

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 16 日現在

機関番号：15101

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23360358

研究課題名(和文)重質油分解に資するゼオライト酸点の設計

研究課題名(英文)Design of Acid Site in Zeolite for Cracking of Heavy Oil

研究代表者

片田 直伸 (KATADA, Naonobu)

鳥取大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：00243379

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,000,000円、(間接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：マクロ細孔性のアルミノシリケート系固体酸触媒と $\text{MoO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ を混合した触媒上でアルキルナフタレンの脱アルキル化が進行した。固体酸触媒がアルミナ担持シリカモノレイヤーでは選択性が高かった。この知見は重質油の分解と利用が困難である成分をディーゼル燃料とガソリン・化学原料に転換するプロセスに応用できる可能性がある。一方DFT計算によって SiOHAl の両端から圧縮されるほど酸強度が強いことがわかった。この圧縮力は結晶構造に由来することが明確となり、酸点設計の指針を得た。前述のシリカモノレイヤーは表面に圧縮された SiOH が並んでいると解することができる。

研究成果の概要(英文)：Dealkylation of alkyl naphthalene proceeded on a mixture of macroporous aluminosilicate solid acid catalyst and $\text{MoO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$. Where a silica monolayer supported by alumina was used as the solid acid, the selectivity was high. This finding can be applied to a new process for efficient conversion of the components difficult to decompose and use in heavy oils into diesel, gasoline and chemical resources. On the other hand, it was clarified by DFT calculations that the compression from both ends of SiOHAl made the acid strength. The compression was clarified to be due to the crystal structure. A strategy of design of acid site is obtained. The catalytic ability of silica monolayer can be related with the structure where SiOH groups arranged on the surface as compressed.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：触媒・資源化学プロセス

キーワード：ゼオライト 固体酸触媒 重質油分解 脱アルキル化 部分水素化触媒 シリカモノレイヤー

1. 研究開始当初の背景

オイルサンドなど重質炭化水素の有効成分への転換は注目されている。多環芳香族化合物が水素化分解条件下でテトラリン誘導体を生成し、これが難分解性であるため重質成分の有効利用率が低いことが明らかとなってきた(図1)。そこでこのような難分解性分子を活性化できる新しい触媒の開発が強く求められるに至っている。

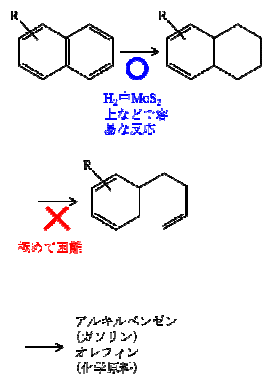


図1: 多環芳香族のテトラリン誘導体を経由するアルキルベンゼンへの転換。

片田らは固体酸性質の測定のためのアンモニアIRMS-TPD法を開発し、多くのゼオライトの酸性質を測定し、さらに量子化学計算によってつぎの結論を得た。

(I) ゼオライトの酸強度は結晶構造によって制御されている。構造によってSiOHAl基の横方向からの圧縮力が異なるからで、横から圧縮されるほどHのブレンステッド酸性を強めるためである。

(II) SiOHAlの近くに多価カチオン(Ca²⁺, Al(OH)²⁺, La(OH)²⁺など)が配位すると、さらにブレンステッド酸性が強められる。

2. 研究の目的

テトラリン誘導体の分解では、単純に強い酸点ではなく、過分解を防ぎ、酸強度を精密に制御した触媒が必要とされる。(I)に従うと、広い空間に面した壁面では圧縮力が小さくなるので酸点は弱くなる傾向がある。この情報がないままに大口径のゼオライトをつくっても酸性質の制御は期待できないが、いままでの知見を踏まえ、任意の強さの酸点を発現する構造を設計することは可能と思われる。そこで本研究では、当初つぎの目的を立てて研究を行った。研究の途中で有意義な発見によって方向を変えた部分もある。

テトラリン誘導体の分解に代表される多環芳香族の水素化分解における素反応の速度に対する酸強度の影響をまず確立する。一方でゼオライトの微細構造と酸性質の関係を計算化学的に解明し、広い空間に制御された強度の酸点を持つゼオライトを設計する。つぎにこのようなゼオライトを合成し、重質炭化水

