

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

2020年度 年次報告書
-----------------

松村 晶

九州大学 大学院工学研究院／超顕微解析研究センター  
教授／センター長

原子分解能その場観察解析に基づく触媒機能の原理解明と革新的触媒創製

## § 1. 研究成果の概要

### ・その場計測グループ(松村グループ)

2020年度は、メタンとCO<sub>2</sub>から化学原料として有用な合成ガス(H<sub>2</sub>とCOの混合ガス)を作り出すDRM反応を担うNi触媒について、環境制御電子顕微鏡およびMEMS隔壁式ガスホルダーを用いた反応その場観察を中心に研究を進めた。MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に担持したNi/MgO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒でのDRM反応をガス分析で追跡しながら、Niの表面での炭素析出過程の詳細を原子分解能で捉えることに成功した。Ni/CeO<sub>2</sub>触媒では、電子エネルギー損失分光測定も行うことによりDRM反応によって担体のCeがNiナノ粒子近傍で還元されることを捉えることにも成功した。放射光XAFS-CT解析ではSiO<sub>2</sub>に担持したNi触媒の化学状態を立体的に明らかにし、通常の水素処理では十分に還元されずに局所的にNiO状態が残存していることを明らかにした。

### ・理論解析グループ(中西グループ)

触媒表面でのDRM反応について分子反応速度論に基づくシミュレーション解析を行い、効率的な(安価、高活性、長寿命)な新規触媒の開発指針を得た。現在、この知見から新規触媒構造のデザインを進めている。

### ・触媒創製評価グループ(瓜田グループ)

理論解析グループによってNiをAuで修飾することで炭素析出が抑制されることが予測されている。この予測に基づき、逐次還元法によりAuナノ粒子(NP)の表面を1-3層のNiで覆ったAu@Ni NPの合成法を確立して、SiO<sub>2</sub>ナノロッド(SiO<sub>2</sub> NR)を担体にした触媒を作製してDRM反応を評価したところ、Au@Ni NP触媒では一般的なNi NP触媒と比べて安定に活性が維持されることが示された。反応後の構造評価より、Ni NPでは炭素が多く析出しているのに対してAu@Ni NPではそれが確認されず、原理と共に理論予測を実証することに成功した。

## § 2. 研究実施体制

### (1) 松村グループ

- ① 研究代表者: 松村晶 (九州大学 大学院工学研究院 教授)
- ② 研究項目: メタン転換触媒反応過程の高分解能その場実験解析
  - ・ガス環境その場原子分解能電子顕微鏡解析
  - ・電子線ホログラフィーによる触媒活性点周辺の電磁場解析
  - ・ガス雰囲気下での放射光X線吸収分光(XAFS)解析

### (2) 中西グループ

- ① 主たる共同研究者: 中西 寛(明石工業高等専門学校専攻科 教授)
- ② 研究項目: メタン転換反応における触媒表面状態と反応過程の理論解析

- ・触媒表面でのメタン活性種の安定性を支配する原理の理論的研究
- ・触媒表面でのメタン活性触媒作用の反応機構の理論的研究

(3) 瓜田グループ

- ① 主たる共同研究者: 瓜田 幸幾(長崎大学 大学院工学研究科 准教授)
- ② 研究項目: 新規メタン転換触媒創製と活性評価
  - ・モデル触媒(結晶面制御 Ni、AuNi 合金)の合成
  - ・メタン改質能の評価

【代表的な原著論文情報】

- 1) S. Yoshioka, K. Yasuda, S. Matsumura, T. Sugiyama, E. Kobayashi, “Transition of cationic local structures in  $\text{Mg}_{1-x}\text{Ni}_x\text{Al}_2\text{O}_4$ ”, *J. Phys. Chem. C*, 125 (9), 5269–5277, (2021).  
<https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.0c08349>
- 2) S.M. Aspera, R.L. Arevalo, B. Chantaramolee, H. Nakanishi, H. Kasai, “PdRuIr ternary alloy as an effective NO reduction catalyst: Insights from first principles calculation”, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 23 (12), 7153–7163, (2021). <https://doi.org/10.1039/D0CP06453J>