

〔論文〕

落ち葉を使ったペレット材の高圧合成とその熱物性

—新しいエネルギー源の探索—

巨海 玄道^{*1}・林 佳彦^{*2}・平野 貞三^{*3}
原田 翔平^{*3}・中田 智大^{*3}・中村 美紗^{*3}
中村 文彦^{*3}・野田 常雄^{*3}・江藤徹二郎^{*4}

Physical Properties of Pressure-prepared Pellets of Dead Leaves
—Search for a new energy source—

Gendo OOMI^{*1}, Yoshihiko HAYASHI^{*2}, Teizo HIRANO^{*3}
Shohei HARADA^{*3}, Tomohiro NAKATA^{*3}, Misa NAKAMURA^{*3}
Fumihiko NAKAMURA^{*3}, Tsuneo NODA^{*3}, and Tetsujiro ETO^{*4}

Abstract

A pellet of dead leaves was prepared under high pressure. The physical properties, such as mechanical properties, thermal analysis, and combustion experiments were investigated under ambient pressure. The time from the initiation of ignition to that when ash was completely burned was found to be related to the compressibility of pellets: the time of pellets with large compressibility was shorter than that of pellets with small compressibility. From the thermal conductivity measurements, the pellets were found to exhibit low thermal conductivity, suggesting that the pellets were used as a thermal insulating material. The differential thermal analysis and thermogravimetric analysis exhibited some anomalies corresponding to the water evaporation and ignition temperatures as well as to the disappearance of red hot state.

Key Words : high pressure, pellet material, ignition, differential thermal analysis, thermogravimetric analysis, compressibility.

1. 緒 言

化石燃料や原子力等はこれまで人類が使ってきたエネルギー源として代表的な例であるが前者は枯渇の問題また後者は環境問題に直面している。最近環境にやさしく、自然を損なわないようなスタイルのエネルギー源の探索が行われている。海洋発電や風力発電などはその典型的な例である。その中で新しい植物由来のエネルギー源としてペレット材が注目されている。ペレット材は広くカーボンニュートラルな材料として注目されており例えば東峰村ではストーブの燃料⁽¹⁾として使用されている。運転時の二酸化炭素の発生量はエアコンの1/4、ガスや石油の1/8と推定されている。さらに我が国では03年には数千トンの生産量であったが2013年にはそれが7万8千トンを超す生産量と増加していることがわかっている。これらは風倒木や建築廃材などを原料として作られ、現在市販されているものもある。しかしこれらの材料は供給がやや不安定である。我々は今般原料として毎年市街地や山間部などで大量に且つ安定に得ることができる落ち葉に注目してそれを原料としてペレット材の創製を試みた。本稿では圧力を用いてペレット材の合成が可能であることを報告し基礎的な物性の測定を行い、具体的な実用材料への応用の可能性を検討した。

2. 高圧を使った落ち葉ペレット材の作成法

本研究で使用したプレスは図1に示されるような東京衡機製の50トン油圧万能試験機であった。この装置は本学の機

^{*1} 基幹教育センター, ^{*2} 機械システム工学科, ^{*3} 教育創造工学科, ^{*4} 建築・設備工学科
平成29年12月1日受理



図1. 東京衡機製50t 油圧万能試験機 (本学材料力学実験室 林研究室)

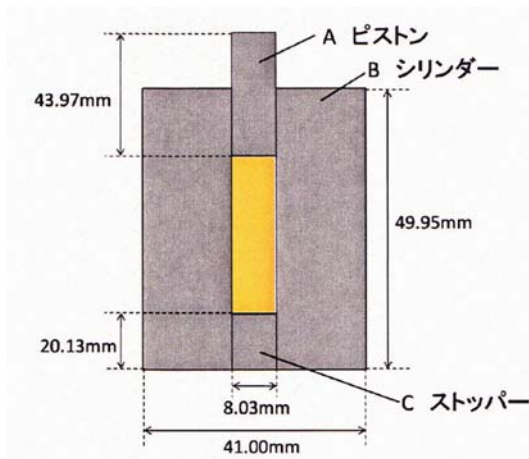


図2. 本実験で使った高圧発生用ピストン・シリンダー装置

表1. 作成したペレット材の例と作製条件

作成条件	作成したペレット材			
合成圧				
0.28 GPa	イチョウ	ササ	竹のおがくず	
0.57 GPa	イチョウ	ササ	竹のおがくず	サクラ
0.85 GPa	イチョウ	ササ	竹のおがくず	