素の分解に応用する。

3. 研究の方法

(1) 既知のゼオライトについてテトラリンの分解の水素化分解に対する触媒活性とブレンステッド酸強度などの関係を正確に調べるため、常圧水素中でのテトラリンの分解反応を行った。

(2) テトラリン分解で得られた知見をナフタレンからテトラリン経由の分解で確かめるため、ナフタレンの流通反応を試みた。ただし平衡の制約のため、用いた反応温度では常圧の水素ではテトラリンからナフタレンへ脱水素が圧倒的に進行する。このため水素の圧力が高い条件で行った。そのためには高压反応装置に送液ポンプを用いて原料溶液を注入する必要がある。ナフタレンは常温常圧で固体なので、溶媒としてC16, C18アルキルナフタレン混合溶液(市販)を用い、アルキルナフタレンにナフタレンを溶解させて送液した。水素化を促進するためにMoO₃/Al₂O₃を混合した。

(3) (2)で得られた知見から方向を転換し、アルキルナフタレンの選択的脱アルキル化を行った。

(4) 密度汎関数理論計算によってSiOHAl基の構造と酸強度の相関を調べた。MOR, MWW, MFI, BEA, FAU構造の結晶学的に異なる全てのT10mTnブリッジについて、全SiO₂組成, T1位にAlを導入したアニオン, 対カチオンとしてH⁺, Na⁺, NH₄⁺を導入した形について最適化構造と全エネルギーなどを計算した。

4. 研究成果

(1) 図2にテトラリンの常圧における水素化分解反応における各種固体酸触媒の活性を比較する。12-ring以上の大きな細孔(または開いた空間)にある程度以上の強いブレンステッド酸点が存在することが必要と結論される。

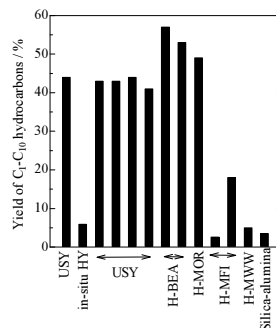


図2: 573 K, 各種固体酸触媒30 mg, 28 μmol s⁻¹の水素と6.8 nmol s⁻¹のテトラリンの混合気流を全圧1 atmで流通させたときのテトラリンからのベンゼン・アルキルベンゼン・アルカンの収率。

(2)ナフタレンとアルキルナフタレンの混合溶液を高圧水素中で流通させたところ、表1に示すように、無触媒および水素化触媒(MoO₃/Al₂O₃)または固体酸触媒の一方のみでは反応は起きず、MoO₃/Al₂O₃と固体酸触媒を混合すると反応が起きた。ただしテトラリンやアルキルベンゼンはほとんど得られず、溶媒として用いたアルキルナフタレンの脱アルキル化(1)によってナフタレンとC16, C18アルカン(パラフィン)が主に生成した。脱アルキル化によるとアルケン(オレフィン)が生成するはずだが、水素化条件なのでただちにアルカンに転化したものと考えられる。このときアルキル基が短く切れる(2)や生成したパラフィンの過分解(3)はあまり起きなかった。

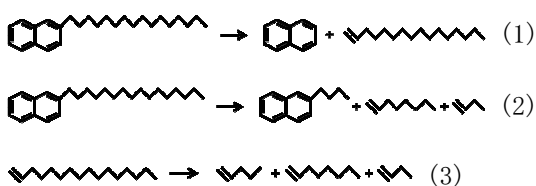


表 1: ナフタレン・アルキルナフタレン混合溶液を高圧水素中で各種触媒床に流通させたときの出口組成。反応温度573 K, MoO₃/Al₂O₃ 20 mg, 固体酸触媒50 mg, 水素34 μmol s⁻¹, ナフタレン0.31 nmol s⁻¹, ヘキサデシルナフタレン異性体0.31 nmol s⁻¹, オクタデシルナフタレン異性体0.35 nmol s⁻¹の混合気体を流通。

