

平成 30 年 5 月 28 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K06567

研究課題名(和文) 二酸化炭素の高速転換反応プロセス構築のための触媒表面種のダイナミクス解析

研究課題名(英文) Dynamics Analysis of Surface Species on the Catalysts for High Throughput CO<sub>2</sub> Conversion Process

研究代表者

西山 覚 (Nishiyama, Satoru)

神戸大学・工学研究科・教授

研究者番号：00156126

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：CH<sub>4</sub>およびCO<sub>2</sub>のパルス実験から活性成分のNi表面では、CH<sub>4</sub> C+2H<sub>2</sub>の反応が進行していることが明らかとなった。これまでの報告されているCH<sub>x</sub>中間体のx=0の炭素種(coke)にまで脱水素される。生成したcokeは反応中間体であるが、活性劣化を引き起こす種でもある。生成するcokeには少なくとも2種類存在し、一方は、より低温で除去される高活性coke、もう一方は、反応性が極めて低いcokeでこれが活性劣化の原因であることがわかった。劣化をもたらすcokeと反応中間体であるcokeを区別できるので、活性を犠牲にせず安定性を高める可能性が示された。

研究成果の概要(英文)：Methane total decomposition, CH<sub>4</sub> C+2H<sub>2</sub>, is confirmed to be the first step of Methane Dry Reforming (MDR) by using pulse experiments with CH<sub>4</sub> and CO<sub>2</sub>. The intermediate which has been reported contains no hydrogen atom. Even though the formed carbon (coke) from CH<sub>4</sub> is one of the intermediates of MDR, it can be converted to a poisonous material on the Ni surfaces. At least two kinds of coke were formed on the Ni surfaces, confirming by Temperature Programmed Oxidation experiments of coke on the catalysts. One is a reactive coke and the intermediate of MDR, and the other is a poisonous coke on the Ni surfaces. These results clearly indicate that the stability of the MDR process can be improved without sacrificing its activity.

研究分野：Process Engineering

キーワード：メタン 二酸化炭素 ドライリフォーミング 水素製造 ニッケル触媒 炭素質蓄積 活性劣化 反応機構

### 1. 研究開始当初の背景

日本における CO<sub>2</sub> の総排出量の内、40 % がエネルギー転換部門、25 % が産業部門である。それらの多くが電気や熱エネルギーを生産することで排出されている。その多くが固定発生源で、CO<sub>2</sub> の排出量を削減するために、CO<sub>2</sub> を回収濃縮し地中に埋設する CCS (Carbon Capture and Storage) あるいは、CO<sub>2</sub> を有用物質に変換して活用する CCU (Carbon Capture and Utilization) が検討されている。CCS は地中に戻して大気中への放出を抑えるだけだが、CCU は CO<sub>2</sub> を有用物質へ変換し使用、CO<sub>2</sub> に戻ったとしても再度変換するといった Carbon サイクルを形成することも可能である。(CCS の場合は、地熱と圧力によって時間をかけて物質変換される) 本テーマがスタートした同じ年の 2015 年 12 月にパリ協定が締結され、各国に CO<sub>2</sub> の排出削減と途上国への技術援助が義務付けられた。再生可能エネルギーの有効活用と併せて CO<sub>2</sub> の変換法が望まれている。人工光合成やギ酸合成などが盛んに検討されている。しかしながら、CO<sub>2</sub> の発生量は莫大であり、高速に変換する技術が必須である。CH<sub>4</sub> と CO<sub>2</sub> を反応させ CO と H<sub>2</sub> の混合ガス、すなわち、合成ガスに転換する反応は、ドライリフォーミングと呼ばれ、水蒸気改質と同様に担持金属触媒上で進行する。製鉄所の溶鉱炉内でも進行するよく知られた反応である。この反応は、大きな吸熱反応であり、平衡的制約を回避するためには、高温で反応する必要がある。高温で反応するために、担持 Ni 触媒のような典型的な改質触媒上でも SV=数万~数十万 h<sup>-1</sup> といった高処理量反応条件下においても十分な反応速度を有している。従って、本反応において、高活性を追求する必要性は無いが、700~900 といった過酷な条件のため触媒の変質や反応物の分解物質である炭素質 (coke) の付着、蓄積による活性の低下が大きな問題となる。特に水蒸気改質に比べドライリフォーミング反応条件は、より強い還元条件であり、coke の蓄積がより進行し易いため活性劣化が大きな問題となる。高活性を犠牲とすること無く劣化の少ない安定な触媒反応プロセスを構築する必要性は益々高くなっている。

