

明 細 書

発明の名称： 燃料炭化水素油の製造方法及び装置

技術分野

[0001] この発明は、炭化水素油の生成方法及び装置に関する。

背景技術

[0002] 近年、二酸化炭素排出による地球温暖化問題が深刻化している。産業界では、低排出への取り組み、代替エネルギーの開発などの努力をしており、一定の効果を達成している。一方、東日本大震災で影響を受けた原子力発電が事実上ストップしている現在、化石燃料をこれまで以上に使用せざるを得ず、ますます二酸化炭素の排出に拍車をかけている。

また、近年、エネルギーによる環境破壊が問題となっている。化石燃料は、有毒ガスの元である硫黄分、窒素分、フェノール分が含まれており、環境破壊に繋がることが知られている。また、CO₂の発生による地球温暖化の対策も急務である。この環境破壊を防止若しくは抑制するために、化石燃料の使用により発生する有毒ガスを削減することや、燃料効率を高めることが有効である。

このような観点から、燃料炭化水素の燃料効率を改善させる発明として、本発明者による特許文献1に記載されたものがある。特許文献1に開示された発明は、天然植物性複合酵素を水に混合して作成された活性水を油と反応させ、酵素による原料油の加水分解反応により、反応した水も燃料として機能するものであるため、燃料効率を向上させることができ、有害物質の発生を抑制することが容易であり、しかも安定している燃料油を製造する方法及び装置を提供し、環境破壊防止に貢献することができるものである。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2012-72199

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] ところで、近年、二酸化炭素排出による地球温暖化問題、および化石燃料の枯渇による代替エネルギー問題を抜本的に解決できる手段が求められている。水素と二酸化炭素の反応により、ガソリン留分等の燃料炭化水素を生成することは明らかになっているが、高温高压の条件下での反応が要求される。また、水素を原料として用いずに、二酸化炭素を原料として炭化水素を合成する方法は、人工光合成の実現として様々な取り組みが行われているが、燃料炭化水素を効率的に製造するには至っていない。

この発明は、上述した課題に鑑みなされたものであって、高温高压の条件や水素の添加を必要とすることなく、二酸化炭素を含む気体もしくは液体を原料としてメタノールを生成し、さらに軽油や重油などの燃料炭化水素を収率良く生成する方法及び装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

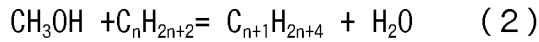
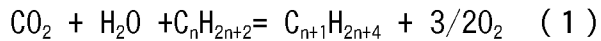
[0005] 本発明者は、上記課題を解決するため鋭意研究を行った結果、メタノールを含む水、炭化水素油（燃料炭化水素）及び二酸化炭素を含む気体もしくは液体を、常温下で加圧することなく混合することで、原料に使用した炭化水素油よりも増量した炭化水素油を生成することに成功し、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は以下の通りである。

本発明にかかる炭化水素油の増量方法は、触媒の存在下で空気をバブリングさせた水とメタノールとを混合し、得られる混合液と原料炭化水素油とを混合して乳化液を作製し、この乳化液と、二酸化炭素を含む気体又は水溶液とを接触させることを特徴とする。

[0006] また、本発明にかかる炭化水素油の製造方法は、触媒の存在下で空気をバブリングさせた水とメタノールとを混合し、得られる混合液と原料炭化水素油とを混合して乳化液を作製し、この乳化液と、二酸化炭素を含む気体又は水溶液とを接触処理し、得られる処理物から炭化水素油を採取することを特徴とする。

[0007] 上記炭化水素油の増量方法又は炭化水素油の製造方法において、炭化水素油は、次式（１）及び（２）：



に示される反応に基づいて生成されるものである。

[0008] ここで、上記炭化水素油の増量方法又は炭化水素油の製造方法において、触媒が酵素及び/又はゼオライトもしくはゼオライト様の物質であることが好ましく（触媒は、ゼオライトもしくはゼオライト様の物質に担持させた物質であってもよい）、水が活性種を含むものであることが好ましく、炭化水素油が軽油、重油、灯油、ケロシン及びガソリンのいずれかであることが好ましい。

[0009] さらに、本発明にかかる炭化水素油の生成装置は、触媒の存在下で空気をバブリングさせた水とメタノールとを混合する混合槽と、この混合槽に含まれる混合液と炭化水素油とを混合して乳化液を作製する乳化液作製槽と、作製された乳化液と二酸化炭素とを接触させる接触槽とを備えたことを特徴とする。

[0010] ここで、前記接触槽は、前記乳化液を、大気中の二酸化炭素、いずれかの槽からもしくは二酸化炭素回収装置などによって回収された二酸化炭素に曝気するか、又は二酸化炭素を含む気体若しくは水溶液を前記乳化液作製槽に導入するものであることが好ましい。

