

令和 6 年 6 月 25 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01975

研究課題名（和文）金属ナノ粒子への可視・近赤外光照射による二酸化炭素変換と反応場の温度可視化

研究課題名（英文）Photothermal CO<sub>2</sub> conversion over supported metal nanoparticle catalysts under visible and near infra-red irradiation and visualization of the temperature of the reaction field

研究代表者

山本 旭 (Yamamoto, Akira)

京都大学・人間・環境学研究所・助教

研究者番号：30769443

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 14,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では太陽光エネルギーを利用した二酸化炭素の資源化技術の開発を目的として、太陽光加熱型のメタンドライリフォーミング反応の高性能化および光加熱反応中の温度計測手法の開発を実施した。高性能化については本反応用の担持ニッケルナノ粒子触媒を開発し活性および触媒安定性を向上させることに成功した。また、詳細な検討により触媒性能に影響する因子についての知見を得た。温度計測についてはX線吸収分光を利用した手法でリアクター内部の触媒温度を光照射下・触媒反応中に非接触で分析することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

研究成果は、光加熱型のメタンドライリフォーミングのための触媒開発の指針となるものであり、高活性と高耐久性を実現する新規触媒材料開発に繋がるものであると期待される。材料以外の観点でも得られた知見はリアクターや反応条件などを含む触媒システム開発にも有益な情報である。また、反応中の触媒温度は触媒性能の理解に必須の情報のため本研究で開発した解析法を含めた温度計測手法は今後の光加熱型の反応系開発において学術および実用面の発展のための基盤的な技術となるものである。

研究成果の概要（英文）：Conversion and utilization of CO<sub>2</sub> using catalysis is a crucial technology to control the emission of CO<sub>2</sub> and recycle CO<sub>2</sub> as a carbon source. In the present study, we developed catalysts for dry reforming of methane using photothermal heating and a temperature measurement method during the photothermal reaction through X-ray absorption spectroscopy. For the performance, we developed the supported nickel catalysts for the photothermal dry reforming with enhanced catalytic activity and improved resistance for coke formation and sintering of catalytically active metal nanoparticles. Additionally, we successfully obtained the temperature of the supported metal nanoparticles inside the glass reactor under visible/near-IR light irradiation during the photothermal catalytic reaction with high time resolutions using dispersive X-ray absorption spectroscopy.

研究分野：触媒化学

キーワード：光熱変換 温度計測 二酸化炭素 金属ナノ粒子触媒 太陽光エネルギー メタン 改質反応 X線吸収分光

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

### 1. 研究開始当初の背景

二酸化炭素とメタンを触媒的に反応させて化成品原料として有用な合成ガス(一酸化炭素と水素の混合ガス)を得るメタンドライリフォーミング(DRM)反応は二酸化炭素の資源化の点で重要な触媒技術である。一方で本反応は激しい吸熱反応のため、反応を進行させるためには熱力学的な制約から 873 K 以上の高温が必要である。通常の触媒プロセスの場合、加熱のための熱エネルギーはメタンの燃焼によって賄われるため、それに伴うメタン利用率の低下と二酸化炭素の排出が避けられない。この加熱のための熱エネルギーを集光した太陽光による加熱作用によって供給することにより、メタン利用率の向上と二酸化炭素排出量の削減が可能になる。

集光した太陽光を利用した DRM 反応(図 1)では、これまでに多くの研究がなされてきており、Ni, Rh, Ru などの金属ナノ粒子を担持した典型的な触媒材料を用いた検討が研究開発の中心であった<sup>1,2</sup>。一方で、近年では触媒材料開発に重点を置いた報告が増えてきている。熱触媒的な DRM 反応でも中心的な問題である触媒劣化は、光加熱系でも大きな課題となっている。触媒劣化は主に(1)炭素析出と(2)金属ナノ粒子の凝集による金属活性サイト数の減少に起因する。熱力学的な平衡からは炭素析出は低温で有利であり、金属ナノ粒子の凝集は高温で進行しやすい。すなわち、温度条件によって触媒劣化の主要因が変化する。一方で、太陽光の集光利用を想定した場合には、集光した光スポットの中心から外部に向かって温度勾配でき触媒層は様々な温度を有する反応場となると想定される。このような反応場で、炭素析出と金属ナノ粒子の凝集の両方を抑制するためには触媒材料自体の更なる改良が求められる。

一方で、反応温度は、材料の触媒性能を理解するうえで最も基本的な情報の 1 つであるが、光加熱系では 3 次元の温度勾配を有する反応場が形成されるため、その温度計測は容易ではない。また、触媒層に集光した光を直接照射して触媒反応を実施するため、直接加熱される触媒層の温度が最も高温となり、ガラス製のリアクター表面の温度はそれよりも低くなると推測される。反応性能の解釈の上で最も直接的な温度情報はリアクター内部の触媒層のものであるが、光照射下での温度勾配を有する反応場においてその測定には課題があった。そこで、本研究では温度計測手法に関する検討も実施する計画とした。

