

山中 一郎

東京工業大学物質理工学院
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(研究機関別)

- ① 研究代表者:山中 一郎 (国立大学法人 東京工業大学 物質理工学院 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(研究機関別)

- ① 主たる共同研究者:長谷川 淳也 (国立大学法人 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, 4, 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.

メタンの多量化反応に関して速度論的解析を行った。In/SiO₂, NiP/SiO₂ と SiO₂ を用いた際の活性化エネルギーが大きく異なり, In あるいは NiP がメタンを活性化して選択的にエタンを生成していることが明らかとなった。



4. 反応場分離型触媒によるメタン多量化反応の開発.

金属隔膜反応器を作製した。この隔膜反応器を用いて、メタンの多量化反応が進行するかどうか、種々検討を行った。

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 C-H 結合活性化およびエタン生成反応のモデルとして In(CH₃)₃ の反応性を検討した。また活性点モデルとして In-Ru 錯体および Ni-Ru 錯体の合成を行った。

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.

反応場分離型触媒の開発に資するインフォマティクス研究として、金属中の炭素原子拡散係数を予測した。

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。また、Ni₂P における反応前後の XAFS 解析を行った。

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.

Ni₂P 表面は表面安定化メカニズムとして、P で終端する。昨年の研究に引き続き、P のバルク内拡散について検討した。その結果、P の欠陥構造が P の拡散障壁を大きく下げることを見出した。

4. 理論化学計算による触媒反応機構解析.

実験温度におけるインジウムの動態を計算し、液体的挙動を確認した。この構造をもとに、インジウム少数クラスターがメタン解離の活性種であるという計算結果を得た。C-H 解離後に生成するメチルインジウム種は気液界面をスピルオーバーすること、エタン生成は気相よりも気液界面で起きる可能性が高いことを計算により示した。

5. モデル触媒の開発とメタン活性化機構の研究.

非定常・二段階反応を利用した In/SiO₂ 触媒によるメタンの官能基化試験を行った。サイクル特性が改善されれば、新しいメタン部分酸化法に発展しうる。また、メタン官能基化のインフォマティクス構築に寄与しうる試験結果を得た。

また、微量ロジウム添加コバルト/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。