| | 無触媒 | H-BEAのみ | MoO ₃ /Al ₂ O ₃ のみ | H-BEA + MoO ₃ /Al ₂ O ₃ | Na ₂ H ₂ -EDTA 処理USY + MoO ₃ /Al ₂ O ₃ |
|-----------------|-----|---------|---|--|---|
| C16アルキルナフタレン | 0 | 30 | 30 | 23 | 34 |
| C18アルキルナフタレン | 0 | 33 | 33 | 31 | 22 |
| ナフタレン | 17 | 17 | 18 | 21 | 39 |
| C1-C15アルキルナフタレン | 0 | 0 | 0 | 1 | 3 |
| C16C18パラフィン | 0 | 0 | 0 | 2 | 2 |
| テトラリン | 0 | 0 | 0 | 1 | 0 |
| アルキルベンゼン | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| C10以下パラフィン | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| C19以上アルキルナフタレン | 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 物質収支 | 100 | 100 | 100 | 81 | 100 |

重質油中のアルキル多環芳香族を、アルキル基の長さを保ったままパラフィンと芳香族に分けることができれば、石油精製過程の合理化と利用重質炭化水素の有効利用法開発につながる。そこで方針を変え、脱アルキル化反応について研究した。

(3)今回はモデル原料としてアルキルナフタレンを用いたが、より嵩高い分子に応用することを目的として、ゼオライトの利用は想定せず、マクロ細孔性の触媒に絞って検討した。また重質油の利用では付着した重質成分の焼成除去が不可欠と考えられるので、高温安定性に優れているアルミノシリケート系の触媒に絞って検討した。表2のような触媒を用いて反応を行い、表3の結果を得た。

表 2: 用いた触媒

| 名称 | 組成 | 表面積 / m ² g ⁻¹ | 由来 |
|--|------------------------------|---|--|
| SiO ₂ /Al ₂ O ₃ (アルミナ担持シリカモノレイヤー) | Si 表面密度 9.6 nm ⁻² | 142 | Al ₂ O ₃ 触媒学会参照触媒 JRC-ALO-6 に 593 K で Si(OCH ₃) ₄ を |

| | | | |
|--|------------------------------------|-------|---|
| (10) | | | 蒸着, 773 K で焼成 |
| SiO ₂ /Al ₂ O ₃ (12) [1373] | Si 表面密度 12.1 nm ⁻² | 113 | SiO ₂ /Al ₂ O ₃ (10) を大気中1373 K で 4 h 焼成 |
| SiO ₂ /Al ₂ O ₃ (13) | Si 表面密度 12.8 nm ⁻² | | Al ₂ O ₃ 触媒学会参照触媒 JRC-ALO-6 に 593 K で Si(OCH ₃) ₄ を蒸着, 773 K で焼成 |
| ASA (アモルファスシリカアルミナ)1 | Al ₂ O ₃ wt% | 13360 | 日揮化学N631-L |
| ASA1 [1373] | | 0 | ASA1 を大気中1373 K で 4 h 焼成 |
| ASA2 | Al ₂ O ₃ wt% | 13560 | 触媒学会参照触媒JRC-SAL-2 |
| ASA3 | Al ₂ O ₃ wt% | 26511 | 触媒学会参照触媒JRC-SAH-1 |
| N-USY (NH ₄ NO ₃ 処理USYゼオライト) | | | 東ソー製Na-YをNH ₄ NO ₃ でイオン交換, 水蒸気処理, NH ₄ NO ₃ 水溶液処理 |
| BEA (ゼオライト6) | Si/Al = 13 | | 触媒学会参照触媒JRC-Z-HB25 |
| MoO ₃ /Al ₂ O ₃ | Mo 表面密度 5 nm ⁻² | | 触媒学会参照触媒JRC-ALO-6 に (NH ₄) ₂ Mo ₂ O ₇ を含浸, 773 K で焼成 |

