

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	反応場分離を活用したインジウム液体金属触媒および炭素透過型膜触媒によるメタン転換反応と作用機構
Title(English)	
著者(和文)	西川祐太
Author(English)	Yuta Nishikawa
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11473号, 授与年月日:2020年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:山中 一郎,多湖 輝興,大友 明,高尾 俊郎,本倉 健
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11473号, Conferred date:2020/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	西川 祐太	
論文審査 審査員		氏名	職名		
	主査	山中 一郎	教授	本倉 健	准教授
	審査員	多湖 輝興	教授		
		大友 明	教授		
	高尾 俊郎	准教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「反応場分離を活用したインジウム液体金属触媒および炭素透過膜触媒によるメタン転換反応と作用機構」と題し、7章より構成されている。

第1章「序論」では、本研究で対象としたメタンの転換について現在の工業的転換法を概説し、問題点と課題について論じている。メタンの新規利用法として直接転換法を適用する利点と課題を述べ、本研究の意義と目的を明らかにしている。

第2章「インジウム触媒によるメタン脱水素多量化反応」では、種々のシリカ担持金属触媒を用いてメタン脱水素多量化反応(DCM 反応)を実施し、インジウムが DCM 反応に有効であることを見出している。反応前後の触媒の SEM 観察および XRD 測定から、シリカ上に担持された μm オーダーの担持触媒としては比較的大きなインジウム金属塊が触媒作用を示すことを明らかにしている。

第3章「メタン脱水素多量化反応におけるインジウム液体金属の触媒作用と反応スキーム」では、DCM 反応下におけるインジウム触媒種の特定のため、昇温条件における XRD 測定および DCM 反応下における XAFS 測定を行い、インジウムの液体金属が触媒作用を示していることを明らかにしている。また DCM 反応の速度論的検討およびインジウム触媒によるエタンやエチレンを原料とした転換反応を行い、インジウム触媒はメタンのみを選択的に活性化してエタンと水素へ変換する特異的触媒作用を示し、エタンやエチレンの転換反応には関与しないことを明らかにした。エタン以外の炭化水素は無触媒的な気相反応で生成していることを明らかにしている。

第4章「インジウム液体金属触媒によるメタン活性化と炭素-炭素結合形成機構」では、インジウム液体金属表面におけるメタンの活性化とエタン生成機構について明らかにするため、実験と理論計算の両面から反応機構解析を行っている。反応速度論的検討から、インジウム触媒がメタンの C-H 結合を活性化して反応中間体を形成し、メタンと反応中間体との間に化学平衡が関与していることを明らかにしている。理論計算から、熱的に活性化された液体金属表面に生成する不飽和インジウム種によってメタンの C-H 結合が開裂し、吸着メチル種と吸着水素種が生成する活性化モデルを提案している。さらに吸着メチル種は表面を拡散し、吸着水素種は液体金属内部まで拡散し、吸着メチル種と吸着水素種の分離が起き、両者の再結合によるメタン再生を抑制し、吸着メチル種同士のカップリングによりエタン生成が促進される反応機構モデルを提案している。反応速度論からのモデルと計算化学からモデルの間に矛盾がないこと議論し、モデルの妥当性を明らかにしている。

第5章「炭素固溶を利用した反応場分離膜」では、DCM 反応のデメリットである熱力学的な平衡の制約から逃れるため、新規炭素透過型反応場分離触媒の概念を創出すると共に実証を試みている。各種金属膜の評価を行い、鉄薄膜が炭素透過膜として有効であり、鉄膜に片側にメタン分解触媒側と反対側に炭素水素化触媒を結合させたまく触媒を作製し、実際にメタン由来の炭素が鉄膜中を拡散し、反対側へ透過して再びメタンを再生できることを見出している。炭素透過反応の作用機構を明らかにするため反応速度論的検討および SEM 観察を行い、炭素拡散が $\alpha\text{-Fe}$ 中の格子間拡散によって進行していることを明らかにしている。

第6章「反応場分離膜触媒の反応への応用」では、炭素透過型反応場分離触媒について触媒反応への応用を試みている。その結果、DCM 反応へ応用することはできなかったが、エタンのメタン化反応へ適用可能であることを実証している。種々の重炭化水素のガス化(メタン化)反応や DCM 反応への応用のための研究開発の方向性を提言している。

第7章「総括」では、本研究の成果を総合し、その工業的および学術的な重要性和意義を明らかにしている。

これを要するに本論文は、新規インジウム触媒を開発することにより、高難度のメタン選択的転換法を実現できることを証明し、その作用機構を明らかにしたものである。さらに作用機構における化学種の反応場分離という知見を新規炭素透過型反応場分離膜触媒へ展開したものであり、工学上および工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士(工学)の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意:「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容