

2025 年 3 月 31 日

## 報告書

実施期間 2024 年 7 月 17 日～2025 年 3 月 31 日

# 自動車破碎残渣処理におけるCO<sub>2</sub>排出量 低減に向けた新規触媒の開発

国立大学法人 九州大学

教授 岸田 昌浩

助教 大島 一真

## 技術報告

### 目次

1. 本研究の概要	2
2. 実験方法	4
3. アルミナ担持 Fe 系触媒の検討	5
4. アルミナ担持 Ni 系触媒の検討	11
5. 他金属・他担体・他樹脂の検討	15
6. まとめ	17
参考文献	18

## 1. 本研究の概要

### 名称

自動車破碎残渣処理におけるCO<sub>2</sub>排出量低減に向けた新規触媒の開発

### 実施期間

2024年7月17日～2025年3月31日

### 開発/調査 代表者

九州大学大学院 工学研究院

教授 岸田 昌浩

### 実施者

九州大学大学院 工学研究院

教授 岸田 昌浩

助教 大島 一真

### 目的

本研究では、自動車破碎残渣（モデル物質）と担持金属触媒の混合物にマイクロ波を照射することで、CO<sub>2</sub>を排出することなく水素を選択的に得るための触媒開発および反応条件の最適化を行うことを目的とする。自動車破碎残渣のモデル物質としてはポリプロピレンを用いた。

### 実施内容

- 1) アルミナ担持 Fe 系触媒を用いた場合の反応特性を評価した。
- 2) アルミナ担持 Ni 系触媒を用いた場合の反応特性を評価した。
- 3) 金属種、担体種、樹脂種の影響を調べた。

### 成果

#### アルミナ担持 Fe 系触媒の反応特性評価

まず、マイクロ波の照射方法として温度制御方式と出力制御方式を比較したが、特に顕著な相違は認められなかった。しかし、出力制御方式では反応温度が揃わないため、温度制御方式を主に用いた。

Fe触媒を用いた場合、前処理として水素還元を行った方が水素生成能が向上した。水素還元前の結晶相はヘマタイト相が主であったが、水素還元後にはマグネタイト相と金属鉄相の共存状態となった。後者の触媒の方が、温度上昇が容易で、かつ水素生成能も高かった。これはマグネタイト相がマイクロ波を吸収して触媒温度を上昇させ、Fe金属相が分解反応を起こすと考えられた。両機能がバランス良く共存している状態が良い触媒と考えられるが、Fe系触媒ではそれほど高い水素生成活性は得られなかった。その原因として、分解生成物である炭素をFeがあまり固溶していないことが考えられた。

#### アルミナ担持 Ni 系触媒の反応特性評価

炭素固溶能の高いNi触媒の検討を行った。Ni触媒では、水素還元するとマイクロ波を吸収しなくなったため、酸化状態の触媒を用いて反応を行った。反応中にNiの還元が起こっていた。その還元が起こらなかった触媒はPP分解活性を示さなかったため、PP分解の活性点が金属Niであることがわかった。

Ni触媒は、Fe触媒よりも高い水素生成活性を示した。これはNiがFeよりも炭素固溶能が高いことが関係していると推察している。Ni触媒の触媒調製法、焼成温度、Ni担持量、反応温度などの影響を調べた結果、80%を越える水素収率を得ることに成功した。

また、Ni触媒へ少量のFeを添加した触媒、およびその逆の触媒を調製したが、水素収率は向上しなかった。

#### 他金属・他担体・他樹脂の検討

Fe、Ni以外の金属種としてCo触媒の検討も行った。Co触媒は、Fe触媒と同様に水素還元後に高活性を示した。その活性はNi触媒とFe触媒の中間的なものであった。担体種としてAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub>担体の影響を調べた。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とSiO<sub>2</sub>を用いた触媒には大きな違いがなかったが、TiO<sub>2</sub>担体の場合には昇温しにくくなり、それに伴って水素収率も低下した。PP以外の樹脂として、ABS樹脂およびポリカーボネート(PC)の分解反応も行った。水素収率はPP>ABS>PCの順であった。

以上のように本研究では、マイクロ波照射による担持金属触媒上でのポリプロピレンの分解反応を行い、Ni触媒を最適化することで最大で80%以上の水素収率を得ることに成功した。また、触媒種の選定、触媒の調製条件、反応条件などに関する指針を得ることができた。

## 2. 実験方法

### 触媒調製法

本研究では、触媒金属種として鉄(Fe)、ニッケル(Ni)あるいはコバルト(Co)を用い、担体種にはアルミナ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )、シリカ( $\text{SiO}_2$ )、チタニア( $\text{TiO}_2$ )を用いた。触媒調製法には含浸法を用いた。次に調製手順の例を示す。

- 1) 所定量の活性アルミナを秤量し蒸発皿に入れる。
- 2) 硝酸ニッケル水溶液（関東化学、purity 98%）の水溶液を所定量蒸発皿に加える。
- 3) ホットスターラーにて攪拌しながら乾燥させる。
- 4) 乾燥後、固化した部分を葉さじでほぐし、焼成用るつぼに入れ替える。
- 5)  $350^\circ\text{C}$ の電気炉（空気雰囲気）中で3時間焼成することで酸化Ni触媒の調製を完了。

この触媒は $\text{NiO}/\text{Al}_2\text{O}_3$ と表記する。

- 6) さらに10%-水素流通下、 $600^\circ\text{C}$ で1時間還元を行い、金属Ni触媒を調製した。

この触媒は $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ と表記する。

このように酸化処理後の触媒には $\text{MO}_x/\text{担体}$ と表記し、還元処理後の触媒は $\text{M}/\text{担体}$ と表記する。金属前駆体の含浸過程でペーマイトを用いた場合には、担体部を $\text{AlO}_x$ と表記して、活性アルミナ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )担体を用いた場合と区別した。金属の含有量を非常に大きくしたため、金属と担体金属とのモル比で金属含有量を表した。例えば、50 mol%-Ni/ $\text{AlO}_x$  と表記した場合は、 $\text{Ni}/(\text{Ni}+\text{Al})$ のモル分率が50%という意味である。

また、金属塩とペーマイトと少量の純水とを混合してスラリー状にしてから乾燥・焼成した混練法触媒も調製した。

### マイクロ波照射反応実験

自動車残渣のモデル樹脂にはポリプロピレン(PP)粉末（セイシン企業、平均粒径 5.2  $\mu\text{m}$ ）を主に用いた。PP粉末 100 mgと触媒 300 mgを良く混合した後に石英製反応管（内径8mm，外径10mm）に充填し、図1に示す反応装置にセットした。マイクロ波照射装置には凌和電子製MR-2G-100（最大出力 100 W）を用いた。反応管に50  $\text{mL min}^{-1}$ で窒素を流しながら、10W出力でマイクロ波を照射し、照射位置と反射波を素早く調整した。一旦、マイクロ波照射を止めた後、所定の温度あるいは照射出力が一定となるように5分間マイクロ波を照射した。反応温度、照射出力、照射時間、PP充填量などを種々変化させて反応を行った。

