

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 13 日現在

機関番号：22604

研究種目：若手研究

研究期間：2022～2023

課題番号：22K14543

研究課題名（和文）金属酸化物クラスターの局所構造制御に基づく固体塩基触媒機能の開拓

研究課題名（英文）Development of solid base catalysis based on local structure control of metal oxide clusters

研究代表者

吉川 聡一（Kikkawa, Soichi）

東京都立大学・理学研究科・助教

研究者番号：80878322

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、金属酸化物クラスターと担体上の金属ナノ粒子との複合化による固体塩基触媒機能の開拓を目的として、それぞれの構成金属種・サイズ・形状を変えることで、金属酸化物クラスターの修飾密度やその局所構造を制御し、金属ナノ粒子表面の水素活性化能や金属酸化物クラスターの塩基触媒活性点の能動的な設計を試みた。得られた複合材料はCO₂の還元的固定化やアミンとアルコールの酸化カップリングによるイミン合成に有効に機能し、酸化還元能や塩基触媒能が協奏的に機能する複合活性点の構築を達成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

担持金属ナノ粒子は工業的に広く用いられており、省金属化の観点から反応に有効な触媒活性サイトの高密度設計が課題である。本研究では、種々の担持金属ナノ粒子の表面に塩基性の金属酸化物クラスターを簡便な吸着法により修飾し、金属ナノ粒子表面への高密度な金属-酸化物界面の設計と高効率な触媒反応特性を達成した。得られた知見は、本手法を種々の担持金属触媒へと適用する際の材料設計指針となるものであり、その材料適用性や触媒反応への有用性から本材料群が今後の触媒化学の発展に貢献できると考えている。

研究成果の概要（英文）：In this study, we attempted to control the modification density and local structure of metal oxide clusters on supported metal nanoparticles by changing the metal species, size, and shape of the metal nanoparticle and metal oxide clusters, and to actively design the hydrogen activation ability of the metal nanoparticle surface and the base catalytic activity point of the metal oxide clusters. The composites of supported metal nanoparticles and metal oxide clusters efficiently acted to drive the reductive fixation of CO₂ and synthesis of imines by oxidative coupling of amines and alcohols. Thus, we successfully developed the cooperative active sites of redox and base catalysis.

研究分野：触媒化学

キーワード：金属酸化物クラスター 担持金属ナノ粒子 塩基触媒

1. 研究開始当初の背景

触媒機能とその表面構造は密接に相関しており、触媒活性点の自在設計は触媒化学分野の根幹を担う課題である。特に、異なる機能を有する複数の触媒活性種を複合化できれば、単独では達成し得ない触媒機能を有する活性点の設計が可能となる。例えば、触媒の水素化を駆動する担持金属触媒においては、還元剤である H_2 や基質の活性化は金属ナノ粒子表面や金属ナノ粒子-担体界面で生じると考えられており、金属ナノ粒子のサイズ、組成、形状、電子状態や担体の選択によって、その還元活性と選択性が制御できる。特に近年、金属ナノ粒子の表面を部分的に酸化物シェルにより修飾したコア-シェル型の複合型触媒が触媒的水素化を効率よく駆動することが報告されている。

このような背景から、我々はこれまでに、担持 Au ナノ粒子触媒の表面を Nb や Ta からなる金属酸化物クラスター (polyoxometalate, POM) で修飾した複合型触媒活性点の設計手法を検討してきた。その中で、簡便な吸着法により Au ナノ粒子表面に選択的に Nb 酸化物クラスター $[Nb_6O_{19}]^{8-}$ を修飾することで、高密度な金属ナノ粒子-酸化物界面における芳香族ニトロ化合物の高効率な還元が進行することを報告してきた。また、本触媒が POM の塩基触媒能による中間体の安定化と Au ナノ粒子表面での還元能の協奏により機能していることを明らかにした (*Chem. Commun.*, 2022, 58, 9018, 図 1)。本研究では、このような担持金属ナノ粒子表面に塩基性金属酸化物を修飾した複合材料について、その適用性の拡大と機能探索を行い、(1) 担持 Pt ナノ粒子触媒への塩基性金属酸化物クラスターの修飾により CO_2 を炭素源とした *N*-ホルミル化反応が外部塩基を添加することなく進行すること、(2) 担持 Ag ナノ粒子触媒への塩基性金属酸化物クラスターの修飾によりアルコールとアミンの酸化的カップリング反応によるイミン生成が高効率で進行すること、を見出したのでこれを報告する。

