

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
2017年度採択研究代表者

2019年度 実績報告書

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. 研究成果の概要

天然ガス中のメタンを一部の原料として化学製品を製造することを目的として、メタンによるベンゼンメチル化(A)を開発している。MFI 型ゼオライトに Co を担持すると触媒活性が発現する。ゼオライトは Si-O 骨格からなる結晶で、マイクロ細孔を持つ物質の一群である。結晶構造は英大文字 3 文字からなる記号で識別され、MFI もその一つである。Mg 添加などによって活性が向上する¹⁾が、 α ~ γ で分類される位置(図 1)のうち、 α に位置する Co^{2+} が強電子求引性を持ち、触媒活性をもたらすことがわかった。そこで α 構造に富む MEL 型(図 2 右)を合成し、MFI 型(図 2 左)に代えて用いたところ、 α に位置する Co^{2+} は増加し(図 3 の棒グラフの  部分)、活性が向上した(図 3 の )。

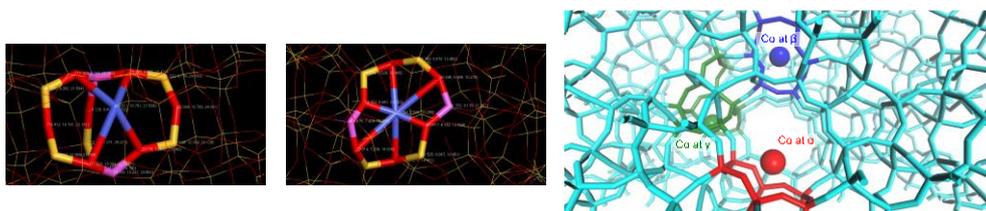


図 1 (左) α 構造, (中) β 構造(γ は少ないので省略); 青が Co 原子を示す, (右) その MFI 骨格内位置.

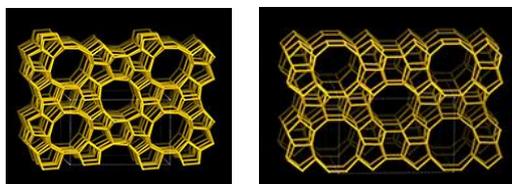


図 2 (左) MFI, (右) MEL 型ゼオライトの骨格構造.

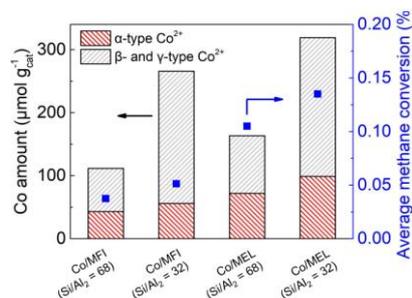


図2 Co/MFIおよびCo/MELにおける各サイト上の $[\text{Co}^{2+}]$ と触媒活性.

【代表的な原著論文】

1. Hitoshi Matsubara, Etsushi Tsuji, Yasumi Moriwaki, Kazu Okumura, Kana Yamamoto, Koshiro Nakamura, Satoshi Suganuma and Naonobu Katada, “Selective Formation of Active Cobalt Species for Direct Methylation of Benzene with Methane on MFI Zeolite by Co-presence of Secondary Elements”, Catalysis Letters, vol. 149, No. 9, pp.2627–2635, 2019.

§ 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

- Key intermediate の解析および速度解析
- メタノール生成系などでの触媒探索および遷移金属種の特異性解析
- 高性能をもたらすゼオライト合成

(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

- 酸強度-構造データベースに基づいてユニークなゼオライトを合成, いくつかの条件で遷移金属種担持, メタン+ベンゼン反応系で性能評価

(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

- Pd 系触媒の可能性見極め
- X 線吸収スペクトルの測定
- 高活性な触媒の設計