Thu. Nov 12, 2020

Poster exhibition Room

Poster session

[P01-13] Poster sess. 1

1:30 PM - 3:00 PM Poster exhibition Room (3F/Conf. Room H1-2)

[P01] Effect of divalent cation on oil-water relative permeability curve in Low Salinity Water Flooding

○Yusaku Ichi[1], Kazunori Abe[1], Hikari Fujii[1], Shigemi Naganawa[1] (1. Graduate School of International Resource Sciences, Akita University)

[P02] The impact of clay Minerals on Enhanced Oil Recovery using SiO_2 Nanoparticle as a dispersion Medium for Sandstone

Kazunori Abe[1], ○Taisuke Inomata[1] (1. Graduate School of International Resource Sciences, Akita University)

[P03] Molecular species and reaction analysis of light cycle oil

○Morio Ueda[1], Mizuki Takemura[1], Masataka Nakashima[1], Nobuo Ashikawa[1], Hidehisa Kawamura[1] (1. Kyushu Environmental Evaluation Association)

[P04] Estimation of Hansen solubility parameter of molecular structures constituting asphaltene aggregate

○Kota Harada[1], Hideki Yamamoto[1], Masato Morimoto[2], Tsuyoshi Morita[3], Haruo Kumagai[4], Kouji Harano[5], Teruo Suzuki[6], Ryuzo Tanaka[6,7] (1. Kansai University, 2. National Institute of Industrial Science and Technology, 3. Chiba University, 4. Hokkaido University, 5. The University of Tokyo, 6. Japan Petroleum Energy Center, 7. Idemitsu Kosan Co., Ltd.)

[P05] Quantitative structural analysis for disordered structure of Ziegler-Natta catalyst supports by X-ray total scattering

○Toru Wada[1,2], Gentoku Takasao[1], Patchanee Chammingkwan[1,2], Ashutosh Thakur[1], Minoru Terano[1,2], Toshiaki Taniike[1,2] (1. Japan Advanced Institute of Science and Technology, 2. The Dutch Polymer Institute)

[P06] Effect of chain length of reactant n-alkanes on the production of propylene and ethylene by catalytic cracking using phosphorus-modified ZSM-5

○Panya Wattanapaphawong[1,2], Prasert Reubroycharoen[2], Naoki Mimura[1], Osamu Sato[1], Aritomo Yamaguchi[1] (1. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), 2. Chulalongkorn University)

[P07] Crystal phase control of zeolites in the OSDA and solvent free synthesis

○Yoshitaka Mizuno[1], Koji Miyake[1], Chang Yi kong[1] (1. Shizuoka University)

[P08] Synthesis of tetravalent hetero atoms incorporated Beta zeolites

○Ryoga Yashiro[1], Koji Miyake[1], Chang Yi Kong[1] (1. Shizuoka University)

[P09] Preparation and acid-base properties of inorganic-organic composite including di-*n*-alkyldimethylammonium

○Rena Akanuma[1], Masataka Ogasawara[1], Kanji Saito[1,2], Sumio Kato[1] (1. Graduate School of Engineering Science, Akita University, 2. Kagami Memorial Research Institute for Materials Science and Technology, Waseda University)

[P10] Synthesis and application of organic-inorganic hybrid layered silicate materials using terminal organosilanes as silicon sources

○Yukiko Otsu[1], Yusuke Tsukamoto[1], Yuto Muguruma[1], Takuji Ikeda[2], Katsutoshi Yamamoto[1] (1. The University of Kitakyushu, 2. The National Institute of Advanced Industrial Science and Technology)

[P11] Investigation of novel organic-inorganic hybrid materials having bridging organic groups

○Taiki Katayama[1], Kosei Yamashita[1], Koji Yamamoto[1], Takuji Ikeda[2], Katsutoshi Yamamoto[1] (1. The University of Kitakyushu, 2. The National Institute of Advanced Industrial Science and Technology)

[P12] The effect of liquid flow rate and bed condition on the hydrodynamics in a trickle bed reactor

○Tomohiro Hayashi[1], Katsutoshi Nagaoka[1], Hiroshi Yamada[1] (1. Nagoya University)