照射中の出口ガスをガスバッグに捕集し、TCDガスクロマトグラフでガスを定量分析した。得られた水素の収率は次式で定義した。

$$\text{水素収率} [\%] = \frac{\text{生成した水素量} [\text{mol}]}{\text{PPに含まれる水素量} [\text{mol}]} \times 100 \quad (1)$$

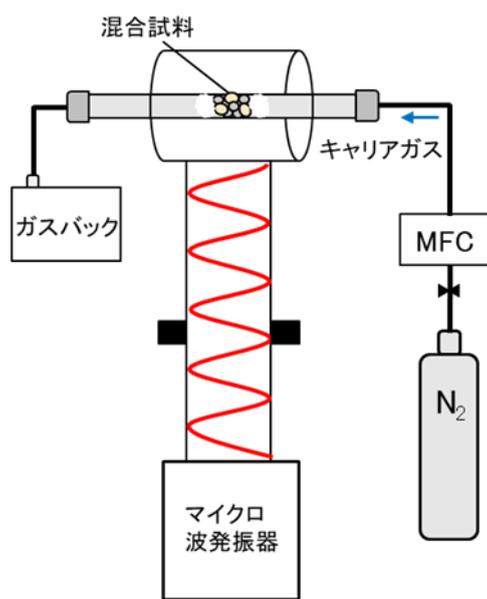


図1 マイクロ波照射による樹脂分解反応装置の概略図

### 3. アルミナ担持 Fe 系触媒の検討

#### 反応条件の検討

図2は、水素還元処理を行っていない20 mol%-FeO<sub>x</sub>/AlO<sub>x</sub>触媒を用い、水素収率と試料層温度のマイクロ波出力依存性を調べた結果である。非量論的アルミネートであるNiAlO<sub>x</sub>が本反応に有効と報告[1]されていたため、この触媒焼成温度は900℃とした。図2 b)からわかるように、この触媒では温度上昇が非常に遅い上に、温度上昇挙動とマイクロ波出力との相関も悪かった。触媒によるマイクロ波の吸収が充分でなく、また触媒とPPとの混合状態によって温度上昇挙動が変化するようである。図2 a)を見ると、60 W照射で試料層温度が上昇した場合にのみ水素の生成が観測された。このように還元していないFeO<sub>x</sub>触媒ではマイクロ波を充分に吸収できないことがわかった。

図3は、水素で還元した20 mol%-Fe/AlO<sub>x</sub>触媒を用い、30 Wで出力一定の条件でマイクロ波を照射した場合の a) 水素収率と b) 試料温度の時間変化を示している。図3 b)では、図2 b)とは

異なり、マイクロ波照射後60秒程度で試料層の温度がおよそ500°Cに到達した。マイクロ波による試料層の温度上昇は十分に速いと考えられる。本照射条件ではFe触媒の水素還元がマイクロ波の吸収に有効であることがわかった。500°C付近に到達後も照射を続け、5分間照射してもそれ以上に温度は上がらなかった。一方、図3 a)の水素収率を見ると、温度が500°Cに上昇した60秒後には水素がほとんど生成しておらず、照射250秒にかけて水素収率は徐々に上昇した。試料層の温度変化と水素収率の変化の対応が良くないため、Fe触媒上での反応速度はあまり速くないと考えられる。

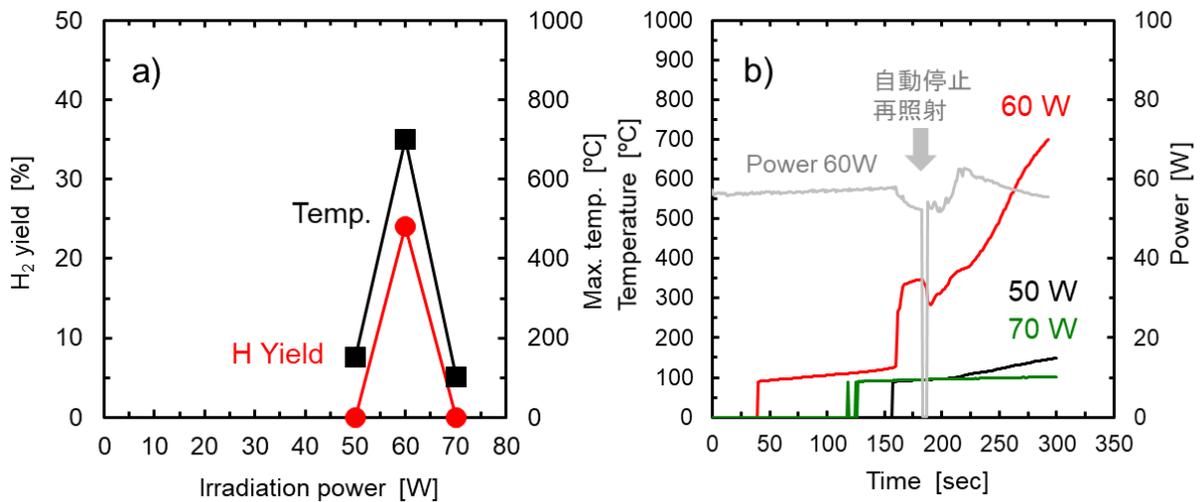


図2 20 mol%-FeO<sub>x</sub>/AlO<sub>x</sub>触媒を用いた場合のマイクロ波出力依存性

a) 水素収率と最高到達温度の出力依存性、b) 試料温度とマイクロ波出力の時間変化

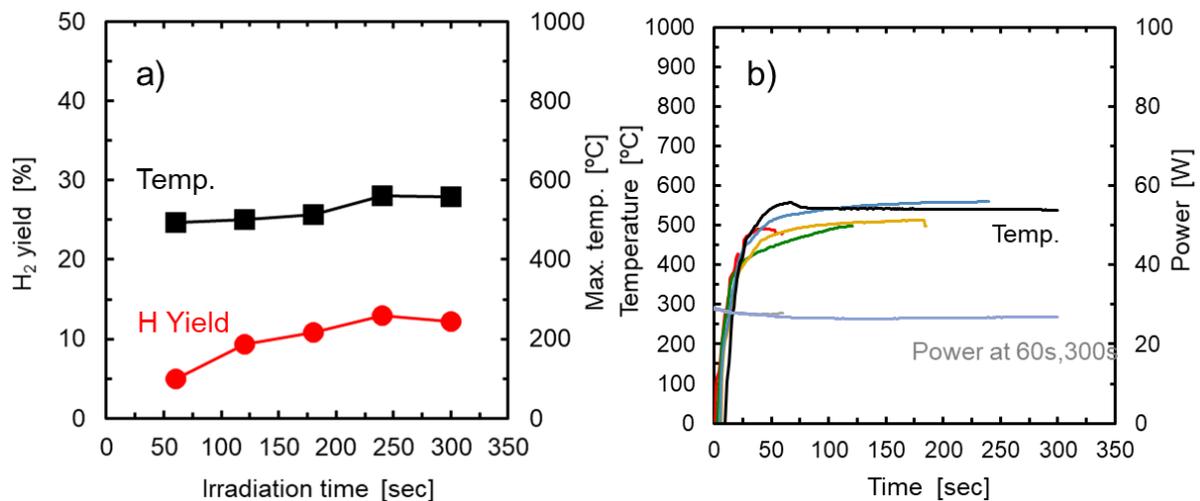


図3 マイクロ波照射時間依存性 (20 mol%-Fe/AlO<sub>x</sub>)

