

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

① 研究代表者:山中 一郎(東京工業大学物質理工学院 教授)

② 研究項目

- ・In/SiO<sub>2</sub> および NiP/SiO<sub>2</sub> メタン多量化触媒の開発とエチレンの高選択的合成
- ・In および NiP 触媒の高活性化
- ・炭素拡散型金属膜の作製
- ・反応場分離型触媒によるメタン多量化反応の開発
- ・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

- ・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
- ・Operando XAFS による担持金属触媒のその場観察
- ・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
- ・理論化学計算による触媒反応機構解析
- ・モデル触媒の開発とメタン活性化機構の研究

#### (3)「荻原」グループ

① 主たる共同研究者:荻原 仁志(埼玉大学大学院理工学研究科 准教授)

② 研究項目:炭素水素化触媒の開発および機構解明

- ・炭素水素化による炭化水素合成に活性な触媒の開発

・炭素水素化反応における触媒作用の検討

## § 2. 研究実施の概要

山中グループでは、以下の項目に関する研究を実施した。

### 1. In および NiP 触媒の高活性化。

In および NiP を担持する担体材料について検討を行った。その結果、In は Na-ZSM 担体が有効であり、NiP は担体よりも自身のモフォロジーが重要であることが分かった。

### 2. 炭素拡散型金属膜の作製。

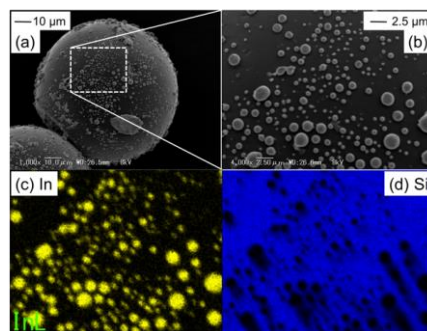
各種金属を無機多孔質体上に蒸着し、薄膜/無機多孔体を作製することを試みた。

### 3. 反応場分離型触媒によるメタン多量化反応の開発。

金属薄膜を用いて、メタンの活性化、炭素の拡散、湧き出し炭素の水素化を実施した。湧き出し炭素の水素化に有効な各種触媒をスクリーニングし、水素化活性の有無を検討した。

### 4. 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 触媒活性種モデルに類似した In クラスターの合成を試みた。



In/SiO<sub>2</sub> 触媒の SEM 像

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 C, N, O 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。

メタン活性を示す In/SiO<sub>2</sub> 触媒について、その構造を XAFS により調べるとともに、オペランド法に必要なシステムの開発と予備実験を行った。

### 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。

Ni<sub>2</sub>P の P の拡散過程について、理論計算で拡散しやすいパスをみつけた。また、モデル表面として、Ni(111)表面を P で修飾し、その構造を LEED と XAFS で調べた。

### 4. 理論化学計算による触媒反応機構解析。

実験温度における第一原理分子動力学計算を行い、温度上昇に伴って発生する活性サイトにおいて C-H 解離の活性化エネルギーは大きく低下すること、エタンは Langmuir-Hinshelwood 機構によって気液界面において発生することを示す結果を得た。

荻原グループでは、以下の項目に関する研究を実施した。

### 1. 炭素水素化による炭化水素合成に活性な触媒の開発。

金属隔膜反応器における「湧き出し炭素の水素化」のモデルとして、炭素の水素化反応を実施し

た。Ni, Fe, Pd 触媒を用いると、炭素水素化でメタンに加えて少量のエタンとエチレンが生成した。

## 2. 炭素水素化反応における触媒作用の検討。

炭素の水素化反応における反応温度および触媒の影響を検討し、熱力学的因子と触媒の効果について解析した。

## 原著論文

Yuhui Hou, Sho Ogasawara, Atsushi Fukuoka, and Hirokazu Kobayashi, "Zeolite-supported rhodium sub-nano cluster catalyst for low-temperature selective oxidation of methane to syngas", *Catalysis Science and Technology*, **2017**, 7, (24), 6132-6139.

Yuta Nishikawa, Hitoshi Ogihara and Ichiro Yamanaka, "Liquid-Metal Indium Catalysis for Direct Dehydrogenative Conversion of Methane to Higher Hydrocarbons", *ChemistrySelect*, **2017**, 2, (16), 4572-4576.

Tatsuya Iwasaki, Yukako Masuda, Hitoshi Ogihara, Ichiro Yamanaka, "Direct Synthesis of Pure H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> Aqueous Solution by CoTPP/Ketjen-Black Electrocatalyst and the Fuel Cell Reactor", *Electrocatalysis*, **2018**, 9, 236-242.