

令和 5 年 6 月 7 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05221

研究課題名(和文) イソブタンの直接脱水素反応におけるコーキングの顕著な触媒活性増大効果の解明

研究課題名(英文) Elucidation of remarkable catalytic activity increasing effect of coking in the direct dehydrogenation of isobutane

研究代表者

杉山 茂 (SUGIYAMA, Shigeru)

徳島大学・大学院社会産業理工学研究部(理工学域)・教授

研究者番号：70175404

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：通常、固体触媒を用いてアルカンの脱水素を行うと、通塔時間の経過に伴って、触媒の活性点が炭素析出によって覆われ、触媒活性が激減する。しかし、本研究でアルミナに15～20%担持した酸化ニッケル触媒を用い、エタン、プロパンおよびイソブタンの脱水素を行うと、通塔時間の経過に伴って、活性が劇的に改善することを見出した。繊維状の炭素析出の形成に伴って活性種のニッケルが高分散化され、活性が劇的に向上することを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

主として燃料として用いるアルカンをアルケンにできると、様々な原料となるため、特に固体触媒を用いて製造されている。欠点として、反応を継続すると触媒が炭素析出によって覆われ、活性が長続きしないことがあげられる。本研究では、アルミナに担持した酸化ニッケル触媒を用いると、炭素析出が繊維状となり、その表面に活性種である金属ニッケルが高分散状態で形成され、反応とともに活性が劇的に改善することを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Generally, when a solid catalyst is used to dehydrogenation of alkanes to the corresponding alkenes, the active sites of the catalyst are covered with carbon deposition with time-on-stream, resulting in a drastic decrease in catalytic activity. However, in the present study, it was confirmed that the dehydrogenation of ethane, propane and isobutane to ethylene, propylene, and isobutene, respectively, using a loading of 15-20% of nickel oxide catalyst supported on alumina showed a dramatic improvement in the yield of those alkenes with time-on-stream. It was confirmed that metallic nickel as an active species was highly dispersed on fibrous carbon deposition formed on the catalyst as carbon deposition, resulting in a dramatic improvement of the activity.

研究分野：触媒プロセス

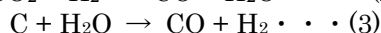
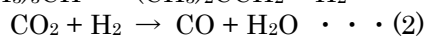
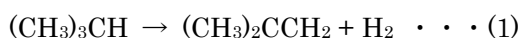
キーワード：アルカン アルケン 脱水素 炭素析出 酸化ニッケル触媒 アルミナ担体 触媒劣化耐性 繊維状炭素

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

研究代表者のグループでは、アルカンをアルケンに変換するために、30年以上接触酸化脱水素を検討してきた。脱水素には原料に酸素を加える酸化脱水素とともに原料に酸素を加えない直接脱水素がある。研究代表者のグループが前者に傾注したのは、酸化反応であるために原料および生成物由来の固体触媒上へのコーキングが激減することが大きいためである。コーキングが触媒表面に起こると触媒表面上の活性種が炭素で覆われ、触媒活性を発現できなくなるため、その恐れを激減させる酸化脱水素は魅力的であった。しかし、酸素を入れるためにせつかく合成したアルケンを二酸化酸素や一酸化炭素(CO_x)に逐次酸化してしまい、高収率でアルケンを得ることが困難であった。

研究代表者のグループでは、様々な化成品の原料となるイソブテンをイソブタンから取得するためにイソブタンの接触酸化脱水素反応を行ってきた。イソブタン収率10%以上の高活性触媒を見出したが、やはり、CO_xへの逐次酸化が進み従来の範疇から著しく外れた高活性触媒の開発には至っていない。そこで、このような逐次酸化反応が起こらないイソブタンの直接脱水素を検討した(式(1))。この際に、コーキングの形成を抑えるために、二酸化炭素を共存させ(式(2))、生成する水によるコーキング(式(3)では“C”)の分解(式(3))を計画した^①。



本反応に高活性を示すといわれているCr₂O₃/gamma-Al₂O₃は、明確な触媒劣化を示し、高選択率ではあるが、やはり致命的な欠点が反映された。Cr₂O₃自体の触媒活性もなかった。そこで、NiO/gamma-Al₂O₃を検討したところ、20wt%のNiOを担持した触媒で、通塔時間に伴うイソブタン収率の著しい改善が見られた。この場合も、NiO自体には触媒活性はなかった。20wt%のNiOを担持した触媒の結果は、いわゆる“常識”となっている挙動と全く異なる結果であり、詳細に再現性試験等を行ったが、再現性も全く問題がなかった。固体触媒にとっては、コーキングは致命的な欠点であったため、上記の触媒系を詳細に検討すれば、コーキングの概念を覆す可能性もあるため申請を行った。