### 2. 研究の目的

火力発電所や製鉄所などの固定発生源から排出される大量の CO<sub>2</sub> を大気中に放出するのではなく、回収し天然ガスやシェールガスから得られる CH<sub>4</sub> を反応させ、C1 化学の有用な原料ガスである合成ガス (CO と H<sub>2</sub> の混合ガス) を得る CO<sub>2</sub> 高速転換反応プロセスの構築を検討する。本 CO<sub>2</sub> 高速変換反応は、我々の既往の研究から CH<sub>4</sub> から脱水素により生成する炭素質物質 (coke) であることがわかっている。一方、この coke は、触媒金属表面を被覆し活性を著しく低下させる。反応の主経路である脱水素経路の速度を低下させずに、

劣化の原因となる coke の生成を抑制すれば、活性を犠牲にせず安定操作を可能とする CO<sub>2</sub> 高速転換触媒反応プロセスの構築が可能となり、その温室効果ガス低減において、その意義は極めて高い。

### 3. 研究の方法

触媒として用いた Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は、触媒学会参照アルミナ ALO-6 に Ni 金属基準で担体に対して 15 wt% となるように、出発物質として Ni(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>・6H<sub>2</sub>O を用い、通常含浸法にて分散担持した。得られた前駆体を空気流中 1,073 K、5 h 焼成した。反応直前に、水素流中 973 K、1.5 h 還元活性化しドライリフォーミング反応等の実験に供した。

CH<sub>4</sub> のドライリフォーミング反応は、通常の固定床流通管型反応器を使用し行った。coke 蓄積挙動および蓄積した coke の酸化性雰囲気での除去挙動については、本予算で導入した雰囲気形成型熱重量同時測定分析装置を用いて検討した。また、触媒表面とそれぞれの反応物質との相互作用、個別の素反応を検討するために、CH<sub>4</sub> と CO<sub>2</sub> をパルス的に流通系反応装置に導入し、それぞれの分子との反応を詳しく調べた。パルス反応の流出物の分析には、質量分析計を用いた。

### 4. 研究成果

#### (1) CH<sub>4</sub> のドライリフォーミング反応の反応機構

973 K の反応温度において、ドライリフォーミング反応を CH<sub>4</sub> および CO<sub>2</sub> 分圧を変化させ検討した。生成物である CO および H<sub>2</sub> の分圧依存性も調べた。定常反応活性から反応速度 (CH<sub>4</sub> の転化速度、 $-r_{CH_4}$ ) を求めた。その結果、次式が得られた。

$$(-r_{CH_4}) = \frac{kP_{CH_4}}{1 + K_{CO}P_{CO}} \quad (1)$$

Langmuir-Hinshelwood 型類似の式で表され、973 K においても生成物の CO の Ni 上での吸着阻害が認められる。また、CH<sub>4</sub> の脱水素過程が反応速度を決定する重要なステップであることを示している。ドライリフォーミン

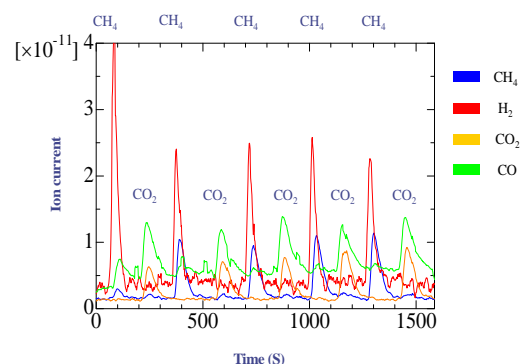
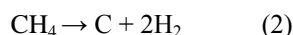


