科学研究費助成事業

研究成果報告書

E

今和 2 年 6月 9 日現在 機関番号: 17401 研究種目: 若手研究(A) 研究期間: 2016~2019 課題番号: 16H06131 研究課題名(和文)担持金属ナノ粒子触媒における双晶構造効果の開拓 研究課題名(英文)Development of twin structure effect in supported metal nanoparticle catalysts 研究代表者 大山 順也 (Ohyama, Junya) 熊本大学・大学院先端科学研究部(工)・准教授 研究者番号:50611597

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 19,200,000円

研究成果の概要(和文):担持金属触媒において従来のサイズや界面長さより高次な構造効果として粒子中および表面の原子配列の効果の重要性を明らかにすることを目的とし、以下の2つに注力して研究を進めた:(1) 担持金属エノ粒子の原子配列を制御するためのシンプルな手法の開発。(2)担持金属ナノ粒子の原子配列によ る触媒作用の変化。

双晶構造を含む結晶構造や形態を変化させるための手法として、ガス分子の金属表面への吸着を用いた手法を開 発した。前処理ガスを従来の水素ガスから変化させることで、双晶ナノ粒子やナノキュープなどの金属ナノ粒子 が発現し、それによって酸化および水素化反応に対する触媒性能が変化することが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義 本研究で開発してきた還元ガス雰囲気を変化させた担持金属ナノ粒子触媒の調製法を用いることで、従来とは異 なる次元で粒子構造の制御が可能であり、また、酸化や水素化反応の触媒性能を向上させることができると示さ れた。本手法は非常にシンプルで簡便であるため、将来、固体触媒開発に取り入れられると期待する。また、本 研究で粒子表面および内部の原子配列によって触媒作用が変化することが明らかになり、金属ナノ粒子触媒の構 造効果の研究において粒子内の原子配列という新しい軸の重要性が示唆された。

研究成果の概要(英文): The effect of atomic arrangement of bulk and surface of supported metal nanoparticle catalysts were investigated as a high-order structural effect (3D) than the conventionally investigated structural effects of particle size (1D) and perimeter (2D). The present study focused on (1) development of simple methods to control atomic arrangement of supported metal

nanoparticles and (2) impact of the atomic arrangement on catalysis of supported metal nanoparticles.

In order to change the crystal structure and morphology of metal nanoparticles, we have developed gas molecule adsorption method, where supported metal catalysts are prepared by reduction pretreatment in the presence of adsorptive gasses such as carbon monoxide and ethylene. As a result, various particle structures including twin nanoparticles and nanocubes were prepared, and thereby their catalysis for oxidation and hydrogenation reactions was changed.

研究分野: 触媒化学

キーワード: 固体触媒 金属ナノ粒子 構造効果 電子顕微鏡 双晶 形態

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、研究者個人に帰属されます。

様 式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19(共通)

1.研究開始当初の背景

担持金属ナノ粒子触媒は、化学プロセス、環境浄化、さらに、次世代の資源や発電システムの 普及の鍵となる実用的材料である。金属がナノサイズになると、バルク表面とは異なるユニーク な触媒作用が現れ且つその構造(サイズ、形状、結晶性など)によって触媒性能が大きく変化す る。そのため、担持金属ナノ粒子触媒の開発では性能向上のために、金属ナノ粒子の構造が触媒 性能に与える効果が検討される。最近、透過電子顕微鏡(TEM)技術の発展によって、材料の原 子スケールでの可視化が可能となったことで、金属ナノ粒子触媒の構造効果の研究が深化して きた。

双晶(twin)とは、結晶構造が同じ2つ 以上の結晶が特定の面と方位関係をもっ て連結された結晶である。この双晶構造で 注目したいところは、双晶境界では特異 な層配列が現れること(fcc 構造を有する 金属ナノ粒子の場合、双晶境界では局所的 にhcp 構造が発現)、5回対称性を有する 多重双晶粒子では構造のひずみが生じる ことである。このような特殊構造は触媒性 能に強く影響すると考えられる。



