

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 21 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01802

研究課題名（和文）活性点立体構造と表面吸着種のオペランド複合計測による触媒反応機構の原子レベル解明

研究課題名（英文）Atomic-level understanding of catalytic reaction processes by operando observation of 3D active structures and surface-adsorbed species

研究代表者

高草木 達（Takakusagi, Satoru）

北海道大学・触媒科学研究所・教授

研究者番号：30359484

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 14,100,000円

研究成果の概要（和文）：酸化物表面上に活性金属種（単原子やナノ粒子）を担持した酸化物担持金属触媒は実用上最も広く用いられている。触媒反応を理解し、更なる高性能化への指針を画するには触媒性能に影響を与える因子（金属活性点の電子状態・立体構造、表面吸着種の挙動）を反応条件下で明らかにし、厳密な構造-活性相関に関する情報の取得と反応機構の解明が不可欠である。本研究において、18H01864課題で開発したオペランド偏光全反射蛍光XAFSを高度化するとともに、オペランド偏光変調反射赤外吸収分光法を新たに開発することで触媒制御因子の反応条件下での計測を可能にした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固体触媒はファインケミカルズや医薬品の合成、自動車排ガスの無害化など、産業や環境に有用な多くの化学反応に用いられており、SDG実現に向けて触媒の更なる高性能化（極めて高い効率で欲しい物質だけを得る）が求められている。しかし、「触媒反応中にどういった電子状態及び立体構造を有する表面ナノ構造が形成され、そこには吸着種がどのような状態で存在して最終生成物を与えるのか？」という触媒制御因子に関する情報を得る評価技術は確立されておらず、厳密な構造-活性相関の取得や反応機構の解明は難しかった。本研究によって、こうした情報の取得が可能になり、今後の触媒設計に関してより明確な指針を与えることが期待できる。

研究成果の概要（英文）：Oxide-supported metal catalysts, in which active metal species (monatomic or nanoparticles) are supported on oxide surfaces, are the most widely used in practical applications.

In order to understand catalytic reaction processes and to provide guidelines for further improvement of catalytic performance, it is essential to clarify factors affecting catalytic performance (electronic state and 3D structure of active metal sites and behavior of surface adsorbed species) under reaction conditions, and then to obtain information on precise structure-activity relationships and reaction mechanisms. In this study, the operando polarization-dependent total reflection fluorescence XAFS (PTRF-XAFS) technique developed in the 18H01864 project was upgraded and improved, and a new operando-polarized-modulation infrared reflection absorption spectroscopy was developed to evaluate all the factors affecting catalytic performance.

研究分野：触媒化学、表面科学、放射光科学

キーワード：オペランド偏光全反射蛍光XAFS法 オペランド偏光変調赤外反射分光法 活性点三次元構造解析 担持金属触媒

1. 研究開始当初の背景

触媒はファインケミカルズや医薬品の合成、自動車排ガスの無害化など、産業や環境に有用な多くの化学反応に用いられている。固体触媒では固体表面で反応が進行するが、「触媒反応中にどのような電子状態及び立体構造(三次元原子配列)を有する表面ナノ構造(活性点)が形成され、そこには吸着種がどのような状態で存在して最終生成物を与えるのか?」という触媒活性発現の起源に関する根本的な問いに対しては、評価技術が十分に確立されていないため、現在も回答を得ることが難しい。そのため、反応機構を真に解明し、更なる高活性化のための指針を得ることは困難である。

近年、超高真空技術をベースにした表面ナノ構造解析手法の性能が著しく進歩し、また、構造の規定された単結晶モデル表面の調製法も徐々に確立し、表面ナノ構造と触媒活性との相関を原子レベルで議論できるようになってきた[1]。しかしながらその多くが、反応ガスが共存しない反応前後での評価 (*ex situ*) や、ガス存在下 (*in situ*) でも非常に低圧に限られ、実用的なガス圧力 (~大気圧) かつ実際に触媒が動作している条件 (*operando*) とはかけ離れている。触媒反応の正確な理解と更なる高活性化への指針獲得には、超高真空から大気圧付近までの圧力範囲で触媒反応をモニターでき、反応中の活性点構造(電子状態及び立体構造)と吸着種挙動の両方をオペランド計測できる手法の開発が不可欠である。

