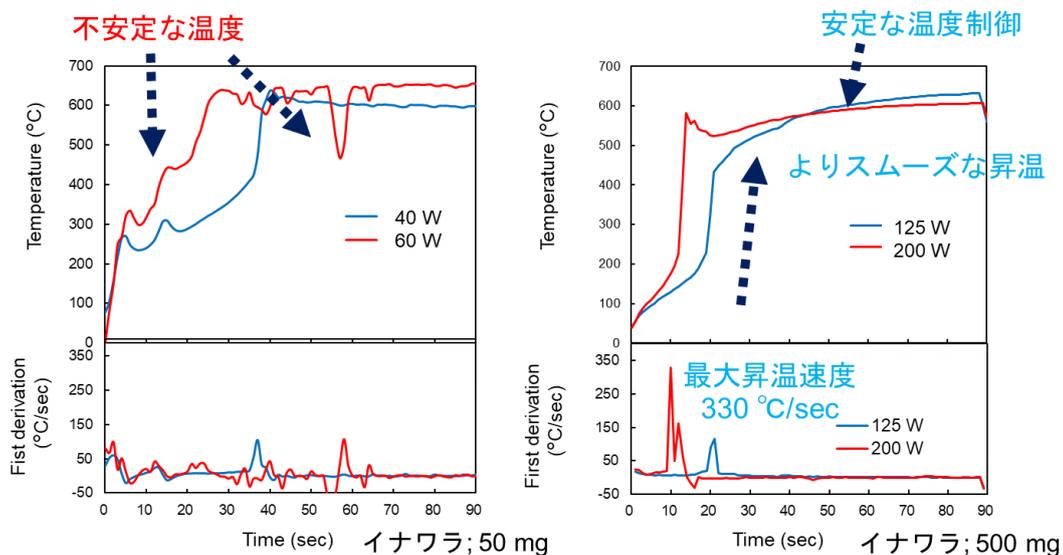


図0. 7、イナワラのマイクロ波加熱 (左: 2.45GHz、および右: 915MHz) 中の温度変化、および昇温速度。

図0. 8にイナワラの急速熱分解の様子を示した。照射開始後9秒ほどでイナワラからの水の脱離による水滴が生じた。さらに、10秒で反応ガスが生じるとともに、プラズマが点灯した。また、昇温に合わせて、急激な周波数低下が生じた(図0. 9)。S<sub>21</sub>測定から、イナワラの炭素化が進んだことで、周波数が低下したと考えられた。このことより、マイクロ波による試料の急速昇温と同時に、急激な熱分解反応が生じていることが示された。

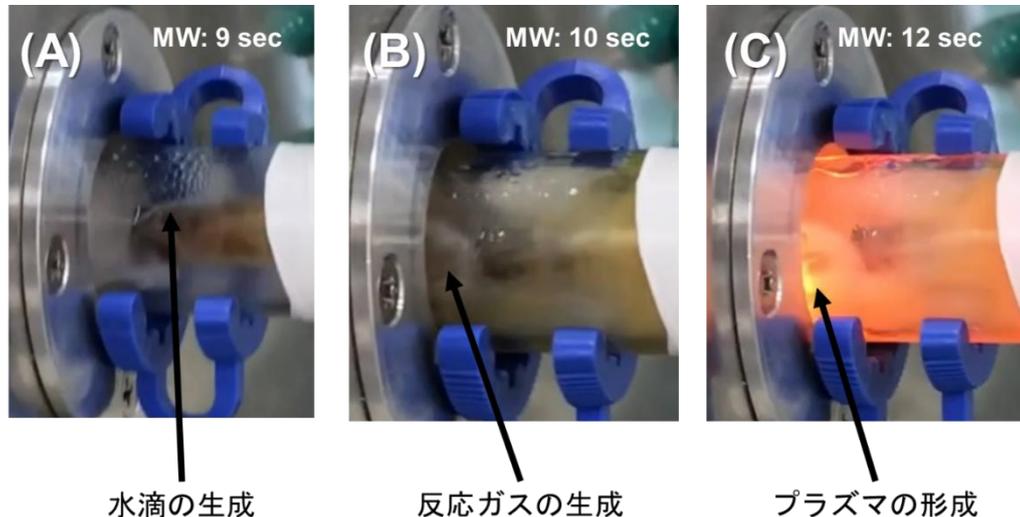


図0. 8、915MHzによるイナワラの急速熱分解の様子。マイクロ波照射開始後 (A) 9秒、(B) 10秒、(C) 12秒。

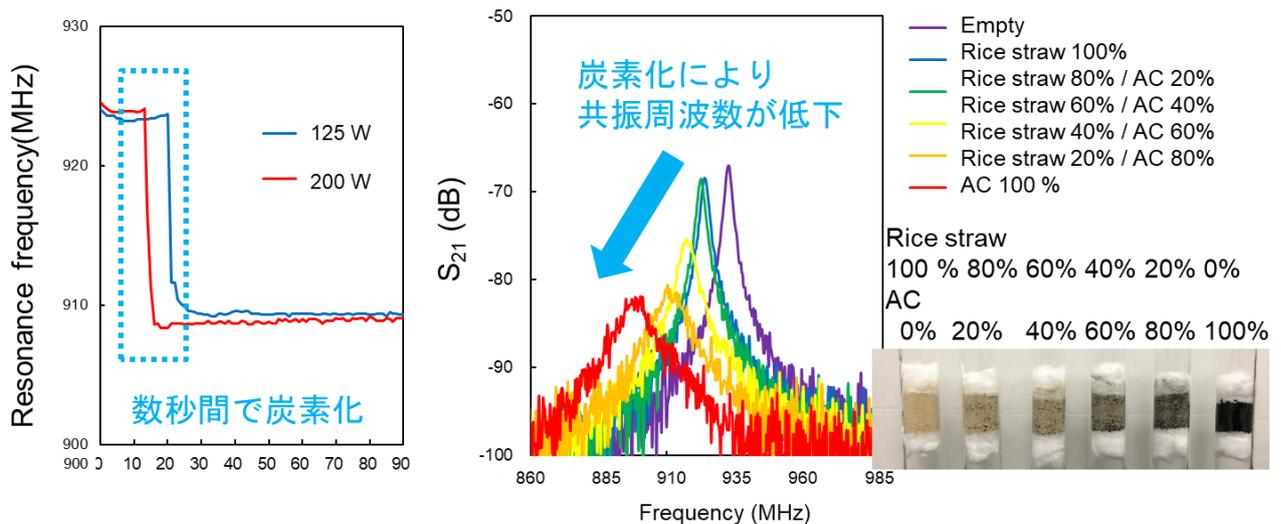


図0. 9、イナワラの急速昇温中の共振周波数の変化

一方、マイクロ波の電場で加熱した場合、バイオマスの炭素化が進み、試料の導電性が増した場合、共振周波数の追従とインピーダンス整合器だけでは反射を十分に押さえることは困難であり、300Wの入力に対して100W程度の反射が生じ、エネルギー効率が悪化した。(II. 成果の詳細 図1. 2)。また、反射電力の増大には、プラズマ形成による可能性も考えられた。一般的に、導体をマイクロ波の電場に配置した場合、マイクロ波を反射することで電場が生じなくなり、導体の加熱も生じない。そこで、炭素化した導体については、マイクロ波の磁場を用いて誘導加熱が有効であると考えられた。

## 1-2) マイクロ波磁場加熱

1-1) 項目における電場加熱型の半導体式マイクロ波装置を改良し、空洞共振器を磁場型に変更することで、炭素化した試料の誘導加熱が可能な半導体式マイクロ波磁場加熱装置(2.45GHz)を開

発した（図0.10）。磁場キャビティには $TM_{110}$ モードが立ち、中心部に磁場最大点（H-max）が生じる。915MHz（ $TM_{010}$ モード）と比較すると一回り小さいサイズとなる。また磁場加熱中は反応温度が高いため、キャビティに水冷機構を追加し、キャビティが高温になることによる反射の増大を抑える工夫をしている。

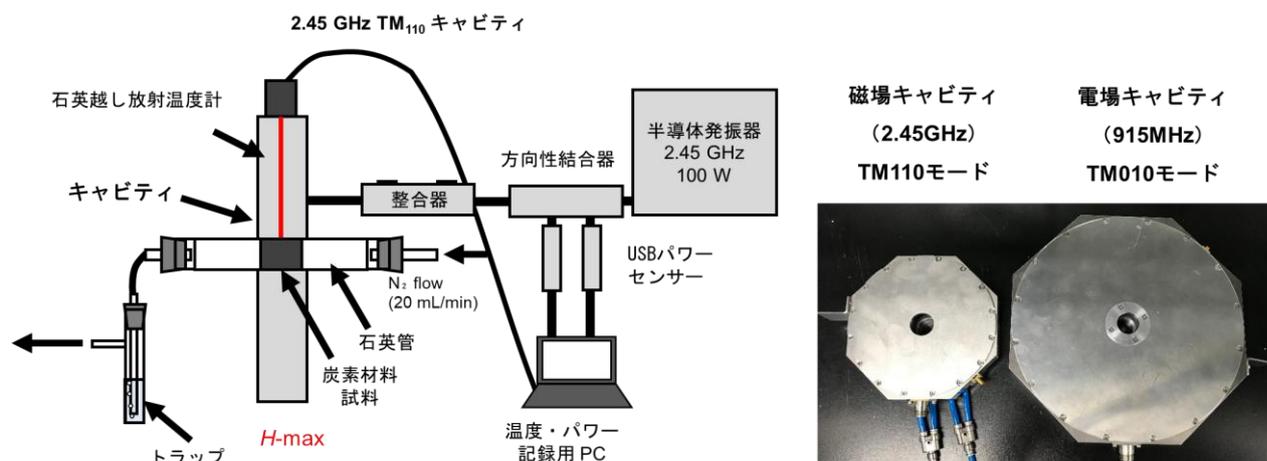


図0.10、半導体式発振器を用いたバイオマス由来炭素のマイクロ波磁場加熱装置（2.45GHz）、および磁場キャビティ（2.45GHz）と電場キャビティ（5.8GHz）の比較

上記装置により、実バイオマス試料としてタケの電場加熱（915MHz）および磁場加熱（2.45GHz）を行い、加熱挙動を比較した（図0.11）。電場では急速加熱に伴い共振周波数の低下とともに、大きな反射電力が生じた。そこで、電場で炭素化が進んだタケ試料を磁場加熱装置に入れ替えて、磁場加熱（100W）したところ、マイクロ波照射とともに急速に加熱され、反射も20-25W程度に抑えられた。

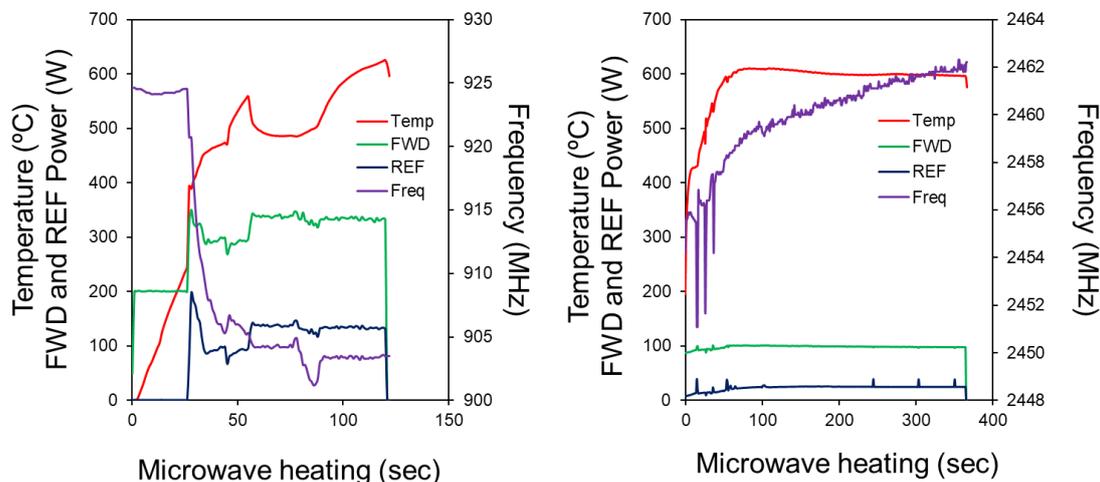


図0.11、タケの電場および磁場でのマイクロ波加熱における共振周波数、および入力・反射電力。

これらの結果より、マイクロ波によるバイオマスの急速熱分解において、まずは、マイクロ波電場において急速加熱によって原料の炭素化を誘導し、続いて炭素化の進行によって反射電力が大きくなった場合は、磁場加熱に移行することが有効であると示された。さらに、電場加熱時のバイオマスの炭素化の程度については、共振周波数をモニタリングすることで判断をすることが可能である。

## 2) 半導体マイクロ波炭化炉を用いた各種バイオマスの炭化反応および炭化物の評価

1) にて開発した半導体発振器を搭載したバイオマス炭化炉を用い、バイオマスの急速熱分解生成物を評価した。まずは、セルロースを原料として、マイクロ波（2.45GHz、電場）照射時と電気炉加熱

時で生じた熱分解ガスについて、オンライン質量分析装置によりin situ で分析した（図0. 1 2）。マイクロ波加熱では、急速昇温によって100秒程度でCOおよびCO<sub>2</sub>を主成分とするガスがそれぞれ3 mL/minおよび2 mL/min で生じ、さらに加熱を続けると水素が観測された。一方、電気炉ではガスが生じるのに300秒かかり、また、生成速度もマイクロ波と比較して1/3程度であった。これらより、半導体マイクロ波炭化炉を用いた場合には、急速昇温にともない熱分解ガスの生成速度も向上していることが示された。

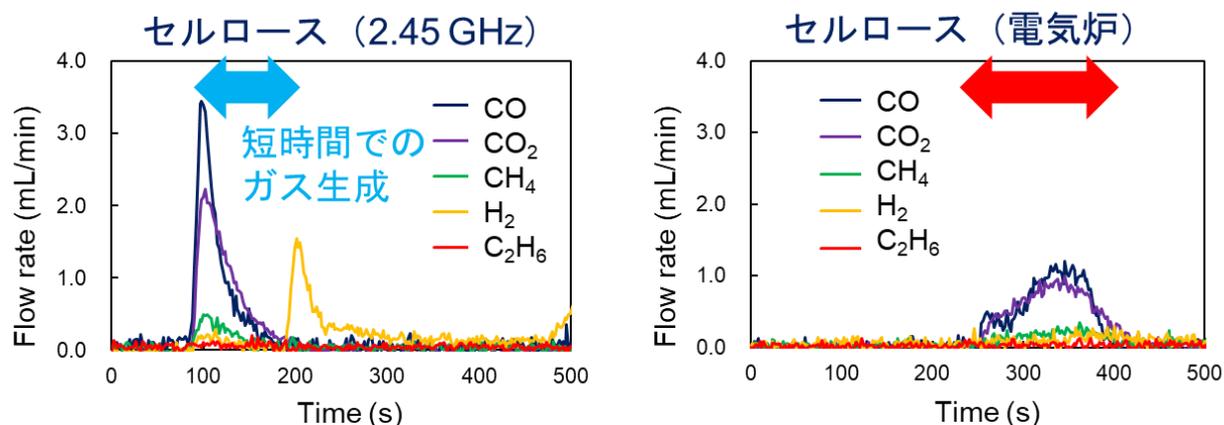


図0. 1 2、セルロースの急速熱分解によって生じたガス生成物の比較。（左）マイクロ波、（右）電気炉。

図0. 1 3に炭素化物の収率の反応時間および反応温度への依存性を示した。マイクロ波を用いた場合、電気炉と比較して炭素化物の収率が低下しており、マイクロ波がセルロースのガス化を促進していると考えられた。さらに、イナワラを原料として炭化生成物の周波数依存性を検討したところ、2.45 GHzと915 MHzでは大きな差はみられなかった（図0. 1 4）。また、マイクロ波出力を上げた場合も、炭素収率に変化はないが、FT-IRからはセルロースやヘミセルロースなどに由来する水酸基のピークが減衰しており、マイクロ波出力を上げることで、より炭素化が進行することが示唆された。

