

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：11401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01761

研究課題名（和文）CO₂の削減と高付加価値化を目的とした超臨界CO₂電解還元リアクターの開発研究課題名（英文）Development of supercritical CO₂ electroreduction reactor

研究代表者

田口 正美（Taguchi, Masami）

秋田大学・名誉教授・名誉教授

研究者番号：90143073

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,800,000円

研究成果の概要（和文）：大気中のCO₂濃度低減を目指して、回収CO₂をその場でCOに変換する「超臨界CO₂電解還元リアクター」に用いる種々のカソード材料のCO₂電解還元活性を調査した。Ni/YSZ、Co/YSZ、Fe/YSZカソードを比較したところ、Ni/YSZが最も優れたCO₂電解還元活性を示した。しかしながら、700℃以下においては電流効率が大幅に低下することが明らかになった。次に、新規酸化物イオン伝導体である12CaO・7Al₂O₃（C12A7）を用いたNiカソードを用いて電流効率の改善を試みた。その結果、NiとC12A7の体積比を2：1とすることで、700℃においても90%以上の電流効率が確認された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

YSZに代わり、12CaO-7Al₂O₃を酸化物イオン伝導体としてNiと混合することで、優れたCO₂電解還元活性が発言することを見出した。優れた特性を示した要因を調査することで、12CaO-7Al₂O₃の新たな機能を究明することは、高い学術的意義を持ち、12CaO-7Al₂O₃の様々な電気化学システムへの活用が期待できる。また、CO₂を高効率で還元できることから、大気中のCO₂濃度低減に貢献できる。

研究成果の概要（英文）：The CO₂ electrolytic reduction activity of various cathode materials for "supercritical CO₂ electrolytic reduction reactor in which CO₂ is converted to CO, was investigated with the aim of reducing the CO₂ concentration in atmosphere. Among the YSZ-based cathodes, Ni/YSZ showed the best CO₂ electrolytic reduction activity. However, the current efficiency of the Ni/YSZ cathode significantly lowered at temperatures below 700 °C. Next, we attempted to improve the current efficiency using a Ni cathode with a new oxide ion conductor, 12CaO-7Al₂O₃ (C12A7). As a result, when a volume ratio of Ni to C12A7 was 2:1, a current efficiency of more than 90% was confirmed even at 700 °C.

研究分野：材料電気化学

キーワード：二酸化炭素 地球温暖化 電解還元 リアクター 付加価値化

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。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

地球全体の CO₂ 濃度は、工業化以前 (1750 年頃) の平均的な値に比較すると、近年 (2014 年) は 42 %も増加している。その結果もたらされる「地球温暖化」は、地球規模で海水面の上昇や降水量の変化を引き起こし、世界各地で洪水や干ばつ、酷暑や台風などの苛酷な気象現象となって顕在化している。さらに、生物種の大規模な絶滅を引き起こす可能性も指摘されている。CO₂ を削減する方法として二酸化炭素の回収・貯蔵 (Carbon dioxide Capture and Storage: CCS) が提唱されている。CCS は、CO₂ を回収し地中や海底深くに埋める方法であるが、膨大なコストを要すること、日本では貯蔵する土地が限定されること、さらに貯蔵であって抜本的な CO₂ の削減策とは言えないなどの問題がある。そのため、CCS に代わる CO₂ 削減方法の開発が強く求められている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、火力発電所や製錬所等の大規模 CO₂ 発生源に併設し、発生した CO₂ をその場で CO に変換する「超臨界 CO₂ 電解還元リアクター」を開発することである。すなわち、酸素イオン伝導体を固体電解質に用いた電解還元リアクターを作製し、CO₂ 発生源のボイラー等からの高温排熱と電力を利用し 700 前後に昇温する。これに、高温排熱による加熱で超臨界状態にした CO₂ を導入し、直流電力を印加することによってその場で電気化学的に CO に還元する。

3. 研究の方法

研究目的 「CO₂ 電解還元の電流効率に及ぼす反応温度ならびに電極材料 (アノード、電解質およびカソード) の影響を明確にする」ため、SOFC の電極作製方法を参考とし、イットリア安定化ジルコニア (Yttria Stabilized Zirconia, YSZ) を酸化物イオン伝導体としたサーメット電極を作製し、CO₂ 電解還元活性を調査する。続いて、研究目的 「チューブ型電解還元リアクターの性能評価と反応モジュールの設計」を行う。すなわち、チューブ型電解還元リアクターを製造し、反応温度を 600 ~ 900 に変化させて、CO₂ 削減と CO 製造に関わる処理能力、消費電力原単位、エネルギー収支などのデータを収集する。さらに研究目的 「反応モジュールによる超臨界 CO₂ 電解還元の実証試験」の実施を目指す。最終段階では、反応温度を 600 ~ 900 に変化させて反応モジュールを稼働し、「超臨界 CO₂ 電解還元リアクター」としての実用化の可否を判断する。