これまでにいくつかの報告で、Au ナノ粒子の触媒性能が双晶構造によって変化することが示唆されている。しかし、既報では双晶粒子の存在比(双晶/すべての粒子)は多くても 20%程度であり、担体上で高選択的に双晶 Au ナノ粒子を合成した例はない。このような中、申請者は一酸化炭素(CO)を還元剤として用いることで、TiO2上に双晶 Au ナノ粒子を約 60%という高い選択性で生成させることに成功した。しかもその平均粒子サイズは約 2 nm であり、注目を集めている高活性な粒子サイズ域である。双晶 Au ナノ粒子触媒を用いて CO 酸化反応を行った結果、粒子サイズはほとんど同じであるにも関わらず、従来法で調製した単結晶 Au ナノ粒子の 2 倍以上の触媒活性を示した(Chem. Commun. 2015)。したがって、双晶構造によって特異な触媒作用が発現することが期待できる。しかし、担持金属ナノ粒子への双晶構造の導入および解析のための手法が確立されていないため、双晶金属ナノ粒子触媒に関する研究例は少なく明らかになっていないことは多い。

双晶構造以外でも、金属ナノ粒子の形態によって触媒活性が大きく変化することがある。この ようなナノ粒子の形態の効果が明らかになって以来、液相還元法を中心にナノ粒子形態制御が 活発に研究されてきた。液相還元法で担持金属触媒を調製する場合、従来の触媒調製に比べて複 雑でコストがかかり、大規模な実用化には向かない。これに対し、上述の担持双晶 Au ナノ粒子 の調製で用いた CO ガスを用いた還元処理は、従来法から前処理ガス雰囲気を変えるのみの非常 に簡便なものであり実用的である。このような簡便な手法は担持金属ナノ粒子触媒の実用的な 構造制御手法として期待できる。

2.研究の目的

担持金属ナノ粒子触媒において粒子中および粒子表面の原子配列の制御とその効果を明 らかにすることを目的とした。

(1) 担持金属ナノ粒子触媒の構造制御のためのシンプルな手法開発

双晶構造や粒子形態の効果の実用を目指し、これらの構造を誘起するシンプルな手法を開発 する。これまでの研究でガス雰囲気を CO に変化させるだけ双晶 Au ナノ粒子が生成したことに 注目し、本研究では従来の触媒調製法からガス雰囲気を変化させることによって、さまざまな金 属種で粒子構造の制御を検討する。

(2) 担持金属ナノ粒子の原子配列によって変化する触媒作用の開拓

双晶構造や粒子形態効果の重要性および汎用性を示すために、さまざまな金属種・担体・反応 における構造効果(触媒活性&選択性)を明らかにする。

3.研究の方法

【触媒調製】担持 Au 触媒の調製には析出沈殿法を用いた。金属酸化物担体に対して 1 wt%の Au を仕込んだ。金属酸化物担体として、TiO₂ (JRC-TIO-8)、Nb₂O₅·nH₂O (CBMM)、Fe₂O₃ (キシダ化学)、CeO₂ (JRC-CEO-1)、Co₃O₄ (キシダ化学)、Al₂O₃ (JRC-ALO-5)、ZrO₂ (JRC-ZRO-5)を用い、触 媒調製に用いる前に 400°C あるいは 500°C で大気下焼成した。担持 Au 触媒の還元処理として室 温で CO 処理(0.4%CO/N₂)を施し、対照として大気あるいは H₂下(3% H₂/N₂) 200°C あるいは 300°C で加熱処理した。

前駆体に AgNO₃を用いて担持量 10 wt%の Ag/Al₂O₃を含浸法で調製した。含侵後、大気下で 500 ℃、3 時間焼成した。前処理として 10%H₂気流下 200 ℃で加熱処理したもの、この後に続け て 0.4%CO 気流下 200 ℃で加熱処理したものを調製した。

担持 Pt ナノ粒子触媒については、担持量 10 wt%の Pt/C および Pt/SiO2を含浸法で調製した。 調製した触媒に前処理として H2、CO/H2、エチレン/H2を 200~500℃で流通させた。

【触媒解析】走査 / 透過型電子顕微鏡(S/TEM)、X 線光電子分光法 (XPS)、CO分子をプローブ とした赤外吸収分光法(CO吸着 IR)を用いた。 【CO 酸化反応】CO 酸化反応は、常圧固定床流通式反応装置にて行った。触媒 10 mg に反応ガ スとして 0.4%CO/10%O₂/N₂を全流量 100 ml min⁻¹で供給した。出口ガスの CO および CO₂の濃 度を CO/CO₂分析計(NDIR)で測定した。