Fig. 1 パルス反応によるドライリフォーミング反応機構の解析

グの反応素過程を探るためにパルス反応を用いて検討した。最初に CH<sub>4</sub> パルスに触媒床に供給し、生成物を分析する。その後引き続き CO<sub>2</sub> パルスを供給しその生成物を分析する。これを繰り返すことで、擬似的に定常反応の素過程を分解して測定することが可能となる。Fig. 1 に、質量分析計の出力を示した。最初の CH<sub>4</sub> パルスを導入することで H<sub>2</sub> の生成(赤線)が認められた。CH<sub>4</sub> の消費量と H<sub>2</sub> の生成量の比は、H<sub>2</sub>/CH<sub>4</sub>=2 であり、消失した CH<sub>4</sub> は、全て脱水素され、脱水素反応過程は、(2)



式で進行していることを示している。これまでのドライリフォーミングに関する研究では、CH<sub>4</sub> から一部の水素原子が引き抜かれ CH<sub>x</sub> 種が生成されるとしている。実験結果は、x が 0 であることを示唆している。引き続き CO<sub>2</sub> パルスでは CO が生成し、同時に H<sub>2</sub> は生成していない。CH<sub>4</sub> の脱水素ステップにおいて CH<sub>x</sub> 種に水素が残っている場合は、CO の生成とともに H<sub>2</sub> が生成するはずであるが、ほとんど生成しないことから、やはり(2)式で示した完全脱水素が進行していることがわかった。CO 生成素過程は、次式の通りである。



重要な反応中間体が活性劣化をもたらす coke と同じ炭素であることが、本反応の特徴である。

### (2) coke 蓄積過程の検討

活性劣化をもたらす coke (炭素質) の生成挙動を CH<sub>4</sub> および CO<sub>2</sub> 分圧を変化させて調べた。それぞれ、Fig. 2 および 3 に示した。CH<sub>4</sub> 分圧の増加に伴い、coke の蓄積速度(傾き)が大きくなることわかる。ドライリフォーミング反応速度がメタン分圧に正の依存性を示すことに合致する (Fig. 2)。Coke の蓄積の CO<sub>2</sub> 分圧依存性を Fig. 3 に示した。CO<sub>2</sub> 分圧

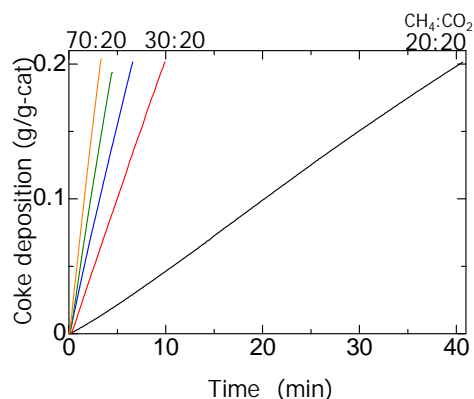


Fig. 2 coke 蓄積の CH<sub>4</sub> 分圧依存性

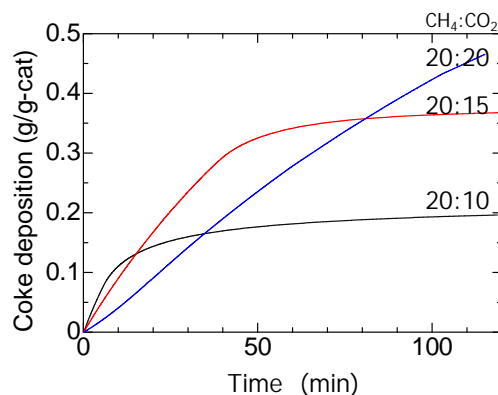


Fig. 3 coke 蓄積の CO<sub>2</sub> 分圧依存性

が、反応の量論比の CH<sub>4</sub>/CO<sub>2</sub>=1/1 より CO<sub>2</sub> リーン条件下 (CH<sub>4</sub>/CO<sub>2</sub><1) では、初期の蓄積速度は速いものの、すぐに頭打ちし coke の蓄積が停止する特異な挙動を示す。反応初期の傾きに注目すると、CO<sub>2</sub> 分圧の増加とともに、coke 蓄積速度は小さくなる。これは、CO<sub>2</sub> 分圧の増加とともに(3)式で示した CO 生成過程が促進されたためだと考えられる。CO<sub>2</sub> リーン条件下で coke 蓄積が頭打ちする理由は、coke が Ni 表面を被覆し活性点が減少するためであると思われる。さらに検討するために、雰囲気形成型熱重量同時測定分析装置内で、CH<sub>4</sub> による coke 蓄積と CO<sub>2</sub> による除去過程を分離してその挙動を調べた。Figure 4 に示した通り、773 K の低温では、CH<sub>4</sub> による coke 蓄積過程は速いものの、CO<sub>2</sub> による coke 除去速度が小さいことがわかる。温度の上昇に伴い、CH<sub>4</sub> 中での蓄積速度は十分速く差が見られないが、CO<sub>2</sub> 雰囲気中での coke 除去速度は、温度によって促進されることがわかった。反応温度が高温ほど、coke の CO<sub>2</sub> による除去速度が速いので、温度によって Ni 表面での coke の生成挙動が異なることが予想される。そこで、反応後の表面に残存する炭素質の反応性