発明の効果

[0011] この発明によれば、メタノールを含む水、燃料炭化水素、および二酸化炭素を混合することで、燃料炭化水素を少なくとも10%増量することができる。従って、本発明により、温暖化の原因とされている二酸化炭素を原料として、エネルギーとなる燃料炭化水素を生成することができるので、植物が光合成によって大気中の炭素を固定しエネルギーとして用いているのと同様の作用を奏することができ、人類が地球全体の課題としているエネルギー問題及び環境問題をともに解決することができる。

図面の簡単な説明

- [0012] [図1]活性水を製造する活性水製造装置の構成図である。
- [図2]均質混合装置の構成図である。
- [図3]攪拌タンクの構成を示す構成図である。
- [図4]攪拌器の構成を説明する説明図である。
- [図5]攪拌器の内部を示す縦断面図である。
- [図6]パルスフィルタと精密フィルタの構成を説明する説明図である。
- [図7]ニュートン分離槽の縦断面図である。
- [図8]別の実施例の攪拌器を示す縦断面図である。

発明を実施するための形態

- [0013] 本発明は、メタノールを含む水と燃料炭化水素を混合して乳化状態にし、乳化状態のメタノール／水／燃料炭化水素混合溶液と、二酸化炭素を含む気体又は水溶液とを接触させることにより、燃料炭化水素の増量を行うというものである。本発明の方法により得られる燃料炭化水素は、原料の燃料炭化水素と比較して少なくとも10%、好ましくは20%、より好ましくは30%、さらに好ましくは40%も増量されている。例えば、生成された燃料炭化水素の増割割合は、原料の燃料炭化水素の10%～100%であり、好ましくは10%～50%であり、さらに好ましくは30%～50%である。

従って、本発明により、極めて効率的に燃料炭化水素を製造することができる。

本発明は、以下の工程を含む。

(i) 触媒の存在下で空気をバブリングさせることにより水を活性化させる水処理工程。

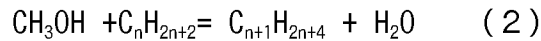
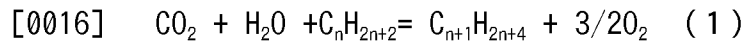
(ii) 活性化した水と炭化水素油とメタノールを混合して乳化液を作製する工程。

- [0014] (iii) 乳化液と、二酸化炭素とを接触させる工程。

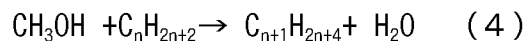
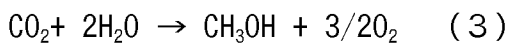
ここで、水処理工程の後に混合工程を実施し、さらにその後に反応工程を実施する代わりに、水処理工程と混合工程とを同時に実施したり、混合工程と

反応工程とを同時に実施することもでき、さらには、水処理工程、混合工程及び反応工程をすべて同時に実施することもできる。

[0015] 本発明において、上記(i)から(iii)までの工程における反応式は 次式 (1) 及び (2) によって示される。



二酸化炭素が関与する上記式 (1) は、以下の連鎖反応で表現することができる。



使用する水は、活性種（例えば活性酸素やヒドロキシラジカル）を含む状態にすることが好ましい。活性種を含むようにするためには、水をヒドロキシラジカル化するほか、水処理工程において、リパーゼ等の酵素を水に混合したり、ゼオライトもしくはゼオライト様の物質を反応系に含めることによりなされる。また、所定時間空気にてバブリングすることが好ましい。例えば、上記 (1) 及び (2) に示す式の反応が常温化でなされるように活性化するためには、常温下で 72 時間バブリングすることが好ましいが、原料の水の状態により適意時間を変更しても構わない。また、混合工程は、全体が均質となるように実施することが好ましい。

[0017] 本発明において、炭化水素油とは、炭化水素を主成分とし、常温常圧下（例えば温度 15 度及び 1 気圧）において液状を呈するものを意味し、 $\text{C}_n\text{H}_{2n+2}$ 又は $\text{C}_{n+1}\text{H}_{2n+4}$ で示される物質である（鎖式飽和炭化水素）。n は、例えば 1 ～ 40 であり、好ましくは 1 ～ 20 である。このような炭化水素油としては、重油、軽油（例えば n=10～20）、ガソリン（例えば n=4～10）、ナフサ、ケロシン（例えば n=10～15）、灯油（例えば n=9～15）などが挙げられるが、これらに限定されるものではない。

なお、本明細書においては、炭化水素油を「燃料炭化水素」又は「燃料油」ともいう。同様に触媒の存在下で空気をバブリングさせた水を「酵素水」又

は「水」ともいう。

本発明にかかる燃料炭化水素の生成方法は、その生成装置として、特開 2012-72199 に開示された燃料製造装置を利用することにより実施することができる。すなわち、図 1 は、水を活性化する水処理装置 1 の構成図である。水処理装置 1 は、複数の混合槽 11 (11a~11d) と、安定化槽 14 と、各槽に空気を送り込むブロワーポンプ 15 と、各槽間で液体を移動させるポンプ P と、その移動の際に不純物などを除去するフィルタ F とで構成されている。混合槽 11a~11d は、図示上下に 2 系統設けられており、両系統とも、混合槽 11a, 11b, 11c, 11d の順にポンプ P とフィルタ F とで接続されている。