a) 水素収率と最高到達温度、b) 試料温度とマイクロ波出力の時間変化

図4は、水素還元前後の20 mol%-Fe(Ox)/Al<sub>10</sub>x触媒のXRDパターンを示している。900°Cの焼成によって担体はα-アルミナになっている。Feの相は、水素還元前（図4 a）の鉄の相はヘマタイトであり、水素還元後（図4 b）ではマグネタイト相であった。マイクロ波の吸収効率はマグネタイトの方がヘマタイトよりも高いため、図2と図3のような温度上昇挙動の違いが生じたと考えられる。

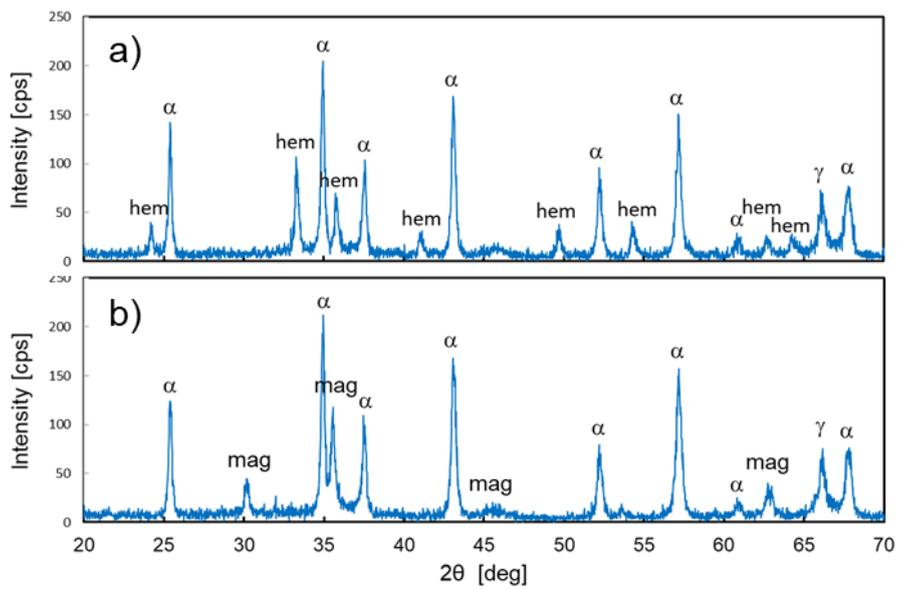


図4 20 mol%-Fe(Ox)/Al<sub>10</sub>x触媒のXRDパターン

a) 水素還元前（900°C-2時間焼成）、b) 600°C-1時間の水素還元後

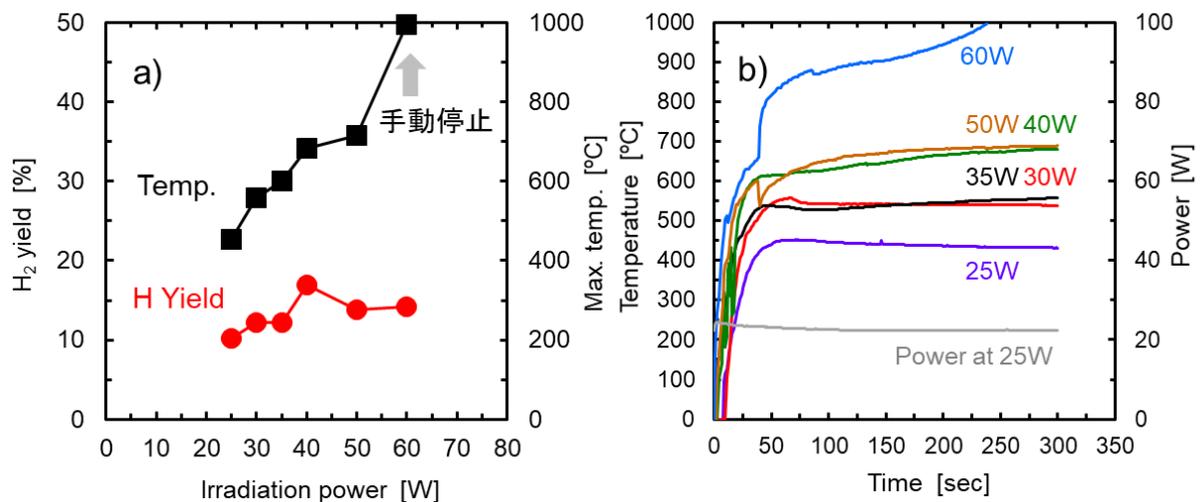


図5 マイクロ波照射出力依存性（20 mol%-Fe/Al<sub>10</sub>x）

a) 水素収率と最高到達温度、b) 試料温度とマイクロ波出力の時間変化

次に、20 mol%-Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒を用いてマイクロ波出力の影響を調べた(図5)。図5 a)の最高到達温度と b)の温度変化挙動からわかるように、マイクロ波出力が大きくなるほど試料温度は500℃~1000℃へと上昇した。それに対して、図5 a)に示した水素収率は照射出力が大きくなっても、わずかに増加するだけで顕著な変化は生じなかった。この結果は水素への分解反応が起こる温度域はそれほど高温でないことを示唆している。

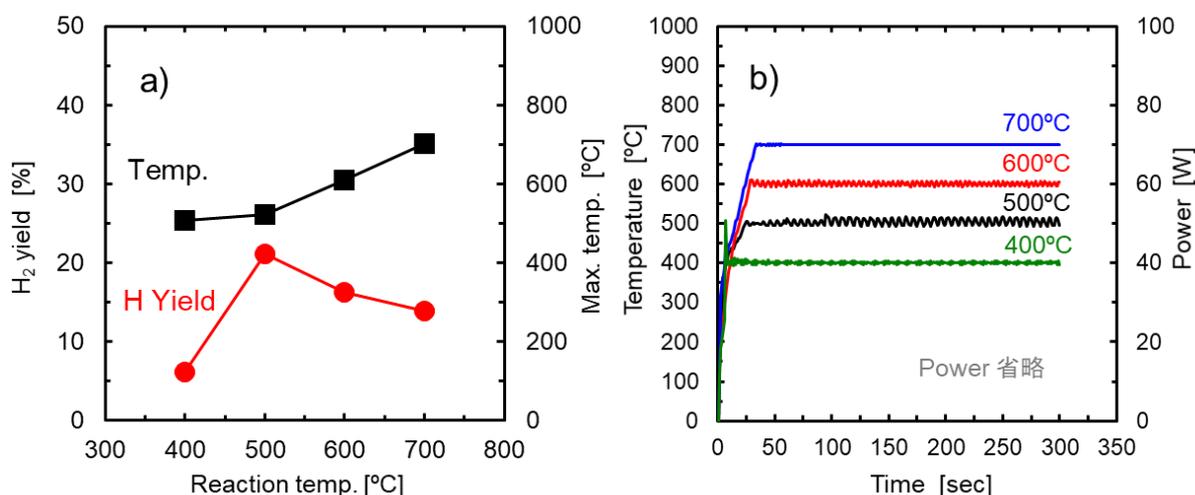


図6 温度一定でのマイクロ波照射実験 (20 mol%-Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)

