

令和 2 年 6 月 12 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03452

研究課題名(和文) 合成ガスからのバルクケミカル高効率製造を実現する機能集積型触媒の開発

研究課題名(英文) Development of dual-function catalyst to achieve high efficiency production of bulk chemicals from syn-gas

研究代表者

多湖 輝興 (Tago, Teruoki)

東京工業大学・物質理工学院・教授

研究者番号：20304743

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：Rh, Fe, Coの各種金属のナノ粒子がMFI型ゼオライトにより包接された触媒(バードケージ構造触媒)を開発した。合成ガスから生成するアルコールを想定し, Rh@MFI触媒によるメタノールの転換反応を実施したところ, Rh上でのアルコールの分解による水素生成とゼオライト酸点上でのアルコールからの低級オレフィン生成が確認できた。また, FeやCoのナノ粒子を内包した触媒では, 合成ガスからの低級オレフィン, 芳香族, イソパラフィンの直接合成に成功した。以上より, 金属触媒能と固体酸触媒能の2元機能を組み合わせることにより, 合成ガスから直接基礎化学物質の製造を達成できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

化石資源使用量の低減と二酸化炭素排出抑制のためには, メタンやバイオマスなどから得られる合成ガス(水素と一酸化炭素の混合ガス)からの有機化学物質合成が重要となる。特に, ファインケミカルズの原料である, 炭素数が2以上の基礎化学物質(低級オレフィン, イソパラフィン, 芳香族等)の新たな合成ルートの開発は不可欠である。金属超微粒子をゼオライト結晶内に内包させた包接構造触媒(バードケージ構造触媒)は, 合成ガスから, 直接これら有機化学物質の合成が可能である。したがって, 本研究で達成した触媒調製法と触媒構造, および触媒反応は, 環境問題解決のための重要なキーテクノロジーであると言える。

研究成果の概要(英文)：Rh, Fe and Co metal nanoparticles encapsulated by MFI-type zeolite, which is called as Bird-Cage structural catalyst, was developed. Rh@MFI catalyst was applied to conversion of methanol, assuming that the alcohol is generated from the synthesis gas. The decomposition of alcohol on Rh to generate hydrogen and the simultaneous production of lighter olefin on acid sites of zeolite was observed. In addition, in the catalyst containing nanoparticles of Fe and Co (Fe@MFI and Co@MFI), the formation of lighter olefins, aromatics and iso-paraffin from syngas. In summary, the direct production of basic chemicals from syngas was achieved using the Bird-Cage structural catalyst with two functions of metal and solid acid catalysts.

研究分野：化学工学

キーワード：合成ガス 基礎化学物質 ゼオライト触媒 金属触媒 包接構造 カプセル構造 バードケージ構造

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

化石資源の供給の不安定さや炭酸ガス排出削減の観点から、石油ナフサのサーマルクラッキング(熱分解)による基礎化学物質(低級オレフィン, アルコール, 芳香族など)の合成プロセスに代わり, ナフサ接触分解プロセス, さらには合成ガスを基礎化学物質へ直接転換する炭化水素合成法が, 近年再着目されている。合成ガスは, 天然ガス等の水蒸気改質で製造されているが, 今後は石炭やバイオマス等の水蒸気改質, 二酸化炭素改質により化石資源の使用低減と二酸化炭素の排出抑制に寄与する可能性が高い。そこで, 本研究では, 合成ガスを低級オレフィンや芳香族等の基礎化学物質に直接転換する, 反応経路に着目した。

