

[木材学会誌 Vol. 51, No. 6, p. 402-407 (2005)]

## 樹皮炭と木タールから調製した成型炭\*1

川本邦男\*2, 林 寛\*3, ミフタフル・フダ\*4, 喬 文明\*4, 持田 勲\*5

Molded Charcoal Prepared from Bark Charcoal  
and Wood Pyrolysis Tar\*1Kunio KAWAMOTO\*2, Hiroshi HAYASHI\*3, Miftahul HUDA\*4,  
Wenming QIAO\*4 and Isao MOCHIDA\*5

Bark chips of *Acacia mangium*, which are produced as wood waste by an Indonesian pulp factory, were carbonized to powdered charcoal at a temperature range between 300~400°C. The by-product, tar, was mixed with the powdered charcoal, molded, and formed into charcoal having uniform shape, sufficient strength, and constant ignition followed by stabilization and/or carbonization. The effects of the process – stabilization without carbonization and carbonizing temperatures – were also investigated from an environmental viewpoint, i.e., the conservation of energy. Only stabilization for 4 h or carbonization below 400°C without stabilization yielded sufficient hardness; however, the faint odor of wood tar persisted. Stabilization followed by carbonization below 400°C or stabilization for 20 h without carbonization completely eliminated the odor with increasing hardness. The heating value of the molded charcoal that was carbonized at 600°C with or without stabilization was the highest, and its ignition temperature was also high. Despite a low heating value, the molded charcoal carbonized at 300°C without stabilization was considered to be suitable for ignition due to its lowest ignition temperature of 233°C. The molded charcoal, which was carbonized at 900°C after stabilization, was activated by steaming for 60 min at 900°C. The yield was 36 wt% and its surface area was 615 m<sup>2</sup>/g, which is rather moderate as compared with that of the activated carbons obtained from wood waste.

**Keywords:** wood pyrolysis tar, charcoal, molding, bark chip, acacia.

インドネシアのパルプ工場から廃材として発生するアカシアマンギウム (*Acacia mangium*) の樹皮 (繊維とチップの混合物) を炭化 (推定300~400°C) し樹皮炭とした。その際副生する木タールと樹皮炭の粉炭を混合し、一定の形状・強度・燃焼性を有する成型炭の製造を試みた。成型炭は、混合、成型、不融化、および炭化の順序で調製した。省エネルギーの観点から、不融化処理のみの影響、または炭化温度の影響についても調べた。4時間の不融化処理のみ、もしくは不融化せずに400°C以下の低温で炭化をして得られた成型炭は、タール臭は強いものの十分な硬度

\*1 Received July 27, 2004; accepted June 3, 2005. 本報の一部は、Energy & Agricultural Carbon Utilization Symposium (2004年6月, 米国ジョージア州) において発表した。

\*2 株式会社環境総合テクノス環境評価部 Environmental Assessment Department, The General Environmental Technos Co., Ltd., Osaka 541-0052

\*3 関西電力株式会社電力技術研究所 Power Engineering Research and Development Center, The Kansai Electric Power Co., Ltd., Hyogo 661-0974

\*4 九州大学先端物質化学研究所 Institute for Materials Chemistry and Engineering, Kyushu University, Fukuoka 816-8580

\*5 九州大学産学連携センター Art, Science and Technology Center for Cooperative Research, Kyushu University, Fukuoka 816-8580

を示した。4時間の不融化処理後、300℃もしくは400℃で炭化をするか、不融化処理のみを20時間行って得られた成型炭では臭気が消え、硬度が高くなる傾向が見られた。不融化処理の有無に係わらず600℃で炭化をした成型炭は発熱量が高くなる傾向を示し、着火温度が上昇した。一方、不融化せずに300℃で炭化した成型炭の発熱量は高くないものの、着火温度は233℃で、着火用として適していると考えられる。不融化処理後、900℃で炭化して得られた成型炭を賦活処理して活性炭を調製したところ、900℃、60分間の水蒸気賦活によって、収率36 wt%、表面積615 m<sup>2</sup>/gの活性炭を得た。廃木材由来の活性炭と同程度の表面積となった。