a) 水素収率と最高到達温度、b) 試料温度の時間変化

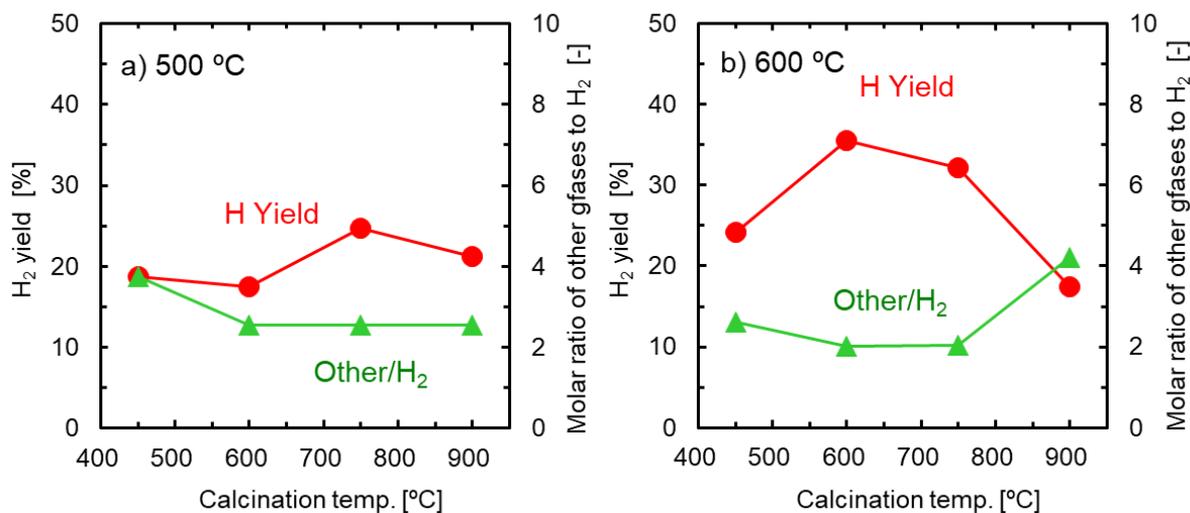


図7 空気焼成温度の異なる触媒による水素収率と水素以外の生成ガス比

20 mol%-Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒、反応温度 : a) 500 °C、b) 600 °C

図6は、試料層の温度が一定となる温度制御方式でマイクロ波照射実験を行った結果である。図6 b)からわかるように、マイクロ波照射開始後50秒以内に設定温度に到達し、その後は一定温度が保たれた。このときの水素収率（図6 a)）を見ると、500℃一定で照射したときが水素収率が最も高くなった。図には示さないが、触媒によっては600℃の方が水素収率が高くなることもあった。いずれにせよ、この結果は図5の結果とコンシステントであり、水素生成反応は主に500～600℃で起こることがわかった。

### 触媒調製条件の検討

反応条件の調査を完了したため、次に触媒調製条件の影響を調べた。図7は、20 mol%-Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒の焼成温度依存性を調べた結果である。いずれの触媒も焼成後に600℃で1時間の水素還元を行っている。図7のa)は反応温度500℃、b)は600℃の反応結果である。500℃の反応では焼成温度による相違は大きくなかったが、600℃では600℃あるいは750℃で焼成した触媒が高い水素収率を示した。また、900℃で焼成した触媒では水素に対する水素以外のガスの生成比が高かった。ここで水素以外のガスとは、メタンなどの炭化水素ガスと一酸化炭素である。

図8は、図7で用いた触媒のXRD測定結果を示している。水素収率が高かった600℃あるいは750℃焼成の触媒では金属鉄が相対的に多く、それ以外の触媒ではマグネタイトが多かった。したがって水素生成の活性点は金属鉄と考えられる。ただし、金属はマイクロ波を吸収しにくいため、マグネタイト相と金属鉄相のバランスが重要と考えられる。

図9は、Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒のFe担持量依存性を調べた結果である。水素収率は30mol%の場合だけ大きめの値になっているものの、全体的にはFe担持量の増加につれて向上する傾向が認められた。一方、水素以外のガスの生成比には、それほど大きな変化は認められなかった。活性点が増加すると、水素以外のガスへの分解反応も増加したようである。

以上、Fe系触媒を用いて、マイクロ波照射条件の調査を行うとともに、触媒調製条件の影響を調べた。後述するNi触媒と比較すると反応速度はそれほど速くなかったが、調製条件を最適化することで水素収率を約33%まで向上させることができた。