械工学科にかなり以前に設置されたもので長く使用されていなかった。高圧発生はステンレス鋼製のシリンダーと WC 製のピストン（8 mmφ）を使った。加圧は室温で20~30分/ton 程度の速さで行った。所定の荷重に達した時約10分程度圧力を保持し、その後やはり同じようなスピードで減圧をした。本研究で使用した落ち葉は多くの福岡市内の公園、街路、八女市近傍の竹林、あるいは本学のキャンパス内で採集されたものである。それを屋内で一ヶ月程度置き乾燥させた。乾燥した落ち葉はミキサーにかけメッシュを通して微粉末とした。使用した高圧装置の概観を図2に示す⁽²⁾。

図3にこのようなプロセスを経て作成されたペレット材（サイズは大体、8 mmφ×11mm 程度）の例を示す。大きさはほぼ一定しており、数メートルの高さからコンクリートの床に落としても壊れることはなかった。ペレットの硬さ（圧縮率）は原材料によるが以下の節で述べるように硬さと燃焼の性質は密接に関連していることがわかる。以下、各種実験について述べて行く。

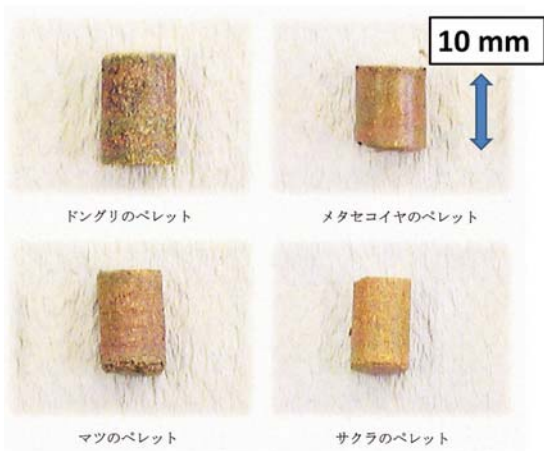


図3. 作成されたペレット材の例

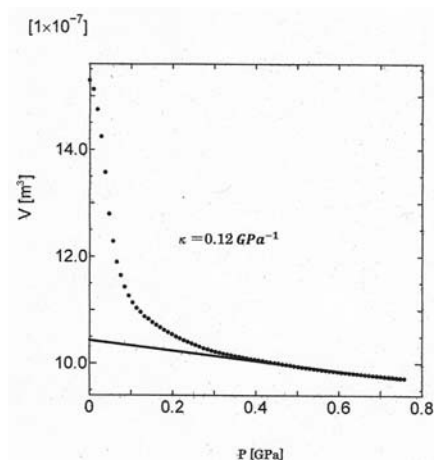


図4. ササの葉ペレット材の圧縮曲線

3. 実験法とその結果

本研究では高圧技術を使って作成した落ち葉ペレット材に対して多くの実験を行った。この章においては各々について実験法とその結果について述べる。

3・1 圧縮率の測定

2で述べたようなプロセスを経て作成された各種落葉の微粉末の圧縮率は図2のピストンシリンダーを用いて粉末を直接圧縮しピストンの進み即ち微粉末の体積の変化を求めた。図4にササの葉ペレット材に対する結果を示す。粉末を圧縮するのであるから体積は急激に小さくなるがこれは粉末の体積を測定しているのではなく、微粉末の境界の空間に存在する隙間や空気などを圧縮しているからである。しかし0.2 GPa以上になると圧縮曲線は変化が緩慢になり、固化した粉末を圧縮していることになる。圧縮率 κ は、 $\kappa = -(1/V)(\partial V/\partial P)$ 、と定義されるので図4の $P > 2$ GPaのデータを図に示すように直線近似することによって傾きを求め κ の値を計算した。 κ の値は0.12 GPa⁻¹であり、桜ペレットの値とほぼ同じであった。しかしイチヨウペレットは0.25 GPa⁻¹となり、桜やささの葉のペレットより2倍近く軟らかいことが分かった。 κ の誤差は10%程度である。後に示すようにこの圧縮率の値は火持ち時間と密接に関連していることが明らかとなった。