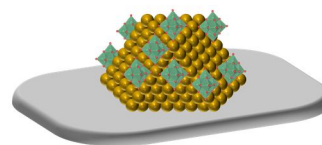


図 1 $[Nb_6O_{19}]^{8-}$ を修飾した担持 Au ナノ粒子触媒。

2. 研究の目的

本研究では、金属酸化物クラスターと担体上の金属ナノ粒子との複合化による固体塩基触媒機能の開拓を目的とする。具体的には、担持金属ナノ粒子表面に金属酸化物クラスターを修飾し、それぞれの構成金属種・サイズ・形状を変えることで、金属酸化物クラスターの修飾密度やその局所構造を制御し、金属ナノ粒子の水素活性化能や金属酸化物クラスターの表面酸素原子の局在電荷を能動的に設計する。このような新奇複合材料の設計指針を明らかにし、酸化還元能や塩基触媒能が協奏的に機能する複合活性点の自在制御に向けた知見を収集する。

3. 研究の方法

担持 Pt および Ag ナノ粒子触媒は含浸法により調製した Al_2O_3 を $Pt[(NH_3)_2(NO_2)_2]$ 水溶液または $AgNO_3$ 水溶液に含浸し、蒸発乾固した試料を 400 °C で焼成・還元することで、担持金属ナノ粒子触媒を得た。さらに、金属量に対して POM が過剰になるように担持金属触媒を POM 水溶液 ($K_8Nb_6O_{19}$ または $K_8Ta_6O_{19}$) に混合し、10 min 攪拌後、洗浄・回収し、333 K で 2 h 真空乾燥させて POM を修飾した担持金属ナノ粒子触媒を得た。

触媒のキャラクタリゼーションは X 線吸収分光 (XAFS)、拡散反射紫外可視吸収分光 (DR-UV-vis)、粉末 X 線回折 (XRD)、走査透過型電子顕微鏡 (STEM)、X 線光電子分光 (XPS) により行った。POM を修飾した担持 Pt ナノ粒子触媒は CO_2 を炭素源とするピペリジンの *N*-ホルミル化により特性評価した (ピペリジン: 0.1 mmol, メタノール: 2 mL, 触媒: 24.7 mg (Pt; 5.0 μ mol 相当), CO_2/H_2 : 1.0/2.0 MPa, 反応温度: 130°C, 反応時間: 72 h または 48 h)。POM を修飾した担持 Ag ナノ粒子触媒はベンジルアルコールとアニリンを基質とした酸化的カップリングにより評価した (触媒: 20 mg, 基質: 各 40 μ mol, トルエン: 5 mL, 反応温度: 388 K, 反応時間: 19 h)。基質及び生成物をガスクロマトグラフで定量し、転化率を算出した。

4. 研究成果

(1) POM を修飾した担持 Pt ナノ粒子触媒による還元的 CO_2 固定化

Al_2O_3 担持 Pt ナノ粒子触媒 (Pt/ Al_2O_3) 及び POM を修飾した Pt/ Al_2O_3 (Nb_6 -Pt/ Al_2O_3 , Ta_6 -Pt/ Al_2O_3) の STEM 像から、POM 吸着前の Pt/ Al_2O_3 では Pt NPs の平均粒径は 1.5 ± 0.60 nm であった。 Nb_6 -Pt/ Al_2O_3 や Ta_6 -Pt/ Al_2O_3 においても、POM の吸着処理による Pt NPs の大きな凝集はなく、POM 修飾前後で Pt NPs は粒子径を維持した。 Nb_6 -Pt/ Al_2O_3 のエネルギー分散型 X 線分析

