



2022年度 助成 研究 終了 報告書

※ゴシック文字で記入下さい。

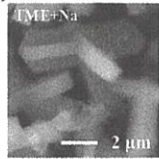
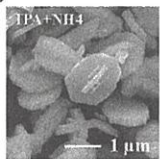
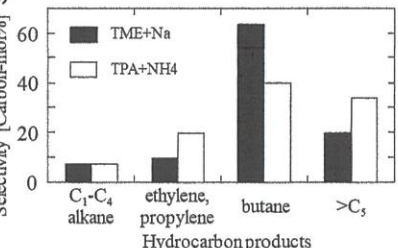
研究テーマ	アセトンからの超高選択的な低級オレフィン合成に向けた鉄導入ゼオライト触媒の精密合成															
研究の結果	<p>本研究では、MFI 型ゼオライトがもつ①細孔と②細孔連結部のうち、①の狭い空間である細孔へ H^+ の位置を偏らせることで反応場を小さくし、アセトンからの炭化水素合成反応において、芳香族炭化水素の生成を抑制し、低級オレフィン (C_2-C_4 アルケン) の選択性向上を目指した。MFI 型アルミノシリケートにおける酸点の位置制御の先行研究を参考に、H^+ 位置が細孔へ偏ることが期待されるトリメチロールエタンと Na^+ を用いた鉄導入 MFI, FeMFI (TME+Na と表記) の合成と触媒反応試験を実施した。比較サンプルとして、H^+ 位置が細孔と細孔連結部の両方に存在するテトラプロピルアンモニウムカチオンと NH_4^+ の組み合わせで合成した FeMFI (TPA+NH_4 と表記) を用いた。TME+Na 合成では、種結晶の添加タイミングを調整することで、不純物の少ないサンプル合成に成功したことを XRD 測定から確認した。SEM 観察から、粒子径約 $5 \mu m$ の典型的な MFI 型ゼオライトの結晶粒子であるコフィン型粒子 (図 1a) が確認でき、比較サンプル (図 1b) と粒子径は異なるが、アンモニア吸着試験から H^+ 含有量は大きく違わなかったことから、触媒性能を比較した。触媒反応試験開始 1 h 後の生成炭化水素分布を図 1c に示した。新たに合成した TME+Na では、エチレン・プロピレン、芳香族炭化水素を含む $>C_5$ 炭化水素の生成が少なく、ブテン選択性が 1.5 倍向上した。この生成炭化水素の違いは H^+ 位置の違いによるものと期待できる。引き続き、粒子径・H^+ 含有量の揃ったサンプル合成に取り組み、触媒開発アプローチの有用性の実証に取り組む。</p> <div style="display: flex; justify-content: space-around;"> <div style="text-align: center;"> <p>a)</p>  </div> <div style="text-align: center;"> <p>b)</p>  </div> </div> <div style="text-align: center;"> <p>c)</p>  <table border="1" style="margin: 0 auto;"> <caption>図 1c 反応試験結果 (推定値)</caption> <thead> <tr> <th>Hydrocarbon products</th> <th>TME+Na Selectivity [Carbon-mol%]</th> <th>TPA+NH4 Selectivity [Carbon-mol%]</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>C_1-C_4 alkane</td> <td>~10</td> <td>~10</td> </tr> <tr> <td>ethylene, propylene</td> <td>~15</td> <td>~20</td> </tr> <tr> <td>butane</td> <td>~65</td> <td>~40</td> </tr> <tr> <td>$>C_5$</td> <td>~20</td> <td>~35</td> </tr> </tbody> </table> </div>	Hydrocarbon products	TME+Na Selectivity [Carbon-mol%]	TPA+NH4 Selectivity [Carbon-mol%]	C_1 - C_4 alkane	~10	~10	ethylene, propylene	~15	~20	butane	~65	~40	$>C_5$	~20	~35
Hydrocarbon products	TME+Na Selectivity [Carbon-mol%]	TPA+NH4 Selectivity [Carbon-mol%]														
C_1 - C_4 alkane	~10	~10														
ethylene, propylene	~15	~20														
butane	~65	~40														
$>C_5$	~20	~35														
研究発表 (実績)	<ul style="list-style-type: none"> 第 53 回石油・石油化学討論会 (2023 年 10 月, 大阪) 「四級アンモニウム塩を用いない Fe-MFI 合成と Acetone-to-Olefins 反応への応用」 (名工大)山本廉人, (大阪大)三宅浩史, 西山憲和, (名工大)廣田雄一郎 															

図 1 FeMFI サンプルの(a, b)SEM 像と (c)反応試験結果