

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 9 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2022

課題番号：18K04868

研究課題名(和文) ナノ粒子の結晶性記述パラメータと触媒活性の相関

研究課題名(英文) Correlation between crystallinity description parameters of nanoparticles and catalytic activity

研究代表者

坂田 修身 (Sakata, Osami)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・放射光利用研究基盤センター・副センター長

研究者番号：40215629

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：金属(Pd, PdPt, Rh, AgRhなど)ナノ粒子(NP)の局所原子配列構造と電子状態を水素貯蔵特性と関連付けて、シンクロトロンX線の手法を用いて解析した。目的に掲げた通り、PdPt固溶体NPの結晶性は、結晶性記述パラメータ(局所構造秩序度であるbonding-orientational orderや固溶度)を用いて評価できた(例、固溶体秩序度はPt含有量の増加と共に減少)。他にも、Ru NPの電子状態やIrドーパPdRu NPの原子配列構造を調べた。活用した手法は、回折、X線吸収微細構造、高エネルギーX線全散乱、リートベルト解析、逆モンテカルロモデリング、硬X線光電子分光であった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

調べた合金ナノ粒子は今後産業に 응용が展開できると期待される重要な材料である。本研究で得られた、局所原子配列構造や電子構造の定量的な知見は、その材料の機能と関連させて、材料創製にフィードバックし、材料開発を促進できる点で意義がある。

研究成果の概要(英文)：The local atomic and electronic structures of metal (Pd, PdPt, Rh, AgRh, etc.) nanoparticles (NPs) were analyzed in relation to their hydrogen storage properties using synchrotron X rays. As stated in the objective, the crystallinity of PdPt solid solution NPs could be evaluated using crystallinity descriptive parameters (bond orientation order, which is the degree of local structural order, and solid solution) (e.g., solid solution order decreases with increasing Pt content). In addition, the electronic structure of Ru NPs and the atomic arrangement structure of Ir-doped PdRu NPs were also investigated. The methods utilized were diffraction, X-ray absorption fine structure, high-energy X-ray total scattering, Rietveld analysis, reverse Monte Carlo modeling, and hard X-ray photoemission spectroscopy.

研究分野：放射光ナノ構造科学

キーワード：局所原子配列 Pd基ナノ合金 シンクロトロンX線解析 X線回折 X線吸収微細構造(XAFS) 局所構造秩序度 固溶体合金ナノ粒子 硬X線光電子分光

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、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

PdPt 固溶体合金ナノ粒子の原子配列構造や電子状態について研究を開始していた。その研究を通じてナノ粒子の触媒活性機能と原子配列構造の関係を定量的に議論することや水素雰囲気や試料温度を変えた in-situ 測定は必要であるということは認識していたが、できていなかった。また、Pd ナノ粒子や PdRu ナノ合金の原子配列構造や Ru ナノ粒子の電子状態について、当時は研究を開始していなかった。

2. 研究の目的

局所構造秩序度、固溶度などの結晶性記述パラメータを新たに導入し数値化し、ふつうに使われる格子定数と合わせて、ナノ粒子の触媒活性機能との相関を定量的に議論することを目的とする。

3. 研究の方法

シンクロトロン X 線ベースの解析手法を組み合わせた。高エネルギー X 線全散乱 (HEXRD)、2 体分布関数 (PDF)、逆モンテカルロモデリング (RMC)、X 線吸収微細構造 (XAFS) を用いて局所的な原子配列構造を得た。またリートベルト解析を用い平均的な結晶構造や格子定数を決定した。さらに硬 X 線光電子分光 (HAXPES) を用いて内殻スペクトルから酸化数、価電子帯スペクトルからフェルミエネルギー近傍の電子構造を調べた。

4. 研究成果

(1) 水素貯蔵特性と関連付けた、Pd, Rh を含むナノ粒子に関する研究

Pd-Pt 固溶体ナノ粒子の結晶性評価について、結晶性記述パラメータ (局所構造秩序度である bonding-orientational order (BOO) 固溶度) を目的に掲げた通り導入できた。固溶度は、J. M. Cowley の論文を参考にして数学的にナノ粒子に対して適用できた。また、背景で重要性を記載した、in-situ 測定も実行できた。

