

令和 6 年 9 月 17 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01701

研究課題名（和文）Redox性格子S種の直接電気励起で創る革新的アルカン脱水素の構造体触媒システム

研究課題名（英文）Structured catalyst system for innovative alkane dehydrogenation created by direct electrical excitation of redox lattice S species.

研究代表者

渡部 綾 (Watanabe, Ryo)

静岡大学・工学部・准教授

研究者番号：80548884

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、触媒反応場に直接電気エネルギーを投入して気相分解を回避し、高活性と高選択的な脱水素反応場を構造体触媒システムで創製した。具体的には、通電加熱による触媒部の選択的加熱で、高選択率にC5オレフィン類を生成することを見出した。また、プロパンの酸化脱水素やCO₂のメタン化反応に通電触媒のシステムを展開した。多孔質形触媒に電流・電圧を印可して直接加熱した通電加熱式システムは、効率的に反応を進行させた。さらに、通電加熱式触媒によるCO₂のメタン化反応では、触媒層の温度を容易に制御でき、数ワット程度の僅かな供給電力でも高いCO₂転化率が得られることを明らかになり、提案システムの有用性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究における学術的意義は、触媒反応場への直接的な電気エネルギー投入によって高性能な脱水素反応場を実現した点にある。通電加熱を利用することで、従来の気相分解を回避し、特定の化学反応において高効率・高選択率を達成した。これにより、少量の電力で高い反応効率を示す新たな触媒システムの可能性を示した。社会的意義は、再生可能エネルギーの導入が進む現代において、本研究で開発された通電加熱式システムが、低消費電力で高効率な化学反応を可能にする点が挙げられる。特に、CO₂のメタン化反応において高いCO₂転化率を示すことから、温室効果ガスの削減や再生可能エネルギーの有効利用に貢献する技術として期待される。

研究成果の概要（英文）：In the present study, a highly active and highly selective dehydrogenation reaction field was created in a structured catalyst system by directly injecting electrical energy into the catalytic reaction field to avoid gas-phase decomposition. Specifically, it was found that selective heating of the catalyst section by energized heating produced C5 olefins at a high selectivity. The system of energized catalysts was also deployed in the oxidative dehydrogenation of propane and the methanation of CO₂. The energized heating system, in which the porous catalyst was directly heated by applying current and voltage to the catalyst, resulted in efficient reactions. Furthermore, it was found that the temperature of the catalyst bed could be easily controlled in the methane conversion reaction of CO₂ using the energized catalyst, and that high CO₂ conversion rates could be achieved even with a small power supply of a few watts, demonstrating the usefulness of the proposed system.

研究分野：反応工学、触媒化学

キーワード：レドックス 格子硫黄 通電加熱 脱水素 メタン化

様式 C-19、F-19-1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

金属硫化物触媒の格子硫黄(S^{2-})による酸化還元(Redox)作用が、選択的な物質変換特性を發揮することが近年大きく注目されている。代表者は、基盤研究(B) (課題番号:18H01775)の実施において、金属硫化物触媒の格子 S^{2-} による Redox 作用を活用し、低級 C3, C4 アルカン脱水素プロセスの開拓に取り組んできた。硫化物触媒の表面格子 S^{2-} とアルカン分子が反応 ($C_nH_{2n+2} + S^{2-} \rightarrow C_nH_{2n} + H_2S + Vs + 2e^-$) し、消費した格子 S^{2-} が反応系内に共存する硫化水素(H_2S)で再生 ($H_2S + Vs + 2e^- \rightarrow H_2 + S^{2-}$) される新しい Redox 型の脱水素反応である。この系では、鉄系硫化物が特に有効であり、その格子 S^{2-} による Redox 作用の制御が汎用 Cr 系触媒よりも高収率で劣化の抑制も可能なオレフィン合成を実現することを世界で初めて発見した。一方、炭素数が大きい炭化水素ほど気相中熱分解が加速されることがわかり、さらに異性化や逐次分解など過反応による副生成物がオレフィン選択率を低下させる問題点も浮き彫りとなった。熱分解と過反応による副生成物の抑制は、高選択的なオレフィンの生成に極めて重要なポイントである。しかし、従来の触媒充填型反応システムはこの問題が解決できなかった。