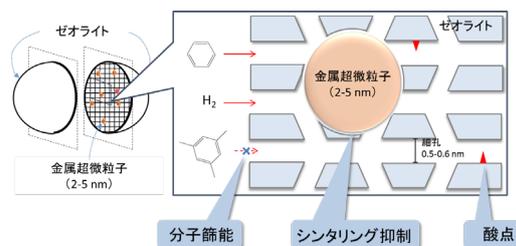


図1 金属微粒子がゼオライトにより内包されたバードケージ構造触媒

### 2. 研究の目的

合成経路としては下記の①アルコール生成を経由した逐次反応系, ②FT 反応を経由した逐次反応系が挙げられる。

反応①: 合成ガス ( $\text{CO} + \text{H}_2$ )  $\rightleftharpoons$  アルコール ( $\text{CH}_3\text{OH}$ ,  $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ )  $\Rightarrow$  基礎化学物質  
 アルコール合成は Rh や Pd 等の貴金属超微粒子触媒  
 アルコールからの基礎化学物質合成はゼオライト等の固体酸触媒 により進行

反応②: 合成ガス ( $\text{CO} + \text{H}_2$ )  $\rightleftharpoons$  直鎖炭化水素  $\Rightarrow$  基礎化学物質  
 直鎖炭化水素合成は Fe や Co 等の卑金属微粒子触媒  
 直鎖炭化水素からの基礎化学物質合成はゼオライト等の固体酸触媒 により進行

上記反応系では, 金属触媒上での合成ガスからのアルコール, もしくは直鎖炭化水素生成能(貴金属, もしくは卑金属微粒子による CO の水素化能)と基礎化学物質生成能(ゼオライトの固体酸触媒能)の, 2つの触媒機能が不可欠である。また, これらの反応経路では, 平衡反応が関与するとともに, 発熱反応と吸熱反応から成る逐次反応系である。

上記研究課題を達成するためには, 活性点の量(金属担持量, 酸点量)と場所(触媒粒子内での場所)を独立に制御する, 即ち『金属成分が担う合成ガスからの炭化水素生成能』と『ゼオライト酸点が担う基礎化学物質生成能』の独立制御を実現する必要がある。その候補触媒として, ゼオライト結晶内部に金属微粒子が固定化されたバードケージ構造<sup>①</sup>, <sup>②</sup>が挙げられる(図1)。本研究の目的は, 合成ガスからの基礎化学物質高効率製造であり, 同反応を実現するために金属微粒子がゼオライトに内包されたバードケージ構造触媒を開発するとともに, その高効率な触媒作用を実証する。

### 3. 研究の方法

まず, 金属微粒子がゼオライト結晶に内包された, 鳥籠状のゼオライト(鳥が金属微粒子, 籠がゼオライトに該当, バードケージ構造触媒)を開発実施した。ついで, 内包金属微粒子による合成ガスからの炭化水素生成(アルコール, もしくは直鎖炭化水素), およびゼオライト由来の固体酸点での生成炭化水素からの基礎化学物質合成を同一の触媒粒子内で進行させることを検討した。

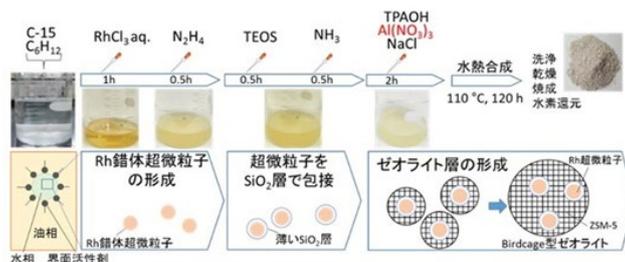


図2 金属微粒子内包バードケージ構造触媒調製法概略

金属微粒子がゼオライトによって包接された, バードケージ構造触媒は, 油中水滴型エマルジョンを利用して調製した(図2)。界面活性剤には主にポリオキシエチレンセチルエーテルを, 有機溶媒にはシクロヘキサンを用いた(C-15/C<sub>6</sub>H<sub>12</sub>)。金属錯体微粒子が分散したマイクロエマルジョン溶液にシリカ源(TEOS)を投入し, 錯体微粒子周囲にシリカ層を形成させた後, 水熱合成処理を行うことでゼオライトをシリカ層から成長させた。得られた沈殿に対し, アルコール洗浄, 乾燥, 焼成処理を施すことで, 金属微粒子内包バードケージ構造触媒(以降, 金属種@ゼオライト種 の表記法で表す)を得た。