空欄は未測定。

表 3: アルキルナフタレンの反応における反応成績(FID強度を基準とする%), ただし流通時間2-3 hの平均値。

| Run | 触媒 | 転化率 ^{*1} | C16P+C18P 収率 ^{*2} | N+T 収率 ^{*2} | C16P+C18P+N +T 収率 | C16P+C18P 選択率 ^{*4} |
|-----|--|-------------------|----------------------------|----------------------|-------------------|-----------------------------|
| 1 | 無触媒反応 | 0.7 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 |
| 2 | MoO ₃ /Al ₂ O ₃ のみ | 6.1 | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.6 |
| 3 | SiO ₂ /Al ₂ O ₃ (13) のみ | -0.6 | 0.3 | 1.2 | 1.6 | - |
| 4 | SiO ₂ /Al ₂ O ₃ (13)+MoO ₃ /Al ₂ O ₃ | 20.6 | 7.2 | 9.1 | 16.3 | 34.8 |
| 5 | ASA1+MoO ₃ /Al ₂ O ₃ | 32.4 | 7.2 | 14.4 | 21.5 | 22.1 |
| 6 | ASA2+MoO ₃ /Al ₂ O ₃ | 28.2 | 6.5 | 15.3 | 21.8 | 22.9 |
| 7 | ASA3+MoO ₃ /Al ₂ O ₃ | 29.8 | 8.0 | 12.7 | 20.7 | 26.8 |
| 8 | N-USY+MoO ₃ /Al ₂ O ₃ | 33.3 | 16.5 | 16.0 | 32.5 | 49.6 |
| 9 | SiO ₂ /Al ₂ O ₃ (12) [1373]+MoO ₃ /Al ₂ O ₃ | 25.5 | 12.1 | 12.4 | 24.5 | 47.6 |
| 10 | ASA1 [1373]+MoO ₃ /Al ₂ O ₃ | -1.3 | 0.1 | 0.0 | 0.1 | - |
| 11 | SiO ₂ /Al ₂ O ₃ (13)+MoO ₃ /Al ₂ O ₃ ^{*5} | 81.1 | 45.1 | 33.7 | 78.8 | 55.6 |
| 12 | ASA1+MoO ₃ /Al ₂ O ₃ ^{*5} | 83.7 | 25.7 | 27.4 | 53.1 | 30.7 |

*1: 転化率 = $1 - \frac{C16AN\text{回収量} + C18AN\text{回収量}}{C16AN\text{送流量} + C18AN\text{送流量}}$ 。ただしANはアルキルナフタレン。
 *2: 収率=出口組成(原料の炭素分のうち該当する物質に変化した割合を示すので、原料(C16AN 61%, C18AN 39%)から反応(1)が転化率100%まで進行したとするとC16P+C18P収率は63%, N+T収率は37%となるはずである)。ただしはナフタレン, Tはテトラリン, Pはパラフィン。
 *3: C16P, C18P, N, T以外の生成物は、実際にはBA, C1-15AN, C1-15P, また非検出分は1-物質収支で、いずれも軽質炭化水素を示すはずである。
 *4: 選択率 = $\frac{\text{該当物質の収率}}{\text{転化率}}$ 。原料(C16AN 61%, C18AN 39%)から反応(1)のみが進行したとするとC16P+C18P選択率は63%となるはずである。
 *5: $W/F = 21.9 \text{ g-cat min g-an}^{-1}$, WHSV = $2.74 \text{ g-an g-cat}^{-1} \text{ h}^{-1}$ 。

表3のRun 1からは、無触媒反応で入口組成がほぼ再現され、物質収支がほぼ100%となることわかる。Run 2, 3からは水素化脱水素能を持つMoO₃/Al₂O₃のみ、固体酸触媒であるアルミナ担持シリカモノレイヤーのみでは反応が促進されないことがわかる。しかし両触媒を混合したRun 4では原料(C18ANとC16AN)が転化し、主にC16・C18パラフィン(C16PとC18P)とナフタレン(N)・テトラリン(T)が生成した。他の生成物はほとんど見られなかった。この反応は1 MPaの水素中でMoO₃/Al₂O₃の存在下で行っているため、仮にオレフィンが生成したとしてもすぐにパラフィンに水素化されると推測される。またテトラリンはナフタレンから水素化によって生成したと考えられる。したがってこのとき、(1)の脱アルキル化が起きたと考えられる。