【不飽和アルデヒドの水素化反応】シンナムアルデヒド(CAL)の水素化反応には耐圧容器を使用 し、水素圧 1.0 MPa、CAL 濃度 0.66 M あるいは 0.8 M、触媒量 10 mg、120℃の条件で反応を行 った。生成物の定量、定性分析には GC-FID を用いた。

4.研究成果

【種々の担体上での双晶 Au ナノ粒子の調製とその効果】

種々の金属酸化物担持 Au 触媒の室温下での CO 酸化反応活性を Table 1 に示す。易還元性担体である TiO₂、Nb₂O₅、Fe₂O₃、CeO₂、Co₃O₄を用いた場合、室温 CO 処理によって Au 前駆体の還元によって Au ナノ粒子が生成したことが Au ナノ粒子由来の可視光吸収によって確認された。これらの担持 Au 触媒について、CO 酸化活性を調べた結果、CO 処理によって調製したものは、大気あるいは H₂ 下加熱還元処理で調製した触媒よりも高かった。一方、難還元性担体である Al₂O₃ および ZrO₂を用いた場合、室温 CO 処理では Au 前駆体の還元が進行せず、室温で CO 酸化活性をほとんど示さなかった。

CO酸化活性の高かった Au/TiO₂ と Au/Nb₂O₅を用いて CAL の水素化反応を行った。Table 2 に 反応結果を示す。CAL の転化率を比べると、Au/TiO₂ と Au/Nb₂O₅ のどちらの場合においても、 室温 CO 処理で調製した方が大気下焼成で調製するよりも CAL 転化率が高かった。一方、水素 化反応生成物であるシンナミルアルコール(COL)とヒドロシンナムアルデヒド(HCAL)の選択率 を調べると調製条件による差はほとんどなかった。

Table 1 Result of CO oxidation at room temperature (r.t.) over various supported Au catalysts prepared by CO treatment at r.t. together with those prepared at conventional conditions as reference.

Support	CO conv. (%)	
Support	CO treatment	Reference
TiO ₂	82	57 ^a , 37 ^b
Nb ₂ O ₅	31	4 ^c
Fe_2O_3	18	0.4^{a}
CeO_2	14	2 ^a
Co_3O_4	12	9 ^a
Al_2O_3	0.2	1 ^d
ZrO_2	0.1	3 ^d

Preparation conditions of reference catalysts: ^{*a*} Air 200°C, ^{*b*} H₂ 200°C, ^{*c*} Air 300°C, ^{*d*} H₂ 300°C.

Table 2 Result of CAL hydrogenation on Au/TiO₂ and Au/Nb₂O₅ prepared under CO at r.t. together with those prepared under air at 200 or 300° C as reference.

1			
Support	Preparation	CAL	COL/HCAL
		conv. (%)	selec. (%)
TiO ₂	CO r.t.	38	48/46
	Air 200°C	23	52/46
Nb_2O_5	CO r.t.	23	19/80
	Air 300°C	16	22/77



Fig. 1 TEM images of Au/Nb_2O_5 prepared under (a) CO at r.t., (b) air at 300°C, and (c) their size distributions of Au nanoparticles.



 $\label{eq:Fig.2} Fig. 2 \quad Crystal structure distributions of $$Au/Nb_2O_5$.$

既報の Au/TiO₂と同様に CO 酸化活性が高く且つ CAL 水素化反応に適用した Au/Nb₂O₅ につい て、Au ナノ粒子のサイズ、表面電子状態、結晶構造の点から触媒解析を行った。室温 CO、300°C 大気下の 2 条件で調製した Au ナノ粒子の Cs-STEM 像およびサイズ分布を Fig. 1 に示す。両方 とも Au ナノ粒子の平均サイズは 2.2 nm であった。室温 CO 処理した Au/Nb₂O₅ が高活性であっ た原因は Au ナノ粒子のサイズにはないことが示唆された。さらに、Au ナノ粒子表面の電子状 態を解析するために Au 4f XPS 測定を行ったところ、触媒調製条件によって Au 4f XPS のピーク エネルギーにほとんど変化が見られなかった。つまり、調製条件による Au 表面電子状態の変化 は見られず、表面電子状態でも活性差を説明できない。一方、原子スケール STEM 観察によっ て触媒構造を詳細に解析したところ、双晶構造の割合が異なることが明らかになった。Fig. 2 に 示すように、室温 CO 処理の方が従来 H₂ 処理よりも双晶ナノ粒子の割合が約 2 倍高かった。以 上より、双晶 Au ナノ粒子によって CO 酸化活性および水素化活性が向上することが示された。 粒子構造制御と触媒性能以外の特筆すべき成果として、STEM による双晶構造解析手法として AI 技術を用いた画像認識が有効であることを示した。画像認識による粒子構造解析手法は双晶 Au ナノ粒子含むナノ粒子触媒研究の新しい基礎技術として有用となると期待できる。 【双晶 Ag ナノ粒子の調製と CO 酸化反応】

