研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 3 年 6 月 2 3 日現在

機関番号: 32702 研究種目: 若手研究 研究期間: 2018~2020

課題番号: 18K14058

研究課題名(和文)Moを基盤とした結晶性複合酸化物の結晶構造と触媒活性の関係の解明

研究課題名(英文)Clarification of relationship between catalyst structure and catalytic activity over Mo-based mixed metal oxide

研究代表者

石川 理史(Ishikawa, Satoshi)

神奈川大学・工学部・助教

研究者番号:60813350

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3.200.000円

研究成果の概要(和文):結晶性Mo3VOx複合酸化物(MoVO)および -Keggin型へテロポリ酸を基にで構築するMo12M3O4O(M = Co, Bi等。以下 -MoMO)の結晶構造を保ったまま骨格元素置換および金属元素導入を行った。MoVOの場合、アクロレイン選択酸化反応の工業触媒である多元系MoVWCu複合酸化物の組成を実現できた。得られた触媒は工業触媒を凌駕する触媒性能を示した。 -MoMOの場合、 -MoCoOlcFe2+を導入することで触媒の再酸化速度が著しく向上した。得られた作用はプロピレン選択酸化反応における工業触媒(多元系MoBiCoFe複合酸化物)で見られるFeの添加効果と同様であり、興味深い。

研究成果の学術的意義や社会的意義 工業実触媒の色彩を帯びた結晶性複合酸化物を用いることで、工業触媒として広く用いられる多元系Mo-V複合酸 化物および多元系Mo-Bi-Fe-Co複合酸化物の触媒作用を調べた。結晶性Mo3VOxの場合、結晶構造を保ったままWお よびCuを導入することで、アクロレイン選択酸化反応における工業触媒の組成を、結晶構造体で表現できた。こ の触媒は結晶体でありながら工業触媒より高い活性を示した。本触媒の結晶構造と触媒活性の関係を調べること で工業触媒における各構成金属の役割を明確化できた。場られた成果は存来の酸化物触媒設計における基礎学理 を提供するものであり、アカデミアのみならず化学産業への波及が期待できる。

研究成果の概要(英文): Crystalline Mo3VOx (MoVO) and -Keggin based microporous material (-MoMO) were multi-functionalized by substituting constituent element or introducing additional element without altering their crystal structure. In the case of MoVO, W and Cu were introduced and the elemental composition similar to the industrial catalyst for selective oxidation of acrolein (ACR), multi-component MoVWCuO, was realized. The resulting catalyst showed better catalytic performance than that of the industrial catalyst for ACR oxidation. In the case of -MoMO, we found that the addition of Fe2+ significantly enhanced the re-oxidation rate of the catalyst. The observed function was similar to that of multi-component MoVBiCoFeO as the industrial catalyst for propylene oxidation. The catalytic function of Fe2+ would be deeply understood in detail based on their crystal structure.

研究分野: 触媒化学

キーワード: 結晶性複合酸化物触媒 選択酸化 多元化

1.研究開始当初の背景

選択酸化反応は全化学工業プロセスの 25%以上に関係する重要な反応であり、実際の工業プロセスでは複合酸化物が触媒として広く用いられる。これらの触媒は先人たちによる膨大な数のトライアンドエラー実験により得られたもので、実際、非常に高い触媒活性を示す。一方、触媒活性を高める過程で触媒は多性分化を余儀なくされ、極めて複雑な組織となった。そのため、現在化学をもってしても、「なぜ工業触媒が高活性なのか」、その問いに答えることは叶わない。近年、より低コスト、低環境負荷な化学産業の開発が要請されている。これまでに達成した工業プロセスも転換の時期に来ている。現代社会が直面している産業課題はこれまでよりも当然厳しい。既存プロセスを改善するにしろ、新しいプロセスを稼働するにしろ、触媒開発にかかる期待は大きい。この時代の要請に素早く対応するためには、トライアンドエラーに依存した従来触媒開発法では不十分である。学術基盤に則った合理的な触媒開発が望まれる。工業触媒となるほど高活性な触媒の触媒活性構造を意識した触媒開発を進めることで合理的に高活性な触媒が創出できると思われるが、前述の通り、工業触媒は大変複雑な組織であるため、触媒活性構造に関する情報が取得できない。今こそ、先人たちの見出した高活性な複合酸化物触媒から触媒活性構造の情報を抽出し、その知見を基とした合理的触媒設計が望まれる。

