

明 細 書

発明の名称：

有機原料の分解方法、それを利用した液体燃料、固体燃料、又は活性炭の製造方法

技術分野

[0001] 本発明はバイオマス、有機高分子廃棄物などの有機原料の分解方法に関するものである。

背景技術

[0002] 地球温暖化対策として温室効果ガスを低減することが試みられており、例えば、バイオマス、有機高分子廃棄物などを液体燃料や炭素材料にすることが試みられている。

例えば特許文献1には、バイオマスを1～5 MPaの圧力範囲で600～1000℃の温度で加熱しガス化して、一酸化炭素や水素を製造し、得られる一酸化炭素や水素を触媒反応によってメタノール、ジメチルエーテル（DME）や炭化水素系液体燃料（FT合成油）にする方法が記載されている。特許文献2には、200～500℃の温度、100～400 atmの圧力で水酸化ナトリウム及び触媒の存在下、加圧熱水、超臨界水、又は亜臨界水とバイオマスとを反応させ、メタン、水素、一酸化炭素などガス化ガス又は液化ガスにし、インサイドでガスタービン又はディーゼル発電機など発電システムに供給し発電燃料とする方法が記載されている。しかし、これらの方法は、バイオマスをメタン、一酸化炭素などのC1成分や液化ガスにまで分解することを主目的とするため、液体燃料の製造方法には向いていない。また高温高圧条件を必要とする点でも不利である。

[0003] 特許文献3には、木質バイオマスとプラスチックとを、溶媒としての鉱油と、必要に応じて使用される触媒（NaY型ゼオライト）の存在下、オートクレーブによって加圧共熱分解して石油代替液体燃料を製造することが記載されている。特許文献4には、バイオマスと廃プラスチックの混合原料をエ

チレングリコールなどの溶媒の存在下、オートクレーブで液化、熱分解し、バイオオイルを製造することが記載されている。これらの方法によれば、C 1 成分にまで分解することなく液体燃料やバイオオイルを製造できる。しかし、これらの方法では、分解生成物側に溶媒が混入し、分解生成物から有用成分（液体燃料、バイオオイルなど）を取り出すときに溶媒を分離する必要があって煩雑である。また高温高压条件を必要とする点でも不利である。

[0004] 特許文献5には、ゼオライトを含む触媒の存在下、流動床反応器内でバイオマスを熱分解して、C 2～C 5オレフィン、フラン、芳香族化合物などを製造することが記載されている。特許文献6には、リグノセルロース系バイオマスと熱可塑性プラスチックを常圧及び不活性ガス気流中で急速熱分解し、バイオオイルを製造する方法が記載されている。

[0005] なお液体燃料ではなく燃料ガスの製造方法ではあるが、特許文献7には、活性炭の存在下、バイオマスから燃料ガスを製造することが記載されている。

先行技術文献

特許文献

- [0006] 特許文献1：特開2008-189704号公報
特許文献2：特開2001-065364号公報
特許文献3：特開2013-170224号公報
特許文献4：特開2016-079325号公報
特許文献5：特表2016-517344号公報
特許文献6：特開2017-080662号公報
特許文献7：特開2009-046644号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] しかし、本発明者らの検討によれば、特許文献5や特許文献6の方法には改善の余地があった。すなわち特許文献5に示されるゼオライトを含む触媒

の使用を必須としなくても、液体燃料の製造効率を高めることが可能であった。また特許文献6の方法よりもバイオオイルの製造効率を高めることが可能であった。特許文献7の方法は液体燃料を製造する方法ではない。また液体燃料を製造する場合でも、活性炭の様な賦活処理が必要なものを利用しなくても、効率よく液体燃料を製造できることが分かった。

従って本発明の目的は、ゼオライトを含む触媒の使用を必須としなくても、また活性炭の様な煩雑な製造プロセスを必要とするものの使用を必須としなくても、有機原料から収率よく液体燃料を含む有用成分を製造することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 上記目的を達成し得た本発明は、以下の構成を採用するものである。

[1] バイオマス及び／又は有機高分子廃棄物を含む有機原料と人工炭素粒子（ただし、活性炭を含まない）とを流動床式分解装置に供給する原料供給工程、及び

前記流動床式分解装置にキャリアガスを導入して前記人工炭素粒子を流動させつつ、前記有機原料を分解して非固体分解成分としてキャリアガスと共に排出する一方、前記分解で生じる固体残渣を非固体分解成分と別に排出する分解工程、

を有する有機原料の分解方法。

[2] 前記分解工程で排出された固体残渣の少なくとも一部を人工炭素粒子として、室温まで冷却される前に前記原料供給工程に戻す再利用工程、を有する[1]に記載の方法。

[3] 前記分解工程で排出された固体残渣の少なくとも一部を粒度調整した後、又は粒度調整することなく、人工炭素粒子として原料供給工程に戻す[1]又は[2]に記載の方法。

[4] 前記人工炭素粒子の比表面積が $500\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である[1]～[3]のいずれかに記載の方法。

[5] 前記人工炭素粒子中の金属原子の含有量が20質量%以下である[

１］～［４］のいずれかに記載の方法。

［６］ 前記原料供給工程で、前記有機原料を、不純物除去、水分除去、粒度調整、および原料配合から選ばれる少なくとも１つの前処理を行った後、前記流動床式分解装置に供給する［１］～［５］のいずれかに記載の方法。

［７］ 前記原料供給工程で、前記有機原料、前記人工炭素粒子、及びそれらの混合物から選ばれる少なくとも１つを前記流動床式分解装置に連続的に投入する［１］～［６］のいずれかに記載の方法。

［８］ 前記バイオマスが、リグノセルロース系バイオマス、及び油脂植物系バイオマスから選ばれる少なくとも一種であり、前記有機高分子系廃棄物が合成樹脂、合成ゴム、及び合成繊維から選ばれる少なくとも一種の廃棄物である［１］～［７］のいずれかに記載の方法。

［９］ 前記原料供給工程で、前記有機原料及び前記人工炭素粒子と共に有機酸類を前記流動床式分解装置に供給する［１］～［８］のいずれかに記載の方法。

［１０］ 前記有機酸類を前記有機原料及び前記人工炭素粒子と混合してから前記流動床式分解装置に供給する［９］に記載の方法。

［１１］ 前記有機酸類が油脂由来脂肪酸、または該脂肪酸の塩である［９］又は［１０］に記載の方法。

［１２］ 前記キャリアガスが、酸素濃度３体積％以下の窒素である［１］～［１１］のいずれかに記載の方法。

［１３］ 前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分を冷却してオフガス成分と分解油に分離する気液分離工程と、前記流動床式分解装置に導入する前のキャリアガスを前記オフガス成分の燃焼によって加熱する熱回収工程とをさらに有する［１］～［１２］のいずれかに記載の方法。

［１４］ 〔１〕～〔１２〕のいずれかに記載の分解方法が有する工程に加え、

前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分を冷却してオフガス成分と分解油に分離する気液分離工程をさらに有する分解油の製造方法

。

〔１５〕 〔１４〕に記載の分解油の製造方法が有する工程に加え、

触媒の存在下、脱水素、転化、異性化、水添、水素化分解及び水素化精製から選ばれる少なくとも一つの改質処理をする工程をさらに有する改質油の製造方法。

〔１６〕 〔１５〕に記載の改質油の製造方法が有する工程に加え、

改質油を蒸留する工程をさらに有する液体燃料の製造方法。

〔１７〕 〔１〕～〔１２〕のいずれかに記載の分解方法が有する工程に加え、

前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分を冷却してオフガス成分と分解油に分離する気液分離工程と、

前記気液分離工程で得られた分解油を、沸点差及び／又は溶解度差を利用して軽質分解油と重質分解油とに分離する分解油分離工程と、

前記分解油分離工程で得られた軽質分解油を蒸留する液体燃料製造工程とをさらに有する液体燃料の製造方法。

〔１８〕 前記液体燃料製造工程で、前記蒸留の前の軽質分解油及び／又は前記蒸留後の蒸留物に対して、触媒の存在下、脱水素、転化、異性化、水添、水素化分解及び水素化精製から選ばれる少なくとも一つの改質処理を行う〔１７〕に記載の製造方法。

〔１９〕 前記液体燃料製造工程で、ナフサ、航空燃料、灯油、及び軽油から選ばれる少なくとも一種を製造する〔１７〕又は〔１８〕に記載の製造方法。

〔２０〕 前記ナフサがバイオナフサであり、前記航空燃料がＳＡＦであり、前記灯油がバイオ灯油であり、前記軽油がバイオ軽油である〔１７〕～〔１９〕のいずれかに記載の製造方法。

〔２１〕 前記分解油分離工程で得られた重質分解油、及び前記液体燃料製造工程の蒸溜で液体燃料として留出することなく残った油から選ばれる少なくとも一方を前記分解工程に戻して再処理する〔１７〕～〔２０〕のいずれ

かに記載の製造方法。

〔22〕 〔1〕～〔12〕のいずれかに記載の分解方法が有する工程に加え、

前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分を冷却してオフガス成分と分解油に分離する気液分離工程と、

前記気液分離工程で得られた分解油を、沸点差及び／又は溶解度差を利用して軽質分解油と重質分解油とに分離する分解油分離工程と、

前記分解工程で排出される固体残渣と、前記分解油分離工程で得られる重質分解油とを、混合、混練、及び混捏から選ばれる１種以上の処理を行い、その後必要に応じて成形及び／又は焼成する固体燃料製造工程をさらに有する固体燃料の製造方法。

〔23〕 前記固体燃料がバイオ石炭またはバイオコークスである〔22〕に記載の製造方法。

〔24〕 前記分解油分離工程で得られた重質分解油の一部を前記分解工程に戻して再処理する〔22〕又は〔23〕に記載の製造方法。

〔25〕 〔1〕～〔12〕のいずれかに記載の分解方法が有する工程に加え、

前記分解工程で排出される固体残渣を賦活し、その後必要に応じて精製する活性炭製造工程をさらに有する活性炭の製造方法。

〔26〕 前記活性炭がバイオ活性炭である〔25〕に記載の製造方法。

〔27〕 キャリアガスで人工炭素粒子（ただし、活性炭を含まない）を流動させつつバイオマス及び／又は有機高分子廃棄物を含む有機原料を分解し、非固体分解成分と固体残渣にする流動床式分解装置と、

