

研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		化石資源高効率利用を指向した合成ガスからの低級オレフィン直接合成用触媒の開発			
研究テーマ (欧文) AZ		Development of catalyst for direct synthesis of lighter olefins from syngas for the purpose of efficient utilization of fossil resources			
研究氏 代表名 者	カナ CC	姓) タゴ	名) テルオキ	研究期間 B	2015 ~ 2016 年
	漢字 CB	多湖	輝興	報告年度 YR	2016 年
	ローマ字 CZ	TAGO	TERUOKI	研究機関名	東京工業大学
研究代表者 CD 所属機関・職名		多湖輝興 東京工業大学物質理工学院応用化学系・教授			
概要 EA (600字~800字程度にまとめてください。)					
<p>含浸法やイオン交換法で調製した従来の金属担持ゼオライト触媒では、</p> <p>1)高温場で金属微粒子が焼結する</p> <p>2)ゼオライトの分子篩能が金属成分へ機能しない</p> <p>などの問題点がある。この解決策として、当研究室では金属超微粒子がゼオライトに物理的に内包された構造を有する Birdcage 型触媒の開発を検討している。本研究ではゼオライト種として MFI 型ゼオライトを採り上げ、同ゼオライトに内包させる金属成分にロジウム(Rh), もしくは白金(Pt)を検討した。先ず、金属超微粒子の熱安定性の評価を行った。そして、同 Birdcage 型ゼオライトが有する金属触媒の機能と固体酸性の発現を実証すると共に、同触媒による低級オレフィン合成を実施した。</p> <p>油中水滴型マイクロエマルジョン中で、各金属の超微粒子を調製した後、同超微粒子を核としてゼオライトを生成させることにより、金属超微粒子がゼオライト内に高分散担持された Birdcage 型ゼオライトの開発に成功した。Birdcage 型ゼオライトでは、金属担持量と酸点量の独立制御が可能である。</p> <p>ゼオライト種 : MFI 型ゼオライト(ZSM-5)の Si/Al=80~200</p> <p>金属超微粒子: Pt 担持量は 0.1~0.3wt%, Rh 担持量は 0.1~1wt% (金属超微粒子サイズは約 2~3nm)</p> <p>上記の範囲で酸量と金属担持量を独立に制御可能である。</p> <p>調製した Birdcage 型ゼオライトに対し 650°Cの熱処理による熱安定性を評価したところ、2~3 nm の金属超微粒子のみ観察され、高い熱安定性を示した。次に、Rh 担持量の異なる Birdcage 型ゼオライトを調製し、オレフィン合成を実施した。反応原料にはメタノールを用いた。その際、金属超微粒子の触媒機能(メタノール改質による水素生成)とゼオライトに由来する固体酸触媒機能(メタノールからのオレフィン合成)が並列して進行した。Rh 担持量により生成物収率は変化し、C4 以下の低級オレフィン最大収率は約 60%達することを明らかにした。</p>					
キーワード FA	ゼオライト	金属超微粒子	オレフィン	バードケージ型	

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA								
研究機関番号 AC					シート番号								

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）									
雑誌	論文標題 ^{GB}	Methanol conversion reaction over MFI ferroaluminosilicate nano crystal							
	著者名 ^{GA}	T. Taniguchi, K. Yoneta, S. Nakaoka, Y. Nakasaka, T. Yokoi, T. Tago, T. Masuda	雑誌名 ^{GC}	Catalysis Letters					
	ページ ^{GF}	442~451	発行年 ^{GE}	2	0	1	6	巻号 ^{GD}	146
雑誌	論文標題 ^{GB}								
	著者名 ^{GA}		雑誌名 ^{GC}						
	ページ ^{GF}	~	発行年 ^{GE}					巻号 ^{GD}	
雑誌	論文標題 ^{GB}								
	著者名 ^{GA}		雑誌名 ^{GC}						
	ページ ^{GF}	~	発行年 ^{GE}					巻号 ^{GD}	
図書	著者名 ^{HA}								
	書名 ^{HC}								
	出版者 ^{HB}		発行年 ^{HD}					総ページ ^{HE}	
図書	著者名 ^{HA}								
	書名 ^{HC}								
	出版者 ^{HB}		発行年 ^{HD}					総ページ ^{HE}	

欧文概要 EZ

With conventional metal-supported zeolite catalysts prepared by impregnation method or ion exchange method, metal fine particles are sintered in a high temperature field, and the molecular sieving ability of zeolite does not function on metal components. As a solution to these problems, we are focusing on a Birdcage type catalyst, and developed a catalyst (Rh@Silicalite-1) having a structure in which rhodium (Rh) nanoparticles are physically included in silicalite-1 (MFI type zeolite). In this research, we aim to develop Birdcage type zeolite using platinum (Pt) or rhodium (Rh) for the metal component and ZSM-5 for zeolite (Pt@ZSM-5 and Rh@ZSM-5).

By applying micro-emulsion method, we successfully synthesized Birdcage type catalyst in which Pt or Rh are taken as metal ultrafine particles of about 2-3 nm. Pt@Silicalite-1 having a Pt loading amount of 0.1 wt% was subjected to a heat treatment at 650 °C to evaluate thermal stability. It was revealed that TEM observation showed ultrafine particles of 2 to 3 nm, showing high thermal stability.

With Birdcage type zeolite, it is possible to independently control metal loading amount and acid point amount. Therefore, it is considered that the catalyst can be applied to various reactions utilizing the molecular sieve ability, the metal catalyst ability, and the solid acid performance. We evaluated the property of Rh@ZSM-5, and tried to apply to Methanol to Olefin (MTO) reaction, and the reaction activity was compared with ZSM-5 having the same Si / Al ratio. It was revealed that methanol reforming reaction to produce hydrogen proceeded in parallel with MTO reaction in Rh@ZSM-5. The olefin selectivity of carbon number 4 or less is about 60 % using Rh@ZSM-5, which was higher than that in ZSM-5 (52%). The high selectivity of lighter olefins in Rh@ZSM-5 was ascribed to the simultaneous production of hydrogen, leading to the suppression of aromatic formation and coke deposition.