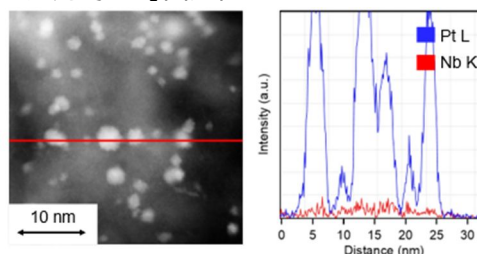


図 2 Nb_6 -Pt/ Al_2O_3 の STEM-EDX。

(EDX) から, Nb 種に由来するシグナルが Pt NPs と同位置に存在しており, $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ が Pt NPs 上に選択的に吸着していることが示唆された(図2). また, Nb6-Pt/ Al_2O_3 の Nb-K 端広域 X 線吸収微細構造(EXAFS)は POM 前駆体である $\text{K}_8\text{Nb}_6\text{O}_{19}$ 水溶液と大きな差異はなく, Pt NPs 表面に配位しても $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ が構造を維持していることを確認した. これらの触媒を用いて, CO_2 を炭素源とするピペリジンの N-ホルミル化を行った. POM 修飾を行うことで, 生成物である 1-ホルミルピペリジンの収率が向上した. 前駆体濃度を変えることで, 最大で 43% の収率を示した(図3). 比較として Pt/ Al_2O_3 に Cs_2CO_3 を加えると活性の向上が見られたことから, Pt/ Al_2O_3 ではピペリジンの N-ホルミル化反応において塩基が重要な役割を果たしていることが示された. ICP から算出した Nb 修飾量, CO パルス吸着から求めた Pt 表面積からは, $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ の仕込み濃度を変えることで POM 修飾量を能動的に制御できることがわかる. POM 修飾量の増大に伴い, 1-ホルミルピペリジン収率が向上した. また, POM 修飾量の増大により Pt NPs の露出 Pt 種量は低下する一方, 1-ホルミルピペリジンの収率が増加した. ICP 測定からは反応後に Nb 種の含有量の変化はなく, $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ 種は溶出しないと考えられる. 以上から, N-ホルミル化反応の活性点である Pt NPs 表面やその近傍に塩基性 $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ 種を配置した触媒設計が反応活性向上に大きく寄与し, Cs_2CO_3 などの助触媒添加物の代替となる固体塩基・還元二元機能触媒を開発できたと考えている.

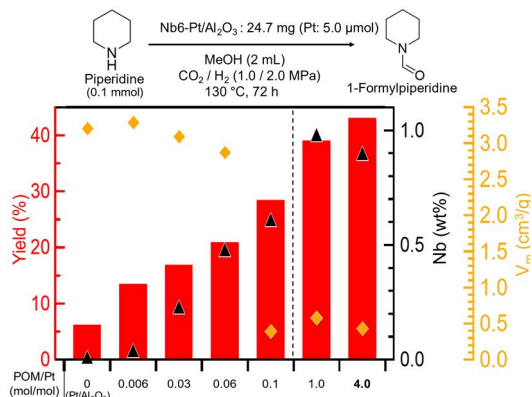


図3 CO_2 を炭素源とするピペリジンの N-ホルミル化反応における生成物収率と Nb 修飾量や Pt 表面積との相関

(2) POM を修飾した担持 Ag ナノ粒子触媒による高選択的な酸化的カップリング反応によるイミン生成

Al_2O_3 担持 Ag ナノ粒子 ($\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$) の STEM 測定から, 平均粒径 3.0 nm で高分散に Ag ナノ粒子が担持されており, $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ を修飾した $\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ ($\text{Nb}_6\text{-Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$) の EDX から Ag ナノ粒子上に $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ が選択的に修飾されたことを明らかにした. Nb6-Ag/ Al_2O_3 の Nb-K 端 EXAFS から前駆体である $\text{K}_8\text{Nb}_6\text{O}_{19}$ 水溶液と変化なく, $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ は元の構造を保って修飾されたと考えられる(図4).

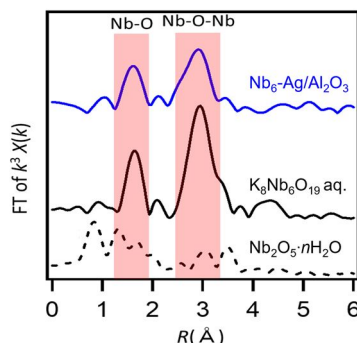


図4 Nb6-Ag/ Al_2O_3 の Nb-K 端 FT-EXAFS.

