

令和 3 年 6 月 7 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01940

研究課題名(和文)オペランド時空間イメージングXAFSによる固体触媒の可視化と構造反応

研究課題名(英文) Visualization of Structure/Reactivity of Heterogeneous Catalysts by Operando Spatio/Temporal Imaging XAFS

研究代表者

唯 美津木 (Tada, Mizuki)

名古屋大学・物質科学国際研究センター・教授

研究者番号：70396810

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：触媒などの固体材料内の元素の空間分布や化学状態(酸化状態・局所構造)の分布や不均一性を可視化するために、硬X線の高い透過力を利用したX線イメージング計測法と元素の化学状態に関する情報を与えるXAFS分光法を組み合わせたXAFS分光イメージング計測法とその解析方法を構築した。セリア-ジルコニア複合酸化物や、クロムをドーブした酸化鉄結晶の酸化還元過程におけるXAFSイメージング計測によって、固体粒子や結晶粒子内の反応分布を初めて可視化し、反応軌跡や反応拡散を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固体の機能性材料は、触媒をはじめとした様々な分野で用いられており、不均質な固体機能性材料中の元素の状態や分布、酸化状態の違い、局所構造の分布などはこれまで明らかにすることができなかった。本研究成果によって、不均質な固体材料中の個々の元素の化学状態の違いを可視化できるようになり、触媒特性や吸着特性などと関連する元素の反応分布や拡散を直接理解することができるようになった。

研究成果の概要(英文)：We have developed XAFS-spectroscopy-imaging techniques combining hard X-ray imaging techniques and X-ray Absorption Fine Structure (spectroscopy) for the visualization of spatial element information inside solid materials. XAFS imaging provides spatial distribution of each element, oxidation state, local coordination structure inside solid particles and crystals and we visualized the reaction diffusions inside mixed oxides and solid catalysts by the XAFS imaging techniques. We succeeded in visualizing the oxidation reaction track inside ceria-zirconia solid-solution materials and redox reaction behaviors of Cr-doped iron oxide crystals for the first time.

研究分野：無機化学, 触媒科学, 物理化学

キーワード：イメージング XAFS CT オペランド計測 固体触媒

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

活性、選択性、安定性などに代表される固体触媒の優れた反応特性は、触媒材料を構成する各要素の構造パラメータ（元素組成とその空間分布、モルフォロジー、電子状態、局所配位構造、表面構造等）に顕著に依存する。典型的な固体触媒は、反応基質との接触性を高めるため、触媒活性をもつ元素種を高比表面積の酸化物やカーボン、多孔性材料などの担体粒子表面に高分散担持した担持触媒系であり、触媒活性点となる元素種の局所配位構造から個々の粒子におけるモルフォロジー、触媒活性種の空間分布に至るまで、様々な階層における構造不均一性を有する。粒子の集合体全体の平均粒子径、化学組成、電子状態、局所配位構造などは、それ自身が触媒特性に直結するパラメータとして多くの解析がなされているが、実際の触媒粒子や電池デバイスなどの固体材料内部におけるこれらの構造パラメータの空間的な分布・不均質性、時間発展は依然として明らかになっていない。

X線回折が適用できない非結晶系の担持触媒の局所構造解析には、硬X線を用いたXAFS法が要となっており、mmオーダーのX線ビーム径内の試料の平均に相当する局所構造情報が得られる。近年、世界的にもXAFS分光を用いた機能性材料中の元素種における化学状態の空間分布可視化が求められているが、一部のモデル材料における酸化状態の空間分布を得るのが限界であり、実固体触媒材料における化学状態・局所構造の空間不均質性や時間発展の可視化はほとんど実現できていなかった。

