



メタン脱水素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, 渡島大聖
埼玉大学

キーワード：メタン転換, 担持触媒

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の利活用が注目されている。天然ガスの主成分はメタンであるが、メタンは極めて強固な C-H 結合を有しており、メタンの基礎化学品への転換は高難度プロセスとして知られる。我々の研究グループでは、メタンから C2 炭化水素へのカップリング反応に対して担持 Pt 触媒が活性を示すことを見出した。本研究に先立って実施した X 線吸収スペクトル測定（実験番号 2022D2006）により、Pt 担持量が Pt 種の構造に影響を与え、その結果として、メタン活性化能と Pt 担持量に相関があることが示唆された。そこで本研究では担持 Pt 触媒のさらなる構造解析を目的として、メタンカップリング反応前/後の触媒の X 線吸収スペクトルを測定した。

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°C で空気焼成した後に、水素流通下、 600°C で触媒を還元した。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 BL5S1 にて透過法で XAFS 測定を行った。

3. 結果および考察

担持 Pt 触媒は適切な反応条件下において、24 h 以上にわたり安定的にメタンを C2 炭化水素へと転換する。反応時における Pt 種の構造を明らかにするために、Pt 触媒の反応前/後の XAFS 測定を行った。

その XANES を Fig. 1 に示す。Pt 触媒反応前/後の XANES では大きな変化は見られなかった。ホワイトライン強度はいずれも Pt foil より高いことから、Pt が酸化された状態で担持されていることがわかる。これは本測定が ex-situ 測定であるために、Pt ナノ粒子表面の一部が酸化された状態を反映していると推測している。

EXAFS スペクトルの解析を行ったところ、反応後に Pt-Pt 結合の配位数の減少が示唆された。別途測定した高分解能 TEM 像から、反応後の触媒では Pt ナノ粒子が微細化している様子が観測された。メタン反応中に Pt 粒子の構造変化が起きたと考えられる。このような Pt ナノ粒子の微細化が Pt-Pt 結合の配位数減少に関係していると考えており、今後、さらなる解析を進める。

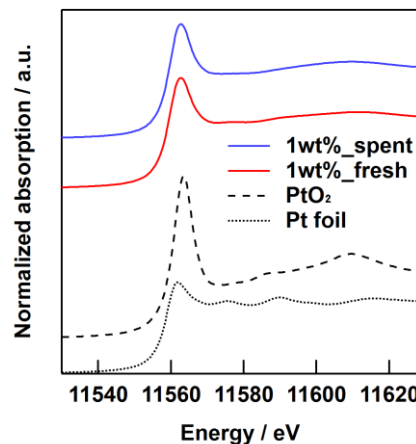


Fig. 1 XANES of supported Pt catalysts (Pt loading: 1 wt%) before and after methane dehydrogenative coupling reaction.

4. 参考文献

なし