具体的には以下の順序で研究を遂行する。(1) YSZ ベースサーメットカソードの作製、(2) YSZ ベースサーメットアノードの CO₂ 電解還元特性の調査、(3) CO₂ 電解還元時の電流効率の調査、(4) チューブ型電解還元リアクターの性能評価と反応モジュールの設計、(5) 反応モジュールによる超臨界 CO₂ 電解還元の実証試験。

4. 研究成果

(1) YSZ ベースサーメットアノードの作製：本研究では、CO₂ 電解還元用のカソード材料として、Ni/YSZ、Co/YSZ および Fe/YSZ を調製した。各種金属硝酸塩水溶液を YSZ 粉末に含浸し、乾燥、焼成、水素還元を経て YSZ ベースサーメットカソードを得た。(2) YSZ ベースサーメットアノードの CO₂ 電解還元特性の調査：調製した YSZ ベースサーメットカソード、YSZ 電解質円板、La_{0.8}Sr_{0.2}MnO₃ アノードを用いて単セルを作製した。得られた単セルを固体酸化物形燃料電池評価装置に設置して CO₂ 電解還元活性を調査した。図 1 に、YSZ ベースサーメットカソードの CO₂ 電解還元活性を示す。Ni/YSZ が最も優れた CO₂ 電解還元カソードであることが明らかになった。(3) CO₂ 電解還元時の電流効率の調査：図 2 に、YSZ ベースサーメットカソードの CO₂ 電解還元における電流効率を示す。電流効率は、発生した CO 量を、質量分析計を備えたガス分析システムで定量することで算出した。このとき、印加電流は 100 mA とした。Ni/YSZ、および Co/YSZ カソードを用いた場合、800 ~ 1000 で 90% 以上の高い電流効率を達成したが、Fe/YSZ カソードでは 900 から電流効率が低下し始め、800 では 54% まで電流効率が低下した。また、700 以下ではいずれのカソードにおいても大きく電流効率が低下する傾向がみられた。電流効率低下の原因として、生成 CO が金属酸化物の還元を利用されることが考えられる (MO + CO → M + CO₂)。また、試験後のカソード表面を分析すると、カーボンが検出されたことから、ブドワール反応 (2CO = C + CO₂) の影響があったと考えられる。ここで、CO₂ 電解還元特性向上を目的とし、酸化物イオン伝導体として 12CaO · 7Al₂O₃ (C12A7) を用いてカソード材料を作製し、CO₂ 電解還元試験に供した。図 3 に、1000 における Ni/C12A7 (Ni : C12A7 = 1 : 1)、Ni/C12A7 (Ni : C12A7 = 2 : 1) および Ni/YSZ の電流密度 - 電圧曲線を示す。

Ni/C12A7(Ni : C12A7 = 2 : 1) > Ni/YSZ > Ni/C12A7(Ni : C12A7 = 1 : 1)の順に CO₂ 電解還元活性が高いことがわかった。Ni/C12A7(Ni : C12A7 = 2 : 1)の活性が高かった理由としては、金属触媒と C12A7 の混合割合が最適化されたために高い e⁻ 伝導と O²⁻ 伝導が両立されたことや、C12A7 が Ni 上の CO₂ 電解還元反応を促進したことが考えられる。(4) チューブ型電解還元リアクターの性能評価と反応モジュールの設計と(5) 反応モジュールによる超臨界 CO₂ 電解還元の実証試験については、チューブ型電解還元リアクターの設計にとどまり、実証試験にはいたらなかった。しかしながら上述のように、C12A7 について詳細に CO₂ 電解還元活性を調査し、当初は想定していなかった良好な特性を確認できた。今後、C12A7 の役割を明らかにすることで、新しい学理ならびに用途が開かれると期待している。

