

整 理 番 号 2025M-364

補 助 事 業 名 2025年度 局所反応熱を自在に制御する炭素内包多孔質固体触媒の創製
補助事業

補助事業者名 梅垣 哲士

1 研究の概要

化学反応に伴う発熱の制御は、プロセスの安定稼働のために重要である上、理論的な化学平衡に制約されずに目的物質を製造できる。比較的簡便に調製、分離が可能な固体触媒では、ターゲットとする反応がその反応に対して触媒活性を示す表面原子上で起こる為、その表面原子付近で局所的に発熱する。本研究では、多孔質材料内に触媒機能を示す金属と共にその結合状態などを変化させることで伝熱性が大きく変化する炭素系材料を内包し、制御が難しい局所的な反応熱を自在に制御できる触媒システムの創製を目指した。

(2) 実施内容及び成果

- ① 不活性雰囲気下で熱処理した試料調製
- ② 分光測定および熱分析による調製後に残存する炭素成分の分析
- ④ 空気中で焼成した試料について①～③と同様の検討およびその結果と不活性雰囲気
で焼成した試料の結果との比較

上記3項目の検討結果より、熱処理雰囲気に応じて残存する炭素成分の組成に異なることが明らかになった。本研究において炭素成分の原料となりうる成分として、調製時に使用した界面活性剤およびグルコースを原料として調製した炭素テンプレートがあるが、不活性雰囲気で焼成した場合にはいずれの成分も分解しにくい一方、空気中で焼成した場合にはより低温で分解される界面活性剤が優先的に除去されていることが示唆された。一方、焼成前に塩化アンモニウム/アルコール溶液で還流処理することにより界面活性剤が除去され、その濃度に応じて除去量が変わることが確認された。また、この界面活性剤の除去率に応じて、触媒活性種であるルテニウム種の導入量が変わり、除去率が高い試料ほど導入量が多くなることも確認された。

③ 調製した触媒の炭酸水素アンモニウム水素化によるギ酸合成活性の評価

上記①、②、④の検討で調製した試料について炭酸水素アンモニウムの水素化によるギ酸合成活性を比較したところ、ある程度界面活性剤が除去され、活性ルテニウム種の導入量が多い試料で、高い活性を示すことが示唆された。

2 研究の目的と背景

化学反応に伴う発熱の制御は、プロセスの安定稼働のために重要である上、理論的な化学

平衡に制約されずに目的物質を製造できる。比較的簡便に調製、分離が可能な固体触媒では、ターゲットとする反応がその反応に対して触媒活性を示す表面原子上で起こる為、その表面原子付近で局所的に発熱する。本研究では、多孔質材料内に触媒機能を示す金属と共にその結合状態などを変化させることで伝熱性が大きく変化する炭素系材料を内包し、制御が難しい局所的な反応熱を自在に制御できる触媒システムの創製を目指す。

3 研究内容

- ① 不活性雰囲気下で熱処理した試料調製
- ② 分光測定および熱分析による調製後に残存する炭素成分の分析
- ④ 空気中で焼成した試料について①～③と同様の検討およびその結果と不活性雰囲気で焼成した試料の結果との比較

上記3項目の検討結果より、熱処理雰囲気に応じて残存する炭素成分の組成に異なることが明らかになった。本研究において炭素成分の原料となりうる成分として、調製時に使用した界面活性剤およびグルコースを原料として調製した炭素テンプレートがあるが、不活性雰囲気で焼成した場合にはいずれの成分も分解しにくい一方、空気中で焼成した場合にはより低温で分解される界面活性剤が優先的に除去されていることが示唆された。一方、焼成前に塩化アンモニウム/アルコール溶液で還流処理することにより界面活性剤が除去され、その濃度に応じて除去量が変わることが確認された。また、この界面活性剤の除去率に応じて、触媒活性種であるルテニウム種の導入量が変わり、除去率が高い試料ほど導入量が多くなることも確認された。

- ③ 調製した触媒の炭酸水素アンモニウム水素化によるギ酸合成活性の評価

上記①、②、④の検討で調製した試料について炭酸水素アンモニウムの水素化によるギ酸合成活性を比較したところ、ある程度界面活性剤が除去され、活性ルテニウム種の導入量が多い試料で、高い活性を示すことが示唆された。

なお、炭素残存量の評価については加熱真空拡散ユニットも搭載できる赤外分光装置(図1)を含む各種装置で行っている。



図1 加熱真空拡散ユニットを装着した赤外分光装置

4 本研究が実社会にどう活かされるか—展望

本研究の検討を通じて、多孔質構造を創製するために使用する有機成分を活用して多孔質材料内に炭素成分を残存させ、その量や状態を制御する方法論を示すことができた。本研究の方法論を発展させ、さらに詳細な解析を行い、残存炭素成分の伝熱性と触媒機能の関係を解析することにより、発熱を伴う反応全般に活用できる触媒システムの構築が期待できる。

5 教歴・研究歴の流れにおける今回研究の位置づけ

二酸化炭素水素化によるギ酸合成用触媒の開発は、弊学に着任して間もない2013年より開始しており、その間、ソルボサーマル条件における金属活性種の合成と機能向上、多孔質材料内への活性種の内包による活性種の溶出の抑制と水中で使用可能な触媒の開発を行ってきた。本研究はこの多孔質材料を活用する触媒開発の発展的な研究であり、触媒内の熱制御による機能性向上を目指した研究である。

6 本研究にかかわる知財・発表論文等

論文発表 T. Umegaki, M. Kawaguchi, R. Takeda, Y. Kojima, “Influence of the calcination conditions of the support on the activity of ruthenium-encapsulated porous hollow silica sphere catalysts for hydrogenation of carbon dioxide into formic acid”, RSC Adv., 15, 15131–15137 (2025). (<https://doi.org/10.1039/d5ra01525a>)

学会発表 梅垣哲士，河口真大，武田凜太郎，小嶋芳行，“二酸化炭素水素化用ルテニウム内包多孔質球状中空シリカの熱処理条件の影響”日本エネルギー学会第24回大会, 4-5-4 (2025).

(<https://www.jie.or.jp/relays/download/993/4100/1375/0/?file=/files/libs/5243/202512251026476598.pdf>)

7 補助事業に係る成果物

(1)補助事業により作成したもの

特になし

(2)(1)以外で当事業において作成したもの

特になし

8 事業内容についての問い合わせ先

所属機関名： 日本大学理工学部(ニホンダイガクリコウガクブ)

住 所: 〒101-8308(半角)

東京都千代田区神田駿河台1-8-14

担 当 者: 教授 梅垣哲士(ウメガキテツオ)

担 当 部 署: 日本大学工学部物質応用化学科無機材料化学研究室(ニホンダイガクリコ
ウガクブツシツオウヨウカガクカムキザイリョウカガクケンキュウシツ)

E - m a i l: umegaki.tetsuo@nihon-u.ac.jp

U R L: <https://cst.mukizai.jp/>