図5には, ベンジルアルコールとアニリンの酸化的カップリング反応の収率を示す. 既報で報告されるように $\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ に塩基として Cs_2CO_3 を加えると, N-アルキル化生成物である benzylideneaniline とイミノ基が水素化された N-phenylbenzylamine が生成し, 目的物であるイミンの収率は約 40%であった. 一方で, POM を修飾した Nb6-Ag/ Al_2O_3 では目的物である benzylideneaniline が高選択率で得られた. Al_2O_3 に $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ を吸着させた触媒では活性が低く, N-アルキル化反応に Ag ナノ粒子が必要であることが分かる. また, 塩基なしの $\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ のみでは, dibenzylether が多く得られたことから, 本反応には Ag ナノ粒子と塩基の共存が重要であると考えられる. 塩基性の POM により Ag ナノ粒子表面でのアルコールの酸化が促進され, また, 担体である Al_2O_3 のルイス酸点によりアルデヒドとアミンのカップリング反応が促進されたと考えており, POM, Ag ナノ粒子, Al_2O_3 担体の多元機能を単一の触媒材料に集約できた. また, Ag ナノ粒子表面に高密度に修飾された POM により, アルコール由来の解離水素種によるイミンの水素化が抑制されたと考えている. このように, Ag ナノ粒子への塩基性の $[\text{Nb}_6\text{O}_{19}]^{8-}$ の修飾により, 外部塩基を加えることなく, 選択的にクロスカップリング反応を進行させ, 目的物のイミンが得られる不均一触媒系を構築した.

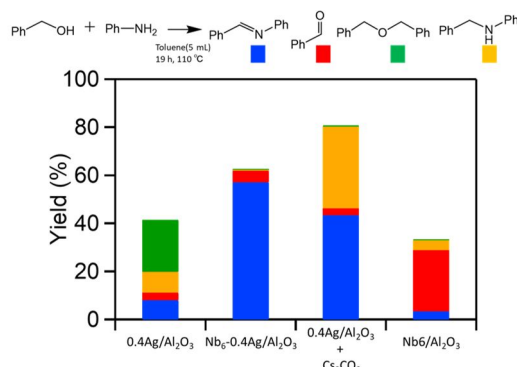


図5 アルコールとアニリンの酸化的カップリング反応における生成物収率.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7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 Chudatemiya Vorakit, Kikkawa Soichi, Hirayama Jun, Takahata Ryo, Teranishi Toshiharu, Tamura Masazumi, Yamazoe Seiji	4. 巻 12
2. 論文標題 Bifunctional Platinum Incorporated Polyoxoniobate Derived Catalyst for N formylation of Piperidine Using CO ₂	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Asian Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 e202200521
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ajoc.202200521	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 Kikkawa Soichi, Fukuda Shoji, Hirayama Jun, Shirai Naoki, Takahata Ryo, Suzuki Kosuke, Yamaguchi Kazuya, Teranishi Toshiharu, Yamazoe Seiji	4. 巻 58
2. 論文標題 Dual Functional Catalysis of [Nb6019]8--Au/Al2O3	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 9018 ~ 9021
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2CC02472A	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 Chudatemiya Vorakit, Tsukada Mio, Nagakari Hiroki, Kikkawa Soichi, Hirayama Jun, Nakatani Naoki, Yamamoto Takafumi, Yamazoe Seiji	4. 巻 13
2. 論文標題 Selective CO ₂ Fixation to Styrene Oxide by Ta-Substitution of Lindqvist-Type [(Ta,Nb)6019]8-Clusters	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Catalysts	6. 最初と最後の頁 442 ~ 442
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/catal13020442	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 Fujiki Yu, Matsuyama Tomoki, Kikkawa Soichi, Hirayama Jun, Takaya Hikaru, Nakatani Naoki, Yasuda Nobuhiro, Nitta Kiyofumi, Negishi Yuichi, Yamazoe Seiji	4. 巻 6
2. 論文標題 Counteranion-Induced Structural Isomerization of Phosphine-Protected PdAu ₈ and PtAu ₈ Clusters	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Communications Chemistry	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) 10.1038/s42004-023-00929-y	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 Matsuyama Tomoki, Kikkawa Soichi, Kawamura Naomi, Higashi Kotaro, Yamazoe Seiji	4. 巻 215
2. 論文標題 Redox-Induced Structural Changes in Keggin-Type Tungstophosphate Investigated by High-Energy-Resolution Fluorescence Detection X-Ray Absorption Spectroscopy	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Radiation Physics and Chemistry	6. 最初と最後の頁 111351 ~ 111351
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.radphyschem.2023.111351	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 Matsuyama Tomoki, Kikkawa Soichi, Kawamura Naomi, Higashi Kotaro, Nakatani Naoki, Kato Kazuo, Yamazoe Seiji	4. 巻 128
2. 論文標題 CO2 Activation on Lindqvist-Type Polyoxotantalate: Structural Analysis by In Situ HERFD-XANES	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 2953 ~ 2958
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.3c07793	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 Kikkawa Soichi, Fujiki Yu, Chudatemiya Vorakit, Nagakari Hiroki, Shibusawa Kazuki, Hirayama Jun, Nakatani Naoki, Yamazoe Seiji	4. 巻 136
2. 論文標題 Water Tolerant Superbase Polyoxometalate [H2(Nb6O19)]6- for Homogeneous Catalysis	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie	6. 最初と最後の頁 e202401526
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ange.202401526	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73件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 22件)