2. 研究の目的

本研究では、硫化物触媒の Redox 作用を電気励起により推進できる反応場を構造体触媒で創製し、気相中ガス温度の高温化の回避と構造体触媒の優れたガス整流性による接触時間の精密制御で、分解反応や逐次反応を抑制する、新規なアルカン脱水素触媒システムの創製を着想した。本システムの特徴は、構造体触媒への電子(e^-)のダイレクトな投入により、 e^- の授受促進で Redox サイクルの加速化と脱水素活性の向上を図ること、電圧・電流の目的可変から Redox サイクルの任意制御と反応加速が期待されること、そしてこのような反応場のみへの電力投入により、気相ガス温度の上昇を回避し、高温気相中で生じうる熱分解を抑制して脱水素生成物の選択性を向上することである。さらには、規則的な空間部をもつ構造体触媒の高いガス整流性により触媒と反応ガスの接触時間を精密に制御し、異性化や分解など逐次的な過反応の進行を抑制することが期待できる。触媒充填システムを主とする、これまでの脱水素システムにはなかった機能性をもつ革新的な脱水素システムである。上記脱水素システムの開拓において、「電気励起による格子 S^{2-} 種の Redox 性がどのように活性化されるのか」、「活性化の格子 S^{2-} 種は脱水素機能にどのような影響を及ぼすのか」についてアルカン脱水素を題材に検討した。また、生成物選択性に対して構造体触媒システムのガス整流性は過反応をどのように抑制するのか」などの学術的に未開拓な「問い」の解明について酸化脱水素や水素化反応を題材に検討した。

3. 研究の方法

(1) 触媒調製

シリカに担持した鉄系触媒 (Fe/SiO_2) は、含浸法によって調製した。また、調製した Fe 系触媒の構造体基材への塗布は、Wash-coat 法にて行なった。脱脂処理と活性化処理を施した構造体基材に、触媒を塗布して乾燥する作業を繰り返し、 Fe/SiO_2 構造体触媒を調製した。酸化脱水素のための窒化ホウ素 (BN) 系スパイラル形触媒は、メカノケミカル処理と Wash-coat 法により調製した。またメタン化用のスパイラル形 Ru/CeO_2 触媒の調製には wash-coat 法を用いた。触媒学会の参照触媒委員会が提供する JRC-CEO-2 を担体とし、Ru 成分を含浸担持し、焼成することで Ru/CeO_2 粉末を得た。なお、Ru の担持量は 10 wt% である。この粉末を蒸留水と混合スラリーに調製し、そこに、スパイラル基材を 720° にひねり加工し、浸漬・乾燥、この操作を数回繰り返してスパイラル形触媒(触媒塗布量 1.0 g/piece)を得た。

(2) 反応性評価

調製した構造体触媒はステンレス棒とステンレス線を接続し、反応管に設置した。反応前に硫化処理を施すことで予め硫化物を形成させた。その後、 N_2 パージをしつつ触媒への通電を行って反応場を昇温して反応を実施した。出口ガスの分析では、石鹼膜流量計を用いてガス流量を計測し、単位時間当たりの流出ガス量を算出した。出口ガスをサンプリングポートからガス用マイクロシリンジで採取し、分析装置に打ち込み分析した。分析装置には GC-FID を使用し、カラムには VZ-7、TC-BOND Almina/ Na_2SO_4 をそれぞれ用いた。

4. 研究成果

(1) 通電加熱によるイソペンタンの脱水素反応

Fig. 1 は、通電加熱 (EIH と略) における通電量を変化させた際の Fe/SiO_2 構造体触媒の赤外線熱画像である。EIH により触媒部が中心に加熱され、投入電力量の増加により触媒反応場の温度が比較的均一に上昇していることがわかる。触媒反応場を直接加熱する EIH の特長である。Fig. 2 は、原料ガス流量が 50 ml/min の条件で EIH により加熱した Fe/SiO_2 構造体触媒の脱水素特性である。目的生成物である C5 オレフィンの合計収率と選択率を示した。投入電力量の増加で転化率と C5 オレフィン収率は増加し、約 150 W の場合に、最大の C5 オレフィン収率 (21%) を示した。一方、C5 オレフィン選択率は投入電力量の増加とともに減少した。過剰な電力投入は触媒部だけでなく気相部も加熱してしまい、原料や生成物の気相熱分解を促進し、選択率が低下