粉末 X 線回折と蛍光 X 線分析により, 触媒の結晶性と組成の測定を行った。金属微粒子のサイズ, およびゼオライトの形状は, 走査型電子顕微鏡と透過型電子顕微鏡により観察した。ゼオライトに固定化された金属微粒子のサイズは CO パルス法により評価し, ゼオライトの固体酸量は, NH<sub>3</sub>-TPD 法により求めた。触媒の活性試験は固定層流通式反応器により実施した。所定量の触媒を充填した反応器に反応原料を供給し, 生成物はオンライン GC にて分析した。

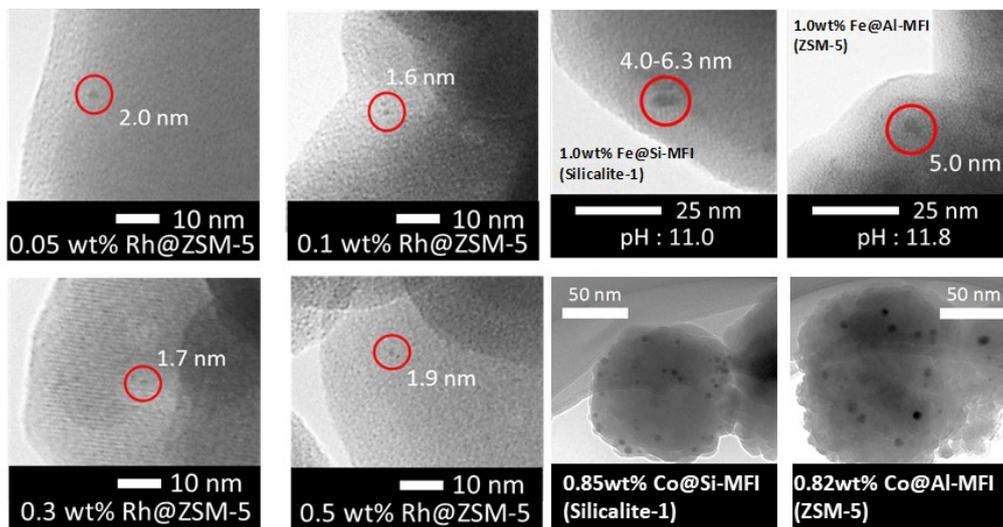


図3 調製したバードケージ構造触媒の TEM 写真

#### 4. 研究成果

##### (1) 触媒調製

得られた試料の TEM 観察結果を図 3 に示す。ゼオライト種は MFI 型ゼオライト (Al を含む ZSM-5, Si のみから成る Silicalite-1) であり, 内包金属はロジウム (Rh), 鉄 (Fe), コバルト (Co) である。各試料の XRD 回折パターンからは MFI 型ゼオライトに由来するピークが観察され, 窒素吸着等温線からゼオライト由来のミクロ孔への吸着が観察された。また, BET 表面積は約 350 m<sup>2</sup>/g であった。一方, 内包金属については, Rh の粒子サイズは約 2.0nm, Fe では約 4.0~6.0 nm, Co では約 10 nm であった。調製した触媒を用いて, 合成ガスからの基礎化学物質合成 (低級オレフィンと芳香族) を実施した。

##### (2) Rh@MFI バードケージ構造触媒による基礎化学物質合成

Rh 微粒子が MFI 型ゼオライト (酸点の無い Silicalite-1, 酸点を有する ZSM-5) により包接された, Rh@Silicalite-1, および Rh@ZSM-5 を触媒に用い, 合成ガスからのアルコール, および低級オレフィンの合成を検討した。反応器に触媒を充填後, 希釈水素雰囲気下 450 °Cにて 6h 前処理を施した。その後, 350°Cに冷却し, 合成ガス(H<sub>2</sub>:CO:Ar=16:8:1)を供給し排圧弁により 2.0 MPa になるように加圧し, 反応を開始した。その結果, 主生成物はメタンであり, アルコールや C<sub>2</sub> 以上の炭化水素の生成は極わずかであった。これは Rh 粒子径が 2.0nm 以下と非常に小さいためであると推測した。そこで, メタノールが合成されたことを前提として, メタノールからの基礎化学物質合成を実施した<sup>3)</sup>。