2. 研究の目的

本研究では、20wt%のNiOをgamma-Al₂O₃に担持した触媒(NiO(20)/Al₂O₃)によるイソブタンの直接脱水素を検討することにより、触媒科学では触媒劣化の主要因と理解されていたコーキングが、条件を整えば活性の向上因子となることを、その根拠とともに明らかにする、いわゆる“常識”を覆すことを目的とした研究課題である。通塔時間と共に触媒活性が向上すると言っても、あまりにも長い通塔時間を設定すると活性が減少するはずである。そこで、活性が向上していくコーキングの状態と、一度活性が向上したとしても、コーキングの状態によっては活性の低下に至る原因を明らかにする。また、このような挙動がイソブタンの脱水素のみに特有であるかという点を明確にするために、エタンおよびプロパンの脱水素についても検討する。イソブタン、エタンおよびプロパンの脱水素について、共通して通塔時間に伴う活性の向上が見られた場合はその原因を明らかにするとともに、共通してみられない場合は、その原因を明らかにする。これらの検討を通じ、接触脱水素反応では通塔時間と共に活性が激減するというこれまでの常識に対し、形成するコーキングの状態によっては、逆に活性が向上することもあるという、接触反応において最大の欠点となっていた事象を改善することを目的とした。

3. 研究の方法

エタン、プロパンおよびイソブタンの接触脱水素反応を、常圧固定流通式反応装置を用いて、均一気相反応の寄与がない条件で検討した。触媒は、硝酸ニッケル6水和物とgamma-Al₂O₃を用いて含浸法により調製した。以下では、gamma-Al₂O₃をAl₂O₃として表記する。触媒のキャラクタリゼーションには、窒素吸脱着、X線回折(XRD)、示差熱重量測定(TG-DTA)、電界放射型走査電子顕微鏡(FE-SEM)、分析透過電子顕微鏡(EDS-TEM)を用いた。

4. 研究成果

(1) 未使用触媒のキャラクタリゼーション

表1には、本研究で用いた様々なNiOの担持率の触媒に対し、窒素吸脱着測定を行って得た各触媒の比表面積、全細孔容積、平均細孔径を示した。予想されたように、NiOの担持率に従って、比表面積、全細孔容積は低下したが、これらのパラメーターに比較して平均細孔径の低下の傾向は抑えられた。また、XRD分析を行うと、NiOの担持率によって、NiOの強度が大きく変わったが、基本的にはNiO(PDF No.00-044-1159)とAl₂O₃(PDF No.00-010-0425)のシグナルのみが検出された。

表 1. NiO(x)/Al₂O₃ の比表面積、全細孔容積、平均細孔径

NiO(x)/Al ₂ O ₃	比表面積 [m ² /g]	全細孔容積 [cm ³ /g]	平均細孔径 [nm]
x = 3%	192	0.643	13.4
x = 5%	199	0.668	13.4
x = 8%	194	0.638	13.2
x = 10%	193	0.600	12.4
x = 13%	187	0.590	12.6
x = 15%	182	0.522	12.1
x = 18%	177	0.540	12.2
x = 20%	156	0.519	13.3
x = 23%	165	0.475	-
x = 25%	158	0.455	-
X = 30%	137	0.386	11.2

(2) イソブタン、プロパン、エタンの NiO(x)/Al₂O₃ による脱水素挙動

図 1 には、この研究の切っ掛けとなった NiO(x)/Al₂O₃ によるイソブタンの二酸化炭素共存化における脱水素を^①、NiO の担持率を変えて検討した。反応条件は、本研究の目的を達成するために最適化されている。Al₂O₃ および NiO 自体にはほとんど活性はなかった。イソブタンの転化率は、NiO の担持率が上がるとともに高くなった。NiO の担持率が 15%から 20%の範囲で、通塔時間に伴うイソブテン収率の著しい向上が見られ、申請時に予想した結果と一致した。他の担持率では、高いイソブテン収率は得られず、特に、NiO の担持率が低い NiO(5)/Al₂O₃ では、通常の接触脱水素の場合と同様に、通塔時間に伴ってイソブテンの収率が減少する傾向が見られた。

