

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24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

<p>前年度に報告した「現在までの達成度」を踏まえ、以下の①～③を主たる研究目的とした。</p> <p>【目的①】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担持バイオマス・褐炭の二段化学クエンチガス化特性を各種反応条件について明らかにし、冷ガス効率 97%以上(断熱系)を実証する。</p> <p>【目的②】褐炭のマイルド熱分解によって調製したタールフリー活性チャー(TFAC)の流動層ガス化(層温度 800°C 以下)を実験的に検討し、動的転換率 100%を達成可能な条件を見いだす。加えて、TFACと軽質油(沸点:ディーゼル相当)を選択的に製造するマイルド熱分解法を開発する。</p> <p>【目的③】バイオオイルの接触水熱ガス化(350°C 以下)による合成ガス製造を有機物濃度がより高い過酷な条件下(100,000ppm)で実証する。加えて、接触水熱ガス化を褐炭、リグニンを溶解したアルカリ性水溶液に適用することを適用し、バイオマス・褐炭の究極の低温ガス化の可能性を検討する。</p>

2. 研究の実施状況

<p>【目的①に対応する成果】バイオマスの二段化学クエンチガス化模擬試験を、ガス化・改質する改質炉(チャー充填層)の温度(ただし、温度勾配のない等温モード)で種々変えて実施し、充填層温度が 690°C以上であれば、(a)バイオマスおよびチャーの動的転換率=100%(定常状態)、(b)合成ガス中の重質タール濃度 < 10 mg/Nm³-dry、(c)H₂O/C ≤ 0.5、O₂/C ≤ 0.2、(d)冷ガス効率 > 97%、をいずれも満足することを明らかにした。実炉では、チャー充填層の温度は 1000°C以上～700°C以下に分布し、温度勾配が生じるが、高温部を持たない充填層で(a)～(d)を実現できたことは、本研究の目標である二段化学クエンチガス化を「十分条件」を示しつつ実証したことになる。残留重質タール量は、当初目標(< 100 mg/Nm³)の 1/10 未満を達成した。前年度開発したタール蒸気のエンタルピー推算法を活用し、改質炉周りの物質・エンタルピー収支解析を行ったところ、改質炉温度が 700°C前後の場合、改質炉は入熱と放熱がバランスした疑似断熱反応器として機能することも判った。研究申請当初の準断熱反応器を用いた実証についても目標を達成した。現在、褐炭に関する二段化学クエンチの実証試験を継続中である。</p> <p>【目的②に対応する成果】前年度の知見(触媒を添加しない場合の流動層ガス化の困難さ)を踏まえて、Caを担持したTFACを調製し、その水蒸気ガス化速度論を徹底的に解析し、極めて予測精度の高い新ガス化反応機構・速度モデルを開発した。安価な触媒であるCaを 1 wt%担持した褐炭から得たTFACを原料とする流動層ガス化試験を実施し、800°Cにおける動的転換率 100%を実証した。さらに、モデルによる実験結果の再現にも成功した。この成果によって、発電効率>80%の次世代のガス化・燃料電池複合発電(Super IGFC)を成立させるためのガス化原料および反応条件を提示することができた。</p> <p>【目的③に対応する成果】TOC 100,000 ppmのバイオオイル水溶液の接触水熱ガス化に挑戦し、一回通過転換率 90%を 350°Cで達成した(排水はリサイクル可能なので、100%ガス化は必要ない)。この成果を受け、水熱ガス化は新規展開を行った。褐炭の 90%以上をアルカリ性水溶液(Na₂CO₃)中の水熱処理によって可溶化できることを見出した。ついで、ある種の金属を炭素に担持した触媒を適用して、可溶化褐炭の溶液を 350°C以下の温度で完全ガス化することに成功した。アルカリ水溶液中の有機物の完全水熱ガス化は世界初である(ボトルネックを解消)。同法をリグニン溶液にも適用し、完全ガス化を達成した。</p>
--