2. 研究の目的

基盤研究 (B) “オペランド偏光全反射蛍光 XAFS 法の開発による触媒動作中の活性点三次元構造解析” (18H01864) で開発したオペランド偏光全反射蛍光 XAFS 法により、超高真空から大気圧までの圧力領域で、触媒反応中の金属活性点の電子状態 (XANES) と立体構造 (EXAFS) の計測を可能にした (図 1) [2]。Pt/Al₂O₃(0001)表面上での CO 酸化反応に適用し、Pt 担持直後 (超高真空下室温で蒸着。Pt 量: 5.1×10^{14} /cm²) は Al₂O₃(0001)表面上で icosahedron Pt₅₅ クラスタを形成するが、493K で CO 酸化反応が進行中 (CO:O₂:Ar= 20%:72%:8%、100 Pa) は、凝集して cuboctahedron Pt₁₄₇ となることを Pt L₃ 吸収端偏光 EXAFS 測定とスペクトルシミュレーションから解明した。本研究では、触媒反応中の吸着種挙動を捉えるため、新たにオペランド偏光変調赤外反射分光法の開発を行う。また、オペランド偏光全反射蛍光 XAFS 測定に Δ XANES 法を適用し、金属活性点に吸着したガス種の検出を試みた。

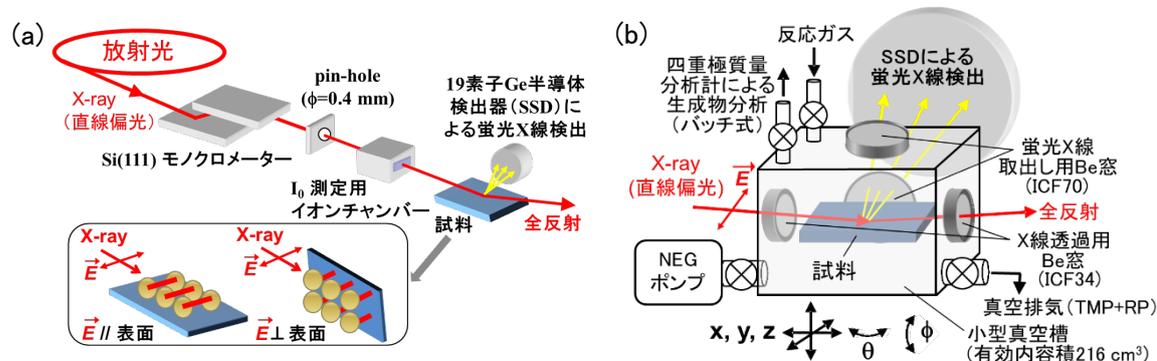


図 1. (a) 偏光全反射蛍光 XAFS 法の原理。試料回転により単結晶基板上金属種の偏光依存 XAFS を測定する。EXAFS では、X 線電場ベクトルに平行な結合情報(結合原子種、距離、配位数等)を抽出でき、スペクトルの理論シミュレーション (FEFF) から金属種の立体構造を決定できる。(b) オペランド測定の概略図。反応ガス導入用ライン及び生成ガス検出用ライン(四重極質量分析計に接続)を備えた小型真空槽を 5 軸ゴニオメーター上に設置し、試料移動 (x, y, z) と回転 (θ) により全反射条件の最適化を行った後に蛍光 XAFS 測定を行う。偏光依存測定は試料を 90 度回転 (ϕ) して行う。TMP: ターボ分子ポンプ、RP: ロータリーポンプ。