1. 発表者名 吉川聡一, 塚田実緒, 永飯広樹, 平山純, 東晃太郎, 加藤和男, 宇留賀朋哉, 中谷直輝, 山本隆文, 山添誠司
2. 発表標題 塩基性複合金属酸化物クラスターによる CO2固定化反応
3. 学会等名 ナノ学会第20回大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 永坂広樹, 塚田実緒, 吉川聡一, 中谷直輝, 山添誠司
2. 発表標題 サイズ制御したNb酸化物クラスターの塩基触媒特性評価
3. 学会等名 ナノ学会第20回大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Soichi Kikkawa, Mio Tsukada, Kanako Shibata, Yu Fujiki, Kazuki Shibusawa, Jun Hirayama, Naoki Nakatani, Takafumi Yamamoto, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Structure-Activity Relationship on Base Catalysis of Sodium Salts of Ta-Nb Mixed Metal Oxide Clusters
3. 学会等名 XAFS2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Soichi Kikkawa, Mio Tsukada, Vorakit Chudatemiya, Jun Hirayama, Kotaro Higashi, Kazuo Kato, Tomoya Uruga, Naoki Nakatani, Takafumi Yamamoto, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 CO ₂ Fixation Reaction over Ta- and Nb-Based Solid-Solution Metal Oxide Clusters
3. 学会等名 TOCAT9 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Vorakit Chudatemiya, Soichi Kikkawa, Jun Hirayama, Ryo Takahata, Toshiharu Teranishi, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Bifunctional Catalytic N-Formylation of Amine of Metal-Oxide-Cluster-Derived Catalyst using CO ₂
3. 学会等名 TOCAT9 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shoji Fukuda, Soichi Kikkawa, Ryo Takahata, Kosuke Suzuki, Kazuya Yamaguchi, Toshiharu Teranishi, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Bifunctional Catalysis of Supported Gold Nanoparticles Modified with Metal Oxide Clusters
3. 学会等名 TOCAT9 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hiroki Nagakari, Soichi Kikkawa, Naoki Nakatani, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Effect of Cluster Size on Their Base Catalysis of Niobium Oxide Clusters
3. 学会等名 TOCAT9 Post Symposium (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shoji Fukuda, Soichi Kikkawa, Ryo Takahata, Kosuke Suzuki, Kazuya Yamaguchi, Toshiharu Teranishi, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Composites of Supported Metal Nanoparticles Modified with Polyoxometalates for Reduction and Base Dual Functional Catalysis
3. 学会等名 12th International Conference on Environmental Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yutaro Matsunaga, Shoji Fukuda, Soichi Kikkawa, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Tuning of Hydrogenation Ability of Supported Pt Catalysts by Metal Oxide Cluster Modification
3. 学会等名 2th International Conference on Environmental Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Vorakit Chudatemiya, Soichi Kikkawa, Jun Hirayama, Ryo Takahata, Toshiharu Teranishi, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Bifunctional Catalytic N-Formylation of Amine of Metal-Oxide-Cluster-Derived Catalyst Using CO ₂
3. 学会等名 ACS Fall 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 吉川聡一, 藤木裕宇, Chudatemiya Vorakit, 永仮広樹, 平山純, 中谷直輝, 山添誠司
2. 発表標題 ニオブ酸化物クラスターの耐水性塩基触媒作用
3. 学会等名 第130回触媒討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 福田正次, 吉川聡一, 高畑遼, 鈴木康介, 山口和也, 寺西利治, 山添誠司
2. 発表標題 塩基性金属酸化物クラスターで修飾した担持金属触媒の合成と水素化触媒応用
3. 学会等名 第130回触媒討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 永仮広樹, 吉川聡一, 中谷直輝, 山添誠司
2. 発表標題 サイズの異なるニオブ酸化物クラスターの塩基触媒作用
3. 学会等名 第130回触媒討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松永優太郎, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 金属酸化物クラスター修飾による担持白金触媒の水素化能の制御
3. 学会等名 第130回触媒討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 永坂広樹, 吉川聡一, 中谷直輝, 山添誠司
2. 発表標題 サイズの異なるニオブ酸化物クラスターにおける塩基触媒特性
3. 学会等名 第16回分子科学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山添誠司, 藤木裕宇, V.Chudatemiya, 永坂広樹, 松山知樹, 中谷直輝, 吉川聡一
2. 発表標題 ニオブ酸化物クラスターの特異な耐水性塩基触媒作用
3. 学会等名 第16回分子科学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 吉川聡一, 藤木裕宇, Chudatemiya Vorakit, 永坂広樹, 平山純, 中谷直輝, 山添誠司