これらの研究背景を踏まえ、硬X線の高い透過力を利用し、コンピュータトモグラフィー(CT)を用いた三次元X線イメージングや各種X線イメージング計測と、元素種の化学情報を与えるX線吸収微細構造(XAFS)法を組み合わせたXAFS分光イメージング法を駆使することによって、非破壊かつオペランド(その場)条件における実固体触媒材料中の元素・触媒活性種・化学状態・局所配位構造の三次元空間分布・時間発展の可視化が実現できると考えた。酸化状態や対称性に関する情報が得られるXANES領域の三次元イメージング計測は、本研究開始前の2-3年の間に世界の先端の数研究グループからの報告があるものの、世界でもほとんど取り組んでおらず、更にEXAFS領域の解析から得られる局所配位構造情報を三次元可視化に発展させた研究は、世界でもまだ皆無であったことから、オペランドイメージングXAFS(XANESとEXAFS)の発展と固体触媒への展開を本研究で提案するに至った。

2. 研究の目的

実固体触媒材料における化学状態・局所構造の空間不均質性や時間発展の可視化を実現するために、結像型X線顕微イメージングやコンピュータトモグラフィー(CT)を用いた三次元X線イメージング計測と、元素種の化学情報を与えるX線吸収微細構造(XAFS)法を組み合わせたXAFS分光イメージング法とその解析法を立ち上げる。これらを駆使して、固体触媒材料中の元素の分布、化学状態、局所構造の違いを明らかにできるオペランド時間・空間XAFS分光イメージング計測の固体触媒材料への展開を行うことを目的とする。また、膨大なXAFSデータのフィッティング解析方法や、XAFSから得られる局所配位構造パラメータの再構成方法を検討し、固体触媒材料中における組成、各元素種の空間分布、モルフォロジー、電子状態、酸化状態、局所構造などの重要な構造パラメータの二次元、三次元空間分布の可視化を通じて、固体触媒に内在する構造不均質性とその構造速度論を明らかにし、それらの相関を解析して、材料特性や反応性と関連する構造因子や固体材料の反応特性を見いだすことを目指す。

3. 研究の方法

上述の目的の達成のために、① 結像X線イメージングやコンピュータトモグラフィ(CT)に

よる X 線イメージング計測方法と、元素種の化学情報を与える X 線吸収微細構造 (XAFS) 分光法を組み合わせた空間イメージング XAFS 法を立ち上げる、② 各種イメージング XAFS 計測から得られる膨大な実測データのフィッティング解析や、再構成演算の方法を開拓する、③ 固体触媒材料に①および②を展開し、固体触媒材料の反応過程における構造変化、相変化などを可視化し、データマイニングにより可視化パラメータ間の相関性を解析することを検討した。

初年度は、50 nm 空間分解能を有する高回折効率ゾーンプレートを用いた結像型顕微 XAFS 計測とデータ解析法の構築を行い、樹状型酸化鉄結晶および Cr ドープ酸化鉄結晶の相変化過程を二次元的に可視化することを検討した。また、排ガス浄化触媒材料の Ce-Zr 酸化物固溶体の CT-タイコグラフィー-XAFS イメージング (大阪大学高橋研究室と共同研究を実施) によって可視化された Ce 量や価数の空間分布、分散、表面からの距離などのパラメータを定量的に扱う方法を検討し、これらの膨大な実測データのデータマイニングにより、パラメータ間の相関性を解析することを検討した。二年目は、オペランド結像型イメージング XAFS による Cr 含有酸化鉄の相変化過程の解明とオペランド XAFS による Fe 結晶相中の Cr 種の置換や酸化還元への可逆性の解明を進めた。また、局所配位構造を与える EXAFS 領域のイメージングデータ解析方法を検討し、CT-XAFS データのカーブフィッティング解析から導かれた配位数などの局所構造パラメータの再構成方法を検討した。最終年度は、可視化計測で得られた Cr 含有酸化鉄樹状結晶の相変化過程のイメージング XAFS データのデータマイニング、相変化に対する Cr の役割の解明を継続した。また、イメージング XAFS、オペランド XAFS およびそのデータ解析法を、様々な固体材料系に展開し、Cr および Rh を含有した Ce 系複合酸化物の酸化還元における各元素の酸化還元応答や、MOF 結晶の分子吸着過程における配位構造変化の空間情報の可視化に展開し、固体材料の反応過程における局所構造の可視化を行った。