## 1. 緒 言

近年、間伐材、製材所の木屑、樹皮、パルプ廃材などの木質バイオマスを放置や廃棄することが難しくなってきたが、一部をバイオマス発電等へ利用する試みが進められている。木質バイオマスは再生可能な植物由来の炭素源であるので、化石燃料の代替として二酸化炭素排出削減のために、エネルギー資源あるいは材料への利用が期待されている<sup>1)</sup>。このような木質バイオマスを炭化し、固形燃料あるいは機能性炭素材<sup>2-5)</sup>を製造することが試みられている。大量に発生する木質バイオマス利用のひとつとして、インドネシア・スマトラ島のパルプ工場から発生する樹皮を炭化し、得られた樹皮炭を固体燃料、土壤改良材、もしくは活性炭として活用するプロジェクト (CFC; Carbon Sequestration by Forestation and Carbonization) が提案されている<sup>6)</sup>。アカシアマンギウム (*Acacia mangium*) などの植林樹は、インドネシアなど熱帯地域でパルプ原料等として大量に植林され、消費されている。パルプを製造する際、大量に発生する廃材を炭化し、燃料、土壤改良材、もしくは水質浄化材用活性炭に用いることができれば、木質バイオマスの利便性を高めることができる。さらに、化石燃料や化学肥料等の代替として樹皮炭を利用すると、化石燃料の使用量削減が期待できる。また、土壤改良材として利用すると、化石燃料の燃焼によって大気中に放出された二酸化炭素を再び地中に戻して安定に固定できるとしている。なお、木質炭化物の地中における安定性については科学的なデータはほとんどないが、オゾンをも木質炭化物に暴露し、オゾンに対する安定性を検討した結果、大気中のオゾンによる分解の半減期は約5万年と推定されている<sup>7)</sup>。

インドネシアでの炭化事業を想定すると、上記のパルプ工場から廃棄されるアカシアマンギウムの樹皮は炭化すると一部は粉炭になるため、土壤改良等の用途に限られてしまう。そこで著者らは入手した樹皮チップを炭化し樹皮炭とし、炭化に際して副生する木タールを樹皮炭の粉炭と混合・成型し、不融

化および炭化処理によって一定強度を有する成型炭の製造を試みた。

## 2. 実 験

### 2.1 炭化および木タール収集

ドラム缶型の縦型簡易炭化炉 (Fig. 1) を用いてアカシアマンギウムの樹皮 (直径0.1~1 mm, 長さ2~5 cmの繊維と、幅0.5~1.5 cm, 長さ4~6 cmのチップの混合物) を炭化し、樹皮炭を得た。樹皮炭の揮発分は約20%であった。樹皮を蓋つき坩堝に60 g 添加し、あらかじめ300~700℃まで昇温した電気炉 (KOYO LINDBERG 製: REX-C410) に入れ、炭化処理を行った。各炭化温度で得られたこれらの樹皮炭の揮発分を測定し、揮発分と炭化温度の相関関係を求め、この結果から今回の縦型簡易炭化炉による炭化温度を300~400℃と推定した。また、炭化炉出口ガス温度は180~290℃、煙突出口ガス温度は60~105℃であった。斜行煙突部の底部で採取した木酢液を静置し、木タール (樹皮タール) を分離収集した。樹皮に対する木酢液の収率は約30~35%で、木酢液に対する木タールの収率は約3.0%であった。

### 2.2 成型炭の作製

樹皮タール40 wt%と、粉碎して得られた粒度50 μm 未満の樹皮炭60 wt%を、乳鉢で30分間混合し、20 MPa でタブレット状 (直径20 mm × 厚さ10 mm)

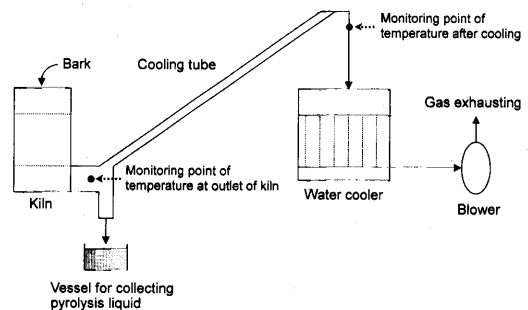


Fig.1. Schematic view of the kiln and system for collecting pyrolysis tar from bark. Size of the kiln is 800 mm in diameter and 1,300 mm high. The volume is 400 L.

