

公益財団法人富山第一銀行奨学財団

理事長 横田 格 殿

## 助成研究成果概要報告書

教育機関名 : 富山大学	助成金額 : 750 千円	
研究代表者 : 楊 国輝	所属 : 学術研究部工学系	職位 : 准教授
研究題目 : 二酸化炭素からエタノールへの新規合成技術の開発		

## 研究概要

「くすりの富山」としては全国に知られているとおり、医薬品産業は富山県内の基幹産業の一つと続けている。コロナの時代、感染症対策に必要な各種医薬品や消毒剤を中心に、需給が迫っている状況である。この上、日本は2050年まで二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)の排出を全体としてゼロにし、カーボンニュートラル社会の実現を宣言した。それで、日本の将来を見据えて、医薬品原料の多彩化とCO<sub>2</sub>の資源化は重要な課題となっている。本研究ではCO<sub>2</sub>を原料とする医薬品の主要原料であるエタノールの新規合成ルートの開拓、新規触媒のデザインおよび反応メカニズムの解明を目的とする。主に、図1で示すようなタンデムステップを計画し、CO<sub>2</sub>から効率的なエタノール合成ができる新規ルートと機能触媒の開発に注力する。固体触媒の上で①、②、③反応ステップを同時に動かせ、CO<sub>2</sub>と水素からメタノールやDME(Dimethyl ether)を合成し、次に機能分子で修飾されたゼオライト触媒を用い、④のカルボニル化反応によりCOをDMEに挿入し、生成した酢酸メチル(Methyl acetate: MA)が⑤のステップに水素化され、最終に高選択率でエタノール合成を実現する。

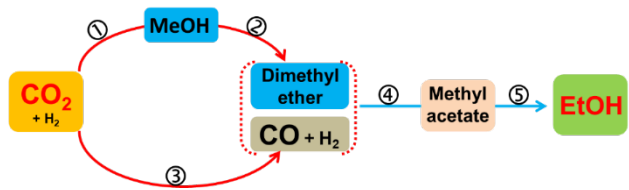


図1、CO<sub>2</sub>からエタノールへの新規合成ルート：  
①水素化反応、②脱水反応、③逆水性ガスシフト反応、④カルボニル化反応、⑤水素化反応

## 成果要約

メタノール自体を助触媒とする新規低温メタノール合成

新規 Cu/ZnO/MgO 触媒による低温メタノール合成を行い、メタノール自体を助触媒とすることで高い目標産物の収率を実現した。MgOの添加により触媒活性を向上でき、180時間の触媒安定性を示した。この研究成果では、安価なCu系高性能触媒と持続可能な低温メタノール合成ルートを成功した。

パツタリング法による高性能カルボニル化反応用ゼオライト触媒の開発

パツタリング法を用いて、高分散Cuに覆われたゼオライト触媒ができ、通常の触媒よりもっとよいカルボニル化性能を示した。それに、ゼオライト担体の整粒により、Cuの担持量を増加させることができ、より高い活性が得られた。

効率的なエタノール合成を実現するためのナノフィラメント型ゼオライト触媒開発

高価または複雑なテンプレートを使用せずに、自己集合型ナノゼオライトを構築できる安価な阻害剤補助合成方法が開発された。70nmの結晶直径しかないナノフィラメントMORゼオライトが成功製造され、DMEカルボニル化反応において、非常に優れたカルボニル化反応性能を示した。次に、Cu系水素化触媒と組み合わせることで、効率的なエタノール合成を実現した。

