

プラスチック接触分解の反応装置依存性

う え み ち よ し お お の な お と す ず き と し ひ ろ
(室蘭工大) ○上道芳夫、小野直人、鈴木敏宏

ガリウムシリケートを触媒とするポリエチレンの芳香族炭化水素への分解を流通系とバッチ系で行い、生成物組成の反応装置依存性を検討した。固定床流通系ではガリウム触媒の分解促進効果および選択性制御効果が顕著に現れ、ベンゼン、トルエン、キシレンを主成分とする芳香族炭化水素が高収率で得られた。一方、ポリエチレンを触媒と混合して加熱分解するバッチ系では芳香族の収率が著しく低くなった。

1. 緒言

廃プラスチックの液体燃料、化学原料への転化はケミカルリサイクル技術として注目されている。一般にプラスチックの分解は装置依存性が大きいとされているが、装置の影響が詳細に示されている例は少ない。我々は、触媒を用いてポリオレフィンをもBTX（ベンゼン、トルエン、キシレン）と水素へ転換するケミカルリサイクル技術の検討を行っているが^{1,2)}、この反応では生成物の組成が反応装置の様式に著しく依存することがわかった。本研究では、ガリウムシリケート触媒によるポリエチレン（PE）の分解生成物の組成を固定床流通系およびバッチ系で詳細に比較した。

2. 実験

分解試料として市販の低密度 PE を使用した。触媒のH型ガリウムシリケート（Si/Ga=25）は市販品で、16~32メッシュに整粒し550℃で焼成後反応に使用した。

図1は本研究で使用した固定床流通式およびバッチ式の反応装置を示している。流通系では溶融したPEを加圧窒素で押し出し、15分間連続的に触媒層へ供給した。トラップに捕集した分解生成物はガス（C₁~C₄）および液体（C₅+）留分に分離した後、それぞれの組成をガスクロで分析した。熱分解では触媒の代わりにガラスビーズを充填した。反応温度は400~525℃、触媒量とPE供給速度の比で表される接触時間因子（W/F）は0.02~0.25 h⁻¹であった。バッチ式反応器による分解は、触媒と粉末状のPEを種々の割合（触媒/PE=0.01~0.6）で物理的に混合した後、キャリアーガス流通下で、室温から反応温度（425~500℃）まで約5分で急速に昇温して反応を開始した。生成物の捕集と分析は流通系の場合と同様である。

3. 結果と考察

触媒が存在しない熱分解条件下では、PEの分解速度は遅く、分解に長時間要しワックスのような高沸点成分が多量生成した。図2はガリウムシリケート触媒を用いたときのPE分解生成物の収率を示しているが、流通式（W/F=0.15 h⁻¹）、バッチ式（触媒/PE重量比=0.6）のいずれの反応系で

も、分解は著しく促進されガスおよび液体成分が選択的に生成した。両反応系でガスと液体成分の生成割合は異なるが、生成物のほとんど全てが炭素数 13 以下の成分であった。したがって、触媒の分解促進効果は両反応系で大差ないものと考えられる。しかし、生成物の組成には大きな違いが見られた。流通系では、ベンゼン、トルエン、キシレンを主成分とする芳香族炭

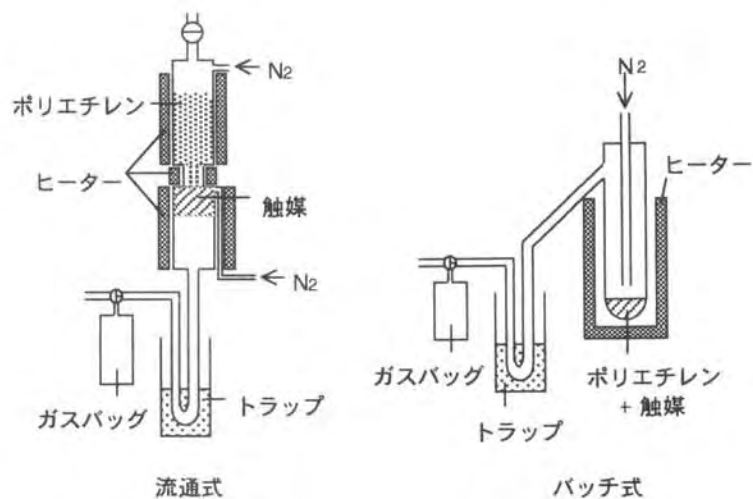


図1 固定床流通式およびバッチ式反応装置

化水素が高収率で得られ、ガリウムシリケート触媒の選択性制御効果が顕著に現れた。これに対しバッチ系での芳香族選択性は著しく低い値であった。このような結果は、バッチ系に比べて流通系では触媒と PE (および分解フラグメント) の接触が極めて良好なことによると推測される。

図3は反応温度を変化させたときの芳香族収率を示している。芳香族の生成には高温が有利であり、流通系では温度の上昇とともに芳香族収率は増加した。しかし、バッチ系では高温でも芳香族の収率は増加しなかった。よって、高温ほど流通系との差は大きくなり 500℃以上ではその差が 3~4 倍に拡大した。生成物組成は触媒/PE 比にも依存するが、バッチ系では比を大きくしても芳香族収率の増加は僅かであった。

以上のことから、PE を低分子化するだけでなく生成物組成も高度に制御することが必要なケミカルリサイクルでは、触媒と PE を効果的に接触させることが極めて重要であると考えられる。

参考文献

- 1) K. Takuma, Y. Uemichi, A. Ayame, Appl. Catal. A, **192**, 273 (2000).
- 2) Y. Uemichi, T. Suzuki, Chem. Lett., 1137 (1999).

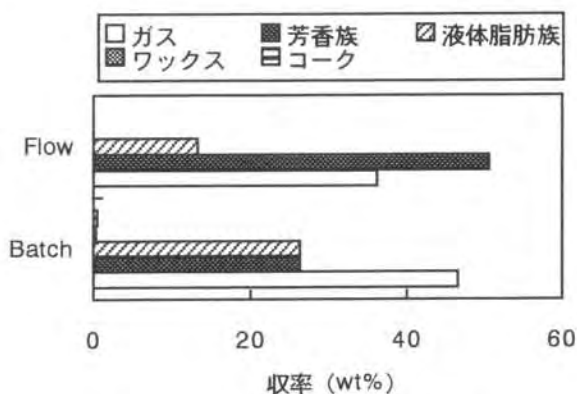


図2 分解生成物の収率 (425℃)

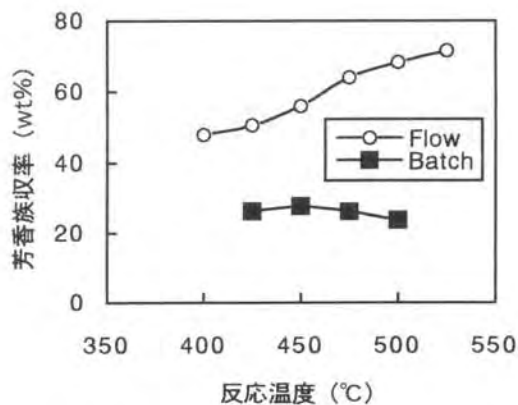


図3 芳香族収率の温度依存性