近年、結晶性 Mo_3VO_x 複合酸化物 (以下 MoVO) が低級アルカンやアクロレイン選択酸化反応において工業触媒として用いられる多元系 Mo-V 複合酸化物と同様の構造的特徴を有しながら、工業触媒をしのぐ触媒活性を示すことが見出された。また、 ϵ -Keggin 型へテロポリ酸で構築されるミクロ細孔性 $Mo_{12}M_3O_{40}$ (M=Mn, Fe, Co, Zn, Bi 等. 以下 ϵ -MoMO)が、プロピレン選択酸化反応の工業触媒である多元系 Mo-Bi-Fe-Co 複合酸化物と類似の元素組成を結晶構造体として実現できることが分かった。

2. 研究の目的

MoVO およびε-MoMO を工業実触媒のモデルととらえ、これらの結晶構造と触媒物性、活性の関係を調べることで、工業触媒の触媒作用を深く理解する。

3.研究の方法

近年、MoVO が結晶構造を保ったまま骨格金属元素の置換や構造空間部への金属元素導入が可能なことを見出した。ε-MoMO についても同様に、結晶構造を保ったまま多元化が可能である。本研究では、MoVO およびε-MoMO の多元化による触媒物性変化や触媒活性変化を調べることで、工業触媒の構成元素の役割を明らかにする。

4. 研究成果

(1) アクロレイン選択酸化反応用多元系 Mo-V 複合酸化物を意識した結晶性 Mo₃VO_x の多元化 と構成金属元素の作用

MoVO には斜方晶系と三方晶系の結晶構造が知られている。どちらの結晶構造も $\{Mo_6O_{21}\}^6$ 5

アクロレイン(ACR)選択酸 化反応では、Mo,Vを主元素と し、これにWやCuが導入さ れた多元系MoVWCuO複合酸 化物(以下Ind-MoVWCuO)が 工業触媒として用いられる。 本研究では、まずMoVOへの Cuの導入を試みた。適切な構 造規定材(CH₃NH₃+)を使用す ることで、斜方晶 MoVO の結 晶構造を保ったまま Cu を構

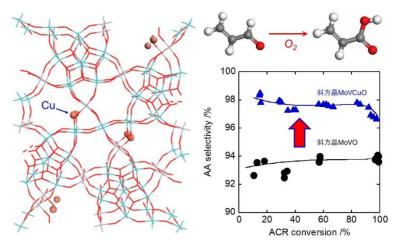


Figure 1. 斜方晶 MoVCuO の構造モデルおよび ACR 選択酸化反応結果.

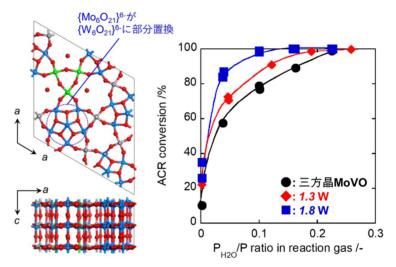


Figure 2. 三方晶 MoVWOの構造モデルおよび ACR 選択酸化反応結果. 1.3W および 1.8W は三方晶 MoVO 単位ユニット当たりに導入された W 数を示す.

