

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H04466

研究課題名（和文）複合環境下リアルタイムナノ空間構造計測システムの開発と構造可視化

研究課題名（英文）Development of real-time structure measurement system and structure visualization of nano-space under various sample environments

研究代表者

河口 彰吾（Kawaguchi, Shogo）

公益財団法人高輝度光科学研究センター・回折・散乱推進室・主幹研究員

研究者番号：10749972

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,800,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、複合環境下かつ高エネルギーX線を利用したリアルタイム粉末構造計測システムの開発を目的としている。ガス雰囲気制御下での精密温度制御装置を開発し、5～473 K、1Paから1MPaまでの温度圧力条件下での計測が可能となった。また、本開発により、ガス圧力制御装、スピナーセルおよび最先端のX線検出器との同期を可能とし、サブ秒～ミリ秒でのリアルタイム粉末構造計測システムを構築した。開発したシステムを用いて、複数の多孔性金属錯体のCO₂、Arガス吸着過程を明らかにし、そのダイナミックな骨格構造の変形に関して知見を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した複合環境下での試料雰囲気制御技術、リアルタイム放射光粉末回折計測システムは、これまで観測できなかった吸着・反応プロセスを高精度に追従することが可能なシステムであり、吸着、触媒、電池材料等の研究において、吸着・反応過程における動的構造を実験的に計測することで、材料の効率や安全性の向上に寄与すると期待される。さらに、本システムの適応ガス種は様々であり、燃料貯蔵や二酸化炭素の捕捉など、エネルギーおよび環境に関する問題解決へも貢献すると期待される。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to develop a real-time powder structure measurement system under a complex environment and using high energy X-rays. A precise temperature control system under gas atmosphere control has been developed, enabling measurements under temperature and pressure conditions from 5 - 473 K, 1 Pa to 1 MPa. Real-time powder structure measurement system with temporal resolution of a sub-second to millisecond was developed, which can be synchronized with a remote gas pressure controller, a spinner cell, and state-of-the-art X-ray detectors. Using the developed system, we were able to clarify the structural changes of CO₂ and Ar gas adsorption processes of several porous metal frameworks and obtain the dynamic transformation of their framework structures.

研究分野：放射光X線回折

キーワード：放射光粉末X線回折 試料環境制御 時間分解計測 その場構造計測

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ガス雰囲気制御下粉末 X 線回折計測は、多孔性金属錯体(MOF)やゼオライト等のガス貯蔵材料の結晶構造を調べる強力な手法である。しかし、多くの結晶構造の情報は圧力一定または平衡状態の静的条件下の研究であり、吸着前や飽和ガス吸着状態での静的な構造は精査されているものの、ガス吸着や脱着過程のガス分子の位置や骨格構造の変形に関する動的な構造については直接的に調べられた例はほとんどない。一方で、平衡状態以外の吸着/脱着プロセスの結晶構造の変化を観察し、ナノ空間を有する骨格構造(ホスト)を明らかにすることはもちろん、ガス分子(ゲスト)の導入や、温度変化などの外部摂動に対して容易に構造変化を示すことから、ガスの吸脱着過程においてその場で変化するナノスケールの骨格構造やガス分子の位置や配列状態を捉えることが、多孔性配位錯体のゲスト-ホスト相互作用を理解する上で大変重要であることが分かってきた。しかし、ミリ秒~秒オーダーで進行するガス吸着や脱着過程のガス分子の位置や骨格構造の変形に関する動的な構造については、短時間的には不可逆過程であり、ポンプ・プローブ法による計測は不可能である。従って、我々はこれまでにガス圧力制御下での秒オーダーの連続計測が可能な粉末回折計測基盤を構築し、ナノ孔を有する MOF において数秒以内で完全に吸着が終了することを見出し、速度論的な解釈からゲート圧や温度により吸着速度の依存性、細孔内の吸着の次元性について解明してきた。しかし、現状の計測技術には依然下記の問題点が残されている。それは、温度不安定性による吸着構造の揺らぎによる効果を検証するための試料環境制御技術の不足、ミリ秒での連続撮像、広い逆空間をシングルショットで捉え、時間分解粉末回折データの統計精度の問題である。本研究ではこれら問題点を克服し、新たな複合環境下での試料雰囲気制御・計測システムを開発し、系統的な物質群に対して、複合環境下でのリアルタイム粉末構造計測を実現する。本開発により、吸着するガス分子によるゲート圧力の異なりや吸着速度、温度、次元性の違いなど、未解決の問題に対する実験的な解明が可能となる。また、マイクロ秒から秒オーダーでの外場応答が期待される電池・触媒材料において、今後、電池反応セルや溶媒蒸気・触媒反応を制御するシステムを構築し、本研究で開発した実験レイアウトを適用するだけで、それらの機能性材料の不可逆反応の動的構造計測が可能である。従って、本研究成果は、物性科学、材料科学、材料・デバイス開発等、学術分野から産業応用まで、構造ダイナミクスをキーワードとした多分野への多大な波及効果が期待される。

