

プロパン光酸化反応に活性な担持 Mo 酸化物触媒の XAFS による構造解析

(千葉大院工) ○中尾佑馬, 一國伸之, 原孝佳, 島津省吾

【緒言】Mo 酸化物種を高分散に担持すると光触媒能を有することが知られている。これをプロパン光酸化反応に応用したところ、担体によりアセトン生成選択性に大きな違いがあることがわかった。活性の差異を生じる Mo 局所構造について XAFS を用いて明らかにした。

【実験】担体に、細孔の無いシリカ (SiO₂)、アルミナ (Al₂O₃)、メソ細孔を持つシリカ (MCM-41)、アルミナ (meso-Al) を用い、Mo を 3 wt% で担持した。Mo K-edge XAFS はセルに封じ切ったものを PF-AR NW-10A にて透過法で測定した。

【結果と考察】各触媒を用いプロパン光酸化反応を行なったところ、担体にメソ細孔を導入することで活性が向上することを見出した。反応生成物を詳細に検討してみると、シリカ系列の担体を用いたものでは、脱水素生成物であるプロピレンへの選択性が高い結果となり、アルミナ系列の担体を用いた場合には、含酸素化合物のアセトンへの選択性が高い結果となった。

反応性の違いを検討するため XAFS 測定を行なった (Fig.)。アルミナ担体では担持 Mo 種が孤立種として存在していることがわかった。一方、MCM-41 担体では担持 Mo 種は孤立種と架橋種が混在していることが明らかとなった。

EXAFS の解析結果と反応結果を合わせて考察すると、オリゴマー末端の Mo=O からプロピレンが生成しやすく、孤立 Mo 種からアセトンが優先的に生成していることが示唆された。

以上、担体を変えることで Mo の局所構造を変化させ、それによりプロパン光酸化反応選択性を制御できることを明らかにした。

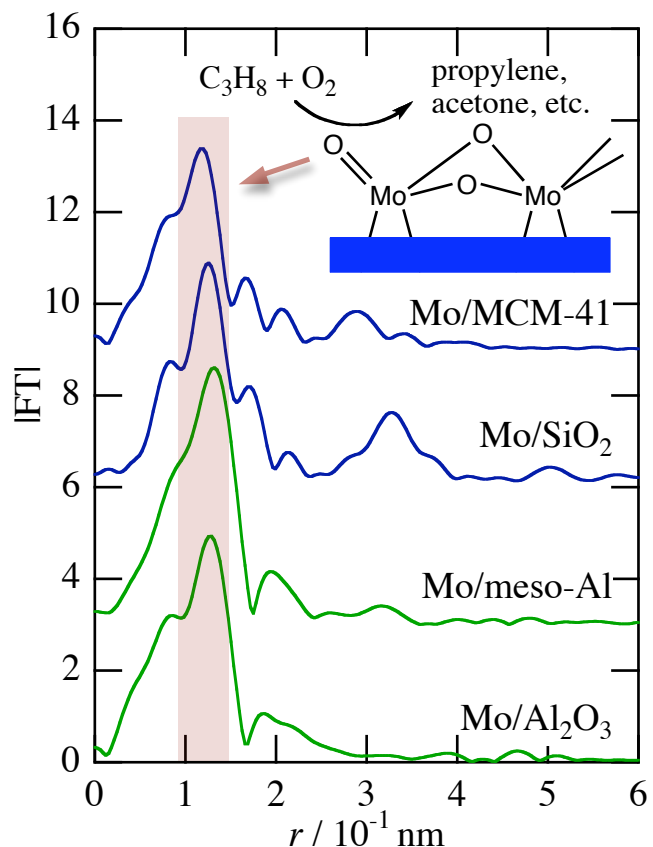


Fig. Fourier transforms of $k^3\chi(k)$ for supported Mo catalysts.