

不均一系触媒反応のエナジェティクスとキネティクス

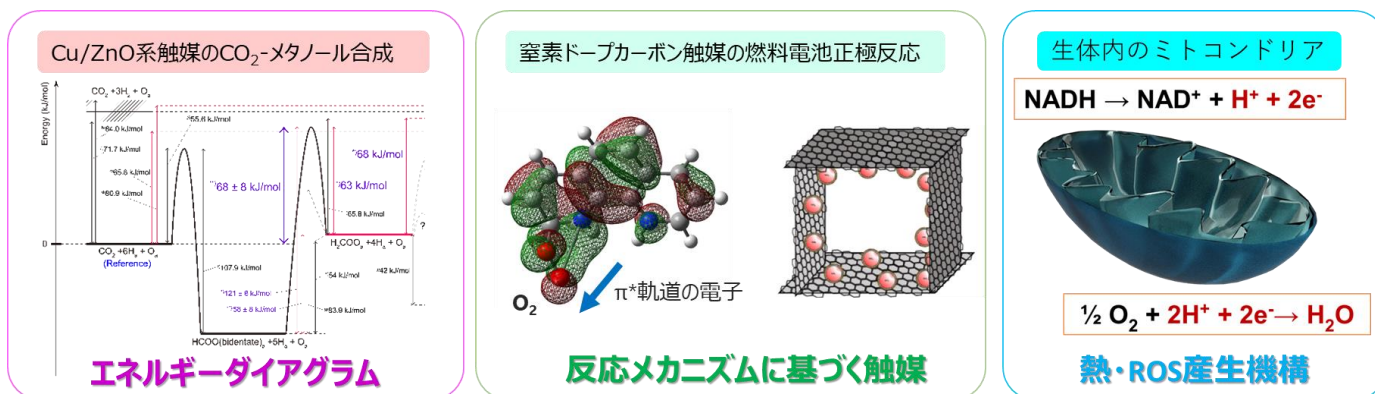
筑波大学 数理物質系 物質工学域 武安光太郎

不均一系触媒反応は、脱炭素化社会の鍵であるだけでなく、生体内でもミトコンドリア等での熱・エネルギー産生を担う。反応全体のメカニズムが明らかになれば、それに基づいた新たな反応システムや材料の設計、あるいは生態系においては医療技術の開発につながる。

しかしながら、実験事実をベースとして反応経路の全容が明らかにされてきた系は、アンモニア合成 ($N_2 + 3H_2 \rightarrow 2NH_3$) や水生ガスシフト反応 ($CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$) など2、3例に限られている。これには、不均一系触媒反応のメカニズムを明らかにするためには、反応速度、活性点、中間体の情報を総合的に理解する必要がある、それらが、実験的に困難であるという背景がある。私達は実用触媒とモデル触媒の比較に加えて、オペラント分光、第一原理計算、数理モデルを組み合わせることで、エネルギーと速度に着目した反応のメカニズム (エナジェティクスとキネティクス) にアプローチしてきた。

具体的には、カーボンニュートラルを目指す上での極めて重要な不均一系触媒反応として、Cu/ZnO系触媒を用いたCO₂からのメタノール合成、窒素ドーパカーボン触媒を用いた燃料電池正極反応を対象とし、活性を決める素過程を明らかにしてきた[1,2]。さらに燃料電池正極反応においては、反応メカニズムに基づいて窒素ドーパカーボン触媒を設計し、非白金系触媒の中で最高レベルの活性を持つ触媒を開発することに成功した[3]。また、メタノール合成や燃料電池正極反応の理解をベースとして、混成電位を利用したCO₂還元反応系のメカニズム解明と、それを利用した触媒反応系の探索[4,5]に取り組んでいる。さらに、不均一系触媒反応の理解を基盤としたミトコンドリア内の熱産生および活性酸素発生メカニズムの解明を目指して研究を推進している。

今後は、現在開発を進めているオペラント分光系を手法の軸に取り入れ、各反応系の非定常キネティクスの理解と、それに根差した高速反応制御に取り組むと考えている。



[1] K. Takeyasu⁺, Y. Yasutaka⁺, J. Nakamura^{*} et al., *J. Am. Chem. Soc.* 144, 12158 (2022).

[2] K. Takeyasu^{*}, J. Nakamura^{*} et al., *Angew. Chem. Int. Ed.* 60, 5121 (2021).

[3] S. K. Singh⁺, K. Takeyasu⁺, J. Nakamura^{*} et al., *Angew. Chem. Int. Ed.* accepted (2022).

[4] R. Shibuya, K. Takeyasu^{*}, J. Nakamura et al., *Langmuir*, accepted (2022).

[5] S. K. Singh, K. Takeyasu, J. Nakamura et al., *Sustain. Energy Fuels* 5, 820 (2021). (+: equal contribution)