2. 研究の目的

本研究では、これまで開発を行ってきたガス圧力制御システム装置の開発をさらに発展させ、この装置と連動した複合環境下かつ高エネルギー X 線を利用したリアルタイム粉末構造計測システムの開発を目的とする。これにより、温度不安定性による吸着構造の揺らぎ及び外場摂動による効果を検証するための精密な温度制御を有した試料環境制御技術を高度化し、高速撮像可能な技術を導入するとともに、サブ秒オーダー以下の短時間スケールで構造変化を捉えることが可能なシステムを目指す。また、広い逆空間をシングルショットで捉え高エネルギー X 線に対して高感度な計測環境の整備、時間分解粉末回折データにおける統計精度に関する問題に取り組み、信頼性の高いデータを収集可能とし、ガス吸脱着過程や反応過程における周期構造とその周期からの配位子・ガス分子の構造変位・乱れに関してリアルタイムの結晶構造情報を得ることができる計測システムを構築する。

3. 研究の方法

複合試料環境制御装置の開発は大型放射光施設 SPring-8 の BL02B2 で行う。精密な温度調整とガス圧力変化を行うために、ガス導入式 X 線回折用クライオスタットを開発・導入する。低温試料部にはガスラインを導入可能な特殊なガスセルを搭載し、本装置とこれまで開発を実施してきたガス圧力制御装置を連動する制御システムを構築する。X 線回折で統計精度を高めるため、高速で揺動可能な機構を設ける。

これら複合試料環境制御装置の開発と並行してサブ秒からミリ秒までの時間分解粉末構造計測を目指したシステム開発も進める。この計測システムの X 線検出器には、既設の多連装一次元半導体検出器、また、新しく導入された大面積フラットパネル検出器、および、最新の CdTe 素子により高エネルギー X 線に対し高い検出効率を有しハイスピードで計測可能なハイブリッドピクセル検出器を用いる。これら検出器とガス圧力制御装置との制御・同期システムの開発、およびデータの評価を行い、制御・処理ソフトウェアの開発を行う。

構築した計測システムを用いて、MOF[1-Cu₂(pzdc)₂(L)]に対してリアルタイム放射光粉末回折計測を実施する。上記試料は系統的に細孔サイズを可変可能であり、飽和ガス吸着状態がよく知られているが、ガス圧力制御下での動的構造は調査されていない。具体的には、高エネルギー X 線を用いて CO₂、Ar、N₂、O₂ ガスの印加圧力、温度を変化させ上記物質群のガス吸着過程における構造変化を系統的に調査するために、サブ秒~ミリ秒で時間分解された放射光粉末回折データを得て、平均構造からの有機配位子の局所的な構造乱れ、細孔内での導入ガス分子の拡散・圧力平衡性に関する実験的評価を実施する。

4. 研究成果

まず、複合試料環境制御装置のために新たにガス導入式 X 線回折用クライオスタットの開発を大型放射光施設 SPring-8 の粉末結晶構造解析ビームライン BL02B2 で行った。図 1 は開発したクライオスタットである。ガラスキャピラリに粉末試料を充填し、1/16 インチの SUS 管と極低温用の接着剤で接合し、銅製の試料ホルダーに固定している。ガスラインは 2 系統あり、1 つは、吸着用のガスをキャピラリ内へ送るために使用されており、もう一方は、キャピラリを可能な限り均一に冷却するために、試料ホルダーの外側をヘリウムガスで置換するために設けた。試料ホルダーは入射 X 線用、回折 X 線用のベリリウム窓を有したガスセルで密閉できる仕組みであり、ガスセルのシール面にはメタルガスケットを用いて固定される。ガスセルの外側には、入射 X 線用、回折 X 線用の窓を有したシュラウドおよび外筒を備えている。

