

「革新的触媒の科学と創製」
平成 29 年度採択研究者

2018 年度 実績報告書

石川 敦之

科学技術振興機構
さきがけ研究者

第一原理計算と反応速度論を基礎とした
汎用触媒活性手法の開発とメタン転換反応への応用

§ 1. 研究成果の概要

本研究課題は、①第一原理計算による反応速度論的パラメーターの算出、②微視的反応速度論と反応器シミュレーションを軸として理論シミュレーション技法を開発し、その成果を用いて実験データを用いることなく触媒活性や生成物選択性の予測を可能にすることが目的である。本年度においては、メタン酸化カップリング反応(OCM)をターゲットとし、触媒活性(CH_4 転化率)と選択率(C_2 化合物選択率)の予測を行なった。

具体的な手順としては、密度汎関数法(DFT)を用いて 100 以上の気相反応と 50 以上の表面反応の反応エネルギー・活性化エネルギーを算出し、それらの結果を用いて微視的反応論の解析と反応器シミュレーションを行った。

図1(A), (B)にシミュレーションの結果を示す。(A)では反応物である CH_4 と O_2 が時間の経過とともに減少し、逆に生成物である C_2H_6 や CO_2 , H_2O が生成していることがわかる。また、転化率と選択率の温度依存性を(B)に示すが、温度の上昇とともに転化率は上昇するが C_2 選択率が減少するという、OCM の実験において一般的にみられる傾向が理論計算により再現できている。したがって、検討したアプローチが少なくとも半定量的な妥当性を持っていることが示された。

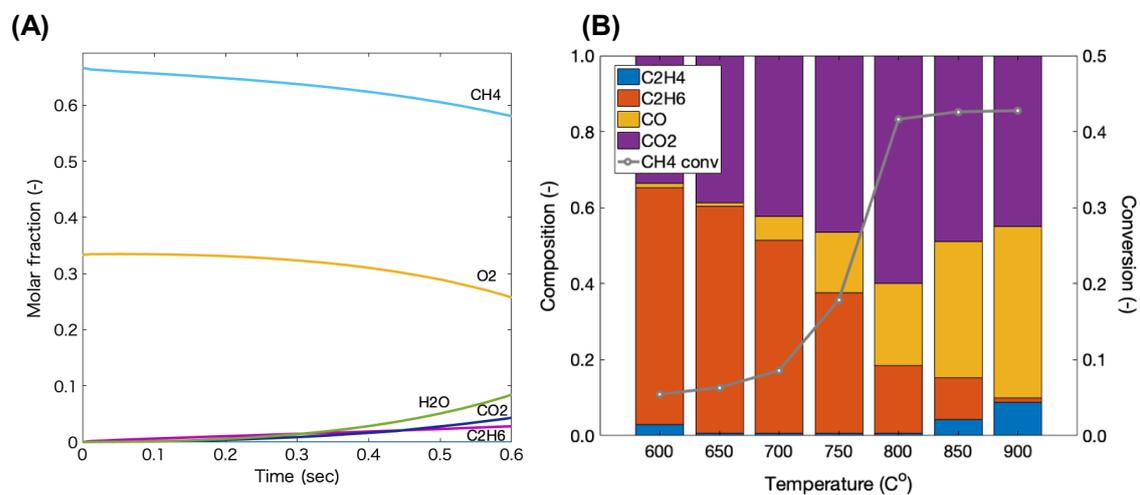


図1 (A)反応時間の経過によるモル分率の変化、(B)CH₄転化率とCを含む化合物の成分に対する温度依存性

§ 2. 研究実施体制

- ① 研究者: 石川 敦之 (科学技術振興機構 さきがけ研究者)
- ② 研究項目
 - ・メタン酸化カップリング反応の触媒活性予測シミュレーション手法の開発および実行