様式19 別紙1

3. 研究発表等

<p>雑誌論文 計 7 件</p>	<p>(掲載済み一査読有り) 計 4 件 [1] Estimation of Enthalpy of Bio-oil Vapor and Heat Required for Pyrolysis of Biomass. Hua Yang, Shinji Kudo, Hsiu-Po Kuo, Koyo Norinaga, Aska Mori, Ondřej Mašek, Jun-ichiro Hayashi. Energy & Fuels, DOI: 10.1021/ef400199z (2013) [2] Simultaneous Maximization of the Char Yield and Volatility of Oil from Biomass Pyrolysis. Yong Huang, Shinji Kudo, Ondřej Mašek, Koyo Norinaga and Jun-ichiro Hayashi. Energy & Fuels, 27, 247-254 (2012) [3] Coproduction of clean syngas and iron from woody biomass and natural goethite ore. Shinji Kudo, Keigo Sugiyama, Koyo Norinaga, Chun-Zhu Li, Tomohiro Akiyama, Jun-ichiro Hayashi. Fuel, 103, 64-72 (2013) doi:10.1016/j.fuel.2011.06.074 [4] Characterisation of coal and biomass based on kinetic parameter distributions for pyrolysis. Nozomu Sonoyama, Jun-ichiro Hayashi. Fuel, dx.doi.org/10.1016/j.fuel.2012.04.023 (2013)</p> <p>(掲載済み一査読無し) 計 2 件 [1] 石炭のガス化とガス化複合発電. 林潤一郎. ペトロテック, 35, 899-904 (2012) [2] 石炭エネルギーの将来. 林潤一郎. 日本エネルギー学会, 91, 23-28 (2012)</p> <p>(未掲載) 計 1 件 [1] Hua Yang, Shinji Kudo, Seira Hazeyama, Koyo Norinaga, Ondřej Mašek, Jun-ichiro Hayashi. Detailed Analysis of Residual Volatiles in Chars from the Pyrolysis of Biomass and Lignite. Energy & Fuels, accepted (2013)(査読付き論文)</p>
<p>会議発表 計 20 件</p>	<p>専門家向け 計 17 件 [1] 重質油リサイクル熱分解によるバイオチャー収率およびバイオオイル揮発性の最大化. Huang Yong, 工藤真二, 則永行庸, 林潤一郎. 化学工学会第 78 年会, 大阪 (2013.3.16) [2] 金属担持触媒を用いたリグニンのアルカリ水熱接触改質によるフェノール類への分解. 工藤真二, 高島由花, 則永行庸, 林潤一郎. 化学工学会第 78 年会, 大阪 (2013.3.16) [3] Ca 担持褐炭チャーの水蒸気ガス化速度論および流動層ガス化特性. 田原啓右, 八山靖代, 工藤真二, 則永行庸, 林潤一郎. 化学工学会第 78 年会, 大阪 (2013.3.16) [4] Vegetable oil conversion to hydrocarbon fuels by catalytic hydrothermal reforming. Saruul Idesh, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi. 化学工学会第 78 年会, 大阪 (2013.3.16) [5] Examination of Catalysis of Potassium in Sequential Pyrolysis and Steam Re-forming/gasification of Biomass in a Two-stage Reactor. Tomoyuki Oike, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi. 25th Int. Symp. Chem. Eng., Okinawa (2012.12.10) (Best Presentation Award受賞) [6] Steam Gasification of Tar-free and Catalyst-loaded Lignite Char in Fluidized Bed. Keisuke Tahara, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi. 25th Int. Symp. Chem. Eng., Okinawa (2012.12.10) [7] Biomass Pyrolysis with Internal and Full Recycling of Heavy Oil. Yong Huang, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi. Asian Conf. Environmental & Engineering Chem. Eng., Hualien (2012.11.12) [8] Catalytic Hydrothermal Reforming of Vegetable Oil for the Production. Shinji Kudo, Saruul Idesh, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi. Asian Conf. Environmental & Engineering Chem. Eng., Hualien (2012.11.12) [9] Low Temperature Gasification of Victorian Brown Coal in a Two-Stage Reactor based on a concept of Decoupling and Recoupling of Thermochemical Reactions. Hua Yang, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi. 9th Int. Symp. Novel Carbon Res. Sci., Fukuoka (2012.11.3) [10] Reduction of steam/carbon and oxygen/carbon ratios in biomass gasification by intensification of volatile-char interaction and catalysis of potassium. Tomoyuki Oike, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi. 3rd Int. Symp. Gasification and its Applications, Vancouver (2012.10.15) [11] Detailed Investigation of Residual Volatiles in Biochar and Lignite Char from Pyrolysis. Hua Yang, Seira Hazeyama, Shinji Kudo, Koyo Norinaga, Ondrej Masek, Jun-ichiro Hayashi. 3rd Int. Symp. Gasification and its Applications, Vancouver (2012.10.15) [12] Kinetics of Non-catalyzed Steam Gasification of Biomass and Lignite Chars. Shinji Kudo, Yasuyo Hachiyama, Koyo Norinaga, Jun-ichiro Hayashi. 3rd Int. Symp. Gasification and its Applications, Vancouver (2012.10.15) [13] 褐炭チャー水蒸気ガス化の速度論に対する熱分解性官能基の影響. 工藤真二, 津奈木省吾, 則永行</p>