まず、冷却性能を評価するために、スピネル型酸化物 GeCo_2O_4 をマウントして、20K 以下の粉末 X 線回折データを収集した。この物質は、16K において、cubic 相から tetragonal 相への構造相転移を示すことが知られており、実際に 15 K において 800 反射が分裂することが確かめられた (図 2(a))。本測定により、極低温下においても正確に試料位置で温度調整が可能であることが分かった。次に、飽和吸着状態が良く知られている多孔性金属錯体 $[\{\text{Cu}_2(\text{pzdc})_2(\text{pyz})\}_n]$ (pzdc = pyrazine-2,3-di-carboxyl-ate; pyz = pyrazine) (CPL-1) をマウントし、酸素ガス圧力制御下における放射光粉末回折実験を行った。まず、ナノ細孔に吸着したガスや溶媒を取り除くため、クライオスタット内で真空下 120°C の条件で degas 処理を行った後、10 K まで冷却し、粉末回折データを取得した。その後、90 K まで温度を昇温し、1、10 kPa の酸素ガスをキャピラリ内に導入した。図 2(b) は、CPL-1 の低温下における真空下・酸素ガス圧力下での X 線回折パターンである。1 kPa、10 kPa の酸素ガス導入で、酸素吸着構造へと変化していることが分かる。なお、ガス導入にあたっては、想定外にクライオスタット内のガス配管が冷却されすぎたことでガスが固化し詰まってしまうこともあったが、サーマルアンカやヒータの位置を何度か改良することで、スムーズなガスの導入が可能となった。本研究開発により、試料温度は $\pm 0.1\text{K}$ の温度安定性かつ 5 - 473 K まで制御可能かつガス圧力を 1 Pa から 1 MPa まで可変させることが可能な計測基盤が整った。

次に、時間分解粉末構造計測システムの開発を大型放射光施設 SPring-8 の粉末回折ビームライン BL02B2 および高エネルギー・高フラックスビームライン BL10XU にて行った。この計測システムの X 線検出器には、既設の多連装一次元半導体検出器、最近導入されたフラットパネル検出器、2 次元 CdTe 検出器を用いた。これら測定システムと複合試料環境制御装置、リモートガスハンドリングシステムとをトリガー信号により同期させたシステムを構築した。これにより、ガス雰囲気制御下においてサブ秒オーダー以下の連続撮像が可能となった。データ処理・補正ソフトウェアは Python と LabVIEW を用いて開

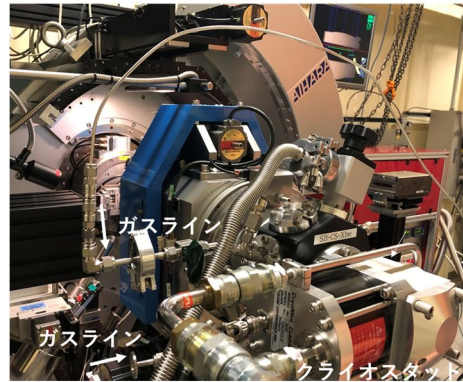
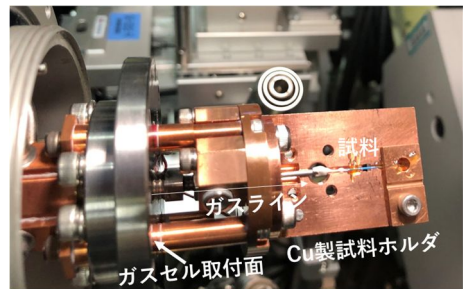