固体酸触媒をアモルファスシリカアルミナに置き換えても反応は進行した (Run 5~7). 固体酸触媒がアルミナ担持シリカモノレイヤーの場合には, C16P, C18P, N, Tが生成物のほとんどを占め, 物質収支が高く, また C16P+C18P選択率も高かったのに対し (Run 4), アモルファスシリカアルミナは活性が高いものの物質収支やC16P+C18P選択率が低かった (Run 5~7). アモルファスシリカアルミナでは, この実験では捕集されない軽質パラフィン・オレフィンが多かったものと推測された. この考え方は直接の証拠とは言えない未検出分の存在に依存しているが, 直接的な根拠は(C16P+C18P) / (N+T)比に表れている.

高転化率でもアルミナ担持シリカモノレイヤーの選択性は高く, 触媒量あたりの反応速度は低転化率と同等であった.

固体酸触媒としてゼオライトを用いて $\text{MoO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ が上流, 固体酸触媒のときにはやや反応が進行し, 両者を粒子状で混合するとさらに反応が速くなり, めのう乳鉢でよく混合すると反応速度が高くなることを見出した.

アルミナ担持シリカモノレイヤーは1373 Kで4 h焼成後にも高い活性・選択性を示した (Run 9). 同じ条件でアモルファスシリカアルミナは活性を失った (Run 10).

(4) 密度汎関数理論計算による SiOHAl 基の構造と酸強度の相関

既報で27種のクラスターモデルの計算によって, AlとHを有する酸型ゼオライト (HZ)の安定化構造における E_{des} と図 3に示す a (AlO 距離)の間に相関を見出した. さらに, b と a の間には相関があり, b は結晶構造によってほぼ決まることから, 結晶に由来する力によって AlOHSi が両端から押されるほど酸強度が強められることも推測された. ただしこれらの計算はクラスターモデルによっており, 計算精度も十分ではなく, 酸強度は実測値と近いものの a や b の妥当性は明らかでなかった. 特に b についてはクラスターを切断した影響を議論する必要があった.

そこで本研究ではモデルをMOR, MWW, MFI, BEA, FAU構造の結晶学的に異なる全てのサイト計120種に増やし, 交換相関汎関数としてHCTHを用い, ZPVE補正と周期境界条件を導入して精度を向上させた.

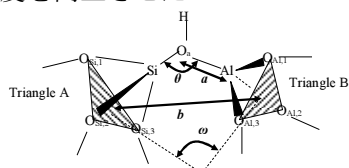


図 3: 用いた幾何学的因子. b は三角形A [$\text{O}_{\text{Si},1}-\text{O}_{\text{Si},2}-\text{O}_{\text{Si},3}$]とB [$\text{O}_{\text{Al},1}-\text{O}_{\text{Al},2}-\text{O}_{\text{Al},3}$]の重心間の距離, ω はこれら三角形間の平面角.

全 SiO_2 組成での b がAl, H導入後のHZの b にも

反映され (図 4), これが a に反映され (図 5), これが NH_4 が特別な配位状態をとらない場合にアンモニア脱離エネルギーを決め (図 6), これがプロパンのプロトン化エネルギーに反映される (図 7) ことがわかった.

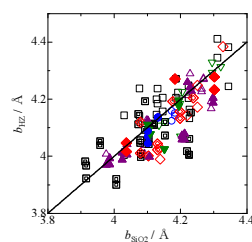


図 4: b_{SiO_2} と b_{HZ} の相関. b_{SiO_2} が小さいほど b_{HZ} が小さいことを示す. 記号は構造の違いを示す. 記号, \circ \bullet : FAU, \triangle \triangleleft \blacktriangle : BEA, \square \square \blacksquare : MFI, \diamond \blacklozenge \blacklozenge : MWW, ∇ \blacktriangledown \blacktriangledown : MOR, Filled symbols: HZでは H^+ が12-ringの壁面・交点に存在, NH_4Z では12-ringで NH_4^+ に特別な立体効果のないもの, $\text{C}_3\text{H}_9\text{Z}$ では12-ringに $\text{H}_3\text{C}-\text{H}^+-\text{CH}_2-\text{CH}_3$ が生成, 関係する因子が全てこの条件を満たすもの, \triangle \square \blacklozenge : HZ, NH_4Z では10-ringで特別な立体効果のないもの, $\text{C}_3\text{H}_9\text{Z}$ では10-ringに $\text{H}_3\text{C}-\text{H}^+-\text{CH}_2-\text{CH}_3$ が生成, 白抜き: 上記以外の, 特別な立体効果が予想されるもの.

