

## 廃プラスチック分解油の水蒸気改質による合成ガスの製造

(北大院工) ○岡島 聡, 佐々木 玲, 辻 俊郎\*, 増田隆夫

廃プラスチックの熱分解油を水蒸気改質により合成ガスに転化することを目的として、Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系触媒を用いて実験を行った。ポリエチレンおよびポリスチレン分解油それぞれにおいてガス化組成や炭素転化率、炭素析出量などのガス化特性について報告する。

## 1. 緒言

プラスチックの化学リサイクルは、高炉の還元剤や油化による燃料油への転換、ガス化という形で実用化されており、増加し続けるプラスチック廃棄物のさらなる有効な処理プロセス求められている。そこで本研究では廃プラスチックの処理プロセスの一つとして、水蒸気改質による合成ガスの転化を目的とした。合成ガスは多くの工業プロセスに必要な不可欠な物質であり、また近年注目されている燃料電池の水素源としても重要である。ここでは、現在プラスチックの中で多く排出されているポリエチレンおよびポリスチレンを熱分解油化し、得られた分解油の水蒸気改質実験を、Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系触媒を用いて行った。温度やLHSV等を変えたときの生成ガス化組成や炭素析出量などのガス化特性について報告する。

## 2. 実験

市販の低密度ポリエチレンペレットおよびポリスチレンペレットを430℃および360℃でそれぞれ熱分解し、生成した分解油を試料とした。分解油の水蒸気改質は、Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系触媒粒子を4cm充填した内径10mm長さ600mmの石英管製固定床反応器を用いて行った。Fig.1に本研究で用いた実験装置図を示す。Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系触媒は、工業用アンモニア分解用触媒N134およびナフサ水蒸気改質用触媒C11NKの2種類を使用するが、これらは直径約17mmのリング状成型品であるため、粉碎し粒径2.3mmから4mmのものをふるい分けして用いた。反応前に550℃、5時間水素雰囲気下で還元処理を行った。触媒の特性をTable1に示した。実験条件は、LHSV = 1~12 h<sup>-1</sup>、反応温度 650~850℃、水蒸気比R(反応オイル中の炭素1mol当たりの供給水蒸気のmol数) = 3.5、反応圧力 = 1 atmとした。水蒸気及び液体生成物はトラップで回収し、ガス生成物はテドラーバッグで全量を捕集しガスクロマトグラフィーで分析した。触媒に付着した炭素析出量は反応前後の触媒重量の変化から算出した。

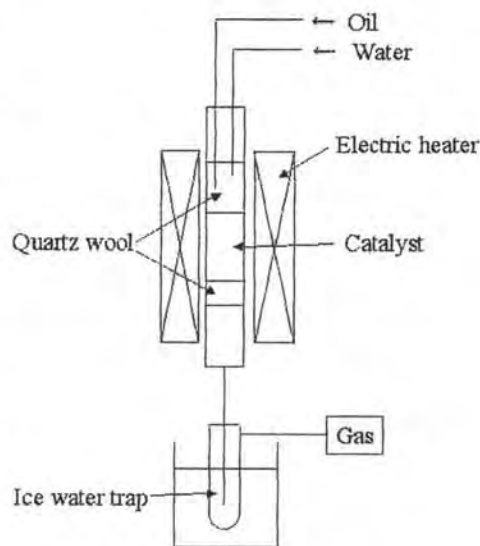


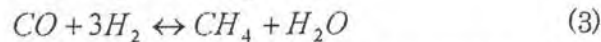
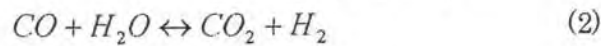
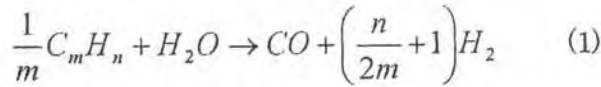
Fig.1 Experimental Apparatus

Table1 触媒特性

	Ni wt%	MgO wt%	SiO <sub>2</sub> wt%	K <sub>2</sub> O wt%	size
N134	29.5	-	-	-	2.3mm-4mm
C11NK	18	14	16	8.5	2.3mm-4mm

### 3. 結果および考察

プラスチック分解油を  $C_mH_n$  と表すと、水蒸気改質反応は以下の式で表すことができる。また、ポリエチレン分解油およびポリスチレン分解油の  $n/m$  はそれぞれ 2,1 となる。