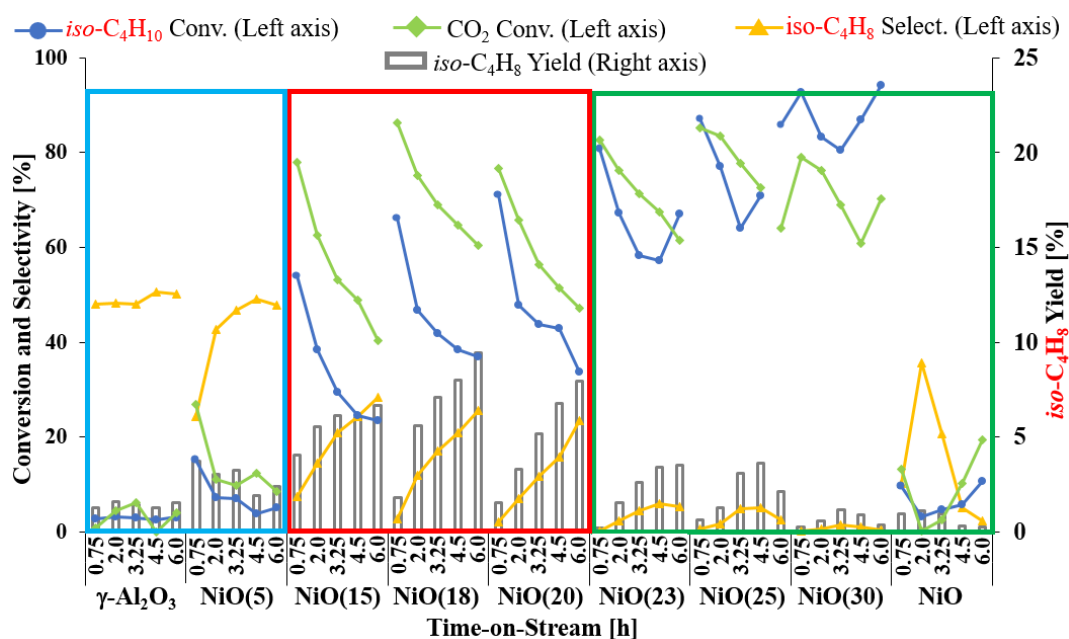


図 1. NiO(x)/Al₂O₃ によるイソブタンの二酸化炭素共存化における脱水素挙動

P(iso-C₄H₁₀) = 14.1 kPa, P(CO₂) = 12.3 kPa, P(He) = 74.9 kPa, T = 550°C, W = 0.25 g

イソブタンの接触脱水素において、二酸化炭素を共存させなくても、通塔時間に伴いイソブテン収率が改善される同様な挙動が得られたので、以下のプロパンおよびエタンの脱水素反応では、二酸化炭素を共存させない条件で検討した。図 2 および図 3 には、NiO(x)/Al₂O₃ によるプロパンおよびエタンの脱水素挙動を示した。それぞれの反応に対する反応条件は、本研究の目的を達成するために最適化されている。プロパンおよびイソブタンの転化率は、NiO の担持率が上がるとともに高くなった。いずれの脱水素においても、青枠で示した通塔時間と伴に目的生成物の収率が下がる担持率、紫枠で示した通塔時間と伴に目的生成物の収率が最大値を示す担持率、赤枠で示した通塔時間と伴に目的生成物の収率が改善する担持率、および、緑枠で示した目的生成物の収率がほとんどない担持率の領域が現れた。プロパンおよびエタンの脱水素の場合、それぞれ NiO(15)/Al₂O₃ および NiO(18)/Al₂O₃ において、最も通塔時間と伴に目的生成物の収率が改善した。

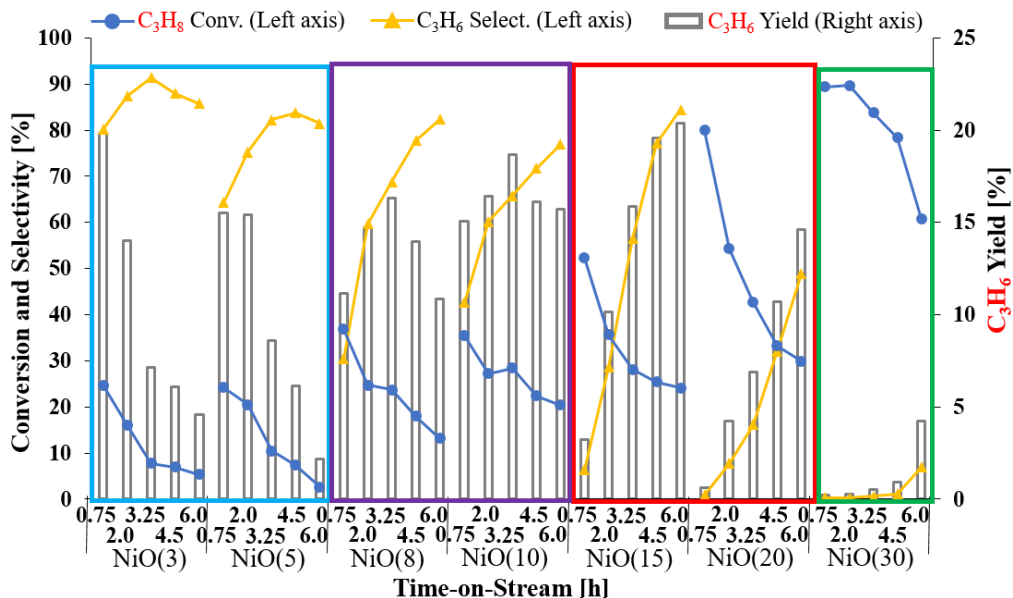


図 2. NiO(x)/Al₂O₃によるプロパンの二酸化炭素共存化における脱水素挙動
P(C₃H₈) = 14.1 kPa, P(He)=87.2 kPa, T = 550°C, W = 0.25 g

