

## 博士学位論文要旨

# 天然ガスに含まれる硫黄化合物の分解触媒に関する研究 (Study on the catalytic decomposition of sulfur compounds in the natural gas)

理工学研究科理工学専攻物質生命コース  
D126101 向山 昂

本論文では天然ガスの効率的な利用法のひとつである分散型の定置用小型燃料電池発電システムの低コスト化や海外展開のための新たな脱硫法として、天然ガス中に含まれる硫黄化合物を水素添加せずに直接分解できる触媒について検討した。

第 1 部の序論では燃料電池発電システムの概要及び従来の脱硫技術について解説した。また、既存の脱硫法に替わる新たなプロセスの必要性や具体的な反応プロセスを提案し、触媒開発の意義を明確にした。

第 2 部ではゼオライトを用いた *tert*-ブタンチオール<sup>1</sup>の直接分解について検討した。高い活性を有するゼオライトの性質を特定し、室温から 150°C の範囲において、ゼオライトの酸点上で硫化水素に分解することを明らかにした。また、分解生成物のイソブテンは酸点上で重合して細孔内に蓄積することから活性低下を引き起こすが、劣化は限定的であり、150°C では反応が長時間継続することを明らかにした。

第 3 部では金属酸化物を用いたメタンチオール<sup>2</sup>の直接分解について検討した。複数の金属酸化物の中で高活性だった TiO<sub>2</sub> を用いて活性化機構や反応経路の検討を行った。反応温度 500°C では硫化水素とメタンを生成し、炭素析出に由来する活性の低下が起きた。一方、300°C では不均化反応が起こり、硫化水素とジメチルスルフィド<sup>3</sup>が生成した。メタンチオール分解は温度に依存して 2 種類の反応が存在することを明らかにした。

第 4 部ではニッケル系触媒を用いたジメチルスルフィドの直接分解について検討した。ジメチルスルフィドは NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 触媒を用いて 350°C で完全に分解することができた。また、十分に硫化した NiS/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> はより高い活性を示し、硫化水素以外にメタンチオール、メタン、エチレンを生成した。反応経路を検討したところ炭素析出を伴わない反応を起こす活性点があることを明らかにした。

第 5 部は硫化カルボニル<sup>4</sup>の分解触媒について調査し、燃料電池用の水素製造プロセスの脱硫法に適した条件および触媒について検討した。硫化カルボニルの加水分解反応には触媒表面の水酸基が寄与しており、金属酸化物を用いて目的のプロセスに適用可能な条件で硫化水素に分解できることがわかった。

第 6 部は結論として、得られた成果をまとめ、新たな脱硫法による燃料電池発電システム用の水素製造プロセスの簡略化やコストダウンの可能性を示した。