研究成果 発表状況	<p>【雑誌論文、学会発表、図書、新聞掲載、作成 Web ページ、特許権等の出願・取得状況】</p> <p><u>雑誌論文：</u></p> <p>[1] Self-Assembled Nano-Filamentous Zeolite Catalyst to Realize Efficient One-Step Ethanol Synthesis, Jie Yao, Xiaobo Feng, Jiaqi Fan, Shoya Komiyama, Yasuharu Kugue, Xiaoyu Guo, Yingluo He, Guohui Yang, Noritatsu Tsubaki, <i>Chemistry - A European Journal</i>, 2022, in press, DOI: 10.1002/chem.202201783</p> <p>[2] Enhanced performance and stability of Cu/ZnO catalyst by introducing MgO for low-temperature methanol synthesis using methanol itself as catalytic promoter, Fei Chen, Weizhe Gao, Kangzhou Wang, Chengwei Wang, Xuemei Wu, Na Liu, Xiaoyu Guo, Yingluo He, Peipei Zhang, Guohui Yang, Noritatsu Tsubaki, <i>Fuel</i>, 2022, 315, 123272-123285</p> <p><u>学会発表：</u></p> <p>[1] Heng Zhao, Guohui Yang, Noritatsu Tsubaki, “Ultra-high yield coproduction of C5+ hydrocarbons and ethanol from CO<sub>2</sub> hydrogenation on a rational designed multi-functional catalyst”, 12th International Conference on Environmental Catalysis (ICEC2022), Osaka, Japan, July 30-August 2 (2022)</p> <p>[2] Heng Zhao, Guohui Yang, Noritatsu Tsubaki, “Multi-promoters regulated iron catalyst with well-matching reverse water-gas shift and chain propagation for boosting CO<sub>2</sub> hydrogenation”, The 9th Tokyo conference on advanced catalytic science and technology (TOCAT9), Fukuoka, Japan, July 24-29 (2022)</p> <p>[3] Jie Yao, Guohui Yang, Noritatsu Tsubaki, “A newfound zeolite catalyst for highly efficient carbonylation”, The 9th Tokyo conference on advanced catalytic science and technology (TOCAT9), Fukuoka, Japan, July 24-29 (2022)</p> <p>[4] Guohui Yang, Peng Lu, Noritatsu Tsubaki, “An ethanol direct synthesis strategy realized by capsule catalyst: the space-confined-self-regulation mechanism”, The 9th Tokyo conference on advanced catalytic science and technology (TOCAT9), Fukuoka, Japan, July 24-29 (2022)</p> <p>[5] Weizhe Gao, Guohui Yang, Noritatsu Tsubaki, “Selective conversion of CO<sub>2</sub> into para-Xylene over a ZnCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>-ZSM-5 catalyst”, The 9th Tokyo conference on advanced catalytic science and technology (TOCAT9), Fukuoka, Japan, July 24-29 (2022)</p> <p><u>受賞：</u></p> <p>2022年12月26日 国立大学法人富山大学令和4年度優秀教員表彰</p>																																									
経費の 執行状況	<table border="1"> <thead> <tr> <th data-bbox="339 1473 826 1529">区 分</th> <th data-bbox="826 1473 1129 1529">執行額 (円)</th> <th data-bbox="1129 1473 1458 1529">備 考</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td colspan="3" data-bbox="339 1529 1458 1574">【物品費】</td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 1574 826 1619">オフィス用品・文房具など</td> <td data-bbox="826 1574 1129 1619">9,570</td> <td data-bbox="1129 1574 1458 1619">鉛筆や消しゴムなど</td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 1619 826 1664">タブレット</td> <td data-bbox="826 1619 1129 1664">45,300</td> <td data-bbox="1129 1619 1458 1664">iPad</td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 1664 826 1709">アップルパソコン</td> <td data-bbox="826 1664 1129 1709">256,400</td> <td data-bbox="1129 1664 1458 1709">論文や文書など作成</td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 1709 826 1753">セラミックファンヒーター</td> <td data-bbox="826 1709 1129 1753">25,300</td> <td data-bbox="1129 1709 1458 1753"></td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 1753 826 1798">パナソニックパソコン</td> <td data-bbox="826 1753 1129 1798">410,000</td> <td data-bbox="1129 1753 1458 1798">実験データ online 処理</td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 1798 826 1843">スクリーンフィルム</td> <td data-bbox="826 1798 1129 1843">1,430</td> <td data-bbox="1129 1798 1458 1843"></td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 1843 826 1888">端末機体保護用ケース</td> <td data-bbox="826 1843 1129 1888">2,000</td> <td data-bbox="1129 1843 1458 1888"></td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 1888 826 1933">【旅費】</td> <td data-bbox="826 1888 1129 1933">0</td> <td data-bbox="1129 1888 1458 1933"></td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 1933 826 1977">【謝金】</td> <td data-bbox="826 1933 1129 1977">0</td> <td data-bbox="1129 1933 1458 1977"></td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 1977 826 2022">【その他】</td> <td data-bbox="826 1977 1129 2022">0</td> <td data-bbox="1129 1977 1458 2022"></td> </tr> <tr> <td data-bbox="339 2022 826 2098">合計</td> <td data-bbox="826 2022 1129 2098">750,000 円</td> <td data-bbox="1129 2022 1458 2098"></td> </tr> </tbody> </table>	区 分	執行額 (円)	備 考	【物品費】			オフィス用品・文房具など	9,570	鉛筆や消しゴムなど	タブレット	45,300	iPad	アップルパソコン	256,400	論文や文書など作成	セラミックファンヒーター	25,300		パナソニックパソコン	410,000	実験データ online 処理	スクリーンフィルム	1,430		端末機体保護用ケース	2,000		【旅費】	0		【謝金】	0		【その他】	0		合計	750,000 円			
区 分	執行額 (円)	備 考																																								
【物品費】																																										
オフィス用品・文房具など	9,570	鉛筆や消しゴムなど																																								
タブレット	45,300	iPad																																								
アップルパソコン	256,400	論文や文書など作成																																								
セラミックファンヒーター	25,300																																									
パナソニックパソコン	410,000	実験データ online 処理																																								
スクリーンフィルム	1,430																																									
端末機体保護用ケース	2,000																																									
【旅費】	0																																									
【謝金】	0																																									
【その他】	0																																									
合計	750,000 円																																									