ガラス製のリアクター表面の温度は、光照射下の条件下であっても適切な検出波長の放射温度計を用いることで測定可能である。一方で、可視から赤外域の幅広い波長の光照射下で触媒層の内部温度を得ることは、放射温度計では容易ではない。また、温度計測手法として一般的な熱電対も、触媒顆粒が充填された厚さ 1 mm 程度の石英製リアクター内部の温度を高精度で測定することは難しい。そこで我々は X 線吸収分光(XAFS)を利用した温度計測に着眼した。XAFS では元素選択的な情報が得られ、かつ X 線はエネルギー帯にもよるがガラスなどを透過可能であるため、ガラス内部などの物体の情報を非接触で得ることが可能である。本手法では、XAFS スペクトルを解析して得られる Debye-Waller (DW) 因子を温度の指標として温度測定が可能であることが報告されている<sup>3,4</sup>。

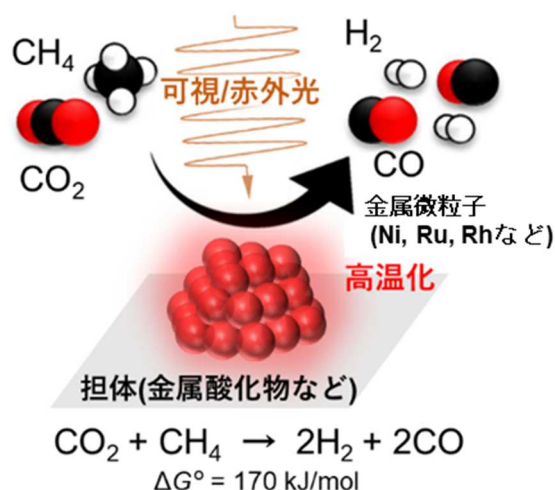


図 1 光加熱を利用した DRM 反応のイメージ。

### 2. 研究の目的

本研究では、(1)光加熱型 DRM 反応に有効な触媒材料の開発および(2)XAFS を利用した光加熱下での反応中の触媒層の内部温度計測手法の確立を研究の目的とした。

### 3. 研究の方法

(1)ニッケルフィロシリケートを前駆体とした触媒材料の開発と光加熱型 DRM 反応への応用<sup>5</sup>

ニッケル粒子の微細化と触媒安定性の向上を目的として、ニッケルフィロシリケートの熱分解を利用した担持ニッケル触媒の調製を実施した。具体的には、担体として直径が 50 nm 程度の球状シリカ(Sciqaq, 0.05 μm, 堺化学工業株式会社から提供)、ニッケル前駆体として硝酸ニッケル(II)六水和物を用い、これらをアンモニア水溶液中(100 mL)に加え、常温で 1 日攪拌した後に、363 K で加熱して蒸発乾固させた(Ni 担持率: 25wt%)。この際にシリカとニッケルが反応しシリカ表面にニッケルフィロシリケートが形成される。その後、マッフル炉を用いて得られた粉末を 723 K で 2 時間焼成した。このときにアンモニア水の濃度 ( $x = 0, 1.4, 15 \text{ mol L}^{-1}$ ) を変化させ、3 種類のシリカ担持ニッケル触媒を調製した。調製した触媒を以降では、アンモニア濃度を用いて Ni/SiO<sub>2</sub>(x)と表記する。光加熱型ドライリフォーミング反応の活性試験には、固定床流通型反応装置を用いた。触媒(0.3 g)を反応セル (照射面積 20 mm × 20 mm, 厚み約 1 mm)に充填し、酸

化処理(100%O<sub>2</sub>, 5 ml min<sup>-1</sup>, 723 K)と還元処理(10%H<sub>2</sub>/Ar, 20 ml min<sup>-1</sup>, 873 K)を30分間ずつ行った。その後、室温にて反応ガス(12.5%CO<sub>2</sub>/10%CH<sub>4</sub>/5%N<sub>2</sub>/Ar, 200 ml min<sup>-1</sup>)を導入し、集光レンズと光学フィルター(透過波長, λ > 430 nm)を取り付けた Xe ランプ(300W, 光照射出力: 17.3 W)によって可視・近赤外光を照射した。反応物および生成物の定量は熱伝導度検出器付きのガスクロマトグラフ(GC)を用いた。