図 1. 開発したガス導入式 X 線回折用クライオスタット

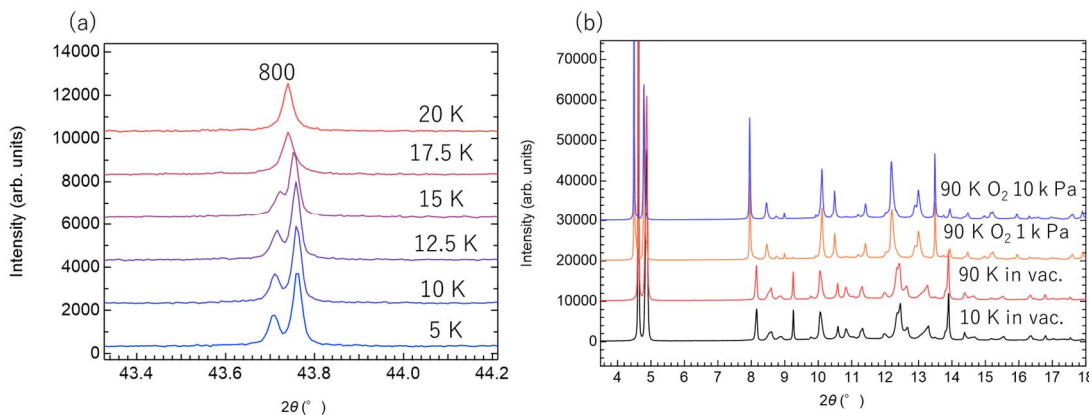


図 2. (a)スピネル型酸化物 GeCo_2O_4 の低温下での X 線回折プロファイル (b) CPL-1 の低温下・ガス雰囲気制御下での X 線回折プロファイル

発を行った。特に、高速で2次元回折パターンから1次元データを得るために、PythonのPyFAIライブラリを活用して2次元回折パターンの処理用ソフトウェアを作成した。図3はそれぞれ、BL02B2、BL10XUにおいて、エネルギー30 keVのX線を用いてCPL-1のガス脱離状態を撮像した2次元回折パターンである。それぞれの露光時間は、333 ms、40 msであった。BL02B2においては、ピーク位置の変化などは観測できる十分なS/N比のデータが取得できており、さらに、構築した計測システムと挿入光源の高輝度・高強度のX線を用いれば、将来的に、whole profile fittingを行うことが出来るデータを取得可能であることが分かった。一方で、試料の粒径を限りなく均一にそろえたとしても、吸着や脱離過程においては、粒子統計の影響で、デバイリングが不均一になってしまう現象も度々観測された。これらの問題を軽減するために、ガス導入型のスピナー試料セルを試作を行った。このセルでは、200 r.p.m.の回転速度を達成し、10 r.p.m.で強度変動が15%あったデータに対して、200 r.p.m.では数%以内に軽減できることが分かった。今後、このスピナー試料セルをさらに改良し、高速回転化と回転芯の精度の向上、時間分解測定用のバルブシステムなどの組み込みなど施していく予定である。

