

審査の結果の要旨

氏名 吉田 拓也

本論文は、「超臨界水を用いたバイオマスガス化に関する研究」と題し、超臨界水を反応場として、カーボンニュートラルな新規エネルギー資源として期待されるバイオマスを、より利便性の高い気体燃料へと変換する反応について、その反応機構の解明と技術としての有効性を実験的に明らかにすることを目的とした研究であり、全7章からなる。

序章では、本研究の背景と目的について述べている。既往の研究により、超臨界水中でのバイオマスガス化反応は、873 K 以上の高温領域では炭素基準でほぼ 100 % のガス化が可能であるが、673 K 程度の低温領域での超臨界水中では、ガス化率が極端に減少する問題が指摘されている。このような背景をふまえ、本研究の目的が、低温領域でのガス化反応に対する諸因子の影響を実験的に調べ、ガス化が効率よく進行しない原因を機構論的に解析するとともに、低温領域のガス化率向上を目指す新たな反応器システムを提案することにあると述べている。

第1章では超臨界水中のバイオマスの反応特性として、特にバイオマスの成分間の相互作用について解析を行っている。既往の研究により、植物体バイオマスの主成分であるセルロース、ヘミセルロース、リグニンのうち、セルロースやヘミセルロースなどの多糖類は、低温領域の超臨界水中で迅速にガス化が進行する一方、リグニンの反応では、ガス成分の収率は重量基準で約 20 % 以下の低い値であり、固体成分であるチャーの生成が顕著になることが知られている。本章では、これらの各成分が反応場に共存する場合、各成分からの分解生成物同士が反応することによって、単独の分解とは異なるガス化特性を示すこと、また、リグニンの共存によって主にタール成分の収率が増加し、ガス収率が減少することを明らかにしている。また、触媒充填量と生成ガスの量及び組成の関係から、反応生成物による触媒反応の阻害が起こることを示している。

第2章では、植物体バイオマス中のリグニンの構造が針葉樹由来と広葉樹由来で異なることに着目し、これらのリグニンの構造と反応特性との関係について議論している。針葉樹由来のリグニンは他のリグニンと比べ、複雑に入り組んだ構造を持つことが知られているが、超臨界水中ではこの複雑な構造に起因し、セルロースやヘミセルロースの分解生成物との反応が起きやすいということを実験的に示している。

第3章では、セルロースやリグニンからの分解生成物のモデル物質としてホルムアルデヒド及びフェノール類を用い、各単独系や混合系についてのガス化反応を連続式反応器を用いて行い、生成物による触媒反応の阻害の可能性とその解決策について実験的に検討している。ホルムアルデヒドとフェノール類の混合系の実験では、触媒活性の経時的低下が観察され、タール成分から生成する炭化水素系の高分子物質が触媒に付着することによって反応阻害が起こることを明らかにしている。また、このタール成分は Ni 触媒存在下でも分解速度が小さく、この成分からのガス化速度を向上させるためには、酸化剤などの導入によって環解裂反応を促進させる必要があることを示している。

第4章では、バイオマスのガス化反応で重要な役割を担うと考えられている水性ガスシフト反応について、無触媒およびNi触媒存在下の反応速度及び反応機構について考察している。Ni触媒上で水性ガスシフト反応が迅速に進行することを実験的に確認するとともに、反応工学的解析により、各反応条件における拡散過程の寄与の大きさを定量的に評価している。

第5章では、第4章までの結果をふまえ、低温領域の超臨界水中で連続的にガス化を進行させるための新規反応システムを提案している。このシステムは、熱分解反応器、酸化反応器、触媒反応器の3つの反応器が直列に接続されたものであり、熱分解反応器で生成するチャーやタール成分が触媒反応器に充填されているNi触媒の反応を阻害しないように、両反応器の間に酸化反応器を設けている点に特徴がある。酸化反応器内の滞留時間や酸素当量比を適切に選択することにより、熱分解反応器内で生成したタールやチャー成分が効率的に分解することを実験的に確認し、このシステムが触媒反応の阻害や反応器内の閉塞を防ぐために有効な手法であることを明らかにしている。

終章では、以上の結果を総括するとともに、超臨界水ガス化に関する今後の展望や課題について述べている。

以上要するに、本論文は、超臨界水中のバイオマスガス化について、低温領域におけるガス化反応への諸因子の影響を実験的に明らかにし、触媒反応の阻害を含む反応機構についての知見を与えるとともに、高効率な連続ガス化操作が可能である新たな反応システムを提案するものであり、エネルギー工学及び化学システム工学の発展に大きく寄与するものである。

よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。