#### (2)XAFS を利用した担持 Rh ナノ粒子の温度計測<sup>6</sup>

本検討では、吸収端エネルギーを考慮してロジウムを触媒活性元素として選択した。ロジウム担持アルミナ触媒は典型的な含浸法にて調製した(Rh 担持率: 25wt%)。この際には Rh 粒子径の異なる試料を得るために、Rh 前駆体と熱処理温度を変更し、Rh 粒子径が 3.3, 9.2, 16 nm のものを調製した。以降では調製した触媒を Rh 粒子径(y)を用いて Rh(y)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と表記する。典型的な XAFS 測定では 1 スペクトルを得るために数秒程度からそれ以上の測定時間を要するため、過渡的な変化を捉えるには時間分解能が不十分であると考え、本研究では Dispersive XAFS (DXAFS)を採用した。DXAFS では、X 線を波長分散にすることにより、ミリ秒程度の時間分解測定が可能である。オペランド DXAFS 測定は SPring-8 の BL28B2 にて行った。ペレット状にした触媒を反応器(図 2a)にセットし、酸化還元処理を 673 K で行った。前処理後に触媒部をヒーターで加熱し、サンプルの背面に配置された熱電対の温度を基準として各温度で DXAFS 測定を行い、スペクトルの温度依存性を取得し、これを用いて光照射下での温度を見積もった。その後、反応ガス(12.5%CO<sub>2</sub>/10%CH<sub>4</sub>/He, 50 ml min<sup>-1</sup>)流通下で DXAFS の連続測定(28 ms spectrum<sup>-1</sup>)を開始し、可視・近赤外光の ON/OFF を行った(測定中の写真: 図 2b)。可視・近赤外光の照射には光学フィルター(透過波長, λ > 430 nm)と集光レンズを取り付けた Xe ランプ(300W, 光照射出力: 9.8 W)を使用した。また、反応後のガスをマイクロ-GC により分析し、反応物および生成物の定量を行った。

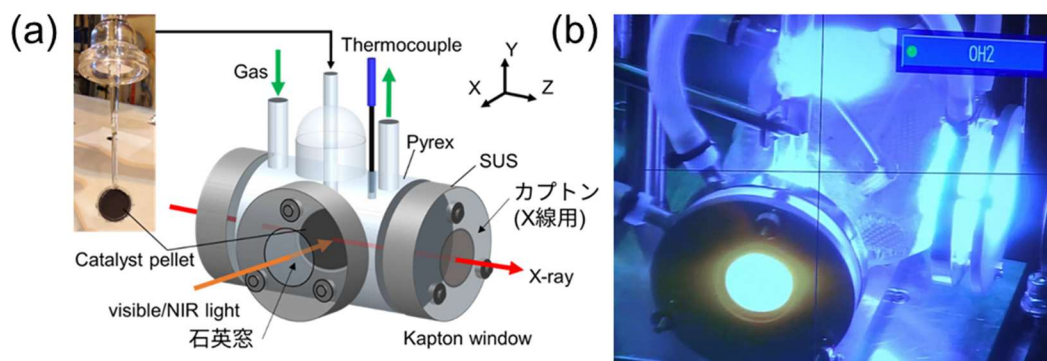


図 2 光加熱型 DRM 反応を実施中に DXAFS 測定を行うための分析セルの模式図(一部省略, a)と実際の測定中の写真(b)。DXAFS 測定は SPring-8 の BL28B2 にて実施した。

## 4. 研究成果

### (1)ニッケルフィロシリケートを前駆体とした触媒材料の開発と光加熱型 DRM 反応への応用<sup>5</sup>

アンモニア水溶液を蒸発乾固した後の Ni/SiO<sub>2</sub>(x)試料の TEM 像(図 3)から、アンモニアなしの条件(x=0)では球状シリカをニッケル種が覆った構造体が観察された。一方で、アンモニアを加えたサンプルでは、アンモニアなしの条件で観察されなかったナノシート状の積層物が確認された。TEM, STEM-EDX, XRD から観察された積層物はニッケルフィロシリケートであることが確認された。また水素還元後の触媒の TEM 像からニッケルの平均粒子径(D)は、アンモニアを添加しない場合で 14 nm であり、アンモニア濃度の上昇に伴って低下した。また、TEM, STEM-EDX 測定から、Ni 粒子表面の一部をシリカが被覆していることがわかった。ニッケルフィロシリケートの還元分解を利用することにより、シリカに被覆されたニッケルナノ粒子を高分散状態で担持することができた。

調製した触媒を用いて光加熱下の DRM 反応を実施したところ、アンモニアなしの条件では低活性であったのに対して、アンモニアを加えた触媒では高い活性が得られた。高活性化の要因の 1 つは、ニッケルが高分散に担持されているためであると考えられる。また、いずれの触媒でも炭素析出が起こったが、アンモニアを加えた触媒では一定の炭素析出の抑制効果が認められた。また、アンモニアを加えた試料では顕著な粒子径の増大抑制効果が見られた。これは表面に析出したシリカ層がニッケルの粒成長を抑制したためと推察される。また、ニッケルの担持量を変化させた詳細な検討を実施し、試料の熱伝導率や光吸収特性が触媒性能に与える影響についても検討を実施した。以上より、ニッケルフィロシリケートを経由した触媒調製法の有効性を調査し、光加熱型 DRM 反応においても炭素析出抑制および金属ナノ粒子の凝集抑制の点で効果的であることが分かった。一方で、本材料系でも一定の炭素析出が確認されたため、今後の展開としては更なる安定性向上に向けた取り組みが 1 つの方向性となると考えられる。