(1-1) Pd ナノ粒子の局所原子配列構造と電子状態、および PdPt ナノ粒子の局所原子配列構造の研究

Pd のナノ粒子 (NP) は、高い水素貯蔵能力を持つことが知られている。少量の Pt を添加することで、貯蔵容量がさらに向上することが分かっている。まず、Pd ナノ粒子の局所原子配列構造と電子状態を調べた ()。Pd ナノ粒子 (NPs) の構造秩序、電子構造と水素貯蔵特性の関係を、シンクロトロン X 線を基にした HEXRD、RMC、XAFS、HAXPES を用いて調べた。試料の平均粒子直径は 2.0, 4.6, 7.6 nm であった。得られた知見は a) 2.0 nm の Pd NP の格子定数は、直径 4.6 または 7.6 nm の Pd NP の格子定数よりも大きいことが観察された。b) 粒子径が大きくなると、構造秩序が高くなり格子定数と原子変位が減少し、配位数が増加した。c) 大きな NP のコア部分の構造秩序は、小さな NP のそれよりも高かった。d) Pd-H 形成の結合強度は、粒子径の増加とともに増加した。Pd NP の表面秩序は、水素貯蔵容量と Pd-H 結合強度の増加に関連すると示唆された。

次に、Pd NPs (直径 6.1 nm) Pd コアおよび Pt シェル構造を有する Pd-core/Pt-shell NPs とそれから作製された Pd-Pt 固溶体 NP を調べた ()。その化学成分と直径は、それぞれ Pd_{0.92}Pt_{0.08}: 6.7 nm、Pd_{0.79}Pt_{0.21}: 8.1 nm、Pd_{0.5}Pt_{0.5}: 11.2 nm である。Rietveld 解析から得られた Pd NPs の格子定数はバルク値よりも大きかった。RMC モデリングから、無秩序な構造を持っていることが分かった。Pd-core/Pt-shell (CS) NPs については、コア/シェル界面での格子緩和のために、格子定数は Pt 含有量と共に小さくなった。他方、水素吸脱着の反応過程の後得られた PdPt 固溶体 (SS) 合金 NP の格子定数は、Pt 含有量が増えると伸び、Vegard の法則に従った。目的で掲げた、局所構造秩序度を表す BOO を用い、固溶体 NPs の原子配列構造の秩序度を評価でき、Pt 含有量と共に減少することが見出した。目的で掲げた通り、2 元合金のナノ粒子内の固溶度を新たに定義し、Pd_{0.92}Pt_{0.08}、および Pd_{0.79}Pt_{0.21} NPs の固溶度やモデリングされた 3 次元の RMC 構造から Pd および Pt 原子が本質的にランダムにナノ粒子内で分布していることを示している。

さらに、Pd-Pt CS NPs が、水素吸蔵・脱離 (PHAD) 過程を経て形成される Pd-Pt SS 相で、水素貯蔵能力が向上するメカニズムを調べるため、XAFS を用い Pd と Pt の周辺の局所原子配列構造を調べた ()。CS NPs では、Pd 構造に顕著なストレスが見られ、バルクの Pd よりも高い原子対距離が観察された。また、界面領域に形成された Pd-Pt 合金は、Pt-Pt および Pt-Pd 原子対距離の乱れと非調和分布に起因し、バルク Pd および Pt の両方と比較して局所構造にずれがあることが分かった。SS 相では、歪んだ Pd NPs は緩和して、Pd にはかなりの割合で fcc 構造が残っている。さらに、界面合金は SS 合金相に均質に分布していた。この新しい合金相は、ユニークな構造特性を持ち、水素貯蔵のための活性な結合部位を提供していると考えられる。活性な結合部位の供給源となる合金相が均一に分布していることで、SS 合金相では水素貯蔵容量を向上できたと説明した。

これまで ex-situ 測定を行っていたが、Pd-Pt CS および Pd-Pt SS NP の水素吸蔵・放出 (PHAD)

過程における水素貯蔵機構と構造変化について、局所構造の変化を調べるため、in-situ XAFS 測定を行なった()。Pd 原子対は、SS 合金 NP よりも CS NP の方がより歪んでいる。PHAD 後の CS NP でも同様に確認された。Pd K 吸収端の XAS データは、CS および SS NP において、信号のほとんどが Pd-Pd 原子対に由来することを示しており、PHAD 後でも Pd クラスタが存在することを示唆している。PHAD は界面構造の再配列を引き起こし、均一な分布を持つようになる。SS 合金相では活性なバイメタルサイトの被覆率が高いため、より高い水素貯蔵容量が観測されると結論した。