Table 1. Preparation conditions of the moulded charcoal.

Sample No.	Stabilization condition				Carbonization condition				Yield (wt%)	Bulk density (g/cm <sup>3</sup> )	Shrinkage (vol%)	Tar odor <sup>4)</sup>
	HR <sup>1)</sup> (°C/min)	TT <sup>2)</sup> (°C)	HP <sup>3)</sup> (hr)	Gas	HR (°C/min)	TT (°C)	HP (hr)	Gas				
0	2	200	4	air	-	-	-	-	83.0	0.80	0	++
1	-	-	-	-	5	300	2	Ar	69.6	0.76	-2	+
2	-	-	-	-	5	400	2	Ar	67.3	0.76	-1	++
3	-	-	-	-	5	600	2	Ar	63.9	0.75	4	-
4	-	-	-	-	5	900	2	Ar	60.4	0.80	16	-
5	2	200	4	air	5	300	2	Ar	73.2	0.78	-1	-
6	2	200	4	air	5	400	2	Ar	69.0	0.76	0	-
7	2	200	4	air	5	600	2	Ar	61.4	0.75	6	-
8	2	200	4	air	5	900	2	Ar	56.2	0.82	20	-
9	2	200	20	air	-	-	-	-	82.0	0.80	0	-
10	-	-	-	-	5	300	4	Ar	70.1	0.77	-2	+

<sup>1)</sup> Heating rate

<sup>2)</sup> Target temperature

<sup>3)</sup> Holding period

<sup>4)</sup> ++, strong; +, medium; -, no

に加圧成型した。これを不融化处理, 炭化处理, もしくは不融化处理後に炭化处理して成型炭を得た。

不融化处理では, 加圧成型後, 酸化を目的に空気を通し, 昇温速度 5°C/分で200°Cまで昇温後, 4時間保持した。炭化处理では, Ar ガスを用い, 昇温速度 5°C/分で300~900°Cまで昇温後, 2時間保持した。

比較検討用の成型炭として, 炭化处理なしで不融化温度200°Cで20時間保持したもの, もしくは不融化处理をせず300°Cで4時間炭化した成型炭も調製した。

成型炭の収縮率を求めるにあたっては, まず, 成型して得られたタブレット状成型体の直径 ( $D_i$ ) および厚さ ( $H_i$ ) を測定し, 成型炭 No. 0 および No. 9 については不融化处理後, それ以外の成型炭については炭化处理後に直径 ( $D_t$ ) および厚さ ( $H_t$ ) を測定した。その後, 以下の式(1)に従って収縮率( $R_s$ )を算出した。

$$R_s = \left(1 - \frac{D_t^2 \times H_t}{D_i^2 \times H_i}\right) \times 100 \quad (1)$$

高温炭化で製造され硬度の高い木炭の代表として市販の備長炭(ウバメガシ, 南部川村森林組合製), および比較的低温で炭化され硬度が低めの木炭の代表としてナラ炭(ナラ, 有限会社谷地林業製)を選び, 対照試料として分析を行った。

### 2.3 成型炭の分析

成型炭の灰分, 揮発分および固定炭素を JIS M 8812 に準じて工業分析を行い, 無水ベースでの値を算出した。

木炭の硬度測定には, モース硬度計を用いた。

発熱量は, JIS M 8814 に準じて測定した。

着火温度を確認するための燃焼試験は, チューブ式電気炉(光洋サーモシステム製: KTF045N)を用いて行った。成型炭 1 個 2.0 g を燃焼ポート (16 mm × 12 mm × 80 mm) に載せ, 電気炉に装着した石英チューブ内に挿入した。空気雰囲気下, 昇温速度 20°C/分で500°Cまで加熱し, 目視で着火を確認した。