2. 発表標題 V族金属酸化物クラスターの耐水性塩基触媒作用
3. 学会等名 第131回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Chudatemiya Vorakit , Tsukada Mio , Kikkawa Soichi , Yamazoe Seiji
2. 発表標題 Tuning Product Selectivity for Base Catalytic Reactions over Ta-Nb Mixed Oxide Clusters
3. 学会等名 第131回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 福田正次, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 担持Agナノ粒子と金属酸化物クラスターの複合体の合成とその触媒応用
3. 学会等名 第131回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 永坂広樹, 吉川聡一, 中谷直輝, 山添誠司
2. 発表標題 ニオブ酸化物クラスターの塩基触媒活性に対するクラスターサイズの影響
3. 学会等名 第131回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松永優太郎, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 塩基性金属酸化物クラスターの修飾による担持白金触媒の反応性制御
3. 学会等名 第131回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 石川遥斗, 吉川聡一, 松岡亮太, 草本哲郎, 山添誠司
2. 発表標題 ニオブ酸化物クラスターの対カチオン交換による触媒反応場制御
3. 学会等名 第131回触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高橋浩耀, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 金属酸化物クラスターと層状複水酸化物の複合化とその触媒応用
3. 学会等名 日本化学会第103春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松山知樹, 吉川聡一, 東晃太郎, 宇留賀朋哉, 山添誠司
2. 発表標題 ホスフィン保護異種金属クラスターのPt上での分子吸着挙動
3. 学会等名 ナノ学会第21回大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Vorakit Chudatemiya, Mio Tsukada, Hiroki Nagkari, Soichi Kikkawa, Jun Hirayama, Naoki Nakatani, Takafumi Yamamoto, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Improvement of selectivity in CO ₂ fixation reaction to styrene oxide by Ta-substitution for [Nb6O19]8- catalysts
3. 学会等名 ナノ学会第21回大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高橋浩耀, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 層状複水酸化物のメモリーエフェクトを利用した 金属酸化物クラスターとの複合化とその触媒応用
3. 学会等名 ナノ学会第21回大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 幸林竜也, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 電解作製した非平衡Cu-In金属間化合物による選択的CO ₂ 電解還元
3. 学会等名 第12回JACI/GSCシンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 八木原陸矢, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 ジアミンを利用した二酸化炭素の常圧運搬システムの開発
3. 学会等名 第12回JACI/GSCシンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 eiji Yamazoe, Yu Fujiki, Hiroki Nagakari, Vorakit Chudatemiya, Soichi Kikkawa, Tomoki Matsuyama, Naoki Nakatani
2. 発表標題 Base catalysis of Lindqvist-type [M ₆ O ₁₉] ⁸⁻ ; (M = Nb, Ta) clusters
3. 学会等名 EUROPACAT2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Tomoki Matsuyama, Hiroki Nagakari, Soichi Kikkawa, Naomi Kawamura, Kotaro Higashi, Naoki Nakatani, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 HERFD-XAS study on molecular adsorption states of strong base metal oxide cluster catalysts
3. 学会等名 EUROPACAT2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yutaro Matsunaga, Soichi Kikkawa, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Modification of supported Pt nanoparticles with basic metal oxide clusters for N-formylation reaction using CO ₂ as a carbon source
3. 学会等名 EUROPACAT2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Soichi Kikkawa, Chitomo Nagata, Kiyofumi Nitta, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Superior hydrogenation activity of delafossite-type CuAlO ₂ catalyst
3. 学会等名 EUROPACAT2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Vorakit Chudatemiya, Mio Tsukada, Hiroki Nagakari, Soichi Kikkawa, Naoki Nakatani, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Highly selective CO ₂ fixation reaction over single-Ta-substituted Lindqvist-type hexaniobate cluster as base catalyst
3. 学会等名 EUROPACAT2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shoji Fukuda, Soichi Kikkawa, Ryo Takahata, Kosuke Suzuki, Kazuya Yamaguchi, Toshiharu Teranishi, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Synthesis and catalytic application of bifunctional composite catalysts between supported metal nanoparticles and polyoxometalates