[0018] 混合槽 11a には、例えば軟水、酵素粉末（例えば E P-10）含むゼオライトもしくはゼオライト様の物質が、1000 リットル、500 g の割合で供給され、この軟水、酵素粉末及びゼオライトがブロワーポンプ 15 から供給される空気によって、例えば 72 時間、攪拌混合される。水と酵素粉末を含むゼオライトもしくはゼオライト様の物質の比率は、例えば軟水 99.95%（重量比）に対して酵素粉末 0.05%（重量比）程度とすることが好ましい。また、この酵素粉末を構成する酵素の由来は特に限定されるものではなく、動物由来であると植物由来であると微生物由来であるとを問わない。酵素は、リパーゼを主原料とすることが好ましく、リパーゼとセルラーゼで構成することがさらに好ましい。また、酵素は、二価酸化鉄を含むことが好ましい。また、酵素は、リパーゼを 98%（重量比）、セルラーゼを 2%（重量比）とすることがより好ましい。これらの酵素は、マンゴー、アボカド、パイナップル、ノニ、サジー等の果物から抽出することができる。また、市販の酵素を用いてもよい。酵素粉末は、このような酵素を熱乾燥させた粉末とし、保存性を高めて用いることが好ましい。

[0019] この混合水は、一定時間経過後にポンプ P によって次の混合槽 11b へ移動される。この移動の際、フィルタ F で不純物を取り除かれる。そして、混合槽 11b では、再度ブロワーポンプ 15 から供給される空気によって攪拌混

合される。これを混合槽 11 d まで繰り返したのち、安定化槽 14 にてアルコールが添加される。このアルコールは、例えばメタノールやエタノールとすることができ、メタノールを用いることが好ましい。このアルコールの配合率は、例えば混合水に対してメタノール 5%～20%（重量比）程度とすることが好ましい。

アルコールが添加された精製活性水は、安定化槽 14 からポンプ P により取り出される。その際、3つのフィルタ F により不純物を取り除かれる。取り出された精製活性水は、適宜の容器に移す、あるいは、次の図 2 に示す燃料製造装置 2 の活性水タンク 22 に貯留する。

本実施例において、水処理装置 1 によって活性化された水は、常温においても、反応工程において、原料油を加えたときに反応式（1）及び（2）の反応がなされるように活性化されている。

[0020] 図 2 は、均質混合装置 2 の構成図を示す。均質混合装置 2 は、原料油を貯留する油貯留部としての原料油タンク 21、活性水を貯留する活性水貯留部としての活性水タンク 22、2つの攪拌タンク 23、制御盤 24、パルス付与部 25、ニュートン分離槽 26、分離タンク 27、精密フィルタ部 28、完成タンク 29、および排液タンク 30 により構成されている。

原料油タンク 21 は、原料となる油を貯留するタンクであり、貯留している原料油を必要量ずつ攪拌タンク 23 へパイプ R を通じて注ぎ込む。原料油は、例えば A 重油、B 重油、C 重油、軽油、灯油等とすることができ、この実施例では A 重油を用いる。

活性水タンク 22 は、活性水製造装置 1 で精製した活性水を貯留するタンクであり、貯留している活性水を必要量ずつ攪拌タンク 23 へパイプ R を通じて注ぎ込む。

攪拌タンク 23 は、注ぎ込まれた原料油（この例では A 重油）と活性水を攪拌して反応させて燃料油を製造するタンクである。ここでの反応は、酵素による原料油の加水分解反応である。この攪拌タンク 23 に注ぎ込む原料油と活性水の比率は、原料油の種類によって適宜調整するとよく、例えば、A 重

油 60%と活性水 40%、軽油 70%と活性水 30%、あるいは、灯油 70%と活性水 30%といった比率にすることが好ましいが、原料油の性状により、さらに適意調整して構わない。

[0021] 制御盤 24 は、各部を制御する制御部であり、電力供給の ON/OFF などの各種制御を実行する。パルス付与部 25 は、攪拌タンク 23 で製造された燃料油に振動を与えて残渣物を取りやすくする。残渣物は、例えば反応し切れなかった水、重油中の不純物等である。

ニュートン分離槽 26 は、燃料油を貯留して重力によって残渣物を下方へ落とし、上方に残る燃料油を抽出する。

分離タンク 27 は、燃料油からさらに残渣物を分離する。精密フィルタ部 28 は、燃料油からフィルタによって残渣物を取り除く。完成タンク 29 は、完成した燃料油を貯留する。排液タンク 30 は、パルス付与部 25 およびニュートン分離槽 26 で発生した排液を貯留する。

