

課題番号	GR081
------	-------

**先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)
実施状況報告書(平成23年度)**

本様式の内容は一般に公表されます

研究課題名	反応速度の壁を突破する炭素資源の低温迅速ガス化
研究機関・ 部局・職名	九州大学・先導物質化学研究所・教授
氏名	林潤一郎

1. 当該年度の研究目的

本研究は、化学エネルギー損失を最小化できる「熱分解炉・改質ガス化炉からなる多段反応器システム」による炭素資源二段化学クエンチガス化の概念を実証することを最終目標とする。前年度成果を踏まえ、本年度は、①熱分解炉によるタール発生完了と無煙活性炭化物(TFAC)生成の実証、②改質ガス化炉における揮発成分完全改質およびTFAC迅速ガス化のためのカリウム触媒添加効果の実証、を主目的とし、さらに、これらに加えて③TFAC水蒸気ガス化反応機構の解明(平成22年度からの継続)、平成22年度成果から生まれた新課題である④熱分解によって生成するオイル(タール)を400℃以下の温度で一段完全ガス化する接触水熱ガス化法の開発、⑤燃料電池との組合せによる次世代スーパーガス化複合発電の最適燃料であるTFACを原料とする流動層水蒸気ガス化法の基礎知見取得、も目的とした。

2. 研究の実施状況(600~800字)

①熱分解によって生成する炭化物(チャー)の無煙性を評価するため、キュリーポイント加熱-GCMS分析法を適用し、チャーの加熱時に発生するタール(BTX以外の芳香族化合物)の1000ppm~1ppb-wtの広レンジ検出・定量に成功した。この手法を4種の炭素資源(バイオマス、褐炭)から調製したチャーに適用し、熱分解温度が550℃ないし600℃以上であれば、再加熱時のタール発生量を100ppm-wt%レベルまで低下でき、事実上の無煙化が可能であり、しかも、10~20 wt%の揮発成分が残留する高活性なチャー(TFAC)を製造できることを示した。このように、無煙性の科学的定義と評価に初めて成功した。

②熱分解炉と改質ガス化炉から成る連続装置を用いてカリウム(K)担持バイオマスおよび褐炭の二段クエンチガス化の概念実証を試みた。K₂CO₃水溶液をスプレーする極めて簡便な方法によってKを担持したバイオマスを原料として、O₂/C比、H₂O/Cモル比がそれぞれ0.2、0.5前後、ガス化改質炉(下流部)温度が600~700℃という、極めて穏和な条件下で、100%の定常炭素転換率、100 ppm-wt未滿の総タール残留量を同時に達成し、本研究提案当初の目標をほぼ達成した。褐炭に関しても同様の成果を得た。

③前年度明らかにしたチャーの水蒸気ガス化速度論・機構をさらに検討するなかで、金属種を除去したチャーは、反応過程で比表面積が著しく変化するにも拘らず、単純な一次反応速度論に従ってガス化することを7種の炭素資源由来のチャー全てについて発見し、ここ数10年受け入れられてきたチャーガス化反応速度論・機構に重大な疑いがあることを示した。

④炭素資源熱分解で生成するオイルの水熱ガス化に新規開発のPt-Ni/C触媒を適用し、350℃、20MPaという条件下で、ガス化率99.95%以上、水中の残留炭素5 ppm未滿を達成した。

⑤TFACの流動層水蒸気ガス化では、流動媒体(珪砂)がTFACから金属種(触媒)を奪い取り、ガス化速度を低下させてしまうことを明らかにし、今後の最重要な技術課題であることを示した。