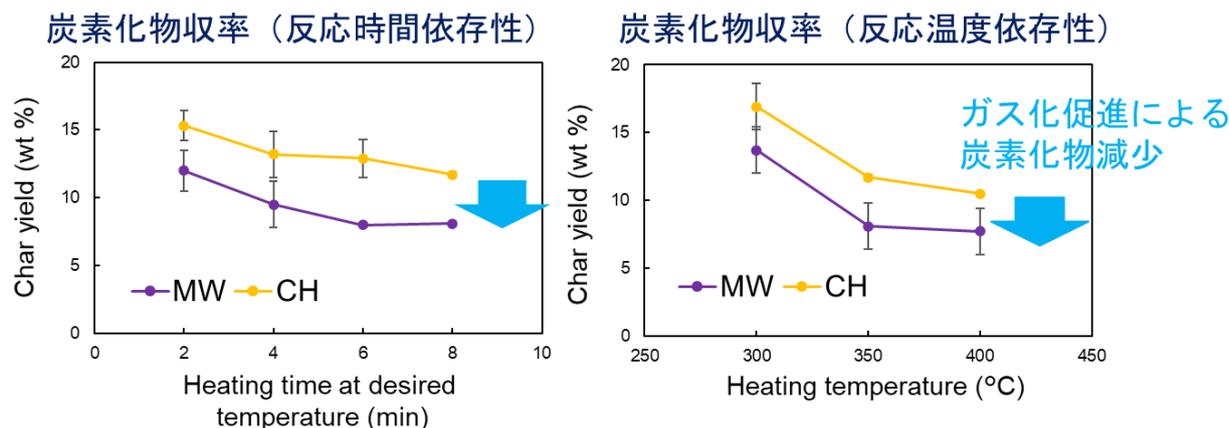


図0. 1 3、セルロースの急速熱分解によって生じた炭素化物収率の比較。（左）マイクロ波、（右）電気炉。

そこで、タケを原料として、電場および磁場加熱中の熱分解ガスの生成挙動を調べた（図0. 1 5）。電場では、急速昇温に伴い極めて高い水素の生成速度が得られ、さらにCOの生成も観測された。続いて、電場で炭化した試料について磁場加熱すると、わずかながら水素が生じた。すなわち、電場で加熱した後に磁場感熱を行うことで、電場加熱で残存したHやOを除く効果があるといえる。炭素化物中の炭素含有率は48%（タケ原料）から86%（磁場加熱後）に1.8倍に高まり、高位発熱量（HHV）も16.5MJ/kgから30.5MJ/kgに向上することができた。

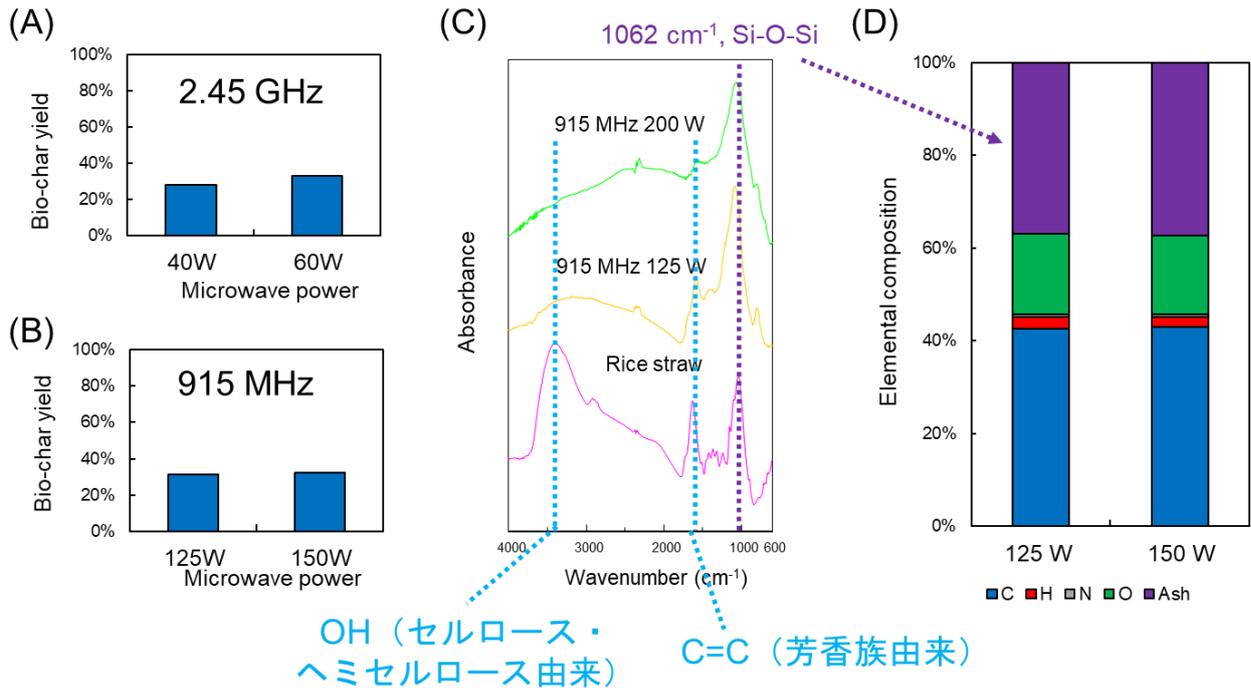


図0. 14、セルロースの急速熱分解によって生じた炭素化物の評価。(A) 2.45GHzにおける収率、(B) 915MHzにおける収率、(C) FT-IRスペクトル、(D) CHNSおよび灰分の含有率。

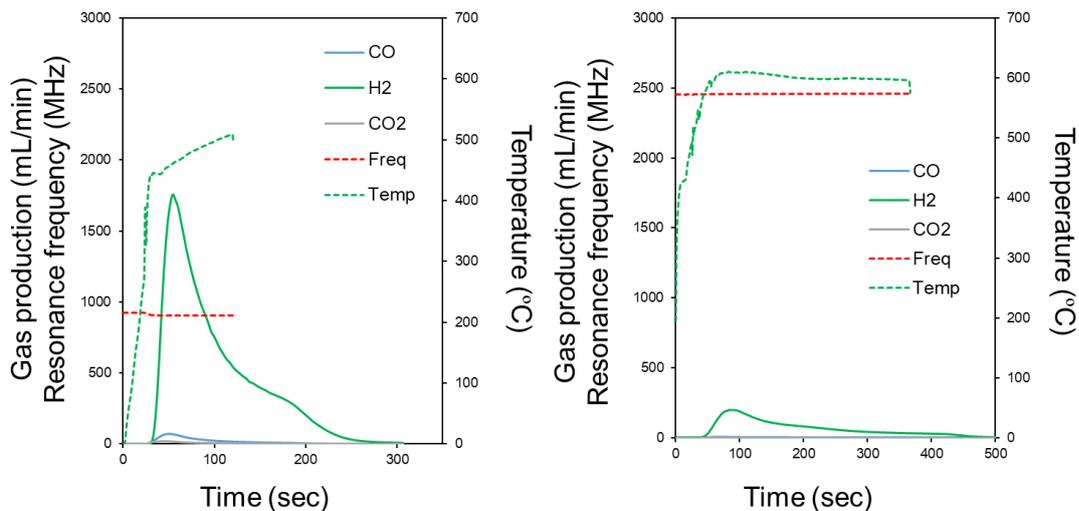


図0. 15、タケの急速熱分解中の温度変化および生成ガス。(左) 915 MHz電場、(右) 2.45 GHz磁場。

さらに、生成した炭素について、ラマン分光測定によって炭素の構造を解析した(図0. 16)。マイクロ波で電場→磁場加熱した炭素ではDバンド(欠陥由来)とGバンド(グラファイト構造由来)の比( $I_D/I_G$ 比)が1となり、電気炉で調製した炭素(0.6)と比較して1.7倍高い値を示した。また、ブロードなピーク幅からも、アモルファスな炭素が形成されていることが示唆された。こうしたピーク形状はグラッシーカーボンやカーボンブラックに近い形状であり、欠損が多く反応性の高い炭素が得られていると考えられる。また、BET測定から、比表面積は $130 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$ 程度の低い値であり、マイクロ波の急速加熱では十分な細孔が十分に発達されなかった。マイクロ波では水蒸気や熱分解生成ガスが急速に充填層から抜けていくため、生成ガスによる炭素の賦活が不十分であったといえる。細孔の発達を促すためには、生成した炭素化物を、さらに水蒸気等で賦活処理をする必要がある。

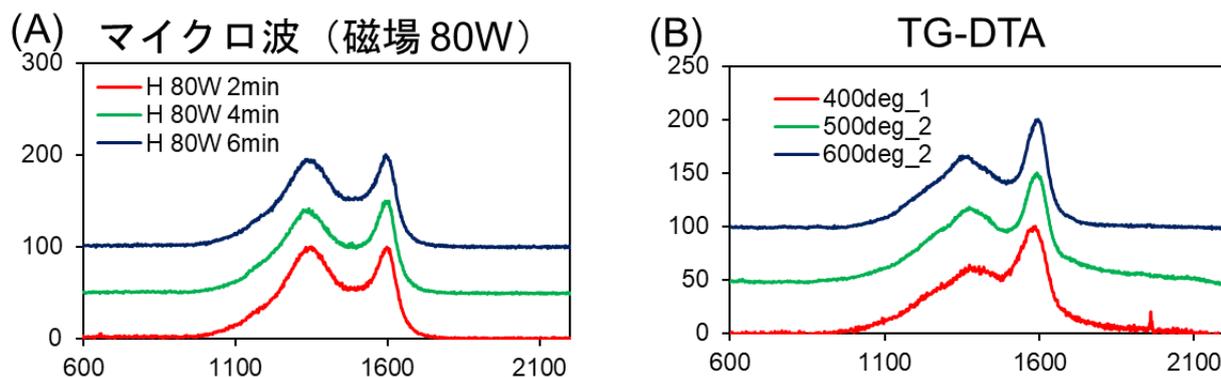


図0. 16、(A) マイクロ波加熱後（電場→磁場加熱）によって調製した炭素化物のラマンスペクトル、(B) 電気炉によって調製した炭素化物のラマンスペクトル。

### 3) 半導体マイクロ波炭化炉のフローシステム化

1)において半導体発振器搭載のマイクロ波炭化炉の開発に成功するとともに、2)においてマイクロ波炭化炉がバイオマスの急速熱分解によるガス化、およびアモルファス炭素に富んだ炭化物の形成に有効であることが示された。そこで、本装置の大型化として915MHzの大型空洞共振器を開発し、効率よくバイオマスの電場加熱が可能なシステムとした。915MHzの電場型空洞共振器 (TM<sub>010</sub>モード) のキャビティ高さを2cm (Low Q factor) から10cm (High Q factor) へと大きくすることで、キャビティのQ値が383から3086に改善した。さらに、キャビティ高が高くなることで、内部に配置することが可能な試料の量も500mgから8gへと、16倍大きくすることが可能となった。このHigh Q factor空洞共振器を用いてイナワラとスギのテスト加熱を行ったところ、特にスギの場合において昇温の立ち上がりが早まり、到達温度も200°C高くなった。

そこで、本キャビティを用いて炭化炉を組み (図0. 17)、電場加熱による大容量のタケ (8g) の炭素化を行った。High Q factor空洞共振器を用いた場合の温度プロファイルと生成物分布については、図0. 18に示した。試料量を増やした場合においても、急速昇温するとともに、共振周波数が低下し、タケの炭素化が進行していることが分かった。特に、マイクロ波開始後1分ほどで生成ガスとともにタールが噴出し、充填層下部に備えた空冷トラップにて急冷されることで容易にタール成分を回収することができた。これらのタール成分はGC-MS測定からリグニン由来の芳香族化合物が主成分であることを確認した。

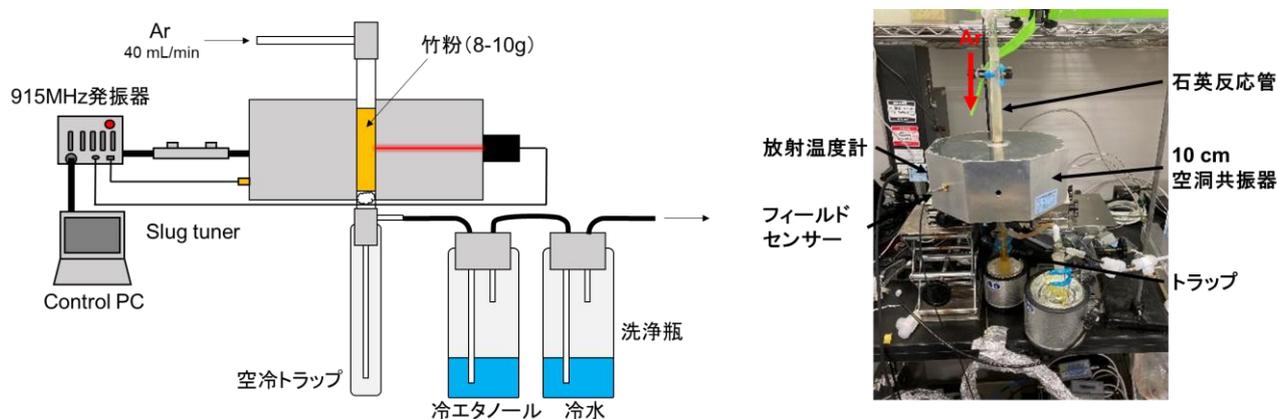


図0. 17 High Q factor空洞共振器を用いたマイクロ波炭化炉のセットアップと装置外観。

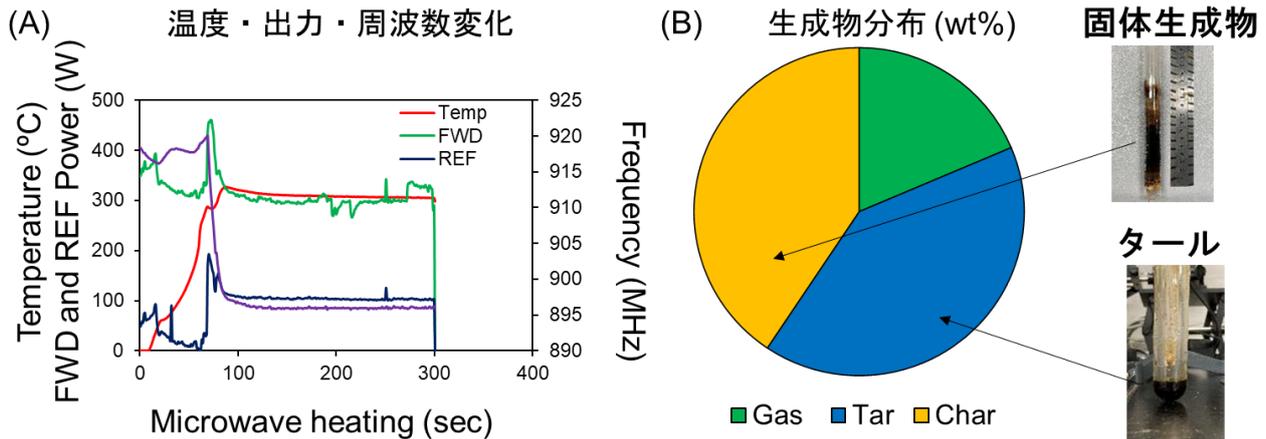


図0. 18 (A) 流通式マイクロ波加熱装置によるタケの加熱プロファイル、および (B) 生成物分布

続いて、連続でバイオマスのマイクロ波加熱を行うことが可能な、流通式装置を開発した (図0. 19)。本装置はホッパーに投入した試料をスクリーフィーダーで原料を石英反応管内部に投入するとともに、生成した炭化物をスクリーフィーダーで押し出す構造となっている。本装置を用いて、まずは、テスト加熱物として、SiCおよび活性炭の磁場加熱を行ったところ、マイクロ波出力とスクリーフィーダーの回転速度で加熱を制御することができた。