ゼオライト層の Si/Al=100 とし, Rh 担持量が 0wt%~0.5wt%である Rh@ZSM-5 を調製した。TEM 観察 (図 3) と CO パルス法の結果, 全ての試料で約 2 nm 程度の粒子径の Rh 超微粒子が観察され, Rh 金属表面積が Rh 担持量に比例して増加したことから, Rh 担持量に関わらず Rh 粒子径が一定であることが示唆された。次に, アンモニア TPD 測定によるアンモニア脱離速度の測定結果を図 4 に示す。また XRF から求めた Si/Al 比とそれに基づいた理論固体酸点量, アンモニア TPD 測定から算出した固体酸点量を表 1 に示す。アンモニア TPD 測定では, すべての試料で同程度の固体酸点量が示された。また, アンモニア脱離のピークが Rh 担持によって低温側にずれる現象が観察された。含浸触媒でも同様の現象が観察されたことから, Rh 上でアンモニアが分解され, 生成した水素のスピルオーバーにより吸着しているアンモニアの脱離が促進されたことが原因として考えられる。以上より, Rh@ZSM-5 の合成において, Rh 粒子径を一定

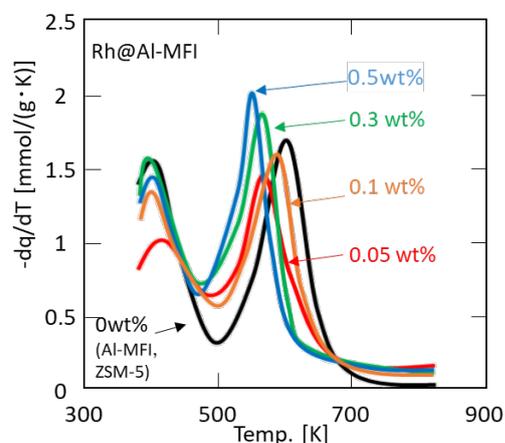


図4 Rh@Al-MFI 触媒のアンモニア TPD

表 1 触媒特性

Rh担持量 [wt%]	0	0.05	0.1	0.3	0.5
Si/Al比 (XRF) [-]	82	84	84	82	86
酸点量 (XRF) [mmol/g]	0.20	0.20	0.20	0.20	0.19
酸点量 (仕込み) [mmol/g]	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16
酸点量 (TPD) [mmol/g]	0.16	0.14	0.15	0.15	0.15

に保ったまま Rh 担持量を変化させることに成功し, Rh 担持量によって金属触媒能を制御可能であることが示唆された。

Rh 担持量の異なる Rh@ZSM-5 を触媒に用いたメタノールの転換反応 (MTO 反応, 反応温度 450 °C, 常圧) を実施した. 図 5 に転化率と生成物選択率を示す. まず, 炭化水素生成に着目すると, MTO 反応由来の炭化水素の生成が確認され, Rh@ZSM-5 の固体酸触媒能が機能していることが確認された. また, 水素の生成と, Rh 上での水素生成に伴う CO, CO<sub>2</sub> 生成が確認された. したがって, Rh@ZSM-5 の Rh 触媒能が機能していることが確認された. また, 水素収率, CO, CO<sub>2</sub> 収率は Rh 担持量の増加に伴って増加した. これは Rh 触媒能の増加によって Rh 上でのメタノール分解が促進されたためだと考えられる. オレフィンの選択率に着目すると, Rh 担持量が 0 wt% から 0.1 wt% に増加すると, C<sub>3</sub>, C<sub>4</sub> オレフィンの選択率が増加した. さらに, Rh の担持により芳香族の生成が抑制されることが明らかとなった.

