

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	接触熱分解とCO2ガス化プロセスによる電気電子機器廃棄物からの燃料油と有用資源の同時回収
Title(English)	Integrated Recovery of Valuable Resource and Fuel Oil from E-wastes by Catalytic Pyrolysis and CO2 Gasification Process
著者(和文)	武虎
Author(English)	Hu Wu
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9841号, 授与年月日:2015年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:吉川 邦夫,加茂 徹,高橋 史武,時松 宏治,梶谷 史朗
Citation(English)	Degree:., Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9841号, Conferred date:2015/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

## 論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	武 虎 (WU Hu)	
論文審査 審査員		氏 名	職 名	氏 名	職 名
	主査	吉川 邦夫	教授	梶谷 史朗	連携准教授
	審査員	加茂 徹	連携教授		
		高橋 史武	准教授		
時松 宏治		准教授			

## 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Integrated Recovery of Valuable Resource and Fuel Oil from E-wastes by Catalytic Pyrolysis and CO<sub>2</sub> Gasification Process」と題し、接触熱分解と二酸化炭素ガス化の両プロセスを組み合わせ、電気電子機器廃棄物からクリーンな燃料油の生成と有用資源の回収を行うことを目的に、全5章から構成されている。

第1章「Introduction」では、電気電子機器廃棄物の組成、特性、環境への影響ならびにリサイクル手法について概観している。特に、電気電子機器廃棄物中のプラスチック材料のリサイクル技術として、接触熱分解によるクリーンな燃料油の生成と有用資源の回収が本論文の目的であることを述べ、本論文の構成について紹介している。

第2章「Catalytic pyrolysis of brominated high impact polystyrene over red mud, limestone and natural zeolite additives」では、固定床反応炉を用いて、3種類の添加剤（赤泥、石灰石ならびに天然ゼオライト）を加えた時の、臭化難燃剤と三酸化アンチモンを含有する耐衝撃性ポリスチレンの熱分解挙動が検討されている。生成された熱分解油の収率ならびに臭素含有量に及ぼす熱分解温度の影響を調べた結果、熱分解温度が500℃の時に、最大収率が得られたものの、熱分解温度は臭素含有量にはほとんど影響を与えないことを見出している。難燃剤中の臭素の大部分が燃料油中に移行し、生成油中の臭素濃度が約8%に達し、アンチモンも含有されていたことから、生成油中の臭素ならびにアンチモンの低減をめざして、3種類の添加剤を加える効果が調べられている。その結果、いずれの添加剤についても、生成油中の臭素ならびにアンチモンの低減に大きな効果があり、特に、赤泥が最も高い効果を示したことが報告されている。赤泥の効果については、有機臭化物の分解にクラッキング触媒としての作用を有し、加えて、耐衝撃性ポリスチレンの熱分解時に生成される臭化水素の吸収剤としての作用も及ぼしていると推察している。さらに、SEM-EDXとXRDの両分析によって、熱分解残渣中の臭素とアンチモンの分布を詳細に調べた結果、熱分解残渣中には、多量の金属臭化物が存在することを見出し、生成油中の臭素の低減は、主として、金属臭化物の形成によるものであると結論されている。

第3章「Fuel oil production from the pyrolysis of flame retarded HIPS in two-stage pyrolysis process over natural zeolite and modified natural zeolite」では、生成油中からの臭素の除去を目的として、4種類のゼオライト触媒（天然ゼオライト、酸化鉄添加天然ゼオライト、HYゼオライト、酸化鉄添加HYゼオライト）存在下で、臭化難燃剤を含有する耐衝撃性ポリスチレンの熱分解・接触改質の二段プロセスによる実験が行われている。触媒の有無にはよらずに、生成油の主要な成分は、単環芳香族化合物であるものの、HYゼオライトならびに酸化鉄添加HYゼオライトを使用した場合、生成油中の単環芳香族化合物含有量が減少して、二環ならびに多環の芳香族化合物含有量とガス生成物の収率が大幅に増加することを明らかにしている。また、生成油中からの臭素の除去性能については、熱分解ガス中に含有される臭化水素が酸化鉄と反応するために、酸化鉄添加のゼオライトのほうが、無添加のゼオライトよりも高い性能を示すことが報告されている。最後に、活性が低下した触媒の再生について検討が行われ、活性低下の原因は、触媒上の炭素析出と酸化鉄の還元であり、析出した炭素を燃焼させることで再生された触媒は、使用前の触媒とほぼ同等の活性を示し、生成油中からの良好な臭素除去性能を示すことが明らかにされている。

第4章「Kinetics of CO<sub>2</sub> gasification and carbonate catalyzed CO<sub>2</sub> gasification of E-plastic pyrolysis char derived from medium temperature pyrolysis by TGA」では、電気電子機器廃棄物の熱分解残渣である炭化物から、酸化させずに有用金属を回収することを目的として、熱天秤を用いて、プリント基板、耐衝撃性ポリスチレンならびにABS樹脂の3種類のプラスチック材料から生成された炭化物の、850-1050℃の温度範囲での二酸化炭素ガス化特性が検討されている。得られた反応速度曲線に対して、3種類の反応モデルを適用して、動力学パラメータのフィッティングを行い、相関係数を求めて、各炭化物の二酸化炭素ガス化反応速度の予測に最も適した反応モデルが決定されている。さらに、炭化物に炭酸塩触媒を添加することによって、ガス化反応速度が大幅に増加することも確認している。

第5章「Conclusions and recommendations」では、得られた成果の総括と、今後の研究の展望が述べられている。

以上、本論文で行われた研究では、電気電子機器廃棄物を接触熱分解することによって、臭素とアンチモン含有量の少ないクリーンな燃料油が生成でき、有用資源回収のための熱分解残渣の二酸化炭素ガス化が可能であることが実証されており、工学的に重要な貢献があると認められ、博士(工学)の学位論文として価値あるものと判断する。