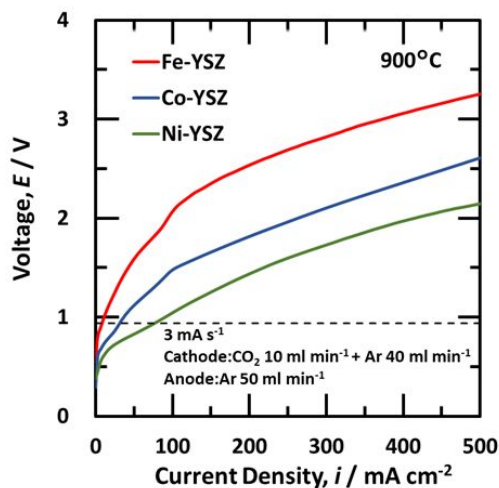


図1 YSZ ベースサーメットカソードの CO₂ 電解還元活性

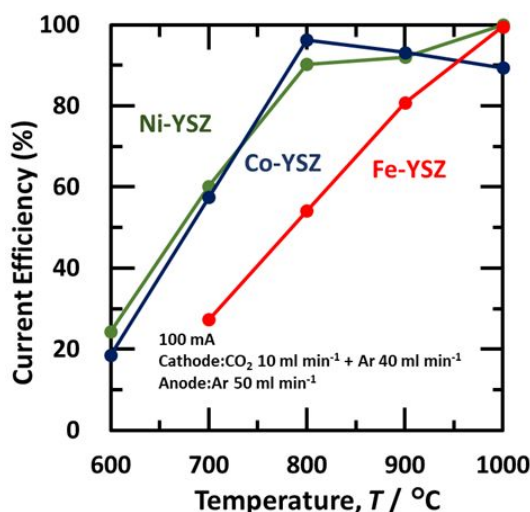


図2 YSZ ベースサーメットカソードの CO₂ 電解還元における電流効率

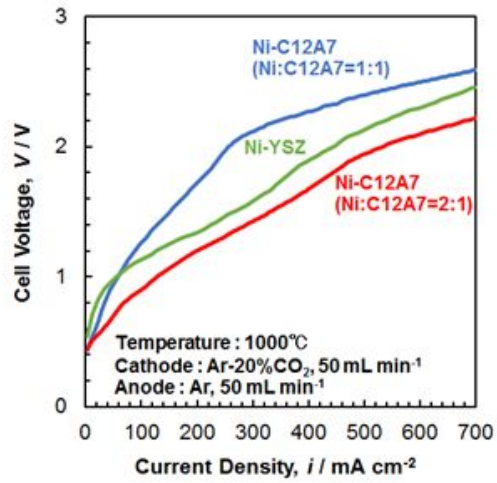


図3 1000 における Ni/C12A7(Ni:C12A7 = 1:1) , Ni/C12A7(Ni:C12A7 = 2:1)および Ni/YSZ の電流密度 - 電圧曲線

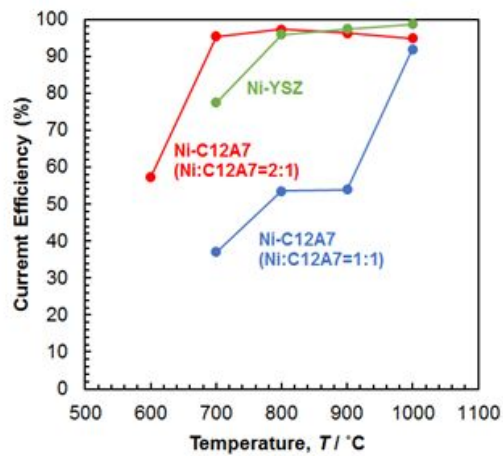


図4 Ni/C12A7(Ni : C12A7 = 1 : 1) , Ni/C12A7(Ni : C12A7 = 2 : 1)および Ni/YSZ の反応温度と電流効率の関係

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 TAKAHASHI Hiroki, OZAWA Yuuji, OHKUBO Keisuke, TAGUCHI Masami, SUZUKI Kazunari	4. 巻 24
2. 論文標題 Oxygen Evolution Overpotential of Pb-based Insoluble Anode Containing Ru Oxide Powders Prepared by Liquid-phase Reaction and Heating	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of the Society of Materials Engineering for Resources	6. 最初と最後の頁 6~12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5188/ijmsmer.24.6	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 OHKUBO Keisuke, TAKAHASHI Hiroki, WATTERS E. P. J., TAGUCHI Masami	4. 巻 88
2. 論文標題 In-situ Analysis of CO2 Electroreduction on Pt and Pt Oxide Cathodes	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Electrochemistry	6. 最初と最後の頁 210~217
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5796/electrochemistry.19-00066	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 SEKINE Takashi, NINO Akihiro, SUGAWARA Yasushi, SUGIYAMA Shigeaki, OHGUCHI Ken-ichi, TAIMATSU Hitoshi	4. 巻 67
2. 論文標題 Synthesis and Mechanical Properties of AlN-WC Ceramics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy	6. 最初と最後の頁 581~587
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2497/jjspm.67.581	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 NINO Akihiro, SEKINE Takashi, SUGIYAMA Shigeaki	4. 巻 69
2. 論文標題 Synthesis and Mechanical Properties of Silicon Nitride-Tungsten Carbide Composite Ceramics	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy	6. 最初と最後の頁 78~86
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2497/jjspm.69.78	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 Saito Kanji, Oriyasa Shota, Asakura Yusuke, Ide Yusuke, Sugahara Yoshiyuki, Ogasawara Masataka, Yin Shu, Kato Sumio	4. 巻 2021
2. 論文標題 Ni-Doped Protonated Layered Titanate/TiO ₂ Composite with Efficient Photocatalytic Activity for NO _x decomposition Reactions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Photoenergy	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) 10.1155/2021/8847956	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 Kato Sumio, Kagawa Sota, Saito Kanji, Ogasawara Masataka	4. 巻 163
2. 論文標題 Effect of H ₂ O on Cu incorporation and deposition behaviors in hydroxyapatite by heat treatment	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Physics and Chemistry of Solids	6. 最初と最後の頁 110547 ~ 110547
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jpccs.2021.110547	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 M. Ogasawara, T. Ban, K. Saito and S. Kato	4. 巻 128
2. 論文標題 Preparation of inorganic-organic composites as acid-base catalysts using HCa ₂ Nb ₃ -xTax ₀ 10 and quaternary onium salts	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.19119	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 S. Kato, N. Takagi, K. Saito and M. Ogasawara	4. 巻 4
2. 論文標題 Synthesis of delafossite-type Ag _{0.9} MnO ₂ by the precipitation method at room temperature	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 9763-9768
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.9b01163	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 大久保敬祐, 高橋弘樹, 田口正美	4. 巻 135
2. 論文標題 CO2還元に対するPt酸化物の電極触媒活性	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. MMIJ	6. 最初と最後の頁 8-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2473/journalofmmij.132.53	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 S. Kato, S. Ikeda, K. Saito, M. Ogasawara	4. 巻 265
2. 論文標題 Fe incorporation into hydroxyapatite channels by Fe loading and post-annealing	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Solid State Chem.	6. 最初と最後の頁 411-416
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 -