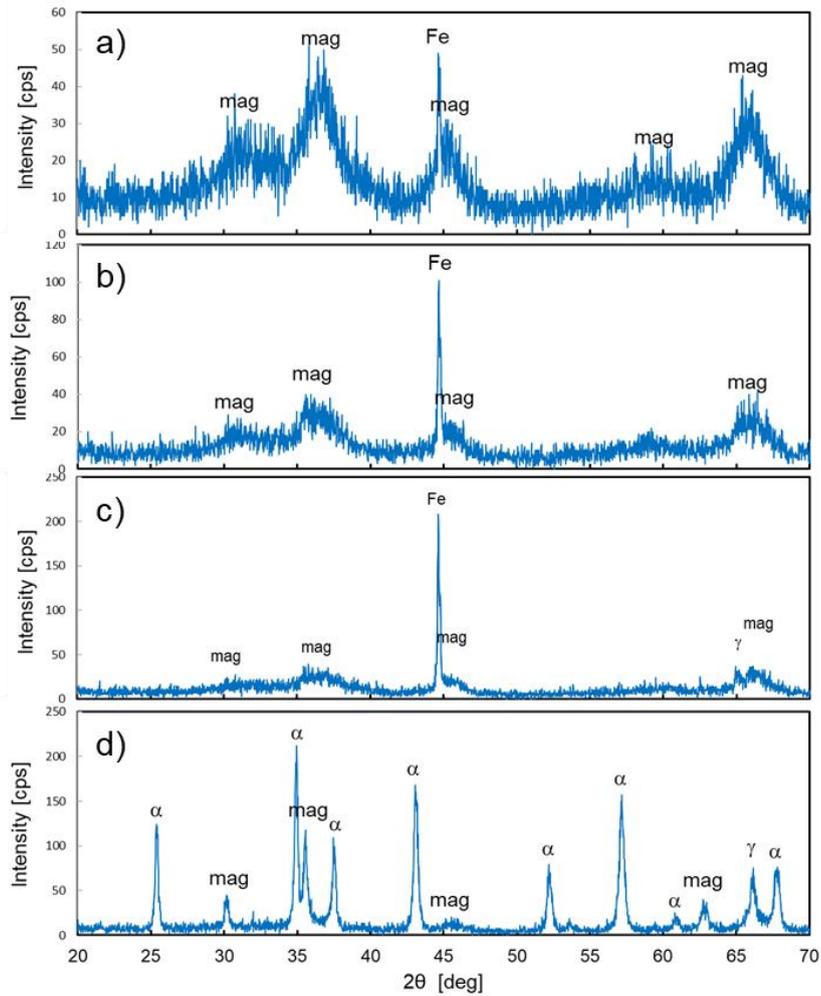


図8 図7で用いた20 mol%-Fe/AlO<sub>x</sub>触媒のXRDパターン

a) 450°C、b) 600°C、c) 750°C、d) 900°Cでの焼成後に600°C-1時間の水素還元

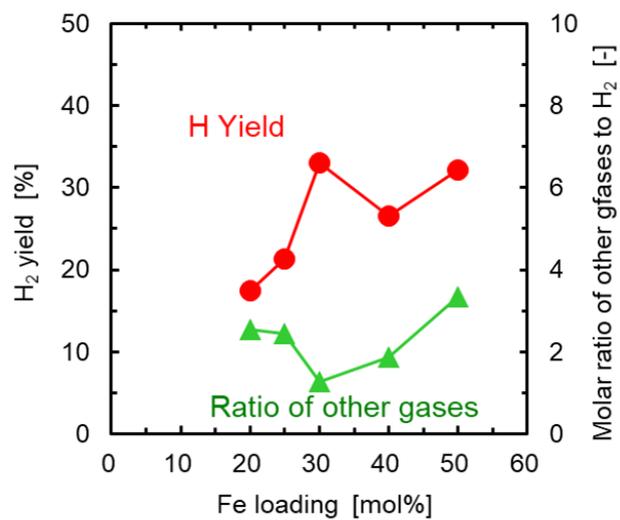


図9 Fe/AlO<sub>x</sub>触媒のFe担持量依存性

焼成温度600°C、水素還元温度600°C、反応温度500°C

#### 4. アルミナ担持 Ni 系触媒の検討

##### 反応条件の検討

次にNi系触媒について検討を行った。Fe系触媒の結果を参考にして、Ni触媒では高担持量の触媒を調製した。Ni系触媒は、Fe系触媒とは異なり、水素で還元するとマイクロ波を反射して昇温することができなかつたため、酸化状態のまま反応に供した。また、酸化ニッケルの昇華を考慮して焼成条件は空气中350°Cで3時間とした。

図10は、60 mol%-NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒を用いて試料層温度が600°Cで一定となるようマイクロ波を照射した場合の時間変化を示している。図10 b)より、試料層温度は照射後約30秒で600°Cに到達し、その後も600°Cで良好に保たれた。図10 a)では、約2分で水素収率が52%に達し、それ以降の照射でも水素収率は変わらなかった。この水素収率はFe触媒で得られた水素収率（約33%）よりも著しく高かった。また、一定値に達する時間も図3 a)のFe触媒よりも速かった。それだけ迅速に反応が進行したと言える。また、水素以外のガスの生成比もFe系触媒よりも低く、水素がより選択的に生成されていた。

この触媒を用いて、温度制御方式と出力制御方式による違いを調べた。図は省略するが、50 W出力一定で照射すると約2分後に温度650°Cに到達した。そこで、50 W出力一定で照射した場合と600°C一定となるよう照射した場合の水素収率を比較したところ、それぞれ65.5%と67.3%となった。この違いはわずかであり、照射方式の違いは反応結果にあまり影響せず、試料層の温度が重要であることを確認できた。

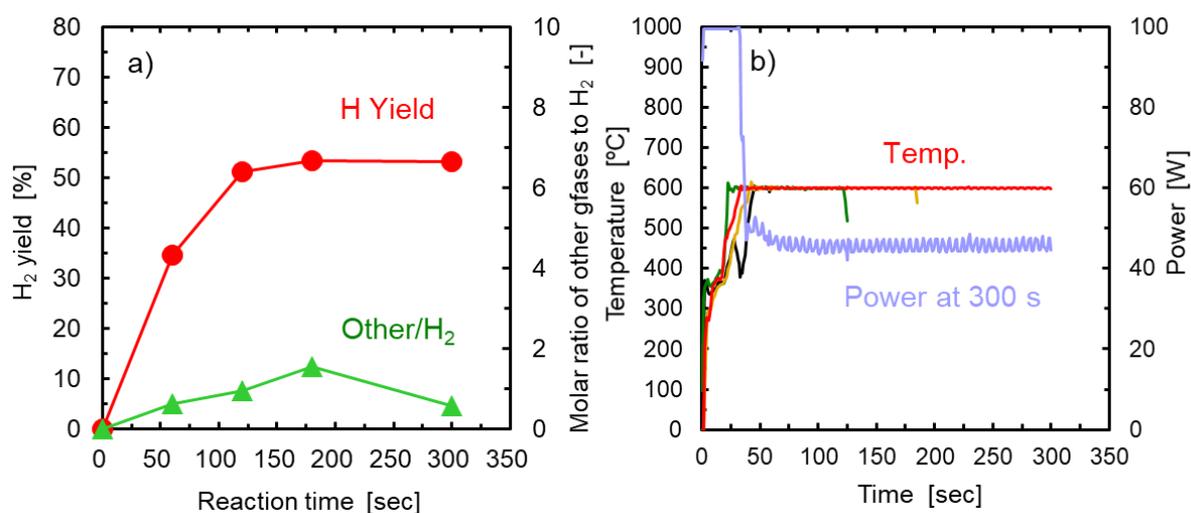


図10 マイクロ波照射時間依存性 (60 mol%-NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)

a) 水素収率と他ガス生成比、b) 試料温度とマイクロ波出力の時間変化

次に、NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒の反応温度依存性を調べた（図11）。図11 a)の含浸法触媒では反応温度による違いはそれほど大きくなかったが、600℃の場合に水素収率が最も高くなった。この結果はFe系触媒での最適反応温度500℃と類似した結果である。水素以外のガスの生成比は温度によらずほぼ一定であった。一方、図11 b)の混練法触媒では反応温度が高くなるほど水素収率が向上し、最高収率は700℃の時で82%にも達した。水素以外のガス生成比は温度に依存しなかった。調製法による相違の原因については詳しく検討できなかったが、Ni粒子径に起因するのではないかと考えている。