本装置を用い、まずは、電場でのタケの炭素化を試みたが、生成するガスおよび水分により試料の閉塞が生じ、連続的な処理が困難であった。そこで、電場加熱装置 (High Q factor空洞共振器) にてバッチ処理で炭素化を行い、半炭化された試料の磁場加熱に、本フロー装置を用いることとした。半炭化前処理を行うことにより、磁場加熱中に熱分解ガスやタールが大量に生成することを防ぐことができる。本装置でタケの反炭化物に対して磁場加熱を行ったところ、40分にわたって連続的かつ安定的な加熱が可能であった (図0. 20)。CHN測定およびラマン測定から、生成物として炭素含有率80%で、アモルファス構造に富んだ炭素材料が得られることを確認した。これらの結果より、High Q factor空洞共振器を用いた電場加熱で試料の大量半炭化処理を行い、その後、連続磁場加熱装置を用いて炭素純度を高めることで、原料を大容量化しても効率的にバイオマスの炭素化を行うことができることが示された。

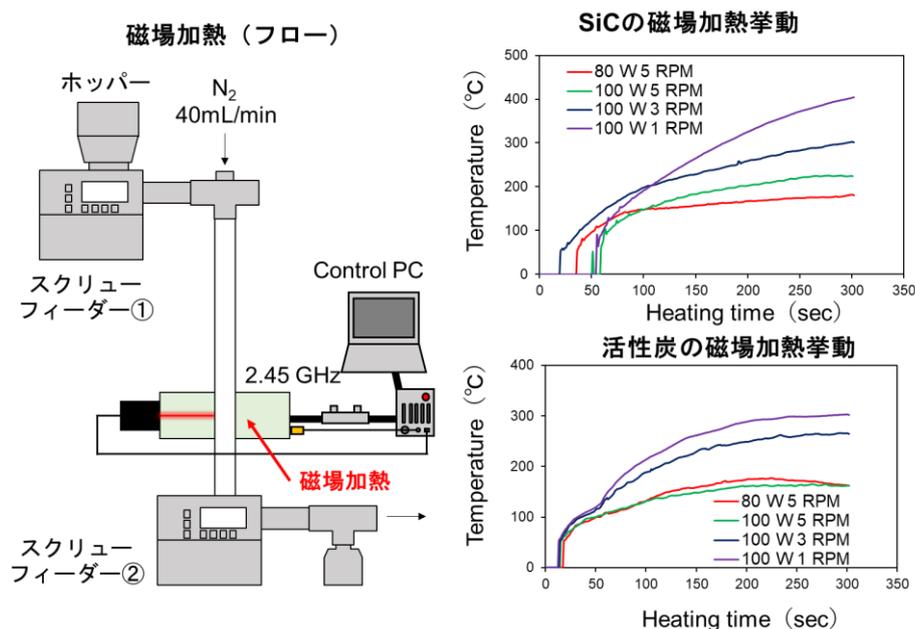


図0. 19、(A) 磁場型流通式加熱装置の概要、およびモデル化合物 (SiC・活性炭) の昇温挙動。

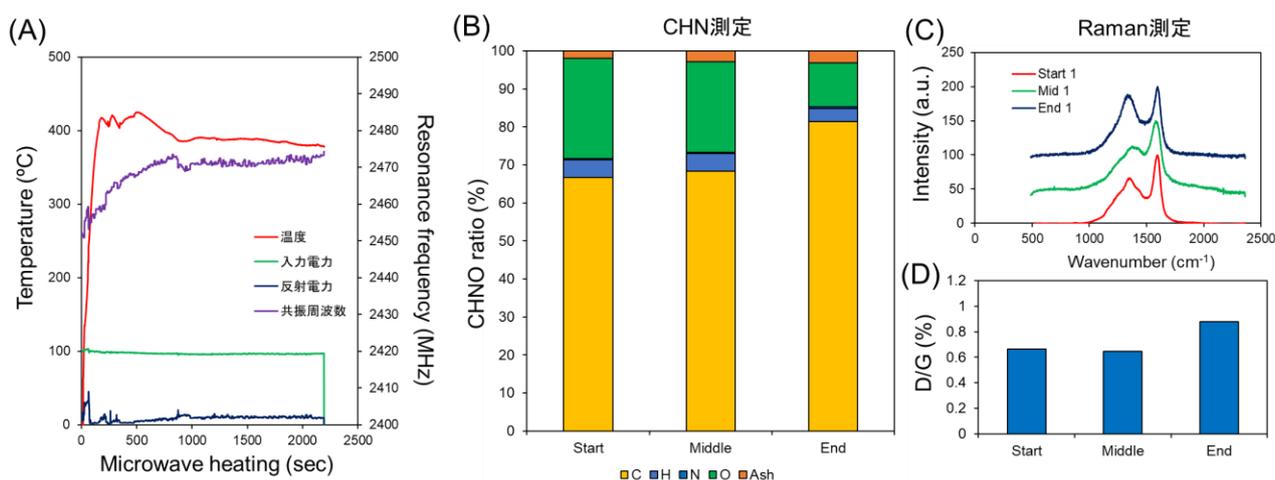


図0. 20 磁場型流通式加熱装置によるタケ半炭化物の加熱。(A) 磁場加熱プロファイル、(B) CHN含有率、(C) ラマン スペクトル、(D)  $I_D/I_G$ 比。

## 5-2. 環境政策等への貢献

### <行政等が既に活用した成果>

該当なし

### <行政等が活用することが見込まれる成果>

- ① パリ協定の締結以降、太陽光や風力などの再生可能エネルギーの重要度が高まっており、SDGsの7番目においてもエネルギー効率の高い産業プロセスへの重要性が指摘されている。一方、発電量が天候の変動に大きく影響を受けるため、電力を化学物質として貯蔵する新化学プロセスが必要となる。
- ② 既往の化学プロセスは重厚長大でスケールメリットを意図するものであったが、再生可能エネルギーを用いて駆動する化学プロセスでは、電力の変動に合わせて高速起動・停止が可能、小規模分散型、低消費エネルギーであることが求められる。
- ③ マイクロ波加熱を用いた化学プロセスは、電力をバイオマス由来の化成品として変換して貯蔵できる点において、再生可能エネルギー時代の化学プロセスのキーテクノロジーとして貢献し得る。
- ④ 本課題において、半導体式マイクロ波炭化炉を開発し、農産廃棄物（イナワラ、ムギワラなど）や草本（タケ、ヤシガラ）、木質資源（スギ）、微細藻類（クロレラ）などのバイオマスを、「超」急速に加熱し、熱分解することが可能であることを実証した。
- ⑤ 本半導体式マイクロ波炭化炉は、バイオマスの急速熱分解プロセスを短時間化し、さらに大型キャビティとフローシステムを併用して効率的に加熱処理することが可能である。
- ⑥ 高付加価値産物（竹酢液・炭素材料）や水素製造、炭素貯蔵（BECCS）へ応用が期待される。
- ⑦ 廃棄物処理装置として医療廃棄物、プラスチック廃棄物、汚泥処理などにも応用可能である。
- ⑧ 未利用なバイオマス資源の有効化を実現することにより、SDGsの12番目の持続可能な生産や廃棄物の低減や、CO<sub>2</sub>の排出削減によって13番目の気候変動への対策にも貢献し得る。

## 5-3. 研究目標の達成状況

### 1) 半導体式マイクロ波炭化炉の開発

- ① 915 MHz半導体式マイクロ波発振器とTM<sub>010</sub>モード型空洞共振器を用いることで、誘電特性の悪いバイオマス試料（イナワラ）を最大330°C/sec（19,800°C/min）で急速昇温可能であることを実

証し、当初の開発目標である1,000°C/minを大きく上回る値を得た。

- ② 半導体マイクロ波炭化炉の共振周波数の自動追従機能を使うことにより、反応中にバイオマスの  $\tan \delta$  が0.02から0.2へと10倍に変化しても共振状態を維持し、強電界のマイクロ波を印加し続けることが可能となった。
- ③ 915 MHzのマイクロ波を用いることにより、試料を大容量化することが可能となり、さらに波長が長い被照射物の誘電特性の変化に対して共振状態の維持が容易となった。
- ④ 本方法は、イナワラやバガス、ムギワラなどの農業残滓のほか、タケやスギ、ヤシガラなどのリグノセルロース、クロレラなどの微細藻類に対しても有効であることを示した。

## 2) 半導体マイクロ波炭化炉によるバイオマスの炭化反応の検証

- ① 半導体式マイクロ波炭化炉を用いて、モデルバイオマス試料（結晶性セルロース、アルカリリグニン）や実バイオマス試料（イナワラ、ムギワラ、モミガラ、クロレラ、タケ、スギ、ヤシガラ）の急速加熱によって、ガス化と炭化反応が促進することを実証した。
- ② 半導体マイクロ波装置による急速加熱では、電気炉での作製と比較して、欠損が多くアモルファスな構造の炭素が得られた。グラッシーカーボンやカーボンブラックに近い構造であり、これらの代替物としての利用が期待される。

## 3) 半導体マイクロ波炭化炉のフローシステム化

- ① 大型空洞共振器を作製し、反応試料の大容量化の両立に成功した。本キャビティを用いた場合、従来のキャビティと比較して試料量を16倍に増やすことが可能であった。試料が大容量化しても60秒程度で目的温度まで急速昇温され、効率的にガス成分、タール成分、炭素成分に分離することが可能であることを実証した。
- ② フロー型磁場加熱装置を開発し、半炭化前処理を行ったバイオマス試料のマイクロ波磁場加熱による連続的な炭素化物の生産に有効であることを実証した。

上記1)～3)の成果の一部は、本成果は、Royal Society of Chemistry のGreen Chemistry誌 (IF 9.480) に掲載されるとともに、本誌の表紙としても選出された。成果はプレスリリースによって、広く一般に公開した。また、国際会議や国内学会において、The 8th Asian Conference on Biomass Science 2020 The Excellent Paper Award (Oral Presentation) や、第14回バイオマス科学会議 ポスター賞を受賞するとともに、本研究の成果を主要な業績として、2020年度日本エネルギー学会 進歩賞 (学術部門)として高く評価された。

本課題では、半導体発振器を搭載したマイクロ波装置がバイオマスの急速熱分解に有効であり、さらに、10g/2minまでスケールアップ可能であることを実証した。一方、実用的なバイオマスの処理に向けては、半導体発振器によるマイクロ波の精密制御性を維持しつつ、さらなるスケールアップを図る必要がある。複数装置を連結したナンバリングアップや、高周波加熱の利用（長波長電磁波）、位相制御マイクロ波を用いた空間電力合成、注入同期による大出力マグネトロン発振器の精密制御などのマイクロ波工学技術を応用し、本課題における精密制御されたマイクロ波による効果を維持したまま、スケールアップする技術の開発が望まれる。

## 4) 研究体制、課題管理、研究資金の運用に関して効率的に実施した点、工夫した点

初年度に915MHz半導体発振器搭載マイクロ波加熱装置の開発に注力するとともに、本装置を用いた試験反応を精力的に進め、初年度のうちに基礎検証を終えた。2年目は、前年度の課題を踏まえて新たに磁場加熱型マイクロ波装置を開発するとともに、本炭化炉がさまざまなバイオマス原料で適用可能であることを実証した。最終年度は装置の大型化やフローシステム化を進めた。年度ごとに着実に研究成

果を積み上げることで、当初の研究開発目標である、①半導体マイクロ波炭化炉の開発、②半導体マイクロ波炭化炉によるバイオマスの炭化反応の検証、③半導体マイクロ波炭化炉のフローシステム化のいずれも達成した。また、本課題アドバイザーである産業技術総合研究所 西岡 将輝 博士および山口 有朋 博士には、課題遂行の助言のみならず、半導体マイクロ波装置設計およびバイオマス分析について協力を得て研究を進めることで、効果的に研究成果に結びつけることができた。

研究資金面においては、初年度～2年目にマイクロ波装置開発に重点的に資金を使用した。最終年度はマイクロ波による反応試験と生成物分析を重点的に行うため、技術補佐員の雇用経費と、学内分析支援センター（オープンファシリティセンター）における依頼分析費として重点的に使用した。研究の展開に合わせて研究資金を運用した。

## 6. 研究成果の発表状況

### 6-1. 査読付き論文

<件数>

1件

<主な査読付き論文>

1. Shuntaro Tsubaki, Yuki Nakasako, Noriko Ohara, Masateru Nishioka, Satoshi Fujii, Yuji Wada, Ultra-fast pyrolysis of lignocellulose using highly tuned microwaves: Synergistic effect of cylindrical cavity resonator and frequency-auto-tracking solid-state microwave generator, Green Chemistry, 22, 342-351, 2020 (Press Release 2019/11/25, Highlighted in Outside Front Cover、IF:9.480).

### 6-2. 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

### 6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	0件
その他誌上発表（査読なし）	2件
口頭発表（学会等）	6件
「国民との科学・技術対話」の実施	2件
マスコミ等への公表・報道等	3件
本研究に関連する受賞	3件

## 7. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

## 8. 研究者略歴

研究代表者

椿 俊太郎

東京工業大学 物質理工学院 応用化学系 助教

京都大学農学部卒業、博士（農学）、現在、国立研究開発法人 科学技術振興機構さきがけ 専任研究者、大阪大学大学院工学研究科応用化学専攻 特任講師（兼任）

## II. 成果の詳細

### II-1 マイクロ波加熱を利用した未利用バイオマスの高速炭化システムの開発

東京工業大学

物質理工学院 応用化学系

椿 俊太郎

#### [要旨]

半導体発振器を搭載したマイクロ波炭化炉を開発し、セルロースやリグニンのモデル化合物で迅速な加熱が可能であることを確認した。**実バイオマスとしてイナワラを原料とした場合、最大330°C/secで急速に加熱し熱分解**できることを実証した。さらに、磁場型装置を開発し、炭素化が進行したバイオマス試料の急速加熱に有効であった。本装置は、イナワラ、ムギワラ、モミガラ、クロレラ、タケ、スギ、ヤシガラなど、微細藻類や農業残滓などの種々のバイオマスで有効であることを実証した。バイオマスの熱分解に伴い、水素に富んだ熱分解ガスのほか、芳香族化合物からなるタール、およびアモルファス構造に富んだ炭素を得た。さらに、大型のQ値の高い空洞共振器や、フロー式磁場加熱装置を開発し、半導体マイクロ波炭化炉のスケールアップも可能であることを実証した。

これらの成果は、**Green Chemistry誌 (IF=9.40) に掲載**されるとともに本誌の表紙を飾った。また、国内外の学会において発表賞やポスター賞を受賞するとともに、本研究成果を主要な業績として、**且本エネルギー学会進歩賞 (学術部門) を受賞**した。

#### 1. 研究開発目的

半導体マイクロ波発振器と強電界集中型のシングルモード空洞共振器を用い、省電力で小型マイクロ波炭化炉を開発することを目的とした。半導体マイクロ波発振器とシングルモード (TM<sub>010</sub>モード) 共振器を用いた炭化炉を組み合わせ、高速かつ小型・可搬型の未利用バイオマスの炭化プロセスを確立する。得られたバイオマスチャーは地域分散型バイオマス発電における固体燃料や、高付加価値材料として供給する。本技術によって、地域で発生する種々のバイオマス資源の有効利用の促進に貢献する。

#### 2. 研究目標

炭化プロセスのフローシステム化によって、半導体マイクロ波炭化炉を用いた炭化処理効率の向上を図る。共振器内に設置した石英反応管に流通ガスを導入し、連続的にバイオマスを共振器内に導入し、炭化物を生成する。続いて、フローシステムで生成した炭化物の特性を評価する。最終的に、H30-R2で実施した項目を最適化し、省電力のマイクロ波で、バイオマスを1000°C/minで高速で炭化し、固形燃料として有用なバイオマスチャーを生成する条件を明らかにする。