〔学会発表〕 計107件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 Hiroki Takahashi, Keisuke Ohkubo, and Masami Taguchi
2. 発表標題 CO2 Electroreduction Reaction on Pt-Cu Catalyst and its In-situ Analysis by Infrared Spectroscopy
3. 学会等名 PRiME 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤ひかる, 内藤友哉, 高橋弘樹
2. 発表標題 Pt系薄膜電極のアルカリ溶液中におけるアンモニア酸化活性
3. 学会等名 電気化学会東北支部第33 回東北若手の会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤坂飛翔, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 反応性スパッタによるRu系化合物の作製と酸素発生反応の調査
3. 学会等名 電気化学会東北支部第33 回東北若手の会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤ひかる, 内藤友哉, 高橋弘樹
2. 発表標題 Pt系合金薄膜電極のアルカリ溶液中におけるアンモニア酸化活性
3. 学会等名 第19回 日本金属学会東北支部研究発表大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤坂飛翔, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 反応性スパッタによるRu系薄膜の作製と酸素発生反応の調査
3. 学会等名 第19回 日本金属学会東北支部研究発表大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 今井拓海, 菊池時矢, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 Electrolysis of CO ₂ in Solid Oxide Electrolyzer with various complex oxide cathodes
3. 学会等名 2020年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高橋弘樹, 山口大輝, 田口正美
2. 発表標題 Zn電解採取用Pb基不溶性アノードの酸素発生過電圧に及ぼす複合酸化物の効果
3. 学会等名 資源・素材2020 (仙台)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 沼澤時生, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 Pt-CeO ₂ 電極触媒のCO ₂ 電解還元活性
3. 学会等名 日本金属学会2020年秋期 (第167回) 講演大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渡辺大樹, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 Mo窒化物の調製と酸性溶液中における酸素還元特性の評価
3. 学会等名 日本金属学会2020年秋期 (第167回) 講演大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 藤坂飛翔, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 反応性スパッタによるRu-N薄膜の作製と酸素発生反応の調査
3. 学会等名 日本金属学会2020年秋期 (第167回) 講演大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hiroki Takahashi, Daiki Watanabe, and Masami Taguchi
2. 発表標題 Preparation of Molybdenum Nitride and its Oxygen Reduction Activity
3. 学会等名 ICMR 2021 AKITA (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hikaru Sato, Yuya Naito, and Hiroki Takahashi
2. 発表標題 Ammonia Oxidation Activity in Alkaline Solution of Pt Alloy Thin Film Electrodes
3. 学会等名 ICMR 2021 AKITA (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤ひかる, 佐々木一心, 高橋弘樹
2. 発表標題 Pt-Mo薄膜のアルカリ溶液中におけるアンモニア酸化活性
3. 学会等名 秋田化学技術協会第56回研究技術発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋弘樹, 河内洋祐
2. 発表標題 PtカソードのCO ₂ 電解還元反応におけるO ₂ の影響
3. 学会等名 秋田化学技術協会第56回研究技術発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋弘樹
2. 発表標題 水溶液系電解プロセスに用いる電極材料の探索と活性発現メカニズムの調査
3. 学会等名 秋田県高エネルギー加速器技術研究会 令和3年度第2回研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤ひかる, 内藤友哉, 高橋弘樹
2. 発表標題 Ammonia Oxidation Activity of Pt-based Anode Catalyst in Alkaline Media
3. 学会等名 令和3年度 化学系学協会東北大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 細島洋喜, 中田泰斗, 山口大樹, 田口正美, 高橋弘樹
2. 発表標題 Pb-base Anode Containing Complex Oxide for Oxygen Evolution Reaction in Zn electrowinning
3. 学会等名 令和3年度 化学系学協会東北大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤ひかる, 内藤友哉, 高橋弘樹
2. 発表標題 Pt系二元合金薄膜のアルカリ溶液中におけるアンモニア酸化活性
3. 学会等名 日本金属学会2021年秋期（第169回）講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤ひかる, 内藤友哉, 高橋弘樹
2. 発表標題 Pt M (M=Al, Cu, Ni) 電極のアルカリ溶液中におけるアンモニア酸化活性
3. 学会等名 日本素材物性学会令和3年度(第31回)年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋弘樹, 中田泰斗, 山口大樹, 田口正美
2. 発表標題 Co系層状酸化物含有Pbアノードの酸素発生過電圧の評価
3. 学会等名 日本素材物性学会令和3年度(第31回)年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 仁野章弘, 濱田遼平, 関根崇, 杉山重彰
2. 発表標題 AlN およびSi ₃ N ₄ セラミックスの機械的性質に及ぼすW ₀₃ の影響
3. 学会等名 第19回 日本金属学会東北支部研究発表大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 関根崇, 仁野章弘, 菅原靖, 杉山重彰, 大口健一, 泰松斉
2. 発表標題 AlN-WC複合セラミックスの微細組織と機械的性質
3. 学会等名 2020年度秋季粉体粉末冶金協会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小笠原正剛, 清水芽依, 齋藤あすか, 齋藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 層間架橋体を無機種とした有機無機複合体の調製と塩基触媒活性
3. 学会等名 第36回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 宇佐見優真, 齋藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 チャンネル内にMnを含むハイドロキシアパタイトの合成