[0022] 図 3 は、攪拌タンク 23 の構成を示す構成図である。攪拌タンク 23 は、略円筒形の攪拌空間 40 が設けられ、この攪拌空間 40 内に、攪拌器 43 (43L, 43R)、及びポンプ 44 (44L, 44R) が設けられている。攪拌器 43 は、図示左方の攪拌器 43L が攪拌空間 40 内の下方に設けられ、図示右方の攪拌器 43R が攪拌空間 40 内の上方に設けられており、それぞれが上下左右に分散配置されている。各攪拌器 43 は、ポンプ 44 (44L, 44R) が接続されており、このポンプ 44 から燃料油、活性水、あるいは活性水と油の混合物などが供給される。

ポンプ 44L は、吸入口 41L が上方に配置されたパイプが接続されており、ポンプ 44L が燃料油、活性水、あるいは活性水と油の混合物を攪拌器 43L へ送り出すことによって、攪拌空間 40 内の燃料油、活性水、あるいは活性水と油の混合物などを略均等に循環させている。

ポンプ 44R は、吸入口 41R が下方に配置されたパイプが接続されており、ポンプ 44L が燃料油、活性水、あるいは活性水と油の混合物を攪拌器 43L へ送り出すことによって、攪拌空間 40 内の燃料油、活性水、あるいは

活性水と油の混合物などを略均等に循環させている。このポンプ 44 L, 44 R は、いずれも 30 圧～40 圧のポンプを用いることが好ましい。

[0023] 図 4 は、攪拌器 43 の構成を説明する説明図である。攪拌器 43 は、内部中空の金属製であり、略円筒形の頭部 51 と、その下に続く逆円錐形の胴部 59 と、その下の後端部 60 とで主に構成されている。頭部 51 の上面中央には、円筒形の中心軸 53 が設けられている。この中心軸 53 は、上下方向に貫通する流入孔 53 a (図 5 参照) が設けられており、この流入孔 53 a から燃料油、活性水、あるいは活性水と油の混合物が流入する。

頭部 51 の側面の一部には、燃料油、活性水、あるいは活性水と油の混合物が流入する流入口 57 が設けられている。この流入口 57 は、外から内へ貫通する孔であり、円筒形の連結カバー 55 で周囲が囲繞されている。連結カバー 55 の内面にはネジ溝 56 が設けられており、ポンプ 44 と連結するパイプが取り付けられる構成になっている。

また、流入口 57 の位置および連結カバー 55 の向きは、図 4 (B) の A-A 断面図に示すように、攪拌器 43 の中心より偏心して内周へ向かって燃料油、活性水、あるいは活性水と油の混合物が流入するように構成されている。これにより、流入口 57 のから流入した燃料油等が、円筒形の中心軸 53 を軸にして効率よく回転する。

図 5 の B-B 断面図に示すように、攪拌器 43 の内部には、内周に沿って複数のピン 63 が立設されている。この複数のピン 63 は、それぞれが交差しないように隙間を空けて配置されている。例えば、0.03 mm のピンを、10 mm 程度の間隔を開けて 55～80 本設けるとよい。

[0024] 攪拌器 43 の後端部 60 には、排出孔 61 が設けられている。このように構成された攪拌器 43 は、油と活性水を効率よく攪拌して分解反応させることができる。詳述すると、流入口 57 から流入した燃料油、活性水、あるいは活性水と油の混合物は、中心軸 53 の周囲を回転しつつ、排出孔 61 へ向かって回転半径が徐々に小さくなる竜巻状に移動する。その際、内部に設けられた複数のピン 63 によって攪拌される。また、竜巻状に回転することによっ

て、中心軸 5 3 の下方付近に負圧が発生し、これによって流入孔 5 3 a から燃料油、活性水、あるいは活性水と油の混合物が流入する。すなわち、図 3 に示した攪拌器 4 3 L は、吸入口 4 1 L から吸入する主に油をポンプ 4 4 L によって流入口 5 7 から取り込み、流入孔 5 3 a から主に活性水を取り込んで攪拌する。これと逆に攪拌器 4 3 R は、吸入口 4 1 R から吸入する主に活性水をポンプ 4 4 R によって流入口 5 7 から取り込み、流入孔 5 3 a から主に油を取り込んで攪拌する。この攪拌器 4 3 により、強力な水圧の中で活性水と油を激突させて攪拌し、反応式 (1) の反応を促進させることができる。

この攪拌器 4 3 を備えた攪拌タンク 2 3 にて所定時間（例えば 1 5 分～2 0 分程度）攪拌すると、攪拌器 4 3 内で竜巻状に移動して攪拌されている油と酵素が 3 0 0 回から 5 0 0 回接触し、加水分解反応が促進されて分子構造が小さくなり、比重も軽くなる。

[0025] 図 6 (A) は、パルス付与部 2 5 に設けられるパルスフィルタ 7 0 の斜視図である。このパルスフィルタ 7 0 は、2 つのラインミキサーの間に設けられ、格子状の間仕切り 7 1 の間に形成される孔に燃料油を通過させる。このパルス付与部 2 5（特に間仕切り 7 1）は、セラミック焼成体で形成されている。