3・2 燃焼試験

このようにして作成されたペレット材の燃焼試験をおこなった。燃焼実験は大まかな燃焼状態を知るためにヒーターを通电状態にし、その上に金属の網を載せ、その上に材料を載せ発火までの時間、そして火が消えてしまう時間などを測定した。大体一個のペレットを作るのに桜の場合は枯葉が3～5枚必要であった。このため初めに3枚の枯葉を網の上に載せ、発火時間を測定した。その結果枯葉そのものは数秒後に燃えはじめ、すぐ燃え尽きた。桜ペレット材の例を図5に示した。(a)はヒーターに載せた直後である。(b)は約1分後ペレット材は発火し炎を上げて燃えている。更に4分後(c)に示すようにヒーターの上から断熱板の上に移動しているにも拘らず、ペレット材は依然として火を保った状態である。(d)は7分30秒後の写真であるが炭のような状態で依然として赤熱した状態である。結局桜ペレットは17分10秒後に鎮火した。このような燃焼の仕方は何に起因するのだろうか。ペレット材の燃焼は外から酸素を取り込みつつ燃える拡散燃焼であると考えられる。ペレット材の外は空気と接しているのですがこのタイプの燃焼と考えられるがペレット材の中は空気と遮断されているため、酸素が供給されず、なかなか燃えにくい。このことが空気と接触面積が大きい落ち葉そのものの燃焼と大きく異なるところである。従って長い時間をかけてペレット材の中に酸素が入り込み、図5のような燃え方をすることになっていると考えられる。

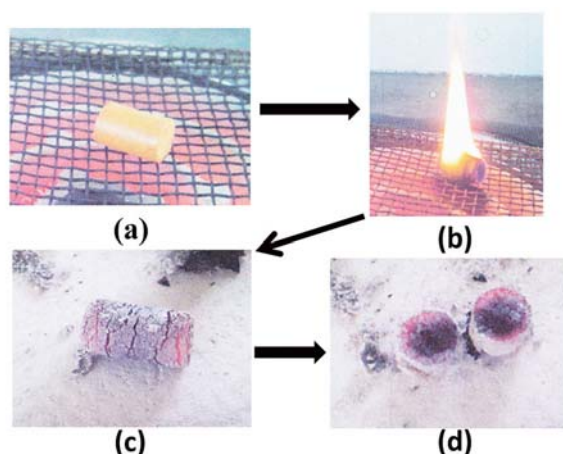


図5. ヒーターの上に載せた桜ペレットの燃焼状態

ペレットが燃え始めて赤くなり、鎮火するまでの時間を「火持ち時間」と定義すると、ささの葉ペレットは610秒、桜ペレットは661秒であった。この火持ち時間と圧縮率の関係を調べてみた。図6に火持ち時間と κ の関数として示している。 κ が大きくなると火持ち時間は短くなることがわかる。即ちペレット材の硬さが大きくなると火持ち時間は長くなることになる。