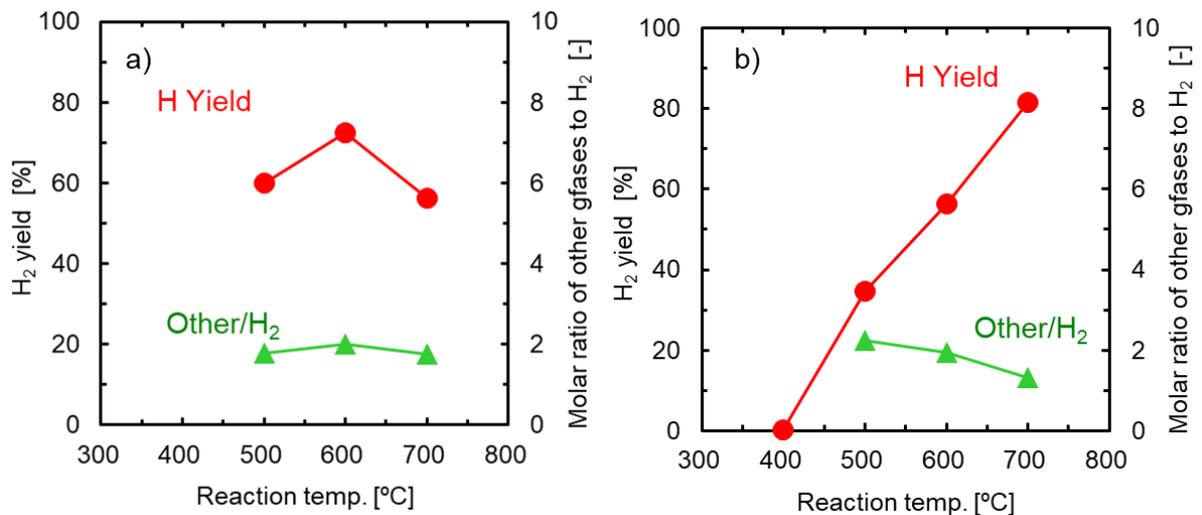


図11 NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒の反応温度依存性

焼成温度350℃、水素還元なし、a) 含浸法触媒、b) 混練法触媒

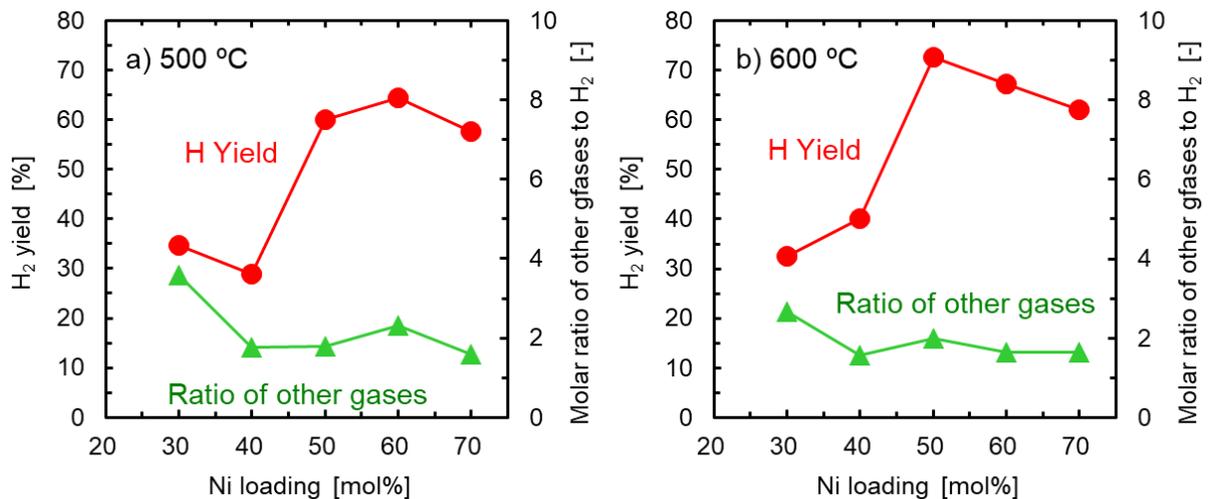


図12 NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒のNi担持量依存性

反応温度：a) 500 °C、b) 600 °C

## 触媒調製条件の検討

図12は含浸法NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒のNi担持量依存性を調べた結果で、a)が反応温度500°C、b)が600°Cの反応結果である。反応温度500°Cと600°Cのいずれの場合にも、Ni担持量 50~60 mol%の触媒の水素収率が最も高くなった。その最高収率は混練法触媒には劣るものの73%にも達した。50~60 mol%という金属担持量は通常の担持金属触媒として非常に高い値で、金属粒子径も非常に大きい。この含有量付近で金属表面積が最大になったと考えられる。一方、水素以外のガスの生成比はNi担持量によらずほぼ一定であった。図11の結果も併せて考えると、水素生成と水素以外のガスの生成の活性点は同じではないかと考えられる。

図13は、混練法 50 mol%-NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒の反応前後のXRDパターンを示している。還元処理を行っていないため、反応前(図13 a))にはNiOのピークのみが認められた。700°Cでの反応後(図13 b))にはピークが金属Niのみになっており、反応中にNiへの還元が起こっていることがわかった。これと同じロットの触媒を400°Cで反応したところ、水素はほとんど生成しなかった(収率 0.3%)。その触媒のXRDパターンを図13 c)に示すが、NiOのピークのみが認められ、反応中にNi金属への還元が起こっていなかった。これらの結果を総合すると、Ni触媒においても活性点は金属Niであると考えられる。

上述の水素収率83%の反応で反応完結(2分)までに要した照射エネルギーは 10.3 kJであった。100 mgという少量のPP原料を使った実験であるため、まだエネルギー効率を評価する段階ではないが、窒素气流中700°Cでの反応に要するエネルギーとしては非常に小さい。つまり、省エネルギーのリサイクルプロセスへの発展が期待できる。

Ni触媒の検討の最後に、既報[2]を参考にしてNi触媒への金属添加効果を調べた。図14は、含浸法 50 mol%-NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒に3 wt% (モル比 M:Ni:Al=0.06:1:1) となるようにFeあるいはNiを後担持した触媒の600°Cでの反応結果である。Feを後担持した触媒は元の触媒よりも水素収率が著しく低下した。水素以外のガスの生成が元の触媒よりも多くなった。この触媒は水素還元を行っていない(マイクロ波を吸収しなくなる)ために、Feが活性化されなかった可能性がある。一方、Niを再担持した触媒でも水素収率が低下した。元触媒でもNi担持量が非常に多いため、繰り返しの熱処理により粒子径が増大したのかもしれない。なお、粒子径が大きいため、XRDピークから粒子径の違いを求めることはできなかった。