比較実験として, Si/Al=100, Rh 担持量 0.1 wt% の条件で含浸触媒との比較を行い, バードケージ構造の効果について評価を行った. 含浸法触媒 (Rh/ZSM-5) では, Rh 上での水素生成による C<sub>3</sub>, C<sub>4</sub> オレフィン選択率の向上効果は Rh@ZSM-5 よりも小さい結果となった. Rh@ZSM-5 バードケージ構造触媒では, ゼオライト内部に Rh 超微粒子が存在することで, 細孔内で進行する MTO 反応に対して効果的に水素供給が行われたと考えられる.

以上より, Rh 微粒子がゼオライトに内包された, Rh@ZSM-5 バードケージ構造触媒の開発に成功した. 金属担持量と固体酸量の独立制御を実現すると共に, 両触媒機能を制御することで基礎化学物質である低級オレフィンと芳香族の選択性の制御が達成された.

### (3) Fe@ZSM-5, Co-ZSM-5 バードケージ構造触媒による基礎化学物質合成

Fe 微粒子を内包させた, Fe@MFI バードケージ構造触媒による合成ガスからの基礎化学物質合成を実施した. 固体酸性質の付与として, 水熱合成時に Al 源を投入する方法, もしくは, Fe@SiO<sub>2</sub> を調製後, Al もしくは Ga を SiO<sub>2</sub> に含浸固定化し, 固相転換により触媒を調製した. 酸点となる Al 原子, もしくは Ga 原子を含浸固定化した後, ゼオライト結晶を形成させる固相転換法では, 酸点はゼオライト粒子の外表面近傍に存在していると考えられる. XRF 測定により触媒の構成元素組成を測定したところ, Fe@Ga-MFI の Ga 含有量が小さく (Si/Ga=330), 原料調製において Ga 源がシリカ層上にすべて担持されなかった. NH<sub>3</sub>-TPD 測定より, Fe@Ga-MFI に対し Fe@Al-MFI ではアンモニア脱離ピークが高温側にシフトした. これは Al が Ga よりも強い固体酸点として機能したためである. 調製した触媒を用いた FT 反応の CO 転化率と炭化水素選択率を表 2 に示す. 反応器には, 高圧の固定床流通式反応装置を用いた. 先ず, 希釈水素気流下で 450 °C, 6h の前処理を行った後, 合成ガス (H<sub>2</sub>:CO:Ar=16:8:1) を供給した. 反応実験は, 350°C, 2.0 MPa の高圧条件で実施した. いずれの触媒でも, メタンの選択率は 20%程度以下であり, C<sub>2</sub> 以上の炭化水素, 特にオレフィン・パラフィン類のほか, BTX が生成した. 特に, 酸点を付与した Fe@Al-MFI, Fe@Ga-MFI では, 低級オレフィン選択率の減少と BTX 選択率の増加がみられた. これは, 生成した低級オレフィンからの BTX 生成が進行したと考えられる.