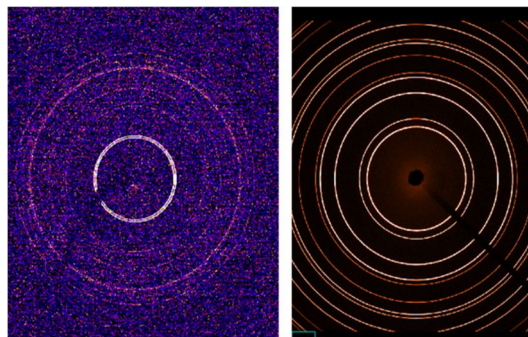


図3. 二次元検出器で測定したガス脱離状態のCPL-1のX線回折パターン(左)333 ms: 02B2、(右)40 ms: 10XU

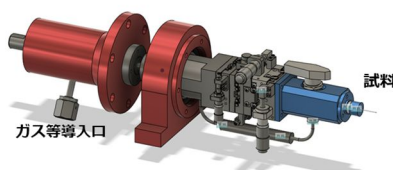


図4. 試作したガススピナーセルの図面

本研究課題における初年度および次年度で構築した計測システムを用いて、CPL-1およびCPL-1の配位子が異なるCPL-2に対してリアルタイム放射光粉末回折計測を実施した。図5は、CPL-1とCPL-2のArおよびCO₂ガス吸着過程における時間分解粉末X線回折パターンである。CPL-1のAr吸着過程やCPL-2のCO₂ガス吸着過程においては、ガス導入直後に脱離相から吸着相に瞬時に変化しているのに対し、CPL-1のCO₂吸着過程においては緩やかな変化を示す。また、CPL-1においてはArガスと同様にN₂、O₂ガスに対しても、瞬時に変化することが分かった。CO₂ガス分子のみ緩やかな変化を示す現象は、CO₂分子の大きさが他のAr、N₂、O₂ガス分子と比べ大きく、取り込み時により大きく細孔を拡大する必要があるためであると考えられた。実際に、CPL-1とCPL-2のナノ細孔サイズは、それぞれ、4 Å × 6 Å、8 Å × 6 Å程度であり、面積だけで2倍以上異なる。また、CO₂ガス吸着過程において、詳細な構造解析を行ったところ、CO₂吸着において他のガスの吸着と比べて骨格構造の変化が大きく、細孔の窓の形状が平行四辺形から長方形に近づくように変化しながら、細孔サイズが大きくなっていることが分かった。これらの吸着過程においては、まず初めに大きな骨格変形を伴ったガス吸着が進行し、その後、CO₂分子が細孔形状を少しずつ押し広げながら拡散し、最終的な飽和吸着相の分子配列に至るガス吸着が進行する、2段階の変化過程があることが分かった。また、CO₂の吸着構造において、CO₂分子間およびCO₂分子と細孔表面はほとんど接触距離にあり、ナノ細孔空間は、CO₂ガス分子で埋めつくされていることが分かった。以上の開発した装置の一部とこれまで成果により、日本結晶学会進歩賞、JASRI理事長賞科学技術部門、日本放射光学会奨励賞を受賞した。また、COVID-19の影響で予定していた学会発表等はハイブリッド開催ではあったが本研究成果を国際結晶学会で発表を行うとともに、成果の一部を学術論文として掲載した。また、本課題で開発された計測システムおよび解析手法に関しては、幾つかの共同研究にも発展しており、本課題で得られた知見をもとに、今後も継続的に計測システムを改良し、より高精度かつ高い時間分解能で構造ダイナミクスを可視化できるシステムを開発していく予定である。

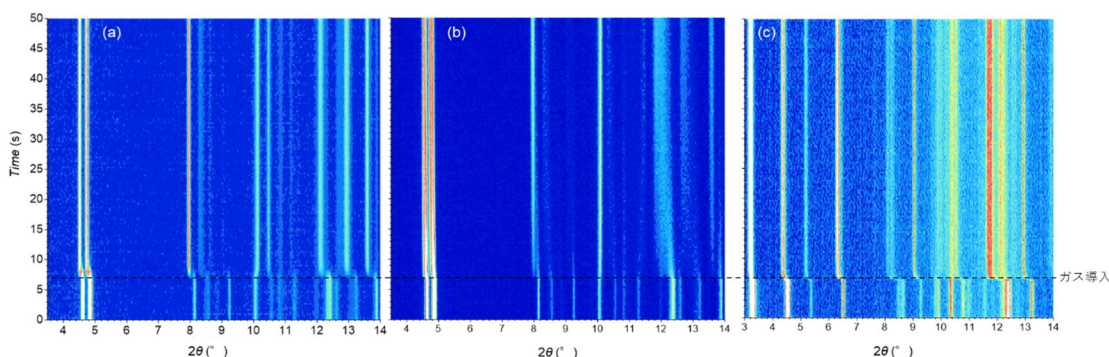


図5. ガス吸着過程における時間分解粉末X線回折パターン (a) CPL-1におけるArガス吸着過程、(b) CPL-1におけるCO₂ガス吸着過程、(c) CPL-2におけるCO₂ガス吸着過程