Au と同様に双晶界面エネルギーが小さい金属、つまり、双晶構造を形成しやすい金属である Ag へ展開した。ここでは Ag 粒子形成後の処理によって構造制御可能かを検討した。

 Ag/Al_2O_3 を 200°Cで H₂処理して調製し(Ag(H)) さらに追加して 200°Cで CO 処理を施した (Ag(HC))。TEM による粒子サイズ測定、XPS を用いた Ag/Al 表面組成比分析、いずれからも Ag(H)と Ag(HC)で Ag の分散度は変わらないことが示された。STEM で各サンプルの Ag ナノ粒 子の形態を観察したところ、Ag(H)は双晶粒子が約 35%であったのに対し、Ag(HC)は約 65%が 双晶粒子であった。このことから、H₂処理後に CO 処理することによって Ag ナノ粒子に双晶構 造を導入できることが示された。

CO酸化反応に対する触媒活性を評価した結果、Ag(HC)は Ag(H)に比べ、約1.4 倍の高活性で あった。Table 3 に各触媒の構造解析結果と CO酸化活性をまとめた。Ag分散度はガス処理条件 によってほとんど変化なかったが、双晶粒子の割合は変化していることから、双晶粒子の存在が 活性向上と関係していると考えられる。Fig. 3 は、触媒に H₂および CO ガス処理を繰り返し施し た時の CO酸化反応の結果である。処理する最後のガス種によって活性が変化している。繰り返 しの H₂ 処理によって単結晶構造へと戻り、CO 処理によって双晶構造が再度現れると推察され る。つまり、Ag ナノ粒子の結晶構造はガス処理によって可逆的に制御可能であることが示唆さ れた。

Table 3 Results of characterization of Ag(H) and Ag(HC) and their catalytic activity for CO oxidation reaction at 100°C.

	Ag(H)	Ag(HC)
TEM particle size (nm)	5.0±3.3	5.9±3.8
Ag/Al XPS surface composition	0.52	0.50
Twin percentage	35	65
CO conversion at 100°C (%)	42±2.0	58±5.0



Fig. 3 CO conversion of Ag/Al_2O_3 after repeated H_2 and CO treatment.

【Pt 族ナノ粒子の粒子形態制御】

Au や Ag に比べて双晶界面エネルギーの大きい金属である Pt、Pd について前処理ガスによる ナノ粒子構造制御を検討した。

Pt/SiO₂の還元前処理として H₂、CO/H₂ 混合ガスを流通させたときの Pt ナノ粒子の形態を調べ るために CO 吸着 IR 測定を行った。H₂前処理を行った触媒と比較して、CO/H₂前処理で調製し た Pt ナノ粒子は CO 伸縮バンドが低波数側にシフトしたことから、H₂処理とは異なる表面を形 成していることが示唆された。また、吸着した CO は 200 ℃で 10 分間 Ar ガスを流通させること で容易に除去できることが確認された。TEM 観察を行うと、H₂前処理したものでは球状の Pt ナ ノ粒子が観察されたが、CO/H₂前処理したものでは Pt ナノキューブが生成していた。

H₂、CO/H₂ 前処理した Pt/C を用いて CAL 水素化反応を行い、表面 Pt 当たり の CAL 転化速度(TOF)と生成物選択性を 評価した。Pt 粒子径による水素化反応活 性の変化を確認するため、5、10、20、50 wt%の Pt/C を用いた。触媒性能は、検討 した範囲内では粒子径に依存せず、むし ろ前処理条件によって大きく変化し、 CO/H₂前処理を行った触媒の方が TOFと COL 選択率ともに高かった(Fig. 4)。 各 触媒の XPS 測定を行った結果、前処理条 件によって Pt の電子状態は変化しない ことが示唆された。しいたがって、Pt の