3. 学会等名 令和2年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 森田史斗, 齋藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 Ag-Mn系デラフォサイト型固溶体の合成および熱的特性
3. 学会等名 令和2年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鹿川聡太, 齋藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 チャンネル内にCu, Ni両イオンを含むアパタイト型リン酸塩の合成と析出挙動の検討
3. 学会等名 令和2年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 赤沼玲奈, 伴拓人, 小笠原正剛, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 層間にジアルキルジメチルアンモニウムを含む有機無機複合体の酸塩基特性
3. 学会等名 第50回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 後藤秀和, 諏訪麻祐子, 大橋竜太郎, 永尾有希, 遠藤慶徳, 若林誉, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 耐熱性ゼオライトを有する新規HCトラップ触媒の開発
3. 学会等名 第127回触媒討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 加藤純雄, 鹿川聡太, 齊藤寛治, 小笠原正剛
2. 発表標題 チャンネル内に Cu, Fe イオンを含むアパタイト型リン酸塩の合成
3. 学会等名 日本セラミックス協会2021年年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. Saito, Y. Katabira, M. Ogasawara, S. Kato
2. 発表標題 Enhanced photocatalytic hydrogen production from aqueous Pt-loaded TiO ₂ /cellulose suspension using layered solid acids as an excellent additive
3. 学会等名 Pacifichem2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小笠原正剛, 清水芽依, 齋藤あすか, 赤沼玲奈, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 HCa ₂ Nb ₃ O ₁₀ 層間架橋体を無機種とした有機無機複合体の調製
3. 学会等名 日本素材物性学会令和3年度年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 齊藤寛治, 帷子優璃, パッタナスパワーニットピールスップ, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 半導体光触媒によるセルロース分散水からの水素生成反応に層状固体酸の添加が及ぼす影響
3. 学会等名 日本粘土学会第64回粘土科学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小野寺正宗, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 静電的相互作用によるTiO ₂ /ハイドロキシアパタイト凝集体の形成”, 齊藤寛治, 鎌田真実, 梁瀬光妙
3. 学会等名 第128回触媒科学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 下田陽南, 齊藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 Synthesis of apatite-type phosphates containing copper and fluoride ions in the channel
3. 学会等名 令和3年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 赤沼玲奈, 清水芽依, 小笠原正剛, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 Preparation of inorganic-organic composites as base catalysts using silica pillared-niobates and quaternary onium salts
3. 学会等名 令和3年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小林航大, 齊藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 HCa ₂ -xLaxNb ₃ -xTixO ₁₀ から得られる有機無機複合体の塩基触媒活性
3. 学会等名 令和3年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三浦康太, 小笠原正剛, 後藤秀和, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 ローシリカベータ型ゼオライトの熱安定性
3. 学会等名 令和3年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三浦康太, 小笠原正剛, 後藤秀和, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 Study on thermal stability of phosphorus-modified beta zeolite (Si/Al = 5)
3. 学会等名 令和3年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宇佐見優真, 齊藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 チャンネル内にCuおよびMnイオンを含むハイドロキシアパタイトの合成
3. 学会等名 令和3年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鈴木涼介, 小笠原正剛, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 層状ペロブスカイト型化合物 K_2NbO_3F を用いたメソ構造体のKnoevenageI反応による塩基触媒活性評価
3. 学会等名 令和3年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 陳暁, 齊藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 アパタイト型リン酸塩のチャンネル内へのZnの導入および析出挙動の検討
3. 学会等名 令和3年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 下田陽南, 齊藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 チャンネル内に銅イオンおよびフッ化物イオンを含むアパタイト型リン酸塩の合成
3. 学会等名 令和3年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小笠原正剛, 三浦康太, 後藤秀和, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 リン修飾ベータ型ゼオライトの熱安定性とトルエン吸着特性
3. 学会等名 第37回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 齊藤寛治, 帷子優璃, パッタナスパワーニットピーラスupp, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 セルロース分散水からの光触媒的水素生成に層状固体酸の添加が及ぼす影響
3. 学会等名 2021年度 第8回ZAIKEN Festa
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 加藤純雄・宇佐見優真・齊藤寛治・小笠原正剛