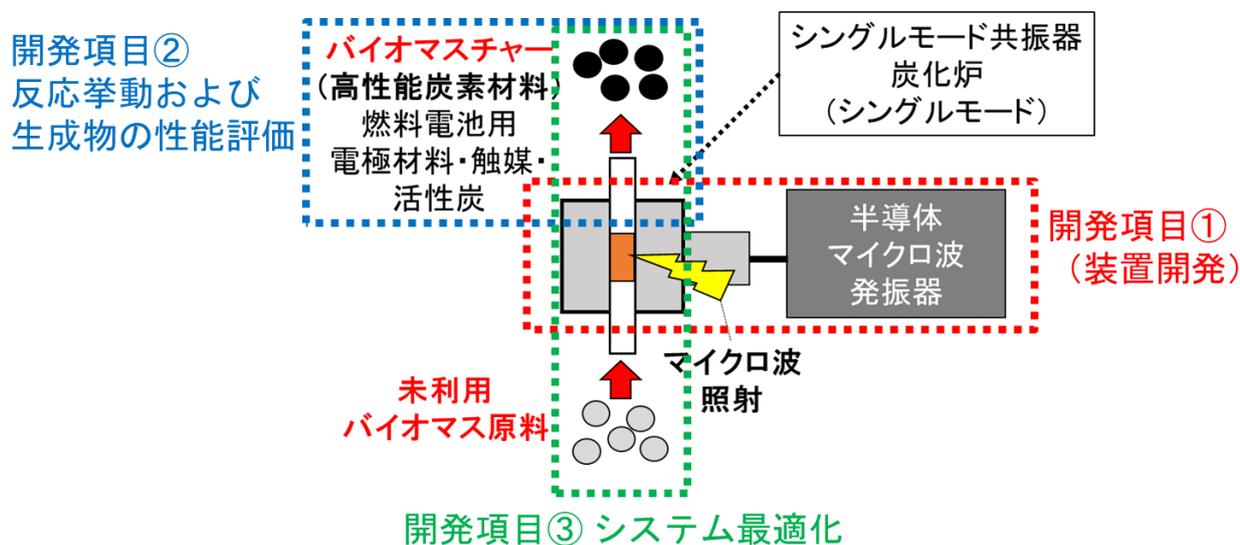


図1. 1, 本研究課題の3つの目標の概要

### 3. 研究開発内容

#### 1) 半導体マイクロ波炭化炉の設計・開発

半導体式発振器と空洞共振器を搭載し、マイクロ波炭化炉を開発した。バイオマスの急速熱分解に有効な電場加熱型、および炭素化物の加熱に有効な磁場加熱型を併用し、熱分解によるバイオマスの誘電特性の変化に応じて、適切なマイクロ波条件を選択することで、効果的なマイクロ波エネルギーの供給が可能であることを実証した。以下に具体的な成果を示す。

##### 1-1) マイクロ波電場加熱

半導体発振器と電磁界強度を高めることが可能な空洞共振器を組み合わせることで、マイクロ波吸収特性に劣るバイオマス試料の急速な加熱を実現した。既存マイクロ波装置で広く用いられる2.45GHz、およびより波長が長くスケールアップが可能な915MHzを用いた炭化炉を開発した（図0.4）。窒化ガリウム（GaN）増幅器を搭載した半導体発振器と電場型空洞共振器（TM<sub>010</sub>モード）を接続した。スラグチューナーを用いてインピーダンス整合を取るとともに、共振周波数を定期的にモニタリングし、発振周波数を追従することで、反射電力を最小化した<sup>1)</sup>。本装置は、半導体発振器の周波数制御性の高さを活かし、空洞共振器の共振周波数を自動的に追従し、常に高い共振状態を維持することができる。まずは、本装置を用いて、結晶性セルロースやリグニンなどの標準物質において、従来のマイクロ波装置では困難な急速加熱が可能であることを示した。さらに、実バイオマスとして、イナワラ、ムギワラ、モミガラ、クロレラ、タケ、スギ、ヤシガラの急速熱分解に展開し、本装置の有効性を検証した。一方、電場加熱では昇温によって炭素化物の生成やプラズマの形成に伴い、反射電力が増大した（図1.2）。そこで、炭素の効率的な加熱、およびプラズマ形成の抑制のために、磁場加熱装置を開発した。

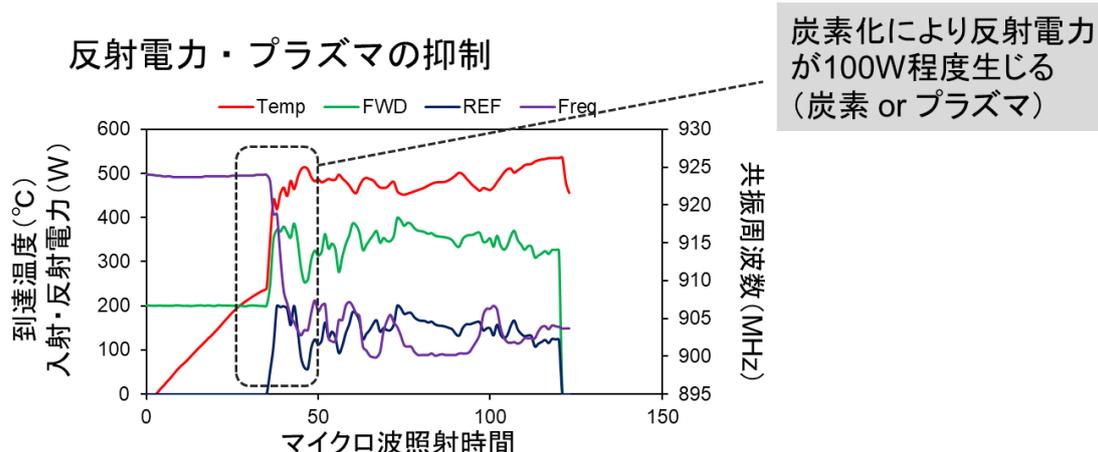


図1. 2、バイオマスの急速昇温中の入力、反射電力の変化

##### 1-2) マイクロ波磁場加熱

マイクロ波を空洞共振器に閉じ込めた場合、空洞共振器内に生じる定在波によって、電場および磁場が最大となる点が生じる。上記1-1)の電場加熱では、TM<sub>010</sub>モード型キャビティの電場最大点となるキャビティ中心部に試料を配置することで、急速な加熱が可能である。一方、TM<sub>110</sub>モード型キャビティでは、キャビティ中心部が磁場最大点となり、マイクロ波磁場での誘導加熱により導体の迅速な加熱が可能である。図0.10および図1.3にそれぞれ装置のセッティングの概略図と、実際にセットアップした磁場加熱型マイクロ波炭化炉の写真を示す。磁場型キャビティに石英管を通し、内部に試料を充填し、不活性ガス（N<sub>2</sub>、もしくは質量分析を行う場合はAr）を流通した。磁場型キャビティと半導体発振器を同軸ケーブルで接続し、スラグチューナーおよび共振周波数の自動追従でインピーダンス整合を取った。試料の温度は、石英管側面から石英透過型放射温度計で測温した。本装置を用いて、モデルの炭素化合物（活性炭破砕状、Norit SX、骨炭、白鷺 P、グラファイト）や、電場にて半炭化したバイオマス試料（タケ、スギ、ヤシガラ）のマイクロ波磁場加熱挙動を検証した。

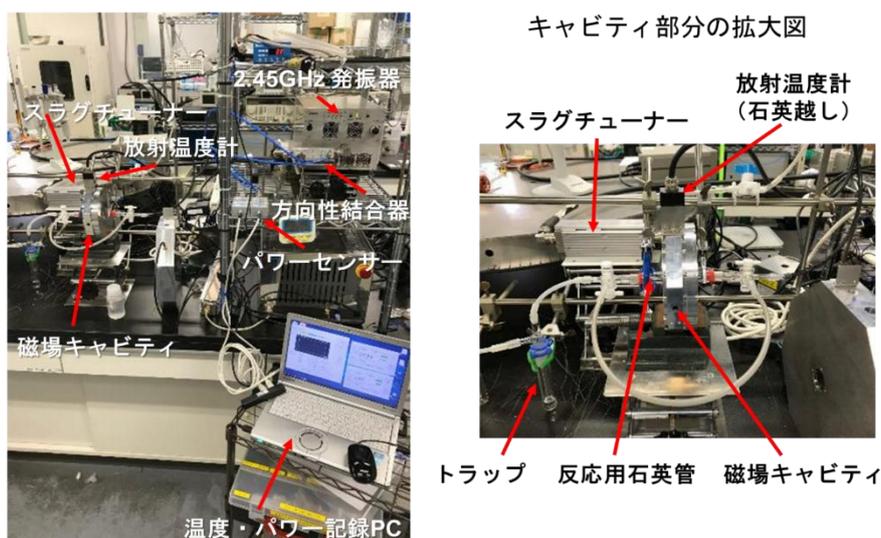


図1. 3、半導体発振器を搭載した磁場加熱型炭化炉。(左) セットアップした磁場加熱型炭化炉の全容、および(右) 磁場キャビティ部分の拡大図

## 2) 半導体マイクロ波炭化炉を用いた各種バイオマスの炭化反応、および炭化物の燃料特性の評価

1) で開発した、半導体発振器搭載のマイクロ波炭化炉を用いて、各種バイオマスの炭化反応を検証するとともに、炭化生成物のキャラクタリゼーションを行った。当初、炭化物の燃料特性を評価検討する計画をしていたが、AD会合におけるPOおよびADからの助言をもとに、生成物の高付加価値材料としての利用を視野に入れて、オンライン質量分析装置を用いたin situでの熱分解ガスの分析、GC-MSによるタールの分析、CHNS分析による炭素濃度の評価、ラマン分光による炭素の構造解析、および炭化生成物の比表面積の評価についても検討した。

## 3) 半導体マイクロ波炭化炉のフローシステム化

マイクロ波によるバイオマスの炭素化反応のスケールアップとして、大型空洞共振器(915MHz)および磁場型流通加熱装置を開発した。図1. 4に大型でQ値を高めたHigh Q factor空洞共振器を用いた炭化炉の概要とセットアップした写真を示す。本キャビティには試料が8-10 g 装荷することができ、従来のLow Q factor空洞共振器(500mg)と比較して16-20倍のスケールアップが可能となった。また、反応が急速に進行し熱分解ガスとタールが噴出するため、空冷トラップでタールを回収した。さらに、冷エタノールおよび冷水で生成ガスを洗浄し、オンライン質量分析装置により生成した熱分解ガスを分析した。

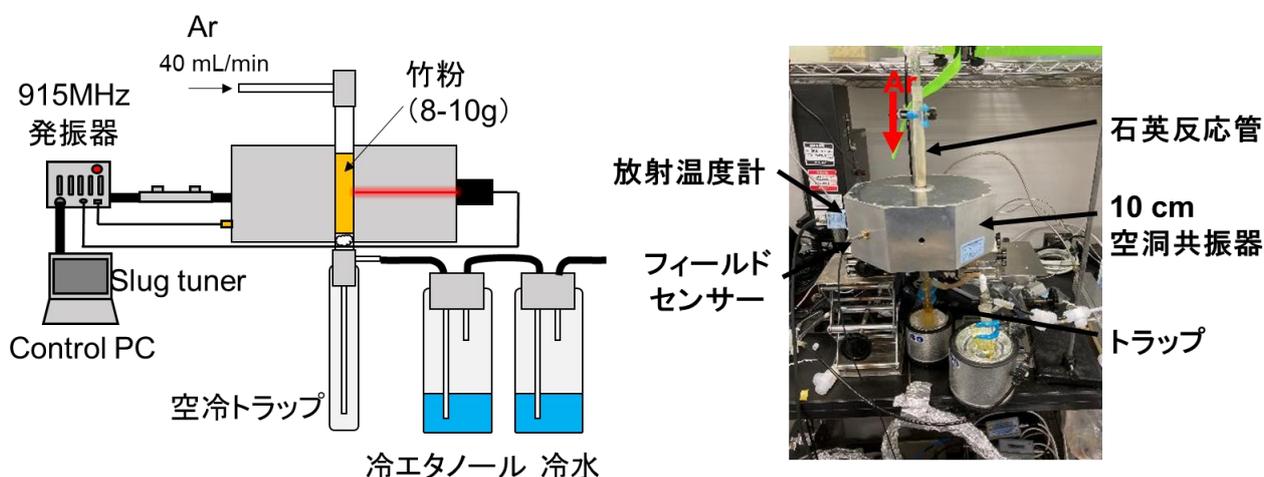


図1. 4、High Q factor空洞共振器を用いた大容量でのタケの急速熱分解

High Q factor空洞共振器は、Q値が3076と従来のLow Q factor空洞共振器と比較して10倍高く、S-parameter測定を行った場合より鋭い共振を示した（図1. 5）。本装置を用いた場合、特にスギにおいて、従来キャビティよりも早く昇温し、到達温度も高くなる効果が見られた。

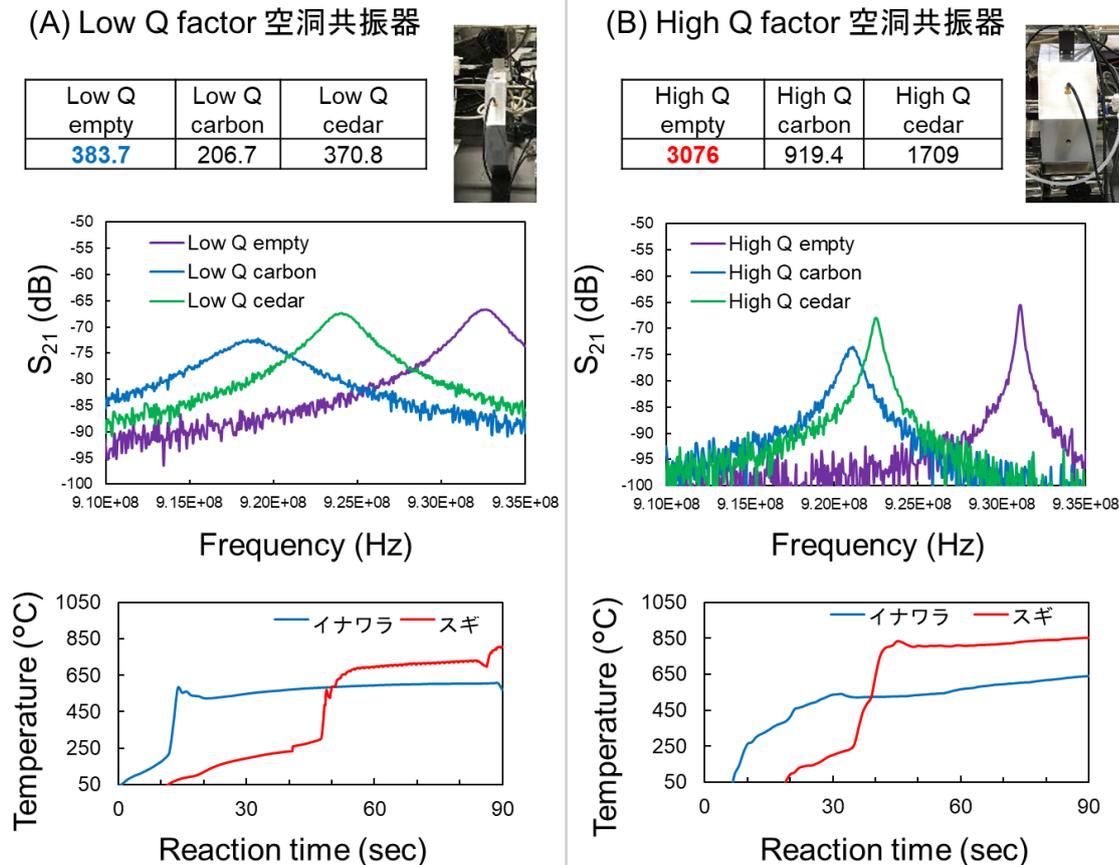


図1. 5、Low Q factor 空洞共振器とHigh Q factor空洞共振器の比較。

さらに、1) で作成した磁場加熱型マイクロ波炭化炉を改良し、スクリューフィーダーで原料を連続的に送り、マイクロ波磁場にて加熱することができる装置を開発した（図0. 19）。本装置は、High Q factor空洞共振器を用いて大量に調製した半炭化物を原料として、磁場加熱によって連続的に加熱し、炭素濃度の向上や、炭素構造の改質をすることが可能な装置とした。

