

メカノケミカル法による Ga 含有ゼオライトの合成とメタン改質反応用触媒としての応用

(1. 東北大学、2. 東工大) ○道信 亮真¹・大須賀 遼太¹・二宮 翔¹・藪下 瑞帆¹・真木 祥千子¹・西堀 麻衣子¹・蟹江 澄志¹・横井 俊之²・村松 淳司¹

Synthesis of Ga-containing zeolites through mechanochemical method and their catalysis for oxidative reforming of methane (¹Tohoku Univ., ²Tokyo Tech) ○Ryoma Michinobu,¹ Ryota Osuga,¹ Kakeru Ninomiya,¹ Mizuho Yabushita,¹ Sachiko Maki,¹ Maiko Nishibori,¹ Kiyoshi Kanie,¹ Toshiyuki Yokoi,² Atsushi Muramatsu¹

The improvement of catalysts, much more efficiently producing syngas (CO and H₂) from methane, the main component of natural gas, through oxidative reforming, has been extensively studied by many researchers. Zeolites, porous crystalline materials, are one of the candidates for promising the catalysts. We have previously found that Ga-containing MFI-type zeolites synthesized by a "mechanochemical method" ([Ga]-MFI_{MC}) exhibited high CO selectivity. On the other hand, the effects of the zeolite topology and the local structure of Ga species on the catalytic activity have not been well understood. In this study, we, therefore, compared catalytic activity and local structure of Ga species between [Ga]-MFI_{MC} and [Ga]-MWW_{MC}. The catalytic performance in the oxidative reforming of methane over both zeolites are shown in Figure 1, where [Ga]-MFI_{MC} exhibited about 40% selectivity to CO, while for the [Ga]-MWW_{MC} CO formation was negligible. These results suggest the superiority of the MFI-type structure in this reaction. In the presentation, the local structure of Ga species will be discussed based on the detailed characterization.

Keywords : Zeolite; Mechanochemical method; Metallosilicate; Oxidative reforming of methane

天然ガスの主成分であるメタンの酸化的改質により、合成ガス (CO および H₂) を効率的に製造するための触媒開発は、盛んに研究されている。その中でも、多孔質結晶性材料であるゼオライトは、優れた触媒材料候補の 1 つである。先行研究において、我々は、「メカノケミカル法」によって合成した Ga 含有 MFI 型ゼオライト ([Ga]-MFI_{MC}) が高い CO 選択性を示すことを見出した¹⁾。一方で、ゼオライト骨格構造や Ga 種の局所構造が触媒反応活性に及ぼす影響については、未解明な点が多い。そこで本研究では、メカノケミカル法により、Si/Ga モル比が 50 程度の [Ga]-MFI_{MC} および Ga 含有 MWW 型 ([Ga]-MWW_{MC}) ゼオライトを合成し、触媒活性や Ga 種の局所構造を比較した。[Ga]-MFI_{MC} では、約 40% の CO 選択性を示したのに対し、[Ga]-MWW_{MC} では、ほとんど CO が生成しなかった (Figure 1)。このことから、本反応における MFI 型構造の優位性が示唆された。発表では、詳細なキャラクター化を基に考察した Ga 種の局所構造についても報告する。

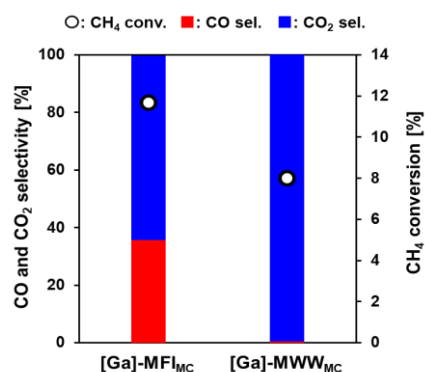


Figure 1. Catalytic performance in oxidative reforming of methane over both zeolites at 750 °C.

- 1) M. Yabushita, M. Yoshida, F. Muto, M Horie, Y. Kunitake, T. Nishitoba, S. Maki, K. Kanie, T. Yokoi, A. Muramatsu, *Mol. Catal.* **2019**, 478, 110579.