

「革新的触媒の科学と創製」
平成 28 年度採択研究者

2018 年度
実績報告書

稲垣 怜史

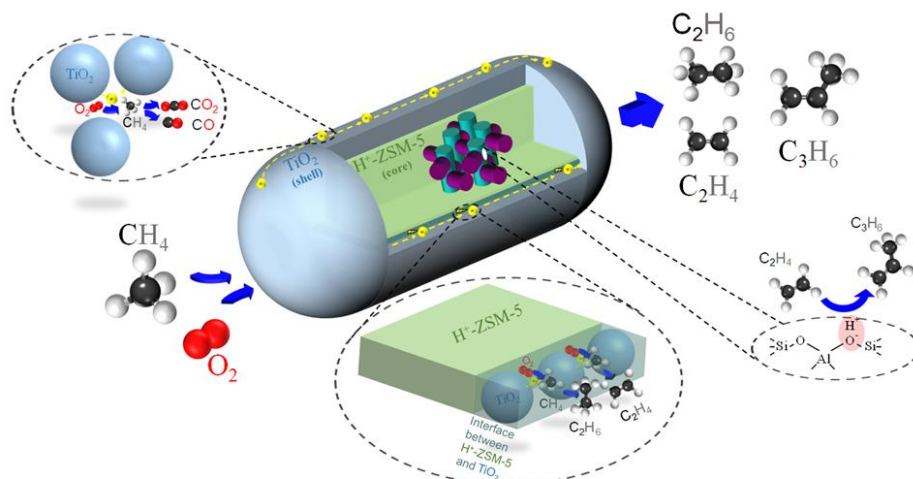
横浜国立大学 大学院工学研究院
准教授

電場印加触媒反応系中の半導体・絶縁体界面でのメタンの活性化と
それに続く化学品原料の選択合成

§ 1. 研究成果の概要

本研究では、電場印加下でのメタンの酸化カップリング (OCM) に低温 (150°C) で活性を示す core-shell 型触媒の開発を進めています。ゼオライト触媒はエチレンからプロピレンを得るのに優れた触媒であることが知られています。絶縁体であるゼオライトを電場中で作用させるために半導体である TiO_2 で被覆して core-shell 型触媒, $\text{TiO}_2/\text{ZSM-5}$ ゼオライト, を創製しました。この調製にはメカノケミカル処理を用いています。また電場印加下では TiO_2 のみでは OCM 活性がほとんど得られないのに対して, $\text{TiO}_2/\text{ZSM-5}$ ゼオライト触媒では高い OCM 活性を示すことを見出しました。また OCM によって生じたエチレンから ZSM-5 を触媒としてプロピレンを得ることができました。

この core-shell 型触媒では、電場印加下で TiO_2 に流れる電子が O_2 分子を活性化し、その活性酸素種がメタン (CH_4) からメチルラジカル ($\cdot\text{CH}_3$) を生じ、エタン・エチレンが生成するものと推測されます。本年度の研究では、電場印加下で $^{18}\text{O}_2$ を流すと TiO_2 の格子酸素 (^{16}O) との交換が起こり、 $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ が生じることを見出しています。この酸素の交換反応を手がかりに現在、本系での OCM 反応のメカニズムの解明を試みています。



§ 2. 研究実施体制

- ① 研究者: 稲垣 怜史 (横浜国立大学 大学院工学研究院 准教授)
- ② 研究項目
 - ・TiO₂とZSM-5ゼオライトのcore-shell型触媒の調製法の検討
 - ・電場印加下での電圧・電流値とOCM活性との相関の検討
 - ・電場印加下での酸素分圧とOCM活性との相関の検討
 - ・電場印加下での酸素・メタンの逐次供給実験による活性点および反応メカニズムの検討
 - ・酸素同位体を用いた活性点および反応メカニズムの検討
 - ・酸素共存下でのZSM-5ゼオライト触媒上でのプロピレン生成反応の検討