したことが推測された。Fig. 3 は、EIH および電気炉加熱 (CH) によるイソペンタンの脱水素における原料ガス供給量の影響である。原料ガス供給量が 12.5 および 100 ml/min のどちらの場合も、CH に比べ EIH の方が C5 オレフィン選択率は高くなった。また、EIH と CH とも原料ガス供給量の増加で C5 オレフィン選択率は向上したが、EIH の場合がより顕著であった。EIH では原料供給量の増加によって気相温度が低下し、気相分解反応が抑制されたためと考えられた。

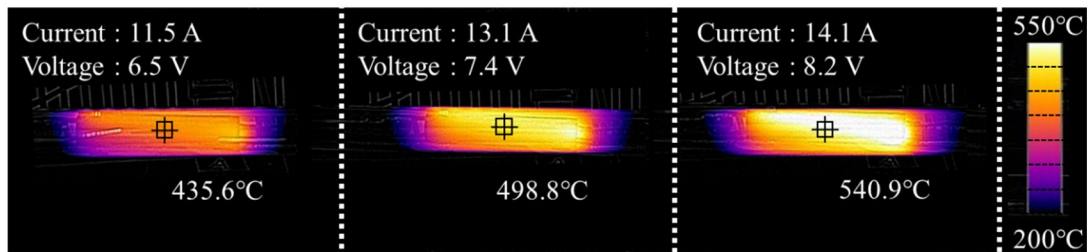


Fig. 1 IR thermal image of Fe/SiO₂ structured catalyst heated by electric internal heating.

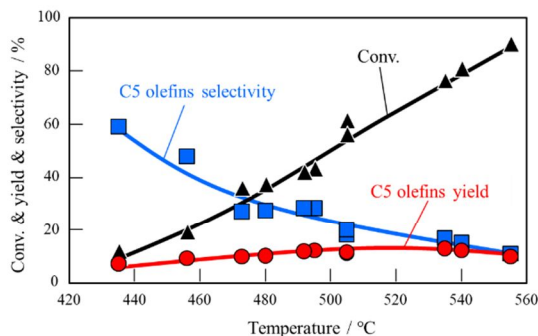


Fig. 2 Effect of temperature on isopentane conversion, C5 olefins yield and selectivity over Fe/SiO₂ structured catalyst.

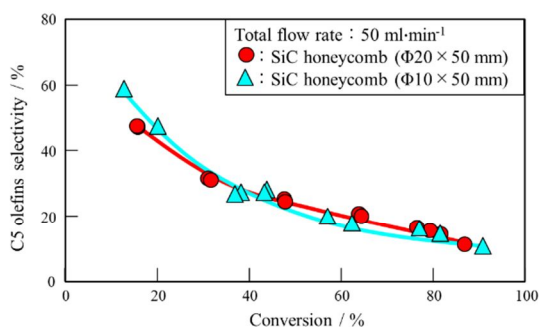


Fig. 3 Effect of diameter of structured catalyst on C5 olefins selectivity.

分解反応の原因と考えられる気相部の加熱に着目し、構造体触媒の長さを短くすることで、気相温度を減少することを考案し、そのイソペンタンの脱水素特性を調査した。通電加熱時の Fe/SiO₂ 構造体触媒の IR カメラによる赤外線熱画像を Fig. 4 に示す。各触媒中心温度におけるイソペンタンの転化率と C5 オレフィン類の選択率および収率を Fig. 5 に、構造体触媒の長さによる C5 オレフィン選択率への影響を Fig. 6 に示す。なお、投入電力は 75 ~ 147 W で検討した。70 W 程度の小さな投入電力で、SiC honeycomb (20 × 50 mm)を用いた場合と同程度の反応場温度に加熱することが可能であった。触媒中心温度が 470 °C において最大収率 22.1 % が得られたため、SiC honeycomb (20 × 10 mm)は SiC honeycomb (20 × 50 mm)の場合に比べ、高い脱水素性

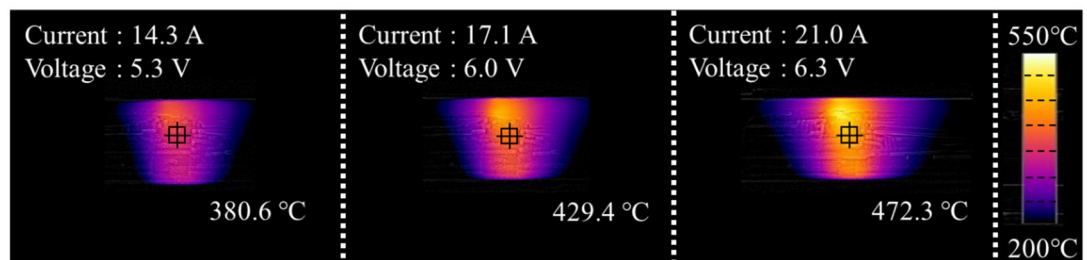


Fig. 4 IR thermal image of Fe/SiO₂ structured catalyst heated by Electric internal heating.