#### 4. 結果及び考察

##### 1) 半導体マイクロ波炭化炉の設計・開発

###### 1-1) マイクロ波電場加熱

半導体発振器およびTM<sub>010</sub>モード型の空洞共振器を搭載したマイクロ波加熱装置を用いて、モデルバイオマス化合物として、結晶性セルロースおよびアルカリリグニンのマイクロ波加熱挙動を調べた。セルロースやアルカリリグニンはマイクロ波の吸収特性を示す  $\tan \delta$  が小さく、従来の電子レンジ型のマイクロ波装置では加熱することができない（表1. 1）。そのため、マイクロ波で熱分解をするためには、マイクロ波吸収媒体を添加することが必要とされる。一方、本課題で開発した半導体式マイクロ波炭化炉を用いた場合、セルロースを急速に昇温することが可能であった（図0. 5）。アルカリリグニンについては、誘電損率が0.018とセルロースよりもさらに低いため、従来のマイクロ波加熱ではほとんど加熱することはできないが、本課題の装置を用いた場合60秒で最大約450℃まで加熱された（図1. 6）。加熱の途中で炭素化が進むことで、マイクロ波の吸収特性が向上することで、セルロースよりも高い温度に到達したと考えられた。

表 1. 1、バイオマス試料の誘電特性

	比誘電率 ( $\epsilon'$ )	誘電損率 ( $\epsilon''$ )	Tan $\delta$
セルロース (含水率 4.4%)	1.52	0.054	0.042
アルカリリグニン (含水率 1.6%)	1.65	0.024	0.018
イナワラ	1.34	0.038	0.029

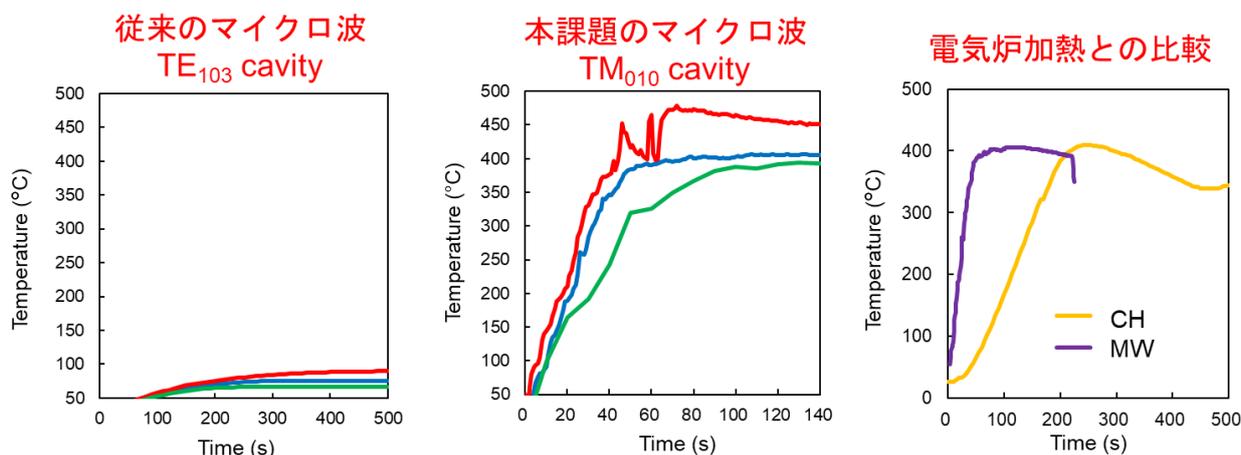


図 1. 6、結晶性セルロースのマイクロ波加熱特性 (2.45GHz) の比較 (従来のマイクロ波加熱、本課題のマイクロ波加熱、および電気炉と本課題のマイクロ波加熱の比較)

バイオマスの加熱においては、バイオマスに含まれる水分や低分子の抽出成分などがマイクロ波の電場によって加熱される。さらに、昇温するにつれ構成成分の炭化が進行すると、炭化物によるマイクロ波吸収の増大により、さらに急速に昇温する。このような正のフィードバックにより暴走的に発熱 (Thermal runaway) が生じる。また、本装置では周波数自動追従システムを搭載していることにより、バイオマスの炭化に伴う急速な誘電特性の変化に対しても、共振状態を常に維持し、急速な加熱が実現されたと考えられた。

続いて、マイクロ波の周波数の効果を検証した。図 1. 7 に 2.45GHz と 915MHz を用いた場合のセルロースのマイクロ波加熱挙動を示した。周波数によって、昇温特性にほとんど変化はなく、異なるマイクロ波周波数を用いてどのように急速加熱が可能であることを確認した。一方、周波数変化について、2.45GHz では昇温に伴い 6MHz と大きな変化を示すのに対し、915MHz では挙動は 2.45GHz とよく似ているものの、その変化量は 1MHz に抑えられていた。周波数追従で自動整合しマイクロ波の反射電力を抑えていることを考慮すると、915MHz において周波数の追従が容易であると考えられた。また、915MHz は浸透深さが大きくスケールアップが容易である。すなわち、バイオマスの急速加熱プロセスとしては、915MHz が望ましいといえる。

本装置を用いて、実バイオマスとして、イナワラやバガス、ムギワラ、モミガラ、クロレラなどの炭化反応を検討した。イナワラを試料とした場合、最大昇温速度は 330°C/sec に達し、共振周波数の変化から急速昇温と同時に炭素化が進行していることが分かった。そのほかのバイオマス試料についても、本半導体マイクロ波加熱装置を適用することによって、急速に加熱することが可能であることを確認した (図 1. 8)。一方、炭素化の進行やプラズマの形成によって、マイクロ波の反射電力が大きくなり、加熱効率が悪化した (図 1. 9)。導体試料はマイクロ波の電場を反射するため、電場最大点に配置した場合は効率的に加熱することが困難である。そこで、続いてマイクロ波の磁場を用いて炭素化した試料の誘導加熱を検討した。

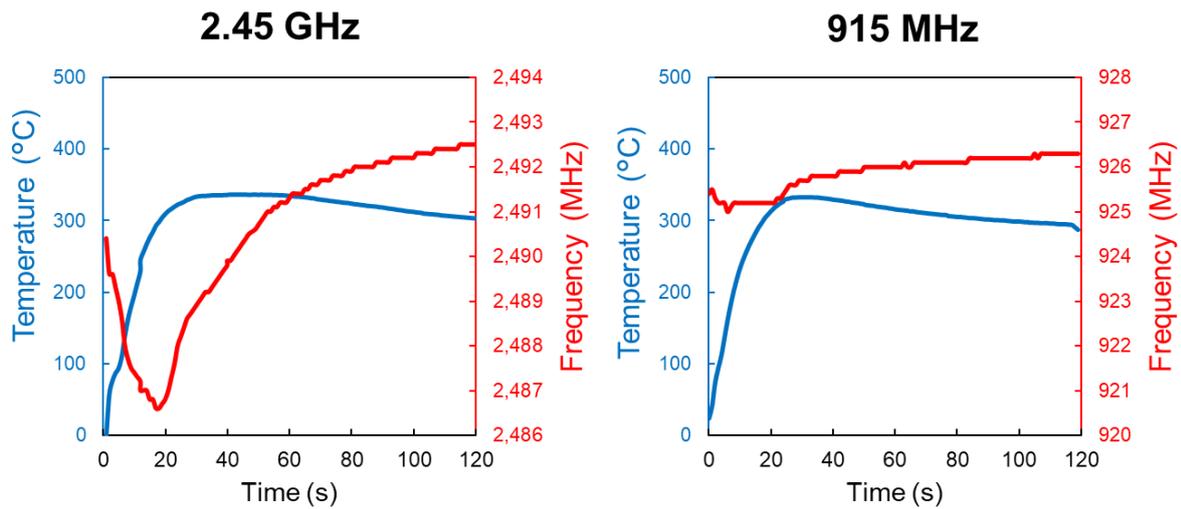


図1. 7、結晶性セルロースのマイクロ波加熱特性（2.45GHzおよび915MHz）中の共振周波数の変化

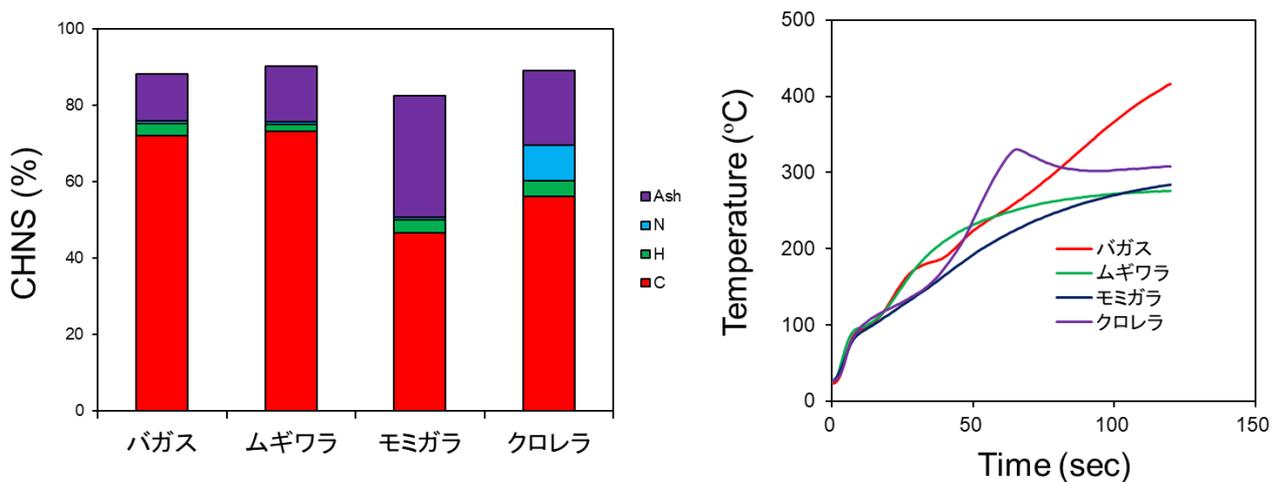


図1. 8、その他の実バイオマスのCHNS含有率とマイクロ波加熱特性（915MHz, 125W）。

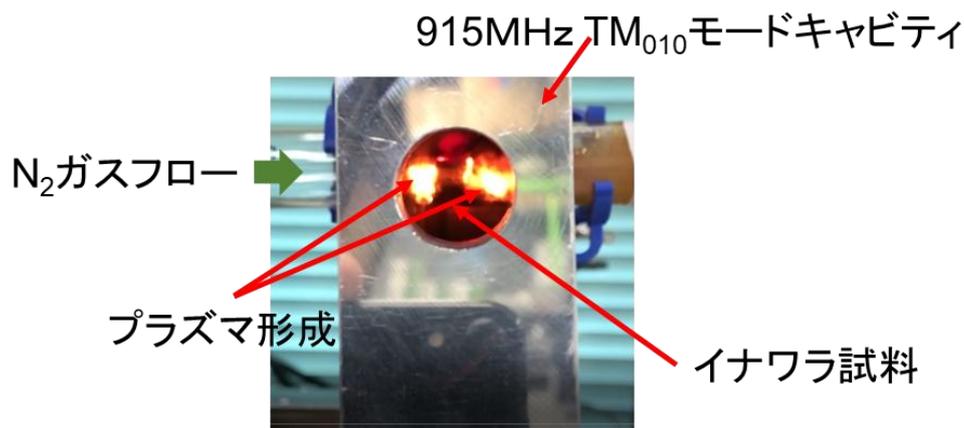


図1. 9、イナワラ試料の915MHzマイクロ波加熱中に生じるプラズマ。

### 1-2) マイクロ波磁場加熱

上記の装置を用いて、まずは、触媒担体などに用いられる活性炭やグラファイトなどのモデル炭素材料（表1. 2）の電場加熱および磁場加熱における加熱特性を比較した。電場加熱において、炭素材料はいずれも放射温度計（石英透過型）で観測した温度で500℃～700℃（80W照射時）に急速に加熱された（図1. 10）。一方、部分的に赤熱し発光が見られるなど、不均一な加熱となっていた。こうした局所的な温度によって、見かけ上加熱温度が高く見えていると考えられた。

表 1. 2、炭素材料試料の炭素含有量と導電率

	C	H	N	導電率 S/cm (粉末導電率計 4kN)
活性炭破砕状	83.64%	1.0%	0.68%	6.192
Norit SX	85.04%	1.11%	0.61%	6.455
骨炭	9.42%	0.91%	2.30%	$1.214 \times 10^{-6}$
白鷺 P	91.33%	1.09%	0.81%	4.512
グラファイト	93.21%	0.51%	0.30%	$2.073 \times 10^2$

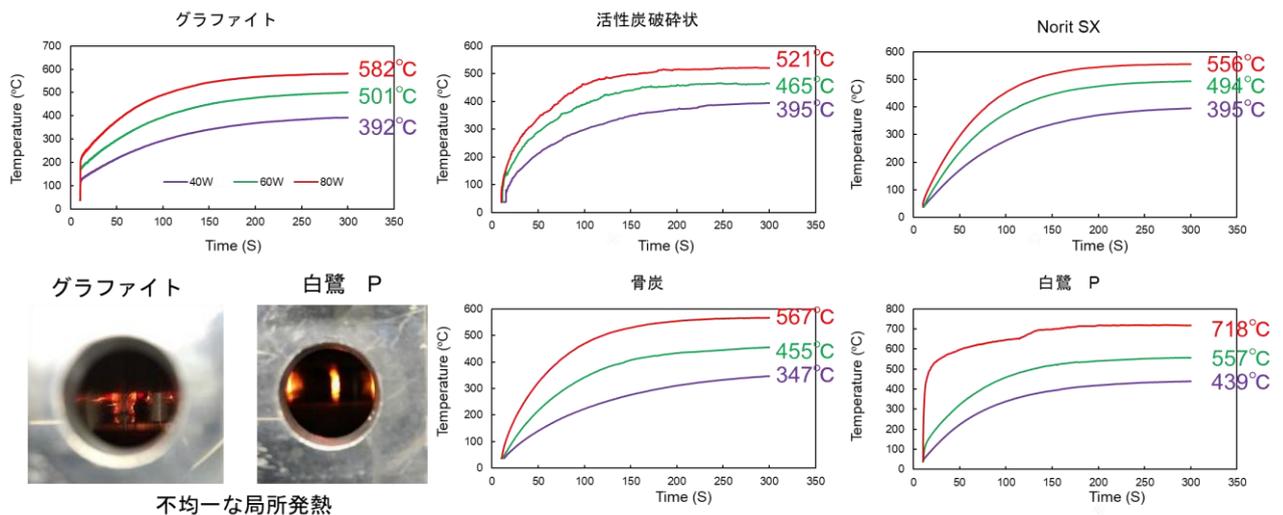


図 1. 10、モデル炭素材料の電場加熱における昇温プロファイル、および加熱中の様子。

磁場加熱においては、プラズマによる発光は抑えられたが、放射温度計で測定した試料表面温度は電場と比較して低く、210–363°C（80W照射時）であった（図 1, 11）。また、導電性に優れたグラファイト（表 1. 2）が最も加熱が良く、一方、骨炭については炭素含有量が低いため磁場では加熱されなかった。すなわち、磁場加熱には炭素含有量を高め、導電性を向上することが有効であることが示された。