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計19件（うち査読付論文 19件 / うち国際共著 4件 / うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Kawaguchi Shogo, Takemoto Michitaka, Sugimoto Kunihisa, Ashitani Hiroataka, Kubota Yoshiki	4. 巻 77
2. 論文標題 Development of high-speed capillary spinner cell for in situ powder diffraction under gas pressure control	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Acta Crystallographica Section A Foundations and Advances	6. 最初と最後の頁 C823 ~ C823
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S0108767321088759	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 Ashitani Hiroataka, Kawaguchi Shogo, Ishibashi Hiroki, Otake Kenichi, Kitagawa Susumu, Kubota Yoshiki	4. 巻 77
2. 論文標題 Kinetics in the gas adsorption process of porous coordination polymers by time-resolved X-ray powder diffraction measurement	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Acta Crystallographica Section A Foundations and Advances	6. 最初と最後の頁 C735 ~ C736
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S0108767321089613	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 Okada Tomohiko, Izumi Kana, Kawaguchi Shogo, Moriyoshi Chikako, Fujimura Takuya, Sasai Ryo, Ogawa Makoto	4. 巻 37
2. 論文標題 Important Roles of Water Clusters Confined in a Nanospace as Revealed by a Synchrotron X-ray Diffraction Study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 10469 ~ 10480
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.1c01322	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 KAWAGUCHI Shogo	4. 巻 63
2. 論文標題 Development of Sub-Second Synchrotron Powder Diffraction Measurement System Under Various Gas Atmospheres	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nihon Kessho Gakkaishi	6. 最初と最後の頁 121 ~ 128
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5940/jcrsj.63.121	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 河口彰吾	4. 巻 35
2. 論文標題 ハイスループットその場粉末回折自動計測システムの開発	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 放射光	6. 最初と最後の頁 127 ~ 131
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 KUBOTA Yoshiki, MORIYOSHI Chikako, NISHIBORI Eiji, KAWAGUCHI Shogo	4. 巻 64
2. 論文標題 Upgrade and Achievements at the Powder Diffraction Beamline in SPring-8	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nihon Kessho Gakkaishi	6. 最初と最後の頁 17 ~ 25
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5940/jcrsj.64.17	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 Hiraide Shotaro, Sakanaka Yuta, Kajiro Hiroshi, Kawaguchi Shogo, Miyahara Minoru T., Tanaka Hideki	4. 巻 11
2. 論文標題 High-throughput gas separation by flexible metal-organic frameworks with fast gating and thermal management capabilities	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 3867
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-020-17625-3	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 Gu Yifan, Zheng Jia Jia, Otake Ken ichi, Shivanna Mohana, Sakaki Shigeyoshi, Yoshino Haruka, Ohba Masaaki, Kawaguchi Shogo, Wang Ying, Li Fengting, Kitagawa Susumu	4. 巻 60
2. 論文標題 Host-Guest Interaction Modulation in Porous Coordination Polymers for Inverse Selective CO ₂ /C ₂ H ₂ Separation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 11688 ~ 11694
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.202016673	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 Fukunaga Hiroki, Kosaka Wataru, Nemoto Honoka, Taniguchi Kouji, Kawaguchi Shogo, Sugimoto Kunihisa, Miyasaka Hitoshi	4. 巻 26
2. 論文標題 Magnetic Correlation Engineering in Spin Sandwiched Layered Magnetic Frameworks	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemistry A European Journal	6. 最初と最後の頁 16755 ~ 16766
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/chem.202002588	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 Ashitani Hirota, Kawaguchi Shogo, Furukawa Hiromichi, Ishibashi Hiroki, Otake Kenichi, Kitagawa Susumu, Kubota Yoshiki	4. 巻 319
2. 論文標題 Time-resolved in-situ X-ray diffraction and crystal structure analysis of porous coordination polymer CPL-1 in CO ₂ adsorption	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Solid State Chemistry	6. 最初と最後の頁 123796 ~ 123796