前記流動床式分解装置に設けられた前記有機原料と人工炭素粒子（ただし、活性炭を含まない）とを供給する１つ以上の原料供給口と、

前記流動床式分解装置に前記キャリアガスを供給するキャリアガスラインと、

前記非固体分解成分をキャリアガスと共に流動床式分解装置から排出する

ガス排出ラインと、

を有する有機原料の分解設備。

〔２８〕 前記流動床式分解装置に設けられた前記固体残渣の取出口と、
排出された固体残渣を前記原料供給口に戻す再利用システムと、
をさらに有する〔２７〕に記載の分解設備。

〔２９〕 前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分に含まれる分解油を、オフガスと分離する気液分離槽３２をさらに有する〔２７〕又は〔２８〕に記載の分解設備。

〔３０〕 前記分解油を改質する改質炉を備えた〔２７〕～〔２９〕のいずれかに記載の分解設備。

〔３１〕 ナフサ、航空燃料、灯油、及び軽油から選択される少なくとも１種の液体燃料を分離回収するための蒸留塔をさらに有する〔２７〕～〔３０〕のいずれかに記載の分解設備。

〔３２〕 前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分に含まれる分解油を、沸点差及び／又は溶解度差を利用して軽質分解油と重質分解油とに分離する分解装置と、

前記軽質分解油を蒸留する蒸留塔とをさらに有し、

分離装置で得られた重質分解油、及び蒸留塔で液体燃料として留出することなく残った油から選ばれる少なくとも一方を前記原料供給口に戻す再分解システムをさらに有する〔２７〕～〔３１〕のいずれかに記載の分解設備。

なお、本明細書において用語「人工炭素粒子」は、活性炭を除いた人工炭素粒子の意味で用いる。

発明の効果

〔０００９〕 本発明によれば、ゼオライトを含む触媒の使用を必須としなくても、また活性炭の様な煩雑な製造プロセスを必要とするものの使用を必須としなくても、有機原料から収率よく、且つ低コストで液体燃料を含む有用成分を製造できる。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]図 1 は、本発明の分解設備の一例を模式的に示す概念図である。

[図2]図 2 は、図 1 の分解設備で使用される分解装置の一例を示す概略断面図である。

発明を実施するための形態

[0011] [原料供給工程]

本発明は、バイオマス及び／又は有機高分子廃棄物を含む有機原料と人工炭素粒子とを流動床式分解装置に供給する原料供給工程と、

流動床式分解装置にキャリアガスを導入して前記人工炭素粒子を流動させつつ、前記有機原料を分解して非固体分解成分としてキャリアガスと共に排出する一方、前記分解で生じる固体残渣を非固体分解成分と別に排出する分解工程とを有する。

本発明の方法によれば、人工炭素粒子の存在によって有機原料が適切に分解され、前記非固体分解成分に含まれる分解油（留出液）の生成収率が向上する。この分解油（留出液）は、液体燃料の原料として有用である。

[0012] 前記バイオマスとしては、炭素成分を含む植物由来の材料であればいずれも使用可能であり、例えば、リグノセルロース系バイオマス、油脂植物系バイオマスなどが挙げられる。リグノセルロース系バイオマスは、セルロース、ヘミセルロース、及びリグニンを含む固形成分であり、木質系バイオマス、草本系バイオマス、資源植物系バイオマスなどが挙げられる。木質系バイオマスとしては、針葉樹、広葉樹などに由来する原料が使用され、資源の有効利用の観点から、間伐材、林地残材、製材残材、建築廃材、剪定枝葉、チップなどが好ましい。草本系バイオマスとしては、例えば、稲、麦、ススキ、葦などに由来する原料が使用され、資源の有効利用の観点から、食用種子を含まない部分、例えば、稲わら、麦わら、ススキ、葦などが好ましい。資源植物系バイオマスとしては、例えば砂糖キビ、トウモロコシ、ソルガムなどの副産品（例えばバガス、茎など未利用の部分）などが望ましい。

[0013] 油脂植物系バイオマスとしては、菜種油、綿実油、パーム油、ココナツ油、ヒマワリ油、大豆油、米油、コーン油、油ヤシ油、ココヤシ油、ジャトロ

ファ油、オリーブ油などの油脂を産生し得る植物が含まれる。油脂植物系バイオマスは、油脂、絞り滓（例えば、パーム残渣（PKS, EFB, OPT等））、油脂含有種子、油脂含有種子以外の部分のいずれであってもよい。分解油の生産効率の面からは油脂、油脂含有種子などが好ましく、資源の効率利用の面からは絞り滓、油脂含有種子以外の部分や使用済み食用油（UCO）が好ましい。また油脂、絞り滓を加水分解し、必要に応じてさらに中和したのもバイオマスとして使用できる。ただし、油脂植物から得られる脂肪酸又はその塩は、本発明では後述する有機酸に分類する。

前記バイオマスは、単独で用いても2種以上を混合して用いてもかまわない。

[0014] 前記有機高分子廃棄物には、合成樹脂、合成繊維、及び合成ゴムから選ばれる少なくとも1種の合成高分子廃棄物；天然繊維、及び天然ゴムから選ばれる少なくとも1種の天然高分子廃棄物などが含まれ、天然高分子を化学処理した再生高分子（再生繊維など）や半合成高分子（半合成繊維など）の廃棄物も天然高分子廃棄物に含まれる。前記合成樹脂には、熱可塑性プラスチック（樹脂を含む）、熱硬化性プラスチック（樹脂を含む）などが含まれ、熱可塑性プラスチックとしては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ABS樹脂、AS樹脂、ポリアクリロニトリル、アクリル樹脂、ポリ塩化ビニル、ポリアミド、ポリイミド、ポリアセタール、ポリカーボネート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリアリレート、ポリフェニレンオキシド、ポリフェニレンエーテル、ポリアミドイミド、ポリエーテル、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトンなどが挙げられる。熱硬化性プラスチックとしては、フェノール樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、フラン樹脂、フェノールフルフラル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂などが含まれる。

[0015] 前記合成繊維には、例えば、ビニロン繊維（ポリビニルアルコール繊維）、ナイロン繊維、ポリエステル繊維、アクリル繊維、ポリエチレン繊維やポリプロピレン繊維などが含まれる。

前記合成ゴムには、例えば、スチレン・ブタジエンゴム、ブタジエンゴム、アクリロニトリル・ブタジエンゴム、イソプレングム、ブチルゴム（イソブチレン・イソプレンの共重合体）、エチレン・プロピレン・ジエンゴムなどが含まれる。

前記天然繊維には、木綿繊維、麻繊維、羊毛繊維、絹繊維などが含まれる。

前記天然ゴムは加硫前の生ゴムでもよく、加硫ゴムでもよい。

[0016] これらの有機高分子廃棄物の中で有機原料としては、好ましくは、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレンなどの熱可塑性プラスチックの廃棄物である。熱可塑性プラスチックの廃棄物は、有機高分子廃棄物中、好ましくは50質量%以上、より好ましくは70質量%以上である。また有機高分子廃棄物には、ゴムくず（生ゴムくず、加硫天然ゴムくずなど）や繊維くず（木綿くずなど）が含まれてもよい。

[0017] 前記有機原料は、前記バイオマス及び有機高分子廃棄物以外のものを含んでいてもよい。前記バイオマス及び有機高分子廃棄物以外の有機原料としては、例えば、廃油類（鉱物性油、動物性油、潤滑油、絶縁油、切削油、タールピッチなど）が含まれる。

[0018] バイオマス及び有機高分子廃棄物の合計量は、有機原料中、例えば、50質量%以上、好ましくは70質量%以上、より好ましくは90質量%以上であり、100質量%でもよい。有機原料は、バイオマス及び有機高分子廃棄物のいずれか一方だけを含んでいてもよく、両方を含んでもよい。両方を含む場合、バイオマスは、有機高分子廃棄物1質量部に対して、例えば、0.01～100質量部、好ましくは0.1～10質量部、より好ましくは0.3～3質量部である。

[0019] 有機原料として、バイオマス（特に木質系バイオマスなど）と有機高分子廃棄物（特に熱可塑性プラスチック廃棄物など）とを組み合わせることも好ましい態様の一つである。バイオマスと有機高分子廃棄物とを組み合わせると、分解油の生成収率及び分解油中のヘキサン可溶成分割合向上の

点で相乗効果が生じる。

[0020] 前記有機原料を2種以上用いる場合、これらを混合してから流動床分解装置に供給してもよく、これらを混合することなく別々に流動床式分解装置に供給してもよい。有機原料は、人工炭素粒子と混合してから流動床式分解装置に供給してもよく、人工炭素粒子と混合することなく別々に流動床式分解装置に供給してもよい。

[0021] 有機原料は、液体であってもよく、固体であってもよいが、液体と固体との混合物、又は固体であることが好ましい。固体としての有機原料は、適当な大きさ以下になっていることが好ましい。例えば、バイオマスは、その90質量%以上が、好ましくは、目開き10mm、好ましくは目開き7mm、より好ましくは目開き5mmの篩を通過可能である。また有機高分子廃棄物は、その90質量%以上が、好ましくは目開き30mm、より好ましくは目開き20mm、よりさらに好ましくは目開き10mm、特に好ましくは目開き5mmの篩を通過可能である。有機原料の大きさの下限は特に限定されないが、その90質量%以上が、好ましくは目開き0.05mm、より好ましくは目開き0.1mm、よりさらに好ましくは目開き0.2mmの篩の上にのる。

[0022] 前記人工炭素粒子は、活性炭を含むものでなく、かつ粒状の炭化物である限り特に限定されない。活性炭を含まないため、本発明の人工炭素粒子は簡便に入手できる。また活性炭を含まなくても、効率よく液体燃料を製造できる。前記人工炭素粒子は、その90質量%以上が、好ましくは、目開き5.0mm、より好ましくは目開き3.0mm、よりさらに好ましくは目開き1.0mmの篩を通過可能である。また人工炭素粒子の90質量%以上が、好ましくは目開き0.05mm、より好ましくは目開き0.1mm、よりさらに好ましくは目開き0.2mmの篩の上にのる。