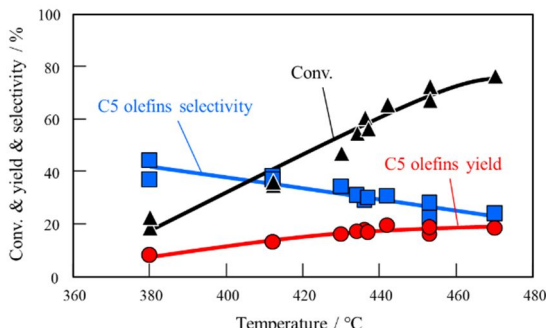


Fig. 5 Effect of temperature on isopentane conversion, C5 olefins yield and selectivity over Fe/SiO₂ structured catalyst.

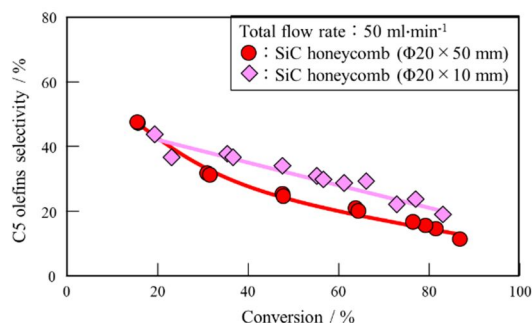


Fig. 6 Effect of length of structured catalyst on C5 olefins selectivity.

能を示したといえる。また、SiC honeycomb (20 × 50 mm)と比較して同転化率において高いC5オレフィン選択率が得られているため、触媒長さが短くなったことにより選択率低下の一因となる気相部の温度上昇が抑制されたことが推測された。

(2) 格子 S²⁻による Redox 反応の解析

Fe/SiO₂ 構造体触媒による硫化水素共存の脱水素が、格子硫黄 (S²⁻) が関与する Redox 型であることを検討するため、濃度ジャンプ法を用いた過渡応答解析を実施した。Fig. 7 は Fe/SiO₂ 触媒における周期パルス試験の結果である。脱水素活性が定常に至った後に、反応ガスをパージしてプロパンのみを供給すると (域) プロピレンの生成と H₂S の生成が確認された。また、プロパンの供給直後はプロピレンと H₂S の生成流量が一致していた。この結果は、鉄系硫化物におけるプロパン脱水素が、触媒上の格子 S²⁻を消費する酸化的脱水素 (C₃H₈ + S²⁻ → C₃H₆ + H₂S + V_S, V_S: 格子欠陥) により進行していることを示唆する。続いて反応ガスをパージした後、H₂S を供給すると H₂ が生成した (域)。このことは、消費された格子 S²⁻の再生 (H₂S + V_S → S²⁻ + H₂) の進行を示唆する。この挙動が繰り返すことから、H₂S 共存のプロパン脱水素は、格子 S²⁻による酸化的脱水素とその再生からなる Redox 機構で反応が進行していることが示唆された。

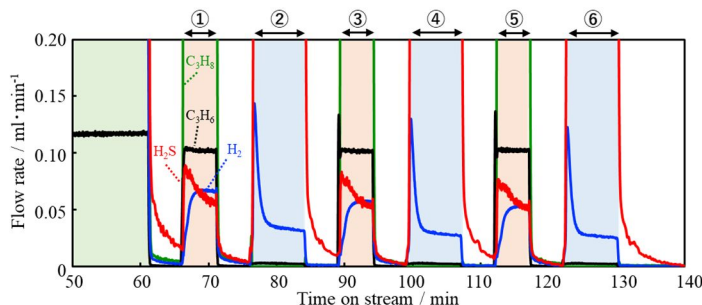


Fig. 7 Periodic pulse test over Fe/SiO₂ catalyst.