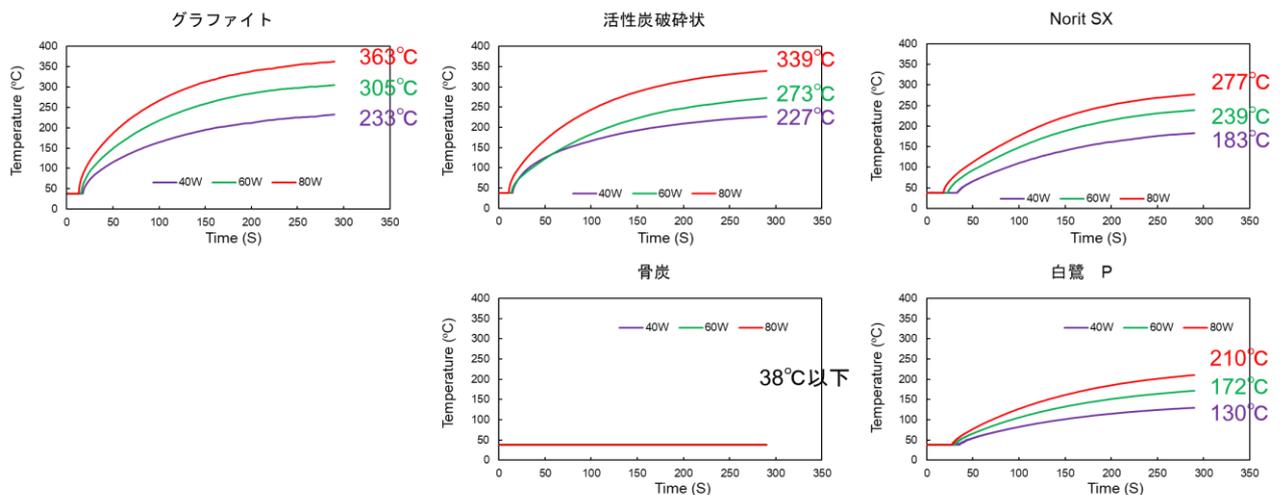


図 1. 11、モデル炭素材料の磁場加熱における昇温プロファイル

そこで、上記の磁場加熱装置を用いて、マイクロ波電場で炭素化したタケの磁場加熱を行うとともに、電場および磁場での昇温特性を比較した（図0. 1 1）。タケ炭素化物に対してマイクロ波磁場（80W）を照射した場合、すみやかに昇温し80℃/secで400℃に到達し、その後、60秒ほどで600℃に到達した。電場と比較して安定的にマイクロ波加熱され、反射電力も抑えられた。

本項目では、バイオマスの炭化炉として半導体発振器を搭載した電場型および磁場型のマイクロ波炭化炉の開発に成功し、バイオマスの急速加熱に有効であることを実証した。半導体発振器による周波数の精密制御機能を活かした周波数自動追従によって、熱分解に伴う大きな誘電特性の変化に合わせて、共振状態を維持することで、マイクロ波加熱効率をまた、バイオマスの炭素化を促進するにはマイクロ波電場による加熱が有効であり、一方、バイオマスから炭素が誘導された後は、マイクロ波磁場による加熱が有効であることが示された。

## 2) 半導体マイクロ波炭化炉を用いた各種バイオマスの炭化反応、および炭化物の燃料特性の評価

半導体マイクロ波炭化炉を用いた各種バイオマスの炭化先生物を評価した。モデル基質としてセルロースを用いた場合、マイクロ波による急速加熱に伴って、 $H_2$ 、 $CO$ 、 $CO_2$ などの熱分解ガスの生成が促進された（図0. 1 2）。電気炉と比較して短時間で熱分解ガスの生成が進むとともに、ガスの生成速度も電気炉と比較して3倍高い値を示した。一方、セルロース由来の炭化生成物重量については、マイクロ波では電気炉よりも少なく、マイクロ波による急速加熱によって、セルロースの熱分解によるガス化が促進していることが示された（図0. 1 3）。セルロースの熱分解にはグリコシル転移反応や脱水反応による無水糖類の形成が進むと考えられている<sup>2)</sup>。さらに、フラグメンテーションを介した合成ガスの形成、無水糖の重合によるバイオチャー形成が生じる。マイクロ波はまずはセルロースの誘電加熱により無水糖類が誘導され、局所的な高温部分においてバイオチャーが形成する。バイオチャーが形成すると、導電損失によってマイクロ波の吸収特性が向上するため反応温度がthermal runaway（熱暴走）によって急上昇し、さらに、ガス化が進行するものと考えられた。

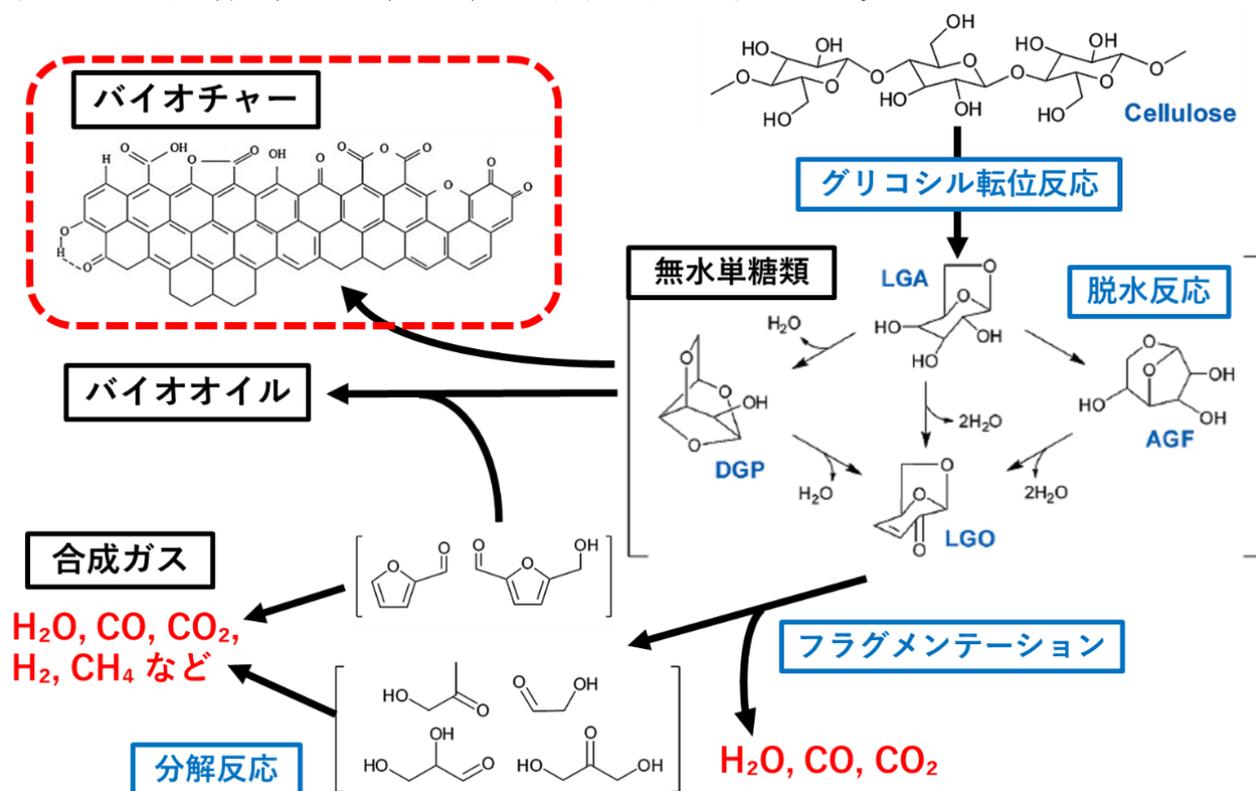


図1. 1 2、セルロースの熱分解機構

続いて、実バイオマスとして、915MHzを用いて、イナワラの急速熱分解を行った。200Wのマイクロ波照射時に、最大330℃/secで昇温し、600℃に到達した（図0. 7）。反応管出口の様子から、加熱開

始後9秒で水蒸気が生成し始めるとともに、10秒後には熱分解ガスが生じた。加熱開始12秒後にプラズマの形成とともに急速な昇温が生じた（図0. 8）。反応中の共振周波数の観測から、急激な昇温と同時に共振周波数が著しく低下した（図0. 9）。これは、イナワラの炭素化に伴い誘電体から導体に物性が大きく変化したためと考えられる。本装置は、共振周波数を自動で追従するため、被照射物の誘電特性が大きく変化しても、常に高い共振状態を維持することができたと考えられる。また、マイクロ波の急速な昇温とともに炭素化が進行していることが示された。

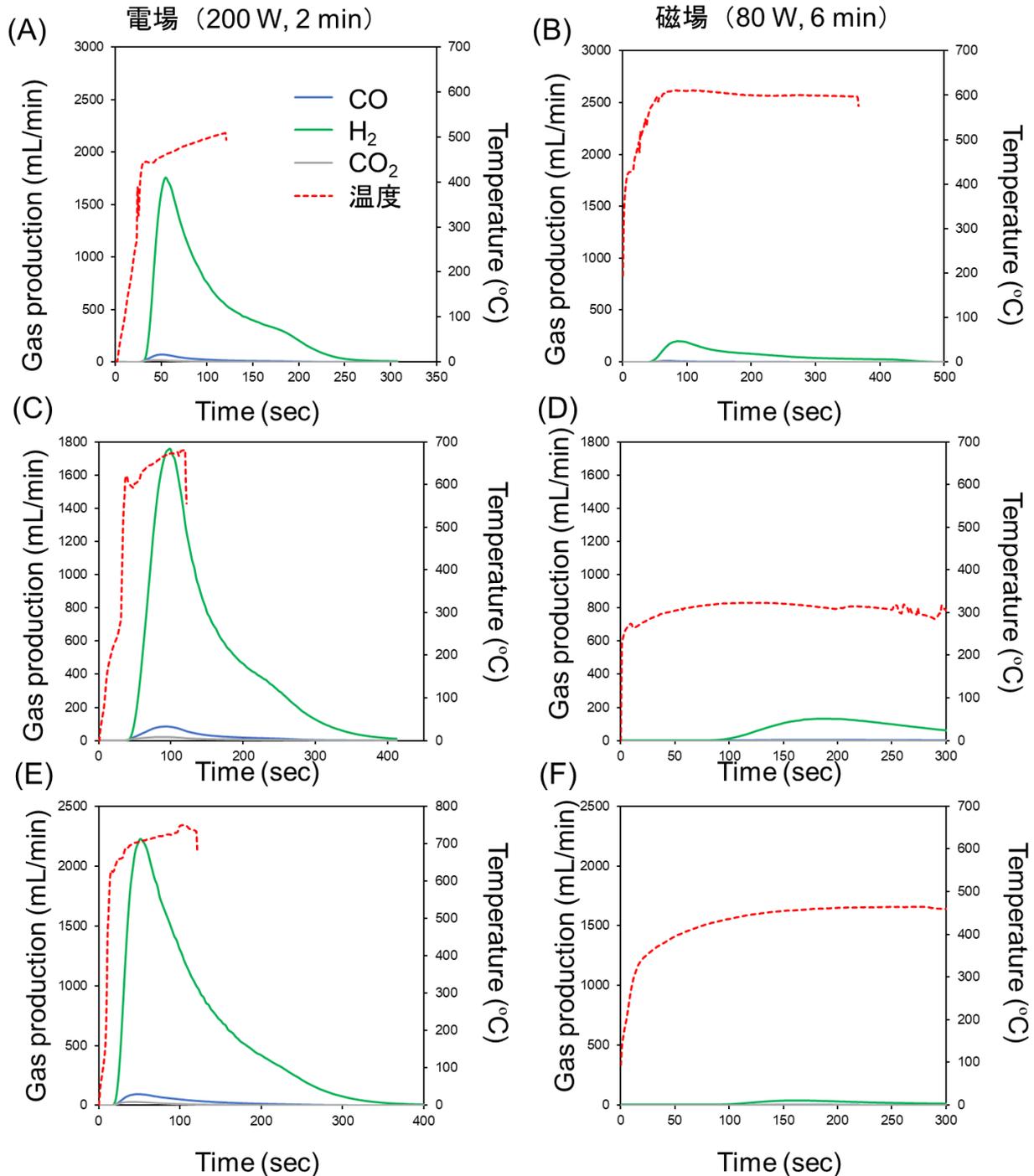


図1. 13 マイクロ波加熱温度および熱分解ガス生成速度における電場と磁場の比較。(A) タケ（電場200 W、2 min）、(B) タケ（磁場80 W、6 min）、(C) スギ（電場200 W、2 min）、(D) スギ（磁場80 W、6 min）、(E) ヤシガラ（電場200 W、2 min）、(F) ヤシガラ（磁場80 W、6 min）

一方、炭素化が進行すると、共振状態が悪化し、反射電力が大きくなった。これは、空洞共振器の電場最大点に導体が生じるため、マイクロ波の反射により電場が立たなくなることに起因する。このような条件においては、磁場加熱が望ましい。そこで、電場で炭素化を誘導し、炭素化が進行したところで磁場加熱に移行することで効果的に加熱できると考えた。図1. 13にタケ、スギ、ヤシガラ粉末の電場でのマイクロ波加熱、および電場で半炭化した試料の磁場加熱挙動と熱分解ガスの生成速度を示した。電場では急速な昇温に伴い、水素とCOを中心とする熱分解ガスが発生した。それぞれのバイオマス試料で到達温度が異なり、タケでは500°C前後であったが、スギでは650°C、ヤシガラでは700°C以上に到達した。続いて、上記条件で電場加熱した試料を磁場に入れ替えて加熱した。タケでは600°Cに到達し、半炭化試料に残存する水素の発生が見られた。磁場加熱時間を長く設定すると、さらに水素発生量が多くなり（図1. 14）、残存する炭素化物中のC含有率最大86%まで高めることが可能であった（図1. 15）。これにより、炭素化物の高位発熱量（HHV）も30.5MJ/kg（原料：16.5MJ/kg）に向上した。一方、スギは磁場加熱で最大246°C/secで急速に300°Cまで加熱されるものの、それ以上の温度には昇温が困難であった。これは、温度の上昇に伴い導電性が低下することによって、磁場加熱が困難になったものと考えられた。こうした傾向は、ヤシガラでも見られた。スギやヤシガラは磁場加熱で電場加熱以上の温度の到達しなかったため、磁場加熱によってC含有率などに変化は生じなかった。

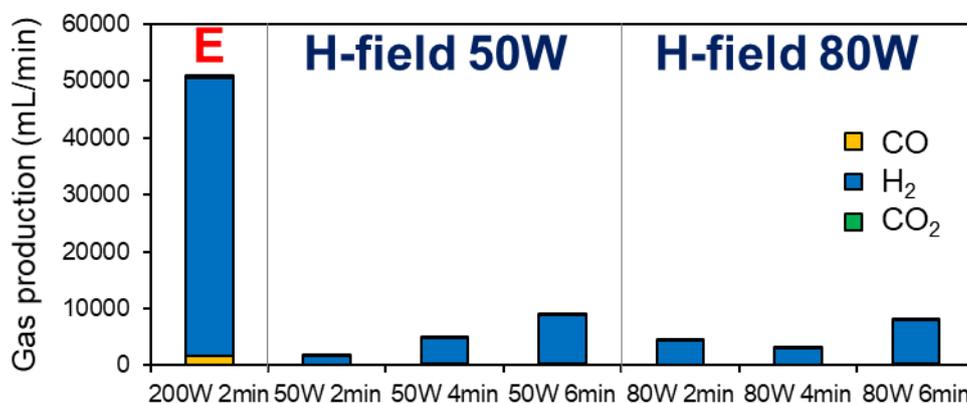


図1. 14 タケの急速熱分解によって生じた熱分解ガス生成量における電場と磁場の比較。

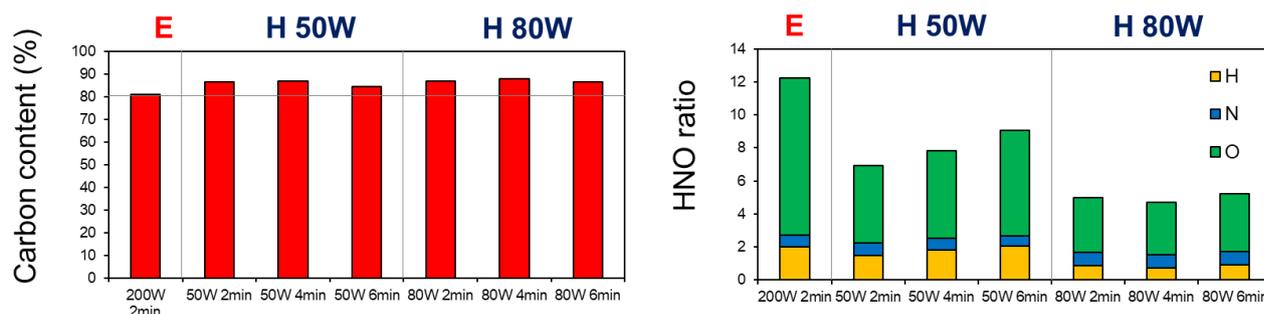


図1. 15 タケの急速熱分解によって生じた炭素化物の評価。(A) C含有率における電場と磁場の比較、(B) HNO含有率における電場と磁場の比較。

得られた炭素化物について、ラマン分光を用いて炭素の構造を解析した。図1. 16にマイクロ波加熱（磁場加熱）、ないしは電気炉加熱で得られた炭素化物のラマンスペクトルを示す。電気炉で作成した炭素化物は、1600 $\text{cm}^{-1}$ 付近の高結晶なグラファイト構造由来のGバンドのピークが高く、1300 $\text{cm}^{-1}$ 付近の炭素の欠陥由来であるDバンドにブロードなピークが見られた。図1. 17にマイクロ波および電気炉で調製した炭素化物、および炭素材料標準のDバンドおよびGバンドの強度比（ $I_D/I_G$ 比）を示した。グラファイトはシャープなGバンドのピークを示すために $I_D/I_G$ 比は低い値を示すが、触媒担体として用いられるノーリットSXプラスは、高い $I_D/I_G$ 比を示す。原料の種類によらず、マイクロ波で調製し