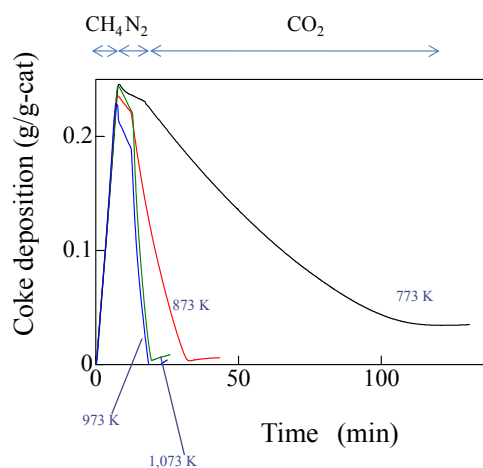


Fig. 4 coke 蓄積・除去過程の温度挙動

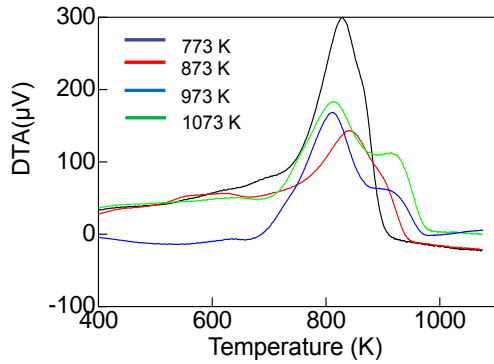


Fig. 5 ドライリフォーミング反応後の炭素種の反応性の違い

について検討するために、反応後の触媒を空気流中で昇温加熱し、酸素との反応性の違いについて検討した。

(3) 表面残存炭素種の反応性の解析

各反応温度での触媒表面上に残存する炭素種の昇温酸化実験結果 (TPO スペクトル) から、残存炭素種は、900 K で燃焼ピークを示す coke 1 と、より低温の 800 K で燃焼する coke 2 の 2 種類存在することがわかった。coke 1 は、反応温度が増大するとともに相対強度が増加することがわかった (Fig. 5)。

(4) coke の種類と活性劣化の関係および反応機構

活性劣化と coke 種の関係性を調べるために、 $\text{CH}_4 + \text{CO}_2$  の定常反応、 $\text{CO}_2$  による coke 除去過程を繰り返し、炭素の蓄積挙動および要所での表面残存炭素種の TPO スペクトルを Fig. 6 に示した。右側の重量変化の図で、反応雰囲気中での coke 蓄積と  $\text{CO}_2$  中での coke