造中に導入できた(以下斜方晶 MoVCuO)。 さまざまな解析を行うことで、Cu が結晶構造中、7 員環に面した Pen の架橋酸素間に Square planar 配座で取り込まれていることが分かった。Cu を導入することで、ACR 選択酸化反応における目的生成物であるアクリル酸(AA)の選択率が優位に増大した(Figure 1)。 結晶構造中の Cu 位置を鑑み、Cu が活性酸素種の反応性を穏やかにし、ACR からの併発反応(CO、CO2、酢酸など)を抑制することで AA 選択率が向上したと結論した。

Wの導入は三方晶 MoVO を用いた時に実現できた。さまざまな解析の結果、Wは結晶構造中の PUの Moを部分的に置換していることが分かった(以下三方晶 MoVWO)。斜方晶、三方晶 MoVO とも、ACR 選択酸化反応の際に水分圧が低下すると ACR 酸化活性が減少することが知られている。一方、三方晶 MoVWO では、水分圧減少による ACR 酸化活性の減少の程度が穏やかであった(Figure 2)。W が導入されることで水供給によるプレンステッド酸点の形成が促進されたため、低水分圧下においても ACR 吸着や表面の反応中間体の脱離が進行でき、ACR 酸化活性の水分圧依存性が解消されたと結論した。

三方晶 MoVWO には Cu の導入も可能であった。結果として得られた三方晶 MoVWCuO 中の Cu は、前述斜方晶 MoVCuO と同様に、7 員環に面した金属酸素八面体で構成されるクラスターである Tri の架橋酸素間に位置していた。 ACR 選択酸化反応において、三方晶MoVWCuO は W および Cu の添加効果が同時に発現した。工業触媒としての多元系 Mo-V 複合酸化物に W、Cu が導入される理屈が見て取れた。最後に、Ind-MoVWCuO を特許に従い合成し、その局所構造を HAADF-STEM 測定により観測した。興味深いことに、Ind-MoVWCuO は三方晶 MoVWCuO と同様に PU の配列で構造

The True Catalytically Active Structure for Selective Oxidation of Acrolein in Industrial Mo-V Mixed Oxide Catalyst

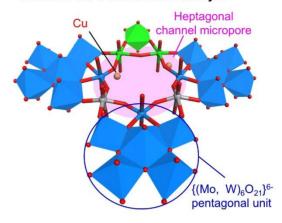


Figure 3. ACR 選択酸化反応用多元系 Mo-V 複合酸化物の真の触媒活性構造.

が構築されており、7 員環組織の形成が見られた。以上の結果から、本研究で合成した三方晶 MoVWCuO が工業触媒の真の姿と結論した (Figure 3)。

(2) ε-MoCoO への Fe²⁺の導入と触媒酸化挙動

プロピレン選択酸化反応用多元系 Mo-Bi-Co-Fe 複合酸化物では、触媒表面に露出した Mo-Bi-O 層でプロピレン酸化が進行し、反応で使用された格子酸素の欠損はバルクからの格子酸素移動で補われると報告されている。この時、Fe を導入することで分子状酸素の活性化による格子酸素の再生速度が促進されること、Co を導入することで格子酸素のバルク内拡散速度が促進されることが知られている。本研究では、触媒再酸化挙動を明らかにするため、ε-MoMO へ Fe²+を導入し、得られる固体の

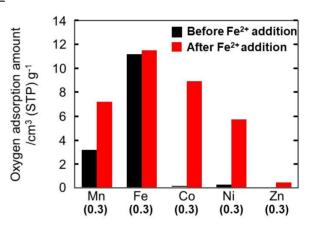


Figure 4. Fe²⁺導入前後におけるε-MoMO の 示した酸素吸着量.