(1-2)水素貯蔵特性に関連した Rh, AgRh ナノ粒子の局所原子配列構造の研究

300K および 373K で時分割 XAFS を用い、Rh NP の構造変化を in-situ で調べた()。Rh ナノ粒子の構造は 33.3Hz の速度で変化した。次の知見が得られた。水素の吸収と脱着の間、a) Rh-Rh 原子間距離の差は、粒子サイズの減少と温度の上昇に伴って増減。b)300K での脱着中の Rh 4.0 nm の Rh-Rh 原子間距離の挙動は、他のものと比較して遅い緩和プロセスを示した。c) デバイワラーファクター値は、水素の吸収/脱着中に減少/増加した。d) Rh 4.0nm の水素吸蔵/脱着の活性化エネルギーは Rh 10.5 nm の活性化エネルギーよりも大きい。Rh 4.0 nm の場合、NP 内部での水素吸収は表面でのそれより寄与している。Rh 10.5 nm の場合、Rh 4.0nm とは反対の挙動を示した。

次に、シンクロトロン XRD と XAFS を用い、AgRh SS 合金 NPs の局所原子配列構造と水素吸蔵特性の関係を調べた()。XRD 解析により、合金サンプルは fcc 相であり、格子定数は 0.4015 ± 0.0003 nm であり、バルク Ag (0.408nm) よりも僅かに小さくバルク Rh (0.3803 nm) よりも大きい。XAFS 分析からは以下が分かった。Rh から Ag への電荷移動がこの界面領域で発生することを示唆している。吸収端近傍のプロファイルからは、原子間距離は Ag の周りで圧縮され、Rh の周りで伸びており、試料のかなりの領域では、Rh および Ag NP のナノ/サブナノサイズのドメインが混合していることが分かる。原子レベルでの混合は主に界面領域で発生し、界面領域は水素貯蔵特性の活性部となると考えられる。

(2)シンクロトロン X 線を用いたナノ粒子の研究

Ru ナノ粒子の電子状態や Ir ドープ PdRu ナノ合金の原子配列構造を調べた。

(2-1) 面心立方格子構造(fcc)と六方最密充填構造(hcp)Ru ナノ粒子の選択的化学吸着の研究

Ru NPs の固有の電子構造と表面化学吸着挙動との関係について HAXPES を用いて調べた()。試料は fcc (平均直径 2.4, 5.4 nm) と hcp(2.2, 5.0 nm) であり、ポリビニルピロリドン (PVP) で覆われていた。内殻スペクトル (0 1s と C 1s, Ru 3p_{3/2}) と価電子帯スペクトルを測定し解析した。高い CO 酸化触媒特性を有する fcc Ru 5.4 nm NP は、他の 3 つの NP 試料とは異なり、その表面では CO₂, CO, O₂ 吸着に由来する内殻スペクトルが観察された。これは、中間的な化学吸着が形成され、金属とリガンドとの間、すなわち Ru_{4d} バンドと O_{2p} との間で電子の授受が起こったと解釈した。過密効果を導入しサイズによる表面吸着を説明した。コアレベルのスペクトルだけでなく、価電子帯構造も結晶構造とサイズの違いに大きく影響された。

(2-2) Ir ドープ PdRu ナノ粒子(NP)の熱安定性に関する研究

Ir ドープ PdRu ナノ粒子(NP)の構造の温度変化を調べた()。XAFS の Pd K-吸収端データから、かなりの Pd が偏析し、金属 NP クラスタを形成していることが分かった。PdRuIr NPs では、一部の Pd が Ir と合金を形成しているが、大部分は新しい面心立方構造を持つ Ru-Ir 合金である。Pd と Ir のドーピングによる熱安定性の向上は以前から観測されていたが、温度依存の in situ XAFS を用いて調べた。Ru NPs では、673K で吸収端近傍の特徴が急激に変化し、PdRu と PdRuIr NPs ではそれが徐々に抑制されることがわかった。合金元素を添加することによって、より高い温度まで O₂ による RuO₄ 形成する過程を遅らせ、PdRu および PdRuIr NPs の熱安定性を向上させるのに役立つことが分かった。