走査型電子顕微鏡 (SEM, 日本電子製 JSM6320F) により, 成型炭の表面形態を観察した。

### 2.4 成型炭の賦活処理

不融化後900°Cで炭化した成型炭 (No. 8, Table 1) を900°Cで30~90分間, 水蒸気賦活して塊状活性炭を調製した。

塊状成型炭の比表面積 ( $S$ ) は, Sorptomatic 1990 (Fisons Instrument Co. 製) を用いて 77 K における窒素吸着等温線を測定し, BET 法で求めた。同時に細孔容積 ( $V$ ) も測定し, 表面の細孔を円筒と仮定し, 平均細孔直径 ( $d$ ) を以下の式(2)で算出した。

$$d = 4 \times V \div S \quad (2)$$

## 3. 結果と考察

### 3.1 成型炭の性状

4時間不融化处理のみの成型炭 (No. 0), および不融化处理を行わず400°C以下の低温で炭化した成型炭 (No. 1, 2 および 10) は木タール由来の臭気があった (Table 1)。しかし, 不融化处理を20時間行うと臭気はなくなった (No. 9)。不融化处理のみ, もしくは不融化处理の有無に係わらず炭化温度が低

Table 2. Proximate analysis of the moulded charcoals according to JIS M 8812

Sample No.	Ash (wt%)	Volatile component (wt%)	Fixed carbon (wt%)
0	9.2	26.6	64.2
1	10.6	19.9	69.5
2	11.2	17.0	71.7
3	11.5	10.7	77.8
4	13.7	4.1	82.1
5	10.9	21.9	67.2
6	10.2	17.3	72.5
7	11.0	11.9	77.1
8	12.2	4.5	83.3
9	9.0	27.7	63.2
10	11.2	19.7	69.1
Ubamegashi-oak charcoal	1.3	2.4	96.3
Nara-oak charcoal	2.0	5.4	92.6

Table 3. Element analysis of charcoal and tar obtained by carbonization of bark

	C	H	N	O <sup>1)</sup>	Ash
Bark charcoal	81.04	2.52	0.96	10.20	5.20
Bark tar	47.73	8.88	1.17	42.22	0.13

<sup>1)</sup> By difference

Table 4. Mohs hardness, heating value and ignition temperature of the moulded charcoals.

Sample No.	Mohs hardness	Heating value (kJ/kg)	Ignition temperature (°C)
0	2.5	27,900	331
1	2	27,900	233
2	2.5	28,200	275
3	3	28,500	346
4	3	27,700	406
5	4	27,600	320
6	3.5	27,500	310
7	3	28,200	351
8	3	28,000	442
9	3.5	26,600	335
10	3	27,500	314
Ubamegashi-oak charcoal	7	31,800	503
Nara-oak charcoal	2	31,600	415

くなる程、成型炭の収率は高くなった (Table 1)。高密度は、不融化处理のみ、もしくは不融化处理の有無に係わらず900°Cで炭化した成型炭で高くなる傾向となった。収縮率は、不融化处理の有無に係わらず900°Cで炭化した成型炭で大きくなった (No. 4 および 8)。

灰分、揮発分および固定炭素の工業分析を行った結果、成型炭は市販の備長炭やナラ炭に比べ灰分および揮発分が非常に多い特異な炭であることが分かった (Table 2)。樹皮炭に含まれる灰分は、備長炭の4倍、ナラ炭の2.6倍で (Table 3)、樹皮タールの灰分は低濃度 (Table 3) なので、この灰分の大部分

は、樹皮炭由来のものと考えられる。

成型炭を燃料用として使用する場合を想定し、モース硬度、発熱量および着火温度を測定した。成型炭は種々の条件で調製してもモース硬度2~4で、ナラ炭以上の硬度を示した (Table 4)。SEMで成型炭の表面を観察したところ、タール由来の炭素が樹皮炭の粒子を架橋して結合を強化し、硬度を向上したものと考えられる (Fig. 2-a および b)。不融化处理後、最も低温の300°Cで炭化した成型炭 (No. 5) が成型炭の中で最も高い硬度4を示した。備長炭の7には及ばなかったが、ナラ炭よりも硬度は高くなった。不融化处理後に炭化した成型炭では、硬度は