様式19 別紙1

	<p>庸, 林潤一郎. 化学工学会第 44 回秋季大会, 仙台 (2012.9.19)</p> <p>[14] 褐炭／バイオマスチャーの無触媒ガス化機構. 八山靖代, 工藤真二, 則永行庸, 林潤一郎. 化学工学会第 44 回秋季大会, 仙台 (2012.9.19)</p> <p>[15] タール・チャー接触とカリウム触媒作用強化による低酸素比・低水蒸気比バイオマスガス化. 尾池智幸, 工藤真二, 則永行庸, 林潤一郎. 化学工学会第 44 回秋季大会, 仙台 (2012.9.19)</p> <p>[16] Low temperature Gasification of Biomass and Coal. Jun-ichiro Hayashi. 1st Joint Seminar on Utilization of Coal and Biomass between China University of Mining Technology and Kyushu University, Jiangsu (2012.9.14) (依頼講演)</p> <p>[17] Low-temperature Gasification of Coal and Biomass. Jun-ichiro Hayashi. 2nd KIER-Kyushu University Joint Symposium on Green System and Materials. Cheju (2012.9.11) (依頼講演)</p> <p>一般向け 計 3 件</p> <p>[1] 石炭のガス化. 林潤一郎. 平成 24 年度「石炭基礎講座」, 東京 (2013.1.22) (依頼講演)</p> <p>[2] 石炭ガス化研究への取組状況と新展開. 林潤一郎. エコテクノ 2012 / CCTセミナー, 北九州 (2012.10.11) (依頼講演)</p> <p>[3] 石炭とバイオマス - エネルギー安全保障と技術・産業・経済. 林潤一郎. 国公立大コンソーシアム福岡公開講座, 福岡 (2012.9.24)</p>
図書 計 0 件	なし.
産業財産権 出願・取得状況 計 1 件	<p>(取得済み) 計 1 件</p> <p>バイオマス燃料対応型のエンジンシステム. 特許第 4986042 号(2012.5.11 登録)(国内)</p> <p>出願者: 三井造船(株), 三井造船プラントエンジニアリング(株), 北海道大学, (発明者)谷端一樹, 水野庸司, 木本浩介, 村田逞詮, 宮本正泰, 玉川準之介, 小山斎, 佐藤肇, 林潤一郎, 浅見直人. ※本研究で開発中のガス化プロセスに直結可能なエンジンシステム</p> <p>(出願中)計 0 件</p>
Webページ (URL)	<p>下記の web サイトにおいて本研究を紹介している。</p> <p>http://www.cm.kyushu-u.ac.jp/sentan/</p> <p>http://www.carbonres.com/</p> <p>http://web.mac.com/exergy/hayashi-norinaga-lab/Projects_2.html</p>
国民との科学・技術対話の実施状況	「会議発表」の欄に記したように, 3 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。
新聞・一般雑誌等掲載 計 1 件	“Novel carbon resource sciences center of excellence, Kyushu university - Carbon resource sciences for the future”. Nature Jobs, doi:10.1038/nj0397 (2013) ※350 °C 以下の低温で石炭を完全ガス化する取組みの紹介.
その他	なし.

4. その他特記事項

とくになし.

実施状況報告書(平成24年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されます

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	38,640,000	23,510,000	0
間接経費	38,700,000	20,055,000	11,592,000	7,053,000	0
合計	167,700,000	86,905,000	50,232,000	30,563,000	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	6,856,578	38,640,000	0	45,496,578	34,816,329	10,680,249	0
間接経費	4,500,000	11,592,000	0	16,092,000	11,095,562	4,996,438	0
合計	11,356,578	50,232,000	0	61,588,578	45,911,891	15,676,687	0

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	23,217,356	高速・小型ガス分析計、3Dリアルサーフェスビュー顕微鏡等
旅費	780,093	研究成果発表及び情報収集旅費等
謝金・人件費等	10,717,871	有期契約職員人件費、日々雇用賃金
その他	101,009	学会参加費、修繕費等
直接経費計	34,816,329	
間接経費計	11,095,562	
合計	45,911,891	

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
MSP1S型 マグネトロ ンヘッド装置	Au-Pdターゲット付	1	609,000	609,000	H24/ 4/16	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) 製	1	4,620,000	4,620,000	H24/ 5/28	九州大学
耐圧硝子工業(株) 製 ポータリアクター	TPR1-VS2-500	1	1,302,000	1,302,000	H24/ 9/10	九州大学
燃焼酸化方式 全 有機体炭素計	株式会社島津製 作所製	1	2,257,500	2,257,500	H24/12/13	九州大学
ポータリアクター TVS-N2-500本体1 台外3点	TVS-N2-500	1	535,500	535,500	H25/ 2/26	九州大学
株式会社キーンズ製 3Dリアルサーフェスビュー 顕微鏡	VE-9800基本部	1	4,987,500	4,987,500	H25/ 2/25	九州大学
高倍率観察モジュ ール		1	1,470,000	1,470,000	H25/ 3/ 7	九州大学
SEM調整機能グレイ ドアップキット	観察時自動調整 機能	1	892,500	892,500	H25/ 3/19	九州大学
顕微鏡用試料帯電 除去ツール		1	1,291,500	1,291,500	H25/ 3/28	九州大学