2. 発表標題 ハイドロキシアパタイトチャンネル内へのCuおよびMnイオンの導入および析出挙動
3. 学会等名 日本セラミックス協会2022年年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 熊谷清孝, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 高温でのCO ₂ 電解還元特性に及ぼすカソード材料の影響
3. 学会等名 日本素材物性学会平成31年度(第29回)年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 沼澤時生, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 PtのCO ₂ 電解還元活性に及ぼすCeO ₂ 添加の効果
3. 学会等名 日本素材物性学会平成31年度(第29回)年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 渡辺大樹, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 Mo窒化物ナノ粒子の調製とHClO ₄ 水溶液中における酸素還元特性の評価
3. 学会等名 日本素材物性学会平成31年度(第29回)年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋弘樹, 熊谷清孝, 菅原和久, 田口正美
2. 発表標題 CO ₂ 高温電解還元特性に及ぼすカソード触媒の影響
3. 学会等名 日本金属学会2019年秋期講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋勇樹, 高橋弘樹, 菅原和久, 田口正美
2. 発表標題 HClO ₄ 水溶液中におけるPt-Cu/Cの酸素還元活性
3. 学会等名 日本金属学会2019年秋期講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takumi Imai , Hiroki Takahashi , Masami Taguchi
2. 発表標題 Electrolytic reduction of CO ₂ in solid oxide electrolysis cells with Ni-C12A7 cathode
3. 学会等名 令和元年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tokio Numazawa , Hiroki Takahashi , Masami Taguchi
2. 発表標題 CO ₂ electrolytic reduction activity of Pt-CeO ₂ electrodes
3. 学会等名 令和元年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tsubasa Fujisaka , Hiroki Takahashi , Masami Taguchi
2. 発表標題 Preparation of Mo-N thin films by reactive sputtering and evaluation of oxygen reduction reaction on in alkaline solution
3. 学会等名 令和元年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Daiki Watanabe , Hiroki Takahashi , Masami Taguchi
2. 発表標題 Preparation of molybdenum nitride particles from molybdenum sulfide and evaluation of oxygen reduction reaction
3. 学会等名 令和元年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大久保敬祐, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 Pt-Cu電極のCO ₂ 電解還元活性
3. 学会等名 資源・素材2019 (京都)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 熊谷清孝, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 高温CO ₂ 電解に及ぼすカソード触媒の効果
3. 学会等名 資源・素材2019 (京都)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小笠原正剛, 赤沼玲奈, 伴拓人, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 H ₂ Ca ₂ Nb ₃ -xTaxO ₁₀ -CnTMA複合体の調製と塩基触媒活性
3. 学会等名 日本セラミックス協会2020年年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 加藤純雄, 鹿川聡太, 齊藤寛治, 小笠原正剛
2. 発表標題 Cu含有ハイドロキシアパタイトからのCu種の析出挙動
3. 学会等名 日本セラミックス協会2020年年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小笠原正剛, 井上晃汰, 森田史斗, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 二元細孔を有するメソポーラスシリカを担体としたPt触媒のプロピレン燃焼特性
3. 学会等名 第35回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高木直斗, 齊藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 固相反応法によるAg-Mn系化合物の合成と熱安定性
3. 学会等名 令和元年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 森田史斗, 井上晃汰, 齊藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 二元細孔を有するメソポーラスシリカを担体としたPt-K/BMSの触媒特性に対するK添加量の影響
3. 学会等名 令和元年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鹿川聡太, 齊藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 アバタイト型リン酸塩のCuイオンの固溶・析出に対する水蒸気の影響
3. 学会等名 令和元年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 赤沼玲奈, 伴拓人, 小笠原正剛, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 H ₂ Ca ₂ Nb ₃ -xTaxO ₁₀ を用いた有機無機複合体の調製と塩基触媒活性
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 稲熊航大, 齊藤寛治, 小川誠, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 レピドクロサイト型層状チタン酸の水素生成反応に対する光触媒活性への調製条件の影響
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 齊藤寛治, 稲熊航大, 小川誠, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 調製温度と組成の制御が層状リチウムチタン酸カリウムの光触媒活性に与える影響
3. 学会等名 日本粘土学会第63回粘土化学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 齊藤寛治, 小宮雄輔, 宗宮穰, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 層状ニッケルチタン酸の相分離を利用したNiドーピング型TiO ₂ 系光触媒の設計
3. 学会等名 日本粘土学会若手の会第11回若手研究者若手発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 齊藤寛治, 小宮雄輔, 宗宮穰, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 層状ニッケルチタン酸の相分離で得られる緻密なNiドープ型TiO ₂ -NiTiO ₃ ナノコンポジットの可視光応答型光触媒活性