[P13] Recovery of Phenols from Degraded Lignin over TiO_2-FeO_X catalyst and Its Characteristic Analysis

○Hiroya Ishimaru[1], Hiromi Aoki[1], Takuya Yoshikawa[1], Yuta Nakasaka[1], Yoshihito Koyama[1,2], Eri Fumoto[3], Shinya Sato[3], Teruoki Tago[4], Takao Masuda[1] (1. Hokkaido University, 2. Idemitsu Kosan Co., Ltd., 3. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 4. Tokyo Institute of Technology)

©The Japan Petroleum Institute

Poster session

[P01-13] Poster sess. 1

Thu. Nov 12, 2020 1:30 PM - 3:00 PM Poster exhibition Room (3F/Conf. Room H1-2)

[P01] Effect of divalent cation on oil-water relative permeability curve in Low Salinity Water Flooding

○Yusaku Ichi[1], Kazunori Abe[1], Hikari Fujii[1], Shigemi Naganawa[1] （1. Graduate School of International Resource Sciences, Akita University）

[P02] The impact of clay Minerals on Enhanced Oil Recovery using SiO_2 Nanoparticle as a dispersion Medium for Sandstone

Kazunori Abe[1], ○Taisuke Inomata[1] （1. Graduate School of International Resource Sciences, Akita University）

[P03] Molecular species and reaction analysis of light cycle oil

○Morio Ueda[1], Mizuki Takemura[1], Masataka Nakashima[1], Nobuo Ashikawa[1], Hidehisa Kawamura[1] （1. Kyushu Environmental Evaluation Association）

[P04] Estimation of Hansen solubility parameter of molecular structures constituting asphaltene aggregate

○Kota Harada[1], Hideki Yamamoto[1], Masato Morimoto[2], Tsuyoshi Morita[3], Haruo Kumagai[4], Kouji Harano[5], Teruo Suzuki[6], Ryuzo Tanaka[6,7] （1. Kansai University, 2. National Institute of Industrial Science and Technology, 3. Chiba University, 4. Hokkaido University, 5. The University of Tokyo, 6. Japan Petroleum Energy Center, 7. Idemitsu Kosan Co., Ltd.）

[P05] Quantitative structural analysis for disordered structure of Ziegler-Natta catalyst supports by X-ray total scattering

○Toru Wada[1,2], Gentoku Takasao[1], Patchanee Chammingkwan[1,2], Ashutosh Thakur[1], Minoru Terano[1,2], Toshiaki Taniike[1,2] （1. Japan Advanced Institute of Science and Technology, 2. The Dutch Polymer Institute）

[P06] Effect of chain length of reactant n-alkanes on the production of propylene and ethylene by catalytic cracking using phosphorus-modified ZSM-5

○Panya Wattanapaphawong[1,2], Prasert Reubroycharoen[2], Naoki Mimura[1], Osamu Sato[1], Aritomo Yamaguchi[1] （1. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), 2. Chulalongkorn University）

[P07] Crystal phase control of zeolites in the OSDA and solvent free synthesis

○Yoshitaka Mizuno[1], Koji Miyake[1], Chang Yi kong[1] （1. Shizuoka University）

[P08] Synthesis of tetravalent hetero atoms incorporated Beta zeolites

○Ryoga Yashiro[1], Koji Miyake[1], Chang Yi Kong[1] （1. Shizuoka University）

[P09] Preparation and acid-base properties of inorganic-organic composite including di-*n*-alkyldimethylammonium

○Rena Akanuma[1], Masataka Ogasawara[1], Kanji Saito[1,2], Sumio Kato[1] （1. Graduate School of Engineering Science, Akita University, 2. Kagami Memorial Research Institute for Materials Science and Technology, Waseda University）

[P10] Synthesis and application of organic-inorganic hybrid layered silicate materials using terminal organosilanes as silicon sources

○Yukiko Otsu[1], Yusuke Tsukamoto[1], Yuto Muguruma[1], Takuji Ikeda[2], Katsutoshi Yamamoto[1] （1. The University of Kitakyushu, 2. The National Institute of Advanced Industrial Science and Technology）

©The Japan Petroleum Institute

[P11] Investigation of novel organic-inorganic hybrid materials having bridging organic groups