酸化挙動を調べた。Mには Mn, Fe, Co, Ni および Zn を用いた。Fe²+はイオン交換的に導入した。イオン交換溶液の濃度を制御することで、各 ϵ -MoMO とも、単位格子当たり 0.3 個 Fe²+を導入できた。Fe²+導入前後における ϵ -MoMO の酸素吸着量($25\,^{\circ}$ C)を Figure 4に示す。ほとんどの場合、Fe²+の導入により酸素吸着量が増大した。特に ϵ -MoCoO では差が顕著であり、Fe²+導入前ではほぼ酸素を吸着しなかったのに対し、Fe²+導入後は酸素吸着能が発現した。 ϵ -MoCoO では、Fe²+溶液の濃度制御や繰り返しイオン交換を行うことで、単位ユニット当たり最大 1.0 個の Fe²+を構造中に導入できた。Fe²+導入量変化による酸素吸着量変化を調べたところ、酸素吸着量は 0.5 mmol/g で頭打ちとなった。この値は、グラム当たりの ϵ -Keggin ユニットの数と一致していたことから、Fe²+導入により酸素活性化が起き、活性化された酸素がバルクへ浸透することで、 ϵ -Keggin ユニットが室温においても酸化されると結論した。酸化還元能を持たない Zn を構成元素とした場合では Fe²+を導入しても酸素吸着能が発現しなかったことから、構成元素が酸化還元能を有する場合にのみ、Fe²+上で活性化された分子酸素がバルクへ運ばれると結論した。多元系MoBiCoFeO の再酸化挙動において、ナノレベルな知見を得ることができた。

5 . 主な発表論文等

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

〔雑誌論文〕 計11件(うち査読付論文 11件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 1件)	
1.著名名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Katsuya Matsumoto, Mai Miyasawa, Marino Takebe, Riku Matsumoto, Syutoku Lee, Wataru Ueda	4.巻
2.論文標題 Nb V Mixed Oxide with Random Assembly of Pentagonal Units: Catalyst for Oxidative Dehydrogenation of Ethane and Propane	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 ChemCatChem	6.最初と最後の頁
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cctc.202100463	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 Satoshi Ishikawa, Mai Shinoda, Yuta Motoki, Shota Tsurumi, Momoka Kimura, Norihito Hiyoshi,	4.巻
Akihiro Yoshida, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Synthesis of Fluoride-Containing High Dimensionally Structured Nb Oxide and Its Catalytic	5.発行年 2020年
Pérformance for Acid Reactions 3.雑誌名 Inorganic Chemistry	6 . 最初と最後の頁 9086-9094
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1021/acs.inorgchem.0c00949 オープンアクセス	有国際共著
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	- 4 . 巻
Satoshi Ishikawa, Nagisa Noda, Masaki Wada, Shota Tsurumi, Wataru Ueda	10 5 . 発行年
Selective Oxidation of Methacrolein over Crystalline Mo3VOx Catalysts and Comparison of Their Catalytic Properties with Heteropoly Acid Catalysts	2020年
3.雑誌名 ACS Catalysis	6.最初と最後の頁 10535-10545
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.0c02530	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 Satoshi Ishikawa, Toru Murayama, Benjamin Katryniok, Franck Dumeignil, Marcia Araque, Svetlana Heyte, Sebastien Paul, Yudai Yamada, Mizuki Iwazaki, Nagisa Noda, Wataru Ueda	4.巻 584
2.論文標題 Influence of the structure of trigonal Mo-V-M3rd oxides (M3rd; -, Fe, Cu, W) on catalytic performances in selective oxidations of ethane, acrolein, and allyl alcohol	5 . 発行年 2019年
3.雑誌名 Applied Catalysis A: General	6.最初と最後の頁 117151
 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcata.2019.117151	 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