電子状態や粒子径よりも前処理によっ て変わる粒子形態が触媒性能に強く影 響していると考えられた。

Pt/C の CO/H₂ 前処理における温度の 効果を調べた。200°Cで CO/H₂ 前処理す ると Pt ナノキューブが生成したが、 500°Cで前処理すると立方八面体形 Pt ナノ粒子が生成することが TEM により 確認された。キューブが生成するのは、 CO が Pt(111)よりも(100)に強く吸着す るためであり、温度によって立方八面 体となったのは、温度が高くなること で CO の脱離速度が上がり、面の成長を 制御しきれなくなったためだと考えら れる。

前処理ガス、温度を変化させて調製 した Pt/C を用いて CAL 水素化反応を 行った結果、500°C H₂ < 200°C CO/H₂ < 500°C CO/H₂ 前処理の順に COL 選択率 が上昇した。粒子形状と対応させると、 step サイトを多く有する球、Pt(100)面で 囲まれたキューブ、Pt(111)面と Pt(100) 面で囲まれた立方八面体の順に COL 選



Fig. 5 Typical TEM images and the results of CAL hydrogenation using CO/H₂-treated and H₂ treated Pt/C.

択率が上昇する(Fig. 5)。 球状 Pt ナノ粒子表面の step サイトでは C=C の吸着が優位であるのに対して、フラット面のサイト 特に Pt(111)面では C=O の吸着が優位となるため COL 選択性が向上したと考えられる。

上記の Ag/Al₂O₃ と同様に Pt/C について粒子形成後のガス処理による形態変化を調査した。 500°C H₂処理を行った触媒に 500°C CO 処理を施した。形態を TEM により調べると、H₂処理後 は Pt ナノ粒子は球形であったが、CO 処理後は立方八面体であった。CO が Pt 表面に吸着し表面 再構成を引き起こすことで平滑な面を持つ Pt ナノ粒子が生成したと考えられる。この変化は、 反応科学超高圧走査透過電子顕微鏡を用いたその場観察によって確認できた。粒子形成後の処 理による CAL 反応活性と COL 選択率を調べたところ、CO 下で処理すると反応活性と COL 選 択性ともに向上し、その後 H₂下で処理すると低下した。この変化は粒子形状の変化と対応して おり、平滑な面を有する立方八面体の方が球形より高活性であること、また、H₂と CO 処理によ る Pt ナノ粒子の形態変化は可逆的であることが示された。

Pt/C の前処理ガスとしてエチレンを用いると Pt(111)面に囲まれた八面体形 Pt ナノ粒子が生成 し CAL 水素化活性が向上すること、また、CO 処理によって Pd ナノ粒子の形態と CAL 水素化 反応活性、選択性が変化することを見出している。このように Pt や Pd の場合は CO などのガス によって粒子形態・表面原子配列が変化し触媒性能が変わることが明らかになった。

5.主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件(うち査読付論文 6件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件) 4.巻 1.著者名 48 Ohyama Junya, Kato Sosuke, Machida Masato, Satsuma Atsushi 5.発行年 2. 論文標題 Shape Control Preparation of Supported Platinum Nano-octahedra by Ethylene Treatment for 2019年 Enhancement of Selective Hydrogenation of Cinnamaldehyde 3. 雑誌名 6.最初と最後の頁 Chemistry Letters $1203 \sim 1205$ 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 査読の有無 10.1246/CL.190462 右 オープンアクセス 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 1. 著者名 4.巻 Ohyama Junya, Okubo Keiichi, Ishikawa Kazutomo, Saida Takahiro, Yamamoto Yuta, Arai Shigeo, 3 Satsuma Atsushi 5 . 発行年 2.論文標題 Removal of Surface Poisoning Improves Hydrogen Oxidation Performance of Pt Catalysts under 2020年 Basic Conditions 3.雑誌名 6.最初と最後の頁 ACS Applied Energy Materials $1854 \sim 1859$ 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/acsaem.9b02274 有 オープンアクセス 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 1. 著者名 4.巻 12 Ishikawa Kazutomo, Ohyama Junya, Okubo Keiichi, Murata Kazumasa, Satsuma Atsushi 2. 論文標題 5.発行年 Enhancement of Alkaline Hydrogen Oxidation Reaction of Ru?Ir Alloy Nanoparticles through 2020年 Bifunctional Mechanism on Ru?lr Pair Site 3.雑誌名 6.最初と最後の頁 ACS Applied Materials & Interfaces 22771 ~ 22777 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/acsami.0c00506 有 オープンアクセス 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 1.著者名 4.巻 Murata Kazumasa, Ogura Keiji, Ohyama Junya, Sawabe Kyoichi, Yamamoto Yuta, Arai Shigeo, Satsuma х Atsushi 2.論文標題 5.発行年 Selective Hydrogenation of Cinnamaldehyde over the Stepped and Plane Surface of Pd 2020年 Nanoparticles with Controlled Morphologies by CO Chemisorption 6.最初と最後の頁 3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces x ~ x 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/acsami.0c05938 有