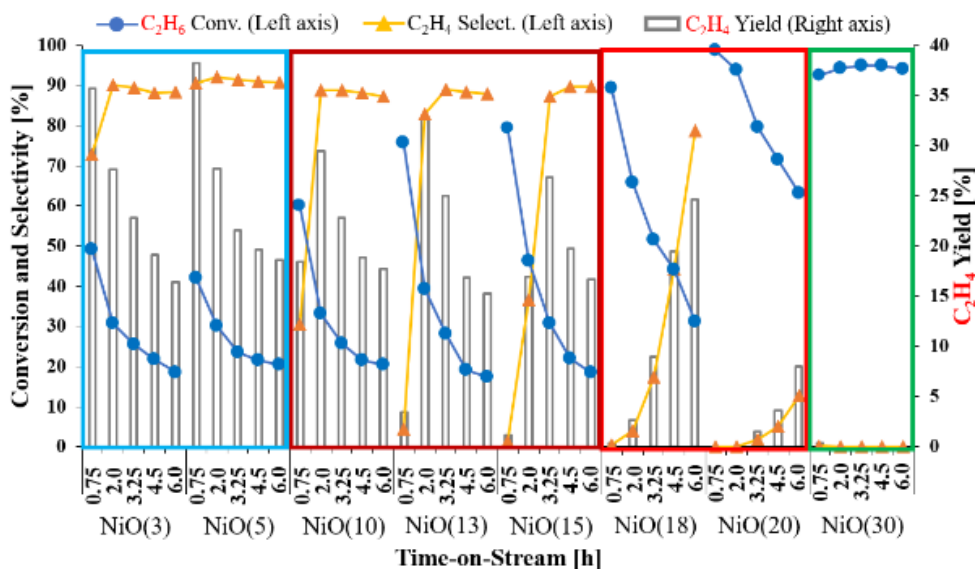


図 3. NiO(x)/Al₂O₃によるエタンの二酸化炭素共存化における脱水素挙動
P(C₂H₆) = 14.1 kPa, P(He)=87.2 kPa, T = 650°C, W = 0.25 g

(3) 使用触媒のキャラクタリゼーションと活性改善挙動

イソブタン、プロパンおよびエタンの脱水素反応において、通塔時間とともに生成物の収率が上昇する NiO(20)/Al₂O₃、NiO(15)/Al₂O₃ および NiO(18)/Al₂O₃ の反応後の触媒を TG-DTA 分析すると触媒 1.0 g あたりに形成される炭素析出の量は、それぞれ、2.38、0.73 および 1.36 となり、大過剰の炭素析出が形成されているにもかかわらず、通塔時間に伴う活性の改善が見られた結果となった。また、反応後の触媒を XRD で分析すると、いずれの触媒からも NiO のシグナルは検出できず、金属 Ni(PDF No.01-078-7533)のピークが炭素(PDF 00-041-1487)のピークが観測された。

通常の接触脱水素と同様に通塔時間とともに触媒活性の低下の最大の原因となる過剰の炭素析出が触媒表面上に形成されているにもかかわらず、本研究で検討したアルカンの NiO(x)/Al₂O₃ 触媒による脱水素反応では、通塔時間とともに目的生成物の収率が著しく向上したのは、特別な炭素析出が形成し、それに伴って触媒活性成分の金属 Ni の状態が変化したのではないかという仮説に基づき反応後の触媒を FE-SEM、TEM や EDS-TEM で分析した。以下では、最も明確に情報を与えてくれたイソブタンの接触脱水素に用いた NiO(20)/Al₂O₃ 触媒の結果を示すが、プロパンおよびエタンの接触脱水素に用いた触媒においても同様な結果が得られている。図 4 はイソブタンの接触脱水素に用いた NiO(20)/Al₂O₃ の各通塔時間後に回収した触媒の TEM である。通塔 1 時間後において、触媒上にナノチューブ状の物質が検出され、通塔 10 時間後にはナノチューブ状の先端が分岐していることが分かる。ナノチューブ状の物質はカー