3. 研究の方法

図 1(b)のオペランド測定用セル(小型真空槽)をベースに偏光変調赤外反射分光用のセルを設計・製作した。オペランド偏光全反射蛍光 XAFS 測定用の試料ホルダーと共通化し、両測定を行き来できるようにした。赤外分光装置はサーモフィッシャーサイエンティフィック株式会社の Nicolet iS50 Analytical に光弾性変調キットを装備するとともに、自作のセルでの測定が可能になるよう光学系の配置を決定した。性能評価として、多結晶 Pt 基板を用いて CO ガス存在下での CO 吸着測定を試みた。オペランド偏光全反射蛍光 XAFS 法における Δ XANES 法の適用は Pt/Al₂O₃(0001)表面上での CO 酸化反応を対象にして、Pt ナノ粒子上に吸着した CO や O の検出を試みた。

4. 研究成果

図 2(a)及び(b)はオペランド偏光変調赤外反射分光測定用に新たに製作したセルと光学系全体の写真である。光弾性変調器 (PEM) を通じて偏光方向を高速で切り替えた赤外線を作り出し、反射法により触媒基板表面を観測することで、気相ガス成分を除去した表面吸着種の赤外吸収スペクトルを得ることができる (赤外光の入射及び反射角は 80° とした)。コロナ禍かつガス導入系に必要なマスフローコントローラー・圧力計の納期に大幅な遅れが生じたため (メーカーのシステム障害が原因)、装置の立ち上げはかなり遅れた。プロジェクト終了半年前ようやくセットアップが完了し、性能評価のため、気相 CO が存在する条件下での Pt 多結晶基板上的 CO 吸着測定を試みた。図 2(c)は得られた赤外吸収スペクトルである。Pt 表面に吸着した CO の伸縮振動に帰属されるピークが明瞭に観察された。試料温度を上げるとピーク位置は低端数側にシフトし、文献の挙動と一致した[3]。以上、気相ガス存在下かつ高温での表面吸着種の測定を実現した。今後は Pt ナノ粒子担持系 (例えば Pt/Al₂O₃/NiAl(110)や Pt/CeO₂/Cu(111)) へ展開し、CO 酸化反応中など触媒反応が進行している状況下かつ四重極質量分析計で反応をモニターしながらの赤外分光測定を行う。

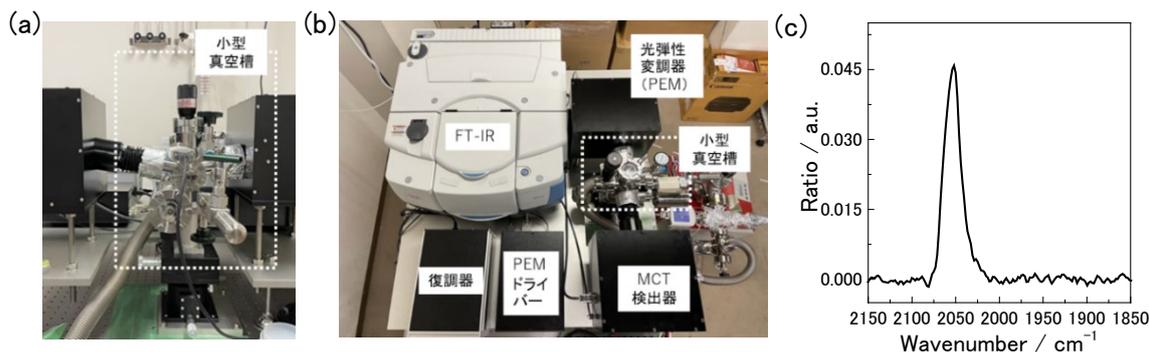


図 2. オペランド偏光変調反射赤外分光法の開発。(a) 新規製作セル (小型真空槽) 及び (b) 装置全体の写真。(c) Pt 多結晶基板上吸着 CO の偏光変調赤外反射吸収スペクトル。CO 圧力 100 Pa、室温での測定。