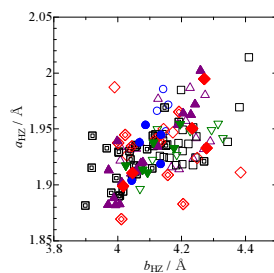


図 5: b_{HZ} と a_{HZ} の相関. b_{HZ} が小さいほど a_{HZ} が小さいことを示す.

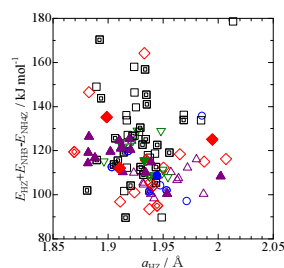


図 6: a_{HZ} とアンモニア脱離エネルギーの相関. Filled symbolsに限っては, a_{HZ} が小さいほどアンモニア脱離エネルギーが大きい傾向がある.

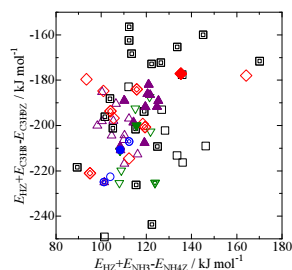


図 7: アンモニア脱離エネルギーとプロパンのプロトン化エネルギーの相関. Filled symbolsに限っては, アンモニア脱離エネルギーが大きいほどプロパンのプロトン化エネルギーが正に大きい(負に小さい)傾向がある.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

①片田直伸, 触媒化学から見た芳香族とパラフィンの分離, ペトロテック, 査読無, Vol. 37, 2014, pp. 266-270

DOI: なし

②Miki Niwa, Naonobu Katada, New Method for the Temperature-Programmed Desorption (TPD) of Ammonia Experiment for Characterization of Zeolite Acidity: Review, Chem. Rec., 査読有, Vol. 13, 2013, pp. 432-435

DOI: 10.1002/tcr.201300009

③Naonobu Katada, Hiroyasu Tamagawa, Miki Niwa, Number and Brønsted Acid Strength of Bridging OH Groups with Different Stretching Frequencies in Zeolite β Analyzed by Ammonia IRMS-TPD Measurement and DFT Calculations, Catal. Today, 査読有, Vol. 226, 2014, pp. 37-46

DOI: 10.1016/j.cattod.2013.08.006

④ Miki Niwa, Katsuki Suzuki, Nami Morishita, German Sastre, Kazu Okumura, Naonobu Katada, Dependence of Cracking Activity upon the Brønsted Acidity of Y Zeolite: DFT Study and Experimental Confirmation, Catal. Sci. Tech., 査読有, Vol. 3, 2013, pp. 1919-1927

DOI: 10.1039/C3CY00195D

⑤Miki Niwa, Satoko Sota, Naonobu Katada, Strong Brønsted Acid Site in HZSM-5 Created by Mild Steaming, Catal. Today, 査読有, Vol. 185, 2012, pp. 17-24

DOI: 10.1016/j.cattod.2011.09.028

⑥ Miki Niwa, Nami Morishita, Hiroyasu Tamagawa, Naonobu Katada, HZSM-5 Treated with Ammonia and Water Vapor; Characterization and Cracking Activity, Catal. Today, 査読有, Vol. 198, 2012, pp. 12-18

DOI: 10.1016/j.cattod.2012.03.077

[学会発表] (計 30 件)

①Naonobu Katada, Prediction of Brønsted Acid Strength of Zeolite from Framework Structure, TOCAT7, 2014/6/2, 京都テルサ