ボンナノチューブを推察できるが、触媒活性種の金属 Ni の情報が明確でないために、EDS-TEM で分析し、その結果を図 5 に示した。ナノチューブ状物質は炭素で形成されており、カーボンナノチューブであることが確認された。金属 Ni が、炭素析出としてカーボンナノチューブを形成することはしばしば報告されているため^②、金属 Ni を起点としてカーボンナノチューブが形成されていると考えられる。一方、金属 Ni はカーボンナノチューブの表面や内部に点在し、高分散化していることが明らかになった。

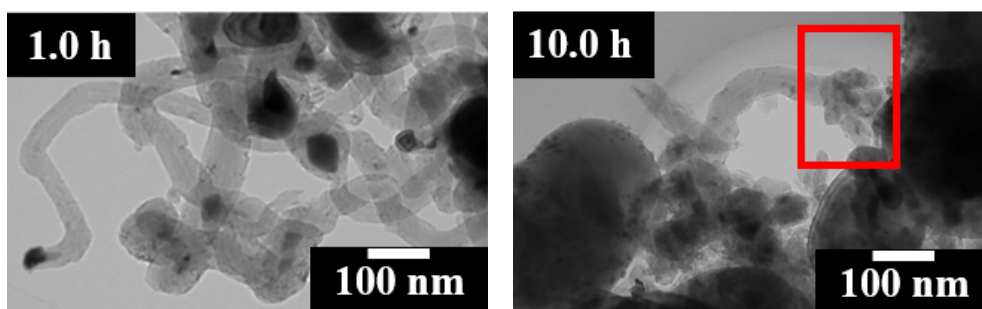


図 4. イソブタンの脱水素に用いた NiO(20)/Al₂O₃ の各通塔時間後の TEM

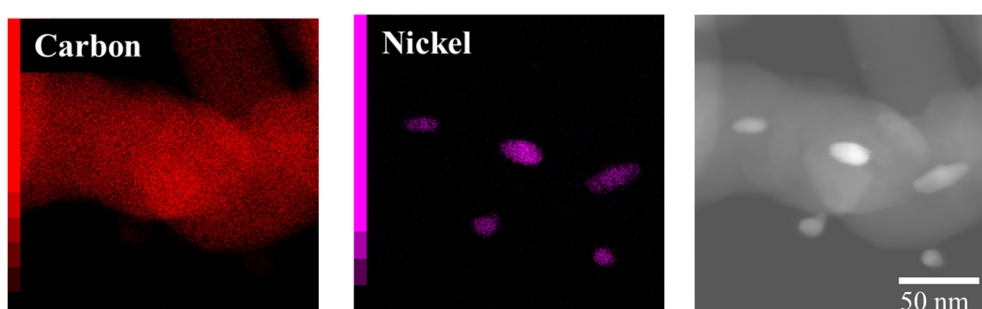


図 5. イソブタンの脱水素に用いた NiO(20)/Al₂O₃ の通塔 10 時間後の EDS-TEM

以上の結果から、今回観測された NiO(x)/Al₂O₃ によるイソブタン、プロパンおよびエタンの脱水素において、通塔時間とともに目的生成物の収率が改善される機構は、図 6 のように考えている。NiO(x)/Al₂O₃ の反応前には、(A)のように灰色の三角で示した NiO が低分散状態で担体の Al₂O₃ に担持された状態である。反応初期には、(B)のように NiO は黄色の三角で示した金属 Ni に還元されるとともに、その周りにはボールドの黒線で示した通常の炭素析出で覆われる。金属 Ni はカーボンナノチューブを形成する能力があるため、通塔 1 時間後には、(C)の太曲線で示したようにカーボンナノチューブが形成されるとともに、金属ニッケルがカーボンナノチューブ上に引き上げられ、結果として高分散の金属 Ni が形成され、通塔時間に伴う目的生成物の収率の向上につながったと結論した。ただし、長時間使用していると、本触媒系でも、目的生成物の収率が下がっていく。これは、図 6 の(C)の状態にあるカーボンナノチューブ上の金属 Ni が、さらに通常の炭素析出により覆われ、活性が減少することで説明できる。以上より、当初の申請書に記載した目的、つまり通塔時間に伴って活性が向上することの因子を解明することと、喝さいが向上する触媒においても長期に使用すると活性が下がる原因となることを明らかにすることができた。

