

メタン転換反応に活性を示す担持触媒の構造解析

荻原 仁志, 友野 樹 埼玉大学

キーワード:メタン転換、担持 Pt 触媒

1. 背景と研究目的

石油に代わる化石資源として天然ガス(主成分はメタン)の利活用が注目されている。しかしメタンは分子の対称性が高く,極めて強固な C-H 結合を有しているため,メタンを化成品に直接転換するプロセスは未だ達成されていない。そこでメタンを基礎化学品(低級オレフィンや芳香族類)に直接転換するための触媒プロセスの研究が盛んに行われている。我々の研究グループでは,担持 Pt 触媒がメタンのカップリングに活性を示すことを見出している。また Pt 触媒を用いたメタンカップリング反応では,Pt 担持量がカップリング生成物(主に C2 炭化水素)の生成に大きな影響を与えることも明らかにしている。そこで本研究では担持量の異なる担持 Pt 触媒を調製し,X 線吸収スペクトルにより構造解析を行った。さらに反応前後の触媒の構造変化も解析した。

2. 実験内容

Pt 前駆体として H_2PtCl_6 を用いて,含浸法により担持 Pt 触媒を調製した。触媒を 500 で空気焼成した後に,水素流通下,600 で空気焼成した。メタンカップリング反応は常圧固定床流通式反応器で行った。これら反応前後の触媒をペレットに成型して,あいちシンクロトロン光センター BL5S1 にて透過法で XAFS 測定を行った。

3. 結果および考察

Pt 担持量の異なる担持 Pt 触媒を用いてメタンカップリング 反応を行ったところ、Pt 担持量が低いほど低級炭化水素の選 択率が高くなる傾向を示した。低担持量の触媒ではエタンや エチレンなどのカップリング生成物が優先的に生成したのに 対して、高担持量の触媒では炭素析出が優先的となりカップリングが起こりにくかった。そこで Pt 担持量とメタンカップリング反応の関係を明らかにするため、1,3,5,10wt% Pt 触媒の XAFS 測定を行った。その XANES を Fig.1 に示す。ホワイトライン強度を比較すると、Pt 担持量が高くなるほど、Pt は metalic な性質を示すことがわかる。つまり、酸化物担体上で高分散に存在して、酸化物担体と強く相互作用する Pt 種がメタンのカップリングに活性を示すことが示唆された。また高活性な Pt 触媒については反応前後で XANES の変化がみられなかったことから、メタンカップリング反応において Pt 触媒の構造が維持されることが明らかとなった。

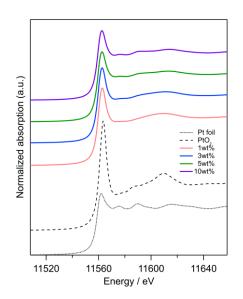


Fig. 1 XANES of supported Pt catalysts (1, 3, 5, and 10wt%).

4. 参考文献

なし