4. 研究成果

4-1. Cr ドープ酸化鉄樹状結晶の構造、酸化還元特性、結晶相変化の解明

酸化鉄は様々な化学組成や多形を有する化合物であり、触媒やスピントロニクス、電子デバイスなどの分野で多用される酸化物材料である。中でも、スピネル相の Fe_3O_4 と $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 間でのトポタクティックな酸化還元反応は、有機、無機ガスの触媒反応に用いられている。しかしながら、高温下に晒されると、高活性なスピネル相は容易に熱分解され、より安定なコランダム型の $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ が生成し、反応活性が失われることが知られている。したがって、酸化鉄を用いた効率的な触媒作用を実現するには、スピネル相の酸化還元特性を保ったまま、生成しやすいコランダム相の析出を抑制することが必要である。酸化鉄相に少量の遷移金属種を入れこむことで、酸化鉄の反応性が変わることから、本研究では、XAFS イメージング計測に適した大きさの結晶成長が可能な酸化鉄樹状結晶を用い、樹状結晶中に Cr を添加した酸化鉄樹状結晶を合成し、これらの結晶における酸化還元特性と相変化を解明することを検討した。In situ Fe K 端 XAFS, Cr K 端 XAFS, XAFS イメージング計測や各種構造解析により、酸化鉄結晶内の Cr の局所配位構造、酸化鉄結晶相の構造パラメータの変化、反応温度と生成する酸化鉄結晶相の関係、相変化過程における酸化鉄結晶相の空間分布や変化を明らかにした。

試料とした酸化鉄樹状結晶は、既報の論文 (M. Cao, et al., *Angew. Chem. Int. Ed.* 44, 4108-4201 (2005)) を基に、 $\text{K}_3[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ と $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ を原料とし、テフロン封止オートクレーブ内にて 413 K、48 時間水熱合成して調製した。Cr の添加量を変えて、Cr の含有率を系統的に変化させた試料を合成した。得られた試料は、粉末 X 線回折の測定を行い、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ のみが観察され、他の結晶相は見られなかった。リートベルト解析の結果、Cr の添加によって酸化鉄結晶の c 軸の格子ひずみが観察され、Cr の添加量に比例して、c 軸の圧縮が増加することが観察された。STEM-EDS で

は、Cr が酸化鉄樹状結晶の全域に均一に分布する様子が観察され、以上からドーピングされた Cr は酸化鉄格子内に取り込まれ、酸化鉄結晶の格子ひずみが生じることが示唆された。

調製した酸化鉄樹状結晶 (Cr あり、Cr なし) は、水素雰囲気下、423 K まで昇温し、単相の Fe_3O_4 に変換した。還元した Fe_3O_4 を原料とし、酸素雰囲気下での昇温酸化反応によって $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ まで変換し、ついで水素雰囲気下での昇温還元反応を検討した。各酸化還元過程における酸素及び水素の消費量を算出したところ、Cr を添加していない酸化鉄樹状結晶では、1 サイクル目の昇温酸化反応と 4 サイクル後の酸素消費量に差異が見られ、4 サイクル後は 10% の酸素消費量の低下がみられた。また、4 サイクル後の昇温還元反応後には、昇温還元のプロフィールに新たなピークが観察され、酸化還元の繰り返しによって $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の生成が起こっていることが示唆された。これに対し、Cr を 10% ドーピングした酸化鉄樹状結晶を用いた場合は、4 サイクルの酸化還元過程の繰り返し後も、可逆的な酸化還元特性が確認され、Cr の添加によって、酸化鉄相の可逆的な酸化還元特性が保たれることが分かった。