次に定量的に燃焼状態を調べるため外から炉内が見える窓付きの電気炉（城田電気炉材（株），SUPER399）を使って発火点 T_i を調べた。測定は炉内のホルダーにペレット材を載せ、温度をモニターしつつ目視で発火することを確認した。竹のおがくずペレットと桜ペレットの T_i はそれぞれ288℃及び337℃と求まった。Lindemann の融解公式によれば物質の融解点 T_m はデバイ温度の2乗に比例する⁽³⁾。デバイ温度は物質の硬さに比例することが知られている⁽⁴⁾。 T_i は物質の融解点 T_m に比例すると仮定すれば T_i は硬い物質ほど高くなると考えてよい。図6より竹のおがくずペレットは桜ペレットより軟らかいので T_i は桜ペレットの方が高くなることになり、本研究の結果と定性的に合うことになる。

最後にペレット材を燃料として使う可能性について考える。木質ペレット材の生産量は平成15年～23年の間に実に20倍も増加している。これはペレット材がバイオマス燃料の一つとして急速に普及していることを意味する。その用途は公共施設におけるボイラーやストーブまた火力発電所の燃料などである。その際の燃料の有効性の目安としては燃やした後の灰の量であろう。これが多いと燃料としては向かない。燃焼実験の後残留した灰の量を調べた。結果を表2に示す。

表2. 燃焼実験で残った灰の量

試料名	質量 (g)	灰の量 (g)	燃焼後の灰の割合 (%)
ササの葉ペレット	1.275	0.251	19.7%
竹の粉ペレット	0.376	0.008	2.13%
サクラの粉ペレット	0.070	0.008	7.08%
サクラの枝	0.539	0.012	2.23%
サクラの葉	0.072	0.009	12.5%

最大の残存量はササの葉ペレットで19.7%であった。他方最も少ないのは2.13%の竹のおがくずペレットであった。従って少なくとも本研究の結果に関する限り竹のおがくずペレットは燃料として卓抜していると考えてよい。

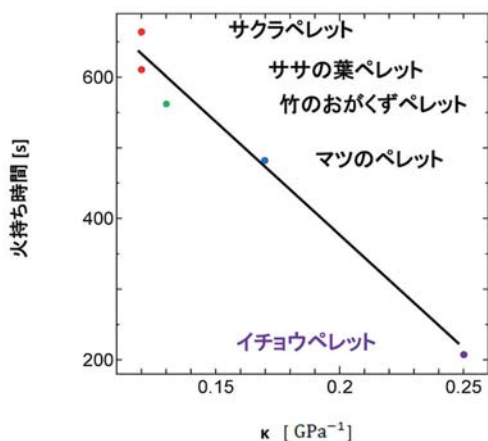


図6：火持ち時間と圧縮率の関係

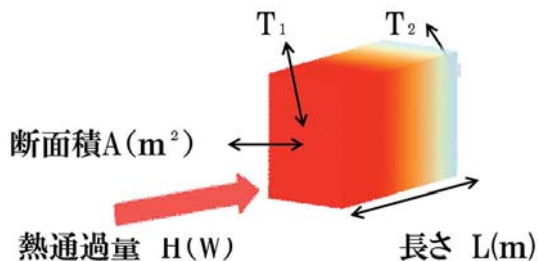


図7. 熱伝導測定模式図

3・3 熱伝導の測定

ペレット材は絶縁体であり、熱伝導がよくないことは容易に予想できる。イチョウの木が火事を防ぐのはよく知られたことである。従ってペレット材の断熱材としての応用として熱伝導率の測定を試みた。はじめに熱伝導率の測定について簡単に述べる。図7のように断面積 A (m^2)、長さ L (m) の矩形の物体を通過する熱量が H (W) であるとする。両端の温度がそれぞれ T_1 、 T_2 とする。この時熱伝導に関して以下の式が成り立つ。

$$H = \frac{\Delta Q}{\Delta t} = \kappa A \frac{T_1 - T_2}{L} \quad \dots\dots (1)$$