間仕切り 7 1 は、内部でスクリー状に緩やかにねじれており、流入してきた燃料油を振動させ、反応を促進させる。これにより、不純物を取り除きやすい状態にすることができる。

図 6 (B) は、精密フィルタ部 2 8 に設けられる精密フィルタ 8 0 の斜視図を示す。この精密フィルタ 8 0 は、メッシュ状の素材で形成された円筒形の筒部 8 2 の周囲に、中心から放射状に広がるフィルタ 8 1 が設けられている。このフィルタ 8 1 に対して外周から筒部 8 2 内へ向けて燃料油を通過させることで不純物を取り除くことができる。

フィルタ 8 1 は放射状に設けられているため、図 6 (C) の一部拡大平面図に示すように、基部側 8 1 a から先端側 8 1 c までの板状面 8 1 b 全体で燃

料油を通過させることができる。このため、基部側 8 1 a に不純物が蓄積してきて通過しづらくなっても、板状面 8 1 b で燃料油を問題なく通過させて不純物を取り除くことができる。

[0026] 図 7 は、本発明にかかる接触槽としてのニュートン分離槽 2 6 の縦断面図を示す。ニュートン分離槽 2 6 は、底部付近に設けられた傾斜板 9 6 と、その上方位置に交互に複数設けられた高位板 9 2 と低位板 9 3 とで主に構成され、前段に液体流入口 9 1 が、後段に液体排出口 9 5 が設けられている。高位板 9 2 は、下端と傾斜板 9 6 の間に空間が設けられており、燃料油が前後へ移動できるように構成されている。低位板 9 3 は、上端が高位板 9 2 より低く形成されており、貯留している燃料油の上部を溢れさせて隣の貯留部に移動させることができる。この低位板 9 3 は、下端部に可動板 9 4 が設けられており、この可動板 9 4 の下端が傾斜板 9 6 に接触するように構成されている。高位板 9 2 と低位板 9 3 は、この順で交互に並べて構成されており、傾斜板 9 6 の傾斜に合わせて下端が次々に短くなるように構成されている。

[0027] この構成により、液体流入口 9 1 から第 1 貯留部 9 0 a に流入した燃料油は、不純物が下方へ蓄積して精製されるとともに、反応式 (1) 及び (2) により燃料油が生成されて、次の第 2 貯留部 9 0 b へあふれ出る。これを第 1 貯留部 9 0 a から第 4 貯留部位 9 0 d まで繰り返して綺麗になった燃料油は、液体排出口 9 5 から排出される。

各貯留部 9 0 a ~ 9 0 d で沈殿した不純物は、傾斜板 9 6 に沿って下方へ移動する。この際、可動板 9 4 が開いて不純物が下方へ移動することを許容する。なお、この可動板 9 4 は、逆方向には開かないため、不純物が逆流することはない。

傾斜板 9 6 に沿って下方へ移動した不純物は、回収開口部 9 7 からバルブ 9 9 a を介して回収部 9 8 へ移動し、この回収部 9 8 内に回収される。バルブ 9 9 a は、間欠的に開閉動作し、ある程度残渣が溜まれば開放して回収部 9 8 に回収し、閉鎖する。このとき、回収部 9 8 の上部付近に設けられた排気バルブ 9 9 c より排気される。回収部 9 8 に回収した不純物は、回収バルブ

99bから取り出して廃棄等するとよい。

[0028] なお、攪拌器43は、図8に示すように異なるタイプの攪拌器43Aを用いてもよい。この攪拌器43Aは、後端部60に排出孔が設けられていない。また、上述した実施例の中心軸53の代わりに中心パイプ54が設けられている。この中心パイプ54は、内部に中空部67を有する円筒形状を有しており、その上端67aが燃料油の排出口として機能する。このように構成された攪拌器43Aは、流入口57から流入した活性水と油を回転させ、回転半径を小さくしながら竜巻状に下方へ移動させ、中心パイプ54の下端から上端へ移動して上端から排出される。この攪拌器43Aも、上述した実施例の攪拌器43と同一の作用効果を奏することができる。

以上に説明した水処理装置1、均質混合装置2及びニュートン分離槽26により、反応式(1)及び(2)による反応をなさしめ、燃料油を生成することができる。

以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明する。但し、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

実施例 1

[0029] 燃料油の生成試験

本発明者は、上記装置を用いて燃料炭化水素の生成試験を行った。この試験では、上述した発明を実施するための形態に記載した装置を用い、同形態に記載した方法を採用した。

[0030] <試験結果>

本試験では、原料油として軽油を用い、新燃料として、原料油とメタノール／活性水と混合して調製した燃料（混合体積比は、370:150）を得ることができた。

本試験により、投入した物質は、次のとおりである。

[0031]	比 重	体積（リットル）	質量（kg）
軽油	0.845	3364.30	2842.83

酵素水	1	7 0 5 7 . 1 0	7 0 5 7 . 1 0
メタノール	0 . 7 9	4 1 2 . 6 0	3 2 5 . 9 5
合計		1 0 8 3 4 . 0 0	1 0 2 2 5 . 8 9

