

「超空間制御に基づく高度な特性を有する革新的機能素材等の創製」  
平成 26 年度採択研究代表者

H27 年度  
実績報告書

関根 泰

早稲田大学先進理工学研究科  
教授

超空間制御触媒による不活性低級アルカンの自在転換

## § 1. 研究実施体制

### (1) 関根グループ

- ① 研究代表者: 関根 泰 (早稲田大学先進理工学研究科、教授)
- ② 研究項目
  - ・電場中でのメタン・エタン転換コアシェル触媒プロセスの開発と確立

### (2) 椿グループ

- ① 主たる共同研究者: 椿 範立 (富山大学大学院理工学研究部(工学)、教授)
- ② 研究項目
  - ・新規高機能カプセル触媒の開発

### (3) 西山グループ

- ① 主たる共同研究者: 西山 憲和 (大阪大学大学院基礎工学研究科、教授)
- ② 研究項目
  - ・コアシェル型ゼオライト構造触媒の開発

### (4) 窪田グループ

- ① 主たる共同研究者: 窪田 好浩 (横浜国立大学大学院工学研究院、教授)
- ② 研究項目
  - ・デュアルファンクション構造体の構築と高性能触媒材料への展開

### (5) 常木グループ

- ① 主たる共同研究者: 常木 英昭 (株式会社日本触媒研究本部、技監)

② 研究項目

- ・低級アルカン変換触媒プロセスの構築

(6) 清水グループ

- ① 主たる共同研究者: 清水 史彦 (三菱化学株式会社経営戦略部門  
RD 戦略室横浜センター、主幹研究員)

② 研究項目

- ・低級アルカンからのプロピレン(誘導品)への直接変換触媒プロセスの開発

(7) 角田グループ

- ① 主たる共同研究者: 角田 隆 (旭化成株式会社触媒技術開発センター、センター長)

② 研究項目

- ・メタン転換電場反応の実証化支援

## § 2. 研究実施の概要

天然ガスの主成分であるメタンを、電場とイオニクスシェル材料のシナジーにより、200 度程度の低温で直接エチレンへと転換することに成功した。Ce-W-O 系酸化物を用いた場合、高い反応性と選択性を安定に示すことがわかった。また、天然ガスを原料とする合成ガスから、FT 合成によって末端オレフィンを選択的に合成できることを念頭に置き、末端オレフィンと合成ガスからのホルミル化反応を研究し、洗剤および合成軽油原料である *n*-長鎖アルデヒド合成触媒を開発した。ナノ構造触媒、ならびに新規炭素材料触媒を開発し、なるべく温和な反応条件下において、副生成物であるインナーオレフィン、パラフィンの生成を抑制し、アルデヒドの選択率をアップさせ、さらにイソ体アルデヒド(*i*)の生成も抑制し、直鎖体のアルデヒド(*n*)の最大化を図った。合成ガスからジメチルエーテル(DME)の一段合成触媒として、メタノール合成触媒をコアにし、酸性ゼオライトをシェルにするカプセル触媒を調製した。CO と CO<sub>2</sub> と水素から直接 DME の合成に成功した。ゼオライト結晶内活性点位置制御を目的とする。ゼオライトの結晶内を多層化し、それぞれの層が異なる活性点を有することで活性点の位置選択的機能を発現させ、逐次反応において、不可逆性を有するこれまでにない高選択的反応を実現できた。また、コアシェル型 ZSM-5/シリカライト構造触媒(下図)を合成し、非石油由来の原料から、ベンゼン、トルエン、パラキシレンを選択的に合成できることを見出した。また、有機シランを Si 源としてリン酸系ゼオライト SAPO-18 の微細構造を制御した。得られたナノシート状 SAPO-18 は、弱酸化が見られ、DTO 反応において触媒寿命が向上し、低級オレフィン収率の増加が達成できた。また、[Ti]-MCM-68 がフェノール酸化反応において基本的に高いパラ選択性を示し、マイクロ孔内へ選択的に Ti を導入することで、さらにパラ選択性を向上させることに成功した。また、この触媒をアルコール系の反応溶媒中で用いると、90 %を超える非常に高いパラ選択率が得られた。

1. K. Sugiura, S. Ogo, K. Iwasaki, T. Yabe, Y. Sekine, Low-temperature catalytic oxidative coupling of methane in an electric field over a Ce-W-O catalyst system, *Scientific Reports*, 6, 25154, 2016.
2. S. Inagaki, Y. Tsuboi, M. Sasaki, K. Mamiya, S. Park, Y. Kubota, Enhancement of para-selectivity in the phenol oxidation with H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> over Ti-MCM-68 zeolite catalyst, *Green Chemistry*, 18, 735-741, 2016.
3. R. Phienluphon, K. Pinkaew, G. Yang, J. Li, Q. Wei, Y. Yoneyama, T. Vitidsant, N. Tsubaki, Designing core (Cu/ZnO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)-shell (SAPO-11) zeolite capsule catalyst with a facile physical way for dimethyl ether direct synthesis from syngas, *Chemical Engineering Journal*, 270, 605-611, 2015