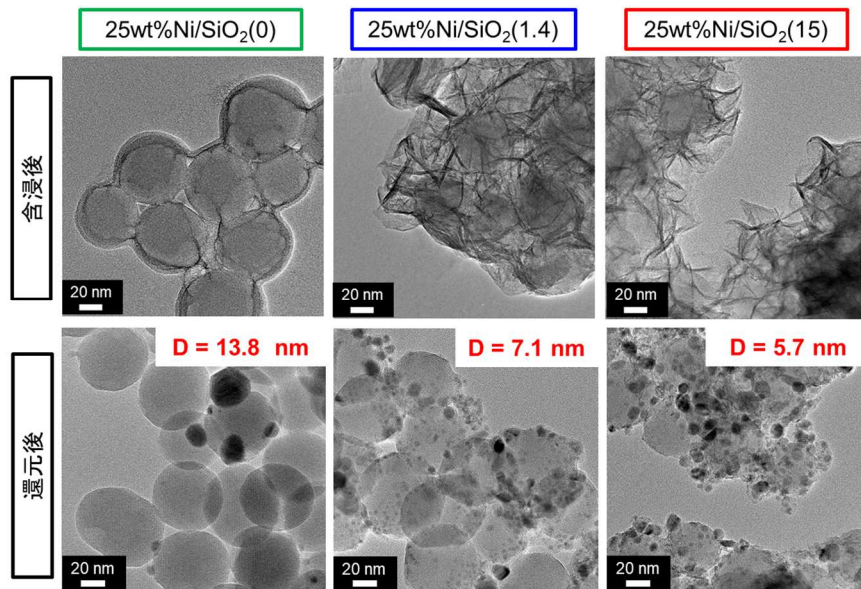


図 3 Ni/SiO<sub>2</sub>(x)触媒の TEM 像. 上段は含浸後, 下段は還元後の触媒.

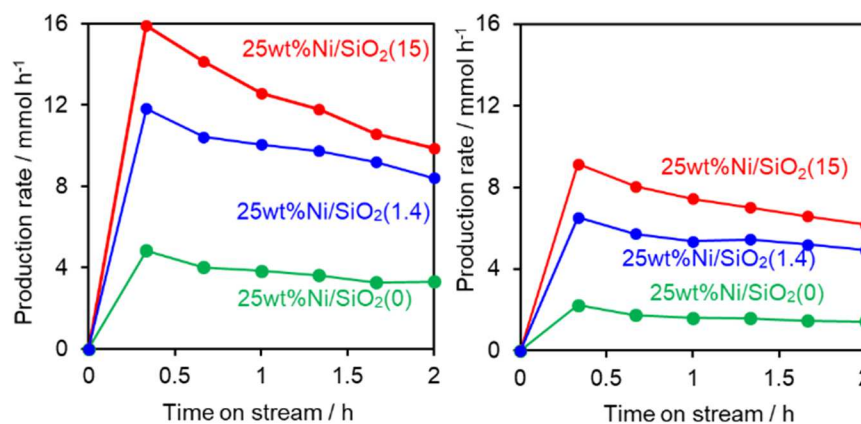


図 4 Ni/SiO<sub>2</sub>(x)触媒を用いた光加熱下での DRM 反応の結果. ガラス表面の温度を放射温度計で測定したところ, リアクターの最高表面温度は 762~778 K 程度であった.

## (2)DXAFS を利用した担持 Rh ナノ粒子の温度計測<sup>6</sup>

XAFS を利用した温度計測をするために大型放射光施設 SPring-8 で分析系を構築した. 本検討では, 光加熱型の DRM 反応中に, DXAFS と生成物分析の同時分析を実施した. また, 既報では XAFS スペクトルの解析で得られる DW 因子と温度の関係を得ることにより, 反応中などの条件での温度の見積りが実施されてきた<sup>3,4</sup> (以降では DW 法と表記する). 本研究では, より簡便かつ高精度な温度計測を可能にする温度指標として, フーリエ変換した XAFS スペクトルの Rh-Rh 散乱バンドのピーク高さを利用する方法を提案した. 今回の DXAFS 測定では 1 サンプルに対する一連の測定で数千本のスペクトルが得られるが, これを解析し, 適切な条件を設定することはそのための労力を要するだけでなく, 解析に由来する誤差範囲の増大を招く恐れがある. 我々の提案した手法では, 単にスペクトルの強度を用いるため, カーブフィッティング解析が不要であり単純な計算のみでピーク強度を温度に変換可能である. 本研究課題で開発した本手法を intensity 法と命名した<sup>6</sup>. 各温度で 5 回測定したスペクトルから DW 法と intensity 法を用いて温度を見積り, 逆推定の 95%信頼区間を求めたところ DW 法で $\pm 4.5$  K, Int 法で $\pm 3.5$  K であり