[0023] 人工炭素粒子の見かけ密度は、例えば、 0.1 g/cm^3 以上、好ましくは 0.2 g/cm^3 以上、より好ましくは 0.3 g/cm^3 以上であり、例えば、 0.65 g/cm^3 以下、好ましくは 0.60 g/cm^3 以下、より好まし

くは 0.55 g/cm^3 以下、よりさらに好ましくは 0.45 g/cm^3 以下である。

なお見掛け密度は、人工炭素粒子を温度 120°C で2時間以上乾燥した後、その 20 g を容量 200 mL のメスシリンダーに入れ、容量減少が無くなるまでタッピングを続けた後の容量によって求めることができる。

[0024] 前記炭化物は天然物（石炭など）を含まない限り特に限定されず、例えば、ヤシ殻、マツ、竹、胡桃殻、杏子殻、ヒマワリ種殻、ジャトロファ種殻、籾殻、おが屑、バークチップ、レーヨン、アクリロニトリルなどを工業的に炭化した炭化物が挙げられる。また前記有機原料を工業的に炭化したものであってもよい。特に本発明の分解工程で生じる炭化物（固体残渣）が好ましい。固体残渣を用いると、分解油（留出液）の収率を顕著に高めると共に製造コストを低減することができる。

[0025] 炭化物は、例えば、窒素などの不活性ガス雰囲気下、前記炭化物原料を温度 $300\sim 900^\circ\text{C}$ 程度、好ましくは温度 $350\sim 600^\circ\text{C}$ 程度、より好ましくは温度 $400\sim 500^\circ\text{C}$ 程度で加熱することによって得られる。また固体残渣は、後述する分解工程条件によって得られるものであり、固体残渣の入手時の分解工程の条件と、得られた固体残渣を人工炭素粒子として分解工程で使用するときの分解工程の条件とは等しい事が工程簡素化の観点から好ましいが、異なってもよい。固体残渣は、分解工程から払い出されたものをそのまま使用してもよく、後述する前処理を施してから使用してもよい。

[0026] 人工炭素粒子の比表面積は窒素ガスを用いたBET法によって測定可能であり、例えば、 $400\text{ m}^2/\text{g}$ 以下、好ましくは $300\text{ m}^2/\text{g}$ 以下、より好ましくは $200\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である。

なお、本発明の効果を奏する限り、前記人工炭素粒子（ただし、活性炭を含まない）を活性炭と併用してもよい。活性炭には固体残渣を賦活したものも含まれる。活性炭は、人工炭素粒子 100 質量部に対して、例えば、 $0\sim 100$ 質量部程度、好ましくは $0\sim 50$ 質量部程度、より好ましくは $0\sim 1$

0質量部程度であり、特に好ましくは0質量部である。

[0027] 前記人工炭素粒子は、金属成分の含有量が少ないことが好ましい。金属成分の少ない人工炭素粒子を使用することで、後述する固体残渣の再利用工程を行ったときの金属の蓄積を防止できる。人工炭素粒子中の金属成分（金属原子）の含有量は、例えば、20質量%以下、好ましくは15質量%以下、より好ましくは10質量%以下、特に好ましくは5質量%以下である。この数値の範囲内であれば、金属原子を含んでいてもよく、含まなくてもよい。前記金属原子には、ホウ素、ケイ素、ヒ素、テルルなどの半金属も含まれる。前記ケイ素は、例えば、シリカとして人工炭素粒子に含まれることがあるが、ケイ素原子の量として前記範囲以下に抑制されていることが好ましい。

[0028] なお人工炭素粒子に、積極的に金属成分を含有させてもよい。金属成分を含有させることで、有機原料の分解（液化）反応速度、軽質油選択率、脱ヘテロ（特に脱酸素）効率の向上といった効果を期待することができる。積極的に含有させる金属成分には、例えば、酸化カルシウム、酸化マグネシウムなどの固体塩基（アルカリ土類金属酸化物など）、酸性白土、シリカ・アルミナ、シリカ・マグネシアなどの固体酸などが含まれる。アルカリ土類金属酸化物などの前記固体塩基を含ませる場合、その量は、人工炭素粒子100質量部に対して、例えば、0.1～10質量部、好ましくは0.1～5質量部、より好ましくは0.5～3質量部である。

前記人工炭素粒子は、炭素以外に水素、窒素、酸素、硫黄、塩素などを含んでもよい。

[0029] 前記有機原料と人工炭素粒子は、適宜、前処理をしてから流動床式分解装置に供給してもよい。前処理には、例えば、不純物除去、水分除去、粒度調整、タール除去処理および原料配合などが含まれる。前記粒度調整には、粉碎、造粒、分級などが含まれる。

前記タール除去処理は、人工炭素粒子にタールが付着している場合に行う処理であって、例えば、人工炭素粒子として固体残渣を使用する場合に行われることがある。具体的には、人工炭素粒子（固体残渣など）を窒素などの

不活性ガス雰囲気下、温度450～900℃、好ましくは温度500～700℃程度で、短時間（例えば、5時間以下、好ましくは3時間以下）の熱処理をすることを指し、この熱処理でタールは除去される。なお、タール除去処理により分解油（留出液）収率を正確に求めることができる。

原料配合には、異なる2種以上の有機原料（例えば、バイオマスと有機高分子廃棄物）を組み合わせること、異なる2種以上の人工炭素粒子を組み合わせること、有機原料と人工炭素粒子を組み合わせることなどが含まれる。原料配合の手法は公知の手法が適宜採用でき、例えば、混合、混練、混捏、造粒などが挙げられ、混合が好ましい。

人工炭素粒子の少なくとも一部（全部であってもよい）は、流動床を形成するため、有機原料とは別に先に流動床式分解装置に供給されることが好ましい。

[0030] 前記水分除去としては、乾燥が好ましい。乾燥する場合、その方法は特に限定されないが、省エネルギーなどの観点から、例えば、自然乾燥、プロセス廃熱（例えば、オフガス燃焼による廃熱）による乾燥などが望ましい。好ましい水分含量は、例えば15質量%以下であり、より好ましくは10質量%以下、更に好ましくは8質量%以下である。

[0031] 前記粉砕で採用する粉砕手段は特に限定されず、カッターミル、振動ミル、ハンマーミルなど慣用の粗粉砕機械を用いることができる。また必要に応じて有機原料または人工炭素粒子を凍結してから粉砕してもよい。

[0032] 有機原料及び人工炭素粒子を流動床式分解装置に供給する前に、有機原料及び／又は人工炭素粒子の雰囲気を酸素非含有ガスにすることが好ましい。酸素非含有ガス雰囲気にしておくことで、有機原料及び人工炭素粒子を流動床式分解装置に供給したときの品質劣化を防止できる。酸素非含有ガスとしては、アルゴン、ヘリウム、窒素などの不活性ガス、水素、一酸化炭素、炭化水素ガスなどの還元性ガス、アンモニアガス、オフガスなどが含まれる。また水蒸気、二酸化炭素、燃焼ガス（オフガスの燃焼ガスなど）の酸素以外の酸化性ガスも本発明の分解工程では実質的に非反応性ガスになるため、前

記酸素非含有ガスに含まれるが、水蒸気、二酸化炭素、燃焼ガスなどの酸化性ガスを含まない方が好ましい。酸素非含有ガスとしては、不活性ガス、オフガスが好ましく、窒素がより好ましい。これら酸素非含有ガスは、1種であってもよく2種以上を組み合わせてもよい。酸素非含有ガスは、不純物として酸素を含有する場合があるが、酸素の量は、例えば、3体積%以下、好ましくは2体積%以下、より好ましくは1体積%以下である。また酸素非含有ガス中の酸化性ガスの量は、例えば、10体積%以下、好ましくは5体積%以下、より好ましくは3体積%以下であり、0体積%である事が最も好ましい。

[0033] [分解工程]

分解工程では、流動床式分解装置の下部（好ましくは底部）にキャリアガスを導入して前記人工炭素粒子を流動させつつ、前記有機原料を分解して非固体分解成分としてキャリアガスと共に排出する一方、前記分解で生じる固体残渣を非固体分解成分と別に排出する。分解工程では、人工炭素粒子の種類に応じて、熱分解、接触分解、又は触媒作用による分解などが生じている。

[0034] 流動床には人工炭素粒子が含まれていればよく、人工炭素粒子と有機原料との混合物が流動床を形成してもよい。また分解反応が開始してからは、固体残渣も流動床を形成する成分となる。流動床の形成に利用されるキャリアガスは、酸素非含有ガスが好ましい。酸素非含有ガスとしては、有機原料及び人工炭素粒子の雰囲気ガスとして示した酸素非含有ガスと同様のものが例示でき、好ましい範囲も同様である。

[0035] 流動床は分解反応開始前に形成してもよく、分解反応中に形成してもよいが、分解反応前に形成しておくことが好ましい。分解反応前に流動床を形成しておく場合、流動床を形成するための材料（人工炭素粒子、有機原料など）は、その後、流動床式分解装置に供給される材料（有機原料、人工炭素粒子など）の1分間当たりの投入量1質量部に対して、例えば、10～1000質量部、好ましくは50～500質量部、より好ましくは100～300

質量部である。

[0036] キャリアガスの流量は、その後、流動床式分解装置に供給される材料（有機原料、人工炭素粒子）の1分間当たりの投入量1kgに対して、例えば、0.05～30m³（標準状態の体積の意味。以下、特に断りがない限り、同様）、好ましくは0.1～20m³、より好ましくは0.15～10m³である。

[0037] 分解工程では、分解装置内に有機原料を供給する。人工炭素粒子は、有機原料と共に供給してもよく、反応開始前に初期流動層を形成する材料として分解装置内に供給してもよく、両方であってもよい。分解反応中は、分解装置内に、有機原料、有機原料と人工炭素粒子との混合物などを連続的に投入することが好ましく、必要により人工炭素粒子を連続的に投入してもよい。分解装置内に供給された有機原料は、人工炭素粒子の存在によって（好ましくは人工炭素粒子の触媒作用によって）、分解（好ましくは熱分解、よりさらに好ましくは接触分解）し、非固体分解成分を生成し、一部は固体残渣として分解装置内に残る。非固体分解成分は、分解装置内で気体又は液体である成分（好ましくは気体である成分）であり、例えば、二酸化炭素、一酸化炭素、水素、炭素数1～4の炭化水素類などの液化困難成分（例えば、温度25℃で気体である成分）（本明細書ではオフガス成分という。一酸化炭素、水素、炭素数1～4の炭化水素類は燃料ガスとも称される）、及び前記オフガス成分よりも液化が容易な成分（例えば、温度25℃で液体である成分）（以下、分解油成分という）などが含まれる。これら非固体分解成分は、キャリアガスと共にガス排出ラインから排出される。

