

Mo/H-MFI 触媒によるメタン芳香族化高活性への反応圧・共存水素分圧効果

(埼玉工業大) 三田 裕也・小菅 愛理・園部 裕也・倉持 健太・○有谷 博文

Effect of reaction pressure and hydrogen partial pressure for high methane aromatization reactivity over Mo/H-MFI catalysts (*Saitama Institute of Technology*) Yuya Mita, Airi Kosuge, Yuya Sonobe, Kenta Kuramochi, ○Hirofumi Aritrani

Catalytic methane aromatization over Mo/H-MFI (Si/Al₂=23-80) catalyst at 750°C showed high activity at high pressures under reaction pressures below 0.2 MPa, and also showed a suppression effect on deactivation with increasing a partial pressure of H₂ co-feed (0-5%). The profiles temperature-programmed oxidation over each catalyst after the reaction showed a relation between the initial reaction activity and the amount of deposited carbon, regardless of the reaction pressure. It is proposed that the suppression effect of carbon deposition due to increasing coexisting hydrogen partial pressure.

Keywords : Methane dehydroaromatization; Mo/H-MFI catalyst; Temperature-programmed oxidation; Hydrogen co-feed

メタン脱水素芳香族化(MTB 反応)は重要な直接 GTL プロセスであるが、炭素析出による経時失活が不可避であり、その抑制策が高活性化と同時に求められる。本研究では、失活抑制として担体酸強度抑制や反応時 H₂ 微量添加等を反応活性の圧力依存性とともに検討し、失活抑制に有効な条件と形成活性種との関連性を検討した。Mo(5wt%)/H-MFI 触媒は H-MFI (Si/Al₂=23-80)に MoO₂(acac)₂ 非水含浸後乾燥、600°C 焼成し得た。活性は CO(2%)+Ar 前還元処理後、CH₄(20%)+ H₂(0-5%)+Ar(Base)を反応ガスとし各圧力下での 750 定温反応から評価した。その結果、常圧(0.1 MPa)反応時は H-MFI 担体の低 Si/Al₂ 比で高活性傾向であったのに対し、0.2 MPa までの高圧側反応ではいずれの担体組成比でも顕著な MTB 高活性を示し、とくに H₂(2%)共存反応では Mo/H-MFI(Si/Al₂=50)での失活抑制効果が最も顕著であった。反応後触媒の TPO より、反応時の圧力によらず反応初期活性と析出炭素量との関係が見られ、2% までの共存 H₂ 分圧の増大による炭素析出抑制効果が反応圧に依存せず認められた。一方、過剰の H₂ 添加は高活性に寄与しないこと、および反応後に形成される Mo₂C 活性種は高活性時にβ-Mo₂C が共存した炭化還元種となることが推定された。

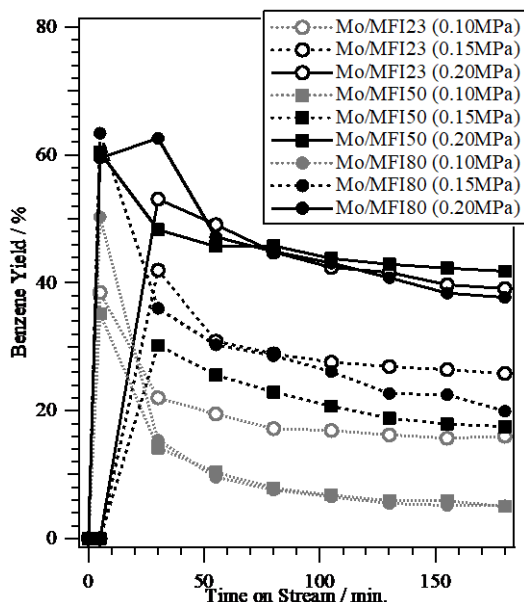


Fig. 1 Catalytic MTB activity over 5wt% Mo/H-MFI (Si/Al₂=23-80) at 1023 K under 0.1-0.2 MPa.