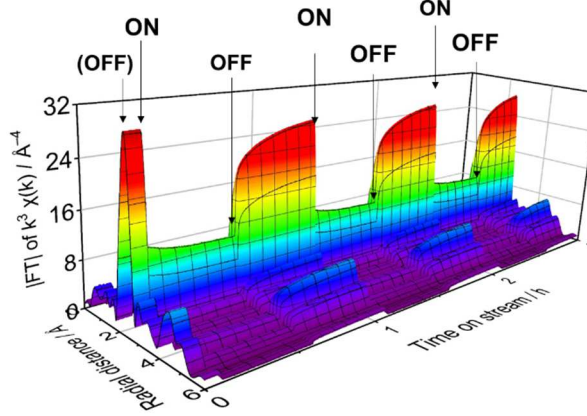


図 5 光加熱を利用した DRM 反応中におけるフーリエ変換後の EXAFS スペクトルの変化.

intensity 法の方が高い精度が得られた。これは intensity 法の結果では、上述の通りカーブフィッティング解析の誤差を含まないためであると考えられる。すなわち、今回提案した intensity 法は高精度かつシンプルな手法であると言える。以降では、intensity 法を用いた解析結果を示す。

最初に、XAFS を利用した温度計測手法の適用範囲を検討したところ、Rh 粒子径の小さい試料(Rh 粒子径: 3.3 nm)では反応前後で Rh 種の構造変化が起こるため本手法の適用は困難であることが分かった(詳細は論文に記載<sup>6)</sup>)。そこで Rh(9.2)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用いて実験を実施したところ、温度計測に成功した。DRM 反応中における光照射 ON/OFF に伴うスペクトルの変化を図 5 に示す。光照射を行うと加熱作用により最大ピークの強度が低下し、光照射をやめると強度が回復している。このピークトップ強度から、温度を見積もった結果を図 6a,b(青)に示している。光照射の直後に Rh ナノ粒子の温度は 600 K 以上になっていることがわかる。同時に行った生成物分析から温度の上昇に伴って CO および H<sub>2</sub> の生成が確認された(図 6c,d(青))。光加熱により高温化した Rh ナノ粒子上で DRM 反応が進行しているものと考えられる。また、CO と H<sub>2</sub> の量が反応式通りに同量でないことは副反応のためである<sup>7)</sup>。さらに、Rh 粒子径の異なるサンプルの場合、温度の上昇挙動が異なることが分かった(この理由に関する議論は論文に記載<sup>6)</sup>)。またどちらの粒子径の場合でも最初の光照射開始時では温度上昇挙動およびガスの生成挙動が、2 回目、3 回目の光照射時とは異なる様子が観察された。この要因については赤外分光を用いて検討し、中間体の蓄積によるものと推定した。以上の通り、XAFS を用いた光照射下での温度計測を実施し、光加熱下の DRM 反応中で Rh ナノ粒子の温度計測が可能であることを示した。

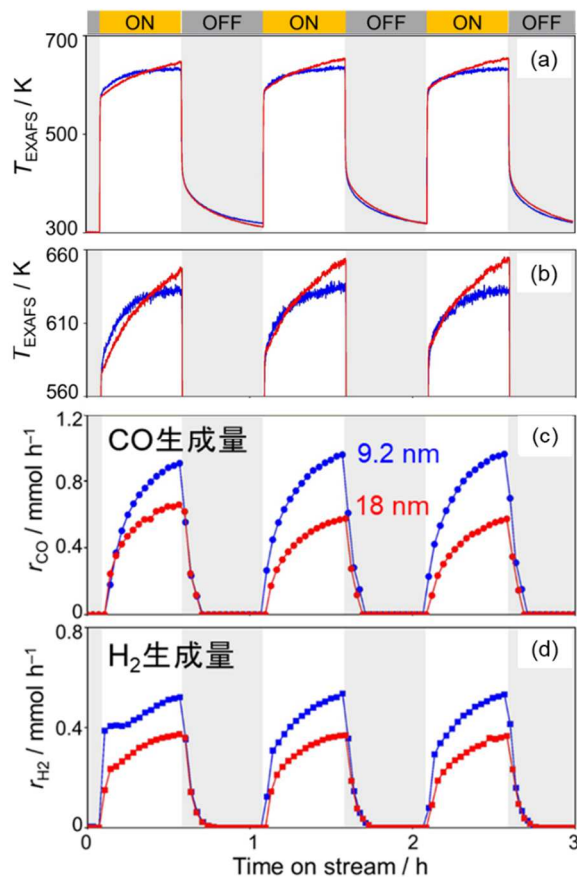


図 6 光加熱を利用した DRM 反応中における各種分析結果. (a): DXAFS から見積もった Rh ナノ粒子の温度, (b): (a)の拡大図, (c): CO 生成速度, (d): H<sub>2</sub> 生成速度. 青: Rh(9.2)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 赤: Rh(16)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