該当する

. ++.5	. 211
1 . 著者名	4.巻
Masahiro Sadakane, Katsunori Kodato, Nobuhiro Yasuda, Satoshi Ishikawa, Wataru Ueda	4
2	F 整仁在
2 . 論文標題	5.発行年
Thermal Behavior, Crystal Structure, and Solid-State Transformation of Orthorhombic Mo-V Oxide	2019年
under Nitrogen Flow or in Air	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
ACS Omega	13165-13171
3 # t	
引載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1021/acsomega.9b01212	有
トープンアクセス	国際共著
ーフンティセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	
3 777 / EVERCALM (PIC CM LYE CMA)	<u>-</u>
.著者名	4 . 巻
Zhenxin Zhang, Satoshi Ishikawa, Qianqian Zhu, Toru Murayama, Masahiro Sadakane, Michikazu	58
Hara, Wataru Ueda	
. 論文標題	5.発行年
Redox-Active Zeolitic Transition Metal Oxides Based on -Keggin Units for Selective Oxidation	2019年
Today Notite Losition transition motal oxidos based on Thought onits for solicitive extraction	2010-
. 雑誌名	6.最初と最後の頁
Inorganic Chemistry	6283-6293
gwo ooy	3200 0200
最前文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1021/acs.inorgchem.9b00502	有
ナープンアクセス	国際共著
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	該当する
# 1. 6	. "
1.著者名	4 . 巻
l . 著者名 - Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu,	4. 巻 32
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda	32
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2論文標題	
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda	32
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2.論文標題	32 5.発行年 2020年
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2.論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane	5.発行年
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2.論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane	32 5.発行年 2020年
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2. 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3. 雑誌名 Chemistry of Materials 曷載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials 引動論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2. 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3. 雑誌名 Chemistry of Materials 曷載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials 引動に対象のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2. 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3. 雑誌名 Chemistry of Materials	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials 最載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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 1 . 著者名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Masaya Tashiro, Masahiro Kumaki, Norihito Hiyoshi, Wataru Ueda	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials 日本の	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 59
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials B載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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 1 . 著者名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Masaya Tashiro, Masahiro Kumaki, Norihito Hiyoshi, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Synthesis of High Dimensionally Structured Mo-Fe Mixed Metal Oxide and Its Catalytic Activity	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials 局載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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 1 . 著者名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Masaya Tashiro, Masahiro Kumaki, Norihito Hiyoshi, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Synthesis of High Dimensionally Structured Mo-Fe Mixed Metal Oxide and Its Catalytic Activity for Selective Oxidation of Methanol	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 59 5 . 発行年 2020年
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials 号載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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 1 . 著者名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Masaya Tashiro, Masahiro Kumaki, Norihito Hiyoshi, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Synthesis of High Dimensionally Structured Mo-Fe Mixed Metal Oxide and Its Catalytic Activity for Selective Oxidation of Methanol 3 . 雑誌名	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 59 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials 局載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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 1 . 著者名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Masaya Tashiro, Masahiro Kumaki, Norihito Hiyoshi, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Synthesis of High Dimensionally Structured Mo-Fe Mixed Metal Oxide and Its Catalytic Activity for Selective Oxidation of Methanol	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 59 5 . 発行年 2020年
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials 号載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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 1 . 著者名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Masaya Tashiro, Masahiro Kumaki, Norihito Hiyoshi, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Synthesis of High Dimensionally Structured Mo-Fe Mixed Metal Oxide and Its Catalytic Activity for Selective Oxidation of Methanol 3 . 雑誌名	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 59 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁
Wataru Ueda 2 . 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 . 雑誌名 Chemistry of Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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 1 . 著者名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Masaya Tashiro, Masahiro Kumaki, Norihito Hiyoshi, Wataru Ueda 2 . 論文標題 Synthesis of High Dimensionally Structured Mo-Fe Mixed Metal Oxide and Its Catalytic Activity for Selective Oxidation of Methanol 3 . 雑誌名 Inorganic Chemistry	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 59 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 5252-5255
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2. 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3. 雑誌名 Chemistry of Materials 哥戦論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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 1. 著者名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Masaya Tashiro, Masahiro Kumaki, Norihito Hiyoshi, Wataru Ueda 2. 論文標題 Synthesis of High Dimensionally Structured Mo-Fe Mixed Metal Oxide and Its Catalytic Activity for Selective Oxidation of Methanol 3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 59 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 5252-5255
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2 .論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3 .雑誌名 Chemistry of Materials 『 『 『 『 『 『 『 『 『 『 『 『 『 『 『 『 『 『	5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 59 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 5252-5255
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2. 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3. 雑誌名 Chemistry of Materials 書載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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 1. 著者名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Masaya Tashiro, Masahiro Kumaki, Norihito Hiyoshi, Wataru Ueda 2. 論文標題 Synthesis of High Dimensionally Structured Mo-Fe Mixed Metal Oxide and Its Catalytic Activity for Selective Oxidation of Methanol 3. 雑誌名 Inorganic Chemistry 書載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.9b03713	5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 59 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 5252-5255
Shoma Inukai, Satoshi Ishikawa, Toyokazu Tanabe, Yuan Jing, Takashi Toyao, Ken-Ichi Shimizu, Wataru Ueda 2. 論文標題 Thermally Induced Transformation of Sb-Containing Trigonal Mo3VOx to Orthorhombic Mo3VOx and Its Effect on the Catalytic Ammoxidation of Propane 3. 雑誌名 Chemistry of Materials 日本記念 (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.9b04534 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 1. 著者名 Kosuke Shimoda, Satoshi Ishikawa, Masaya Tashiro, Masahiro Kumaki, Norihito Hiyoshi, Wataru Ueda 2. 論文標題 Synthesis of High Dimensionally Structured Mo-Fe Mixed Metal Oxide and Its Catalytic Activity for Selective Oxidation of Methanol 3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	32 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 1506-1516 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 59 5 . 発行年 2020年 6 . 最初と最後の頁 5252-5255

