

氏名（本籍）	Pedro Domingos DAUCE ペドロドミンゴ ダウセ（モザンビーク）
専攻分野の名称	博士（理工学）
学位記番号	理博甲第9号
学位授与の日付	令和5年3月23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	理工学研究科 総合理工学専攻
学位論文題目 （英文）	Production of Solid Fuel with High Calorific Value from Low-Rank Coal and Woody Biomass by Degradative Solvent Extraction using Deep Eutectic Solvent （深共晶溶媒を用いた分解を伴う溶媒抽出による低品位炭と木質バイオマスからの高発熱量固体燃料の製造）
論文審査委員	（主査）教授 村上 賢治 （副査）教授 進藤 隆世志 （副査）教授 大川 浩一 （副査）名誉教授 菅原 勝康

論文内容の要旨

石炭火力発電所では主に高品位炭が使用されているが、その埋蔵量は年々少なくなってきた。代替燃料として、低品位炭やバイオマスの利用が考えられるが、これらは水分や酸素を多く含むため、発熱量が低いという欠点を有する。したがって、これらの資源を燃料として使用するためには脱酸素が必要である。しかしながら、これまでの熱分解や液化などの手法では、かなり過酷な条件下で処理を行っても酸素含有量の少ない燃料を製造することは困難であった。一方、**Degradative Solvent Extraction**（分解を伴う溶媒抽出）法は無極性溶媒中で比較的温和な条件で加熱する方法で、低品位炭やバイオマスから酸素含有量の少ない固体燃料（Soluble、室温では溶媒に可溶性成分）を抽出することができる。これは、無極性溶媒中で熱分解すると、水素結合は容易に切断されるのでラジカル同士の再結合が起りにくくなり、その結果、酸素は水や二酸化炭素として気相中に放出されて固相には残らないためである。しかしながら、Soluble収率は非常に低く、約20 wt%程度である。Soluble収率を増加させるためには、更なる炭素-酸素結合の切断が必要である。一方、水素結合供与物質と水素結合受容物質を混合して調製される深共晶溶媒（DES）は、バイオ

マスの脱炭酸反応においてエーテル結合などの炭素-酸素結合を選択的に切断するという報告がある。そこで、本研究では、低品位炭および木質バイオマスのDegradative Solvent Extractionによって抽出されたSolubleの収率や構造に及ぼすDES添加および反応温度の影響を検討することを目的とした。

本論文は5章で構成されている。各章の内容は以下の通りである。

第1章は、本研究の背景、目的および本論文の構成を述べたものである。

第2章では、低品位炭としてインドネシア産のアダロ亜瀝青炭（酸素含有量：26.1 wt%）のDegradative Solvent ExtractionをDES添加量0.5-2 g、反応温度200-350 °Cで行い、Soluble収率やその構造を検討した。反応温度が高く、DES添加量が多い方がSoluble収率は多くなり、350 °C、2 gのDES添加の場合に、Soluble収率は48 wt%に達した。このとき、Soluble中の酸素含有量は2.5 wt%まで減少した。また、DES添加量の増加に伴い、芳香族成分の増加も見られた。FT-IRや元素分析の結果から、DESの添加によって脱炭酸反応に加えて脱水反応が促進されることが明らかとなった。

第3章では、木質バイオマス（酸素含有量：44 wt%）のDegradative Solvent ExtractionをDES添加量1-2 g、反応温度300-350 °Cで行い、Solubleの収率や構造を調査した。300 °Cで、DES無添加の場合、Soluble収率は23.0 wt%であったのに対し、350 °Cで、2 gのDESを添加した場合、44.4 wt%までSoluble収率は増加した。低品位炭の場合と同様に、DES添加量の増加に伴い、芳香族成分の増加、酸素含有量の大幅な減少も認められた。木質バイオマスの場合は、DES添加により主に脱水反応が起こって酸素含有量の少ないSolubleが抽出されたことが明らかとなった。

第4章では、Degradative Solvent ExtractionにおけるDESの役割を明らかにするために、モデル物質としてリグニンおよびセルロースを用いた実験を行った。低品位炭については、芳香族成分を含むリグニンの結果と比較した。一方、木質バイオマスの方は芳香族成分がないセルロースと比較した。これらの結果から、DESを添加することで、通常のDegradative Solvent Extractionでは切断できないような炭素-酸素結合が切断され、芳香族化が進行し、その結果、Soluble収率が増加することが明らかとなった。

最終章の第5章において本論文の結言ならびに展望を記した。

論文審査結果の要旨

本論文は、低品位炭及びバイオマスの溶媒抽出における深共晶溶媒添加の有用性ならびにその反応機構を明らかにしたものであり、本論文で得られた知見は今後の脱炭素社会の構築に大いに貢献できると考えられる。よって本論文は博士（理工学）の学位論文として十分価値があるものと認められる。