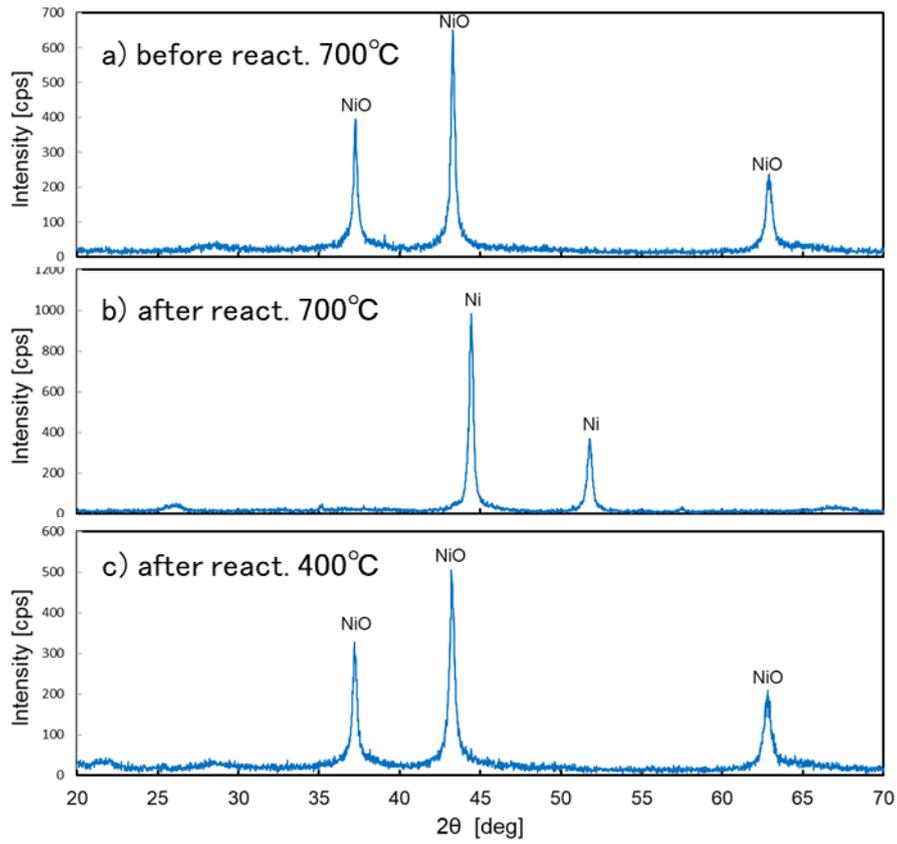


図13 混練法 50 mol%NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒の反応前後のXRDパターン  
a) 反応前、b) 700°C反応後、c) 400°C反応後

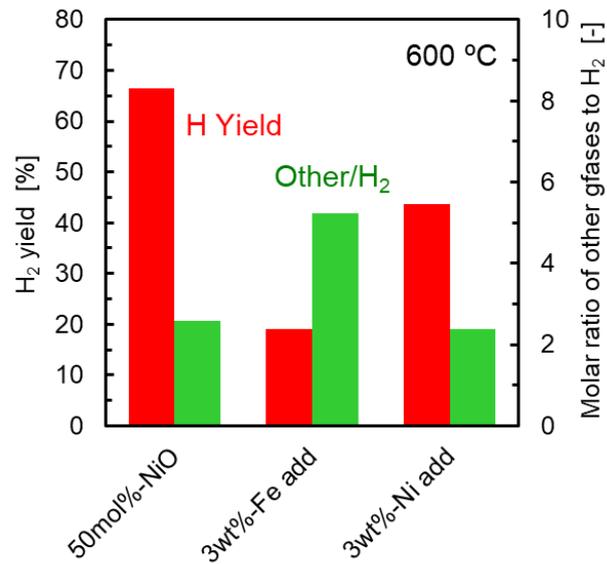


図14 50 mol%NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒へのFe、Niの添加効果

## 5. 他金属・他担体・他樹脂の検討

Fe, Ni以外の触媒金属としてCo触媒についても検討を行った。図15は含浸法で調製したCo/AlO<sub>x</sub>触媒の反応結果を示している。焼成条件は350℃ 3時間で、水素還元条件は350℃ 2時間である。図15中の青プロットは水素還元処理を行っていない触媒の反応結果であり、赤プロットと比較することにより水素還元を行う方が水素収率が高くなることがわかる。この水素還元の効果はFe触媒と同様である。反応温度による変化を見ると、反応温度の上昇につれて水素収率が向上した。その水素収率は50~60%であり、Fe触媒とNi触媒の間の値であった。Co触媒の他の特徴としては水素以外のガスの生成が少ない点が挙げられる。

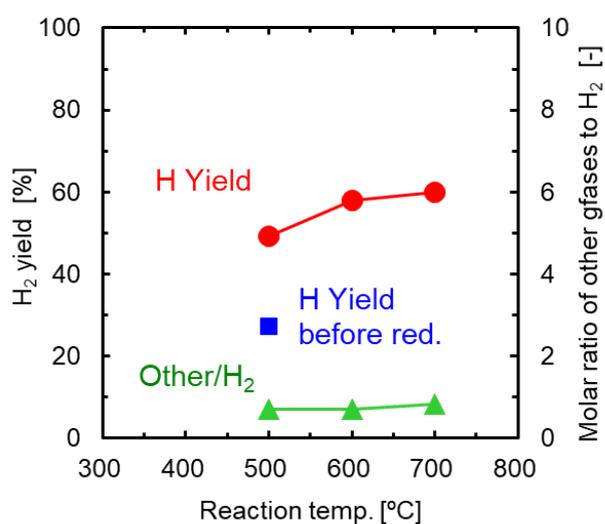


図15 50 mol%-Co(Ox)/AlO<sub>x</sub>触媒の反応特性

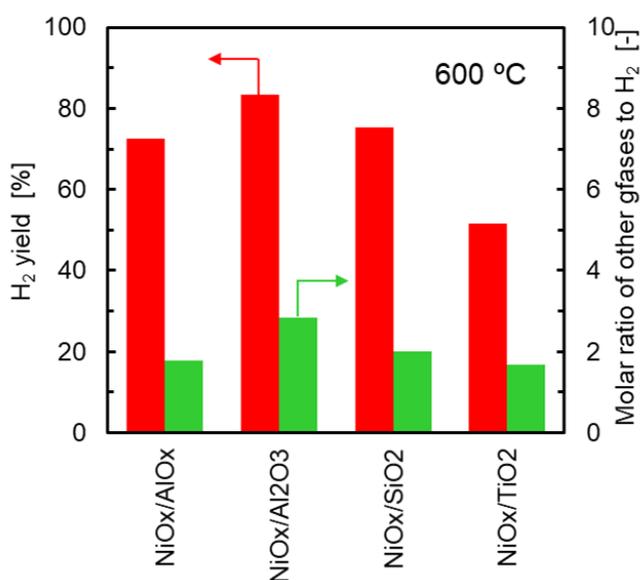


図16 担持NiO<sub>x</sub>触媒における担体種の影響

次に担体種の影響について調べた。図16は担体を変えて調製した担持NiO触媒の600℃での反応結果を示している。TiO<sub>2</sub>以外の担体種では水素収率に大きな相違はなかったが、TiO<sub>2</sub>担体を用いた触媒だけ水素収率が低くなった。TiO<sub>2</sub>担持触媒では試料層の温度上昇が他の触媒よりも遅い傾向があった。このために水素への分解速度が遅くなったものと考えられる。その温度上昇が起こりにくい原因は、TiO<sub>2</sub>は誘電率が高くマイクロ波を吸収しやすいために、触媒金属のマイクロ波吸収が低減したためと考えられる。