た炭素化物は $I_D/I_G$ 比が高まる傾向にあった。高い $I_D/I_G$ 比は炭素中の欠陥が豊富に存在することを示しており、かつ、ピーク形状もブロードで結晶性が低いことから、マイクロ波によりアモルファスな構造の炭素が形成されることが分かった<sup>3,4)</sup>。こうしたピーク形状は、グラッシーカーボンやカーボンブラックにも見られ、こうした炭素材料の代替物として利用が期待される。タケにおいては、電場加熱後に磁場加熱することで、さらに高い $I_D/I_G$ 比となった。一方、スギやヤシガラでは電場加熱後に磁場加熱を行っても、 $I_D/I_G$ 比に変化はなかった。これは、磁場加熱において十分に加熱がされなかった結果と一致する。

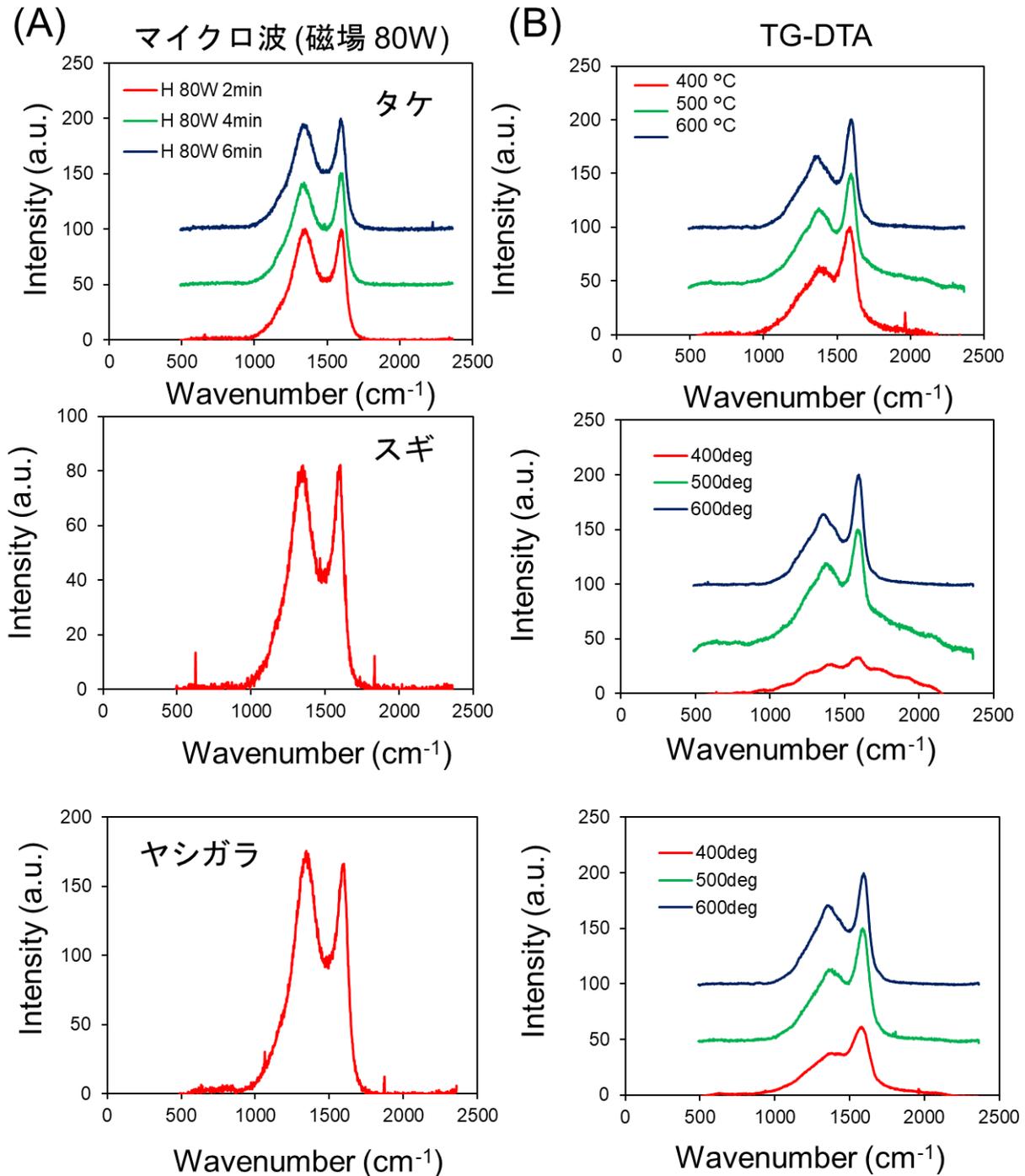


図1. 16 タケ、スギ、ヤシガラのマイクロ波および電気炉での急速熱分解によって生じた炭素化物のラマンスペクトル。

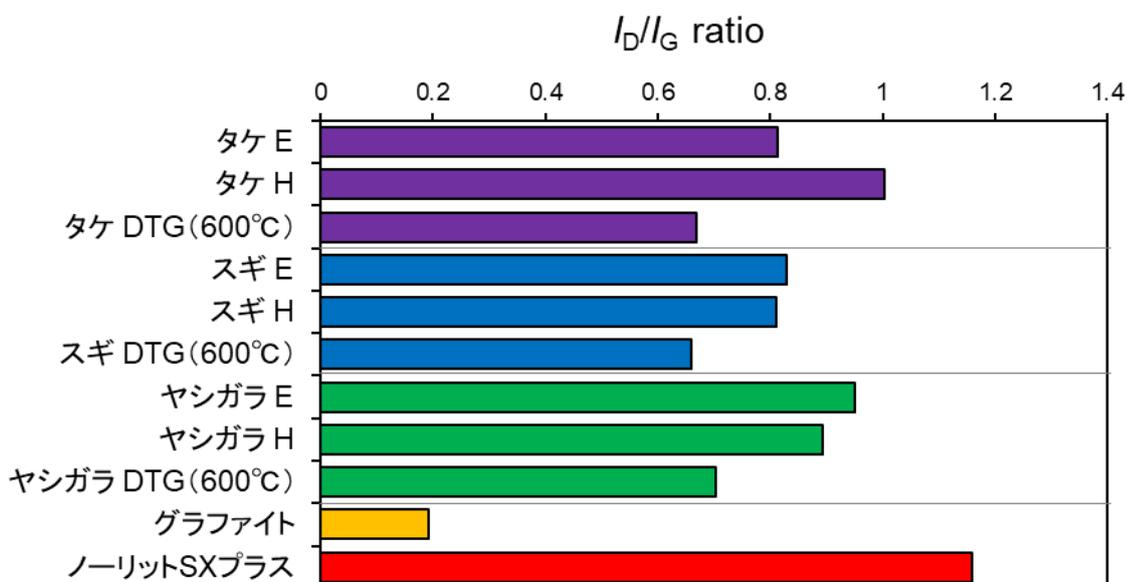


図1. 17 タケ、スギ、ヤシガラのマイクロ波および電気炉での急速熱分解によって生じた炭素化物の  $I_D/I_G$ 比。(E:電場、H:磁場、DTG:電気炉)

また、本試料について、窒素吸着測定により比表面積を調べた(表1. 2)。BET測定から、タケにおいては、電場加熱後に磁場加熱することで、比表面積は  $34 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$  から  $130 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$  と改善されたが、マイクロ波の急速加熱では細孔が十分に発達されなかった。細孔の発達を促すためには、生成した炭素化物を、さらに磁場加熱中に水蒸気等で賦活処理をする必要があると考えられる。

表1. 2、各炭素材化料試料の比表面積の電場および磁場加熱の効果

	タケ		ヤシ		スギ	
	E 200W 2min *	E 200W 2min + H 80W 6min <sup>#</sup>	E 200W 2min	E 200W 2min + H 80W 6min	E 200W 2min	E 200W 2min + H 80W 6min
$V_m$ [ $\text{cm}^3 \text{g}^{-1}$ ]	7.989	29.87	33.664	33.177	19.146	13.717
$a_s$ , BET [ $\text{m}^2 \text{g}^{-1}$ ]	34.772	130.01	146.52	144.4	83.331	59.704
C	-24.152	-31.569	-32.651	-31.73	-37.585	-38.793
全細孔容積 [ $\text{cm}^3 \text{g}^{-1}$ ]	0.014606	0.067438	0.080624	0.079645	0.044028	0.032402
平均細孔直径 [nm]	1.6803	2.0749	2.201	2.2062	2.1134	2.1708

\*E; 電場加熱、<sup>#</sup>H; 磁場加熱

図1. 17にマイクロ波加熱(電場)によってタケから得られたタールの構成成分について、GC-MS分析によるトータルイオンクロマトグラムと検出された化合物の構造式を示す。得られたピークから、ピーク面積の大きな上位20種の化合物について、マススペクトルのフラグメントパターンからNISTデータベースをもとに同定した。タールは主に芳香族化合物で構成されており、リグニンの分解によって生じたと考えられる4-ethyl-2-methoxy-phenolや2,6-dimethoxy-4-(2-propenyl)-phenolなどを検出した。マイクロ波照射によって急速に加熱される際に、熱分解ガスの生成に伴いバイオオイルも噴出し、トラップで容易に回収することができる。本手法は、バイオマスからのバイオオイルの回収方法としても有効であるといえる。

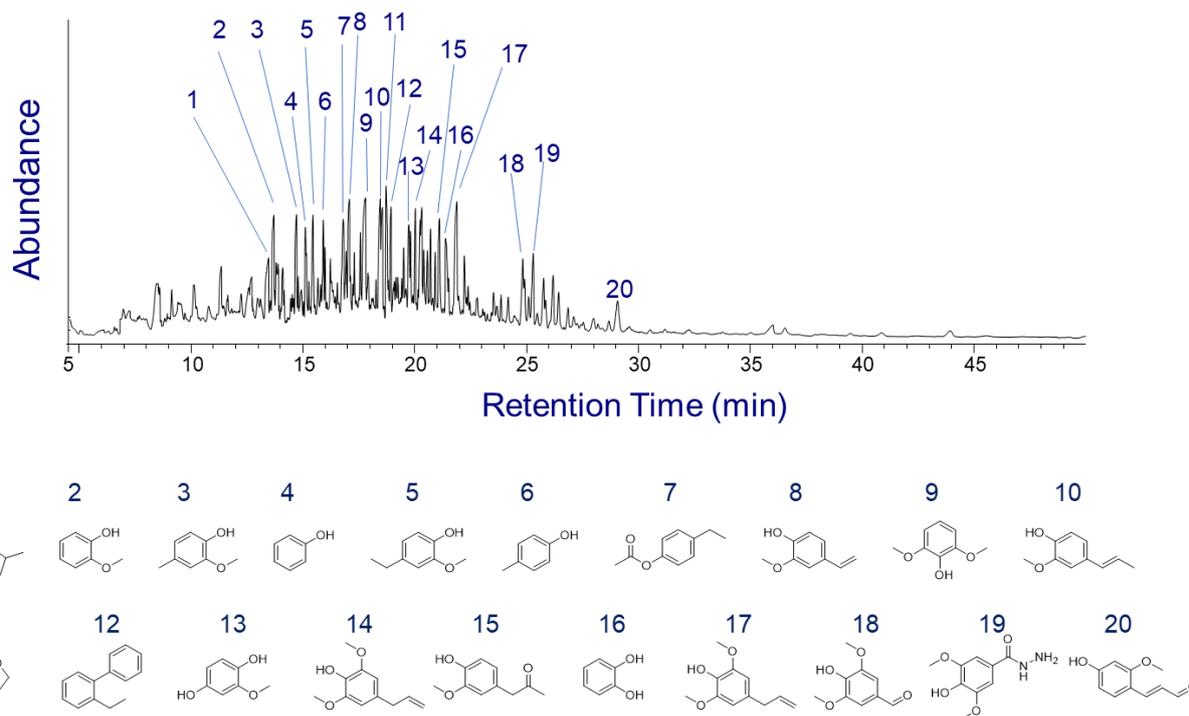


図1. 17 マイクロ波（電場）によりタケから生成したタールのGC-MS分析。トータルイオンクロマトグラムおよび検出された化合物。

### (3) 半導体マイクロ波炭化炉のフローシステム化

(1) において半導体発振器を用いたマイクロ波加熱の有効性を実証するとともに、(2) において熱分解により生成したガス、炭素材料およびタールのキャラクタリゼーションにより、各分離成分の有用性を確認した。そこで、バイオマスの熱分解プロセスの大容量化をするため、空洞共振器の改良と、フローシステム化を組み合わせ、スケールアップを検討した。

#### (3-1) 空洞共振器のスケールアップ

915MHzのマイクロ波は波長が32.8 mmあるため、マイクロ波プロセスのスケールアップに有効である。これまでは、20 mmの高さのキャビティを用いていたため、試料量が500mg程度に限られてきた。そこで、キャビティ高を大きくすることで、より多くの原料の処理を試みた。また、キャビティ高を上げることで、空洞共振器の共振特性を示すQ値を高めることができる（High Q factor空洞共振器）。すなわち、キャビティの改良によって、大容量化と共振特性の改善が可能となった。そこで、本装置を用いて、タケの大容量での急速熱分解反応を行った。High Q factor空洞共振器を用いた場合、反応中のプラズマ形成が抑えられた。スケールアップにより試料量が多くなっても、60秒で反応温度まで昇温され300℃まで昇温することが可能であった（図0. 18）。放射温度計は再表面温度を計測しているため、測定された温度が低くみられるが、反応管中央部にはより高温に到達していると考えられる。昇温と同時に急激に熱分解ガスが生じ始めた（図1. 18）。空冷トラップに、熱分解ガスと同時にタールが回収された。最終的に90秒ほど経過すると、熱分解ガスの生成も急速に終了した。マイクロ波照射中の共振周波数をモニタリングしていると、90秒付近で共振周波数が895MHz付近まで低下しており、タケの炭素化が完了していると考えられた（図0. 18）。これらの結果より、本High Q factor空洞共振器を用いた場合においても、大容量スケールにおいても高速加熱による熱分解が可能であることを実証した。