次にオペランド偏光全反射蛍光 XAFS 法において Δ XANES 法を適用し、Pt/Al₂O₃(0001)表面上での CO 酸化反応を対象にして、Pt ナノ粒子上に吸着した CO や O などの検出を試みた (Pt の粒径は EXAFS 測定から 1.5 nm と見積もった)。Pt 上に CO や O が吸着した Pt/Al₂O₃(0001)の XANES スペクトルとこれらを除いた Pt/Al₂O₃(0001)の XANES スペクトルの差をとることで (Δ XANES 法)、Pt 上の CO や O、酸化酸素を検出できることを確認した (図 4)。実触媒では Δ XANES 法の有用性がすでに確認されていたが、金属担持量が極めて少ない単結晶モデル触媒表面を用いる本手法でも有効であることを初めて示した。特に、赤外分光法では検出の難しい Pt-O (金属-酸素結合) を Δ XANES 法によって捉えることができた。また、実際に CO 酸化反応中の Δ XANES 法を測定したところ、温度によって異なる吸着種状態及び Pt 酸化挙動が見られた。反応条件にもよるが、ガス流通下

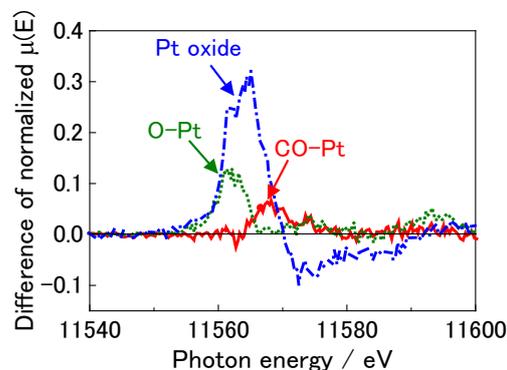


図 4. Pt L₃ 吸収端 Δ XANES 法による Pt/Al₂O₃(0001)の Pt ナノ粒子上に吸着した CO、O 及び Pt 酸化酸素の検出 (s-偏光)。p-偏光でも同様な結果が得られた。

(CO: 0.33 mL/min + O₂: 1.00 mL/min、全圧 2 Pa)、低温域 (~473 K) では Pt ナノ粒子はほぼ吸着 CO で覆われた状態であった。従って、CO 脱離が律速と推測される (CO 脱離後に O₂ が解離吸着し、近隣の CO と速やかに反応して CO₂ 生成)。中温域 (~573 K) では主に吸着 O が計測され、CO 吸着後に速やかに O と反応して CO₂ へ変換されたと推察される (O₂ の解離吸着が律速)。このとき僅かに表面酸化が進んでいた。高温域 (~673 K) では活性が低下し、酸化酸素に由来するピークが大きくなったことから、Pt 表面酸化が深く進行したと考えられる。活性化エネルギーは中温域で最も小さく、僅かに表面酸化が進行した状態が最も活性であることが示唆された。また、こうした吸着種や酸化物に由来する Δ XANES スペクトルには偏光依存性が観察される場合があった。この結果は、Pt 粒子表面で吸着種や酸化物が異方性を持って分布していることを示しており、こうした情報は本手法でなくては得られないものである。今後 FEFF コードを用いた理論シミュレーションによって、CO、O、酸化酸素の Pt 粒子内分布状態を解明していく。本研究によって、オペランド偏光全反射蛍光 XAFS 法の新たな可能性を開拓し、反応中の金属活性点の価数 (通常 XANES)、立体構造 (EXAFS)、吸着種の検出 (Δ XANES 法) を可能にした。