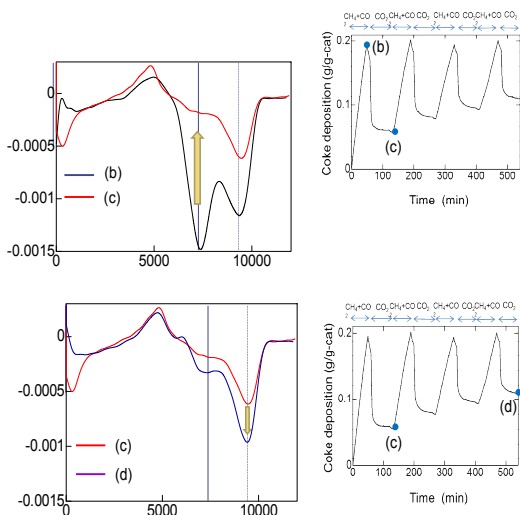


Fig. 6 炭素質蓄積・除去繰り返し実験と残存炭素種の反応性

除去の繰り返し挙動で、回数の増加に伴い、除

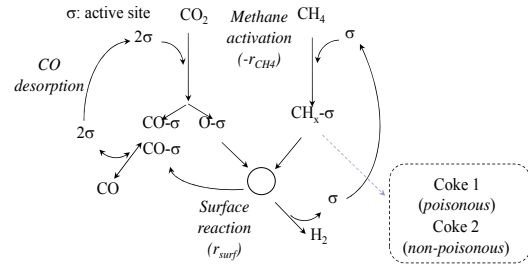


Fig. 7 ドライリフォーミング反応の反応機構

去できない coke 量が徐々に増加していることがわかる。最初のサイクルで、炭素が蓄積した b 点の TPO スペクトルでは, coke 1 および 2 の両ピークが認められるのに対し、 $\text{CO}_2$  雰囲気での除去過程の後 (c 点) では、除去し易い coke 2 の強度が著しく減少し、一方, coke 1 の強度はあまり減少しない。繰返し実験後の d 点では、下の TPO スペクトルに示した様に、やはり coke 1 が多く残存しており、c 点での coke 1 の強度よりも増大していた。これらの結果は、coke 1 が反応中も安定に存在し、触媒表面を被覆していることを示唆する。活性劣化をもたらす炭素種は、coke 1 である可能性が高い。炭素種生成も含めたドライリフォーミングの反応機構を Fig. 7 に示した。

ドライリフォーミング反応では、coke 生成を抑制するだけでは、反応活性を維持しながら、劣化を抑制することはできない。しかし、coke 1 種のみを減少させることができれば、反応中間体である coke 2 の生成は維持しながら、活性劣化を抑えることができることが示唆された。

反応条件、触媒への添加物による劣化挙動の軽減など、その科学的内容について追跡すべき炭素種が明確になった。今後の劣化対策に対して極めて有効な成果が得られたと確信する。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計15件)

A. Okemoto, K. Kato, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Study of Benzene Hydroxylation in Liquid Phase Using Mono- and Binuclear Copper Complex Catalysts, *Chemistry Letters*, 査読有, Vol. 44, 2015, pp.384-386.

A. Okemoto, K. Kato, A. Utsunomiya, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Study on Reaction Mechanism of Benzene Oxidation by Using Metal Complex Catalysts, *Proceedings of APCChe 2015*, 3126364, Melbourne, Sep. 27 - Oct. 1, 査読有, 2015.

Y. Ichihashi, A. Okemoto, Y. Tsukano, S. Watanabe, M. Tachibana, A. Utsunomiya, K. Taniya, S. Nishiyama, The Study of Reaction Mechanism of Benzene Oxidation over Cu/HZSM-5 Catalysts, *Proceedings of APCChE 2015*, 3126367, Melbourne, Sep. 27 – Oct. 1, 査読有, 2015.

K. Taniya, R. Fujita, N. Furumoto, A. Okemoto, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Effect of Cu/Zn Atomic Ratio on Catalytic Activity of Cu-ZnO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Catalysts for Water-gas Shift Reaction, *Proceedings of APCChE 2015*, 3135937, Melbourne, Sep. 27 – Oct. 1, 査読有, 2015.

A. Utsunomiya, A. Okemoto, Y. Tsukano, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Selective catalytic oxidation of benzene over Cu/Ti/HZSM-5 under low oxygen pressure for one step synthesis of phenol, *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, 査読有, **Vol. 411**, 2016, pp. 372-376.

A. Okemoto, K. Kishishita, S. Maeda, S. Gohda, M. Misaki, Y. Koshiba, K. Ishida, T. Horie, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Application of picene thin-film semiconductor as a photocatalyst for photocatalytic hydrogen formation from water, *Applied Catalysis B: Environmental*, 査読有, **Vol. 192**, 2016, pp. 88-92.

A. Utsunomiya, A. Okemoto, Y. Nishino, K. Kitagawa, H. Kobayashi, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Mechanistic study of reaction mechanism on ammonia photodecomposition over Ni/TiO<sub>2</sub> photocatalysts, 査読有, *Applied Catalysis B: Environmental*, **Vol. 206**, 2017, pp. 378-383.

A. Okemoto, K. Ueyama, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, "Direct oxidation of benzene with molecular oxygen in liquid phase catalysed by heterogeneous copper complexes encapsulated in Y-type zeolite, 査読有, *Catalysis Communications*, **Vol. 100**, 2017, pp. 29-32.