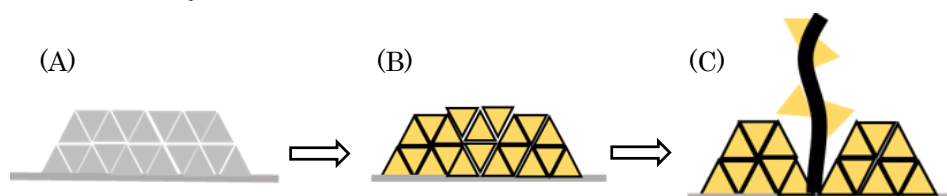


図 6. 活性改善につながるカーボンナノチューブの形成と金属 Ni の高分散化の概念図

<引用文献>

- ① Ding, J., R. Shao, J. Wu, Z. Qin and J. Wang; “Coupling Dehydrogenation of Isobutane to Produce Isobutene in Carbon Dioxide over NiO/ γ -Al₂O₃ Catalyst,” *React. Kinet. Mech. Catal.*, 101, 173–181 (2010)
- ② Welling, T. A., S. E. Schoemaker, K. De John, P. E. De Jongh; “In-situ Electron Microscopy Studies on Methane Decomposition over Carbon-Supported Ni-Cu Catalysts,” Abstract for the 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology, #OC510, (2022)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6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 5件）

1. 著者名 Sugiyama Shigeru, Koizumi Akihiko, Iwaki Takahisa, Shimoda Naohiro, Kato Yuki, Ninomiya Wataru	4. 巻 55
2. 論文標題 Enhancement of the Catalytic Activity Associated with Carbon Deposition Formed on NiO/Al ₂ O ₃ During the Dehydrogenation of Ethane and Propane	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Engineering of Japan	6. 最初と最後の頁 290-299
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1252/jcej.22we028	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 Sugiyama Shigeru, Yoshida Tashu, Shimoda Naohiro, Tomoyuki Ueki, Kato Yuki, Ninomiya Wataru	4. 巻 55
2. 論文標題 Carbon Deposition Assisting the Enhancement of Catalytic Activity with Time-on-Stream in the Dehydrogenation of Isobutane over NiO/Al ₂ O ₃	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Engineering of Japan	6. 最初と最後の頁 248-254
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1252/jcej.22we031	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 杉山 茂	4. 巻 51
2. 論文標題 触媒劣化因子を活性発現因子とした触媒開発	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ファインケミカル	6. 最初と最後の頁 5-13
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11501/3219137	査読の有無 無
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 Sugiyama Shigeru, Endo Shino, Moroyama Teppei, Hiwada Yuka, Shimoda Naohiro	4. 巻 64
2. 論文標題 Synthesis of Chemical Precursors via the Catalytic Hydrogenation of 2-Chloropropene	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Petroleum Institute	6. 最初と最後の頁 211-217
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1627/jpi.64.211	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 Sugiyama Shigeru, Oribe Kenta, Endo Shino, Yoshida Tashu, Shimoda Naohiro, Katoh Masahiro, Kato Yuki, Ninomiya Wataru	4. 巻 54
2. 論文標題 Enhancement of the Catalytic Activity Associated with Carbon Deposition Formed on NiO/ -Al ₂ O ₃ Catalysts during the Direct Dehydrogenation of Isobutane	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Engineering of Japan	6. 最初と最後の頁 35 ~ 43
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1252/jcej.20we198	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 Sugiyama Shigeru, Okitsu Ikumi, Hashimoto Kazuki, Maki Yutaro, Shimoda Naohiro, Furube Akihiro, Kato Yuki, Ninomiya Wataru	4. 巻 11
2. 論文標題 Improvement of Propylene Epoxidation Caused by Silver Plasmon Excitation by UV-LED Irradiation on a Sodium-Modified Silver Catalyst Supported on Strontium Carbonate	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Catalysts	6. 最初と最後の頁 398 ~ 406
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/catal11030398	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 -