1.著者名 Toru Murayama, Satoshi Ishikawa, Norihito Hiyoshi, Yoshinori Goto, Zhenxin Zhang, Takashi Toyao, Ken-ichi Shimizu, Shutoku Lee, Wataru Ueda	4.巻 363
2.論文標題 High dimensionally structured W-V oxides as highly effective catalysts for selective oxidation of toluene	5.発行年 2021年
3.雑誌名 Catalysis Today	6.最初と最後の頁 60-66
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2019.08.023	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 Satoshi Ishikawa, Yudai Yamada, Chuntian Qiu, Yoshito Kawahara, Norihito Hiyoshi, Akihiro Yoshida, Wataru Ueda	4.巻 31
2.論文標題 Synthesis of a Crystalline Orthorhombic Mo - V - Cu Oxide for Selective Oxidation of Acrolein	5 . 発行年 2019年
3.雑誌名 Chemistry of Materials	6.最初と最後の頁 1408-1417
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.8b04962	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 Satoshi Ishikawa, Zhenxin Zhang, Toru Murayama, Norihito Hiyoshi, Masahiro Sadakane, Wataru Ueda	4.巻 62
2.論文標題 Multi-dimensional Crystal Structuring of Complex Metal Oxide Catalysts of Group V and VI Elements by Unit-Assembling	5 . 発行年 2019年
3.雑誌名 Topics in Catalysis	6.最初と最後の頁 1157-1168
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11244-018-1077-0	 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15件(うち招待講演 4件/うち国際学会 5件)	
1.発表者名 石川 理史, 山田 雄大, 樫尾 直樹, 下田 光祐, 野田 渚紗, 村山 徹, 上田 渉	
2.発表標題 アクロレイン選択酸化反応用工業触媒としての 多元系Mo-V 複合酸化物の触媒活性場の考察	

3 . 学会等名

4 . 発表年 2021年

第127回触媒討論会

1. 発表者名 石川 理史,田中 良裕,上田 涉
2.発表標題 結晶性Mo3VOxへのGaの導入とプロパンアンモ酸化活性
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 Satoshi Ishikawa, Wataru Ueda
2 . 発表標題 Oxidation Catalysis over Crystalline Mo3VOx Catalysts for Selective oxidation of Ethane and Acrolein
3.学会等名 KSIEC-JPI joint symposium(招待講演)(国際学会)
4 . 発表年 2020年
1 . 発表者名 Satoshi Ishikawa, Wataru Ueda
2 . 発表標題 Oxidation Catalysis over Crystalline Mo3VOx Catalysts
3 . 学会等名 錯体化学会 第70回討論会(招待講演)
4 . 発表年 2020年
1.発表者名 石川 理史,幸谷 真芸,池田 拓史,上田 涉
2.発表標題 ピリジンとKeggin型ポリ酸で構成される結晶性(Py)xPMo120y触媒の物質解析とメタクロレイン選択酸化反応
3.学会等名 第126回触媒討論会
4 . 発表年 2020年