J. Hirota, T. Inoue, T. Watanabe, A. Okemoto, T. Horie, N. Ohmura, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Preparation of a Photoresponsive Tracer to Evaluate the Performance of Dry-Type Powder Photoreactors, 査読有, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, **Vol. 50**, 2017, pp. 710-715.

A. Okemoto, K. Tanaka, Y. Kudo, S. Gohda, Y. Koshiba, K. Ishida, T. Horie, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Hydrogen production for photocatalytic decomposition of water with urea as a reducing agent, 査読, *Catalysis Today*, **Vol. 307**, 2018, pp. 231-236.

A. Segawa, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, N. Yoshida, M. Okamoto, Meerwein-Ponndorf-Verley Reduction of Crotonaldehyde over Supported Zirconium Oxide

Catalysts Using Batch and Tubular Flow Reactors, 査読有, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **Vol. 57**, 2018, pp.70-78.

K. Ueyama, T. Hatta, A. Okemoto, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Cyclohexane photooxidation under visible light irradiation by WO<sub>3</sub>-TiO<sub>2</sub> mixed catalysts, 査読有, *Research on Chemical Intermediates*, **Vol. 44**, 2018, pp. 629-638.

K. Taniya, C. H. Yu, H. Takado, T. Hara, A. Okemoto, T. Horie, Y. Ichihashi, S. C. Tsang, S. Nishiyama, Synthesis of bimetallic SnPt-nanoparticle catalysts for chemoselective hydrogenation of crotonaldehyde: Relationship between Sn<sub>x</sub>Pt<sub>y</sub> alloy phase and catalytic performance, 査読有, *Catalysis Today*, **Vol. 303**, 2018, pp. 241-248.

K. Taniya, R. Mori, A. Okemoto, T. Horie, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Role of Al<sup>3+</sup> species in beta zeolites for Baeyer-Villiger oxidation of cyclic ketones by using H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> as an environmentally friendly oxidant, 査読有, *Catalysis Today*, **Vol. 307**, 2018, pp. 293-300.

谷屋 啓太、今井 智太、桶本 篤史、市橋 祐一、西山 覚, XAFS によるスズおよびコバルトを還元析出した白金触媒の局所構造解析, 査読有, *SPRING-8 利用研究成果集*, **Vol. 6**, pp. 86-92, 2018.

[学会発表](計19件)

A. Okemoto, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, "The Study of Ligand Effect on Direct Oxidation of Benzene over V Complexes Encapsulated in Y-zeolite Catalysts by DFT Calculation", International Symposium of Zeolite and Microporous Crystals 2015, 2015. 7, Sapporo, Japan (ポスター)

M. Tachibana, A. Okemoto, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Effect of Ti Addition to Cu/HZSM-5 Catalyst on Gas-Phase Oxidation of Benzene, International Symposium of Zeolite and Microporous Crystals 2015, 2015. 7, Sapporo, Japan (ポスター)

A. Okemoto, K. Kato, A. Utsunomiya, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Study on Reaction Mechanism of Benzene Oxidation by Using Metal Complex Catalysts, APCChE 2015, 2015. 9, Melbourne, Australia (口頭)

R. Fujita, N. Furumoto, A. Okemoto, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Effect Of Cu/Zn Molar Ratio On Catalytic Activity Of Cu-ZnO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Catalyst For Water-gas Shift Reaction, APCChE 2015, 2015. 9, Melbourne, Australia (口頭)

K. Kato, A. Okemoto, K. T., Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Liquid phase benzene hydroxylation over copper binuclear complex catalysts, 2015 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, 2015. 12, Honolulu, Hawaii, USA (ポスター)

A. Okemoto, A. Utsunomiya, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Theoretical Study on Reaction Mechanism of Benzene Oxidation by Using Vanadium Complex Catalysts, International Symposium on Nanostructured Photocatalysts and Catalysts, 2016. 4, Osaka, Japan (ポスター発表)

Y. Horie, N. Furumoto, R. Fujita, A. Okemoto, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Dynamic Behavior of Precursor Formation during Preparation of Cu-ZnO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Catalysts for Water Gas Shift Reaction, International Symposium on Nanostructured Photocatalysts and Catalysts, 2016. 4, Osaka, Japan (ポスター発表)