国際共著

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	4.巻
Ohyama Junya、Okubo Keiichi、Satsuma Atsushi	92
2 . 論文標題 Enhanced Alkaline Hydrogen Oxidation Reaction by Modifying Pt Nanoparticle Surface with Another Metal	5 . 発行年 2019年
3.雑誌名	6 . 最初と最後の頁
ECS Transactions	733~738
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1149/09208.0733ecst	 査読の有無 有
オープンアクセス	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	
1 . 著者名	4 . 巻
K. Sosuke, J. Ohyama, M. Machida, A. Satsuma	2019
2 . 論文標題 Gas-phase synthesis of morphology-controlled Pt nanoparticles and their impact on cinnamaldehyde hydrogenation	5 . 発行年 2019年
3.雑誌名	6 . 最初と最後の頁
Cat. Sci. Tech.	印刷中
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1039/C9CY00158A	無
オープンアクセス	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	
4 * * / /	A 344
1.者右名	4 . を
Y. Yamamoto, M. Hattori, J. Ohyama, A. Satsuma, A. N. Tanaka, S. Muto	67
2 . 論文標題 Twinned/untwinned catalytic gold nanoparticles identified by applying a convolutional neural network to their Hough transformed Z-contrast images	5 . 発行年 2018年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Microscopy	321-330
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1093/jmicro/dfy036	無
オープンアクセス	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	
1.著者名	4 . 巻
K. Okubo, J. Ohyama, A. Satsuma	22
2 . 論文標題 Surface Modification of Pt Nanoparticles with Another Metal Boosting Alkaline Hydrogen Oxidation Reaction	5 . 発行年 2019年
3.雑誌名	6 . 最初と最後の頁
Chem. Commun.	3101-3104
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
10.1039/C9CC00582J	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 Sawabe Kyoichi、Koketsu Taiki、Ohyama Junya、Satsuma Atsushi	4.巻 7
2 . 論文標題 A Theoretical Insight into Enhanced Catalytic Activity of Au by Multiple Twin Nanoparticles	5 .発行年 2017年
3.雑誌名 Catalysts	6.最初と最後の頁 191~191
	査読の有無
10.3390/cata17060191	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
	۸ ۷
1.者右名 Ohyama J.、Ohira Y.、Satsuma A.	4. 7
2.論文標題 Hydrogenative ring-rearrangement of biomass derived 5-(hydroxymethyl)furfural to 3- (hydroxymethyl)cyclopentanol using combination catalyst systems of Pt/SiO2 and lanthanoid oxides	5 . 発行年 2017年
3.雑誌名 Catalysis Science & Technology	6.最初と最後の頁 2947~2953
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7CY00712D	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 Ohyama Junya、Satsuma Atsushi	4.巻 1
2.論文標題 Reductive Conversion of 5–Hydroxymethylfurfural in Aqueous Solutions by Furan Ring Opening and Rearrangement	5 . 発行年 2017年
3.雑誌名 Production of Biofuels and Chemicals with Bifunctional Catalysts	6 . 最初と最後の頁 159~185
	本語の右無
10.1007/978-981-10-5137-1_5	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
〔学会発表〕 計26件(うち招待講演 7件/うち国際学会 9件)	
〔学会発表〕 計26件(うち招待講演 7件 / うち国際学会 9件) 1.発表者名 大山順也	
 〔学会発表〕 計26件(うち招待講演 7件/うち国際学会 9件) 1.発表者名 大山順也 	
 【学会発表〕 計26件(うち招待講演 7件/うち国際学会 9件) 1.発表者名 大山順也 2.発表標題 電子顕微鏡解析に基づく担持金触媒の構造活性相関に関する研究 	
 【学会発表〕 計26件(うち招待講演 7件/うち国際学会 9件) 1 . 発表者名 大山順也 2 . 発表標題 電子顕微鏡解析に基づく担持金触媒の構造活性相関に関する研究 3 . 学会等名 第124回触媒討論会(招待講演) 	
 【学会発表〕 計26件(うち招待講演 7件/うち国際学会 9件) 1.発表者名 大山順也 2.発表標題 電子顕微鏡解析に基づく担持金触媒の構造活性相関に関する研究 3.学会等名 第124回触媒討論会(招待講演) 4.発表年 	