炭化温度の上昇とともに低下し (No. 5~8), 炭化温度600℃および900℃で3となった。不融化处理によってタール中のフェノール類やフルフラール類などが硬化反応し<sup>8)</sup> 硬度が向上したが, 一方, この不融化した成型炭を高温 (600~900℃) で炭化処理すると, 硬化反応したものが分解し<sup>8)</sup>, 架橋の一部が切断されて, 硬度が下がったと考えられる。不融化处理をせずに炭化した成型炭 (No. 1~4) では, 炭化温度が上がるにつれて硬度が上がったが, 硬度3が最高であった。不融化处理せずに炭化温度300℃で保持時間を2時間から4時間に延長すると硬度が2から3に上がった (No. 1および10)。不融化处理のみを行い, 炭化をしない成型炭 (No. 0) の硬度は

2.5で, 不融化处理をせずに300℃で炭化した成型炭 (No. 1) の硬度2よりも高くなり, 不融化的効果が認められた。さらに炭化处理なしで不融化处理時間を20時間に延長すると硬度は3.5まで上昇した (No. 9)。

結論としては不融化处理を行い低温で炭化するか, 炭化せずに不融化处理を長時間行うと, 硬度の高い成型炭が得られる。しかしながらさらに硬度を向上させ, 備長炭と同程度にするには, 焼成条件の最適化などが今後の課題となろう。

成型炭の発熱量は備長炭やナラ炭に比べ若干低くなった (Table 4)。これは成型炭の灰分含量が高いためと考えられる。成型炭の中では, 不融化せずに600℃で炭化した成型炭 (No. 3) が最も発熱量が高くなった。不融化後炭化した成型炭の中でも同様に600℃で炭化したものが最も発熱量が高くなった (No. 7)。従って不融化的の有無に係わらず600℃で炭化すると, H<sub>2</sub>O や CO<sub>2</sub> の発生を伴う含酸素基の分解は顕著に進行するものの, 脱水素はそれほど進まないため含水素基の割合が高くなり<sup>9)</sup>, 得られた成型炭の発熱量は高くなったと考えられる。

着火温度は不融化处理をせず2時間300℃で炭化処理した成型炭 (No. 1) が最も低く, 233℃であった (Table 4)。不融化处理の有無に係わらず900℃で炭化処理を行った成型炭 (No. 4および8) の着火温度は高くなり, それぞれ406℃および442℃であった。ナラ炭の着火温度 (415℃) と同程度, もしくは上回る温度となったが, 備長炭 (503℃) と比較すると約100~60℃低くなった (Table 4)。

### 3.2 成型炭の賦活処理

成型炭は硬度が比較的高いため, 賦活して塊状活性炭として利用できる。不融化处理後, 900℃で炭化処理した成型炭 (No. 8) を, 900℃で水蒸気賦活して塊状活性炭を調製した。得られた塊状活性炭の比表面積は60分賦活した場合, 615 m<sup>2</sup>/g と木炭由来の活性炭としては十分な表面積が造成した (Table 5)。一般的に木炭は約250 m<sup>2</sup>/g であるとされている<sup>10)</sup>。90分間賦活した場合は収率の低下が大きいが, 表面積の上昇は小さかった。現時点で得られた表面

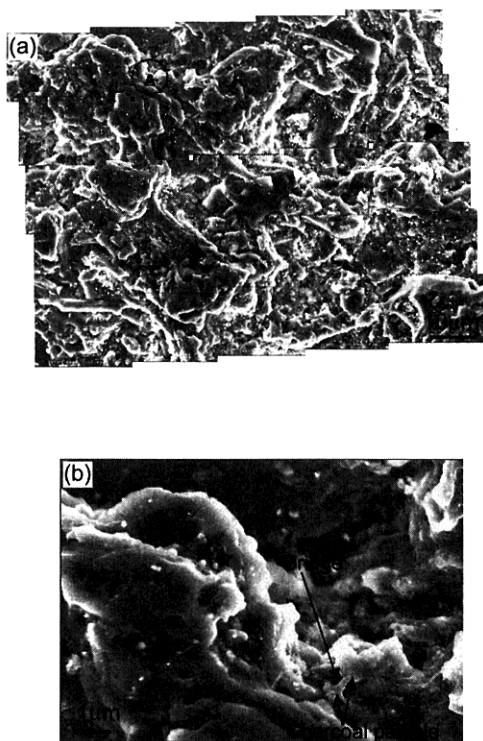


Fig.2. Morphologies of the moulded charcoal No. 8. (a) Montage, (b) magnification of circular portion A in the montage (a).