○Taiki Katayama[1], Kosei Yamashita[1], Koji Yamamoto[1], Takuji Ikeda[2], Katsutoshi Yamamoto[1] （1. The University of Kitakyushu, 2. The National Institute of Advanced Industrial Science and Technology）

[P12] The effect of liquid flow rate and bed condition on the hydrodynamics in a trickle bed reactor

○Tomohiro Hayashi[1], Katsutoshi Nagaoka[1], Hiroshi Yamada[1] （1. Nagoya University）

[P13] Recovery of Phenols from Degraded Lignin over TiO_2-FeO_X catalyst and Its Characteristic Analysis

○Hiroya Ishimaru[1], Hiromi Aoki[1], Takuya Yoshikawa[1], Yuta Nakasaka[1], Yoshihito Koyama[1,2], Eri Fumoto[3], Shinya Sato[3], Teruoki Tago[4], Takao Masuda[1] （1. Hokkaido University, 2. Idemitsu Kosan Co., Ltd., 3. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 4. Tokyo Institute of Technology）

©The Japan Petroleum Institute

低塩分濃度水攻法における二価カチオンが油-水相対浸透率曲線に与える影響

(秋田大学大学院国際資源学研究科*) ○一 優作*、阿部 一徳*、藤井 光*、長縄 成実*

石油増進回収技術の一つである低塩分濃度水攻法(Low Salinity Water Flooding: 以下 LSWF)は、石油貯留層に対して、随伴水を圧入する水攻法よりも低濃度の塩水を圧入し増進回収を目指すものである。LSWF の特徴として環境面での負荷が比較的小さく、操業コストが抑えられることが挙げられる。フィールド試験において増油効果が報告されているものの、他の EOR と比較し、本技術の増油メカニズムについては様々な議論がなされている。Sheng(2014)によると、現在までに 17 の増油メカニズムが提案されており、多様な増油メカニズムが提案される背景には、貯留岩ごとの特性の違いや、原油成分の組成など、多数の影響因子が同時に存在することが挙げられる。特に近年の研究では、塩水中のイオン成分と原油の極性に焦点をあてた増油メカニズムの有効性が報告されている。そこで本研究では、原油に含まれる極性成分の有無に加えて、圧入水の塩構成(イオン成分、塩分濃度)が与える貯留岩表面の濡れ性への影響および増油効果について検討した。各種評価として、模擬貯留岩を用いて塩水-岩石-油間の接触角測定、油掃攻試験、塩水-油間の相対浸透率測定を実施した。各種実験は砂岩試料および炭酸塩岩試料を対象に実施し、油相として精製油および原油、水相に NaCl 水溶液(0.1%~4%)、$CaCl_2$ 水溶液(0.1%~0.5%)、$MgCl_2$ 水溶液(0.1%~0.5%)用いた。精製油を用いた試験では岩石種にかかわらず一定の増油効果が確認された。以上より得られた内容を報告する。

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

SiO_2ナノ粒子分散媒を用いた石油増進回収法における砂岩中の粘土鉱物の影響

（秋田大学大学院国際資源学研究科*）阿部　一徳*，〇猪俣　泰祐*

SiO_2ナノ粒子を用いた石油増進回収法は、砂岩貯留層での油回収率増加が広く報告されており、主な増油機構には貯留岩表面の濡れ性改善効果が挙げられている。一方で、貯留層条件下におけるSiO_2ナノ粒子の安定性や挙動（吸着性・凝集性・長距離移動性）は不明瞭な点も多く、フィールド適用に向けては、ナノ粒子の材料特性を評価するとともに、砂岩の各含有鉱物等に焦点をあて、濡れ性改善効果との相関を検討する必要がある。砂岩に含まれる粘土鉱物は、一般的に砂岩の主成分である石英と異なる表面電荷を持つため、砂岩粒子の表面改質を目的としたSiO_2ナノ粒子が、粘土鉱物表面には適切に機能しない可能性がある。また、カオリナイト等の粘土鉱物は親油性を示すため、砂岩粒子表面と比較し油回収率へ与える影響が大きい。それゆえ、粘土鉱物種及び含有量の異なる砂岩を対象として、SiO_2ナノ粒子が濡れ性改質に与える影響及び貯留岩中のSiO_2ナノ粒子の安定性を検討することは重要である。本研究では、粘土鉱物の含有量が異なる砂岩コア、並びに表面電荷が異なる2種類のSiO_2ナノ粒子を用いた掃攻試験を実施し、増油効果に与える影響及びSiO_2ナノ粒子の吸着性を評価した。掃攻試験の結果、粘土鉱物量が少ないBerea砂岩については、粘土鉱物の量が多いBandera砂岩と比較して高い増油効果を示した。さらに、Bandera砂岩における掃攻試験では、Berea砂岩と比較して、ナノ粒子の圧入前後で圧力が上昇する傾向を確認した。

