



燃料中に含まれるジベンゾチオフェン誘導体の
紫外線を用いた効率的な脱硫法の開発
Efficient desulfurization for dibenzothiophene derivatives
in fuel using ultraviolet light

篠崎 貴旭, 末永 正彦, 高 ヨハン, 山本 英治, 村山 美乃, 徳永 信 (九大院理)

原油からの液体燃料の精製には、不純物として含まれる数%の有機硫黄化合物を 10 mg/L 以下にまで低減する水素化脱硫が必要である。しかし、水素化脱硫の過程においてジベンゾチオフェン類 (DBT 類) などの芳香族硫黄化合物は、難脱硫性物質として知られており、立体障害などの観点からアルキル基の置換基を多く有する DBT 類ほど脱硫率が低下するとされている¹⁾。よって、これらの化合物を含む効率的な脱硫法の開発が求められている。本研究では、従来よりも温和な条件下での脱硫法の開発をおこなった。

DBT 類を 0.54 mmol/L になるように調製したサンプルをそれぞれ用意し、各二面石英セルに 3 mL 加え、紫外線照射を行った。光源には、ハンディー UV ランプ (8 W, 254 nm) を用いた。溶液中の DBT 類の分解率は、ガスクロマトグラフィーで分析し、初濃度との差から算出した。得られた沈殿物は高速液体クロマトグラフィー (HPLC) および大気圧固体分析プローブ質量分析計 (ASAP-MS) で分析した。また、紫外線照射後の溶液はガスクロマトグラフ質量分析計 (GC-MS) で分析した。

室温および空気条件下で DBT 類に紫外線を照射したところ、4,6-ジメチルジベンゾチオフェンの分解率は 14 時間で 100% に達し、DBT, 4-メチルジベンゾチオフェンの分解率は 16 時間で 100% となり、置換基を多く有する DBT 類の分解が速い結果となった。この傾向は、アルキル基の置換によって脱硫率が大幅に低下する水素化脱硫法とは大きく異なる結果となった。また、分解するに伴って黄色の沈殿物が析出した。この沈殿物を濾別し、HPLC 及び ASAP-MS で分析を行った。その結果、析出した沈殿物は硫黄の同素体 (S_n) であることが明らかとなった。次に、重水素化された DBT- d_8 を用いて、DBT 類の硫黄分が脱離後の炭化水素部分の分解物の同定を行った。紫外線照射後の溶液を、GC-MS で分析したところ、ベンゼン- d_4 が検出された (Figure)。これらの結果から、従来よりも温和な条件下 (室温, 大気圧, 無触媒, 添加剤フリー) で DBT 類を分解することができ、DBT 類中の硫黄分は硫黄の同素体 (S_n) として、炭化水素部分の一部をベンゼンとして検出することに初めて成功した²⁾。

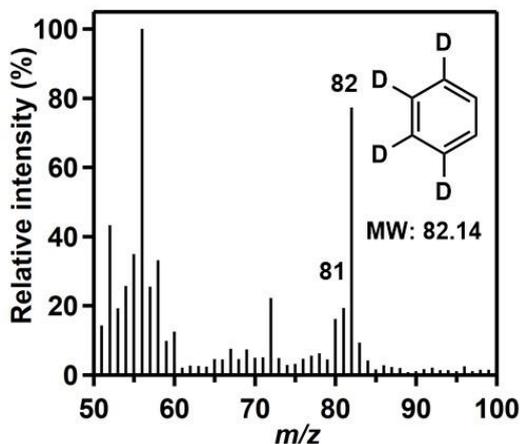


Figure : Mass spectrum of a DBT- d_8 solution after UV irradiation.

<参考文献>

- 1) D. R. Kilanowski, H. Teeuwen, V. H. J. D. Beer, B. C. Gates, G. C. A. Schuit, H. Kwart, *J. Catal.* **1978**, *55*, 129-137.
- 2) T. Shinozaki, M. Suenaga, Y. Ko, E. Yamamoto, H. Murayama, M. Tokunaga, Submitted.

発表者紹介

氏名 篠崎 貴旭 (しのざき たかあき)
所属 九州大学大学院理学府化学専攻
学年 博士後期課程 3 年
研究室 触媒有機化学研究室