[0038] 分解工程で分解装置内に投入される有機原料または有機原料と人工炭素粒子との混合物の投入速度は、分解装置の分解反応炉の断面積1m²当たり、例えば、0.01～10kg/分、好ましくは0.03～1kg/分、よりさらに好ましくは0.05～0.5kg/分である。

分解装置内の温度は、例えば、300～700℃、好ましくは350～650℃、より好ましくは400～600℃である。分解装置内の温度は、人

工炭素粒子の製造温度に足して、例えば、 $\pm 200^{\circ}\text{C}$ 以内、好ましくは $\pm 100^{\circ}\text{C}$ 以内、より好ましくは $\pm 50^{\circ}\text{C}$ 以内、最も好ましくは $\pm 20^{\circ}\text{C}$ 以内に行うことが可能である。

[0039] 前記分解工程では、前記有機原料及び前記人工炭素粒子に加えて有機酸類を前記流動床式分解装置に供給してもよい。有機酸類を使用することでより適切に有機原料を分解できる。有機酸類は、有機原料及び人工炭素粒子とは別に供給してもよく、有機原料及び／又は人工炭素粒子と混合して供給してもよいが、有機原料と混合して供給することが好ましい。

有機酸類としては、有機カルボン酸、有機スルホン酸、有機リン酸などが挙げられ、有機カルボン酸が好ましい。有機カルボン酸としては、脂肪酸が好ましく、例えば、カプロン酸、カプリル酸、カプリン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、ステアリン酸、アラキジン酸、ベヘン酸、リグノセリン酸などの炭素数が6～30程度の飽和脂肪酸、パルミトレイン酸、オレイン酸、エライジン酸、パクセン酸、エルカ酸などの炭素数が10～30程度の一価不飽和脂肪酸、リノール酸、リノレン酸、アラキドン酸、エイコサペンタエン酸、ドコサヘキサエン酸などの炭素数が15～30程度の多価不飽和脂肪酸が挙げられる。また有機酸類は、油脂由来の脂肪酸であることが好ましく、植物油脂由来の脂肪酸であることがより好ましい。植物油脂由来の脂肪酸はバイオマスの一部であり、これを有機酸として使用することで環境負荷のより低いプロセスにすることができる。

前記有機酸類は中和物（塩）であってもよく、油脂由来の脂肪酸もその中和物（塩）であってもよい。

また、油脂類は分解（熱分解及び／又は接触分解）過程で脂肪酸を生成しやすく、前記有機酸と同等な働きをすることができる。

[0040] 有機酸類を使用する場合の量は、前記有機原料（植物油脂由来の脂肪酸を除く）100質量部に対して、例えば、0.01～30質量部、好ましくは0.1～20質量部、より好ましくは1～10質量部である。

[0041] 分解工程では、前述のキャリアガスと併用して又は前述のキャリアガスに

代えて、分解装置の下部（好ましくは底部）から酸素（空気などの酸素含有ガスでもよい）とキャリアガスとの混合ガスを送入してもよい。該キャリアガスは、流動床の形成に利用される前記キャリアガスと同様のものが例示でき、好ましい範囲も同様である。分解装置に投入された人工炭素粒子のうち相対的に大きい人工炭素粒子や、分解反応で生成した炭素質が表面に析出して粗大化した人工炭素粒子などは流動性を喪失、降下し、流動床の底部に固定床を形成することがある。酸素とキャリアガスとの混合ガスを送入すれば、固定床を部分燃焼させて、有機原料の分解反応（吸熱反応）の熱源として利用することができる。前記混合ガス中の酸素濃度は、安全上の許容値（例えば、爆発限界値など）を超えない範囲内で適宜設定でき、流動床形成用のガスとして酸素とキャリアガスとの混合ガスを供給する場合、例えば0.1～3体積％である。この場合、混合ガス中の酸素は前記固定床部分で残渣の部分燃焼によって95体積％以上消費されることが好ましい。一方、流動床形成用のガスとしてキャリアガスのみを供給する場合、酸素濃度は、0.1体積％未満であり、0.01体積％未満であることが好ましく、酸素を実質的に含まないことがよりさらに好ましい。

[0042] 〔再利用工程〕〔活性炭製造工程〕

前記分解工程で生じた固体残渣は、非固体分解成分とは別に前記分解装置から排出される。排出した固体残渣は、必要に応じて、一旦、固体残渣貯蔵庫に蓄えてもよい。固体残渣の少なくとも一部は、室温まで冷却される前に（好ましくは50℃以上で）、人工炭素粒子として前記原料供給工程に戻すことが好ましい（再利用工程）。熱をもった固体残渣を原料供給工程に戻すことで、熱を効率的に利用できる。固体残渣を原料供給工程に戻すには、必要に応じて粒度調整（粉碎、造粒、分級など。好ましくは分級）をしてもよい。

[0043] また固体残渣は、賦活して、さらに必要に応じて精製して活性炭（好ましくはバイオ活性炭）にしてもよい（活性炭製造工程）。また活性炭にした固体残渣を、前記人工炭素粒子と共に前記原料供給工程に戻してもよい。

[0044] [気液分離工程]

前記分解工程でキャリアガスと共に排出された非固体成分は、冷却してオフガス成分と液体成分（分解油という）に分離される（この工程を、気液分離工程という）。冷却工程では、冷却を複数のステップに分け、それぞれのステップから沸点の異なる液体成分（分解油）を分離回収してもよい。分離回収することで後述する分解油分離工程の負荷を減らし、又は分解油分離工程をスキップする事が可能である。一方、冷却を複数のステップに分けなくてもよく、また冷却を複数のステップに分けた後、各ステップから得られる液体成分（分解油）を一つにまとめてもよい。

[0045] 分解油は、水が分離される場合と分離されない場合とがある。水が分離されないときの分解油の収率は、例えば、53～95質量%、好ましくは55～90質量%、より好ましくは58～80質量%である。水が分離するときの分解油の収率は、例えば、30～80質量%、好ましくは40～75質量%、より好ましくは45～70質量%である。

なお有機原料に含まれる有機高分子廃棄物の割合が高くなるほど、例えば、有機原料中、有機高分子廃棄物の割合が30質量%以上、特に50質量%以上になると、分解油から水が分離され難くなる。一方、有機原料に含まれる有機高分子廃棄物の割合が低くなるほど、例えば、有機原料中、有機高分子廃棄物の割合が30質量%未満、特に20質量%以下になると、分解油から水が分離され易くなる。

[0046] 分解油100質量%中、ヘキサン可溶分（HS）の割合は、例えば、70～99質量%、好ましくは80～99質量%、より好ましくは90～99質量%である。分解油100質量%中、ヘキサン不溶-THF可溶分（HI-THFS）の割合は、例えば、30質量%以下、好ましくは20質量%以下、より好ましくは10質量%以下、よりさらに好ましくは5質量%以下である。分解油100質量%中、THF不溶分（THFI）の割合は、例えば、10質量%以下、好ましくは5質量%以下、より好ましくは1質量%以下である。

またHS成分に含まれる炭素数20以下の成分（軽質油）の割合は、HS成分100質量%中、例えば、70～99質量%、好ましくは75～95質量%、より好ましくは78～90質量%である。前記炭素数20以下の成分（軽質油）の収率（乾燥基準原料に対する歩留まり）は、例えば、35～70質量%である。前記軽質油の割合及び収率は、分解油が分離するときでも達成される。

[0047] [熱回収工程]

一方、前記冷却によって液化しなかった成分（オフガス）には、二酸化炭素、一酸化炭素、水素、炭素数1～4の炭化水素類などが含まれる。オフガスは、酸素存在下で燃焼し、その発熱で流動床式分解装置に導入する前のキャリアガスを加熱してもよい（熱回収工程）。オフガス又はその燃焼ガスを、前記有機原料及び／又は人工炭素粒子の雰囲気ガスとして使用してもよく、前記キャリアガスとして使用してもよい。

オフガスの収率は、例えば、5～40質量%、好ましくは10～35質量%、より好ましくは15～30質量%である。

[0048] [分解油分離工程]

前記気液分離工程で得られた分解油は、沸点差及び／又は溶解度差を利用して軽質分解油と重質分解油とに分離することが好ましい（分解油分離工程）。この分解油分離工程では、沸点差を利用する場合、通常、蒸留操作（本明細書では第1蒸留という）を行う。また溶解度差を利用する場合、ナフサ、航空燃料、灯油、軽油、およびこれらと同等の沸点を有する脂肪族炭化水素類から選ばれる少なくとも1種を溶媒として分離する。また軽質分解油、後述する軽質分解油の改質処理物（水添物など）、後述するヘキサン可溶分（HS）などを溶媒としてもよい。軽質分解油は前記溶媒への溶解性が高く、重質分解油は前記溶媒への溶解性が低い。そこで前記溶媒と分解油とを混合した後、溶媒不溶分を適当な分離手段（沈降分離、遠心分離、ろ過など）で分離することで、軽質分解油と重質分解油とを分離できる。軽質分解油は、通常、後述するヘキサン可溶分（HS）を含む。重質分解油（残油）は、

通常、後述するヘキサン不溶－ＴＨＦ可溶分（ＨＩ－ＴＨＦＳ）、およびＴＨＦ不溶分（ＴＨＦＩ）を含む。重質分解油は、必要に応じて、貯留槽で保管してもよい。

[0049] [固体燃料製造工程]

前記重質分解油に含まれるヘキサン不溶－ＴＨＦ可溶分（ＨＩ－ＴＨＦＳ）は、アスファルテン、プレアスファルテンに相当し、ＴＨＦ不溶分（ＴＨＦＩ）は炭素質前駆体に相当する。重質分解油を前記固体残渣と混合、混練、及び混捏から選ばれる少なくとも１種の処理を行い、その後必要に応じて成形及び／又は焼成することで、代替石炭（好ましくはバイオ石炭）、代替コークス（好ましくはバイオコークス）などの固体燃料（好ましくはバイオ固体燃料）を製造できる。