〔学会発表〕 計53件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 品部沙弥・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 産業廃棄物を利用したCO ₂ メタン化反応用Ni系触媒の開発
3. 学会等名 石油学会第64回年会第26回JPIJSポスターセッション
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 杉山 茂・幸泉旭彦・岩城昂尚・霜田直宏・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 炭素析出とともに活性が向上するエタンおよびプロパンの接触脱水素反応
3. 学会等名 石油学会長野大会 (第52回石油・石油化学討論会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鳴川了介・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 産業廃棄物を利用したアンモニア分解用Ru触媒の開発
3. 学会等名 石油学会長野大会（第52回石油・石油化学討論会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 奥坂憲伸・安藝優宏・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 二酸化炭素の水素化によるジメチルエーテル合成プロセスの設計：固体酸触媒の選択とプロセス効率の評価
3. 学会等名 第38回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 幸泉旭彦・霜田直宏・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 再生処理を施したアルミナ担持酸化ニッケル触媒を用いたプロパンの脱水素
3. 学会等名 化学工学会岡山大会2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 日和田有香・矢原稜太・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 2-クロロプロペンの水素化脱塩素反応における単元系還元触媒の活性挙動
3. 学会等名 化学工学会岡山大会2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩城昂尚・霜田直宏・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 高温酸化処理で再生したアルミナ担持酸化ニッケル触媒を用いたエタンの脱水素
3. 学会等名 化学工学会岡山大会2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Sugiyama Shigeru, Koizumi Akihiko, Shimoda Naohiro, Kato Yuki, Ninomiya Wataru
2. 発表標題 Ni-Catalyzed Dehydrogenation of Alkanes Promoted by Carbon Deposition
3. 学会等名 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (TOCAT9)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 幸泉旭彦・霜田直宏・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 炭素析出とともに活性が向上する接触脱水素(1)～アルミナ担持酸化ニッケル触媒によるプロパンの脱水素～
3. 学会等名 中四国支部産学合同コロキウム2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩城昂尚・霜田直宏・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 炭素析出とともに活性が向上する接触脱水素(2)～アルミナ担持酸化ニッケル触媒によるエタンの脱水素～
3. 学会等名 中四国支部産学合同コロキウム2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 日和田有香・諸山哲平・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 2-クロロプロペンからプロピレンへの選択的還元触媒の開発
3. 学会等名 中四国支部産学合同コロキウム2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西村太一・吉田瑞穂・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 プロパンの含酸素化合物への接触変換
3. 学会等名 中四国支部産学合同コロキウム2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鳴川了介・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 アルミニウム系産業廃棄物を利用したアンモニア分解用Ru触媒の開発
3. 学会等名 キャラクタリゼーション講習会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木原美保・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 アルミニウム系産業廃棄物を担体としたSoot燃焼用固体触媒の開発
3. 学会等名 キャラクタリゼーション講習会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 杉山 茂
2. 発表標題 触媒劣化から展開した触媒開発
3. 学会等名 2022年度第2回キャタリストクラブ例会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 岩井大輝・霜田直宏・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 イソブタンの脱水素に用いたアルミナ担持酸化ニッケル触媒の酸化処理条件の検討
3. 学会等名 第25回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 杉山 茂・幸泉旭彦・霜田直宏・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 アルミナ担持酸化ニッケル触媒によるプロパンの脱水素に対する触媒再生法の検討
3. 学会等名 化学工学会第88年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 幸泉旭彦・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 -アルミナ担持酸化ニッケル触媒を用いたイソブタンの直接脱水素反応
3. 学会等名 触媒学会若手会「第41回夏の研修会」WEB 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 日和田有香・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 2-クロロプロペンの水素化脱塩素化反応に対する担持パラジウム触媒の活性挙動
3. 学会等名 触媒学会若手会「第41回夏の研修会」WEB 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水野征将・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 不純物硫黄成分を含んだメタンCO2改質反応での触媒劣化挙動の評価
3. 学会等名 触媒学会若手会「第41回夏の研修会」WEB 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安藝優宏・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 FER型ゼオライト触媒によるメタノールからのDME合成
3. 学会等名 触媒学会若手会「第41回夏の研修会」WEB 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉田多秀・幸泉旭彦・霜田直宏・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 各種アルミナ担持酸化ニッケル触媒によるアルカンの脱水素反応挙動
3. 学会等名 第14回中四国若手CE合宿
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 諸山哲平・日和田有香・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 担持金属触媒による2-クロロプロペン水素化脱塩素反応
3. 学会等名 第14回中四国若手CE合宿
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鳴川了介・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 産業廃棄物を利用したアンモニア分解触媒の開発
3. 学会等名 第14回中四国若手CE合宿
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 深澤佳奈美・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 産業廃棄物を利用したメタンドライリフォーミング用ニッケル系触媒の開発
3. 学会等名 第14回中四国若手CE合宿
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 杉山 茂・吉田多秀・幸泉旭彦・霜田直宏・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 イソブタンの接触脱水素中に副生するカーボンナノチューブの活性改善挙動への影響
3. 学会等名 第128回触媒討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安藝優宏・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 メタノールからのジメチルエーテル合成用FER型ゼオライト触媒へのアルカリ処理効果