Fig. 8 は、Fe/SiO₂ 触媒と Ru-Fe/SiO₂ 触媒における Fig. 7 の (域) で放出し、また再生された格子 S²⁻量の経時変化である。なお、(域) のプロパン供給開始時刻を 0 min とした。各域の操作直後の接線の傾きを格子 S²⁻の放出速度と再生速度と定義すると、Fe/SiO₂ 触媒の放出速度と再生速度はそれぞれ 3.75 と 6.00 mmol·min⁻¹ であり、Ru-Fe/SiO₂ 触媒は 4.32 と 6.20 mmol·min⁻¹ であった。Ru を担持することにより、格子 S²⁻の放出速度と再生速度が促進されたことが、Fe/SiO₂ 触媒の活性向上をもたらす一因であると考えられた。

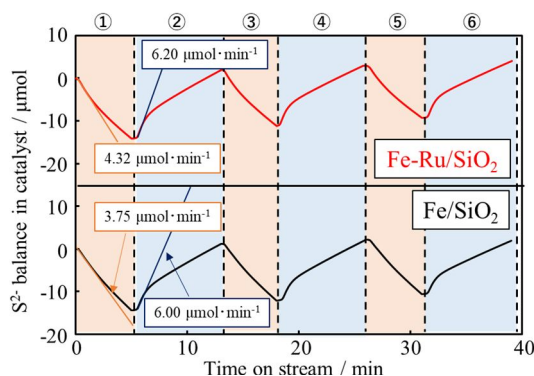


Fig. 8 S²⁻ balance in Fe/SiO₂ and Ru-Fe/SiO₂ catalysts.

(3) 通電加熱システムの種々の反応への展開

プロパンの酸化脱水素

プロパンの酸化脱水素は発熱反応であり、反応の進行に伴い大きなホットスポットが生じる。構造体触媒反応システムは優れた熱伝達特性をもつため、反応場で生じた熱は素早く拡散し、ホットスポットの形成を抑制する。さらに、熱・物質移動性を向上したスパイラル形触媒は、大きな原料ガス供給条件においても局所的な発熱場の形成を回避しつつ高い性能の発揮が期待される。そこで本研究では、プロパンの酸化脱水素反応に有効な窒化ホウ素 (BN) 成分をスパイラル形基材上に構築し、その脱水素特性を評価し、粒状触媒と性能を比較した。さらに、構造体触媒に電流・電圧を印可して触媒を通電加熱することで、脱水素反応の高効率化を図った。

Fig. 9 は、粒状触媒とスパイラル形触媒におけるプロパン転化率とプロピレン選択率の関係である。なお、副生成物は CO および CO₂ である。いずれの触媒も高転化率ほどプロピレン選択率

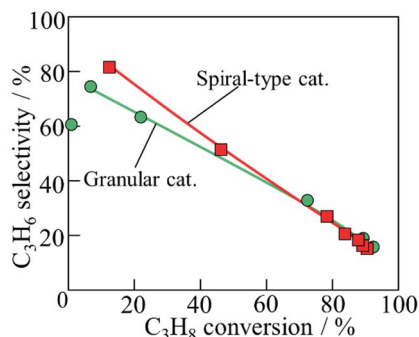


Fig. 9 Dehydrogenation performance of granular and spiral-type catalysts.

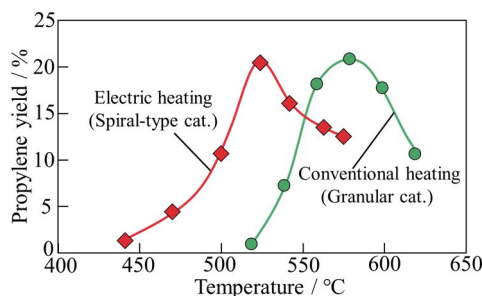


Fig. 10 Propylene yield of granular catalyst and spiral-typed catalysts heated by electric current.