#### [参考文献]

1. D. S. A. Simakov, M. M. Wright, S. Ahmed, E. M. A. Mokheimer and Y. Román-Leshkov, *Catal. Sci. Technol.*, 2015, **5**, 1991-2016.
2. T. Kodama, *Prog. Energy Combust. Sci.*, 2003, **29**, 567-597.
3. B. Van de Broek, D. Grandjean, J. Trekker, J. Ye, K. Verstreken, G. Maes, G. Borghs, S. Nikitenko, L. Lagae, C. Bartic, K. Temst and M. J. Van Bael, *Small*, 2011, **7**, 2498-2506.
4. T. Ano, S. Tsubaki, A. Liu, M. Matsuhisa, S. Fujii, K. Motokura, W.-J. Chun and Y. Wada, *Commun. Chem.*, 2020, **3**, 86.
5. D. Takami, J. Tsubakimoto, W. Sarwana, A. Yamamoto and H. Yoshida, *ACS Appl. Energy Mater.*, 2023, **6**, 7627-7635.
6. D. Takami, A. Yamamoto, K. Kato, T. Shishido and H. Yoshida, *J. Phys. Chem. C*, 2022, **126**, 15736-15743.
7. D. Takami, Y. Ito, S. Kawaharasaki, A. Yamamoto and H. Yoshida, *Sustain. Energy Fuels*, 2019, **3**, 2968-2971.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計22件（うち査読付論文 22件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Takami Daichi, Tsubakimoto Junya, Sarwana Wirya, Yamamoto Akira, Yoshida Hisao	4. 巻 6
2. 論文標題 Photothermal Dry Reforming of Methane over Phyllosilicate-Derived Silica-Supported Nickel Catalysts	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 7627 ~ 7635
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.3c01065	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 Takami Daichi, Tsubakimoto Junya, Sarwana Wirya, Yamamoto Akira, Yoshida Hisao	4. 巻 6
2. 論文標題 Photothermal Dry Reforming of Methane over Phyllosilicate-Derived Silica-Supported Nickel Catalysts	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 7627 ~ 7635
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.3c01065	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 Takami Daichi, Yamamoto Akira, Kato Kazuo, Shishido Tetsuya, Yoshida Hisao	4. 巻 126
2. 論文標題 Transient Temperature Response of Supported Rh Nanoparticles in Photothermal Dry Reforming of Methane An Operando Dispersive X-ray Absorption Spectroscopy Study	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 15736 ~ 15743
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c05291	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 Sarwana Wirya, Yamamoto Akira, Yoshida Hisao	4. 巻 411-412
2. 論文標題 Granule of potassium hexatitanate fine crystals for photocatalytic steam reforming of methane	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Catalysis Today	6. 最初と最後の頁 113858 ~ 113858
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2022.07.026	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 Sarwana Wirya, Takami Daichi, Yamamoto Akira, Yoshida Hisao	4. 巻 13
2. 論文標題 Photothermal steam reforming of methane over silica-supported nickel catalysts with temperature gradients	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Catalysis Science & Technology	6. 最初と最後の頁 1755 ~ 1762
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2CY01721K	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yamamoto Akira, Liu Xueshi, Arashiba Kazuya, Konomi Asuka, Tanaka Hiromasa, Yoshizawa Kazunari, Nishibayashi Yoshiaki, Yoshida Hisao	4. 巻 62
2. 論文標題 Coordination Structure of Samarium Diodide in a Tetrahydrofuran/Water Mixture	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 5348 ~ 5356
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.2c03752	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 Singh Surya Pratap, Yamamoto Akira, Fudo Eri, Tanaka Atsuhiko, Kominami Hiroshi, Yoshida Hisao	4. 巻 11
2. 論文標題 A Pd-Bi Dual-Cocatalyst-Loaded Gallium Oxide Photocatalyst for Selective and Stable Nonoxidative Coupling of Methane	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 13768 ~ 13781
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.1c03786	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 Fujita Masami, Yamamoto Akira, Tsuchiya Naoki, Yoshida Hisao	4. 巻 14
2. 論文標題 Hydrogen Adsorption/Desorption Isotherms on Supported Platinum Nanoparticles Determined by in situ XAS and XANES Analysis	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ChemCatChem	6. 最初と最後の頁 e202101709
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cctc.202101709	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 Singh Surya Pratap, Yamamoto Akira, Yoshida Hisao	4. 巻 12
2. 論文標題 Nonoxidative coupling of ethane with gold loaded photocatalysts	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Catalysis Science & Technology	6. 最初と最後の頁 1551 ~ 1561
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CY02193A	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44件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 13件)

1. 発表者名 Wenyi Guo, Yamamoto Akira, Teppei Ohori, Naoya Ishikawa, Yoshida Hisao
2. 発表標題 Heat-Assisted Photocatalytic Methane Combustion over ZnO Photocatalyst
3. 学会等名 The 19th Korea-Japan Symposium on Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hongxuan Qiu, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Carbon dioxide reduction in water with gallium oxide-assisted silver-loaded calcium titanate
3. 学会等名 The 19th Korea-Japan Symposium on Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 山本 旭, Wirya Sarwana, 西野 優冴, 高見 大地, 吉田 寿雄
2. 発表標題 可視/近赤外光利用型メタン水蒸気改質反応における温度勾配効果
3. 学会等名 石油学会 第65回年会 (第71回研究発表会)
4. 発表年 2023年