これに対し、オーバフローした新燃料と各タンクの残量の合計は、次のとおりである。

軽油	0 . 8 4 5	4 9 2 3 . 9 2	4 1 6 0 . 7 1
メタノール酵素水	0 . 9 7 5	5 5 8 7 . 9 6	5 4 4 8 . 2 6
合計		1 0 5 1 1 . 8 8	9 6 0 8 . 9 7

よって、軽油の収支は+1317.88kg、メタノール酵素水の収支は-1934.80kgとなり、全収支は-616.92kgとなり、軽油の増加率は46.36%にも及ぶことができた。

実施例 2

[0032] 追加試験

また、実施例1の後に行った同様の追加試験でも、下記のデータが得られた。

[0033] [追加試験1による生成分]

全体物質収支 -16.0kg

成分物質収支

軽油 126.5kg

水 -117.1kg

メタノール -25.3kg

軽油増加率 40.2%

[追加試験2による生成分]

連続9バッチ（1バッチ 370リットルの軽油）の生成試験を実施した。

[0034] 投入軽油 : 2813.85kg

生成軽油 : 3826.88kg

軽油増加率 : 36%

[追加試験3による生成分]

投入量 (総計 9 7 6 8. 1 k g)

ニュートンタンク準備

メタノール酵素水 (ロードセル測定数値 : 7 0 3 6. 0 k g、メタノール濃度 0. 7 8 6 %)

(内訳 : 酵素水 (6 9 8 0. 7 k g)、メタノール (5 5. 3 k g)、軽油 (無し))

1 クール (6 バッチ) 投入総量

メタノール酵素水 : 8 6 8. 6 k g ((i) 1 4 5. 3、(ii) 1 4 4. 0、(iii) 1 4 5. 6、(iv) 1 4 3. 6、(v) 1 4 5. 2、(vi) 1 4 4. 9) k g

軽油 : 1 8 6 3. 5 k g (2 2 1 8. 4 5 l、比重 0. 8 4 0) ((i) 3 1 0. 3、(ii) 3 1 0. 3、(iii) 3 1 1. 1、(iv) 3 1 0. 3、(v) 3 1 1. 3、(vi) 3 1 0. 2) k g

(基本準備 : 酵素水 1 3 0 k g / 1 3 0 l、メタノール 2 5. 7 k g / 3 2. 5 l、軽油 3 1 9. 2 k g / 3 8 0 l)

回収量 (総量 9 6 0 8. 6 k g)

全行程 1 クール (6 バッチ) 終了後、手作業にて質量を計測した。

[0035] メタノール酵素水 : 7 0 9 2. 7 k g

軽油 : 2 5 1 5. 9 k g (2 9 9 5. 1 2 l、比重 0. 8 4)

マスバランス (- 1 5 9. 5 k g)

投入量 - 回収量 = 9 7 6 8. 1 k g - 9 6 0 8. 6 k g = - 1 5 9. 5 k g

ここで、ロードセルの測定値によると総重量が - 1 4 0 k g となっていたため、実質的な質量の増減は約 1 9. 5 k g 程度となる。

[0036] メタノール酵素水の増減 : - 8 1 1. 9 k g (投入量 7 9 0 4. 6 k g - 回収量 7 0 9 2. 7 k g)

軽油の増減 : + 6 5 2. 4 k g (投入量 1 8 6 3. 5 k g - 回収量 2 5

15.9kg、776.6l)

軽油増加率：35.0%

実施例 3

[0037] 試験結果の検証

上記試験結果の物質収支データに基づき、増量した軽油の炭素源を検証した。

まず、物質収支データに基づく軽油増量の炭素源を検証すると、新燃料生成によって得られた物質収支データから、以下の点が明らかとなった。

[0038] 1) メタノールの減少量だけでは、軽油増量を説明できないことから、別の炭素源が存在することが明らかになった。

[0039] 2) 水の減少が明確に観測されたことから、メタノール以外の炭素源が必要であり、化学反応式(12)(二酸化炭素が反応に関与すると水が消費される)が成り立つと考えざるを得ないことから、空気中の二酸化炭素が軽油増量の炭素源(カーボンソース)となると考えて差し支えない。

上記より、炭素源がメタノール以外に必要であり、二酸化炭素が反応に関与すると水が消費されることから、空気中の二酸化炭素が軽油増量の炭素源(カーボンソース)となり得ることが示された。なお、実施例1、2における軽油の生成率が異なる点については、反応式(1)～(4)から、水が増加のための原料であり、この水の性状(pH、硬度、濁度など)により生成率が異なること等が考えられるものの、上記実施例より、概ね30%以上の増量が可能であることは実証できた。