ΔQ 、 Δt はそれぞれ微小熱量と時間である。 κ (W/Km) が熱伝導率である。(この κ は3-1で用いた圧縮率と同じであるが、以後の議論に大きく影響しないと考えられるので同じ文字とした) H 、 A 、 L は一定なので結局 κ は $\Delta T = T_1 - T_2$ に逆比例することになる。実際の測定装置を図8に示す。これは全くの手作りの装置でペレット材試料を2つ

の銅ブロックで挟み、片方を暖め（温度 T_1 ）、他方のブロックの昇温を計る（ T_2 ）と言う簡単なものである。従って測定値は大きな誤差を含むが大体の傾向は掴むことができる。

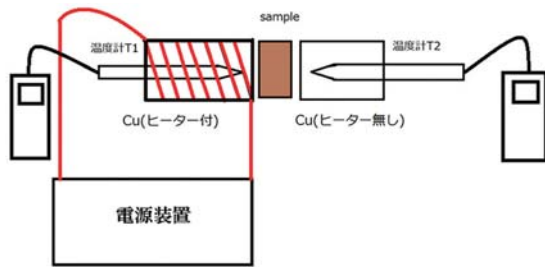


図8. 熱伝導測定装置

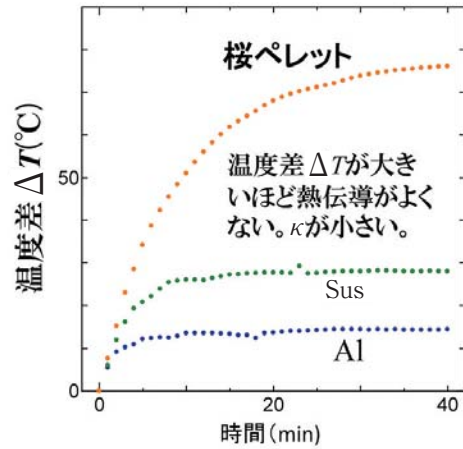


図9. Al, Sus, サクラペレットの比較

図9に測定結果の一部を示す。ヒーターに通電して温度を上げると時間がたつにつれて銅ブロックの温度差 ΔT は大きくなるが40分程度時間がたつと上りが収まり定常状態になる傾向がみられる。アルミニウム、ステンレス、及び桜ペレットの熱伝導率 κ をそれぞれ $\kappa(\text{Al})$, $\kappa(\text{S})$, $\kappa(\text{C})$ とすれば、測定の結果、 κ の大きさは $\kappa(\text{Al}) > \kappa(\text{S}) > \kappa(\text{C})$ の順序であった。Al とステンレスの κ は約1桁違うことを考えればペレット材の κ はAlの約4～5桁程度小さくなると予想される。イチヨウやマツなどのペレット材に対してもこの傾向は変わらなかった。このことは落ち葉ペレットが高い熱絶縁効果があることを示しており、新しいペレット材の応用例の一つとして考えてよい。本研究では熱伝導率の絶対値を求めることはできなかったが以下のように推測からペレット材の κ の値の見積もりをしてみた。アルミニウムやステンレス、木材等の既知の値⁵⁾と本研究で得られた熱伝導の値の比較から、ペレット材の κ の値は $\kappa = 0.02 \sim 0.04$ ($\text{W}/\text{m} \cdot \text{K}$) と見積もられた。この大きさは最近の市販の断熱材グラスウールやポリスチレンフォーム等と同じ程度である。フェノバード ($\kappa = 0.019 \text{ W}/\text{m} \cdot \text{K}$) よりは大きい。いずれにせよペレット材は良質の断熱材としての利用価値があることが示された。ただし、ペレット材の発火点は3.2で述べたように300℃近傍であるため、使用範囲はこの温度以下となる。一般家庭の壁や床などには使用可能と思われる。

