

ZSM-5 ゼオライトの骨格 Al 分布が MTO 反応過程に与える影響の実験的観測

(東大生研^{*1}, 静大院工^{*2})

○茂木堯彦^{*1,*2}、Ma Jing^{*1}、日高海^{*1}、小倉賢^{*1}

1. 研究背景

ゼオライトと呼ばれる結晶性多孔質アルミノケイ酸塩は、ナノ細孔と特異な固体酸性を有しており、触媒として利用されています。特に、メタノールからオレフィンを合成する反応 (Methanol-to-Olefins Reaction : MTO 反応) では、エチレンやプロピレンといった工業的に重要な基礎化合物を石油代替資源から合成可能であり¹⁾、注目を集めています。反応機構解明の中で、ユニークな反応中間体を有することが見出されてきました²⁾。この反応中間体は細孔ナノ空間によって閉じ込められているため、反応空間の形状が異なれば反応中間体の構造も異なるであろうと考えられています³⁾。一般に広く利用される ZSM-5 ゼオライトには、トンネル型の細孔空間とそれらが交差する部分である細孔交点空間とがあり、どちらが反応場とするか制御することにより、反応中間体種や生成物分布が制御可能であると考えられます。しかしながら、構造のパラメータ (反応点の分布) と触媒の性能 (反応中間体やメカニズム) の構造性能相関を実験的に直接示すことはこれまで非常に困難でした。

2. 研究内容

我々の研究では、定常反応中に反応物を同位体で標識されたものへとスイッチングすることで生成物への同位体の取り込み過程を観測する手法 (SSITKA) を用いて、MTO 反応の解析を行いました²⁾。

反応点となる Al の分布が異なる 2 種類の ZSM-5 触媒を調製しました。しかしこれらを用

いた MTO 反応では、ほぼ同等と言える生成物分布が得られました。MTO 反応は非常に複雑な反応であるため、構造性能相関が綺麗に発現しないことは多々あります。我々が用いた SSITKA では、Al 分布が異なる ZSM-5 触媒を用いた MTO 反応において、生成物オレフィンへの同位体炭素の取り込み過程が異なることが実験的に示されました (図 1)。これは反応中間体が構造物性によって制御されていることを強く示唆しています。

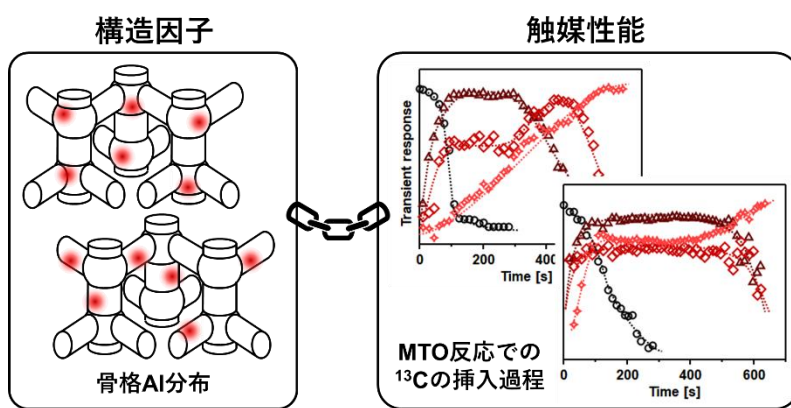


図 1. ゼオライト構造因子と MTO 反応性能との相関

文献

- 1) P. Tian, Y. Wei, M. Ye, Z. Liu, *ACS Catal.*, 5, 1922 (2015)
- 2) J. Ma, K. Hidaka, M. Ogura, T. Moteki, *Cryst. Growth Des.*, 23, 8499 (2023)