実施例 4

[0040] 炭素源の検証

二酸化炭素が軽油増量の炭素源となるかどうかを調べるため、炭素安定同位体 ^{13}C が軽油中の炭化水素に導入されるかどうかの検証を次の手順で行った。

<実験手順>

1) 内容量約500mLのPETボトル(容器1)を、 ^{13}C で標識した CO_2 で満たし、密

栓した。

2) パルスタンクから流出する混合液100g (液温30.5℃) を容器1に入れて、密栓した。

3) 5秒ほど振とうして静置した。その際、容器1が潰れることを確認した。

4) 上記操作を完了してから6日後、炭素安定同位体比 $\delta^{13}\text{C}$ をサーモフィッシャーサイエンス社DELTA V ADVANTAGEを使用して計測した。

この計測は、同位体研究所 (横浜市鶴見区末広町 1-1-40 横浜市産学共同研究センター内、代表取締役：塙章) により行った。

2回の分析 (分析1、分析2) の結果、炭素安定同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$ vs PDB) が、分析1では-26.4 (‰) であり、分析2では-27.8 (‰) であった。

すなわち、 ^{13}C と接触させた軽油の $\delta^{13}\text{C}$ が、元軽油の $\delta^{13}\text{C}$ と比較して、1.4‰値が高くなっている。これは、 ^{13}C の含有量が元軽油と比較して高いことを示している。したがって、二酸化炭素が軽油増量の炭素源 (カーボンソース) となることが実証された。

[0041] このように、新燃料製造時の物質収支と炭素安定同位体 ^{13}C を用いた反応試験により、軽油増量のための炭素源 (カーボンソース) として、メタノールだけではなく、二酸化炭素が関与していることが実証された。

つまり、大気中の二酸化炭素の炭素を炭素源とした場合、この炭素を人工的に固定することができ、これを原料として燃料 (上記実施例では軽油) を合成 (増量) することが副次的に示された。本件発明によって実現される化学反応式より、二酸化炭素を取り込んで、酸素を放出し、炭素を燃料という形でエネルギー源に変換していることから、もはや人工光合成と言って差し支えない反応が生じていることは明らかである。そして、驚くべきことに、上記の反応式 (1) (2) による反応が、本件実施例では、高温高圧をかけることなく、すべて常温下にてなされている。もっとも、本件発明は、これらの反応式 (1) (2) による反応をすべて常温下にてなされることのみに限定されるものではない。例えば、いずれかの工程を加温下ないしは加圧下で行う

ことにより、さらなる短時間で高性能のメタノールまたは燃料炭化水素を生成することもできる。

[0042] なお、上記実施例では、燃料（軽油）と反応させたが、反応式（1）によって取り込んだ炭素はメタノールとして利用可能なことから、当該メタノールをさまざまな化学製品の原料や燃料そのものに加工することができ、その応用範囲は広い。

さらに、最近、燃焼ガスから二酸化炭素を回収する装置が多数発表されている。現在、この装置から回収された二酸化炭素は、大深度地下の地殻内に廃棄されているが、この回収した二酸化炭素を本発明の反応系に組み込むことが可能であり、炭素循環の効果が生まれ、大気中の二酸化炭素を増やすことなく燃焼が可能となるし、この場合には、高濃度の二酸化炭素を反応させることができるので、より効率の良いメタノールまたは燃料の生成をすることができる。

[0043] 以上より、本発明は、地球環境の視点からも、画期的な技術であるといえる。

なお、炭素安定同位体比（ $\delta^{13}\text{C}$ ：デルタ ^{13}C ）について、補足する。すなわち、元素や同位体の絶対濃度の直接測定することは極めて困難なので、同位体の相対存在比を測定する方法が一般的に採用されている。安定同位体比 δ は、標準物質の安定同位体存在比と分析サンプルの安定同位体存在比がどれくらい隔たっているか（ずれ）が、千分率（1/1000：パーミル）で示される。炭素（C）の標準物質は、矢石（PDB：Pee Dee ベレムナイト アメリカ・ノースキャロライナ州のPee Dee層に算出する矢石（イカの仲間の化石）の炭酸カルシウム）で、 ^{12}C が98.894%、 ^{13}C が1.106%である。

実施例 5

[0044] 実施例 4 の検証

実施例 4 までの説明において、二酸化炭素が炭化水素油増量の炭素源であることを理論的に検証してきたが、実際に二酸化炭素の存在による増量につい

て試験を実施した。なお、装置の構造上、完全に（例えば大気中の）二酸化炭素を遮断できない構造のため、強制的に二酸化炭素を曝露させた場合の挙動について試験を行った。

[0045] <試験手順 1>

パルスタンクから流出される混合液 50 g をサンプリングして 500 ml の密閉容器に入れ、以下の条件にて増量の程度を計測した。計測は、上記サンプリングから 1 時間後に行った。