これらの Cr の添加の有無による酸化鉄樹状結晶の構造変化、反応過程の違い、酸化鉄結晶中の Cr の置換について考察するために、酸化鉄樹状結晶 (Cr あり、Cr なし) について、in situ Fe K 端 XANES、Cr K 端 XANES、XAFS イメージングの検討を行った。酸素雰囲気下の昇温過程における in situ Fe K 端 XANES 測定

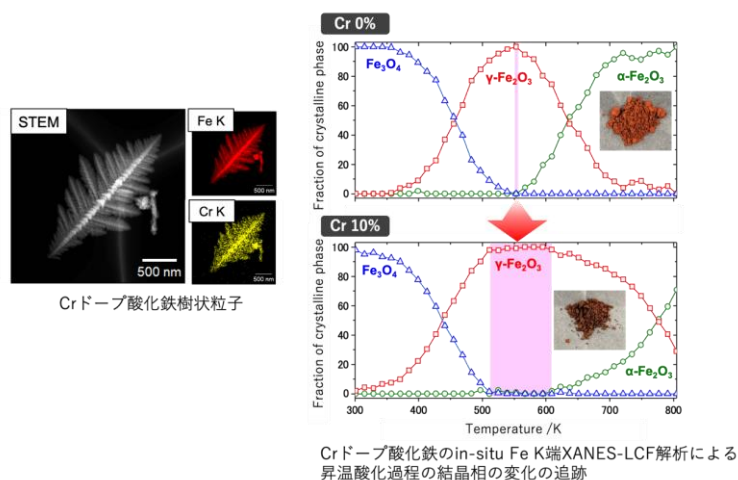


図 1 調製した Cr ドーピング酸化鉄樹状結晶の STEM-EDX 像と、in situ Fe K 端 XANES の解析から導かれた酸化鉄各相の生成率。

を行い、酸化過程における各温度での Fe K 端 XANES スペクトルを、 Fe_3O_4 、 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の三成分よりなる線形結合フィッティング(LCF)により解析した。線形結合の各成分の係数を試料中における酸化鉄各相の割合として、昇温過程の温度に対してプロットすることで、各温度における酸化鉄結晶相の生成率を算出した。Cr をドーピングしていない酸化鉄樹状結晶の場合、初期構造の Fe_3O_4 を昇温酸化すると、550 K 付近で $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 相の生成が確認され、その後すぐに 700 K まで $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ への熱分解が進行することが分かった。 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ が安定に存在できる温度のウィンドウ幅は狭く、 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ と $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の生成が競合して進行してしまい、酸化還元サイクルの繰り返しと共に、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の残存につながるということが分かった。これに対し、Cr を 10% ドーピングさせた酸化鉄樹状結晶の場合は、 Fe_3O_4 から $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ への酸化は 50 K 程度低温側にシフトし、Cr の添加によって Fe_3O_4 の酸化による $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の生成が促進されることが示唆された。更に、生成した $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ が安定的に存在できる温度域が 500-600 K に広がり、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の生成が抑制されることもわかった。Cr K 端 XANES スペクトルの解析から、Cr は 3+ として酸化鉄結晶相内にドーピングしていると考えられ、より小さなイオン半径を持つ Cr^{3+} イオンが酸化鉄結晶内で局所的な格子歪みを形成し、酸化鉄の酸化還元作用の劇的な変化をもたらしていることが明らかになった (Phys. Chem. Chem. Phys. 2020 にて報告; 図 1)。

さらに、これらの酸化鉄樹状結晶を用いて、高回折効率ゾーンプレートを用いた結像型顕微

XAFS 計測を行い、樹状結晶内の酸化鉄相の二次元マッピングを取得することを検討した。結像型顕微 XAFS 計測およびそのイメージングデータのドリフト補正、画像解析システムを立ち上げ、1 ピクセル 114 nm の分解能で、SiN 基板上に分散担持した酸化鉄樹状結晶内の Fe 相の分布を可視化した。還元状態の Fe_3O_4 から昇温酸化していき、473 K, 573 K, 673 K での各温度で酸化した樹状酸化鉄結晶について、Fe K 端のイメージング XAFS 計測を行った。 Fe_3O_4 、 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ の三成分よりなる線形結合フィッティングによって、各成分の量を算出し、それらを用いて Fe 量、Fe 価数、3 つの酸化鉄相の存在率の二次元画像に変換した。一連のイメージング計測、解析から、結晶内でどのように Fe の酸化が進むか、その空間分布を可視化し、Cr の添加による結晶内部の酸化反応の伝搬の違いも可視化することができた（論文執筆準備中）。