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

分解軽質軽油の分子種分析および反応解析

*上田守男，竹村瑞稀，中嶋雅孝，芦川信雄，川村秀久　一般財団法人九州環境管理協会

1.　はじめに

包括的二次元 GC(GC×GC)飛行時間型質量分析計(HRQTOFMS)で測定し、未知化合物の分子組成式を解析化合物の同定及び定量を試みた。なお、LCO について分析し若干の知見を得たので報告する。

2.　試料と測定

測定試料は、ライトサイクルオイル(LCO:分解軽質軽油）を選定し、測定に供した。測定は、アジレント・テクノロジー㈱社製の高分解能四重極飛行時間型質量分析計「7890B/7200B」に、GC×GC システムを装着して行った。

3.　はじめに

LCO を分子種毎に分離し半定量分析を行うことができた。図 1 に示すように芳香族炭化水のナフタレン、ベンゼンなどが優先的であり、含硫黄化合物については、難脱硫性の化合物の存在比率を確認することができ、メチル基のメチル基の置換数については、分子量の軽いベンゼンなどで多く見られた。活性炭を使用した吸着試験では、脂肪族、芳香族及び硫黄系化合物でそれぞれ吸着特性に違いがあり、反応性の違いが確認された。

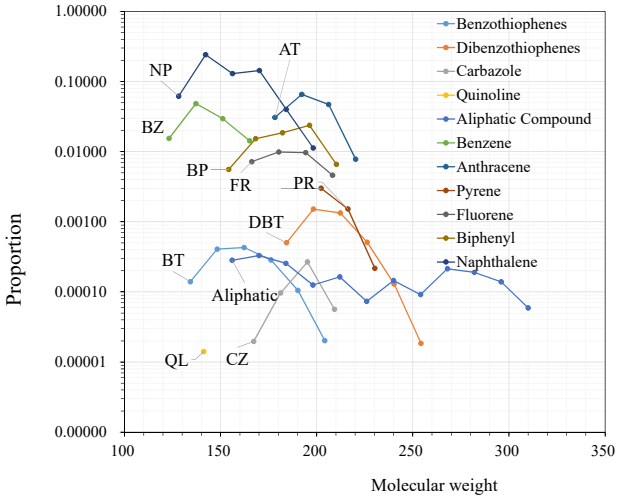

Fig.1　LGO Profiles

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

アスファルテン凝集体を構成する分子構造の Hansen 溶解度パラメータの推算

(関西大*・産総研**・千葉大***・北大****・東大*****・JPEC******・出光********)〇原田孝太*・山本秀樹*・森本正人**・森田剛***・熊谷治夫****・原野幸治*****・鈴木昭雄******・田中隆三******・********

筆者らはアスファルテン凝集緩和の解析研究に、Hansen Solubility Parameter(HSP)を適用している。これまでに、アスファルテンを構成するモデル化合物を合成し、Hansen 溶解球法によって HSP を測定し、物質間の相溶性の評価を行ってきた。本研究では、アスファルテンを構成する多環式芳香族の HSP の推算に対応する、新規グループパラメータの開発を試みた。具体的には、グループ寄与法の一つである van Krevelen & Hoftyzer 法の推算範囲を拡張した JKU-HSP プログラム（JKU-HSP 法）の開発を行った。また、新規パラメータを用いた HSP の推算精度の評価は、Stefanis & Panayiotou 法（S&P 法 2009）と比較した。アスファルテンモデル物質を構成する多環式芳香族の HSP を推算するために、これまでに報告のない 39 種の新規グループパラメータを決定した。新規パラメータの推算精度を評価するために、低分子の芳香族化合物（422 種）に対して S&P 法 2009 と JKU-HSP 法の推算結果を比較した結果を Table 1 に示す。アスファルテンモデル物質に対して HSP 推算精度の向上および汎用性の拡大に成功した。