1. 発表者名 西野優冴, Wirya Sarwana, 高見大地, 山本旭, 吉田寿雄
2. 発表標題 光形成型温度勾配を利用したメタン水蒸気改質反応
3. 学会等名 第42回光がかかわる触媒化学シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 山本 旭, Wirya Sarwana, 西野 優冴, 高見 大地, 吉田 寿雄
2. 発表標題 フォトサーマルメタン水蒸気改質反応における温度勾配効果
3. 学会等名 第42回光がかかわる触媒化学シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Wenyi Guo, 山本旭, 大堀鉄平, 石川直也, 吉田寿雄
2. 発表標題 Ce修飾ZnO光触媒を用いた熱アシスト型メタンの光酸化反
3. 学会等名 第42回光がかかわる触媒化学シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hongxuan Qiu, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Gallium oxide assisting Ag-loaded calcium titanate photocatalyst for carbon dioxide reduction with water
3. 学会等名 第19回触媒化学ワークショップ
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hamada A. EL-Naggar, Daichi Takami, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Optimization of Photothermal Dry Reforming of Methane using stable Co-Ni catalyst
3. 学会等名 第19回触媒化学ワークショップ
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 西野優冴, Wirya Sarwana, 高見大地, 山本旭, 吉田寿雄
2. 発表標題 担持ニッケル触媒を用いた光熱変換型メタン水蒸気改質反応における温度勾配効果
3. 学会等名 第132回 触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Wenyi Guo, Akira Yamamoto, Teppei Ohori, Naoya Ishikawa, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Heat-Assisted Photocatalytic Methane Combustion over Ce Modified ZnO Photocatalysts
3. 学会等名 第132回 触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 鐘源, 山本旭, 吉田寿雄
2. 発表標題 チタン酸カリウム触媒光触媒による非酸化のメタンカップリング
3. 学会等名 第17回 触媒道場
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Wenyi Guo, 山本旭, 大堀鉄平, 石川直也, 吉田寿雄
2. 発表標題 Ce/ZnO触媒による熱アシスト型低濃度メタン光酸化反応
3. 学会等名 第17回 触媒道場
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 西野優汰, Wirya Sarwana, 高見大地, 山本旭, 吉田寿
2. 発表標題 担持金属触媒を用いた光熱変換型メタン水蒸気改質反応における温度勾配効果
3. 学会等名 第17回 触媒道場
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 山本 旭
2. 発表標題 光加熱を利用した触媒のメタン変換
3. 学会等名 2023年度 JPIJS講演会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Wenyi Guo, Akira Yamamoto, Teppei Ohori, Naoya Ishikawa, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Enhanced Methane Combustion via Ce-Modified Zinc Oxide Photocatalysts with Heat Assistance
3. 学会等名 Osaka-Kansai International Symposium on Catalysis (OKCAT2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yuan Zhong, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Non-oxidative coupling of methane with potassium titanate photocatalysts
3. 学会等名 Osaka-Kansai International Symposium on Catalysis (OKCAT2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hamada A. EL-Naggar, Daichi Takami, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Optimized temperature-gradient in photothermal dry reforming of methane
3. 学会等名 Osaka-Kansai International Symposium on Catalysis (OKCAT2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hamada A. EL-Naggar, Daichi Takami, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Cobalt-Nickel Alloy Nanocatalyst ENcapsulated by Gas Diffusive SiO <sub>2</sub> Shell for Photothermal Dry Reforming of Methane
3. 学会等名 Materials Research Meeting (MRM2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高見大地, 山本旭, 宍戸哲也, 吉田寿雄
2. 発表標題 Operando DXASによる光熱変換型メタンドライリフォーミング反応中のRhナノ粒子の温度測定
3. 学会等名 第41回光がかかわる触媒化学シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 橋本純也・高見大地・山本旭・吉田寿雄
2. 発表標題 Ni@SiO <sub>2</sub> コアシェル触媒を用いた光熱変換型メタンドライリフォーミング
3. 学会等名 第41回光がかかわる触媒化学シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Surya Pratap Singh, Akira Yamamoto, Eri Fudo, Atsuhiko Tanaka, Hiroshi Kominami, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Photocatalytic nonoxidative coupling of methane over the Pd-Bi loaded gallium oxide
3. 学会等名 The 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (TOCAT9) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Junya Tsubakimoto, Daichi Takami, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Photothermal Dry Reforming of Methane over Silica-Supported Nickel Catalysts under Visible and Near-infrared Light Irradiation
3. 学会等名 The 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (TOCAT9) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Wirya Sarwana, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Granule of potassium hexatitanate fine crystals for photocatalytic steam reforming of methane
3. 学会等名 The 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (TOCAT9) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Daichi Takami, Akira Yamamoto, Tetsuya Shishido, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Temperature Determination of Rh Nanoparticles in Photothermal Dry Reforming by Operando Dispersive X-ray Absorption Spectroscopy