② Daisuke Mitsuyoshi, Misaki Kosaka,

Naonobu Katada, Yasuyoshi Araki, Control of Deactivation of $\text{SiO}_2/\text{ZSM-5}$ Catalyst for Toluene Disproportionation into para-Xylene by Feeding Hydrogen, TOCAT7, 2014/6/2, 京都テルサ

③ Naoki Uozumi, Taku Matsuoka, Naonobu Katada, Generation of Catalytic Activity for Dealkylation of Alkyl-naphthalene by Mixing $\text{MoO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ and Solid Acid, TOCAT7, 2014/6/2, 京都テルサ

④片田直伸, ゼオライトの骨格構造からのブレンステッド酸強度の予測, 第113回触媒討論会, 2014/3/27, ロワジュールホテル豊橋

⑤片田直伸, 必要な物質だけを選択的に製造する: 本当の分子形状選択性を持つ触媒, 資源研講演会(招待講演), 2014/1/16, 東京工業大学資源化学研究所

⑥金井和輝, 片田直伸, 酸・アンモニウム塩水溶液で処理した超安定化Yゼオライト中のAl種と酸点の定量, 第29回ゼオライト研究発表会, 2013/11/18, 東北大学片平さくらホール

⑦松岡卓, 魚住尚生, 片田直伸, 固体酸触媒と水素化触媒の共存による水素中でのアルキルナフタレンの脱アルキル化, 第43回石油・石油化学討論会, 2013/11/14, 北九州国際会議場

⑧Naonobu Katada, Takuya Nakagawa, Miki Niwa, Yasuyoshi Araki, Chemical Vapor Deposition of Silica on MFI Zeolite for Shape-Selective Disproportionation of Toluene into para-Xylene, APCAT-6, 2013/10/14, Taipei International Convention Center

⑨魚住尚生, 片田直伸, 松岡卓, 水素, $\text{MoO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ と固体酸触媒の共存下でのアルキルナフタレンの分解, 第112回触媒討論会, 2013/9/20, 秋田大学手形キャンパス

⑩片田直伸, 中川拓弥, 荒木泰博, ZSM-5ゼオライト外表面へのテトラメトキシシラン蒸着によるトルエン不均化に対する触媒活性と選択性の変化, 第112回触媒討論会, 2013/9/20, 秋田大学手形キャンパス

⑪ Naonobu Katada, Satoko Sota, Kazu Okumura, Miki Niwa, Activation Energies and Pre-exponential Factors of C3 to C8 Alkane Conversion over Various Zeolites and Non-zeolitic Solid Acids, 17IZC, 2013/7/7-2013/7/13, Moscow, Best Western Vega Hotel

⑫ Kazu Nakai, Yoshikazu Senga, Tatsuya Torikai, Naonobu Katada, Miki Niwa, Development of Fully-automatic Ammonia IRMS-TPD Analyzer, 17IZC, 2013/7/9, Moscow, Best Western Vega Hotel

⑬ Kazu Nakai, Yoshikazu Senga, Tatsuya,

Torikai, Naonobu Katada, Miki Niwa, Development of Fully-automatic Ammonia IRMS-TPD Analyzer, The 14th Japan-Korea Symposium on Catalysis, 2013/7/3, Winc Aichi

⑭ 片田直伸, USYとZSM-5の触媒活性はなぜ高いのか, ゼオライトフォーラム(招待講演), 2013/6/26, 早稲田大学国剂会議場

⑮ Tatsuya Torikai, Yoshikazu Senga, Kazuyuki Nakai, Naonobu Katada, Development of Fully-automatic Ammonia IRMS-TPD Analyzer, ABC-7, 2013/5/15, TKP Garden City Shinagawa

⑯ Naonobu Katada, Acid Strength of Al(OH)Si Unit in Aluminosilicate, ABC-7 (招待講演), 2013/5/14, TKP Garden City Shinagawa

⑰ Taku Matsuoka, Naonobu Katada, Cracking of Alkyl naphthalene in the Co-presence of Solid Acid Catalyst and MoO₃/Al₂O₃, ABC-7, 2013/5/13, TKP Garden City Shinagawa