これら反応のうち(1)式の平衡定数は(2), (3)式のそれよりも大きいので, (2), (3)式の平衡定数から, 平衡状態のガス組成を求めることができる。この平衡組成と C11NK を用い LHSV=1hr<sup>-1</sup> における実験値との比較を Fig.2 に示した。これよりポリエチレン分解油およびポリスチレン分解油ともにいずれの温度においても平衡組成に近い気体生成物が得られた。また N134 を用いた場合の結果も同様であった。

Fig.3 にはポリエチレン分解油を試料として触媒層温度を 800°C に固定し, LHSV[hr<sup>-1</sup>] を変化したときの分解油中の炭素の mol 数に対する気体生成物中の各成分における炭素の mol 比を示した。未反応のオレフィンガスは LHSV が 2.4 よりも大きくなると増加し, 12.1 では未反応のオイル分が増加した。これより本実験では LHSV を約 1hr<sup>-1</sup> 程度にして実験を行った。

Fig.4 に LHSV=1hr<sup>-1</sup>, 反応時間 2 時間における触媒層温度と炭素転化率, および触媒に付着した炭素析出量(原料に対する炭素の mol 比)の関係を示した。このとき炭素転化率は以下のように定義した。ここで  $M$  は各成分の mol 数を示す。

$$\text{carbon conversion}(CC) = \frac{M_{CO} + M_{CO_2} + M_{CH_4}}{mM_{C_mH_n}}$$

炭素転化率については N134 および C11NK で同様の結果が得られたため, N134 の結果を示した。触媒層温度が 800°C よりも低い条件では炭素転化率は低く, 未反応の炭化水素が増加した。その結果, 炭素析出が触媒表面でみられた。また, 炭素析出はアンモニア分解用触媒よりもナフサ水蒸気改質用触媒を用いた方が抑制された。

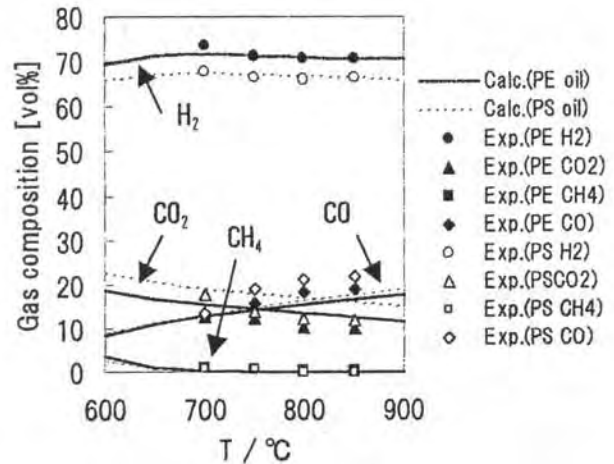


Fig.2 気体生成物組成

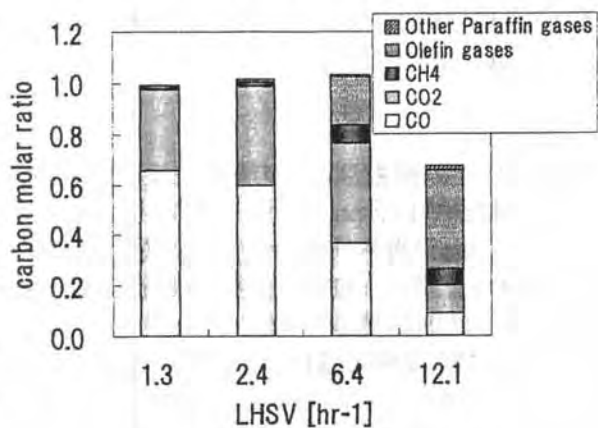


Fig.3 炭素転化率と炭素析出量

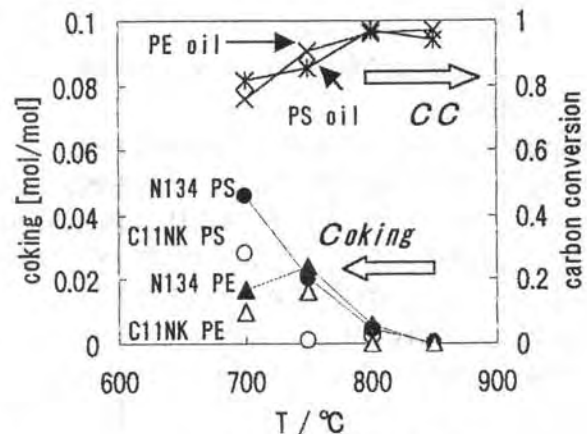


Fig.4 炭素転化率と炭素析出量