は低下し、その傾向は類似していた。原料プロパンだけでなく生成物のプロピレンが酸化されたためと考えられる。一方、低転化率領域では、スパイラル形触媒は、粒状触媒に比較してより高いプロピレン選択率を示した。スパイラル形基材の高い伝熱性と反応場の直接加熱が、触媒反応場の過剰な温度上昇を抑えて高いプロピレン選択性を与えたことが推測された。Fig. 10 は、通電加熱したスパイラル形触媒と粒状触媒におけるプロピレン収率の温度依存性である。通電加熱方式の場合、粒状触媒に比べて50°C以上も低い温度からプロピレンを生成し、最大収率温度が低温側にシフトしている。構造体触媒場の通電加熱は、反応場の物質移動と熱移動に優れた制御特性を付与し、脱水素反応のパワーアップをもたらすことが示唆された。

CO₂のメタン化反応

CO₂のメタン化反応($\text{CO}_2 + 4\text{H}_2 \rightarrow \text{CH}_4 + 2\text{H}_2\text{O}, \Delta H_{298}^0 = -165 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$)は、温室効果ガスであるCO₂をCH₄資源に変換するCCU技術の一つとして注目されている。これまで我々は、メタン化反応に酸素を共存した外部加熱の不要なAuto-methanation (AM)現象を報告している。このAM現象は、水素燃焼による反応器内の内部加熱がメタン化反応を加速させる。この内部加熱方式の別方法として、触媒自体に電力を投入することでジュール熱を発生させ、反応エネルギーを直接投入する通電加熱条件でも、メタン化反応の促進が期待される。そこでこの検討では、スパイラル形構造体触媒に電力を投入し、通電加熱によるメタン化反応の特性を評価した。

Fig. 11は、スパイラル形Ru/CeO₂触媒に10Wの電力を投入した際の10秒毎の触媒部の赤外線熱画像である。窒素は100 ml/minで供給した。時間の経過に従って、スパイラル形触媒は徐々に加熱され、電力供給開始から約100秒で250に達した。また、基材のひねり状態に沿った温度分布が得られ、基材の良好な通電性が判断できる。Fig. 12は、スパイラル形触媒の各供給電力における平均温度である。供給電力を小さくすると、触媒温度は低下するが、5W程度でも200以上の反応場温度が確保できることがわかる。

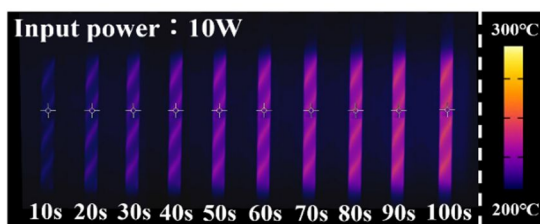


Fig. 11 IR thermal image of Ru/CeO₂ catalyst under electrical heating condition.

Fig. 13はスパイラル形触媒によりメタン化反応を実施した際の、各電力投入条件におけるCO₂転化率とCH₄選択率を示している。供給電力10Wで触媒層の平均温度は297を示し、その際にCO₂転化率は80%であった。5Wの投入条件において、触媒層平均温度は210を示し、10Wの時と比較して約90も低下しているが、CO₂転化率は75%と高い値を示している。この場合、CO₂の電気分解よりも少ない消費電力で高いCO₂変換力が得られた。基材の良好な通電による均一な温度とスパイラル形状で生じる旋回流れによって、触媒層の下流側でも十分に加熱され、このような省電力条件での高いメタン化特性を発揮した。

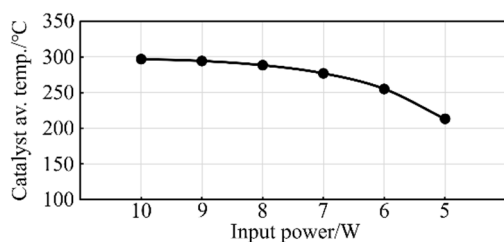


Fig. 12 Effect of power input on catalyst average temperature.

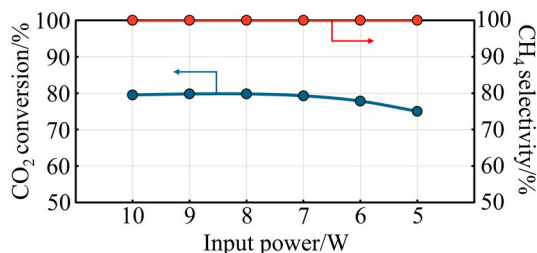


Fig. 13 Effect of power input on CO₂ conversion and CH₄ selectivity over spiral-type Ru/CeO₂ catalyst.