3. 学会等名 日本素材物性学会令和元年度年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 若宮理, 杉本英夫, 青木雄二, 小笠原正剛, 加藤純雄, 金澤伸浩, 早川敦, 高橋正, 栗本康司, 石川祐一
2. 発表標題 熱処理温度の異なるバイオチャーの理化学性の変化
3. 学会等名 第17回木質炭化学会・日本バイオ炭普及会合同研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小笠原正剛, 加藤純雄, 畠山悠馬, 高橋武彦
2. 発表標題 木質系バイオマス粉碎工程におけるセルロースの構造変化
3. 学会等名 固体NMR・材料フォーラム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 関根崇, 仁野章弘, 菅原靖, 杉山重彰, 泰松斉
2. 発表標題 AlNセラミックスの焼結性と機械的性質に及ぼすWC添加の影響
3. 学会等名 2019年度春季粉体粉末冶金協会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 仁野章弘, 金子雅樹, 関根崇, 杉山重彰
2. 発表標題 焼結助剤を含まないWC-Si ₃ N ₄ 硬質セラミックスの微細組織と機械的性質の関係
3. 学会等名 日本金属学会2019年秋期講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋弘樹, 羽田崇良, 大久保敬祐, 田口正美
2. 発表標題 固体酸化物形電解セルを用いたCO ₂ 電解還元に及ぼす電極触媒の影響
3. 学会等名 日本素材物性学会平成30年度(第28回)年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大久保敬祐, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 PtおよびPt酸化物におけるCO ₂ 電解還元と赤外光を用いたその場解析
3. 学会等名 日本素材物性学会平成30年度(第28回)年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋勇樹, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 Pt-CuおよびPt-Cu酸化物薄膜の作製と酸素還元活性の評価
3. 学会等名 日本素材物性学会平成30年度(第28回)年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 熊谷清孝, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 H ₂ Oの高温電解還元特性に及ぼす電極触媒の影響
3. 学会等名 日本素材物性学会平成30年度(第28回)年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Keisuke Ohkubo, Hiroki Takahashi, Masami Taguchi
2. 発表標題 Difference in reaction path of CO ₂ electroreduction on Pt and Pt oxide
3. 学会等名 GREENシンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋弘樹, 羽田崇良, 大久保敬祐, 田口正美
2. 発表標題 酸化物イオン導電体を用いたCO ₂ 電解還元に及ぼす電極触媒の影響
3. 学会等名 資源・素材2018(福岡)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大久保敬祐, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 PtおよびPt酸化物電極上のCO ₂ 還元反応のその場赤外分光測定
3. 学会等名 資源・素材2018(福岡)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋弘樹, 大久保敬祐, 田口正美
2. 発表標題 Electrocatalytic Activity of Pt-based Cathode for CO ₂ Reduction
3. 学会等名 平成30年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大久保敬祐, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 In-situ analysis for CO ₂ reduction on Pt and Pt oxide cathodes
3. 学会等名 平成30年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋勇樹, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 Preparation of Pt-Cu and Pt-Cu oxide thin films by reactive sputtering and evaluation of oxygen reduction activity
3. 学会等名 平成30年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 熊谷清孝, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 Effect of electrocatalyst on high temperature electrolytic reduction of CO ₂
3. 学会等名 平成30年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田口正美, 高橋弘樹
2. 発表標題 Electrolytic Reduction of Carbon Dioxide by Solid Oxide Electrolysis Cells
3. 学会等名 平成30年度化学系学協会東北大会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋弘樹, 大久保敬祐, 田口正美
2. 発表標題 NiまたはCoを含むYSZ系サーメットカソードによるCO ₂ 電解還元
3. 学会等名 日本金属学会2018年秋期講演大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大久保敬祐, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 PtおよびPt酸化物によるCO ₂ 還元反応と赤外分光法を用いた反応中間体その場解析
3. 学会等名 日本金属学会2018年秋期講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋勇樹, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 反応性スパッタで作製したPt-CuおよびPt-Cu酸化物薄膜の酸素還元活性
3. 学会等名 日本金属学会2018年秋期講演大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 熊谷清孝, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 固体電解質YSZを用いたCO2の高温電解還元
3. 学会等名 日本金属学会2018年秋期講演大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大久保敬祐, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 赤外分光法によるCO2電解還元生成物のその場解析
3. 学会等名 第49回セミコンファレンス
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 熊谷清孝, 高橋弘樹, 田口正美
2. 発表標題 YSZを電解質に用いたCO2高温電解還元
3. 学会等名 第49回セミコンファレンス
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 田口正美, 高橋弘樹
2. 発表標題 CO2の電解還元処理と付加価値化に関する研究