4-2. CT とタイコグラフィ Cr ドープ酸化鉄樹状結晶の構造、酸化還元特性、結晶相変化の解明

大阪大学高橋研究室と共同で進めた CT-タイコグラフィ XAFS 計測によって可視化したセリア-ジルコニア複合酸化物中における酸化反応拡散の様子を解明した（*Commun. Chem.* 2019 にて報告）。可視化計測から得られた Ce の量及び Ce 価数の三次元空間分布を基に、異なる 6 個の粒子における Ce 価数の分布を得て、粒子毎の反応性の違いを明らかにした。また、北陸先端大のダム研究室と共同で、可視化計測から得られた各種構造パラメータの教師なし学習の方法を検討し、データマイニングによって、Ce 価数とその標準偏差に一定の相関があることを見だし、固体粒子中の酸化反応の軌跡に関する知見を得ることに成功した。

4-3. EXAFS 領域の CT 計測データの解析方法の構築

X 線吸収微細構造(XAFS)分光法は、着目元素の酸化数や配位対称性が解析できる XANES と、配位数、結合距離などの局所配位構造が解析できる EXAFS に大別される。XANES は EXAFS に比べて強度が大きいため、三次元 CT 計測によって得られる画像から XANES 領域を効率的に解析することができるようになっているが、EXAFS は XANES と比較して、非常に信号強度が小さく、CT 計測データにおける EXAFS の解析は実現されていなかった。そこで、計測条件の精査と EXAFS 領域の CT-XAFS データ解析プロトコルの構築を進めた。

CT-XAFS 計測は、試料の X 線透過像のエネルギー軸と試料回転軸の 2 次元スキャンからなる。通常は、試料回転を伴う CT スキャンを X 線吸収端近傍の適当なエネルギー一点で測定を行い、イメージングデータの四則計算やフィッティング解析を行い、これの 3 次元再構成演算により、実空間の構造データの空間分布を可視化する。これに対し、エネルギー軸によるイメージング XAFS 計測を行い、これを試料の各投影角で繰り返し測定する方法を検討し、前者と比較して画像データから抽出される XAFS 信号の S/N 比が飛躍的に向上することを見出した。これにより、広域の EXAFS 領域信号の抽出も可能となり、適切な試料濃度を設定することで、EXAFS 領域の CT-XAFS データ解析が実現できるようになった。

解析プロトコルは全体で 7 ステップに渡り解析プロシージャを作成した。ステップ 1 では、試料の X 線透過像と X 線画像を用いて、X 線吸光度に関する画像に変換する。ステップ 2 では、画像データの信頼性を向上させるためのビニング操作を行い、ステップ 3 では、EXAFS 信号の抽出に必要なエネルギー点数へのスムージング操作を行う。ステップ 4 では、画像データの各ピクセルから EXAFS 振動の抽出を行い、ステップ 5 では、L 吸収端の EXAFS 理論式によりフィッティング解析を行う。ステップ 6 では、CT 再構成演算を行うためのシノグラム画像へのリスライス加工を行い、最後にステップ 7 にて、フィッティング解析により得られた各構造パラメータの三次元再構成演算を行う。最後に吸収ジャンプ量に相当する再構成像で規格化することで、配位数の絶対値が得られる。一連の解析プロトコルを用いることで、EXAFS 領域のカーブフィッティングから算出される配位数の三次元空間情報を可視化できるようになった。