⑱ Naonobu Katada, Crystallographic Position and Strength of Acidic Al(OH)Si Groups in MFI Framework: an Explanation from Density Functional Theory, Joint Workshop on Characterization of Heterogeneous Catalysts between National University of Singapore and Tottori University (招待講演), 2013/3/29, National University of Singapore

⑲ 片田直伸, アンモニア昇温脱離法, 第2回固体酸触媒の原理と応用に関する小討論会(招待講演), 2013/3/24, 日本ベル本社

⑳ 片田直伸, 塩基性金属酸化物表面の酸性酸化モノレイヤーの酸性質, Cat-on-cat新規表面反応研究センターシンポジウム2012(招待講演), 2012/12/8, 兵庫県立先端科学技術支援センター

㉑ 片田直伸, 竹下和徳, 宮園友利江, 高橋慶, 谷口僚, 丹羽幹, 荒木泰博, シリカ蒸着ZSM-5ゼオライトを触媒とするトルエン不均化によるパラキシレンの選択的製造, 第42回石油・石油化学討論会, 2012/10/12, 秋田キャッスルホテル

㉒ 片田直伸, 玉川博康, 丹羽幹, BEAゼオライトの酸強度分布のアンモニア昇温脱離測定および密度汎関数理論計算による解析, 第110回触媒討論会, 2012/9/24, 九州大学伊都キャンパス

㉓ 魚住尚生, 片田直伸, アンモニアIRMS-TPD法によるアルミナ担持シリカ薄層上のブレンステッド・ルイス酸点の定量, 第110回触媒討論会, 2012/9/24, 九州大学伊都キャンパス

㉔ 片田直伸, 酸性質による触媒活性の整理, 第33回参照触媒討論会, 2012/9/23, 九州大学西新プラザ

㉕ Kazu Okumura, Takashi Sanada, Nami

Morishita, Naonobu Katada, Miki Niwa, Evolution of Strong Acidity in Ammonium-treated USY Zeolites and Correlation between Acid Strength and the Activation Energy of Alkane Cracking in Y-type Zeolites, ZMPC2012, 2012/7/31, Aster Plaza, Hiroshima

㉖ Jota Ohyama, Kazu Okumura, Naonobu Katada, Generation of nanoparticles of Y-type zeolites during treatment of USY zeolites with an aqueous solution of ammonium nitrate, ZMPC2012, 2012/7/31, Aster Plaza, Hiroshima

㉗ Satoko Sota, Nami Morishita, Kazu Okumura, Miki Niwa, Naonobu Katada, Relationship among Brønsted Acid Strength, Activation Energy and Pre-exponential Factor for Cracking of Linear Alkanes on Zeolitic and Non-zeolitic Solid Acid Catalysts, ZMPC2012, 2012/7/29, Aster Plaza, Hiroshima

㉘ Naonobu Katada, Satoko Sota, Nami Morishita, Hiroyuki Ikeda, Miki Niwa, Acid Strength Distribution of Zeolite: Calculation from TPD Spectrum and Interpretation, ZMPC2012, 2012/7/29, Aster Plaza, Hiroshima

㉙ Miki Niwa, Katsuki Suzuki, German Sastre, Kazu Okumura, Naonobu Katada, Dependence of the Cracking Activity upon the Solid Acidity of Zeolite, 15th International Congress on Catalysis 2012, 2012/7/5, International Congress Center Munich

㉚ 奥村和, 富山卓哉, 森下奈実, 片田直伸, 丹羽幹, アンモニウム塩水溶液処理によるUSYゼオライトでの強酸点の発現およびY型ゼオライトのクラッキング活性と酸強度の相関, 第109回触媒討論会, 2012/3/29, 東京工業大学大岡山キャンパス

6. 研究組織

(1) 研究代表者

片田 直伸 (KATADA, Naonobu)
鳥取大学・工学研究科・教授
研究者番号: 00243379

(2) 研究分担者

奥村 和 (OKUMURA, Kazu)
鳥取大学・工学研究科・准教授
研究者番号: 30294341

(3) 連携研究者

小倉 賢 (OGURA, Masaru)
東京大学・生産技術研究所・准教授
研究者番号: 50298155