以上、本研究で開発したオペランド偏光変調赤外反射分光法と偏光全反射蛍光 XAFS 法への Δ XANES 法の適用によって、触媒反応中の担持金属モデル触媒表面における吸着種挙動を計測することが可能になった。偏光 EXAFS 測定による金属活性点の立体構造決定と合わせることで、触媒性能に影響を与える主要因子（金属活性点の電子状態と立体構造、及び吸着種挙動）を原子レベルで評価し、厳密な構造-活性相関に関する情報の取得と反応機構の完全解明が期待できる。今後、こうしたアプローチによって明らかにした触媒性能制御因子の最適化に基づいた、実触媒（粉体触媒）の高性能化へと展開していきたい。

<引用文献>

- [1] C. Liu, B. Lu, H. Ariga-Miwa, S. Ogura, T. Ozawa, K. Fukutani, M. Gao, J. Hasegawa, K. Shimizu, K. Asakura, S. Takakusagi, *J. Am. Chem. Soc.* **2023**, *145*, 19953-19960.
- [2] B. Lu, D. Kido, Y. Sato, H. Xu, W. J. Chun, K. Asakura, S. Takakusagi, *J. Phys. Chem. C* **2021**, *125*, 12424-12432.
- [3] H. Härle, A. Lehnert, U. Metka, H.-R. Volpp, L. Willms, J. Wolfrum, *Chem Phys. Lett.* **1998**, *293*, 26-32.