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 1件）

1. 著者名 H. Matsui, N. Maejima, N. Ishiguro, Y. Tan, T. Uruga, O. Sekizawa, T. Sakata, M. Tada	4. 巻 19
2. 論文標題 Operando XAFS Imaging of Distribution of Pt Cathode Catalysts in PEFC MEA	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Chemical Record	6. 最初と最後の頁 1380-1392
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/tcr.20180123	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. Hirose, N. Ishiguro, K. Shimomura, D. N. Nguyen, H. Matsui, H. C. Dam, M. Tada, Y. Takahashi	4. 巻 2
2. 論文標題 Oxygen-Diffusion-Driven Oxidation Behavior and Tracking Areas Visualized by X-ray Spectro-Ptychography with Unsupervised Learning	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Communication Chemistry	6. 最初と最後の頁 50
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s42004-019-0147-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 S. Ikemoto, H. Xiubing, S. Muratsugu, S. Nagase, T. Koitaya, H. Matsui, G. Yokota, T. Sudoh, A. Hashimoto, Y. Tan, S. Yamamoto, J. Tang, I. Matsuda, J. Yoshinobu, T. Yokoyama, S. Kusaka, R. Matsuda, M. Tada	4. 巻 21
2. 論文標題 Reversible low-temperature redox activity and selective oxidation catalysis derived from the concerted activation of multiple metal species on Cr and Rh-incorporated ceria catalysts	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 20868-20877
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/c9cp04625a	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 Y. Tan, H. Matsui, N. Ishiguro, T. Uruga, D. N. Nguyen, O. Sekizawa, T. Sakata, N. Maejima, K. Higashi, H. C. Dam, M. Tada	4. 巻 123
2. 論文標題 PtCo/C Cathode Catalyst Degradation in a Polymer Electrolyte Fuel Cell Investigated by an Infographic Approach Combining Three-Dimensional Spectroimaging and Unsupervised Learning	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 18844-18853
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.jpcc.9b05005	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 Y. Kimura, A. Tomura, M. Fakkao, T. Nakamura, N. Ishiguro, O. Sekizawa, K. Nitta, T. Uruga, T. Okumura, M. Tada, Y. Uchimoto, K. Amezawa	4. 巻 11
2. 論文標題 3D Operando Imaging and Quantification of Inhomogeneous Electrochemical Reactions in Composite Battery Electrodes	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 3629-3636
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett/0c00876	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 H. Matsui, N. Ishiguro, Y. Suzuki, K. Wakamatsu, C. Yamada, K. Sato, N. Maejima, T. Uruga, M. Tada	4. 巻 22
2. 論文標題 Reversible structural transformation and redox properties of Cr-loaded iron oxide dendrites studied by in situ XANES spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 28093-28099
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0cp04416d	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 K. Ichihashi, S. Muratsugu, H. Matsui, K. Higashi, O. Sekizawa, T. Uruga, M. Tada	4. 巻 124
2. 論文標題 Oxygen Reduction Reaction Performance Tuning on Pt Nanoparticle/MWCNT Catalysts by Gd Species	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 26925-26936
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c09308	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33件 (うち招待講演 16件 / うち国際学会 11件)