Table 1　Comparison of estimation accuracy for polycyclic aromatic

	R_a [(MPa)$^{1/2}$]			Correlation coefficient R^2 [-]		
	Average	Maximum	Minimum	δ_D	δ_P	δ_H
S&P method (424 materials)	3.1	15.2	0.2	0.698	0.719	0.824
JKU-HSP (422 materials)	2.7	13.2	0.2	0.712	0.719	0.905

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

Quantitative Structural Analysis for Disordered Structure of Ziegler-Natta Catalyst Supports by X-ray Total Scattering

(JAIST* ・DPI**) ○Toru Wada*,**, Gentoku Takasao*, Patchanee Chammingkwan*,**, Ashutosh Thakur*, Minoru Terano*,**, Toshiaki Taniike*,**

Activated $MgCl_2$ is an indispensable support material of heterogeneous Ziegler-Natta catalysts. The structure determination for the activated $MgCl_2$ has solely relied on the analysis of broad powder X-ray diffraction (PXRD) patterns originated from its disordered structure, which has prohibited to establish an exclusive hypothesis on the structure of the $MgCl_2$ support. It has also been challenging to compare the catalysts with different performances in terms of the structure. By combining the synchrotron X-ray total scattering and simulation with $MgCl_2$ nanoparticle models, we successfully realized the quantitative structure determination of the activated $MgCl_2$ [1,2]. In this poster presentation, it is demonstrated that the structural difference among the catalysts with various donor compounds and prepared by different protocols.

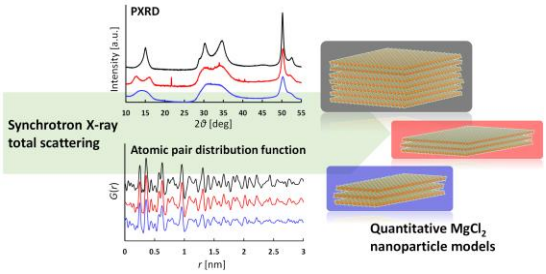

Figure 1. Graphical scheme of structural determination.

Acknowledgments

The work of Toru Wada, Patchanee Chammingkwan, Minoru Terano, and Toshiaki Taniike forms part of the research programme of DPI (P.O. Box 902, 5600 AX Eindhoven, the Netherlands), project #802.

[1] T. Wada et al., *J. Catal.*, **385**, 76–86 (2020).

[2] T. Wada et al., *Catalysts*, **10**, 1089 (2020).

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

Effect of chain length of reactant n-alkanes on the production of propylene and ethylene by catalytic cracking using phosphorus-modified ZSM-5

(AIST *, Chulalongkorn University **) ○Panya Wattanapaphawong*,**, Prasert Reubroycharoen**, Mimura Naoki*, Osamu Sato*, Aritomo Yamaguchi*

Light olefins such as ethylene and propylene are widely used to produce plastics in many manufacturing industries, and the demand for them is increasing. A technique for the conversion of heavy naphtha to light olefins will be needed; thus, the different length of *n*-alkane hydrocarbon (C5-C8) to light olefins was investigated by using phosphorus-modified ZSM-5. The results revealed that the difference of carbon chains length had the effect on the yield of ethylene and propylene. We found that yields of propylene and ethylene increased with increasing carbon number of the reactant hydrocarbon, and that the total yield of ethylene and propylene from *n*-octane cracking using P-ZSM-5 at 923 K reached 64.5 C%. The conversion of *n*-octane remained more than 90% even after 30 h reaction at 923 K.