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 2件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kim Dae-Yeong, Ham Hyungwon, Chen Xiaozhong, Liu Shuai, Xu Haoran, Lu Bang, Furukawa Shinya, Kim Hyun-Ha, Takakusagi Satoru, Sasaki Koichi, Nozaki Tomohiro	4. 巻 144
2. 論文標題 Cooperative Catalysis of Vibrationally Excited CO ₂ and Alloy Catalyst Breaks the Thermodynamic Equilibrium Limitation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 14140 ~ 14149
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.2c03764	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 Nakaya Yuki, Hayashida Eigo, Asakura Hiroyuki, Takakusagi Satoru, Yasumura Shunsaku, Shimizu Ken-ichi, Furukawa Shinya	4. 巻 144
2. 論文標題 High-Entropy Intermetallics Serve Ultrastable Single-Atom Pt for Propane Dehydrogenation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 15944 ~ 15953
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.2c01200	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 Kido Daiki, Uemura Yohei, Wakisaka Yuki, Koide Akihiro, Uehara Hiromitsu, Niwa Yasuhiro, Nozawa Shunsuke, Ichiyonagi Kohei, Fukaya Ryo, Adachi Shin-ichi, Sato Tokushi, Jenkins Harry, Yokoyama Toshihiko, Takakusagi Satoru, Hasegawa Jun-ya, Asakura Kiyotaka	4. 巻 51
2. 論文標題 Metastable Structure of Photoexcited WO ₃ Determined by the Pump-probe Extended X-ray Absorption Fine Structure Spectroscopy and Constrained Thorough Search Analysis	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1083 ~ 1086
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.220381	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 Yamada Yasuyuki, Morita Kentaro, Sugiura Takuya, Toyoda Yuka, Mihara Nozomi, Nagasaka Masanari, Takaya Hikaru, Tanaka Kiyohisa, Koitaya Takanori, Nakatani Naoki, Ariga-Miwa Hiroko, Takakusagi Satoru, Hitomi Yutaka, Kudo Toshiji, Tsuji Yuta, Yoshizawa Kazunari, Tanaka Kentaro	4. 巻 3
2. 論文標題 Stacking of a Cofacially Stacked Iron Phthalocyanine Dimer on Graphite Achieved High Catalytic CH ₄ Oxidation Activity Comparable to That of pMMO	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 JACS Au	6. 最初と最後の頁 823 ~ 833
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacsau.2c00618	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 Lu Bang, Kido Daiki, Sato Yuta, Xu Haoran, Chun Wang-Jae, Asakura Kiyotaka, Takakusagi Satoru	4. 巻 125
2. 論文標題 Development of Operando Polarization-Dependent Total Reflection Fluorescence X-ray Absorption Fine Structure Technique for Three-Dimensional Structure Determination of Active Metal Species on a Model Catalyst Surface under Working Conditions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 12424 ~ 12432
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c02913	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 Mine Shinya, Takao Motoshi, Yamaguchi Taichi, Toyao Takashi, Maeno Zen, Hakim Siddiki S. M. A., Takakusagi Satoru, Shimizu Ken ichi, Takigawa Ichigaku	4. 巻 13
2. 論文標題 Analysis of Updated Literature Data up to 2019 on the Oxidative Coupling of Methane Using an Extrapolative Machine Learning Method to Identify Novel Catalysts	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ChemCatChem	6. 最初と最後の頁 3636 ~ 3655
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cctc.202100495	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 Hu Bing, Bharate Bapurao, Jimenez Juan D., Lauterbach Jochen, Todoroki Naoto, Wadayama Toshimasa, Higashi Kotaro, Uruga Tomoya, Iwasawa Yasuhiro, Ariga-Miwa Hiroko, Takakusagi Satoru, Asakura Kiyotaka	4. 巻 126
2. 論文標題 Abnormal Metal Bond Distances in PtAu Alloy Nanoparticles: In Situ Back-Illumination XAFS Investigations of the Structure of PtAu Nanoparticles on a Flat HOPG Substrate Prepared by Arc Plasma Deposition	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 1006 ~ 1016
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c08393	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 Liu Can, Lu Bang, Ariga-Miwa Hiroko, Ogura Shohei, Ozawa Takahiro, Fukutani Katsuyuki, Gao Min, Hasegawa Jun-ya, Shimizu Ken-ichi, Asakura Kiyotaka, Takakusagi Satoru	4. 巻 145
2. 論文標題 Dynamic Behavior of Intermediate Adsorbates to Control Activity and Product Selectivity in Heterogeneous Catalysis: Methanol Decomposition on Pt/TiO ₂ (110)	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 19953 ~ 19960
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.3c06405	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 Kim Cho Rong, Maeda Honoka, Lu Bang, Nakamura Yuto, Lin Yunli, Wakisaka Yuki, Kido Daiki, Asakura Kiyotaka, Takakusagi Satoru	4. 巻 53
2. 論文標題 Can amine ligands atomically disperse Cu atoms on TiO ₂ (110)? Cu deposition on TiO ₂ (110) premodified with o-anthranilic acid	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 upad045
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1093/chemle/upad045	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 Wada Takahiro, Kashaboina Upendar, Nishikawa Yuta, Wakisaka Yuki, Bao Deling, Takakusagi Satoru, Inami Yuta, Kuriyama Fumiya, Dipu Arnoldus Lambertus, Ogihara Hitoshi, Iguchi Shoji, Yamanaka Ichiro, Kido Daiki, Kimura Masao, Uo Motohiro, Asakura Kiyotaka	4. 巻 127
2. 論文標題 The Effect of Structural Change during the Activation Process on the Catalysis of In/SiO ₂ Nonoxidative Coupling of Methane: An Operando XAFS Study	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 24211 ~ 24222
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.3c04539	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 Dong Kaiyue, Hu Bing, Rashid Md Harun Al, Lu Bang, Miyabayashi Keiko, Higashi Kotaro, Uruga Tomoya, Iwasawa Yasuhiro, Kido Daiki, Takakusagi Satoru, Asakura Kiyotaka	4. 巻 22
2. 論文標題 In situ Study on Structure of a Diluted Pt/HOPG Model Catalyst System Prepared by the Two-phase Liquid Reduction Method Using a Novel BCLA/HERFD+BI-XAFS Method	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 129 ~ 137
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/ejssnt.2024-004	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26件（うち招待講演 14件 / うち国際学会 16件）