様式19 別紙1

3. 研究発表等

<p>雑誌論文 計 6 件</p>	<p>(掲載済み－査読有り) 計 5 件</p> <p>① Yong Huang, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Masaki Amaike, Jun-ichiro Hayashi, Selective Production of Light Oil by Biomass Pyrolysis with Feedstock-mediated Recycling of Heavy Oil, <i>Energy Fuels</i>, 26 (1), 256–264 (2012)</p> <p>② Saruul Idesh, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi, Catalytic Hydrothermal Reforming of Water-soluble Organics from the Pyrolysis of Biomass Using Ni/carbon Catalyst Impregnated with Pt, <i>Energy Fuels</i>, 26 (1), 67–74 (2012)</p> <p>③ Tsukasa Sueyasu, Tomoyuki Oike, Aska Mori, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi, Simultaneous Steam Reforming of Tar and Steam Gasification of Char from the Pyrolysis of Potassium-Loaded Woody Biomass, <i>Energy Fuels</i>, 26 (1), 199–208 (2012)</p> <p>④ Sou Hosokai, Koyo Norinaga, Tokuji Kimura, Masaki Nakano, Chun-Zhu Li, Jun-ichiro Hayashi, Reforming of volatiles from the biomass pyrolysis over charcoal in a sequence of coke deposition and steam gasification of coke, <i>Energy Fuels</i>, 25 (11), 5387–5393 (2011)</p> <p>⑤ Shinji Kudo, Keigo Sugiyama, Koyo Norinaga, Chun-Zhu Li, Tomohiro Akiyama, Jun-ichiro Hayashi, Coproduction of clean syngas and iron from woody biomass and natural goethite ore, <i>Fuel</i> (2011) doi:10.1016/j.fuel.2011.06.074 (2011)</p> <p>(掲載済み－査読無し) 計 1 件</p> <p>① 反応速度の壁を突破する炭素資源の低温迅速ガス化, 林潤一郎, 化学工学 (ISSN 0375-9253), 76(4), 190-192 (2012)</p> <p>(未掲載) 計 0 件</p>
<p>会議発表 計 19 件</p>	<p>専門家向け 計 15 件</p> <p>① 石川文晴, 柏木隆宏, 中川潤, 遠藤克己, 坂本哲夫, 林潤一郎, カリウム担持バイオマスの炭化物表面の高面分解能 TOF-SIMS 分析, 日本化学会第 92 春季年会, 横浜, 2012.3.26-28, 日本化学会</p> <p>② 林潤一郎, 次世代ガス化の概念実証, 日本学術振興会第 148 委員会第 132 回研究会, 東京, 2012.2.10, 日本学術振興会第 148 委員会</p> <p>③ Huang Yong, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Masaki Amaike and Jun-ichiro Hayashi, Selective Production of Light Oil by Biomass Pyrolysis with Feedstock-mediated Recycling of Heavy Oil, 2011 Sino-Australian Symposium on Advanced Coal and Biomass Utilisation, Wuhan, 2011.12.9-11, Curtin University</p> <p>④ Idesh Saruul, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi, Catalytic Hydrothermal Gasification of Water-Soluble Organics from the Pyrolysis of Biomass, 2011 Sino-Australian Symposium on Advanced Coal and Biomass Utilisation, Wuhan, 2011.12.9-11, Curtin University</p> <p>⑤ Tsukasa Sueyasu, Tomoyuki Oike, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi Simultaneous Steam Reforming of Tar and Steam Gasification of Char from the Pyrolysis of Potassium-Loaded Woody Biomass, 2011 Sino-Australian Symposium on Advanced Coal and Biomass Utilisation, Wuhan, 2011.12.9-11, Curtin University</p> <p>⑥ Tomoyuki Oike, Tsukasa Sueyasu, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi, Two-stage Low-temperature Gasification of Potassium-loaded Woody Biomass, The 24th International Symposium on Chemical Engineering, Gyeongju, 2011.12.3-4, Society of Chemical Engineering, Japan</p> <p>⑦ Tomoyuki Oike, Tsukasa Sueyasu, Shinji Kobo, Koyo Norinaga Jun-ichiro Hayashi, Two-Stage Conversion of Potassium-loaded Biomass into H₂-rich Syngas, 7th International Conference on Clean Coal Technology and Fuel Cells, Fukuoka, 2011.11.8-9, Central Institute of Electric Power Industry, Japan</p> <p>⑧ Shinji Kudo, Saruul Idesh, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi, Pt/Ni/Carbon Catalyst for Catalytic Hydrothermal Reforming of Water-Soluble Organics from the Pyrolysis of</p>

	<p>Biomass, 7th International Conference on Clean Coal Technology and Fuel Cells, Fukuoka, 2011.11.8-9, Central Institute of Electric Power Industry, Japan</p> <p>⑨末安司, 森明日香, 工藤真二, 則永行庸, 林潤一郎, 化学工学会第43回秋季大会, 名古屋, 2011.9.14-16, 化学工学会</p> <p>⑩Jun-ichiro Hayashi, Next-generation Gasification of Carbon Resources: Consideration of Chemistry, Process and System, 9th Korea-China-Japan Joint Symposium on Carbon Materials to Save the Earth (CSE2011), Cheju, 2011.8.25-27, Korean Institute of Energy Research</p> <p>⑪Idesh Saruul, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi, Development of Ni/carbon Based Catalysts for Catalytic Hydrothermal Reforming of Water-soluble Organics from the Pyrolysis of Biomass, 9th Korea-China-Japan Joint Symposium on Carbon Materials to Save the Earth (CSE2011), Cheju, 2011.8.25-27, Korean Institute of Energy Research</p> <p>⑫津奈木省吾, 工藤真二, 則永行庸, 林潤一郎, 官能基熱分解が駆動する褐炭チャーの水蒸気ガス化, 九州地区若手ケミカルエンジニア討論会, 鹿児島, 2011.7.22-23</p> <p>⑬Tsukara Sueyasu, Asuka Mori, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi, Potassium-catalyzed Steam Gasification of Woody Biomass, 6th International Symposium on Novel Carbon Resource Sciences, Seoul, 2011.6.23-24, Kyushu University</p> <p>⑭林潤一郎, 固体炭素資源の熱化学変換におけるタールの改質と組成制御, 日本学術振興会第148委員会 第128回研究会, 東京, 2011.5.20, 日本学術振興会第148委員会</p> <p>⑮林潤一郎, 劣質炭素資源の改質とガス化の新展開, 平成23年度第2回材料プロセス談話会特別講演会「エネルギーの有効利用とCO₂削減」, 福岡, 2011.04.22</p> <p>一般向け 計4件</p> <p>①林潤一郎, 反応速度の壁を突破する炭素資源の低温迅速ガス化, 最先端・次世代研究開発支援プログラム研究発表会, 福岡, 2012.2.28, 九州大学</p> <p>②林潤一郎, 平島剛, 松下洋介, 寺岡靖剛, 九州大学における炭素資源研究への取り組み-炭素資源国際教育研究センターの活動を中心として-, 日本化学会第92春季年会, 横浜, 2012.3.26-28, 日本化学会</p> <p>③林潤一郎, 炭素資源利用のいまと将来, 平成23年度総理工セミナー, 大阪, 2011.9.16, 九州大学</p> <p>④林潤一郎, 石炭エネルギーの将来, 第151回KASTECセミナー, 福岡, 2011.8.2, 九州大学</p>
<p>図書 計1件</p>	<p>①Jun-ichiro Hayashi, Biomass Method in Nuclear Hydrogen Production Handbook (Series: Green Chemistry and Chemical Engineering), CRC Press, 165-176 (2011) ISBN-10: 1439810834, ISBN-13: 978-1439810835</p>
<p>産業財産権 出願・取得状況 計1件</p>	<p>(取得済み) 計1件</p> <p>①林潤一郎, 上杉浩之, ガス化方法、発電方法、ガス化装置、発電装置、木質チップ、及びエネルギー源として活用することが可能な液相の軽質油及び水溶性有機物を溶解した水, 特許第4741686号 (2011)</p> <p>(出願中) 計0件</p>
<p>Webページ (URL)</p>	<p>下記の web サイトにおいて本研究を紹介している。 http://www.cm.kyushu-u.ac.jp/sentan/ http://www.carbonres.com/ http://web.mac.com/exergy/hayashi-norinaga-lab/Projects_2.html</p>
<p>国民との科学・技術対話の実施状況</p>	<p>「会議発表」の欄に記したように, 4件の一般向け講演会, シンポジウムにおいて本研究の概念, 進捗等を発表し, 国民との科学・技術対話に努めた。</p>