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

OSDA & Solvent free 合成におけるゼオライトの結晶構造制御

（静岡大学）○水野祥尭，三宅浩史，孔昌一

近年、本研究グループでは、メカノケミカル処理と蒸気合成法を駆使したゼオライトの OSDA & Solvent free 合成を開発した。本手法は、低コストかつ環境低負荷であるため、実用化に適している。しかし、この手法で合成できる単相のゼオライトは非常に少ない現状である。そこで、本研究では、Si/Al 比と結晶化温度を詳細に変化させることによって、OSDA & Solvent free 合成法におけるゼオライトの結晶構造制御を試みた。

その結果、ANA、CAN、GIS、SOD、FAU、LTA 型の単相のゼオライトを得ることに成功した。高い Si/Al 比の条件下では、結晶化温度の上昇に伴って、FAU、GIS、ANA 型の順にゼオライトの結晶構造が変化した。一方で、低い Si/Al 比の条件下では、結晶化温度の上昇に伴って、LTA、SOD、CAN 型の順にゼオライトの結晶構造が変化した。この結果から、それぞれゼオライトの T 原子密度と結晶化温度の相関も得ることができた。結晶化温度の上昇に伴って、得られるゼオライトの T 原子密度も上昇した。つまり、T 原子密度が高いゼオライト程、安定であることが示唆された。

本研究により、ゼオライトの OSDA & Solvent free 合成における、結晶化温度と Si/Al 比との相関を明らかにし、本方法で単相ゼオライトを合成する際の明確な指針を示すことができた。

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

異種 4 価原子を導入した Beta ゼオライトの合成

（静岡大学）○八代 涼雅，三宅 浩史，孔 昌一

ゼオライトは、分子レベルの均一なミクロ孔を持つため、分子の大きさに篩い分けることが出来る形状選択性を示す。また、ゼオライトの Al 原子は、負に帯電しており、全体の電荷補償のためにカチオンが Al 原子近傍に存在する。これらのカチオンは、別のカチオンと入れ替わるため、ゼオライトはイオン交換能を持つ。このカチオンがプロトンのときには、ブレンステッド酸として働く。これらの機能を生かして、ゼオライトは、触媒として幅広く用いられている。

近年、本研究グループでは、ゼオライト触媒の更なる高機能化に向けて、Al 原子の代わりに異種原子である Fe, Ga を導入した Beta ゼオライトの合成に成功した。その際に、酸強度が弱くなり、過度な逐次反応を抑制できることが明らかになった。そこで、本研究では、Beta ゼオライトの 3 価の Al 原子ではなく、4 価である Si 原子の代わりに異種 4 価原子(Ti, Sn, Ge)を導入することにより、新しい触媒能の発現を試みた。

すべての原子をゼオライトの骨格に導入することに成功した。特に、Ti や Ge では、高含有に導入することに成功し、NH_3-TPD による酸強度の測定において、異種 4 価原子の導入量の増加に伴って、ブレンステッド酸由来のピークが高温側にシフトしていることが確認できた。

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

層間にジアルキルジメチルアンモニウムを含む
有機無機複合体の酸塩基特性

（秋田大院理工*，早大材研**）○赤沼玲奈*，小笠原正剛*，齊藤寛治*,**，加藤純雄*

層状ペロブスカイト型化合物 $HCa_2Nb_3O_{10}$ とアルキルトリメチルオニウムイオンから得られる有機無機複合体には，酸点と塩基点が共存していることが報告されている。本研究では有機種としてオクチル鎖を 2 本有する有機種を用いて複合体を調製し，酸塩基特性を評価した。

有機種として *n*-オクチルトリメチルアンモニウムブロミド (C_8TMABr)またはジオクチルジメチルアンモニウムブロミド (C_8C_8DMABr) を用いて得られた複合体を $HCa_2Nb_3O_{10}$-C_8TMA，$HCa_2Nb_3O_{10}$-C_8C_8DMA と表記する。XRD 測定より $HCa_2Nb_3O_{10}$-C_8TMA には d = 2.71 nm，$HCa_2Nb_3O_{10}$-C_8C_8DMA には d = 3.22 nm の回折ピークが見られた。$HCa_2Nb_3O_{10}$ の d_{001} は 1.44 nm であり，$HCa_2Nb_3O_{10}$-C_8C_8DMA の増加分は直鎖オクチル基よりの長さよりも大きいことから，C_8C_8DMA は 2 分子層で存在していることが示唆された。