田村武裕,沢邊恭一,大山順也,薩摩篤

2.発表標題

CO ガス処理による双晶 Ag ナノ粒子の調製法とその CO 酸化反応活性

3.学会等名 第124回触媒封論

第124回触媒討論会

4 . 発表年 2019年

1.発表者名

Junya Ohyama, Keiichi Okubo, Atsushi Satsuma

2.発表標題

Enhanced Alkaline Hydrogen Oxidation Reaction by Modifying Pt Nanoparticle Surface with Another Metal

3 . 学会等名

236th ECS Meeting(国際学会)

4 . 発表年 2019年

1.発表者名 大山順也

2.発表標題

電子顕微鏡解析に基づく担持金触媒の構造活性相関に関する研究

3.学会等名

2019 年度 触媒学会・触媒工業協会交流サロン(招待講演)

4 . 発表年

2019年

1.発表者名 大山順也

2.発表標題

原子スケールでみる金属ナノ粒子触媒の構造と活性の関係

3.学会等名

第27回 表面設計化学セミナー(招待講演)

4 . 発表年 2020年

Junya Ohyama

2.発表標題

Particle size and metal-support interaction induced surface structure variation of Pd/AI203 catalysts for methane combustion

3.学会等名

Korean Soc. of Industrial & Eng. Chem. Fall Meeting (招待講演) (国際学会)

4.発表年

2018年

1 . 発表者名

J. Ohyama, Y. Mahara, K. Murata, K. Ueda, K. Kato, and A. Satsuma

2.発表標題

Investigation of Active State of Pd Nanoparticles for CH4 Oxidation Using In Situ DXAFS Spectroscopy

3 . 学会等名

10th Singapore International Chemistry Conference(招待講演)(国際学会)

4.発表年 2018年

1.発表者名

Junya Ohyama Sosuke Kato, Atsushi Satsuma

2.発表標題

Cinnamaldehyde Hydrogenation on Shape-Controlled Platinum Nanoparticles Prepared Using Carbon Monoxide Adsorption

3.学会等名

2018 International Symposium on Advancement and Prospect of Catalysis Science and Technology(招待講演)(国際学会)

4.発表年 2018年

2010 |

1.発表者名

Junya Ohyama, Mizuki Hattori, Yuta Yamamoto, Shigeo Arai, Atsushi Satsuma

2.発表標題

Preparation of Twin Gold Nanoparticles by CO Treatment and Their Enhanced Catalytic Activity for Cinnamaldehyde Hydrogenation

3.学会等名

Scientific Bases for the Preparation of Heterogeneous Catalysts: PREPA12(国際学会)

4. <u>発</u>表年 2018年

Sosuke KATO, Junya OHYAMA, Atsushi SATSUMA

2.発表標題

Cinnamaldehyde hydrogenation over morphology-controlled Platinum nanoparticles by CO/H2 pretreatment gas

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

1.発表者名 大山順也

2.発表標題

サイズ・MSI・ガス吸着によって変化するナノ粒子形態と触媒作用

3 . 学会等名

触媒学会 ナノ構造触媒研究会青森講演会

4.発表年 2018年

1.発表者名 加藤颯介,大山順也,薩摩篤

2 . 発表標題

ガス分子吸着により形態制御した白金ナノ粒子のcinnamaldehyde水素化反応活性

3.学会等名

第122回触媒討論会

4.発表年 2018年

1.発表者名

Mizuki Hattori, Taiki Koketsu, Junya Ohyama, Kyoichi Sawabe, Yuta Yamamoto, Shigeo Arai, Atsushi Satsuma

2.発表標題

Enhanced Hydrogenation of Cinnamaldehyde by Twin Au Nanoparticles

3 . 学会等名

16th Korea-Japan Symposium on Catalysis(国際学会)