3. 学会等名 第128回触媒討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉田多秀・幸泉旭彦・霜田直宏・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 酸化ニッケル触媒を用いたアルカンの脱水素反応
3. 学会等名 化学工学会第52回秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 諸山哲平・日和田有香・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 2-クロロプロペンの水素化脱塩素化用パラジウム系触媒に関する研究
3. 学会等名 化学工学会第52回秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水野征将・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 メタンCO2改質用触媒における不純物硫黄による劣化および炭素析出挙動の解析
3. 学会等名 化学工学会第52回秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 杉山 茂・沖津育実・橋本一輝・霜田直宏・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 プロピレンの接触エポキシ化に対するUV-LED励起効果
3. 学会等名 石油学会函館大会(第51回石油・石油化学討論会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 霜田直宏・水野征将・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 メタンドライ改質用触媒における不純物硫黄による劣化および炭素析出挙動
3. 学会等名 石油学会函館大会(第51回石油・石油化学討論会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 日和田有香・諸山哲平・岡本亜香里・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 2-クロロプロペンからプロピレンへの選択的還元触媒の開発
3. 学会等名 化学工学会関西大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 幸泉旭彦・吉田多秀・岩城昂尚・霜田直宏・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 アルカンの接触脱水素反応への二酸化炭素の共存効果
3. 学会等名 化学工学会関西大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 西村太一・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 プロバンの含酸素化合物への接触変換
3. 学会等名 第24回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岡本亜香里・霜田直宏・杉山 茂
2. 発表標題 生成物の分離を回避する2-クロロプロペンの選択的接触還元
3. 学会等名 第24回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩城昂尚・霜田直宏・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 アルミナ担持酸化ニッケル触媒によるエタンの脱水素
3. 学会等名 第24回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 杉山 茂・幸泉旭彦・霜田直弘・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 アルミナ担持酸化ニッケル触媒の担持率によるプロバンの脱水素活性の改善劣化挙動
3. 学会等名 化学工学会第87年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 杉山 茂・折部健太・吉田多秀・霜田直宏・加藤雅裕・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 炭素析出により活性が改善するアルミナ担持ニッケル触媒によるイソブタンの脱水素反応
3. 学会等名 第126回触媒討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 諸山哲平・円藤詩乃・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 接触水素化反応による2-クロロプロパンの合成
3. 学会等名 化学工学会第51回秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 杉山 茂・林 泰範・霜田直宏・加藤雅裕・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 UV-LED照射下において生じる活性酸素のSm203によるメタンの接触酸化に対する影響
3. 学会等名 石油学会熊本大会(第50回石油・石油化学討論会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 沖津育実・橋本一輝・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 UV-LED照射下における接触部分酸化反応
3. 学会等名 2020年日本化学会中国四国支部大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 円藤詩乃・諸山哲平・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 2-クロロプロペンの選択的水素化反応における触媒と水素分圧の影響
3. 学会等名 2020年日本化学会中国四国支部大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 円藤詩乃・日和田有香・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 Pd系触媒を用いた2-クロロプロペンの水素化脱塩素反応
3. 学会等名 化学工学会中国四国支部広島大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 吉田多秀・幸泉旭彦・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 ニッケル触媒による二酸化炭素存在下イソブタン脱水素反応に対するアルミナ担体の効果
3. 学会等名 化学工学会中国四国支部広島大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 吉田瑞穂・大川 陸・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 プロピレン部分酸化触媒Bi-Mo複合酸化物へのCe導入効果
3. 学会等名 化学工学会中国四国支部広島大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 諸山哲平・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 2-クロロプロペン水素化反応における金属担持触媒の性能評価
3. 学会等名 石油学会中国四国支部第38回講演会 若手講演会「次世代研究者セッション」
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 杉山 茂・円藤詩乃・霜田直宏・加藤雅裕
2. 発表標題 2-クロロプロペンの接触水素化による化成品前駆体合成
3. 学会等名 化学工学会第86年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉田瑞穂・大川 陸・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 モリブデンをベースとした複合酸化物触媒によるプロパンの部分酸化
3. 学会等名 化学工学会第86年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 日和田有香・円藤詩乃・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 2-クロロプロペンの水素化脱塩素反応に対する担持パラジウム触媒の活性挙動
3. 学会等名 第23回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大川 陸・吉田瑞穂・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂
2. 発表標題 プロパンの接触部分酸化反応による含酸素化合物の合成
3. 学会等名 第23回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 幸泉旭彦・吉田多秀・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 -アルミナ担持酸化ニッケル触媒によるイソブタンの脱水素反応
3. 学会等名 第23回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 橋本一輝・沖津育実・霜田直宏・加藤雅裕・杉山 茂・加藤裕樹・二宮 航
2. 発表標題 プロピレンのエポキシ化に対する担持銀触媒の触媒調製法の影響
3. 学会等名 第23回化学工学会学生発表会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 触媒及びその製造方法、並びに不飽和炭化水素の製造方法	発明者 加藤裕樹、二宮航、杉山 茂	権利者 徳島大学、三菱ケミカル㈱
産業財産権の種類、番号 特許、特願2020-159945	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

化学プロセス工学C3講座
<https://www.chem.tokushima-u.ac.jp/C3/>

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	加藤 雅裕 (KATOH Masahiro) (80274257)	徳島大学・大学院社会産業理工学研究部(理工学域)・教授 (16101)	
研究分担者	霜田 直宏 (SHIMODA Naohiro) (50712238)	徳島大学・大学院社会産業理工学研究部(理工学域)・助教 (16101)	

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
---------	---------