次にペレットの合成圧と熱伝導率との関係について述べる。図10にイチヨウペレットの ΔT vs. t 曲線をいろいろな合成圧下で示した。合成圧が高くなるにつれて曲線は下へ移動することがわかる。 $\Delta T \propto \kappa^{-1}$ なので、このことは熱伝導率が大きくなることを意味している。例えば加熱後40分のデータから合成圧0.85 GPa の κ の値は0.28 GPa の値に比べて約10%大きくなっている。このことは合成圧が高くなると密度の高いペレット材が合成されることによるものと考えてよい。このことをもう少し詳しく調べたものが図11に ΔT が圧力の関数として示されている。3つのペレット材とも合成圧が上がると ΔT は小さくなり、 κ の値は増加することがわかる。竹のおがくずとササの葉の場合と同じような圧力

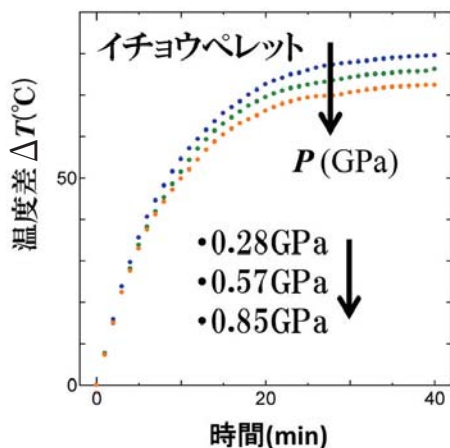


図10 合成圧と熱伝導率

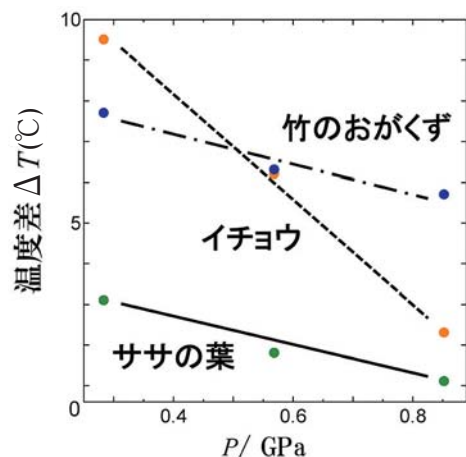


図11. ΔT と合成圧の関係

変化を示したがイチョウの場合はその増加率は大きい。このことは図6の結果を見れば明らかである。イチョウペレットの圧縮率はササの葉や竹のおがくずに比べて2倍以上も大きく、ペレットの密度は合成圧に大きく依存する。ペレット材の密度も大きな圧縮率を反映して合成圧力で大きく変わると考えられるので、イチョウペレットの熱伝導率は大きく変化することになる。このようにペレット材の圧縮率はこれらの物質の性質を支配する重要な因子である。

3・4 熱重量測定 (TG) と示差熱測定 (DTA) の結果

TG と DTA の測定は(株)日立ハイテクサイエンス TG/DTA6300を用いて行った。DTA や TG は物質の相転移、反応の種類の特定するに使用される簡便な手段である。図12に TG の測定例を示す。室温から温度を上げると初めに小さな減少を示す。この領域をAと名付ける。さらに温度を上げると大きな質量の減少が200~300℃の間で起こっている。この領域をBとする。温度をさらに上げると450℃付近から急激な減少がみられる。この領域をCとする。これは木材の燃焼の過程を示している。領域Aはペレット材に含まれる水によるものである。蒸発した分、重さは減少している。領域Bは木材の成分が熱分解され、最終的に300℃近傍で発火することに対応している。450℃付近から図5の(c), (d)の状態になっていたものが一酸化炭素が酸素と化合して燃焼して灰になる過程に対応していると考えてよい。図13に DTA の結果を示す。60℃近辺の小さなくぼみは吸熱反応で領域Aでの水分の蒸発によるものである。次に T_2 、 T_3 での反応は発熱反応である。これらはいずれも領域B、Cに対応している。 T_3 は燃焼の終わりに対応する温度である。