3. 学会等名 EUROPACAT2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yuto Oba, Taiki Uno, Soichi Kikkawa, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Development of new catalytic system driven by vibration energy
3. 学会等名 EUROPACAT2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hiroki Nagakari, Soichi Kikkawa, Naoki Nakatani, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Size dependence of niobium oxide clusters for base catalysis
3. 学会等名 EUROPACAT2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 吉川 聡一, 幸林 竜也, 山添 誠司
2. 発表標題 CO ₂ の電解還元にも有効な Cu-In金属間化合物の動的形成過程
3. 学会等名 第26回 XAFS討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松山知樹, 鈴木太士, 吉川聡一, 東見太郎, 宇留賀朋哉, 大山順也, 新田清文, 中谷直輝, 山添誠司
2. 発表標題 構造制御したホスフィン保護金属クラスターの分子吸着挙動のin situ XAS計測
3. 学会等名 第26回 XAFS討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 吉川聡一, 長田千朋, 高橋渉真, 新田清文, 山添誠司
2. 発表標題 テラフォサイト型 Cu(I)複合金属酸化物による水素化反応
3. 学会等名 第132回 触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 福田正次, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 金属酸化物クラスターを修飾した担持Agナノ粒子触媒による高選択的な N-アルキル化反応
3. 学会等名 第132回 触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 大庭佑斗, 宇野太喜, 吉川聡一, 廣瀬靖, 天野史章, 山添誠司
2. 発表標題 PZT圧電厚膜を用いた振動触媒反応による水からの水素生成
3. 学会等名 第132回 触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 永仮広樹, 吉川聡一, 東晃太郎, 宇留賀朋哉, 椿俊太郎, 中谷直輝, 山添誠司
2. 発表標題 時間分解能XAFSによる ニオブ酸化物クラスターの マイクロ波水熱合成過程の観察
3. 学会等名 第132回 触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松永優太郎, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 塩基性金属酸化物クラスターの修飾による 担持白金触媒の反応性制御
3. 学会等名 第132回 触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 幸林竜也, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 電解作製した金属間化合物電極による選択的CO ₂ 電解還元
3. 学会等名 第132回 触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高橋浩耀, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 金属酸化物クラスターと層状複水酸化物の複合化と不均一系触媒反応への応用
3. 学会等名 第132回 触媒討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Vorakit Chudateniya, Mio Tsukada, Hiroki Nagakari, Soichi Kikkawa, Jun Hirayama, Naoki Nakatani, Takafumi Yamamoto, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Improvement of product selectivity in CO ₂ fixation to styrene oxide by Ta-substitution for Nb in [Nb ₆ O ₁₉] ⁸⁻ catalysts
3. 学会等名 第17回分子科学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松山知樹, 鈴木太士, 吉川聡一, 東晃太郎, 宇留賀朋哉, 大山順也, 新田清文, 中谷直輝, 山添誠司
2. 発表標題 構造異性化したホスフィン保護異種金属クラスターの分子吸脱着挙動の解明
3. 学会等名 第17回分子科学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 永仮 広樹, 吉川 聡一, 東 晃太郎, 宇留賀 朋哉, 椿 俊太郎, 中谷 直輝, 山添 誠司
2. 発表標題 時間分解クイック XAFS によるニオブ酸化物クラスターの マイクロ波水熱合成過程の観察
3. 学会等名 XAFS夏の学校2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Furong Cao, Soichi Kikkawa, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Highly-efficient CO ₂ absorption by using aqueous diamine sorbent for direct air capture
3. 学会等名 第53回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 八木原陸矢, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 ジアミンを用いた常圧下での二酸化炭素の吸脱着特性の解明
3. 学会等名 第53回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 永坂広樹, 吉川聡一, 中谷直輝, 山添誠司
2. 発表標題 5族金属酸化物クラスター塩基触媒の特異な耐水性
3. 学会等名 第53回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Vorakit Chudatemiya, Mio Tsukada, Hiroki Nagakari, Soichi Kikkawa, Naoki Nakatani, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Single-Ta-substituted Lindqvist-type hexaniobate cluster as base catalyst for highly selective CO ₂ fixation reaction
3. 学会等名 International Symposium on Catalysis and Fine Chemicals 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shoji Fukuda, Soichi Kikkawa, Ryo Takahata, Kosuke Suzuki, Kazuya Yamaguchi, Tatsuya Teranishi, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Bi-functional catalysis of [Nb ₆ O ₁₉] ⁸⁻ -modified Au/Al ₂ O ₃
