

反応経路自動探索法を活用した 合理的メタン燃焼触媒開発

(東京大^{*1}, 北海道大^{*2})

安村駿作^{*1}, 齊田謙一郎^{*2}, 鳥屋尾隆^{*2}, 武次徹也^{*2}, 清水研一^{*2}

1. 研究背景

メタンを主成分とする天然ガスは、その豊富な資源量と二酸化炭素当たりの熱量の高さから、石油に代わるエネルギー源として注目されている。近年、天然ガス自動車や発電用途に広く利用されているが、排ガス中に含まれる未燃メタンの放出が課題である。メタンは非常に安定な分子で、強力な温室効果(全ての温室効果ガスが地球温暖化に与える影響の 23%分)を持つため、欧米各国での排出量規制は年々厳しくなっている。未燃メタン排出量抑制のため、排ガスの下流でメタンを低温完全酸化できる触媒が必要である。本研究では、計算者の想定無しに反応経路を探索する「反応経路自動探索法」を活用したメタン燃焼固体触媒開発に取り組んだ¹⁾。

2. 研究内容

Single-component artificial force induced reaction(SC-AFIR)法は、出発構造中の原子間に人工力をつけることで反応を誘起し、自動で反応経路を探索できる計算手法である。本手法を活用し、低温メタン燃焼反応に効果的な酸化剤と活性点を計算先導でスクリーニングした。図1に酸化剤としてオゾン(O₃)を用いた場合の反応経路探索の結果を示す。CH₄ + O₃ 反応の最初の生成物として、メタノール(CH₃OH)の生成が予測された。他の反応経路探索の結果と合わせることで、オゾンを経過酸化剤として、ブロンステッド酸点を活性点として用いた場合に非常に高い触媒活性が得られる可能性が示唆された。強いブロンステッド酸点を持つ固体酸としてゼオライトを用い、触媒試験を実施した。

既報触媒である Pd/Al₂O₃(Pd: 5wt%)が高い活性を示すには 400°C 以上が必要であったのに対し、ゼオライト触媒は 200°C で高い活性を示した。また、ゼオライト触媒は 190°C の低温領域において Pd/Al₂O₃ よりも 442 倍反応速度を示した。計算先導開発が難しいとされる固体触媒を最先端の計算手法を用いて開発し、貴金属触媒を遥かに凌ぐゼオライト触媒(典型元素のみで構成)の開発に成功した。

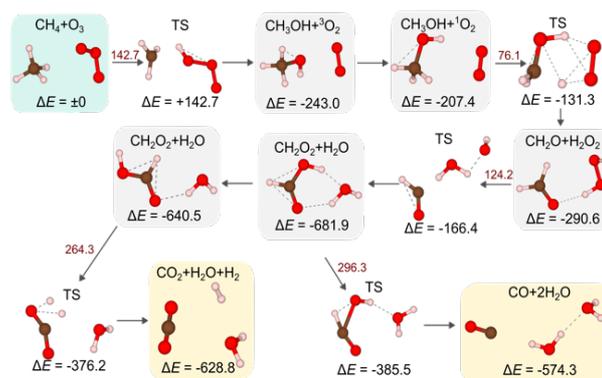


図1 CH₄ + O₃ の反応経路探索結果

文献

1) S. Yasumura, K. Saita, T. Miyakage, K. Nagai, K. Kon, T. Toyao, Z. Maeno, T. Taketsugu, K. Shimizu, *Nat. Commun.*, **14**, 3926 (2023).