最後に、樹脂種による違いについて検討した（図17）。用いた樹脂は、ポリプロピレン（PP、セイシン企業製、粒子径5.2μm）、ABS樹脂（ABS、マテリス製、粒子径25±5μm）、ポリカーボネート（PC、マテリス製、粒子径25±5μm）である。水素収率はPP>ABS>PCの順に高かった。ABSの水素収率はFe系触媒と同程度の結果であるが、PCの水素収率は低かった。図17b)の水素以外のガスの生成比はABS>PC>PPの順であった。ABSでは一酸化炭素の生成が多く、PCでは炭化水素の生成が多かった。一酸化炭素の生成はNiOの酸素が使われており、NiOの還元時期とABSの分解時期が近かったのではないかと考えられる。PCを用いた場合はマイクロ波照射時に温度が上がりにくく、このために水素への分解反応が起こりにくかったと考えられる。なお、PC使用時はマイクロ波を照射しても700℃まで昇温せず、反応を行えなかった。またABSとPCのいずれを用いた場合もタール状の生成物が確認された。

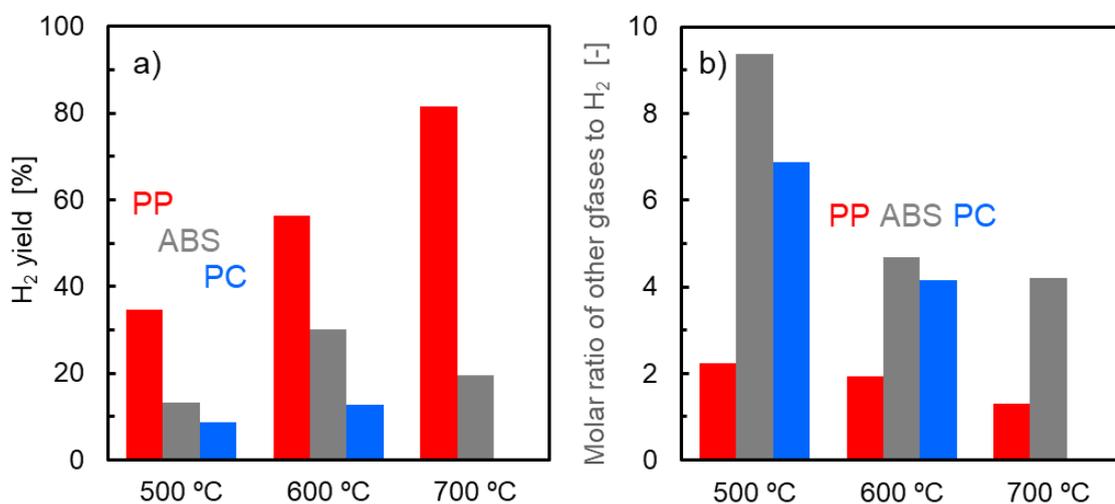


図17 樹脂種による相違（混練法50 mol%-NiO/AlO<sub>x</sub>触媒）

## 6. まとめ

本研究では、自動車残渣のモデル物質としてポリプロピレン（PP）粉末を取り上げ、PPと触媒の混合物にマイクロ波を照射することで、PPから二酸化炭素を生成させずに水素を選択的に得るための検討を行い、次の成果を得た。

- 1) マイクロ波照射実験において、温度制御方式と出力制御方式を比較したが、特に顕著な相違は認められなかった。
- 2) Fe触媒では水素還元処理を行うことで水素生成能が向上した。Fe成分の結晶相は、水素還元前にはヘマタイト相が主であったが、水素還元後にはマグネタイト相と金属Fe相の共存状態であった。マグネタイト相がマイクロ波を吸収して触媒の温度を上昇させ、金属Fe相が分解反応を起こすと考えられた。両機能がバランス良く共存している状態が良い触媒と考えられる。しかし、Fe系触媒はNi系触媒ほど高い水素生成活性は得られなかった。
- 3) Ni触媒では、水素還元処理を行うとマイクロ波を吸収しなくなったため、NiO触媒を用いて反応を行った。ただし、反応中にNiOからNiへの還元が起こっていた。Niへの還元が起こらなかった触媒はPP分解活性を示さなかったため、PP分解の活性点が金属Niであると考えられた。
- 4) Ni触媒はFe触媒よりも高い水素生成活性を示した。これはNiがFeよりも炭素固溶能が高いことに起因していると推察している。さらに、マイクロ波照射条件と触媒調製条件を検討した結果、PP原料に含まれる水素の80%以上を水素ガスとして得ることに成功した。
- 7) Ni触媒へ少量のFeを添加した触媒など2元系触媒も検討したが、Ni単独触媒を上回る水素収率は得られなかった。
- 8) Fe、Ni以外の金属種としてCo触媒の検討も行った。Co触媒は、Fe触媒と同様に水素還元後に高活性を示した。その活性はNi触媒とFe触媒の中間的なものであった。
- 9) 担体種として $Al_2O_3$ 、 $SiO_2$ 、 $TiO_2$ 担体の影響を調べた。 $Al_2O_3$ と $SiO_2$ を用いた触媒には大きな違いがなかったが、 $TiO_2$ 担体の場合には昇温しにくくなり、それに伴って水素収率も低下した。
- 9) PP以外の樹脂として、ABS樹脂およびポリカーボネート（PC）の分解反応も行った。水素収率は PP>ABS>PC の順であった。

以上のように本研究では、マイクロ波照射による担持金属触媒上でのポリプロピレンの分解反応を行い、Ni触媒を最適化することで最大で80%以上の水素収率を得ることに成功した。また、触媒種の選定、触媒の調製条件、反応条件などに関する指針を得ることができた。

## 参考文献

- [1] Xiangyu Jie, Weisong Li, Daniel Slocombe, Yige Gao, Ira Banerjee, Sergio Gonzalez-Cortes, Benzhen Yao, Hamid AlMegren, Saeed Alshihri, Jonathan Dilworth, John Thomas, Tiancun Xiao & Peter Edwards, "Microwave-initiated catalytic deconstruction of plastic waste into hydrogen and high-value carbons", *Nature Catalysis*, **3** (2020) 902.
- [2] Fazeela Ramzan, Bilal Shoukat, Muhammad Y. Naz, Shazia Shukrullah, Fayyaz Ahmad, Ishrat Naz, Mohamed M. Makhlof, Muhammad U. Farooq, Kashif Kamran, "Single step microwaves assisted catalytic conversion of plastic waste into aluable fuel and carbon nanotubes" *Thermochimica Acta*, **715** (2022) 17929.