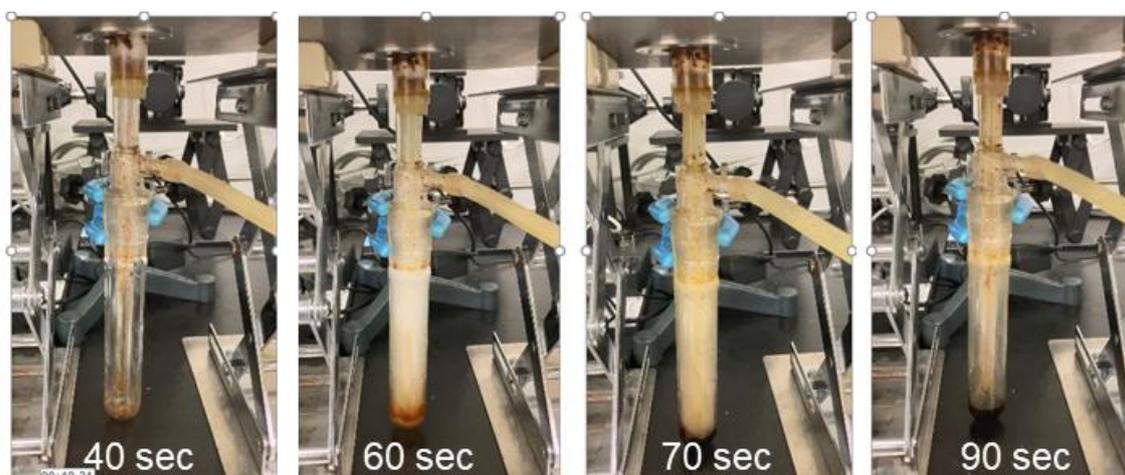


図1. 18 High Q factor空洞共振器を用いたタケの急速熱分解中の熱分解挙動。

### (3-2) 磁場型マイクロ波加熱装置を用いたフローシステム化

続いて、連続でバイオマスのマイクロ波加熱を行うことが可能な、流通式装置を開発した（図0. 19）。本装置はスクリーフィーダーで原料を石英反応管内部に投入しつつ、さらに、反応管の下部において生成物をスクリーフィーダーで押し出す。まずは、電場においてタケ原料の急速熱分解を行ったが、反応により生じる水分やタールにより原料が湿ってしまい、反応管が閉塞し十分に流通することが困難であった。そこで、予備的に熱分解による水分とタールを分離することで、流通が容易になると考えられた。そこで、High Q factor空洞共振器において炭化した試料について、磁場において試料を流通しながら加熱する方法が望ましいと考えられた。

そこで、（1）で開発した磁場型加熱装置を用いて、流通式の磁場加熱装置とし、本装置を用いて、SiCおよび活性炭の磁場加熱試験を行った。マイクロ波出力とスクリーフィーダーの回転速度で、到達温度を制御することができ、マイクロ波出力を上げ、スクリーフィーダーの回転速度を下げ試料の流通速度を下げることで、反応温度を向上することが可能であった。SiCでは100W、1rpmにて300秒流通したところ、300℃に到達した。活性炭の場合では、100W、1rpmの条件において250秒で300℃に到達した。続いて、（3-1）で調製したタケの半炭化物に対して磁場加熱を行ったところ、200秒で400℃に到達し、その後、40分にわたって連続的かつ安定的に温度が維持された（図0. 20 A）。マイクロ波照射中の入力電力、反射電力、共振周波数は安定しており、連続的に試料を投入した場合においても、問題なくマイクロ波加熱が可能であることを実証した。CHN測定から、電場での大量半炭化ではC含有率が66%にとどまったが、さらに磁場フロー加熱をすることで、81%まで高められた（図0. 20 B）。ラマン測定からも、電場加熱に続いて磁場加熱を行うことで、 $I_b/I_g$ 比が0.66から0.88（図0. 20 C, D）に向上し、バッチでのマイクロ波加熱と同様に、アモルファス構造に富んだ炭素材料が得られることを確認した。これらの結果より、本反応のスケールアップとして、High Q factor空洞共振器を用いた電場加熱で試料の大量半炭化処理を行い、その後、連続磁場加熱装置を用いた加熱を行うことによって、純度および $I_b/I_g$ 比を高めた炭素化が可能であることを実証した。

## 5. 研究目標の達成状況

本課題では、半導体発振器を搭載したバイオマスのマイクロ波炭化炉の開発に成功するとともに、本装置を用いてバイオマスを「超」急速に熱分解することができることを実証した。熱分解生成物として、水素を主成分とする合成ガス、芳香族化合物を中心とするタール、および、欠陥に富んだアモルファス構造を有する炭素材料を得られることを実証した。さらに、空洞共振器のスケールアップや、フロー式反応システムを確立し、バイオマスの効率的な炭化反応に有効であることを実証した。

### 1) 半導体マイクロ波炭化炉の開発

- ① 半導体発振器と空洞共振器を用い、誘電特性の悪いバイオマス試料を最大330°C/secで急速昇温し熱分解できることを実証した。本方法は、イナワラ、ムギワラ、モミガラ、クロレラ、タケ、スギ、ヤシガラなどに対しても有効であることを示した。さらに、電場および磁場を使い分けることで、誘電加熱による炭素化と、誘導加熱による炭素化物の加熱が可能であることを実証した。
- ② 半導体マイクロ波炭化炉の共振周波数の自動追従機能により、バイオマスの炭化に伴い誘電特性が変化した場合においても、共振状態が維持された。特に、915 MHzを用いることで、試料の大容量化と共振周波数の追従が容易となった。

### 2) 半導体マイクロ波炭化炉によるバイオマスの炭化反応の検証

- ③ 半導体式マイクロ波炭化炉を用いて、モデルバイオマス試料と実バイオマス試料において、熱分解によるガス化反応や炭化反応が促進することを明らかにした。
- ④ 半導体マイクロ波炭化炉を用いた急速加熱によって、欠損が多くアモルファスな構造の炭素が得た。また、芳香族化合物を主成分とするタールが得られることを明らかにした。

### 3) 半導体マイクロ波炭化炉のフローシステム化

- ⑤ 大型空洞共振器を作製し、反応試料の大容量化と高い共振状態の両立に成功した。本キャビティを用いた場合、試料量を16倍に大容量化しつつ、60秒程度で目的温度まで急速昇温し、効率的にガス成分、タール成分、炭素成分に分離することが可能であることを実証した。
- ⑥ フロー型磁場加熱装置を開発し、半炭化前処理を行ったバイオマス試料のマイクロ波磁場加熱による連続的な炭素化物の生産に有効であることを実証した。

上記の成果は、Royal Society of Chemistry の Green Chemistry 誌 (IF 9.480) に掲載され、表紙としても選出された。成果はプレスリリースによって、広く一般に公開した。また、The 8th Asian Conference on Biomass Science 2020 The Excellent Paper Award (Oral Presentation) や、2020年度日本エネルギー学会 進歩賞 (学術部門)、第14回バイオマス科学会議 ポスター賞を受賞した。

本課題では、新しいマイクロ波装置である半導体発振器を用いることにより、容易にバイオマスの急速熱分解ができること、さらにスケールアップの可能性を実証した。一方、本課題では最大10g/2minの処理量であり、実用的なバイオマスの処理に向けては、半導体発振器の優位性を維持しつつ、さらなるスケールアップが必要である。これらの解決方法として、複数装置を連結したナンバリングアップ、より長波長の高周波加熱の利用、複数発振器による位相制御マイクロ波を用いた空間電力合成や、マグネトロン式マイクロ波発振器の注入同期制御による大出力化などのマイクロ波工学技術を応用することで、リアクターの大型化とマイクロ波の大出力化が可能であり、本課題における精密制御されたマイクロ波の急速加熱効果を維持したまま大型化が可能になると期待される。

## 6. 引用文献

- 1) M. Nishioka, M. Miyakawa, Y. Daino, H. Kataoka, H. Koda, K. Sato, T. M. Suzuki, Single-mode microwave reactor used for continuous flow reactions under elevated pressure, *Ind. Eng. Chem. Res.* 2013, 52, 4683-4687.
- 2) Y.-C. Lin, J. Cho, G. A. Tompsett, P. R. Westmoreland, G. W. Huber, Kinetics and mechanism of cellulose pyrolysis, *J. Phy. Chem. C*, 2009, **113**, 20097-20107
- 3) Z. Wu, S. Wang, J. Zhao, L. Chen, H. Meng, Thermal behavior and char structure evolution of bituminous coal blends with edible fungi residue during co-pyrolysis, *Energy Fuels*, 2014, 28, 1792-1801.
- 4) P. Kim, A. Johnson, C. W. Edmunds, M. Radosevich, F. Vogt, T. G. Rials, N. Labbé, Surface functionality and carbon structures in lignocellulosic-derived biochars produced by fast pyrolysis, *Energy Fuels*, 2011, 25, 4693-4703.

### Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

#### (1) 誌上発表

##### <査読付き論文>

###### 【サブテーマ1】

- 1) Shuntaro Tsubaki, Yuki Nakasako, Noriko Ohara, Masateru Nishioka, Satoshi Fujii, Yuji Wada, Ultra-fast pyrolysis of lignocellulose using highly tuned microwaves: Synergistic effect of cylindrical cavity resonator and frequency-auto-tracking solid-state microwave generator, Green Chemistry, 22, 342-351, 2020 (Press Release 2019/11/25, Highlighted in Outside Front Cover、IF:9.480).

##### <査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

##### <その他誌上発表（査読なし）>

###### 【サブテーマ1】

- 1) 椿 俊太郎, 西岡 将輝, 和田 雄二. 半導体式マイクロ波装置を用いたバイオマスの「超」急速熱分解, クリーンエネルギー, Vol. 29, No. 9, pp. 55-61, 2020.
- 2) 椿俊太郎. 電磁波照射効果を「見る」-「その場」観察を駆使した電磁波駆動化学の理解, 化学と工業, Vol. 73, No. 3, pp. 238-239, 2020.

#### (2) 口頭発表（学会等）

###### 【サブテーマ1】

- 1) Shuntaro Tsubaki, Masateru Nishioka, Noriko Ohara, Yuji Wada : “Rapid microwave-assisted pyrolysis of lignocellulose by the solid-state microwave generator”, The 8th Asian Conference on Biomass Science 2020, Japan Institute of Energy, On-line, January 2021.
- 2) 椿俊太郎, 小原則子, 西岡将輝, 和田雄二: 第29回日本エネルギー学会大会, (2020), 「マイクロ波急速加熱を用いたリグノセルロースの熱分解反応」
- 3) 椿 俊太郎: 日本化学会第100春季年会, (2020), 「電磁波照射反応場のその場観察」.
- 4) 椿 俊太郎, 中迫 友希, 小原 則子, 西岡 将輝, 藤井 知, 和田 雄二: 第13 回日本電磁波エネルギー応用学会シンポジウム, 2019, 「半導体マイクロ波発振器を用いたリグノセルロースの急速熱分解」
- 5) 椿 俊太郎, 小原 則子, 西岡 将輝, 和田 雄二: 第29回日本エネルギー学会大会, (2019) 「マイクロ波急速加熱を用いたリグノセルロースの熱分解反応」
- 6) 椿 俊太郎, 中迫 友希, 西岡 将輝, 鈴木 榮一, 和田 雄二: 第12回日本電磁波エネルギー応用学会, (2018) 「円筒形シングルモード反応器を用いたリグノセルロース系バイオマスの急速熱分解」

#### (3) 「国民との科学・技術対話」の実施

###### 【サブテーマ1】

- 1) MWE2020 マイクロウェーブ展 ワークショップ TH4B-3 若手研究者が主導する次世代マイクロ波加熱応用（主催：電子情報通信学会APMC国内委員会、2020年11月26日オンライン 聴講者 約80名）にて「マイクロ波による触媒反応促進効果の理解とその応用」とのタイトルで講演
- 2) 第3回 産総研化学研究シンポジウム（2019年11月23日、つくば 産業技術総合研究所 聴講者 64名）にて、「電磁波で操る化学反応」について講演

#### (4) マスコミ等への公表・報道等

##### 【サブテーマ1】

- 1) 財経新聞（2019年11月28日）、「東工大、マイクロ波によるバイオマスの超急速熱分解に成功 低炭素社会実現に期待」  
[https://www.zaikei.co.jp/article/20191128/541569.html?utm\\_source=news\\_pics&utm\\_medium=app](https://www.zaikei.co.jp/article/20191128/541569.html?utm_source=news_pics&utm_medium=app)
- 2) 環境展望台（2019年11月25日、「東工大など、マイクロ波によるバイオマスの急速昇温・熱分解プロセスを改良」<https://tenbou.nies.go.jp/navi/metadata/104674>）
- 3) 東工大ニュース（2019年11月25日、「マイクロ波を用いバイオマスの超急速熱分解を実現 精密制御の半導体マイクロ波発振器による高効率加熱」  
<https://www.titech.ac.jp/news/2019/045674.html>）

#### (5) 本研究費の研究成果による受賞

- 1) The Excellent Paper Award (Oral Presentation), “Rapid microwave-assisted pyrolysis of lignocellulose by the solid-state microwave generator”, The 8th Asian Conference on Biomass Science 2020, Japan Institute of Energy, On-line, January, 2021.
- 2) 2020年度日本エネルギー学会 進歩賞（学術部門） 「マイクロ波を用いた高効率バイオマス変換プロセスの開発」令和2年
- 3) 日本エネルギー学会 第14回バイオマス科学会議 ポスター賞2019年1月17日（於、東広島芸術文化ホールくらら）中迫友希，椿俊太郎，西岡将輝，和田雄二：日本エネルギー学会 第14回バイオマス科学会議（2019） 「シングルモードマイクロ波を用いたリグノセルロース系バイオマスの急速熱分解」

## IV. 英文Abstract

## Development of Rapid Carbonization System of Biomass Using Microwave Heating

Principal Investigator: Shuntaro Tsubaki

Institution: Tokyo Institute of Technology, Meguro, Tokyo, JAPAN

Tel: +81-3-5734-3418 / Fax: +81-3-5734-2879

E-mail: [tsubaki.s.aa@m.titech.ac.jp](mailto:tsubaki.s.aa@m.titech.ac.jp),  
[shuntaro.tsubaki@gmail.com](mailto:shuntaro.tsubaki@gmail.com)

Cooperated by:

[Abstract]

Key Words: Biomass, Microwave, Pyrolysis, Carbon material, Semiconductor amplifier, Cavity resonator

In recent years, the spread of renewable energy, such as solar and wind power, is becoming an important energy source to drive industrial chemical processes. Microwave heating enables efficient heating of materials by electric power via direct, rapid, and internal heating properties. Thus, the microwave chemical process is expected for on-demand material production by efficiently converting electric power with large fluctuations into energy required for chemical reactions. Moreover, a semiconductor microwave generator is becoming a game-changing tool in microwave chemical processes. Semiconductor microwave generator allows precise control of power, frequency, phase with a highly sharp oscillation spectrum. This research demonstrated the effective use of highly controlled microwaves by semiconductor microwave generators to convert biomass into valuable chemicals by pyrolysis. Conventional biomass pyrolysis was a less energy-efficient process because of the high-temperature reaction condition at 500–700 °C, and low thermal conductivity and high-water content of biomass feedstock. Therefore, we have newly developed a new microwave carbonization furnaces equipped with a semiconductor microwave generator (915 MHz and 2.45 GHz) and cavity resonators (electric and magnetic fields) and applied them to pyrolysis of various biomass such as cellulose, lignin, rice straw, barley straw, bagasse, rice husk, chlorella, bamboo, Japanese cedar, and palm shell. We have demonstrated the rapid heating of cellulose and lignin without using microwave susceptors by applying high-intensity microwaves generated by the present microwave apparatus. Moreover, rice straw was very rapidly pyrolyzed by 330 °C / sec. Magnetic-field cavity resonator was found effective in heating carbonized biomass which was prepared by microwave electric-field. Along with the rapid pyrolysis of biomass, valuable chemicals such as the hydrogen-rich syn-gas, tar predominantly composed of aromatic compounds, and carbon materials with an amorphous structure were obtained. Finally, we have developed a scaled-up system of semiconductor microwave furnaces using a large size cavity resonator with a high-quality factor (915 MHz) and a flow-type magnetic field microwave furnace (2.45 GHz). These scaled-up systems were useful for the pyrolysis of bamboo in a larger scale and continuous mode.