



Title	水蒸気を利用したセリア鉄触媒による部分酸化による重質油の軽質化
Author(s)	信田, 一成; 舟井, 啓; 多湖, 輝興; 増田, 隆夫
Citation	石油学会年会・秋季大会講演要旨集, 2007, 154 https://doi.org/10.11523/sekiryu.2007f.0.81.0
Issue Date	2007
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/70860
Type	article
Note	第37回石油・石油化学討論会(札幌) セッションID: 1E19
File Information	dai37kaitoronkai.pdf



[Instructions for use](#)

水蒸気を利用したセリア鉄触媒による 部分酸化による重質油の軽質化

(北大院工) のぶた かずなり おない きとし たご てるおき ますだ たかお
○信田 一成・舟井 啓・多湖 輝興・増田 隆夫

1. 緒言

化石燃料である石油資源は、原始埋蔵量の約 1/3 が現在までに消費されており、エネルギー問題が深刻化している。そこで、石油精製の副生成物である未利用重質油(常圧残油や減圧残油)に対する高度利用技術の開発が強く望まれている。重質油の軽質化には、水素を添加してそのH/C比を高める必要があり、当研究室では水蒸気の水素源とする水蒸気分解用 $ZrO_2-Al_2O_3-FeOx$ 触媒を開発した。FeOxの格子酸素が部分酸化反応の主活性サイトであり、 ZrO_2 は水分解と活性酸素・水素種の生成能を有すること、 Al_2O_3 がFeOx結晶のシンタリングを抑制することを明らかにした。本研究ではZrと同じく活性酸素種生成能を有するCeを用い、重質油の水蒸気分解プロセスにおける活性と安定性の向上について検討した。

2. 実験

触媒試料： CeまたはZrをFeOxに担持した触媒およびそれらに Al_2O_3 を担持した触媒(以降、Ce-FeOx触媒、Zr-FeOx触媒、Ce-Al-FeOx触媒、Zr-Al-FeOx触媒、Ce-Zr-Al-FeOx触媒と略記)は共沈法で調製した。触媒の構造解析は窒素吸着法とX線回折法で行った。

分解反応実験： 反応原料として半固体状の常圧残油(AR)を、本触媒系の活性が無視小であるベンゼンで10倍に希釈して反応器に供給した。ARの接触水蒸気分解は固定層型流通式触媒反応器を用い、反応温度 773 K、反応時間 2 h、大気圧下、水蒸気雰囲気下で行った。生成物はGC、LCで分析した。

3. 結果と考察

Fig.1 にFeOx触媒、Zr-FeOx触媒、Ce-FeOx触媒を用いてARの水蒸気分解を行った際の生成物炭素収率を示す。FeOx触媒と比較してZr-FeOx触媒、Ce-FeOx触媒は共に C_{30+} を有効に分解し、ガソリンとケロセン収率が向上した。本反応では、まず重質油がFeOx格子酸素と反応し軽質化される。そして、水分子から生成した活性水素種が分解された重質油の末端水素とともに、活性酸素種がFeOxの消費された格子酸素を補うことで反応が進行する。従って、Ce、もしくはZrを担持した触媒では、水分子から生成した活性酸素種によって格子酸素が補われるため、FeOx触媒より重質油の軽質化が進行したと考えられる。Fig.2 に

Ce-Zr-Al-FeOx触媒の生成物炭素収率を示す。図より、Ce-Zr-Al-FeOx触媒が最も軽質化を進めた。Fig.3 に反応後の触媒のXRDパターンを示す。反応前は各触媒共にヘマタイト構造であったが、FeOx触媒では、反応後に結晶構造はマグネタイトとなり、活性が低下した。一方、Ce-Zr-Al-FeOx触媒は反応後もヘマタイト構造を維持していた。以上より、触媒の安定性を維持しつつ、Ce添加により活性を向上させることができた。

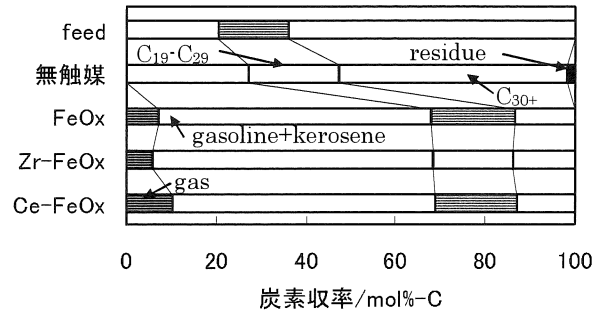


Fig.1 生成物炭素収率

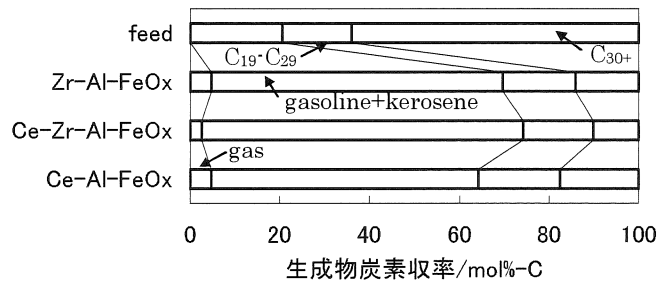


Fig.2 共沈する活性種の生成物分布に与える影響

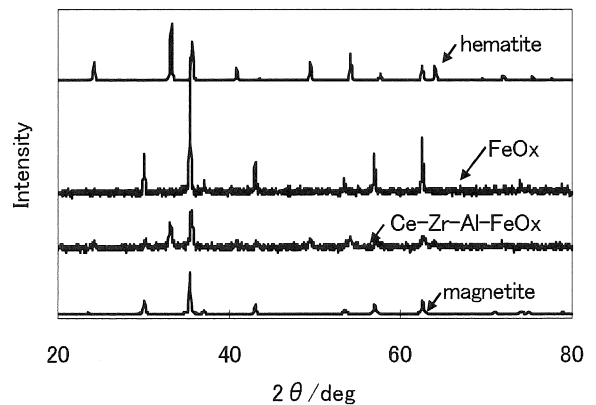


Fig.3 反応後触媒のXRDパターン

参考文献

1) E.Fumoto, et al., *Energy & Fuels*, 20, 1-6 (2006)