Table 1 に各触媒を用いたときの酸塩基連続反応結果を示す。いずれの複合体でも，ベンズアルデヒドジメチルアセタール（BDMA）の脱アセタール化によりベンズアルデヒドが生成し，さらにその一部がシアノ酢酸エチルと反応しシアノケイ皮酸エチルが得られた。$HCa_2Nb_3O_{10}$-C_8C_8DMA の方が，シアノケイ皮酸エチルの収率が高くなったのは，複合体中の有機種量が多く塩基触媒活性が高くなったためと推定される。

Table 1　各触媒を用いたときの酸塩基連続反応結果

触媒	BDMA 転化率 (%)	選択率 (%)	
		ﾍﾞﾝｽﾞｱﾙﾃﾞﾋﾄﾞ	ｼｱﾉｹｲ皮酸ｴﾁﾙ
$HCa_2Nb_3O_{10}$-C_8TMA	97	96	3.4
$HCa_2Nb_3O_{10}$-C_8C_8DMA	97	91	8.5

ﾍﾞﾝｽﾞｱﾙﾃﾞﾋﾄﾞｼﾞﾒﾁﾙｱｾﾀｰﾙ (BDMA)：水：ｼｱﾉ酢酸ｴﾁﾙ：ｱｾﾄﾆﾄﾘﾙ：触媒 = 1 mmol : 1 mmol : 1 mmol : 2 mL : 30 mg, 343 K, 3 h.

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

末端有機シランを原料とする有機−無機ハイブリッド型層状シリケート合成と層間導入

（北九大*，産総研**）○大津 柚紀子*，塚本 悠介*，六車 勇登*
池田 卓史**，山本 勝俊*

末端メチル基を持つ methyltrimethoxysilane をケイ素源とし，既報 [1]と同様の手法により結晶性層状物質 KCS-11 を合成した(Fig.1(a))．この物質を室温で 24 時間, エタノール中で処理したところ，回折ピークの低角度側へのシフトが見られ(Fig.1(b))，エタノール分子の層間への導入が示唆された．一方，水や炭化水素中で処理した場合にはピーク位置の変化は見られなかった(Fig.1(c), (d)). この分子選択的な層間導入挙動は KCS-11 層間の表面特性に起因すると思われる．

1) K. Yamamoto et al., *RSC Adv.* **9** (2019) 2641.

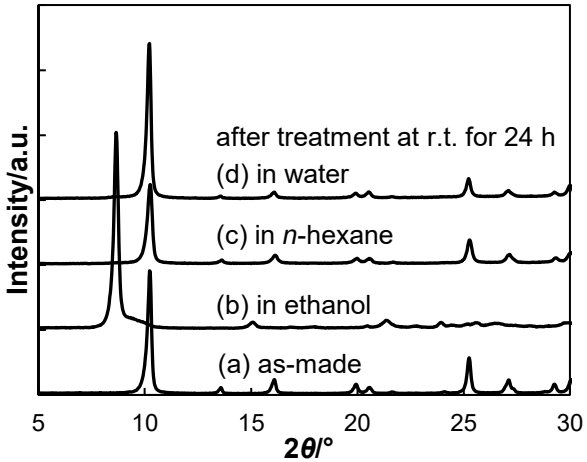

Fig. 1 溶媒処理前後の KCS-11 の XRD パターン.

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

架橋有機基を持つ有機–無機ハイブリッド化合物の開発

（北九大*，産総研**）○片山 泰規*，山下 功誠*，山本 康司*
池田 卓史**，山本 勝俊*

架橋有機基を持つ有機シラン bis(triethoxysilyl)-benzene (BTEB)をケイ素源に用い，ゼオライト様結晶性三次元骨格を形成させることを試みた．Tetramethyl ammonium を有機 SDA として KCS-7（Fig. 1(a)）を結晶化できることをすでに報告しているが [1)], 異なる有機 SDA あるいは無機塩を水熱合成時に共存させることにより，同じ BTEB から異なる結晶相（例えば，Fig.1 (b)～(d)）が得られることを明らかにした．

本研究の一部は北九州産業学術推進機構の助成を得て行われた．

1) 石油学会 JPIJS ポスターセッション P16 (2017).