さらに、他の金属ナノ粒子研究、酸化物薄膜や GaN の結晶性や太陽電池の電子状態に関する研究も含めて、5 . 主な発表論文等で、論文を最近のものから順番にリストした。

文献

- Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Tayal Akhil, Song Chulho, Kumara L. S. R., Dekura Shun, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami, The relationship between crystalline disorder and electronic structure of Pd nanoparticles and their hydrogen storage properties, RSC Advances, **9**, 2019, 21311. DOI: 10.1039/c9ra02942g
- Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Hiroi Satoshi, Song Chulho, Kumara L. S. R., Tayal Akhil, Chen Yanna, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami, Lattice constant, bond-orientational order, and solid solubility of PdPt bimetallic nanoparticles, Appl. Phys. Lett., **113**, 2018, 071907. DOI: 0.1063/1.5040661
- Tayal Akhil, Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Kumara L.S.R., Song Chulho, Hiroi Satoshi, Chen Yanna, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami, Effects of interfacial structure of Pd-Pt nanoparticles on hydrogen solubility, J. Alloys and

Compounds, **791**, 2019, 1263. DOI: 0.1016/j.jallcom.2019.03.342

Tayal Akhil, Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Kobayashi Hirokazu, Yamamoto Tomokazu, Matsumura Syo, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami, Mechanism of Hydrogen Storage and Structural Transformation in Bimetallic Pd-Pt Nanoparticles, ACS Appl. Materials & Interfaces, **13**, 23502. DOI: 10.1021/acsami.0c22432

Song Chulho, Seo Okkyun, Matsumura Daiju, Hiroi Satoshi, Cui Yi-Tao, Kim Jaemyung, Chen Yanna, Tayal Akhil, Kusada Kohei, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami, Hydrogen absorption and desorption on Rh nanoparticles revealed by in situ dispersive X-ray absorption fine structure spectroscopy, RSC Advances, **10**, 2020, 19751. DOI: 10.1039/d0ra03322g

Tayal Akhil, Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Kusada Kohei, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami, Investigation of microstructure and hydrogen absorption properties of bulk immiscible AgRh alloy nanoparticles, J. Alloys and Compounds, **869**, 159268, 2021. DOI: 10.1016/j.jallcom.2021.159268

Gueye Ibrahima, Kim Jaemyung, Kumara L.S.R., Yang Anli, Seo Okkyun, Chen Yanna, Song Chulho, Hiroi Satoshi, Kusada Kohei, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami, Investigation of selective chemisorption of fcc and hcp Ru nanoparticles using X-ray photoelectron spectroscopy analysis, J. Catalysis, **380**, 2019, 247. DOI: 10.1016/j.jcat.2019.10.004

Tayal Akhil, Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Kusada Kohei, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami, Investigation of Local Structure and Enhanced Thermal Stability of Ir-Doped PdRu Nanoparticles for Three-Way Catalytic Applications, J. Physical Chemistry C, **125**, 2021, 20583. DOI: 10.1021/acs.jpcc.1c05929