[0050] [液体燃料製造工程]

前記分解油分離工程で得られた軽質分解油は、その後、蒸留（以下、第２蒸留という）することによって液体燃料を製造してもよい（液体燃料製造工程）。

第２蒸留で分離する前の軽質分解油、又は第２蒸留で得られる蒸留物に対して、触媒の存在下、脱水素、転化、異性化、水添、水素化分解及び水素化精製から選ばれる少なくとも一つの改質処理を行うことが好ましい。改質処理を行うことによって液体燃料の収率（特に目的液体燃料の選択率）又は品質を向上できる。

なお、第１蒸留のときに複数のステップを設けて分留することで、第１蒸留が第２蒸留を兼ねてもよい。第１蒸留が第２蒸留を兼ねる場合は、第１蒸留で分離する前の分解油、又は第１蒸留で得られる蒸留物に対して、触媒の存在下、脱水素、転化、異性化、水添、水素化分解及び水素化精製から選ばれる少なくとも一つの改質処理を行うことが好ましい。改質処理を行うことによって液体燃料の収率（特に目的液体燃料の選択率）又は品質を向上できる。

前記液体燃料製造工程によって製造される燃料は、例えば、ナフサ（好ま

しくはバイオナフサ)、航空燃料(好ましくはSAF(Sustainable aviation fuel))、灯油(好ましくはバイオ灯油)、軽油(好ましくはバイオ軽油)などである。

[0051] [再分解工程]

前記分解油分離工程で得られた重質分解油は、固体燃料製造工程で利用してもよく、固体燃料製造工程での利用に変えて再分解処理してもよく、これらの両方を行ってもよい。また液体燃料製造工程の第2蒸留で留出することなく残った油(蒸留残油)を再分解処理してもよい。重質分解油及び蒸留残油の両方を再分解処理してもよく、一方を再分解処理してもよい。再分解工程では、重質分解油及び／又は蒸留残油を前記分解工程に供給して再処理する。重質分解油及び／又は蒸留残油を分解工程に直接供給してもよく、前記原料供給工程に有機原料の一部として戻し、次いで分解工程に供給してもよい。

[0052] [分解設備]

以下、図示例を参照しつつ前記製造方法を実施するのに有用な分解設備について説明する。本発明の分解設備は図示例に限定される訳ではなく、上記製造方法に合わせて適宜変更可能である。

図1は、本発明の分解設備の一例を模式的に示す概念図であり、図2は分解設備で使用される分解装置の一例を示す概略断面図である。図1の分解設備は、流動床式分解装置21を備え、この分解装置21で、人工炭素粒子の存在下、有機原料を分解可能になっている。有機原料と人工炭素粒子は、必要に応じて設けられる前処理装置(不純物除去装置、水分除去装置、粒度調整装置(粉碎装置、造粒装置、分級装置など)、原料配合装置(混合装置、混練装置、混捏装置、造粒装置など)など)11で処理した後、前記分解装置21の上部に設けられた原料供給口22から反応管25内に投入される。投入された有機原料と人工炭素粒子は、反応管25の底に設けられたフィルター30で受けとめられ、キャリアガスライン27を通じてフィルター30の下部から供給されるキャリアガスによって流動床29を形成する。反応

管 2 5 の外周に設けられた加熱炉 2 8 で反応管 2 5 を加熱しつつ、原料供給口 2 2 から有機原料を投入することで、反応管 2 5 内で有機原料が分解され、固体残渣と非固体分解成分とに分かれる。非固体分解成分は、反応管 2 5 の上部に設けられたガス排出ライン 2 6 から反応管 2 5 外へ排出される。なお有機原料と人工炭素粒子の供給量は、原料供給口 2 2 の直下に設けられた供給量調節部 2 4 で調節可能である。また原料供給口 2 2 には酸素非含有ガス置換ライン 2 3 が接続しており、原料の供給方向とは逆行する方向に酸素非含有ガスを送ることで、原料の雰囲気ガスを置換可能になっている。原料供給口 2 2 は、供給原料別に 2 つ以上を設けてもよい。またキャリアガスはガス容器 1 2 から供給され、キャリアガスライン 2 7 中に設けられたマスフローコントローラー（MFC）1 3 によって流量制御が可能になっている。

[0053] 前記反応管 2 5 で生じた固体残渣は、取出口 7 1 から排出され、必要に応じて貯蔵庫 7 2 で貯蔵される。この取り出された固体残渣は、賦活装置 8 1 で賦活し、次いで必要に応じて精製装置 8 2 で精製して活性炭にできる。また固体残渣や活性炭は、必要に応じて粒度調整装置（粉碎装置、造粒装置、分級装置など）7 3 で粒度を調整した後、再利用システム（運搬装置など）7 4 を通じて人工炭素粒子として再利用可能である。

[0054] 前記反応管 2 5 から排出された非固体分解成分は、冷却器 3 1 で冷却される。この冷却器 3 1 には液化成分を貯留する気液分離槽 3 2 が接続しており、分解油とオフガスに分けられる。オフガスは空気と共に熱交換器 6 1 に送られ、触媒により燃焼される。前記キャリアガスライン 2 7 はこの熱交換器 6 1 を通って前記反応管 2 5 に至っており、熱交換器 6 1 で得られた燃焼熱でキャリアガスが加熱されて反応管 2 5 に送られる。

[0055] 前記気液分離槽 3 2 で分離された分解油は、分離装置（図示例は第 1 蒸留塔。分離装置は、分解油と溶媒との混合機、及び不溶成分分離機の組み合わせでもよい）4 1 に送られて軽質分解油と重質分解油に分けられる。重質分解油は、混合機、混練機、又は混捏機 9 1 で固体残渣と混合、混練、又は混捏した後、必要に応じて成形機又は焼成装置 9 2 で処理することで固体燃料

にできる。

[0056] 一方、前記分離装置41で分離された軽質分解油は、触媒を備えた改質炉51で改質（脱水素、転化、異性化、水添、水素化分解、水素化精製など）した後、第2蒸留塔52で精留され、ナフサ、航空燃料、灯油、軽油などの液体燃料が製造される。

[0057] 前記分離装置41で分離された重質分解油、第2蒸留塔52の塔底から排出される蒸留残油は、返送ライン75を介して原料供給口22から流動床式分解装置21に供給可能である（再分解システム）。図示例では、返送ライン75が前処理装置11に接続しており、重質分解油や蒸留残油を有機原料として使用可能になっている。

[0058] 本願は、2021年4月14日に出願された日本国特許出願第2021-068497号、及び2021年10月4日に提出された国際特許出願PCT/JP2021/036613号に基づく優先権の利益を主張するものである。2021年4月14日に提出された日本国特許出願第2021-068497号の明細書の全内容及び2021年10月4日に提出された国際特許出願PCT/JP2021/036613号の明細書の全内容が、本願に参考のため援用される。

実施例

[0059] 以下、実施例を挙げて本発明をより具体的に説明するが、本発明はもとより下記実施例によって制限を受けるものではなく、前・後記の趣旨に適合し得る範囲で適当に変更を加えて実施することも勿論可能であり、それらはいずれも本発明の技術的範囲に包含される。

尚、下記実施例ではバイオマス、有機高分子廃棄物、人工炭素粒子として以下のものを使用した。また分解工程で生成する分解油（留出液）、固体残渣、ロス分、及びオフガスそれぞれの収率、並びに分解油（留出液）中の組成分布は以下の方法に従って決定した。

[0060] (1) バイオマス

杉粉：国産杉のオガクズを4mm篩下に分級し、120℃で一晩乾燥した

もの。

ジャトロファ：ベトナム産ジャトロファ（レポインターナショナル社提供）の種子を自然乾燥、破碎後、4 mm篩下に分級し、さらに120℃で一晩乾燥したもの。試料中、種殻の割合は43.22 wt %であり、種殻以外の部分の主成分は油脂である。

中和油滓：日清オイリオ社提供の中和油滓（脂肪酸87.5 wt %、水分2.5 wt %、粗灰分10.0 wt %、粘性液状物）。中和油滓はバイオマスと有機酸類の両方の特性を兼ね備えている。

パームステアリン酸：パーム油はアブラヤシの果実に含まれる。ステアリン酸はパーム油に含まれる成分であり、タイ国から入手した。

使用済食用油：レストラン、一般家庭などから回収した使用済み食用油を水洗、水除去、及びろ過して得られたもの。

[0061] (2) 有機高分子廃棄物

プラスチック模擬廃棄物（略称：廃プラ）：ポリエチレン（PE）（商品名「ノバテックLD-LJ803」、日本ポリエチレン社製）、ポリプロピレン（PP）（商品名「ノバテックPP-MA3」、日本ポリプロ社製）、ポリスチレン（PS）（商品名「GPPS-HF77」、PSジャパン社製）を、PE：PP：PS=49：33：18の質量比で混合したもの。プラスチック廃棄物の3分の2は、PE、PP、PSで構成され、その質量比はPE：PP：PS=49：33：18である（一般社団法人プラスチック循環利用協会）。前記模擬廃棄物はこの廃棄物の実態に合わせてプラスチックが配合されている。なお、粒度はPE、PP、PSのいずれも4 mm篩下～2 mm篩上のものである。

[0062] (3) 人工炭素粒子及び活性炭

AC（活性炭）：ユー・イー・エス社製の粒状活性炭。商品名：活力炭粒状（水用）、粒度：目開き0.84～0.3 mm（20～50メッシュ）、見かけ密度：0.51 g/cm³。

R1（人工炭素粒子）：前記杉粉、ジャトロファ、及び廃プラを等量（質

量基準)で混合し、窒素雰囲気下、温度500℃で2時間加熱して炭化したもの。粒度：目開き0.6～1.6mm、見かけ密度：0.43g/cm³。

R2(人工炭素粒子)：炭化温度を600℃とし、粒度(目開き)を0.6～2.0mmとする以外はR1と同様にして得られたもの。見かけ密度：0.32g/cm³。

R2+2%MgO(人工炭素粒子)：100質量部のR2と2質量部のMgOを混ぜたもの。

R3(人工炭素粒子)：杉粉及び使用済食用油を等量(質量基準)で混合し、窒素雰囲気下、温度450℃で2時間加熱して炭化したもの。粒度：目開き2mm以下、見掛け密度：0.24g/cm³。