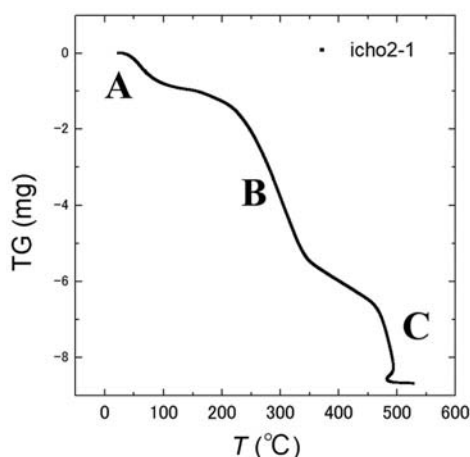


図12. TGと時間

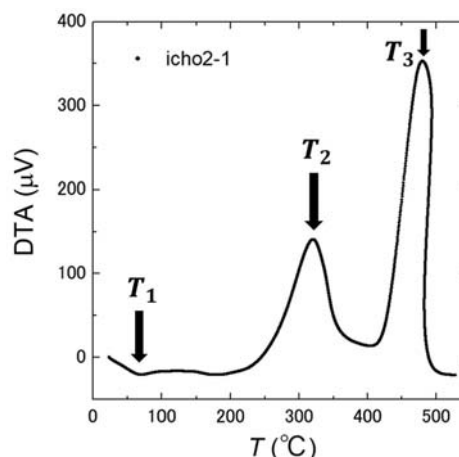


図13. イチョウの DTA

3・5 熱膨張の測定

熱膨張はダイヤルゲージを用いて求められた。ダイヤルゲージの測定精度を考慮して長さ約1 cmのペレット材を3本つないで行った。標準物質として銅を用いた。本装置は熱膨張を粗く測定するもので絶対値を求めるのは難しいが測定値を解析の結果一応熱膨張係数 α (K^{-1}) のオーダーだけは信頼できることが分かった。銅の α は室温付近で 16.5×10^{-6} と報告されている⁽⁵⁾。これを基にしてサクラペレットの熱膨張係数を求めると 3.4×10^{-4} 程度となり、銅の2桁程度大きいことが分かった。竹のおがくずペレットの長さは60℃付近から急に伸び始めた。この原因は現在の所よくわかっていないが DTA や TG の測定結果からペレット内に含まれていた水が原因ではないかと思われる。より詳細な議論をするためには本実験より精度の高い実験が望まれる。

4. 結語と謝辞

本研究は平成26年度の原田翔平と中田智大の卒業論文をまとめ、更に示差熱測定や熱質量分析の結果を加え、簡単な考察を加えたものである。本研究の結果より山林や市街地に多く存在する落ち葉について高圧という手段を用いれば燃料としての可能性ばかりでなく断熱材としての用途が考えられることを明らかにした。これらの結果はこれまで高圧討論会や物理学会で発表してきたが多くの人の興味を引いたばかりでなく、多くのアドバイスを頂いた。

本論文をまとめるに当たり燃焼学には全く素人の著者(巨海)に基礎的な知識から応用に至るまで多くの貴重なアドバイスを与えていただいた久留米工大名誉教授渡邊孝司先生に深く感謝いたします。定年後も活発な研究活動を続けて

いる先生に大いに鼓舞されました。本学今泉勝己学長には多忙にも拘わらず広い視点から貴重なコメントをいただきました。又八女市役所の平島隆夫氏、バンブーテクノ（株）の安田信彦氏、近藤宏章氏には竹の試料を提供していただき、多くの重要な情報を与えて頂きました。ここに深く感謝したいと思います。

文 献

- (1) 例えば、西日本新聞2010年2月16日の朝刊。
- (2) 高圧装置については以下の文献を参考にせよ。 , G.Oomi and T.Kagayama, Physica B, Vol.239 (1997) pp.191-197.
- (3) J.M.Ziman, Principles of the Theory of Solids (2nd edition), p.64.
- (4) C.Kittel, 固体物理学入門（第7版）, p. 135
- (5) 例えば、金原寿郎編, 基礎物理学（上）（裳華房）, などを見よ。