[0046] ・ 容器内の空隙が大気の場合（通常の場合、二酸化炭素濃度は 300 ppm 程度である）

増量：約 15%

・ 容器内の空隙を二酸化炭素で完全に満たした場合

増量：約 26%

(i) においても増量されているのは、攪拌タンク・パルスタンク内が開放構造であり、大気に曝露されることと、投入したメタノールの反応とによるものである。(i)と(ii)の違いは曝露されている二酸化炭素濃度の違いだけであり、(ii)が大きく増量しているのは混合液に曝露される二酸化炭素の濃度が高く、反応が早く進行したものと考えることができる。

上記試験により、1 時間後に増量の差が確認でき、二酸化炭素の存在によって反応時間の短縮が示唆されたため、次に二酸化炭素濃度の違いによる反応時間の差について試験を実施した。

[0047] <試験手順 2>

パルスタンクから流出される混合液 50 g をサンプリングして 500 ml の透明密閉容器に入れ、以下の条件にて増量の時間経過を計測した。

[0048] ・ 容器を密閉せず、大気に開放した場合（通常の場合、二酸化炭素濃度は 300 ppm 程度である）

約 30% まで増量する時間：約 22 時間

・ 容器内の空隙を二酸化炭素で完全に満たし、密閉した場合

約 30% まで増量する時間：約 90 分

上記の試験結果より、積極的に二酸化炭素を曝露することで、反応時間を短縮する可能性を確認することができた。

実施例 6

[0049] 酸素が発生することを示す化学反応式 $\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O} + \text{C}_n\text{H}_{2n+2} = \text{C}_{n+1}\text{H}_{2n+4} + 3/2\text{O}_2$ の化学反応式 (1) のように、実際に反応中に酸素が発生されているかどうかを、酸素検知管を用いることにより定性的に確認した。

[0050] <試験手順>

攪拌タンクの稼働中にタンク上部の気体をサンプリングし、酸素検知管にて酸素濃度を計測した。また、タンク近傍の大気（バックグラウンド）についても同様に行った。

[0051] ・ タンク近傍の大気（バックグラウンド）

酸素濃度：約 21%

・ 攪拌タンク内の気体

酸素濃度：約 22.5%～23%

この試験結果により、上記化学反応式 (1) において、酸素が発生することを確認することができた。

産業上の利用可能性

[0052] 本発明は、様々な油の増量に利用することができ、例えば A 重油、B 重油、C 重油、軽油、灯油等に利用することができる。

符号の説明

[0053] 1 水処理装置

2 均質混合装置

23 攪拌タンク

25 パルス付与部

26 ニュートン分離槽（接触槽）

27 分離タンク

43L, 43R, 43A 攪拌器

63 ピン

請求の範囲

- [請求項1] 触媒の存在下で空気をバブリングさせた水とメタノールとを混合し、得られる混合液と原料炭化水素油とを混合して乳化液を作製し、この乳化液と、二酸化炭素を含む気体又は水溶液とを接触させることを特徴とする、炭化水素油の増量方法。
- [請求項2] 触媒の存在下で空気をバブリングさせた水とメタノールとを混合し、得られる混合液と原料炭化水素油とを混合して乳化液を作製し、この乳化液と、二酸化炭素を含む気体又は水溶液とを接触処理し、得られる処理物から炭化水素油を採取することを特徴とする、炭化水素油の製造方法。
- [請求項3] 炭化水素油は、次式（１）及び（２）：

$$\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O} + \text{C}_n\text{H}_{2n+2} = \text{C}_{n+1}\text{H}_{2n+4} + 3/2\text{O}_2 \quad (1)$$

$$\text{CH}_3\text{OH} + \text{C}_n\text{H}_{2n+2} = \text{C}_{n+1}\text{H}_{2n+4} + \text{H}_2\text{O} \quad (2)$$
 に示される反応に基づいて生成されるものである請求項１又は２に記載の方法。
- [請求項4] 触媒が酵素及び/又はゼオライトもしくはゼオライト様の物質である請求項１又は２に記載の方法。
- [請求項5] 水が活性種を含むものである請求項１又は２に記載の方法。
- [請求項6] 炭化水素油が軽油、重油、灯油、ケロシン及びガソリンのいずれかである請求項１又は２に記載の方法。
- [請求項7] 触媒の存在下で空気をバブリングさせた水とメタノールとを混合する混合槽と、この混合槽に含まれる混合液と炭化水素油とを混合して乳化液を作製する乳化液作製槽と、作製された乳化液と二酸化炭素とを接触させる接触槽とを備えたことを特徴とする炭化水素油の生成装置。
- [請求項8] 前記接触槽は、前記乳化液を、大気中の二酸化炭素、若しくはいずれかの槽から回収された二酸化炭素に曝気するか、又は二酸化炭素を含む気体若しくは水溶液を前記乳化液作製槽に導入するものである請求

項 7 に記載の装置。

[請求項9] 前記接触槽は、前記乳化液を、二酸化炭素回収装置などによって回収された二酸化炭素に曝気するものである請求項 7 に記載の装置。