

片田直伸

鳥取大学大学院工学研究科
教授

メタンによる直接メチル化触媒技術の創出

§ 1. 研究実施の概要

現状では利用価値の乏しいメタンから、 $\text{CH}_4 + \text{C}_6\text{H}_6 \rightarrow \text{H}_3\text{C}-\text{C}_6\text{H}_5 + \text{H}_2$ 反応を通じて有用な化学物質を生産するための触媒技術を研究している。既に Co/MFI ゼオライトがこの反応に高い活性を持つことを見出しており、2018 年度にはさまざまな組成・調製法の触媒作用および物理化学特性に対する影響を総合的に調べた(表 1-1)。発見は主に 2 つにまとめられる。(1)表中に赤字で示したように、中 Co 担持量または Mg, Pb 添加で Co が MFI ゼオライトの α 位置(周囲の酸素が少ない)に入ると L1S 特性(配位した分子から強く電子を奪う)を示し、活性が高く劣化しなくなる。(2)青字で示したように、低 Al 濃度で選択性が高くなる。

表1-1: Co/MFIの物理化学特性およびメタン+ベンゼン反応に対する触媒作用要点。

Al 濃度	高			低	
第 2 成分	Co のみ		Mg, Pb 添加	Co のみ	
Co 担持量	低	中	低	低~中	
UV-vis		α 発現	α 増		
アンモニア IRMS-TPD		L1S 発現	L1S 増		
固定床流通式反応	活性	低	高	上昇	高い場合あり
	選択性	中	中	中	高
	劣化	なし	なし	なし	なし
MS-TPR	還元	なし	なし	なし	なし
	選択性	中	中	中	高

(2)についてはまだ理由はわからないが、(1)は図 1-1 のようなメカニズムを示しており、Co/MFI がなぜ特異な活性を示すかを説明し、またさらに有効な触媒を設計する指針を示唆している。

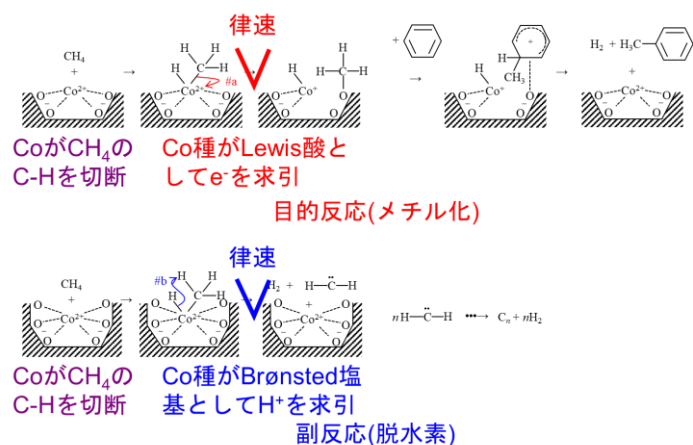


図 1-1: 推測される反応機構と目的反応(メタン-ベンゼン反応)と副反応(メタンの脱水素)に対する活性種の特徴.

【代表的な原著論文】

1. Koshiro Nakamura, Akihito Okuda, Kiyotaka Ohta, Hitoshi Matsubara, Kazu Okumura, Kana Yamamoto, Ryosuke Itagaki, Satoshi Suganuma, Etsushi Tsuji and Naonobu Katada, "Direct Methylation of Benzene with Methane Catalyzed by Co/MFI Zeolite", ChemCatChem, vol. 10, No. 17, pp. 3806-3812, 2018.

§ 2. 研究実施体制

(1) 鳥取大学グループ

① 研究代表者:片田 直伸 (鳥取大学大学院工学研究科 教授)

② 研究項目

- ・オペランド解析の手法の確立
- ・メタン-ベンゼン系での活性化 Co 種の位置などの解析
- ・メタン-ベンゼン系での活性化 Co 種の化学反応性の特性化
- ・酸素・水・アンモニアなど添加系における有望な反応の選択

(2) 東京大学グループ

① 主たる共同研究者:脇原 徹 (東京大学大学院工学系研究科 准教授)

② 研究項目

- ・高 Al MFI ゼオライト合成
- ・Zn-MFI 合成

(3) 工学院大学グループ

① 主たる共同研究者:奥村 和 (工学院大学先進工学部 教授)

② 研究項目

- ・XAFS による Co 種の構造解析
- ・UV-vis による Co 種の位置の解析
- ・in-situ XAFS 解析
- ・固相混合法によるユニークな Co 種の調製