1.発表者名 石川 理史,山田 雄大,樫尾 直樹,上田 涉
2.発表標題 Mo-V系複合酸化物を用いたアクロレイン選択酸化反応におけるプロモーター元素の機能
3.学会等名 第125回触媒討論会
4 . 発表年 2020年
1 . 発表者名 石川 理史, 上田 渉
2 . 発表標題 結晶性 Mo3VOx への骨格金属置換および異金属導入に立脚した選択酸化活性制御
3.学会等名 日本結晶学学会 令和元年度 年会(招待講演)
4 . 発表年 2019年
1. 発表者名 石川 理史, 犬飼 将槙, 上田 涉
2.発表標題 三方晶Mo3VOxへのSbのイオン交換と熱処理による斜方晶 Mo3VOx構造への結晶構造変化およびプロパンアンモ酸化活性
3.学会等名 第124回触媒討論会
4 . 発表年 2019年
1.発表者名 Satoshi Ishikawa
2 . 発表標題 Selective oxidation of alkane and unsaturated aldehyde over crystalline Mo3VOx catalyst
3 . 学会等名 ETH-ICAT joint symposium on catalysis(招待講演)(国際学会)
4 . 発表年 2019年

-	77 1 1 1
1	举夫老么

Satoshi Ishikawa, Wataru Ueda

2 . 発表標題

Synthesis of high dimensionally structured mixed metal oxide by an assembly of structural units from giant polyoxometalate

3. 学会等名

Kick-Off Meeting of EPSRC-JSPS Core-to-Core Collaboration (国際学会)

4.発表年

2019年

1.発表者名

石川 理史, 松本 克也, 下田 光祐, 上田 涉

2 . 発表標題

高次な構造を有する複合酸化物触媒を用いたプロパン選択酸化反応

3.学会等名

第7回 次世代天然ガス利用を考える若手勉強会 2019年7月13日 次世代天然ガス利用を考える若手勉強会,石油学会ジュニアソサイティ(JPIJS)

4.発表年

2019年

1.発表者名

Satoshi Ishikawa, Shoma Inukai, Toyokazu Tanabe, Wataru Ueda

2 . 発表標題

Introduction of Sb into trigonal Mo3VOx oxide and its crystal structure transformation to orthorhombic Mo3VOx structure by heat treatment

3 . 学会等名

12th NGCS (国際学会)

4.発表年

2019年

1.発表者名

石川 理史, 犬飼 将槙, 上田 涉

2.発表標題

Sbを含む結晶性三方晶Mo3VOx複合酸化物の熱処理による斜方晶Mo3VOx構造への結晶構造変化およびプロパンアンモ酸化反応

3 . 学会等名

石油学会 第68回研究発表会

4 . 発表年

2019年

1.発表者名 山田雄大,石川理史,上田 涉	
2.発表標題	
結晶性Mo3V0x複合酸化物触媒へのCuの導入とアクロレイン選択酸化反応	
3. 学会等名	
石油学会第61回年会	
4.発表年	
2018年	
1.発表者名	

2.発表標題

Y. Yamada, S. Ishikawa, C. Qiu, W. Ueda

Synthesis of crystalline orthorhombic Mo-V-Cu oxide for selective oxidation of acrolein to acrylic acid

3 . 学会等名

The 8th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology(国際学会)

4 . 発表年 2018年

〔図書〕 計1件

1.著者名	4.発行年
Satoshi Ishikawa, Zhenxin Zhang, Toru Murayama, Masahiro Sadakane, Wataru Ueda	2019年
	- 40 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2
2 . 出版社	5.総ページ数
World Scientific Publishing Company	240
3.書名	
Complex Oxides (Chapter 7: New Crystalline Complex Metal Oxide Catalysts with Porous, Acidic,	
and Redox Properties)	

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

о.	10万九組織		
	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
---------	---------