Table 5. Activation of the moulded charcoal (sample No. 8).

Sample	Activation condition		Yield (%)	Specific surface area (m <sup>2</sup> /g)	Pore volume (ml/g)	Mean pore diameter (nm)
	Activation period (min)	Gas or catalyst				
8-1	30	H <sub>2</sub> O	45	203	0.19	3.74
8-2	60	H <sub>2</sub> O	36	615	0.33	2.15
8-3	90	H <sub>2</sub> O	18	647	0.62	3.84

積は、薬剤賦活や特別な前駆体から調製した高級活性炭には及ばなかったが<sup>11)</sup>、廃木材を賦活して得られた汎用活性炭としては十分なものである<sup>12)</sup>。今後、炭化温度や賦活条件等の最適化によって、さらに表面積は大きくできると期待できる。

#### 4. 結 論

樹皮タールをバインダーとして樹皮炭と混合し、成型、不融化、炭化処理をして調製した成型炭は、市販の備長炭やナラ炭に比べて揮発分や灰分が高くなった。不融化処理後、300℃または400℃で炭化処理した場合 (No. 5 および 6)、もしくは不融化処理のみを20時間行った場合 (No. 9) は、十分な硬度を持つ成型炭を調製することできた。低温で炭化したものは、通常の木炭に比べて着火温度が低いので、着火用やバーベキュー用の木炭としての用途が考えられる。本成型炭の硬度はナラ炭以上あり、賦活することにより塊状活性炭としての利用が期待できる。表面積は薬剤賦活や特別な前駆体から調製した高級活性炭には及ばなかったが、廃木材を賦活して得られた活性炭としては充分の表面積を示すことから、廃材となっている樹皮の有効利用につながると考えられる。

#### 謝 辞

本研究の一部は、文部科学省のナノテクノロジー総合支援プロジェクトの支援を受けて実施されました。樹皮チップの輸入で協力いただいた、インドネシア共和国 PT. Tanjungenim Lestari Pulp & Paper の工場関係者、および株式会社環境総合テクノス生物環境研究所沖森泰行副所長に感謝いたします。また、ナラ炭を無償で提供いただいた有限会社谷地林業に

感謝いたします。

#### 文 献

- 1) “平成14年12月閣議決定 バイオマス・ニッポン総合戦略”, 農林水産省, <http://www.maff.go.jp/biomass/senryaku/senryaku.pdf>.
- 2) 藤原 敏, 嶋 一徹, 千葉喬三: 木材学会誌 **49**, 333-341 (2003).
- 3) Wong, S. Y., Hung, C. P.: *J. Wood Sci.* **49**, 450-454 (2003).
- 4) 安部郁夫: 炭素 **211**, 21-29 (2004).
- 5) 鈴木 勉, 光岡喜彦, 王 暁水, 山田哲夫: 第45回日本学術会議材料研究連合講演会講演論文集, 東京, 2001, pp. 41-42.
- 6) Okimori, Y., Ogawa, M., Takahashi, F.: *Mit. Adap. Strat. Gl. Change* **8**, 261-280 (2003).
- 7) Kawamoto, K., Ishimaru, K., Imamura, Y.: *J. Wood Sci.* **51**, 66-72 (2005).
- 8) Oya A.: “Introduction to carbon technologies”, Marsh, H., Heintz, E. A., Rodrigue-Reinoso, F. ed., University of Alicante, Alicante, Spain, 1997, pp. 583-584.
- 9) Kimberly A. T., Tony E. S.: *Carbon* **33**, 1509-1515 (1995).
- 10) “炭・木酢液の利用辞典”, 岸本定吉監修, 創森社, 東京, 1997, pp. 21-23.
- 11) 安部郁夫: “活性炭の応用技術”, 立本英機・安部郁夫監修, テクノシステム, 東京, 2000, pp. 17-19.
- 12) 安部郁夫: “活性炭の応用技術”, 立本英機・安部郁夫監修, テクノシステム, 東京, 2000, pp. 117-120.