CC(人工炭素粒子)：粃殻(レボインターナショナル社提供)を窒素雰囲気下、温度600℃で2時間加熱して炭化したもの。粃殻炭という。粒度：目開き2mm以下、見掛け密度：0.15g/cm³)

R20(人工炭素粒子)：人工炭素粒子としてR2を20g使用し、原料混合物として、30質量%の杉粉、15質量%のパームステアリン酸、10質量%の使用済食用油、5質量%の中和油滓、40質量%の廃プラからなる混合物189gを毎分0.12gの供給速度で投入し、反応管内温を525℃、窒素流量を毎分200mlとする以外は実施例1と同様にして熱分解を行った後、反応管内に残った固体残渣。

なお、前記人工炭素粒子及び活性炭のいずれも120℃1晩乾燥したものを使用した。

[0063] (4) 分解油(留出液)の収率

次に基づいて分解工程後の分解油の収率を求めた。

分解油収率(質量%) = 分解油質量 / 仕込み原料乾燥質量 × 100

式中、分解油質量は、気液分離槽と配管の合計質量の運転前後の差から求めた。仕込み原料乾燥質量は、投入したバイオマス、有機高分子廃棄物の合計質量から水分含量を除いた値である。

[0064] (5) 固体残渣の収率

次式に基づいて分解工程後の固体残渣の収率を求めた。

$$\text{固体残渣収率（質量％）} = \text{固体残渣質量} / \text{仕込み原料乾燥質量} \times 100$$

式中、仕込み原料乾燥質量は前記と同じ意味である。また、反応により生成した固体残渣質量は、（１）炭素粒子（人工炭素粒子または活性炭）を使用しなかった場合には、運転前後の反応管質量の差から直接求め、（２）炭素粒子（人工炭素粒子または活性炭）を使用した場合には、式『固体残渣質量＝運転後の反応管総質量－（運転前の反応管質量＋炭素粒子質量）』に基づいて求めた。

[0065] （６）ロス分率

分解工程終了後、流動床式分解装置（反応管）上部の原料投入チューブ出口付近の管内外に付着した物質（炭化までには至っておらず、また液体にもなっていない物質）を「ロス分」と定義した。ロス分率は分解工程開始前の原料投入チューブの質量（W1）と分解工程終了後の原料投入チューブの質量（W2）を求め、次式によって算出した。

$$\text{ロス分率（質量％）} = \text{ロス質量} / \text{仕込み原料乾燥質量} \times 100$$

式中、ロス質量はW2－W1から求まる値である。仕込み原料乾燥質量は前記と同じ意味である。

[0066] （７）オフガス収率

次式に基づいてオフガス収率を求めた。

$$\text{オフガス収率（質量％）} = \left(\left[\text{仕込み原料乾燥質量} - \left(\text{分解油質量} + \text{固体残渣質量} + \text{ロス質量} \right) \right] / \text{仕込み原料乾燥質量} \right) \times 100$$

式中、仕込み原料乾燥質量、分解油質量、固体残渣質量、及びロス質量は前記と同じ意味である。

[0067] （８）分解油（留出液）中の組成分布

分解工程で得られた分解油（留出液）について、テトラヒドロフラン（THF）、ヘキサン（H）を用いて、溶剤抽出・濾過法により溶剤分別処理を行ない、THF不溶分（THFI）、ヘキサン不溶－THF可溶分（HI－THFS）、およびヘキサン可溶分（HS）に３分割した。

[0068] THFI率：分解油2gとTHF200mlとを混合し、不溶分の分散が完了するまで（見た目の変化がなくなるまで）超音波（周波数35kHz、エネルギー36kJ（60W×10分））を照射して分解油を溶解及び懸濁した後、JIS P 3801規格の化学分析濾紙No. 2（ADVANTEC社製）で濾過して不溶分（THFI）と濾液に分けた。ろ過後の濾紙を20mlのTHFで5回吸引洗浄し、濾紙ごと107℃で1時間乾燥した後、秤量し、濾紙の重さを差し引くことで不溶分の重さ（THFI質量）を求めた。下記式に従って不溶分率（THFI率）を求めた。

$$\text{THFI率（質量％）} = \text{THFI質量} / \text{分解油質量} \times 100$$

[0069] HI率：分解油2gとヘキサン200mlとを混合し、不溶分の分散が完了するまで（見た目の変化がなくなるまで）超音波（周波数35kHz、エネルギー36kJ（60W×10分））を照射して分解油を溶解及び懸濁した後、JIS P 3801規格の化学分析濾紙No. 2（ADVANTEC社製）で濾過して不溶分（HI）と濾液に分けた。ろ過後の濾紙を20mlのヘキサンで5回吸引洗浄し、濾紙ごと107℃で1時間乾燥した後、秤量し、濾紙の重さを差し引くことで不溶分の重さ（HI質量）を求めた。下記式に従って不溶分率（HI率）を求めた。

$$\text{HI率（質量％）} = \text{HI質量} / \text{分解油質量} \times 100$$

HS率：前記HI率の計算結果をもとに、次式によりHS率を求めた。

$$\text{HS率（質量％）} = (\text{分解油質量} - \text{HI質量}) / \text{分解油質量} \times 100$$

HI・THFS率：前記THFI率とHS率の計算結果をもとに、次式によりHI・THFS率を求めた。

$$\text{HI・THFS率（質量％）} = 100 - (\text{HS率} + \text{THFI率})$$

[0070] (9) HS収率（HS歩留まり）

次式に基づき、投入原料ベースのHS収率（質量％）を算出した。

$$\text{HS収率（質量％）} = \text{分解油収率（質量％）} \times \text{HS率（質量％）} / 100$$

[0071] (10) HS成分分布

分解油 0.1 g を THF 2.0 g に溶解して分析サンプルを調製し、以下の条件でガスクロマトグラフィーで分析することで、HS 成分分布を調べ、炭素数が 8 以下の炭化水素 (C 8 以下)、炭素数が 9 ~ 14 の炭化水素 (C 9 ~ 14)、炭素数が 15 ~ 20 の炭化水素 (C 15 ~ 20)、炭素数が 21 以上の炭化水素 (C 21 以上) に分けてその比率を求めた。なお分解油が室温で液体であるため、「C 8 以下」は炭素数 4 以下の炭化水素を実質的に含んでおらず、実質的に炭素数 5 ~ 8 の成分である。C 8 以下、C 9 ~ 14、C 15 ~ 20 の合計割合を軽質油割合 (%) とした。

[ガスクロマトグラフィー条件]

ガスクロマトグラフ : GC-2014, 島津製作所社製

カラム : DB-1 (ϕ 0.32 mm $\times$ 60 m, 膜厚 1 μ m, Agilent Technologies 社製)

サンプル打ち込み量 : 1 μ L

気化室温度 : 300 $^{\circ}$ C

オーブン (カラム室) : 50 $^{\circ}$ C $\rightarrow$ 320 $^{\circ}$ C (10 $^{\circ}$ C/分)、320 $^{\circ}$ C - 3分保持

検出器 : FID (330 $^{\circ}$ C)

キャリアガス : ヘリウム

キャリアガス制御モード : 圧力一定 (125 kPa)

組成比 (%) の求め方 : 面積比により算出

各組成成分の特定法 :

n-オクタン、n-テトラデカン、n-エイコサン基準ピーク (リテンションタイムで判別) をもとにガスクロチャートを 4 分割した後、以下の方法と計算式で各区間の組成成分の割合を求めた。

C 8 以下 : n-オクタン以前のピーク総面積から THF ピーク面積を差し引いた値で計算

C 9 ~ C 14 : n-オクタンの次のピークから n-テトラデカンまでのピーク総面積で計算

C 1 5 ~ C 2 0 : n-テトラデカンの次のピークからn-エイコサンまでのピーク総面積で計算

C 2 1 以上 : n-エイコサン次のピーク以降の総面積で算出

各組成成分割合 (%) = 該当組成成分ピーク総面積 / (ピーク総面積 - T H F ピーク面積) × 1 0 0

[0072] (11) 軽質油歩留まり (収率)

下記式に従って軽質油歩留まり (収率) を求めた。

軽質油歩留まり (%) = 分解油収率 (質量%) × 軽質油割合 (%) / 1 0 0

[0073] [実施例1]

流動床式分解装置21として図2に示す縦型電気炉加熱方式のステンレス製の反応管25 (内径42.4 mm、反応管断面積 $1.41 \times 10^{-3} \text{ m}^2$) を用いた。前記反応管25の底部に200メッシュのフィルター30を装着し、反応管上部の原料投入チューブを介して予め人工炭素粒子 (実施例1では、20 gのR1) を投入し、人工炭素粒子充填層 (流動床29) を形成した。次いで、反応管下部から窒素を毎分200 mlの流量で供給しながら、反応管内温が450℃に達するまで昇温した。温度が安定した後、雰囲気窒素置換した原料混合物 (実施例1では、18 gの杉粉と18 gの廃プラの混合物) を毎分0.12 gの供給速度で原料供給口22から反応管内の人工炭素粒子充填層 (流動床29) に投入しながら分解した。上記混合物を全量投入後、同温度で更に30分間保持した上で、反応管25を風冷した。有機原料の分解により反応管上部 (ガス排出ライン26) から排出された成分 (留出分) は、2段冷却トラップ (-10℃~-20℃) を用いて気液分離を行ない、室温に戻してトラップ内の液体生成物 (分解油 (留出液)) を定量、回収した。また、反応管25内に生成した残渣は、窒素気流中、反応管を室温まで冷却してから定量、回収した。結果を表1に示す。

[0074] [実施例2、比較例1、参考例1~4]

反応管内温、窒素流量、人工炭素粒子の種類と量、有機原料の種類と量を

表 1 に示した様に変更する以外は実施例 1 と同様にした。なお、参考例 1 ～ 4 では、人工炭素粒子に代えて A C を使用した。

結果を表 1 に示す。

[0075]

[表1]