次に, Co 微粒子を内包させた, Co@Al-MFI バードケージ構造触媒による合成ガスからの基礎化

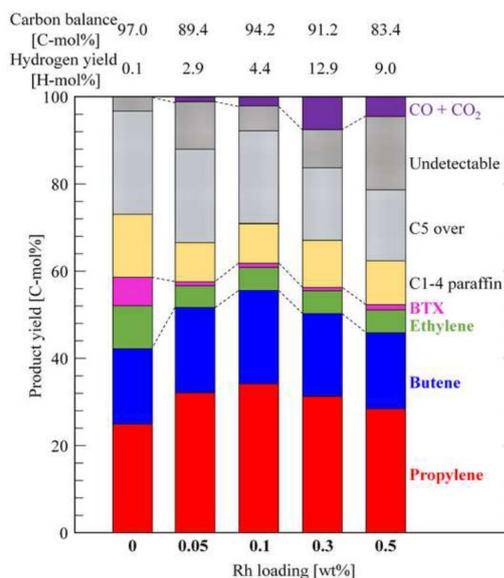


図 5 Rh@Al-MFI によるアルコールからの基礎化学物質合成

表 2 Fe@MFI による合成ガスからの基礎化学物質合成

	転化率 [%]	炭化水素選択率 [%]						
		オレフィン			BTX	C1	パラフィン C <sub>2</sub> -4	C <sub>5</sub> +
		C <sub>2</sub>	C <sub>3</sub>	C <sub>4</sub>				
Fe@Si-MFI	87.8	4.2	8.3	6.2	2.4	12.9	40.5	24.3
Fe@Al-MFI	63.5	3.3	3.5	2.4	4.6	21.8	38.7	25.5
Fe@Ga-MFI	65.6	4.6	5.8	4.3	4.9	18.8	35.8	23

表 3 Co@MFI による合成ガスからの基礎化学物質合成

Catalyst	Co loading [wt%]	CO conversion [%]	Selectivity of gas products [C-mol%]			Isobutane/n-butane ratio
			CH <sub>4</sub>	C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub>	C <sub>5</sub> +	
Co@Ga-MFI	0.85	4.0	64.3	15.0	20.2	0
	0.82	3.3	75.0	14.9	10.1	1.1
Co@Al-MFI	2.7	4.2	66.9	16.4	16.7	0.8

学物質合成を実施した。触媒の前処理は金属種が Fe の場合と同じであり、反応条件は反応温度が 250°C であること以外は同一である。比較のため、酸点が存在しない Co@Si-MFI(Silicalite-1) による反応実験も実施した。生成物組成を表 3 に示す。Fe@Al-MFI と異なり、生成炭化水素は飽和炭化水素が主成分であった。合成ガスから炭化水素を生成する Co の触媒機能に加えて、固体酸点上での異性化が進行し、イソパラフィンの生成が確認された。

#### (4) 結論

以上の結果より、Rh, Fe, Co の各種金属のナノ粒子が MFI 型ゼオライト (Al-MFI である ZSM-5, Ga-MFI, Silicalite-1) により包接された、バードケージ構造触媒の開発に成功した。内包金属種により金属粒子径は異なるが、内包金属に由来する金属触媒能とゼオライトに由来する固体酸触媒能の発現が確認された。合成ガスから生成するアルコールを原料とし、Rh@Al-MFI 触媒による転換を実施したところ、Rh 上でのアルコールの分解による水素生成とゼオライト酸点上でのアルコールからの低級オレフィン生成が達成された。一方、Fe@Al-MFI, Fe@Ga-MFI では合成ガスからの低級オレフィン合成と芳香族合成が達成された。Co@Al-MFI では、イソパラフィンが生成することが確認された。合成ガスに活性を示す金属種をゼオライトによって包接することにより、低級オレフィン、イソパラフィン、芳香族の各基礎化学物質の合成に成功した。

#### <引用文献>

- ① T. Kobayashi, T. Furuya, H. Fujitsuka, T. Tago, “Synthesis of Birdcage-type zeolite encapsulating ultrafine Pt nanoparticles and its application in dry reforming of methane”, Chem. Eng. J., 377, 2019, 120203
- ② 藤墳 大裕, 小林 昂仁, 多湖 輝興, バードケージ型ゼオライトの調製とメタンドライリフオーミング反応への応用, ゼオライト, 36(4), 2019, 106-114
- ③ H. Fujitsuka, S. Oshima, Y. Matsumura, T. Tago, “Synthesis of Rh nanoparticles encapsulated in ZSM-5 and its application for methanol to olefin over acid sites with simultaneous production of hydrogen over Rh”, Catal. Today, in press