1. 発表者名 M. Tada
2. 発表標題 Operando XAFS Imaging of Heterogeneous Catalysts
3. 学会等名 MIRAI Materials Science Workshop 2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Tada
2. 発表標題 X-ray Imaging of Heterogeneous Catalysts and Electrocatalysts
3. 学会等名 Gordon Research Conference on Catalysis 2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Hirose, N. Ishiguro, K. Shimomura, H. Matsui, M. Tada, and Y. Takahashi
2. 発表標題 Three-dimensional Chemical Imaging of Oxygen Storage and Release Particles by Hard X-ray Spectro-Ptychography
3. 学会等名 Coherence 2018: International Workshop on Phase Retrieval and Coherent Scattering (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 N. Ishiguro, M. Hirose, K. Shimomura, N. Burdet, H. Matsui, Y. Takahashi, and M. Tada
2. 発表標題 Visualization of Ce Chemical States and Oxygen Diffusion in Ceria-Zirconia Particles by X-ray Spectro-Ptychography
3. 学会等名 International Symposium on Relations between Homogeneous and Heterogeneous Catalysis (ISHHC 18) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 池本悟, X. Huang, 永瀬晶子, 横田元一, 邨次智, 唯美津木
2. 発表標題 第一・第二周期遷移金属を導入したセリア系複合酸化物の調製、レドックス特性と触媒反応
3. 学会等名 錯体化学会第68回討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 唯 美津木
2. 発表標題 放射光を利用した触媒のキャラクタリゼーション
3. 学会等名 シンポジウム「東北放射光SLiT-Jと触媒研究」(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Hirose, N. Ishiguro, K. Shimomura, H. Matsui, M. Tada, and Y. Takahashi
2. 発表標題 Nanoscale Chemical Imaging of Three-Way Catalyst Pt/Ce2Zr2Ox Particles by Ptychographic-XAFS
3. 学会等名 14th International Conference on X-ray Microscopy (XRM2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 広瀬真, 石黒志, 下村啓, 松井公佑, 唯美津木, 高橋幸生
2. 発表標題 タイコグラフィXAFSによる三元触媒Pt/Ce2Zr2Ox粒子の酸化状態ナノイメージング
3. 学会等名 第21回XAFS討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 木村勇太, 戸村愛菜, Fakkao Mahunnop, 中村崇司, 石黒志, 関澤央輝, 新田清文, 宇留賀朋哉, 奥村豊旗, 唯美津木, 内本喜晴, 雨澤浩史
2. 発表標題 オペランドCT-XAFSを用いたバルク型全固体リチウムイオン電池用合剤電極内反応分布の定量的解析
3. 学会等名 2018年電気化学秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 木村勇太, 戸村愛菜, Fakkao Mahunnop, 中村崇司, 石黒志, 関澤央輝, 新田清文, 宇留賀朋哉, 奥村豊旗, 唯美津木, 内本喜晴, 雨澤浩史
2. 発表標題 オペランドCT-XAFSによるパルク型全固体リチウムイオン電池用合剤電極における反応分布形成要因の解明
3. 学会等名 第59回電池討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 唯 美津木
2. 発表標題 イメージングXAFSと情報処理による可視化
3. 学会等名 第10回岩澤コンファレンス(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 唯 美津木
2. 発表標題 硬X線XAFSイメージングによる固体触媒材料の可視化
3. 学会等名 第38回表面科学会学術講演会(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 唯 美津木
2. 発表標題 3次元XAFSイメージングによる固体触媒の可視化研究
3. 学会等名 SPring-8利用推進協議会GSC研究会(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松井公佑, 石黒志, 関澤央輝, 宇留賀朋哉, 唯美津木
2. 発表標題 Crドーブ酸化鉄結晶のドーバントサイト解析とレドックス特性
3. 学会等名 第32回日本放射光学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 若松昂平, 松井公佑, 石黒志, 邨次智, 関澤央輝, 宇留賀朋哉, 唯美津木
2. 発表標題 Cr, Rh含有セリア結晶内の酸化還元に伴うCe酸化数分布の可視化
3. 学会等名 第32回日本放射光学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Tada
2. 発表標題 3D Imaging of Heterogeneous Catalysts
3. 学会等名 Workshop on "Solid-State Electrochemistry for Coordination Complexes" (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Tada
2. 発表標題 XAFS Imaging of Solid Catalysts
3. 学会等名 International Symposium on Heterogeneous Catalysis for Sustainable Energy and Chemical Production (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Ikemoto, H. Matsui, S. Muratsugu, M. Tada