3. 学会等名 The 9th international symposium of Institute for Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山本旭
2. 発表標題 XAFSを用いた金属ナノ粒子触媒のin situ/operando分析
3. 学会等名 第7回SPring-8先端放射光技術による化学イノベーション研究会 / 第79回SPring-8先端利用技術ワークショップ (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高見大地, 山本旭, 吉田寿雄
2. 発表標題 光熱変換型メタンドライリフォーミングにおける担持ニッケル触媒とセラミックスとの物理混合の効果
3. 学会等名 第130回触媒討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 椿本純也、高見大地、山本旭、吉田寿雄
2. 発表標題 Ni@SiO <sub>2</sub> コアシェル触媒を用いた光熱変換型メタンドライリフォーミング
3. 学会等名 第130回触媒討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hamada A. EL-Naggar, Daichi Takami, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Role of Trace Amounts of Cobalt into Silica-Encapsulated Nickel Catalysts for Photothermal Dry Reforming of Methane
3. 学会等名 Osaka-Kansai International Symposium on Catalysis (OKCAT) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuko Nishino, Wirya Sarwana, Daichi Takami, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Controllable Product Selectivity by Light Position in Photothermal Steam Reforming of Methane
3. 学会等名 Osaka-Kansai International Symposium on Catalysis (OKCAT) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西野 優冴, Wirya Sarwana, 高見 大地, 山本 旭, 吉田 寿雄
2. 発表標題 担持ニッケル触媒を用いた光熱変換型メタン水蒸気改質反応における光照射位置の効果
3. 学会等名 日本化学会第103春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 杉谷美里、高見大地、山本旭、吉田寿雄
2. 発表標題 可視・近赤外光を利用したドライリフォーミング反応中のNi触媒のオペランドXAS分析
3. 学会等名 第 12 回触媒科学研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Surya Pratap Singh, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Selective non-oxidative coupling of methane over the palladium-bismuth dual cocatalyst loaded gallium oxide photocatalyst
3. 学会等名 第40回光がかかわる触媒化学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高見大地, 山本旭, 吉田寿雄
2. 発表標題 光照射下でのOperando Dispersive XAS測定によるメタンドライリフォーミング反応中のロジウムナノ粒子の温度測定
3. 学会等名 第18回触媒化学ワークショップ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Surya Pratap Singh, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 A Pd-Bi dual-cocatalyst loaded gallium oxide photocatalyst for selective and stable non-oxidative coupling of methane
3. 学会等名 第18回触媒化学ワークショップ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Wirya Sarwana, Akihiko Anzai, Daichi Takami, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Carbon Monoxide Formation as an Intermediate Product in Photocatalytic Steam Reforming of Methane with Lanthanum-Doped Sodium Tantalate
3. 学会等名 第18回触媒化学ワークショップ
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 杉谷美里、高見大地、山本旭、吉田寿雄
2. 発表標題 可視・近赤外光の集光を利用したドライリフォーミング
3. 学会等名 第18回触媒化学ワークショップ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 橋本純也、高見 大地、山本 旭、吉田 寿雄
2. 発表標題 第18回触媒化学ワークショップ
3. 学会等名 担持ニッケル触媒を用いた光熱変換型メタンドライリフォーミングにおけるニッケル前駆体の効果
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高見大地、山本旭、吉田寿雄
2. 発表標題 DXAFS測定による光熱変換メタンドライリフォーミング反応中のロジウムナノ粒子の温度測定
3. 学会等名 第128回 触媒討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Surya Pratap Singh, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Stable and selective non-oxidative coupling of methane over the Pd-Bi dual cocatalyst loaded gallium oxide photocatalyst
3. 学会等名 第128回 触媒討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 杉谷美里、高見大地、山本旭、吉田寿雄
2. 発表標題 可視・近赤外光の集光を利用したドライリフォーミング反応
3. 学会等名 第128回 触媒討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Wirya Sarwana, Akira Yamamoto, Hisao Yoshida
2. 発表標題 Photocatalytic Steam Reforming of Methane over Modified Potassium Hexatitanate Prepared by a Flux Method
3. 学会等名 第128回 触媒討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Akira Yamamoto, Masami Fujita, Naoki Tuchiya, Hisao Yoshida
2. 発表標題 In-situ XAS Approach to Make Hydrogen Adsorption/Desorption Isotherms on Supported Platinum Nanoparticle Catalyst
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本旭
2. 発表標題 オペランドDXAFSによる光反応中の貴金属触媒の局所温度測定
3. 学会等名 第31回キャラクタリゼーション講習会(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高見大地, 山本旭, 宍戸哲也, 吉田寿雄
2. 発表標題 時分割DXASによる光熱変換型ドライリフォーミング中のRhナノ粒子触媒の局所温度測定
3. 学会等名 第129回触媒討論会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

京都大学大学院人間・環境学研究科 吉田寿雄研ホームページ <a href="http://yoshida.jinkan.kyoto-u.ac.jp/">http://yoshida.jinkan.kyoto-u.ac.jp/</a>
---

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

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------