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jssc.2022.123796	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 Yamamoto Takafumi, Kawaguchi Shogo, Kosuge Taiki, Sugai Akira, Tsunoda Naoki, Kumagai Yu, Beppu Kosuke, Ohmi Takuya, Nagase Teppei, Higashi Kotaro, Kato Kazuo, Nitta Kiyofumi, Uruga Tomoya, Yamazoe Seiji, Oba Fumiyasu, Tanaka Tsunehiro, Azuma Masaki, Hosokawa Saburo	4. 巻 -
2. 論文標題 Emergence of Dynamically Disordered Phases During Fast Oxygen Deintercalation Reaction of Layered Perovskite	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Advanced Science	6. 最初と最後の頁 e2301879
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/advs.202301876	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 Cao Yu, Kirsanova Maria A., Ochi Masayuki, Al Maksoud Walid, Zhu Tong, Rai Rohit, Gao Shenghan, Tsumori Tatsuya, Kobayashi Shintaro, Kawaguchi Shogo, Abou Hamad Edy, Kuroki Kazuhiko, Tassel Cedric, Abakumov Artem M., Kobayashi Yoji, Kageyama Hiroshi	4. 巻 61
2. 論文標題 Topochemical Synthesis of Ca ₃ CrN ₃ H Involving a Rotational Structural Transformation for Catalytic Ammonia Synthesis	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 e202209187
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.202209187	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 Ishibashi Hiroki, Cubillas Fernando, Uchihashi Kento, Tsukasaki Hirofumi, Kawaguchi Shogo, Ina Toshiaki, Brown Francisco, Kimizuka Noboru, Mori Shigeo, Kubota Yoshiki	4. 巻 312
2. 論文標題 Phase diagram and crystal structure of Ti-doped HoMnO ₃ by high-resolution synchrotron powder diffraction	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Solid State Chemistry	6. 最初と最後の頁 123273 ~ 123273
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jssc.2022.123273	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 Sasai Ryo, Fujimura Takuya, Sato Hiroaki, Nii Eisaku, Sugata Mako, Nakayashiki Yuto, Hoashi Hirokazu, Moriyoshi Chikako, Oishi Eiichi, Fujii Yasuhiro, Kawaguchi Shogo, Tanaka Hiroshi	4. 巻 95
2. 論文標題 Origin of Selective Nitrate Removal by Ni ²⁺ /Al ³⁺ Layered Double Hydroxides in Aqueous Media and Its Application Potential in Seawater Purification	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Bulletin of the Chemical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 802 ~ 812
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20220032	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 Shimono Seiya, Ishibashi Hiroki, Nagayoshi Yusuke, Ikeno Hidekazu, Kawaguchi Shogo, Hagihara Masato, Torii Shuki, Kamiyama Takashi, Ichihashi Katsuya, Nishihara Sadafumi, Inoue Katsuya, Ishii Yui, Kubota Yoshiki	4. 巻 163
2. 論文標題 Structural phase transition in cobalt oxyfluoride Co ₃ Sb ₄ O ₆ F ₆ observed by high-resolution synchrotron and neutron diffraction	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Physics and Chemistry of Solids	6. 最初と最後の頁 110568 ~ 110568
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jpccs.2021.110568	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 Hara Takayoshi, Habe Maoko, Nakanishi Hikaru, Fujimura Takuya, Sasai Ryo, Moriyoshi Chikako, Kawaguchi Shogo, Ichikuni Nobuyuki, Shimazu Shogo	4. 巻 12
2. 論文標題 Specific lift-up behaviour of acetate-intercalated layered yttrium hydroxide interlayer in water: application for heterogeneous Bronsted base catalysts toward Knoevenagel reactions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Catalysis Science & Technology	6. 最初と最後の頁 2061 ~ 2070
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CY02328D	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 Kosaka Wataru, Nemoto Honoka, Nagano Kohei, Kawaguchi Shogo, Sugimoto Kunihisa, Miyasaka Hitoshi	4. 巻 14
2. 論文標題 Inter-layer magnetic tuning by gas adsorption in -stacked pillared-layer framework magnets	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 791 ~ 800
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2SC06337A	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 Xue Qi, Ng Bryan Kit Yue, Man Ho Wing, Wu Tai-Sing, Soo Yun-Liang, Li Molly Mengjung, Kawaguchi Shogo, Wong Kwok Yin, Tsang Shik Chi Edman, Huang Bolong, Lo Tsz Woon Benedict	4. 巻 13
