

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

山下 誠

名古屋大学大学院工学研究科
教授

超臨界メタンを基質兼媒質とした均一系・不均一系触媒プロセスの開発

§ 1. 研究成果の概要

令和元年度、山下グループでは前年度に計算化学を基礎に置いて開発した NHPI 誘導体がシクロヘキサンの触媒的酸素酸化反応およびネオヘキサンの末端 CH₃ 基の触媒的酸化反応が進行することを確認した。これは長鎖アルカン中で最も大きな C-H 結合解離エネルギーを持つ結合を酸化可能なことを示しており、この先はより高圧でメタンの反応を検討する。合わせて、計算化学による予測を元に新規に設計したピンサー配位子の合成を行い、これと Ir の錯形成を行っている。また、超高压反応装置(~100 MPa)を設置、納入を完了した。山口 G では主に酸化物系触媒(均一系・不均一系)反応の実施、常圧固定床フロー反応系の確立、固体触媒反応条件の探索、Fe・Ni・Cu を活性点構造として有する異種金属置換ポリオキソメタレートを中心に新規触媒ライブラリの構築を行った。またメタンキャビネット・高圧バッチ反応器(10 MPa 程度)・常圧固定床フローの反応装置の設置が完了した。菅原グループでは山下グループで作成したバナジウムオキソ錯体の高圧メタン条件下での Raman 分析、 μ DSC (微小熱示差走査熱分析)、超臨界エタンへの溶解試験、を行った。

【代表的な原著論文】

Sasaki, S.; Yonesato, K.; Mizuno, N.; Yamaguchi, K.; Suzuki, K., *Inorg. Chem.* **2019**, *58*, 7722-7729.

Kurumada, S.; Takamori, S.; Yamashita, M., *Nat. Chem.* **2020**, *12*, 36-39.

Morisako, S.; Watanabe, S.; Ikemoto, S.; Muratsugu, S.; Tada, M.; Yamashita, M., *Angew. Chem. Int. Ed.* **2019**, *58*, 15031-15035.

§ 2. 研究実施体制

(1) 山下グループ

① 研究代表者: 山下 誠 (名古屋大学大学院工学研究科、教授)

② 研究項目

- バッチ反応による均一系触媒と超臨界メタンの反応の生成物解析
脱水素カップリング触媒検討
酸化反応触媒検討
- フロー反応による不均一系触媒と超臨界メタンの反応の生成物解析
超臨界フロー反応装置開発
脱水素カップリング触媒を用いた超臨界フロー反応
酸化触媒を用いた超臨界フロー反応
- 新規触媒ライブラリの構築
アルカン脱水素に活性な触媒群の合成

(2) 山口グループ

① 主たる共同研究者: 山口 和也 (東京大学大学院工学系研究科、教授)

② 研究項目

- フロー反応による不均一系触媒と超臨界メタンの反応の生成物解析
超臨界フロー反応装置開発
酸化触媒を用いた超臨界フロー反応
- 新規触媒ライブラリの構築
酸化反応に活性な触媒群、特に POM 系触媒の合成

(3) 菅原グループ

① 主たる共同研究者: 菅原 武 (大阪大学大学院基礎工学研究科、助教)

② 研究項目

- 超臨界メタン中での均一系触媒の状態解析