1. 発表者名 Satoru Takakusagi
2. 発表標題 Development of operando PTRF-XAFS technique for precise 3D structure determination of active metal sites in heterogeneous catalysis
3. 学会等名 International Symposium on Next Generation Synchrotron Radiation Facility Utilization for Catalysts Characterization as Post Symposium of TOCAT (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Satoru Takakusagi
2. 発表標題 Operando PTRF-XAFS technique for precise 3D structure determination of active metal sites in heterogeneous catalysis
3. 学会等名 ICAT-FHI Symposium: New Dimension of Catalytic Surface Study (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Satoru Takakusagi
2. 発表標題 Elucidation of Precise 3D Structure-Activity Relationship in Heterogeneous Catalysis by Operando PTRF-XAFS Technique
3. 学会等名 IMS-ICAT Joint Symposium: Surface Science for Catalysis (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Satoru Takakusagi
2. 発表標題 Unraveling 3D structure of active metal sites on catalyst surfaces under working conditions by operando PTRF-XAFS technique
3. 学会等名 MIRAI 2.0 Research and Innovation Week 2022 Materials Science TEG 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高草木達
2. 発表標題 偏光XAFSと単結晶モデル表面を用いた触媒活性点のオペランド三次元構造解析
3. 学会等名 触媒学会界面分子変換研究会ワークショップ『固体触媒の活性構造を知る』(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高草木達
2. 発表標題 オペランド偏光全反射蛍光XAFS法による触媒動作中の活性点三次元構造解析
3. 学会等名 第12回 岩澤コンファレンス「サステナブル社会のための触媒化学・表面科学の最前線」(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高草木達
2. 発表標題 圧力ギャップフリー触媒表面科学を目指して：現状と課題
3. 学会等名 触媒科学計測共同研究拠点ミニシンポジウム「超高速データ駆動科学と先端計測技術の融合による触媒科学イノベーション」(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 B. Lu, D. Kido, H. Xu, K. Asakura, S. Takakusagi
2. 発表標題 Elucidating the relationship between 3D structure and CO oxidation activity of Pt clusters on γ -Al ₂ O ₃ (0001) using operando PTRF-XAFS
3. 学会等名 The 22nd International Vacuum Congress (IVC-22) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 C. Liu, H. Ariga-Miwa, S. Ogura, K. Fukutani, M. Gao, J. Hasegawa, K. Shimizu, K. Asakura, S. Takakusagi
2. 発表標題 Dynamic Behaviors of Intermediate Adsorbates Controlling Activity and Product Selectivity in Heterogeneous Catalysis: Methanol Decomposition on Pt/TiO ₂ (110)
3. 学会等名 The 22nd International Vacuum Congress (IVC-22) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 C.R. Kim, B. Lu, Y. Nakamura, Y. Wakisaka, S. Takakusagi, K. Asakura
2. 発表標題 3D structure of atomically dispersed Cu on the TiO ₂ (110) surface premodified with a nitrogen-containing compound
3. 学会等名 The 22nd International Vacuum Congress (IVC-22) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高草木達、魯邦、城戸大貴、徐浩然、田旺帝、朝倉清高
2. 発表標題 オペランド偏光全反射蛍光XAFS法の開発による 触媒反応中金属活性点の三次元構造解析
3. 学会等名 第24回XAFS討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 TAKAKUSAGI Satoru, BANG Lu, XU Haoran, KIDO Daiki, ASAKURA Kiyotaka
2. 発表標題 Operando PTRF-XAFS technique for elucidating relationship between 3D structure of active metal sites and catalytic properties under working conditions
3. 学会等名 The 2021 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 LU Bang, TAKAKUSAGI Satoru, KIDO Daiki, SATO Yuta, XU Haoran, ASAKURA Kiyotaka
2. 発表標題 3D structure determination of active Pt clusters on an -Al ₂ O ₃ (0001) surface during CO oxidation by operando PTRF-XAFS technique