(4) 総括

本研究では、触媒反応場に直接電気エネルギーを投入して気相分解を回避し、かつ硫化物系触媒の表面格子硫黄種のレドックス機能性を電氣的に励起することで、高活性と高選択的な低級アルカンの脱水素反応場を構造体触媒システムで創製することを目的とした。

種々の検討により、通電加熱による触媒部の選択的加熱で、過剰な熱分解反応を抑制して高選択率でC5オレフィン類を生成することを見出した。また、反応条件を最適化し、高収率かつ高選択率でC5オレフィン類を得る条件や、その反応機構を明らかにした。また、通電触媒のシステムの展開を図るために、プロパンの酸化脱水素や、通電触媒システムの効率性を活かしたCO₂のメタン化反応について検討した。BN系多孔質形触媒は、プロパンの酸化脱水素反応に対して、優れた脱水素特性を示し、粒状触媒よりも高いプロピレン選択率を示した。また、このスパイラル形触媒に電流・電圧を印可して触媒自体を直接加熱した通電加熱式脱水素反応システムは、効率的に反応を進行させることが明らかになった。さらに、この通電加熱式のスパイラル形触媒によりCO₂のメタン化反応を行ない、触媒の加熱特性やメタン化特性を評価した。その結果、通電加熱により触媒層の温度を制御でき、スパイラル形状により旋回流れが発生し、反応熱と通電加熱による効率的なエネルギー利用によってメタン化反応が促進し、数ワット程度の僅かな供給電力でも高いCO₂転化率が得られることを明らかになり、提案システムの有用性が示された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 11件 / うち国際共著 4件 / うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Watanabe Ryo, Tanabe Takuya, Fushimi Yuya, Verma Priyanka, Fukuhara Choji	4. 巻 48
2. 論文標題 Steam reforming of aromatics mixture as a model tar over Ni/Al ₂ O ₃ structured catalyst	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 New Journal of Chemistry	6. 最初と最後の頁 8213 ~ 8221
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D4NJ00856A	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 該当する
1. 著者名 Karasawa Fumiya, Watanabe Ryo, Verma Priyanka, Miyagi Yuichi, Yamada Hikaru, Miyanari Setsuko, Fukuhara Choji	4. 巻 48
2. 論文標題 Effect of H ₂ S co-feeding on the performance of the Fe/SiO ₂ catalyst for isomerization and dehydrogenation of C ₅ -monoolefin	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 New Journal of Chemistry	6. 最初と最後の頁 3357 ~ 3363
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3NJ04923J	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 該当する
1. 著者名 Watanabe Ryo, Oba Natsu, Kakuno Itsuki, Smith Suchada, Oshima Kazumasa, Kishida Masahiro, Verma Priyanka, Fukuhara Choji	4. 巻 52
2. 論文標題 Ethylene Production via Thermal Coupling of Methanethiol	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 661 ~ 664
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.230228	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 該当する
1. 著者名 Watanabe Ryo, Oba Natsu, Smith Suchada, Oshima Kazumasa, Kishida Masahiro, Miyake Koji, Nishiyama Norikazu, Verma Priyanka, Fukuhara Choji	4. 巻 13
2. 論文標題 Effect of Ga substitution with Al in ZSM-5 zeolite in methanethiol-to-hydrocarbon conversion	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 21441 ~ 21447
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3RA01852K	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 Watanabe Ryo, Tanikawa Riku, Kurosaki Arisa, Oshima Kazumasa, Kishida Masahiro, Verma Priyanka, Fukuhara Choji	4. 巻 13
2. 論文標題 Synthesis of 2,5-dimethylhexene by isobutene dimerization with H ₂ S co-feeding	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 14097 ~ 14101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3RA01324C	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 該当する