表 1

	温度	キャリア ガス	人工炭 素粒子 又は活 性炭	原料混合物 (乾燥基準)				分解物収率 (w t %)								分解油組成 (wt%)				H S 収率 (w t %)
				N ₂ (ml/ min)	AC (g)	R1 (g)	中和 油滓 (g)	有機原料		投入 速度 (g/min)	分解 油	水	固体 残渣	オフ ガス	ロス	HS	HI- THFS	THFI		
								杉粉 (g)	廃プラ (g)											
実施例 1	450	200				20		18.00	18.00	0.12	68.9	分離せず	14.2	13.8	3.1	97.0	2.7	0.4	66.8	
実施例 2	450	200			20	20	2.00	18.00	18.00	0.12	70.7	分離せず	13.1	14.8	1.3	96.3	3.1	0.6	68.1	
比較例 1	450	200						18.00	18.00	0.12	52.3	分離せず	23.9	20.2	3.6	85.0	14.5	0.5	44.5	
参考例 1	450	200	20					18.00	18.00	0.12	67.7	分離せず	13.7	16.6	1.9	97.1	2.0	0.9	65.8	
参考例 2	500	200	20					36.00	0.00	0.12	46.2	分離せず	24.2	26.9	2.7	78.88	21.03	0.08	36.5	
参考例 3	500	200	20						36.00	0.12	69.3	分離せず	4.5	25.3	0.8	99.96	0.02	0.02	69.3	
参考例 2,3 平均	500	200	20					18.00	18.00	0.12	57.8	分離せず	14.4	26.1	1.8	89.42	10.53	0.05	51.7	
参考例 4	500	200	20					18.00	18.00	0.12	62.8	分離せず	9.6	27.0	0.6	93.70	5.73	0.57	58.8	

[0076] 有機原料を流動床式分解装置に供給して分解し、分解油、固体残渣、オフガス、ロスに分けると、活性炭（AC）や人工炭素粒子（R1）の存在下で分解すると、分解油収率が著しく向上する（比較例1と実施例1、参考例1との対比）。人工炭素粒子（R1）は賦活が不要であるために活性炭（AC）よりも容易に入手可能であり、かつ活性炭と同等の分解油収率、HS収率などを達成可能である（実施例1と参考例1との対比）。特に中和油滓由来の有機酸を人工炭素粒子と共に用いるときには、人工炭素粒子だけで用いる場合よりも分解油収率がさらに向上しており（実施例2と実施例1の対比）、人工炭素粒子と有機酸を使用することで触媒活性がさらに高まり、接触分解が生じたためと推察される。

[0077] なお活性炭を用いた例であるが、参考例4の様に有機原料を杉粉と廃プラスチックの混合物にした場合には、杉粉のみの場合（参考例2）や廃プラスチックのみの場合（参考例3）よりも分解油収率が向上し、残渣が減少し、相乗効果が見られた。

より詳しくは、参考例2（杉粉）及び参考例3（廃プラスチック）の相加平均値から予測される結果（参考例2、3平均）に比べ、参考例4は、固体残渣が減って分解油の収率が向上し、また分解油中の成分についてもH₂THFSが抑制されてHS割合が増大し、相乗効果があることが示された。

[0078] 〔実施例3～9〕

原料混合物の供給速度を毎分0.15gに変更し、かつ反応管内温、窒素流量、人工炭素粒子の種類と量、原料混合物の種類と量を表2に示した様に変更する以外は実施例1と同様にした。結果を表2に示す。

[表2]

表 2

	温度	キャリア ガス	人工炭素粒子				原料混合物（乾燥基準）					分解物収率（w t %）						分解油組成（wt %）				H S 収率 w t %
	（℃）	N ₂ （ml/ min）	R2 （g）	R3 （g）	C C （g）	R 2 0 （g）	中和 油滓 （g）	パー ム ステ ア リン 酸 （g）	有機原料			投入 速度 （g/min）	分解 油	水	固体 残渣	オフ ガス	ロス	HS THFS	HI- THF1			
									杉粉 （g）	食用油 UCO （g）	廃 プラ （g）											
実施例 3	450	200	20				1.80	5.40	10.80	3.60	14.40	0.15	75.0	分離 せず	9.0	14.7	1.3	96.7	3.2	0.14	72.5	
実施例 4	475	200	20				1.80	5.40	10.80	3.60	14.40	0.15	74.0	分離 せず	9.0	16.6	0.4	97.4	1.5	1.10	72.1	
実施例 5	500	200	20				1.80	5.40	10.80	3.60	14.40	0.15	71.6	分離 せず	9.3	17.1	2.0	98.4	1.5	0.10	70.4	
実施例 6	525	200	20				1.80	5.40	10.80	3.60	14.40	0.15	62.9	分離 せず	7.7	27.1	2.3	97.6	2.4	0.03	61.4	
実施例 7	500	200				20	1.80	5.40	10.80	3.60	14.40	0.15	70.9	分離 せず	8.6	18.1	2.4	98.3	1.0	0.70	69.7	
実施例 8	475	200			20		1.80	5.40	10.80	3.60	14.40	0.15	75.5	分離 せず	7.9	16.0	0.6	96.7	1.5	1.80	73.0	
実施例 9	450	200		20			1.80	5.40	10.80	3.60	14.40	0.15	75.3	分離 せず	8.8	15.3	0.5	98.8	0.7	0.50	74.4	

実施例 3 ～ 6 は多種類の有機酸（油脂由来）および有機原料（木質系バイ

オマス、油脂系バイオマス、廃プラスチック）と人工炭素粒子（R2）との組み合わせによる分解試験の1例であり、様々な温度で熱分解が可能である。熱分解工程から得られた固体残渣（R2O）も人工炭素粒子として使用可能であり（実施例7）、熱分解工程の中で人工炭素粒子の製造とそれを用いた熱分解の両方を行うことが可能である。籾殻炭（CC）も人工炭素粒子として使用可能である（実施例8）。人工炭素粒子の製造温度を450℃とし、それを用いた有機原料の熱分解温度も450℃として、人工炭素粒子の製造温度と使用温度を合わせた例でも、良好な熱分解性を示した（実施例9）。

[0079] 〔実施例10〕

実施例6で得られた分解油のうち3.40gを、3.40gのニッケル系触媒（市販品、品種：N102F、成分：61wt%Ni/SiO₂・MgO、日揮触媒化成社製）及び30.60gのn-ヘプタンと混合し、水素初期圧2.6MPa（25℃でのゲージ圧）、反応温度325℃、保持時間150分、攪拌速度1000rpm（使用装置：120mLステンレス製オートクレープ）の条件で水添した。分解油及びその水添物からそれぞれ測定試料をサンプリングし、分析サンプルの調製溶媒をTHFに変えてn-ヘプタンにする以外は前記HS成分分布の測定法に基づいて炭素数別に組成を調べた。結果を表3に示す。

[表3]

表 3

		H S 成分分布 (%)				
		C8 以下	C9-14	C15 -20	C21 以上	軽質油 割合 (C20 以下)
実施例 1 0	分解油	38.0	30.2	22.2	9.6	90.4
	水添物	37.9	24.5	25.5	12.2	87.8

分解油及びその水添物は、いずれも高い軽質油割合を示した。本発明の方法は炭素数が 20 以下の軽質油（ナフサ、航空燃料、灯油、軽油など）の製造に有用であることがわかる。

[0080] 〔実施例 1 1〕

流動床式分解装置 2 1 として図 2 に示す縦型電気炉加熱方式のステンレス製の反応管 2 5（内径 42.4 mm、反応管断面積 $1.41 \times 10^{-3} \text{ m}^2$ ）を用いた。前記反応管 2 5 の底部に 200 メッシュのフィルター 3 0 を装着し、反応管上部の原料投入チューブを介して予め人工炭素粒子（実施例 1 1 では、8 g の R 2）を投入し、人工炭素粒子充填層（流動床 2 9）を形成した。次いで、反応管下部から窒素を毎分 200 ml の流量で供給しながら、反応管内温が 475℃に達するまで昇温した。原料混合物（実施例 1 1 では 18 g の杉粉と 18 g の使用済食用油）と人工炭素粒子（実施例 1 1 では、12 g の R 2）とを混合して雰囲気窒素を置換し（混合物 A）、反応管 2 5 の温度が安定した後、前記混合物 A を毎分 0.20 g の供給速度（原料混合物としては毎分 0.15 g の供給速度、人工炭素粒子としては毎分 0.05 g の供給速度）で原料供給口 2 2 から反応管内の人工炭素粒子充填層（流動床 2 9）に投入しながら原料混合物を分解した。上記混合物 A を全量投入後、同温度で更に 30 分間保持した上で、反応管 2 5 を風冷した。有機原料の分

解により反応管上部（ガス排出ライン 26）から排出された成分（留出分）は、2 段冷却トラップ（ -10°C ～ -20°C ）を用いて気液分離を行ない、室温に戻してトラップ内の液体生成物（分解油（留出液））を定量、回収した。また、反応管 25 内に生成した残渣は、窒素気流中、反応管を室温まで冷却してから定量、回収した。

〔実施例 12～14、比較例 2〕

人工炭素粒子の種類と量を表 4 に示した様に変更する以外は実施例 11 と同様にした。

結果を表 4 および 5 に示す。

[表4]

表 4

	温度 (°C)	キャリア ガス N ₂ (ml/ min)	人工炭素粒子						原料混合物 (乾燥基準)				混合物A (人工炭素粒子 と原料混合物) の投入速度 (g/min) [a]+[b]
			原料混合物投入前 に投入した分			原料混合物と共に投入した分			杉粉 (g)	使用済 食用油 UCO (g)	廃 プラ (g)	投入 速度 (g/min) [b]	
			R2 (g)	C C (g)	R2 + 2%MgO (g)	R2 (g)	C C (g)	R2 + 2%MgO (g)					
比較例 2	475	200							18.00	18.00	0.00	0.15	0.15
実施例 1 1	475	200	8			12			18.00	18.00	0.00	0.15	0.20
実施例 1 2	475	200		8			12		18.00	18.00	0.00	0.15	0.20
実施例 1 3	475	200			8			12	18.00	18.00	0.00	0.15	0.20

[表5]