3. 学会等名 18th International Conference on X-ray Absorption Fine Structure (XAFS2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 LU Bang, TAKAKUSAGI Satoru, KIDO Daiki, XU Haoran, ASAKURA Kiyotaka
2. 発表標題 Operando PTRF-XAFS study of 3D structure determination of active Pt species on an Al ₂ O ₃ single-crystal surface during CO oxidation
3. 学会等名 The 2021 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 LU Bang, TAKAKUSAGI Satoru, KIDO Daiki, XU Haoran, ASAKURA Kiyotaka
2. 発表標題 Monitoring 3D structure of active Pt clusters on -Al ₂ O ₃ (0001) during CO oxidation using operando PTRF-XAFS technique
3. 学会等名 第128回触媒討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 金 チョロン、魯 邦、中村 優斗、脇坂 祐輝、高草木 達、朝倉 清高
2. 発表標題 含窒素カルボン酸化合物で前修飾された TiO ₂ (110)表面上の Cu 原子分散の構造解析
3. 学会等名 日本化学会 第102春季年会 (2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高草木達
2. 発表標題 その場/オペランド表面科学計測による触媒反応の原子レベル可視化
3. 学会等名 第452回触媒科学研究所コロキウム (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 TAKAKUSAGI Satoru
2. 発表標題 Atomic-level visualization of surface catalytic reactions by in situ/operando surface science techniques
3. 学会等名 ICAT-FHI Symposium: Approaching to the Catalysis Reality (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高草木達
2. 発表標題 不均一な構造を有する固体触媒の放射光を用いた構造解析：不均一性への挑戦
3. 学会等名 第132回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 TAKAKUSAGI Satoru
2. 発表標題 Dynamic Behavior of Intermediate Adsorbates to Control Activity and Product Selectivity in Heterogeneous Catalysis: Methanol Decomposition on Pt/TiO ₂ (110)
3. 学会等名 MIRAI 2.0 Research and Innovation Week 2023 Materials Science TEG (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 TAKAKUSAGI Satoru
2. 発表標題 Development of synchrotron X-ray and surface science techniques for characterizing plasma catalysis
3. 学会等名 2023 Australia-Japan Symposium on Plasma Catalysis (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 LU Bang、XU Haoran、ASAKURA Kiyotaka、TAKAKUSAGI Satoru
2. 発表標題 Plasma-assisted nitrogen fixation and ammonia synthesis on Co surface at room temperature
3. 学会等名 2023 Australia-Japan Symposium on Plasma Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 LU Bang、KIDO Daiki、XU Haoran、ASAKURA Kiyotaka、TAKAKUSAGI Satoru
2. 発表標題 Operando PTRF-XAFS technique for elucidating relationship between 3D structure of active metal sites under
3. 学会等名 International Symposium on Atomic Level Characterizations in Winter 2024 (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 高草木達
2. 発表標題 放射光と表面科学を用いた触媒活性点の原子レベル構造解析
3. 学会等名 北海道大学触媒科学研究所・立命館大学SRセンター共催シンポジウム「触媒科学と放射光 - Soft ~ Tender X線の新たな展開」(招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 高草木達
2. 発表標題 不均一な構造を有する触媒材料における構造-活性相関の評価：単結晶モデル触媒を用いたアプローチ
3. 学会等名 2023年度量子ビームサイエンスフェスタ(招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 LIU Can、LU Bang、ARIGA-MIWA Hiroko、GAO Min、HASEGAWA Jun-ya、SHIMIZU Ken-ichi、ASAKURA Kiyotaka、TAKAKUSAGI Satoru
2. 発表標題 Diffusion and adsorbate-adsorbate interaction of methoxy intermediates adsorbed on Ti sites of a Pt/TiO ₂ (110) surface
3. 学会等名 International Symposium on Frontier of Nano- & Atomic-Scale Characterization 2023 (国際学会)
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

北海道大学触媒科学研究所触媒構造研究部門 https://www.cat.hokudai.ac.jp/takakusagi/

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

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