Y. Ichihashi, A. Okemoto, S. Watanabe, K. Taniya, S. Nishiyama, The Study of Reaction Mechanism for Benzene Oxidation over Cu/HZSM-5 Catalysts, International Symposium on Nanostructured Photocatalysts and Catalysts, 2016. 4, Osaka, Japan (口頭発表)

Y. Kudo, A. Okemoto, K. Kishishita, S. Maeda, T. Horie, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Photocatalytic Water Decomposition over Organic Semiconductor Thin film, 9th International Conference on Environmental Catalysts, 2016. 7, Newcastle, Australia (口頭発表)

K. Taniya, R. Mori, A. Okemoto, T. Horie, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Role of Al<sup>3+</sup> in  $\beta$ -zeolites for Baeyer-Villiger oxidation of cyclic ketones by using H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> as an environment-friendly oxidation, 9th International Conference on Environmental Catalysts, 2016. 7, Newcastle, Australia (口頭発表)

Y. Horie, N. Furumoto, R. Fujita, A. Okemoto, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Formation process of the precursor of Cu-ZnO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalysts for water gas shift reaction, 9th International Conference on Environmental Catalysts, 2016. 7, Newcastle, Australia (口頭発表)

K. Taniya, R. Fujita, Y. Horie, A. Okemoto, T. Horie, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Process Intensification by Mechanistic Study of Heterogeneous Catalysis - WGSR over Cu-ZnO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Catalysts -, International Workshop on Process Intensification 2016, 2016. 9, Manchester, United Kingdom (口頭発表)

K. Taniya, C.H. Yu, H. Takado, A. Okemoto, Y. Ichihashi, S.C. Tsang, S. Nishiyama, Synthesis of SnPt Bimetallic Nanoparticle Catalysts for Chemoselective Hydrogenation of Unsaturated Aldehyde, 16th Korea-Japan Symposium on Catalysis & 3rd International Symposium of Institute for Catalysis, 2017. 5, Sapporo, Japan, (口頭発表)

H. Takado, Y. Matsumoto, A. Okemoto, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Roles of platinum in catalytic activity of Ru-Pt-Sn ternary metallic catalysts for hydrogenation of acetic acid,

13th European Congress on Catalysis (EUROPACAT2017), 2017. 8, Florence, Italy, (ポスター発表)

Y. Ichihashi, S. Watanabe, R. Araki, Y. Tsukano, A. Okemoto, K. Taniya, S. Nishiyama, Mechanism study of gas-phase oxidation of benzene to phenol over Cu/HZSM-5 catalysts, 13th European Congress on Catalysis (EUROPACAT2017), 2017. 8, Florence, Italy, (ポスター発表)

A. Okemoto, A. Utsunomiya, K. Taniya, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Study on reaction mechanism of benzene hydroxylation by heterogeneous metal complex catalysts, 13th European Congress on Catalysis (EUROPACAT2017), 2017. 8, Florence, Italy, (ポスター発表)

K. Taniya, T. Imai, A. Okemoto, T. Horie, Y. Ichihashi, S. Nishiyama, Novel and Simple Modification of Pt/SiO<sub>2</sub> Catalyst with Co Cation for Chemoselective Hydrogenation of Cinnamaldehyde, The 17th APCCHE, 2017. 8, Hong Kong, China, (口頭発表)

S. Nishiyama, K. Taniya, Y. Ichihashi, CO<sub>2</sub> Recycling by Dry Reforming Reaction - Reaction mechanism and catalyst deactivation -, 化学工学会 第 83 年会, 2018. 3, 吹田, (口頭発表, Invited lecture)

〔図書〕(計 1 件)

西山 覚「最新プロセス強化(PI)の技術, 第3章 化学反応工学におけるプロセス強化“(分担執筆), pp. 101-113, 化学工学会監修, 三恵社, 2017年11月.

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

西山 覚 (NISHIYAMA, Satoru)  
神戸大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 00156126

### (2) 研究分担者

市橋 祐一 (ICHIHASHI, Yuichi)  
神戸大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 20362759

谷屋 啓太 (TANIYA, Keita)  
神戸大学・先端融合研究環・助教  
研究者番号: 30632822