3. 学会等名 International Symposium on Catalysis and Fine Chemicals 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hiroki Nagakari, Soichi Kikkawa, Naoki Nakatani, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Size dependence of base catalytic properties in niobium oxide clusters
3. 学会等名 International Symposium on Catalysis and Fine Chemicals 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yutaro Matsunaga, Soichi Kikkawa, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Interfacial design of supported Pt nanoparticles by basic metal oxide clusters for N-formylation reaction
3. 学会等名 International Symposium on Catalysis and Fine Chemicals 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Soichi Kikkawa
2. 発表標題 Elucidation of catalytic active species by using in situ solution XAFS
3. 学会等名 Asian Polyolefin Workshop 2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Soichi Kikkawa
2. 発表標題 Water-Tolerant Superbase Catalysis of Lindqvist-Type [Nb ₆ O ₁₉] ⁸⁻ Cluster
3. 学会等名 Gordon Research Conference (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 吉川聡一
2. 発表標題 実習 合金・金属ナノ粒子の局所構造解析
3. 学会等名 産業利用に役立つXAFSによる先端材料の局所状態解析2024 (招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 吉川聡一, 幸林竜也, 渡辺剛, 本間徹生, 山添誠司
2. 発表標題 金属間化合物の熱非平衡合成とCO ₂ 電解還元特性
3. 学会等名 電気化学第91回大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Furong Cao, Soichi Kikkawa, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 An efficient system for direct air capture utilizes diamine as sorbent
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Shoji Fukuda, Soichi Kikkawa, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Highly selective synthesis of imines through oxidative coupling of alcohols and anilines using POM-supported Ag NPs composite catalysts
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 幸林竜也, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 電解合成した熱非平衡金属間化合物によるCO ₂ 電解還元
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 高橋浩耀, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 層状複水酸化物-金属酸化物クラスター複合体の合成とその触媒応用
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 八木原陸矢, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 ジアミンのCO ₂ 吸脱着特性評価
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 鈴木 太士, 松山 知樹, 吉川 聡一, 中谷 直輝, 山添 誠司
2. 発表標題 クラスター複合塩の精密合成とその評価
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 高橋渉真, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 Cu(I)複合金属酸化物を用いた二酸化炭素還元触媒の開発
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 大庭佑斗, 宇野太喜, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 低周波振動による触媒反応とそのメカニズムの考察
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Xuanbing Li, Soichi Kikkawa, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 固液相変化を用いた低濃度二酸化炭素の高効率回収放出システム
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 廖瀚声, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 アミノ基を有するシリカを用いた低濃度CO ₂ の回収
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Nattamon Panichakul, Tomoki Matsuyama, Soichi Kikkawa, Koichi Kikuchi, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Synthesis, separation, and purification of V group metal oxide clusters
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Hongpuek Supisara, Hiroki Nagakari, Soichi Kikkawa, Seiji Yamazoe
2. 発表標題 Size effect of V group metal oxide clusters on base catalytic proper
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 岡俊明, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 複合金属酸化物の電解還元によるナノ粒子合成
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 藤掛隆一, 吉川聡一, 山添誠司
2. 発表標題 振動エネルギーを利用した新規振動触媒反応系の開拓
3. 学会等名 日本化学会 第104春季年会
4. 発表年 2024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
--	---------------------------	-----------------------	----

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