

「多様な天然炭素資源の活用に資する革新的触媒と創出技術」
平成 27 年度採択研究代表者

H27 年度
実績報告書

山中 一郎

東京工業大学
教授

反応場分離を利用したメタン資源化触媒の創成

§ 1. 研究実施体制

(1)「山中」グループ

- ① 研究代表者:山中 一郎 (東京工業大学 大学院理工学研究科 教授)
- ② 研究項目
 1. In/SiO₂ および NiP/SiO₂ メタン多量化触媒の開発とエチレンの高選択的合成.
 2. In および NiP 触媒の高活性化.
 3. 炭素拡散型金属膜の作製.
 4. 反応場分離型触媒によるメタン多量化反応の開発.
 5. 反応場分離型触媒のモデル活性点の合成と C-H 活性化の検証.

(2)「長谷川」グループ

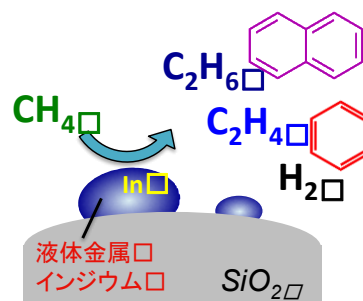
- ① 主たる共同研究者:長谷川 淳也 (北海道大学触媒科学研究所 教授)
- ② 研究項目
 1. 計算化学による新規触媒物質のハイスループット・スクリーニングとインフォマティクス構築.
 2. Operando XAFS による担持金属触媒のその場観察.
 3. 清浄モデル表面での表面ダイナミクス解析:理論と実触媒の橋渡し研究.
 4. 理論化学計算による触媒反応機構解析.
 5. モデル触媒の開発とメタン活性化機構の研究.

§ 2. 研究実施の概要

山中グループでは、前記項目中、1, 3, 5 について研究を実施した。

1. In/SiO₂ および NiP/SiO₂ メタン多量化触媒の開発とエチレンの高選択的合成。

脱水素条件において、In/SiO₂ および NiP/SiO₂ 触媒がメタンの多量化反応に活性を示し、エタン、エチレン、ベンゼン、ナフタレン等が生成することを見出した。1173 K において、転化率 4%、生成物合計の選択率は 70%であった。担体効果も検討した。



3. 炭素拡散型金属膜の作製。

金属鉄および金属ニッケルの薄膜をセラミック管とガラスシールで挟み込み、金属隔膜反応器を作製した。実際に 800°C 以上で、片側にヘリウム、片側にアルゴンを流通させ、両室のガス組成を分析した結果、隔膜として機能することを確認した。

5. 反応場分離型触媒のモデル活性点の合成と C-H 活性化の検証。

In/SiO₂ 触媒によるメタン転換反応の反応中間体モデルであるインジウム金属カーバイド錯体の反応性を調べるため、合成ルートの初歩的検討を行った。

長谷川グループでは、以下の項目に関する研究を実施した。

1. 計算化学による新規触媒物質のハイスループット・スクリーニングとインフォマティクス構築。

インフォマティクス構築のため、インジウムとメチルラジカルや水素原子との結合エネルギーを評価し、13-17 族原子についても検討し比較した。また、メタンの C-H 活性化機構を考察して、XY₃ 型分子へのメタンの物理吸着エネルギーと解離吸着エネルギーを評価した。

2. Operando XAFS による担持金属触媒のその場観察。

Operando XAFS 測定に必要な項目の検討を行った。今回のメタンの多量化触媒においては、1000K の高温でも XAFS 測定が可能な窓材 1mm 厚のオール石英のセルを設計し、耐高温性と X 線透過強度を確認した。

3. 清浄モデル表面での表面ダイナミクス解析:理論と実触媒の橋渡し研究。

NiP/SiO₂ 触媒のモデル系として Ni2P(101b0)表面の構造とガス反応中におけるダイナミクスを追跡した。

4. 理論化学計算による触媒反応機構解析。

金属インジウムの計算をするため、結晶構造に関する情報収集や固体計算のためのソフトウェアに関する調査を行った。

5. モデル触媒の開発とメタン活性化機構の研究。

非定常・2段階反応あるいは C-H 活性化・選択性制御の実験のための流通式反応装置を作製した。金属ガリウムを触媒とし、メタンの脱水素カップリング反応を実施した。ロジウムイオン交換ゼオライトを触媒に用いたメタンの部分酸化反応を実施した。