2. 論文標題 Controlled synthesis of Bi- and tri-nuclear Cu-oxo nanoclusters on metal organic frameworks and the structure reactivity correlations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 50 ~ 58
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1SC05495C	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 河口 彰吾、森吉 千佳子	4. 巻 57
2. 論文標題 粉末結晶構造解析ビームラインBL02B2の測定環境と利用事例	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 セラミックス : bulletin of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 666-669
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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18件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Kawaguchi Shogo, Takemoto Michitaka, Sugimoto Kunihisa, Ashitani Hirotaka, Kubota Yoshiki
2. 発表標題 Development of high-speed capillary spinner cell for in situ powder diffraction under gas pressure control
3. 学会等名 25th Congress and General Assembly of the International Union of Crystallography (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ashitani Hirotaka, Kawaguchi Shogo, Ishibashi Hiroki, Otake Kenichi, Kitagawa Susumu, Kubota Yoshiki
2. 発表標題 Kinetics in the gas adsorption process of porous coordination polymers by time-resolved X-ray powder diffraction measurement
3. 学会等名 25th Congress and General Assembly of the International Union of Crystallography (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 芦谷 拓嵩・河口 彰吾・石橋 広記・大竹 研一・北川 進・久保田 佳基
2. 発表標題 多孔性配位高分子のガス吸着過程における格子変化と速度論
3. 学会等名 日本結晶学会2021年度年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 河口 彰吾
2. 発表標題 ハイスループットその場粉末回折自動計測システムの開発
3. 学会等名 日本放射光学会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 河口彰吾
2. 発表標題 試料ガス雰囲気サブ秒放射光粉末回折計測システムの開発
3. 学会等名 日本結晶学会2020年度年会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渡部友瑛、芦谷拓嵩、河口彰吾、大竹研一、細野暢彦、Christophe Lavenn、北川進、石橋広記、久保田佳基
2. 発表標題 多孔性配位高分子CID-35の段階的な アセチレン吸着機構に関する構造研究
3. 学会等名 日本結晶学会2020年度年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 廣海朋子、安部友啓、森吉千佳子、河口彰吾
2. 発表標題 デバイリング上の回折強度分布の均一性自動評価
3. 学会等名 日本結晶学会2020年度年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 安部友啓、廣海朋子、森吉千佳子、河口彰吾
2. 発表標題 二次元検出器用粉末回折強度処理プログラムFLAT-Xの開発
3. 学会等名 日本結晶学会2020年度年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 河口 彰吾、山田大貴、小林慎太郎、竹本道教
2. 発表標題 BL13XUにおける新規高分解能粉末回折装置の開発と現状について
3. 学会等名 日本放射光学会年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 横山 優一、河口 彰吾、水牧 仁一朗
2. 発表標題 時間相関モデルを取り入れたベイズ推定法による時分割X線回折パターンの解析
3. 学会等名 日本放射光学会年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小林 慎太郎、河口 彰吾、山田 大貴
2. 発表標題 ガスフロー-雰囲気・排出ガス成分分析条件下の透過型超高温粉末XRD計測システムの開発
3. 学会等名 日本放射光学会年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 芦谷拓嵩，古川裕陸，河口彰吾，石橋広記，大竹研一，北川進，久保田佳基
2. 発表標題 CPL-1 のCO2吸着過程における動的構造計測とCO2吸着構造の解明
3. 学会等名 日本結晶学会2022年度年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 廣藤誠 ，芦谷拓嵩，河口彰吾，大竹研一，北川進，石橋広記，久保田佳基
2. 発表標題 CPL 系多孔性配位高分子のガス吸着測定と結晶構造解析
3. 学会等名 日本結晶学会2022年度年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 河口沙織, 新名良介, 太田健二, 河口彰吾, 小林俊幸
2. 発表標題 ダイヤモンドアンビルセルを用いた複合極限環境下における動的構造計測基盤開発
3. 学会等名 日本結晶学会2022年度年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西川圭佑, 石橋広記, 芦谷拓嵩, 正木秀知, 河口彰吾, 久保田佳基
2. 発表標題 放射光粉末回折実験による擬2元系酸化物 $R\text{MnO}_3\text{-R}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ ($R = \text{Dy}, \text{Ho}, \text{Er}, \text{Yb}$)の相図と結晶構造解析
3. 学会等名 日本結晶学会2022年度年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 正木秀知, 石橋広記, 大谷颯真, 西川圭佑, 芦谷拓嵩, 河口彰吾, 富安啓輔, 森茂生, 久保田佳基
2. 発表標題 層状酸化物 $\text{HoMn}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$ ($x = 0.3$)における酸素吸収・放出挙動と結晶構造変化
3. 学会等名 日本結晶学会2022年度年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山本 隆文、菅井 玲、小菅 大輝、東 正樹、河口 彰吾、別府 孝介、細川 三郎
2. 発表標題 時分割 XRD による $\text{Sr}_3\text{Fe}_2\text{O}_7$ におけるトポケミカル反応の観察
3. 学会等名 日本セラミックス協会 秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小菅 大輝、河口 彰吾、別府 孝介、細川 三郎、東 正樹、山本 隆文
2. 発表標題 時分割 XRD による SrCrO3 - におけるトポケミカル反応の観察
3. 学会等名 日本セラミックス協会 秋季大会
4. 発表年 2022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
研究 分担者	河口 沙織 (Kawaguchi Saori) (00773011)	公益財団法人高輝度光科学研究センター・回折・散乱推進室・主幹研究員 (84502)	
研究 分担者	久保田 佳基 (Kubota Yoshiki) (50254371)	大阪公立大学・大学院理学研究科 ・教授 (24405)	

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