

## 研究課題別中間評価結果

1. 研究課題名： 酸素原子シャトルによるメタン選択酸化反応プロセス開発
2. 研究代表者： 大山 茂生 （東京大学大学院工学系研究科 教授）
3. 中間評価結果

本研究課題は、一酸化窒素と酸素分子との反応で生成する二酸化窒素を実質の酸化剤としてメタンの部分酸化反応を行わせ、再生する一酸化窒素を繰り返して利用することで、結果として酸素分子の2個の酸素原子の両方を反応に利用できる一酸化窒素シャトル固体触媒反応系の成立検証を進めるものである。金属触媒によるメタンのC-H結合解離活性化と金属触媒を保持する金属酸化物担体等による二酸化窒素活性化の考えのもと、担持金属触媒や金属リン酸塩を触媒として検証することを最初の取り組みとして広く進めた。一酸化窒素の分解が起こらない、すなわち窒素分子の生成がない条件と一酸化窒素が反応に必須となる必要条件のもとで反応試験を実施し、担持金属系触媒がこの条件を満足してジメチルエーテルを生成することを見出した。これにより、シャトル系の成立の可能性が示され、メタンからジメチルエーテルの直接合成という今までに例のない、興味深い結果となった。しかしながら、今後シャトル系成立を厳密に検証するための難しい研究が残されている上、酸素分子が直接反応して完全酸化生成物を与える反応が避けられず、生成物のさらなる酸化の進行を抑制することが極めて難しく、シャトル系の限界も同時に明らかとなった。これによりシャトル系のさらなる展開は限定的であると判断し、これまでの方向の研究は現時点で一旦収束させる。一方、これらの研究を進めていく中で、シャトル系が成立する必要条件とは異なる条件で新しい反応を見出した。今後はこの触媒系の展開研究に傾注し、特徴ある進展を期待する。