様式19 別紙1

新聞・一般雑誌等掲載 計0件	該当なし。
その他	該当なし。

4. その他特記事項

特になし

実施状況報告書(平成23年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されず

1. 助成金の受領状況(累計)

(単位:円)

	①交付決定額	②既受領額 (前年度迄の 累計)	③当該年度受 領額	④(=①-②- ③)未受領額	既返還額(前 年度迄の累 計)
直接経費	129,000,000	66,850,000	0	62,150,000	0
間接経費	38,700,000	20,055,000	0	18,645,000	0
合計	167,700,000	86,905,000	0	80,795,000	0

2. 当該年度の収支状況

(単位:円)

	①前年度未執 行額	②当該年度受 領額	③当該年度受 取利息等額 (未収利息を除 く)	④(=①+②+ ③)当該年度 合計収入	⑤当該年度執 行額	⑥(=④-⑤) 当該年度未執 行額	当該年度返還 額
直接経費	66,432,308	0	0	66,432,308	59,575,730	6,856,578	0
間接経費	19,926,000	0	0	19,926,000	15,426,000	4,500,000	0
合計	86,358,308	0	0	86,358,308	75,001,730	11,356,578	0

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	49,472,616	芳香族化合物詳細分析システム、炭化物化学組成解析装置等
旅費	435,018	研究成果発表及び情報収集等旅費
謝金・人件費等	9,098,821	有期契約職員人件費、日々雇用賃金
その他	569,275	学会参加費、修繕費等
直接経費計	59,575,730	
間接経費計	15,426,000	
合計	75,001,730	

4. 当該年度の主な購入物品(1品又は1組若しくは1式の価格が50万円以上のもの)

物品名	仕様・型・性能等	数量	単価 (単位:円)	金額 (単位:円)	納入 年月日	設置研究機関 名
キューリーポイントインジェクター	日本分析工業(株)製 JCI-22	1	2,144,100	2,144,100	H23/ 5/27	九州大学
超微量ファイター「マイクロナファイター」	TF-70-CT	1	1,438,500	1,438,500	H23/ 6/30	九州大学
パイロコーキング実験装置	(株)三松製	1	4,725,000	4,725,000	H23/ 6/30	九州大学
炭化物化学組成解析装置	米国パーキンエルマライファントアナリティカルサイエンス社製	1	6,615,000	6,615,000	H23/ 6/23	九州大学
芳香族化合物詳細分析システム	米国パーキンエルマライファントアナリティカルサイエンス社製	1	8,925,000	8,925,000	H23/ 6/23	九州大学
流動層反応容器システム	(株)三松製	1	745,500	745,500	H23/ 8/11	九州大学
高速・小型ガス分析計490マイクロGC	ジーエルサイエンス株式会社製	1	4,620,000	4,620,000	H23/10/18	九州大学

Clarus SQ8Sガスクロマトグラフ質量分析システム	米国パーキンエルマール・ライフ・テクノロジーズ社製	1	6,195,000	6,195,000	H23/12/13	九州大学
キューリーポイントハイロライザー	JHP-22型	1	1,050,000	1,050,000	H24/ 2/ 8	九州大学