2. 発表標題 Low-temperature Redox Behavior and Selective Oxidation Performances of Ceria-based Mixed Oxides with Cr and Rh
3. 学会等名 日本化学会第99春季年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 戸村愛菜, 木村勇太, Fakkao Mahunnop, 中村崇司, 石黒志, 関澤央輝, 新田清文, 宇留賀朋哉, 奥村豊旗, 唯美津木, 内本喜晴, 雨澤浩史
2. 発表標題 CT-XAFSを用いたバルク型全固体リチウムイオン電池合剤電極内の不均一反応のオペランド可視化計測
3. 学会等名 電気化学会第86回大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Ikemoto, S. Muratsugu, H. Matsui, T. Koitaya, A. Hashimoto, M. Tada
2. 発表標題 Reversible Low-temperature Redox and Catalytic Performances of Cr and Rh-incorporated Ceria Catalysts
3. 学会等名 錯体化学会第69回討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Ikemoto, S. Muratsugu, M. Tada
2. 発表標題 NO Reduction Performances of Cr and Rh-incorporated Ceria Catalysts
3. 学会等名 日本化学会第100春季年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 M. Tada
2. 発表標題 Reaction Infography for Materials Science
3. 学会等名 The 1st Workshop of Reaction Infography (R-ing) Unit (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Tada
2. 発表標題 Reaction Infography for Heterogeneous Catalysts
3. 学会等名 NU-UoE JD and JSPS CtC Joint Workshop on "New Horizons in Chemistry and Materials Science" (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Tada, S. Muratsugu, H. Matsui
2. 発表標題 Preparation and Operando Imaging of Pt-bimetallic Electrocatalysts for Polymer Electrolyte Fuel Cell
3. 学会等名 5th Japan-Taiwan-Singapore-Hong Kong Quadrilateral Symposium on Coordination Chemistry (QSCC2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 唯美津木
2. 発表標題 反応インフォグラフィック：可視化が拓く物質科学
3. 学会等名 サステナブル社会のための最先端触媒化学・表面科学講演会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 坂本裕俊, 松井公佑, 山田笑菜, 堀彰宏, 松田亮太郎, 永見哲夫, 加藤弘泰, 東晃太郎, 宇留賀朋哉, 唯美津木
2. 発表標題 MOFの分子吸着過程のin situ XAFSイメージング
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 村本雄太, 松井公佑, 宇留賀朋哉, 唯美津木
2. 発表標題 金属-ゴム界面の接着層に関するCT-XAFSイメージング
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 C. Chen, S. Ikemoto, G. Yokota, S. Muratsugu, M. Tada
2. 発表標題 Preparation and Amoxidation Performances of Copper and Ruthenium Incorporated Ceria
3. 学会等名 日本化学会第101回春季年会
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 山田笑菜, 坂本裕俊, 松井公佑, 堀彰宏, 松田亮太郎, 永見哲夫, 加藤弘泰, 東晃太郎, 宇留賀朋哉, 唯美津木
2. 発表標題 オペランドCT-XAFSによるMOF結晶内の分子吸着過程の三次元イメージング
3. 学会等名 日本化学会第101回春季年会
4. 発表年 2020年～2021年

1. 発表者名 唯美津木
2. 発表標題 イメージングXAFSが拓く反応インフォグラフィー
3. 学会等名 表面真空学会関東支部講演会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 M. Tada
2. 発表標題 Infography of Heterogeneous Catalysts by 3D Spectro-Imaging and Unsupervised Learning
3. 学会等名 17th International Congress on Catalysis (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 唯美津木
2. 発表標題 Operando三次元XAFSイメージングによる触媒内現象の可視化
3. 学会等名 化学工学会反応工学部会第14回触媒劣化セミナー (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 唯美津木
2. 発表標題 可視化イメージングを基盤とする触媒インフォグラフィ
3. 学会等名 触媒・電池元素戦略研究拠点第17回公開シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2021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
連携研究者	松井 公佑 (Matsui Hirosuke) (90754309)	名古屋大学・理学研究科・講師 (13901)	
連携研究者	坂本 裕俊 (Sakamoto Hirotoshi) (90768649)	名古屋大学・物質科学国際研究センター・特任講師 (13901)	

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