

博士学位論文要旨

硫黄化合物や窒素を含む天然ガス用白金系水蒸気改質触媒の開発 (Development of platinum-based steam reforming catalysts for natural gas containing sulfur compounds and nitrogen)

理工学研究科理工学専攻物質生命コース
D146102 渡辺 文博

本論文は窒素や硫黄化合物を含む天然ガス用水蒸気改質触媒の開発に関する研究成果について述べた論文であり、以下の6章で構成されている。

第1章の「序論」では、天然ガスの利用法の一つとして、分散型定置用電源である家庭用電池システムについて言及し、燃料にパイプライン天然ガス(PNG)を用いた際、現状の改質プロセスで生じる問題点について述べている。具体的には、PNGに含まれる不純物である窒素に由来するアンモニア(NH₃)の副生や硫黄化合物による触媒劣化など、家庭用燃料電池システムのプロセス簡易化や低コスト化の障害となっている諸問題について述べている。

第2章の「窒素に由来するアンモニアの副生とその抑制」では、メタン水蒸気改質反応(SMR)により得られた水素と窒素由来のNH₃副生を回避する方法を検討した。まず、商業用触媒では、後段の触媒に影響するほどのNH₃を副生することを明らかにした。その対策として、Rh、Pt、Ir触媒を用いれば、SMR活性を維持しながらNH₃副生を大幅に抑制できることを見出した。

第3章の「硫黄化合物による触媒劣化と性能の再生」では、天然ガスに含まれる硫黄種の中でも、除去が難しいとされているジメチルスルフィド(DMS)を対象にした。まず、DMSを含んだ反応ガスによるSMR試験を行い、貴金属触媒の硫黄耐性を検討した。その結果、Pt触媒に対するDMSの影響は一時的なものであり、一部劣化後もDMSの供給を停止することで触媒性能はほぼ完全に回復するが、 α -Al₂O₃を担体に用いたPt触媒は、DMSを含むSMR中に難燃性炭素種を析出することを明らかにした。本研究では炭素析出によるSMRの性能低下はみられなかったが、炭素種の析出が長期安定性に影響する可能性を指摘した。

第4章の「Pt/ α -Al₂O₃上の炭素析出機構の推定とその対策」では、Pt担持量や担体の影響を検討した。Pt粒子径と難燃性炭素種の析出に相関性があることを見出し、Pt粒子径が小さいほど炭素析出が抑えられること、担体材料として γ -Al₂O₃やZrO₂を用いることでSMR活性を維持しつつ、難燃性炭素種の析出を抑制できることを明らかにした。

第5章では「結論」として、本研究で得られた成果を総括し、Pt/ γ -Al₂O₃やPt/ZrO₂

は窒素や硫黄化合物の影響が少なく、PNGを用いた燃料電池システム向けの水蒸気改質反応に適していると結論した。本触媒の開発によりプロセスの簡易化や低コスト化の可能性を示した。

第6章では「今後の課題」として、本研究では解決に至らなかった問題と、考えられる改善方法を示した。