表 5

	分解物収率 (w t %)					分解油組成 (wt%)			H S成分分布 (%)					軽質油 歩留 まり (%)	H S 収率 w t %
	分解 油	水	固体 残渣	オフ ガス	ロス	HS	HI- THFS	THFI	C8 以下	C9-14	C15 -20	C21 以上	軽質油 割合 (C20 以下)		
比較例 2	49.8	15.6	14.2	20.1	0.3	96.1	3.8	0.09	10.9	29.2	28.8	31.1	68.9	34.3	47.9
実施例 1 1	48.8	16.5	13.7	20.7	0.3	97.9	2.1	0.03	13.7	44.0	31.1	11.2	88.8	43.3	47.8
実施例 1 2	49.5	15.5	13.7	21.0	0.3	95.1	4.8	0.09	7.3	38.6	33.6	20.5	79.5	39.4	47.1
実施例 1 3	47.4	17.1	15.3	20.2	0.1	97.8	2.1	0.12	9.1	31.5	37.5	23.7	76.3	36.2	46.3

[0081] 原料混合物が廃プラを含まない実施例 1 1 ～ 1 3 及び比較例 2 では、分解

油と水とが分離した。H S成分中の軽質油（C 2 0以下の炭化水素）の割合及び軽質油歩留まりは、人工炭素粒子を使用しなかった比較例2に比べ、人工炭素粒子を使用した実施例1 1～1 3で向上した。

産業上の利用可能性

[0082] 本発明の方法及び設備は、液体燃料、固体燃料、活性炭などを製造するのに有用であり、特に液体燃料を製造するのに有用である。

符号の説明

- [0083] 1 1 前処理装置
1 2 ガス容器
1 3 マスフローコントローラー
2 1 流動床式分解装置
2 2 原料供給口
2 3 酸素非含有ガス置換ライン
2 4 供給量調節部
2 5 反応管
2 6 ガス排出ライン
2 7 キャリアガスライン
2 8 加熱炉
2 9 流動床
3 0 フィルター
3 1 冷却器
3 2 気液分離槽
4 1 分離装置（図示例は第1蒸留塔）
5 1 改質炉
5 2 第2蒸留塔
6 1 熱交換器
7 1 取出口
7 2 貯蔵庫

- 7 3 粒度調整装置
- 7 4 再利用システム
- 7 5 返送ライン（再分解システム）
- 8 1 賦活装置
- 8 2 精製装置
- 9 1 混合機、混練機、混捏機
- 9 2 成形機、焼成装置

請求の範囲

- [請求項1] バイオマス及び／又は有機高分子廃棄物を含む有機原料と人工炭素粒子（ただし、活性炭を含まない）とを流動床式分解装置に供給する原料供給工程、及び
- 前記流動床式分解装置にキャリアガスを導入して前記人工炭素粒子を流動させつつ、前記有機原料を分解して非固体分解成分としてキャリアガスと共に排出する一方、前記分解で生じる固体残渣を非固体分解成分と別に排出する分解工程、
- を有する有機原料の分解方法。
- [請求項2] 前記分解工程で排出された固体残渣の少なくとも一部を人工炭素粒子として、室温まで冷却される前に前記原料供給工程に戻す再利用工程、
- を有する請求項1に記載の方法。
- [請求項3] 前記分解工程で排出された固体残渣の少なくとも一部を粒度調整した後、又は粒度調整することなく、人工炭素粒子として原料供給工程に戻す請求項1又は2に記載の方法。
- [請求項4] 前記人工炭素粒子の比表面積が $500\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である請求項1又は2に記載の方法。
- [請求項5] 前記人工炭素粒子中の金属原子の含有量が20質量%以下である請求項1又は2に記載の方法。
- [請求項6] 前記原料供給工程で、前記有機原料を、不純物除去、水分除去、粒度調整、および原料配合から選ばれる少なくとも1つの前処理を行った後、前記流動床式分解装置に供給する請求項1又は2に記載の方法。
- [請求項7] 前記原料供給工程で、前記有機原料、前記人工炭素粒子、及びそれらの混合物から選ばれる少なくとも1つを前記流動床式分解装置に連続的に投入する請求項1又は2に記載の方法。
- [請求項8] 前記バイオマスが、リグノセルロース系バイオマス、及び油脂植物

系バイオマスから選ばれる少なくとも一種であり、前記有機高分子系廃棄物が合成樹脂、合成ゴム、及び合成繊維から選ばれる少なくとも一種の廃棄物である請求項 1 又は 2 に記載の方法。

[請求項9] 前記原料供給工程で、前記有機原料及び前記人工炭素粒子と共に有機酸類を前記流動床式分解装置に供給する請求項 1 又は 2 に記載の方法。

[請求項10] 前記有機酸類を前記有機原料及び前記人工炭素粒子と混合してから前記流動床式分解装置に供給する請求項 9 に記載の方法。

[請求項11] 前記有機酸類が油脂由来脂肪酸、または該脂肪酸の塩である請求項 9 に記載の方法。

[請求項12] 前記キャリアガスが、酸素濃度 3 体積%以下の窒素である請求項 1 又は 2 に記載の方法。

[請求項13] 前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分を冷却してオフガス成分と分解油に分離する気液分離工程と、前記流動床式分解装置に導入する前のキャリアガスを前記オフガス成分の燃焼によって加熱する熱回収工程とをさらに有する請求項 1 又は 2 に記載の方法。

[請求項14] 請求項 1 又は 2 に記載の分解方法が有する工程に加え、
前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分を冷却してオフガス成分と分解油に分離する気液分離工程をさらに有する分解油の製造方法。

[請求項15] 請求項 1 4 に記載の分解油の製造方法が有する工程に加え、
触媒の存在下、脱水素、転化、異性化、水添、水素化分解及び水素化精製から選ばれる少なくとも一つの改質処理をする工程をさらに有する改質油の製造方法。

[請求項16] 請求項 1 5 に記載の改質油の製造方法が有する工程に加え、
改質油を蒸留する工程をさらに有する液体燃料の製造方法。

[請求項17] 請求項 1 又は 2 に記載の分解方法が有する工程に加え、

前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分を冷却してオフガス成分と分解油に分離する気液分離工程と、

前記気液分離工程で得られた分解油を、沸点差及び／又は溶解度差を利用して軽質分解油と重質分解油とに分離する分解油分離工程と、

前記分解油分離工程で得られた軽質分解油を蒸留する液体燃料製造工程とをさらに有する液体燃料の製造方法。

[請求項18] 前記液体燃料製造工程で、前記蒸留の前の軽質分解油及び／又は前記蒸留後の蒸留物に対して、触媒の存在下、脱水素、転化、異性化、水添、水素化分解及び水素化精製から選ばれる少なくとも一つの改質処理を行う請求項17に記載の製造方法。

[請求項19] 前記液体燃料製造工程で、ナフサ、航空燃料、灯油、及び軽油から選ばれる少なくとも一種を製造する請求項17に記載の製造方法。

[請求項20] 前記ナフサがバイオナフサであり、前記航空燃料がSAFであり、前記灯油がバイオ灯油であり、前記軽油がバイオ軽油である請求項17に記載の製造方法。

[請求項21] 前記分解油分離工程で得られた重質分解油、及び前記液体燃料製造工程の蒸溜で液体燃料として留出することなく残った油から選ばれる少なくとも一方を前記分解工程に戻して再処理する請求項17に記載の製造方法。

[請求項22] 請求項1又は2に記載の分解方法が有する工程に加え、
前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分を冷却してオフガス成分と分解油に分離する気液分離工程と、
前記気液分離工程で得られた分解油を、沸点差及び／又は溶解度差を利用して軽質分解油と重質分解油とに分離する分解油分離工程と、
前記分解工程で排出される固体残渣と、前記分解油分離工程で得られる重質分解油とを、混合、混練、及び混捏から選ばれる1種以上の処理を行い、その後必要に応じて成形及び／又は焼成する固体燃料製造工程をさらに有する固体燃料の製造方法。

- [請求項23] 前記固体燃料がバイオ石炭またはバイオコークスである請求項22に記載の製造方法。
- [請求項24] 前記分解油分離工程で得られた重質分解油の一部を前記分解工程に戻して再処理する請求項22に記載の製造方法。
- [請求項25] 請求項1又は2に記載の分解方法が有する工程に加え、
前記分解工程で排出される固体残渣を賦活し、その後必要に応じて精製する活性炭製造工程をさらに有する活性炭の製造方法。
- [請求項26] 前記活性炭がバイオ活性炭である請求項25に記載の製造方法。
- [請求項27] キャリアガスで人工炭素粒子（ただし、活性炭を含まない）を流動させつつバイオマス及び／又は有機高分子廃棄物を含む有機原料を分解し、非固体分解成分と固体残渣にする流動床式分解装置と、
前記流動床式分解装置に設けられた前記有機原料と人工炭素粒子（ただし、活性炭を含まない）とを供給する1つ以上の原料供給口と、
前記流動床式分解装置に前記キャリアガスを供給するキャリアガスラインと、
前記非固体分解成分をキャリアガスと共に流動床式分解装置から排出するガス排出ラインと、
を有する有機原料の分解設備。
- [請求項28] 前記流動床式分解装置に設けられた前記固体残渣の取出口と、
排出された固体残渣を前記原料供給口に戻す再利用システムと、
をさらに有する請求項27に記載の分解設備。
- [請求項29] 前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分に含まれる分解油を、オフガスと分離する気液分離槽をさらに有する請求項27又は28に記載の分解設備。
- [請求項30] 前記分解油を改質する改質炉を備えた請求項27又は28に記載の分解設備。
- [請求項31] ナフサ、航空燃料、灯油、及び軽油から選択される少なくとも1種の液体燃料を分離回収するための蒸留塔をさらに有する請求項27又

は 2 8 に記載の分解設備。

- [請求項32] 前記流動床式分解装置から排出された前記非固体分解成分に含まれる分解油を、沸点差及び／又は溶解度差を利用して軽質分解油と重質分解油とに分離する分解装置と、
- 前記軽質分解油を蒸留する蒸留塔とをさらに有し、
- 分離装置で得られた重質分解油、及び蒸留塔で液体燃料として留出することなく残った油から選ばれる少なくとも一方を前記原料供給口に戻す再分解システムをさらに有する請求項 2 7 又は 2 8 に記載の分解設備。