3. 学会等名 平成30年度新素材・機能性材料開発セミナー（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 仁野 章弘, 関根 崇, 杉山 重彰, 菅原和久, 泰松斉
2. 発表標題 AlNおよびAl ₂ O ₃ を用いて焼結したSi ₃ N ₄ WCセラミックスの機械的性質
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会平成30年度秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 仁野 章弘, 関根 崇, 杉山 重彰, 泰松斉
2. 発表標題 Si ₃ N ₄ セラミックスの微細組織と機械的性質に及ぼすWC添加の効果
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会平成30年度春季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小笠原正剛, 青木正裕, 齊藤寛治, 加藤純雄, 西川丞, 岩倉大典, 遠藤慶徳, 稲村昌晃, 若林誉, 中原祐之輔
2. 発表標題 リン酸処理したBEA型ゼオライトの水熱処理による構造変化
3. 学会等名 日本素材物性学会平成30年度年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 加藤純雄, 高木直斗, 齊藤寛治, 小笠原正剛
2. 発表標題 Ag, Mn含有デラフォサイト型酸化物の低温合成
3. 学会等名 日本セラミックス協会第31回秋季シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 加藤純雄
2. 発表標題 Development of apatite and delafossite-type compounds for automotive catalyst
3. 学会等名 平成30年度化学系学協会東北大会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青木正裕，小笠原正剛，齊藤寛治，加藤純雄
2. 発表標題 Preparation of HCa ₂ -xLaxNb ₃ -xTixO ₁₀ -CnTMA composites as a base catalyst
3. 学会等名 平成30年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高木直斗，齊藤寛治，小笠原正剛，加藤純雄
2. 発表標題 Room temperature synthesis of delafossite-type AgMnO ₂ by precipitation method
3. 学会等名 平成30年度化学系学協会東北大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 青木正裕，小笠原正剛，齊藤寛治，加藤純雄
2. 発表標題 HCa ₂ -xLaxNb ₃ -xTixO ₁₀ -CnTMA複合体の酸塩基触媒特性
3. 学会等名 第48回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高木直斗, 齊藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 Ag系デラフオサイト型酸化物の合成と熱的安定性
3. 学会等名 平成30年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中嶋祥太, 伊藤 慎吾, 小笠原正剛, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 K ₂ NbO ₃ Fと TEOSを出発原料としたSi-Nb-K系メソ多孔体の調製と酸塩基触媒活性評価
3. 学会等名 平成30年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 井上晃汰, 齊藤寛治, 小笠原正剛, 加藤純雄
2. 発表標題 二元細孔を有するメソポーラスシリカ担持Pt 触媒のC ₃ H ₆ 酸化活性
3. 学会等名 平成30年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小笠原正剛, 青木正裕, 小林萌香, 齊藤寛治, 加藤純雄
2. 発表標題 HCa ₂ -xLaxNb ₃ -xTixO ₁₀ -CnTMAと長鎖アルキル基を有する第四級アンモニウム塩を用いた有機無機複合体の調製と酸塩基特性
3. 学会等名 第34回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 加藤純雄, 高木直斗, 齊藤寛治, 小笠原正剛
2. 発表標題 沈殿法によるAg-Mn系デラフォサイト型酸化物の合成
3. 学会等名 第57回セラミックス基礎科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 加藤純雄, 井上晃汰, 齊藤寛治, 小笠原正剛
2. 発表標題 二元細孔を有するメソポーラスシリカ担持Pt 触媒の C3H6 燃焼活性に対するK 添加の影響
3. 学会等名 日本セラミックス協会2019年年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Ogasawara, T. Ban, M. Aoki, K. Saito, S. Kato
2. 発表標題 Preparation of organic-inorganic composites as a solid base catalyst using HCa ₂ Nb ₃ O ₁₀ and alkyltrimethylammonium salt
3. 学会等名 International Symposium on Zeolites and Microporous Crystals
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Saito, Y. Komiya, M. Sohmiya, M. Ogasawara, S. Kato
2. 発表標題 Structural transformation of lepidocrocite-type layered titanate, Cs _{0.8} Ti _{1.6} Ni _{0.4} O ₄ , via acid treatment and subsequent calcination at different temperatures
3. 学会等名 9th Mid-European Clay Conference
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 R. Kodyath, Y. Endo, J. Nishikawa, H. Iwakura, M. Inamura, T. Wakabayashi, Y. Nakahara, M. Ogasawara, S. Kato
2. 発表標題 Advanced three way catalyst based on improved precious metals loading method and thermally durable zeolite-type hydrocarbon trap
3. 学会等名 37th FISITA World Automotive Congress 2018
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 デラフォサイト型酸化物及びその製造方法	発明者 加藤純雄, 小笠原正剛, 岩倉大典	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-242312	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 二酸化炭素電解セル用電極、二酸化炭素電解セル及び電解装置	発明者 細野秀雄, 横山壽治, 戸田喜文, 石山新太郎, 田口正美,	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-066164	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	加藤 純雄 (Kato Sumio) (50233797)	秋田大学・理工学研究科・教授 (11401)	
研究分担者	高橋 弘樹 (Takahashi Hiroki) (60632809)	秋田大学・理工学研究科・講師 (11401)	
研究分担者	仁野 章弘 (Nino Akihiro) (80451649)	秋田大学・理工学研究科・准教授 (11401)	

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