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Takahito Kobayashi, Takaaki Furuya, Hiroyasu Fujitsuka, Teruoki Tago	4. 巻 377
2. 論文標題 Synthesis of Birdcage-type zeolite encapsulating ultrafine Pt nanoparticles and its application in dry reforming of methane	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Engineering Journal	6. 最初と最後の頁 120203 ~ 120210
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cej.2018.10.140	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Watanabe Gaku, Nakasaka Yuta, Taniguchi Taichi, Yoshikawa Takuya, Tago Teruoki, Masuda Takao	4. 巻 312
2. 論文標題 Kinetic studies on high-pressure methylation of 2-methylnaphthalene over MTW-type zeolite with different crystal sizes	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chemical Engineering Journal	6. 最初と最後の頁 288 ~ 295
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cej.2016.11.139	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yuta Nakasaka, Teruoki Tago, Takao Masuda	4. 巻 60
2. 論文標題 Synthesis of light olefins from oxygenated organic compounds over metallosilicates with MFI and MTW-type zeolite structures	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Petroleum Institute	6. 最初と最後の頁 277-287
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1627/jpi.60.277	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 藤埴 大裕、小林 昂仁、多湖 輝興	4. 巻 36
2. 論文標題 バードケージ型ゼオライトの調製とメタンドライリフォーミング反応への応用	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ゼオライ	6. 最初と最後の頁 106-114
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.20731/zeorai.to.36.4.106	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Fujitsuka Hiroyasu, Oshima Shuto, Matsumura Yusei, Tago Teruoki	4. 巻 -
2. 論文標題 Synthesis of Rh nanoparticles encapsulated in ZSM-5 and its application for methanol to olefin over acid sites with simultaneous production of hydrogen over Rh	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Catalysis Today	6. 最初と最後の頁 in press
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2020.04.007	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計21件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Takahito Kobayashi, Takaaki Furuya, Hiroyasu Fujitsuka, Teruoki Tago
2. 発表標題 Synthesis of birdcage-type zeolite encapsulating ultrafine Pt nanoparticles and its application to dry reforming of methane
3. 学会等名 25th International Symposium on Chemical Reaction Engineering (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Natnicha Yotpanya, Bruno Nonohay, Hiroyasu Fujitsuka, Chizu Inaki, Shunji Tsuruta, Nakashima Akira, Teruoki Tago
2. 発表標題 Solid-phase Transformation of Amorphous Silica with Aluminum into Zeolite
3. 学会等名 The 31st International Symposium on Chemical Engineering (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroyasu Fujitsuka, Takahito Kobayashi, Takaaki Furuya, Teruoki Tago
2. 発表標題 Synthesis of Birdcage-type Zeolite Encapsulating Pt Nanoparticles and its Catalytic Activity and Thermal Stability for Dry Reforming of Methane
3. 学会等名 International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals (ZMPC) 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小林昂仁, 藤墳大裕, 多湖輝興
2. 発表標題 コーク抑制を可能とするメタンドライリフォーミング用Ni@Silicalite-1触媒の開発
3. 学会等名 ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大島修斗, 松村悠生, 藤墳大裕, 多湖輝興
2. 発表標題 金属超微粒子内包Birdcage構造ゼオライト触媒の開発とMTO反応への適用
3. 学会等名 第50回化学工学会秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 多湖輝興