1. 著者名 Hossain Md. Shameem, Akama Hiroshi, Verma Priyanka, Watanabe Ryo, Fukuhara Choji	4. 巻 56
2. 論文標題 Effect of twist angle in spiral-type Ru/CeO ₂ catalysts on CO ₂ auto-methanation performance	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Engineering of Japan	6. 最初と最後の頁 1 ~ 9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00219592.2023.2182628	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 Watanabe Ryo, Karasawa Fumiya, Yokoyama Chikamasa, Oshima Kazumasa, Kishida Masahiro, Hori Masahiro, Ono Yukinori, Satokawa Shigeo, Verma Priyanka, Fukuhara Choji	4. 巻 13
2. 論文標題 Highly stable Fe/CeO ₂ catalyst for the reverse water gas shift reaction in the presence of H ₂ S	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 11525 ~ 11529
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3RA01323E	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 渡部綾、福原長寿	4. 巻 64/6
2. 論文標題 格子硫黄を活用するアルカンのredox型脱水素	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 触媒 (Catalysts and Catalysis)	6. 最初と最後の頁 355 ~ 360
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 渡部 綾	4. 巻 75/10
2. 論文標題 物質変換プロセスにおける電化の最新動向	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 化学と工業	6. 最初と最後の頁 702 ~ 703
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Ryo, Yokoyama Chikamasa, Miyagi Yuichi, Kayaki Shota, Ohshio Nobuyasu, Fukuhara Choji	4. 巻 630
2. 論文標題 Synthesis of C4- and C5-olefins by novel alkane dehydrogenation with H2S co-feeding	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Catalysis A: General	6. 最初と最後の頁 118442 ~ 118442
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcata.2021.118442	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 Fukuhara Choji, Hirata Nozomu, Ozaki Ren, Watanabe Ryo	4. 巻 56
2. 論文標題 Performance intensification of CO2 methanation by co-feeding oxygen over various Ru-Based Catalysts	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Engineering of Japan	6. 最初と最後の頁 1 ~ 12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00219592.2023.2194327	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12件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 柄澤 文哉、渡部 綾、宮城 裕一、渡辺 克哉、Verma Priyanka、福原 長寿
2. 発表標題 内部オレフィンの異性化+脱水素に及ぼす鉄系触媒と硫化水素の共存効果
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 Ryo Watanabe
2. 発表標題 Redox dehydrogenation of propane utilizing lattice S2 - in metal sulfide catalyst
3. 学会等名 31 st Annual Saudi-Japan Symposium (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡部 綾
2. 発表標題 硫化物系触媒の格子S種を活用する レドックス型触媒プロセス群の開拓
3. 学会等名 水素の製造と利用に関するシンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 黒崎 ありさ、柄澤 文哉、河野 芳海、赤間 弘、渡部 綾、福原 長寿
2. 発表標題 Fe系構造体触媒によるH ₂ S共存のイソペンタン脱水素に及ぼす通電加熱の効果
3. 学会等名 触媒学会 第139回触媒討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡部 綾、黒崎 ありさ、柄澤 文哉、赤間 弘、Verma Priyanka、福原 長寿
2. 発表標題 通電加熱式Fe系構造体触媒システムによるH ₂ S共存のイソペンタン脱水素特性
3. 学会等名 化学工学会 第53回秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ryo WATANABE, Yuta YODA, Yoshiumi KOHNO, Choji FUKUHARA
2. 発表標題 Effect of support species on performance of Fe-based catalysts for propane dehydrogenation with co-feeding of H ₂ S
3. 学会等名 TOCAT9
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Arisa KUROSAKI, Chikamasa YOKOYAMA, Ryo WATANABE, Yuichi MIYAGI, Syota KAYAGI, Nobuyasu OHSHIO, Choji FUKUHARA
2. 発表標題 Effect of co-feeding hydrogen sulfide on dehydrogenation of C ₄ , C ₅ alkane over transition metalbased catalysts
3. 学会等名 TOCAT9
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡部 綾, 黒崎ありさ, 横山遵匡, 福原長寿
2. 発表標題 通電加熱がFe 系構造体触媒によるH ₂ S 共存アルカン脱水素の選択性向上に及ぼす影響
3. 学会等名 石油学会 64回年会70回研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 黒崎 ありさ、横山 遵匡、渡部 綾、福原 長寿
2. 発表標題 通電加熱式のFe系構造体触媒によるH ₂ S共存のイソペンタン脱水素特性の評価
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 渡部 綾、黒崎 ありさ、横山 遵匡、福原 長寿
2. 発表標題 通電加熱がFe系構造体触媒によるH ₂ S共存アルカン 脱水素の選択性向上に及ぼす影響
3. 学会等名 石油学会 第64回年会 (第70回研究発表会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡部 綾
2. 発表標題 気相 S 種を活用する触媒反応プロセス群の開拓
3. 学会等名 触媒学会宇都宮地区講演会 「気鋭若手研究者による先進研究の最前線 基礎科学から応用・実用化まで」 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 渡部綾
2. 発表標題 鉄系硫化物によるレドックス型アルカン脱水素反応
3. 学会等名 触媒学会 千葉地区講演会 「触媒科学の新展開」 (招待講演)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔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	福原 長寿 (Fukuhara Choji) (30199260)	静岡大学・工学部・教授 (13801)	

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