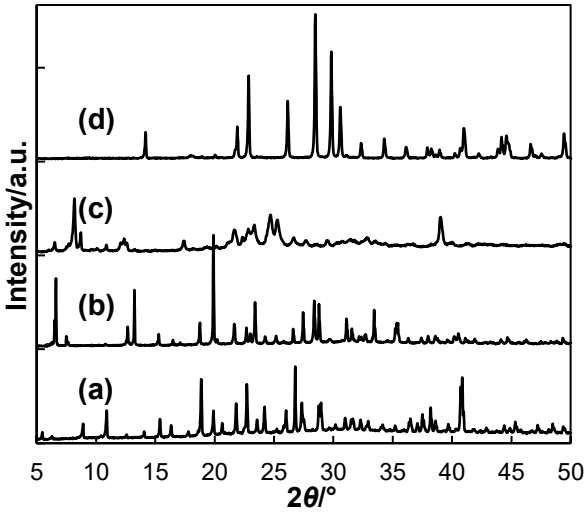

Fig. 1 BTEB から得られた生成物の XRD パターン.

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

トリクルベッドリアクタ内の液流れに与える液流量及び充填物の状態の影響

(名大院・工)○林知広・永岡勝俊・山田博史

トリクルベッドリアクタを用いた触媒評価は液が均一に流れているとして行われるが、実際の装置内の液は均一でない可能性がある。本研究では均一流れ、不均一流れの境界となる条件を求めることにより、実験室スケールでの触媒評価が正しく行える実験条件の選定指針を与えることを目的とする。

第一段階として、液回収口を同心円状に3つに分けた装置を試作した。そして、ガス吸収を行い3つの流出液の流速と吸収量を測定することで、気液流量が液挙動やリアクタの性能へ与える影響について検討した。

充填物に5mmのガラスビーズを用いて実験を行ったところ、液流量2 L/min、ガス流量2.5 L/min以下の条件においては、液は不均一に流れた。また、実験を行うたびに異なる液の流れ方を示し3つの流出液の流速、ガス吸収量共に再現性を示さなかった。液流量3.5 L/min、ガス流量5.0 L/minの条件においても液は不均一に流れた。しかし、流出液の流速、ガス吸収量共に再現性を示し、壁面側の流出液のガス吸収量が小さくなるという傾向を得た。これは、充填物上ではなく壁を伝う液が原因であると考えられる。

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.

TiO_2-FeO_X 触媒を用いた可溶化リグニンからのフェノール類回収とその触媒特性解析

（北海道大*，出光興産**，産総研***，東京工業大学****）○石丸裕也*，
青木裕美*，吉川琢也*，中坂佑太*，小山啓人*, **，麓恵里***，佐藤信也***，
多湖輝興****，増田隆夫*

FeO_X に TiO_2 を複合することで可溶化リグニンからのフェノール回収率が向上する．この要因を明らかにするため，触媒の特性解析および Guaiacol（フェノール類のモデル物質）の分解挙動を検討した．H_2-TPR において TiO_2 複合の有無に依らず酸素脱離量は変化しなかったことから，格子酸素による酸化分解能は同等と考えられる．一方，電荷密度解析（Mulliken 法）より TiO_2-FeO_X は FeO_X に比べ Fe-O 間の電荷密度差が約 12 %増加することから TiO_2 の複合化による酸・塩基特性の向上が考えられる．Guaiacol の接触分解反応では，TiO_2-FeO_X は FeO_X と比べ約 6 倍のフェノール収率を示した．これは Guaiacol からのメトキシ基の脱離が促進されたためである．FeO_X に TiO_2 を複合させることにより，酸・塩基特性が向上し，可溶化リグニンの酸化分解で生成したフェノール類からのメトキシ基の脱離が促進されることで FeO_X に比べフェノール収率が向上したと考えられる．

[謝辞]本研究は JST の ALCA（Grant Number JPMJAL1206）の助成により行われた．

Copyright(C) The Japan Petroleum Institute 2020 All rights reserved.