2. 発表標題 金属超微粒子 内包ゼオライトの調製と触媒 反応への展開
3. 学会等名 第122回 触媒討論会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鶴迫 秀太, 大島 修斗, 藤墳 大裕, 多湖 輝興
2. 発表標題 酸化鉄内包シリカを出発源とした酸化鉄内包Birdcage型ゼオライトの調製
3. 学会等名 第21回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大島修斗, 古屋貴章, 藤墳大裕, 多湖輝興
2. 発表標題 Rh超微粒子内包Birdcage型ZSM-5を用いたメタノールからのオレフィン合成
3. 学会等名 第120回触媒討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小林昂仁, 古屋貴章, 藤墳大裕, 多湖輝興
2. 発表標題 Pt超微粒子内包Birdcage型ゼオライト触媒の開発とメタンドライリフォーミングへの適用
3. 学会等名 第120回触媒討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Nonohay BrunoTakaaki FuruyaHiroyasu FujitsukaTeruoki Tago
2. 発表標題 Synthesis Al-MFI zeolites encapsulating Pt nanoparticles
3. 学会等名 第49回化学工学会秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 藤墳大裕, 小林昂仁, 古屋貴章, 多湖輝興
2. 発表標題 白金超微粒子内包Birdcage型ゼオライト触媒の合成とメタンの二酸化炭素改質への適用
3. 学会等名 第47回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 大島修斗, 松村悠生, 藤墳大裕, 多湖輝興
2. 発表標題 酸量と金属担持量を独立に制御したRh超微粒子内包Birdcage構造ゼオライト触媒の開発
3. 学会等名 第33回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松村悠生, 大島修斗, 藤墳大裕, 多湖輝興
2. 発表標題 Rh超微粒子内包Birdcage型ゼオライトへの酸点導入とメタノール転換反応活性
3. 学会等名 第20回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鶴迫秀太, 藤墳大裕, 多湖輝興
2. 発表標題 合成ガスからのイソパラフィン直接合成を指向したCo微粒子内包ZSM-5触媒の開発
3. 学会等名 第85回化学工学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hiroyasu Fujitsuka, Mai Yamaji, Takashi Yunoue, Teruoki Tago
2. 発表標題 Low temperature olefin production from naphtha by combining dehydrogenation and cracking using metal loaded zeolite
3. 学会等名 International Symposium on Porous Materials 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山地真愛, 湯上天史, 藤墳大裕, 多湖輝興
2. 発表標題 貴金属超微粒子内包ZSM-5ゼオライト触媒によるn-ヘキサンの低温接触分解
3. 学会等名 第49回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鶴迫秀太, 大島修斗, 藤墳大裕, 多湖輝興
2. 発表標題 合成ガスからの芳香族類直接合成を指向した鉄系酸化物内包ZSM-5の調製
3. 学会等名 第124回触媒討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤墳大裕, 小林昂仁, 丁明岐, 多湖輝興
2. 発表標題 メタンCO2改質用Ni微粒子内包ゼオライト触媒の開発と触媒構造による高活性・安定性の実現
3. 学会等名 第124回触媒討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroyasu Fujitsuka, Takahito Kobayashi, Teruoki Tago
2. 発表標題 Preparation of Ni nanoparticles encapsulated in Silicalite-1 zeolite to suppress coke formation during dry reforming of
3. 学会等名 International Zeolite Conference (IZC'19) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroyasu Fujitsuka, Shuto Oshima, Yusei Matsumura, Teruoki Tago
2. 発表標題 The synthesis of ZSM 5-encapsulated Rh fine particles and its application for methanol-to-olefin reaction
3. 学会等名 The 8th Asia Pacific Congress on Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 多湖輝興
2. 発表標題 金属超微粒子内包ゼオライト触媒によるメタン改質
3. 学会等名 触媒学会東日本支部講演会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計3件

産業財産権の名称 貴金属微粒子が内包されたゼオライトの製造法	発明者 多湖輝興, 藤墳大裕, ノノハイブルノ, 稲木千津, 中島	権利者 東京工業大学, 日揮触媒化成
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-183712	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 表面近傍に遷移金属が内包されたゼオライトおよびその製造法	発明者 稲木千津, 鶴田俊二, 中島昭, 多湖輝興, 藤墳大裕	権利者 東京工業大学, 日揮触媒化成
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-222638	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 触媒, 触媒の製造方法, 及び合成ガスの製造方法	発明者 荒木泰博, 多湖輝興, 藤墳大裕美裕, 小林昂仁	権利者 JXTGエネルギー, 東京工業大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-199298	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

## 6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	藤埜 大裕  (Fujitsuka Hiroyasu)  (90757105)	東京工業大学・物質理工学院・助教     (12608)	