

学位論文審査結果の概要

氏 名	Jenny Rizkiana
学位論文審査委員氏名	主査 阿 布 里 提
	副査 官 国 清
	副査 佐藤 裕之
	副査 稲村 隆夫
	副査 伊藤 昭彦
論 文 題 目	Copyrolysis of low rank coal and biomass for enhancing oil production and in-situ catalytic upgrading of the pyrolytic oil（低品質石炭/バイオマスの共熱分解特性向上及び熱分解油の in-situ 改質アップグレード）
審査結果の概要（2,000 字以内）	
<p>石炭とバイオマスは、それぞれ単独で熱分解することよりも、共熱分解することによって相乗的効果をもたらし、高収率でガス及び液体燃料の製造が期待できることともに、触媒を利用することによって燃料のグレードアップ(高品質化)も可能である。本論文は、低品位石炭(褐炭)とバイオマスの高効率な共熱分解技術の開発を行うことと同時に、ゼオライト触媒を用いて共熱分解由来オイルのアップグレードを行ったものである。本論文は英語で書かれており全部で8つの章から構成されている。</p> <p>第1章では、熱分解によるバイオオイルの生産方法とオイルのアップグレード方法について述べている。</p> <p>第2章では、石炭とバイオマスの熱分解及びバイオオイルのアップグレードに関する触媒について詳細に整理し、また様々な触媒の長所と短所をまとめながら共熱分解に有効な触媒について述べている。</p> <p>第3章では、石炭とバイオマス混合原料を所定の組成に配合し、共熱分解により予想を上回る燃料を高収率で得ることに成功している。その結果について、①バイオマスの熱分解から発生した成分が石炭の構造破壊をもたらしオイルの生成を促進させたこと；②バイオマス由来アルカリとアルカリ土類金属(AAEM)は石炭表面に付着することで石炭の反応性を高めると同時に、水蒸気改質及びガス化促進に触媒的な役割を果たしたと述べている。また、この成果に基づき、バイオマス由来 AAEM は石炭とバイオマスの共熱分解からオイルを高収率で製造することに有効であることを明らかにしている。</p> <p>熔融塩は熱力学的に極めて安定な多元系の物質で、低融点・低蒸気圧を有し、大熱容量と高溶解度を持つ特徴がある。第4章では、高温における熱媒体および化学反応媒体とする熔融塩の特長に触れ、アルカリ炭酸塩系熔融塩を用い、低品質石炭の熱分解とオイルの収率向上方法についての検討を行っている。熔融炭酸塩は石炭の熱分解を促進させオイルの収率を高めた結果が見られる一方で、石炭と熔融塩の接触時間が短いため、得られたオイル中硫黄含有量も増加することがわかった。熔融炭酸塩は石炭中に含まれる硫黄成分を捕獲できることが考えられるが、硫黄分子と熔融塩との接する時間が非常に短いことから捕獲反応が起こらなかったと説明している。また、高効率な共熱分解を実現するには、反応器の改良とチャーの分離及び熔融塩の再生利用が不可欠と指摘している。</p> <p>第5章では、得られたオイル中含酸素化合物成分を最小限に抑制することや含酸素化合物成分から炭化水素系成分への転換を向上させるために、熱分解プロセスにゼオライト触媒を用いている。各種ゼオライト触媒を用いた結果は異なる共熱分解由来オイルのアップグレード効果を示し、低 Si/Al モ</p>	

ル比率の Y 型ゼオライト(USY)が他のゼオライトに比べ触媒活性が高く、含酸素化合物成分から炭化水素系成分への転換率も高くなる結果を示している。しかしながら、ゼオライト触媒表面にコークが析出し、触媒活性を劣化させ反応率を低下することも判明した。また、使用後の触媒を空气中再焼成により触媒活性が回復することができることが分かった。

ゼオライトはオイルのアップグレード触媒として高い触媒活性を示したが、その表面に金属触媒を担持させることによってより活性を高めることを期待できる。第 6 章では、USY ゼオライトに幾つかのアルカリ金属や遷移金属などを担持させ炭素析出の抑制効果を検討している。その結果、Mg 担持 USY ゼオライト触媒は最も高い活性を示し、炭素析出を抑制しつつオイル中の含酸素化合物成分から炭化水素系成分への高転換量を示した。

第 7 章では、Mg 担持 USY ゼオライト触媒の更なる性能向上のため、触媒のスチーム処理プロセスの開発について検討を行っている。スチーム処理により新たな Si-Mg-Al 原子構造を形成し、そのわずかな新しい Si-Mg-Al 原子構造が Mg の活性を安定化させ触媒特性に大きく影響を与え、その結果、スチーム処理したゼオライト触媒上に析出したコーク量が未処理触媒より減少したと説明している。

第 7 章では、本研究で得られた結果の総括および将来への展望が述べられている。

以上を要約するに、本論文は、低品位石炭(褐炭)とバイオマスの共熱分解特性を把握した上で、低コスト・高効率なバイオマス灰、ゼオライト基触媒及び溶融塩を用い、石炭とバイオマスの共熱分解によってオイルの高効率製造プロセス中のポジティブな物性を強化させる方法を開発したものである。本研究で得られた知見は、次世代の石炭とバイオマスの共熱分解プロセスの科学基盤を確立するために有益な情報を提供するもので、学術及び技術の発展に寄与するところが少なくない。

よって本論文は博士(工学) の学位論文として合格と認められる。

学位論文の基礎となる参考論文

- | | |
|---------|--|
| (1) 題 名 | Effect of biomass type on the performance of cogasification of low rank coal with biomass at relatively low temperatures (バイオマス種類による低品質石炭との低温共ガス化特性) |
| 著 者 | <u>J. Rizkiana</u> , G. Guan, W. B. Widayatno, X. Hao, W. Huang, A. Tsutsumi and A. Abudula. |
| 公表の方法 | Fuel, 134 巻, 414-419 頁に掲載 |
| 公表の年月 | 2014 年 6 月 |
| (2) 題 名 | Promoting effect of various biomass ashes on the steam gasification of low-rank coal (様々なバイオマス灰による低品質石炭の水蒸気ガス化促進効果) |
| 著 者 | <u>J. Rizkiana</u> , G. Guan, W. B. Widayatno, X. Hao, X. Li, W. Huang, and A. Abudula. |
| 公表の方法 | Applied Energy, 133 巻, 282-288 頁に掲載 |
| 公表の年月 | 2014 年 7 月 |
| (3) 題 名 | Oil production from mild pyrolysis of low-rank coal in molten salts media (溶融塩における低品質石炭のマイルド熱分解特性) |
| 著 者 | <u>J. Rizkiana</u> , G. Guan, W. B. Widayatno, X. Hao, Z. Wang, Z. Zhang, and A. Abudula. |
| 公表の方法 | Applied Energy, 154 巻, 944-950 頁に掲載 |
| 公表の年月 | 2015 年 5 月 |
| (4) 題 名 | Mg-modified ultra-stable Y type zeolite for the rapid catalytic co-pyrolysis of low-rank coal and biomass (Mg 担持 USY ゼオライト触媒による低品質石炭/バイオマスの急速共熱分解) |
| 著 者 | J. Rizkiana, G. Guan, W. B. Widayatno, J. Yang, X. Hao, K. Matsuoka, and A. Abudula. |
| 公表の方法 | RSC Advances, 6 巻, 2096-2105 頁に掲載 |
| 公表の年月 | 2015 年 12 月 |