4 . 発表年 2017年

Kyoichi Sawabe, Mizuki Hattori, Taiki Koketsu, Junya Ohyama, Atsushi Satsuma

2.発表標題

A Theoretical Insight into the Enhanced Catalytic Activity of Au by Multiple Twin Nanoparticles

3 . 学会等名

16th Korea–Japan Symposium on Catalysis(国際学会)

4.発表年 2017年

1.発表者名 加藤颯介,大山順也,薩摩篤

2.発表標題

Morphology controlled carbon supported Pt nanoparticles by pretreatment gas

3.学会等名第8回触媒科学研究発表会

4.発表年 2017年

1.発表者名 加藤颯介,大山順也,薩摩篤

2.発表標題

前処理ガスによって形態制御した白金ナノ粒子のcinnamaldehyde水素化反応活性

3.学会等名 第120回触媒討論会

为120回照沐时酬云

4.発表年 2017年

1.発表者名

服部美月、大山順也、沢邊恭一、山本悠太、荒井重勇、薩摩篤

2.発表標題

双晶構造を持つAuナノ粒子触媒上でのシンナムアルデヒド水素化反応

3 . 学会等名

第11回触媒道場

4 . 発表年

2017年

加藤颯介,大山順也,薩摩篤

2.発表標題

ガス吸着によるPtナノ粒子の形態制御 ~ cinnamaldehyde水素化反応による活性評価~

3.学会等名 第7回CSJ化学フェス

4 . 発表年

2017年

1 . 発表者名 服部美月,大山順也,薩摩篤

2.発表標題
 CO還元処理で調製したAu, Pd, Pd-Au触媒によるシンナムアルデヒド水素化

3.学会等名

第47回石油・石油化学討論会

4.発表年 2017年

1.発表者名 大山 順也

2.発表標題

ガス吸着と金属-担体間相互作用が担持金属ナノ粒子触媒の構造と性能に与える影響

3 . 学会等名

第6回 SPring-8グリーンサスティナブルケミストリー研究会

4 . 発表年 2017年

1.発表者名

大山順也・纐纈太希・服部美月・山本悠太・荒井重勇・沢邊恭一・薩摩篤

2.発表標題

CO還元処理によって調製した担持双晶Auナノ粒子触媒のCO酸化反応およびシンナムアルデヒド水素化反応活性

3 . 学会等名

第119回触媒学会

4.発表年

2017年

1.発表者名
 大山順也・服部美月・纐纈太希・沢邊恭一・山本悠太・荒井重勇・薩摩篤

2.発表標題

Hydrogenation of Cinnamaldehyde on TiO2 and Nb2O5 Supported Twinned Gold Nanoparticles

3 . 学会等名

The 7th Asia-Pacific Congress on Catalysis (APCAT-7)(国際学会)

4.発表年 2017年

1.発表者名

服部美月・纐纈太希・大山順也・沢邊恭一・山本悠太・荒井重勇・薩摩篤

2.発表標題

担持双晶Auナノ粒子触媒を用いた不飽和アルデヒドの水素化反応

3.学会等名 第119回钟旗討論

第118回触媒討論会

4 . 発表年 2016年

1.発表者名

纐纈太希・大山順也・沢邊恭一・山本悠太・荒井重勇・薩摩篤

2.発表標題

CO還元処理によって調製した担持Au触媒の構造とCO酸化反応活性

3.学会等名

第46回石油・石油化学討論会

4.発表年 2016年

1.発表者名

服部美月・纐纈太希・大山順也・沢邊恭一・山本悠太・荒井重勇・薩摩篤

2.発表標題

シンナムアルデヒド水素化反応における担持双晶Au触媒の効果

3 . 学会等名

第6回CSJ化学フェスタ2016

4.発表年 2016年

大山順也

2.発表標題 原子スケール観察に基づいた担持Au触媒のサイズと結晶構造の効果

3 . 学会等名 第14回触媒化学ワークショップ(招待講演)

4 . 発表年 2016年

〔図書〕 計1件

1. 著者名	4 . 発行年
Junya Ohyama, Atsushi Satsuma	2017年
2 . 出版社	5.総ページ数
Springer	27
3.書名	
Reductive Conversion of 5-Hydroxymethylfurfural in Aqueous Solutions by Furan Ring Opening and	
Rearrangement. In: Fang Z., Smith Jr. R., Li H. (eds) Production of Biofuels and Chemicals with	
bildictional catalysis. Diorders and Diorefficenes, vol 6.	

〔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