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 13件 / うちオープンアクセス 11件）

1. 著者名 Sakata Osami, Yagyu Shinjiro	4. 巻 -
2. 論文標題 Visualizing local bending of lattice planes by extending two-azimuth synchrotron X-ray diffraction datasets to asymmetric reflection	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials: Methods	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) 10.1080/27660400.2023.2199130	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 該当する
1. 著者名 Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Tang Jiayi, Kumara L.S.R., Kimoto Koji, Miki Kazushi, Matsuda Akifumi, Yoshimoto Mamoru, Sakata Osami	4. 巻 945
2. 論文標題 Control of atomic ordering of LiNiO ₂ thin films on a sapphire substrate from rock-salt to layered structure using uniaxial compression	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 169177 ~ 169177
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2023.169177	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 Tayal Akhil, Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Kobayashi Hirokazu, Yamamoto Tomokazu, Matsumura Syo, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 13
2. 論文標題 Mechanism of Hydrogen Storage and Structural Transformation in Bimetallic Pd-Pt Nanoparticles	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 23502 ~ 23512
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsmi.0c22432	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 Tayal Akhil, Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Kusada Kohei, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 125
2. 論文標題 Investigation of Local Structure and Enhanced Thermal Stability of Ir-Doped PdRu Nanoparticles for Three-Way Catalytic Applications	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 20583 ~ 20591
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c05929	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 Kumara Loku Singgappulige Rosantha, Ishikawa Kyohei, Ide Keisuke, Hosono Hideo, Kamiya Toshio, Sakata Osami	4. 巻 125
2. 論文標題 Local Structure Properties of Hydrogenated and Nonhydrogenated Amorphous In-Ga-Zn-O Thin Films Using XAFS and High-Energy XRD	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 13619 ~ 13628
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c02437	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 Gueye Ibrahima, Shirai Yasuhiro, Khadka Dhruva B., Seo Okkyun, Hiroi Satoshi, Yanagida Masatoshi, Miyano Kenjiro, Sakata Osami	4. 巻 13
2. 論文標題 Chemical and Electronic Investigation of Buried NiO 1- , PCBM, and PTAA/MAPbI 3-x Cl x Interfaces Using Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy and Transmission Electron Microscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 50481 ~ 50490
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsami.1c11215	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 Seo Okkyun, Kumara L. S. R., Kim Jaemyung, Hiroi Satoshi, Kusada Kohei, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 92
2. 論文標題 Total x-ray scattering setup for crystalline particles at SPring-8 BL15XU NIMS beamline	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 113905 ~ 113905
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0067938	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 Chen Yanna, Sakata Osami, Morita Hiroyuki, Matsuda Akifumi, Jia Fanhao, Seo Okkyun, Kumara Loku Singgappulige Rosantha, Ina Toshiaki, Kobayashi Eiichi, Kim Jaemyung, Song Chulho, Hiroi Satoshi, Palina Natalia, Lou Yanfang, Ren Wei, Yoshimoto Mamoru	4. 巻 578
2. 論文標題 Electronic states of gallium oxide epitaxial thin films and related atomic arrangement	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 151943 ~ 151943
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2021.151943	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 該当する

1. 著者名 Tang Jiayi, Seo Okkyun, Rocabado David S. Rivera, Koitaya Takanori, Yamamoto Susumu, Nanba Yusuke, Song Chulho, Kim Jaemyung, Yoshigoe Akitaka, Koyama Michihisa, Dekura Shun, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami, Matsuda Iwao, Yoshinobu Jun	4. 巻 587
2. 論文標題 Hydrogen absorption and diffusion behaviors in cube-shaped palladium nanoparticles revealed by ambient-pressure X-ray photoelectron spectroscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 152797 ~ 152797
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2022.152797	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 Tayal Akhil, Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Kusada Kohei, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 869
2. 論文標題 Investigation of microstructure and hydrogen absorption properties of bulk immiscible AgRh alloy nanoparticles	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 159268 ~ 159268
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2021.159268	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 該当する
1. 著者名 Song Chulho, Seo Okkyun, Matsumura Daiju, Hiroi Satoshi, Cui Yi-Tao, Kim Jaemyung, Chen Yanna, Tayal Akhil, Kusada Kohei, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 10
2. 論文標題 Hydrogen absorption and desorption on Rh nanoparticles revealed by in situ dispersive X-ray absorption fine structure spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 19751 ~ 19758
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0ra03322g	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 Seo Okkyun, Tayal Akhil, Kim Jaemyung, Song Chulho, Katsuya Yoshio, Sakata Osami, Tang Jiayi, Lee Nodo, Kim Yong Tae, Ikeya Yuki, Takano Shiori, Matsuda Akifumi, Yoshimoto Mamoru	4. 巻 533
2. 論文標題 Modifying the crystal structures of Fe2O3-doped NiO epitaxial thin films grown at room temperature by controlling the oxygen partial pressure	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 147432 ~ 147432
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2020.147432	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 Gueye Ibrahima, Kim Jaemyung, Kumara L.S.R., Yang Anli, Seo Okkyun, Chen Yanna, Song Chulho, Hiroi Satoshi, Kusada Kohei, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 380
2. 論文標題 Investigation of selective chemisorption of fcc and hcp Ru nanoparticles using X-ray photoelectron spectroscopy analysis	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Catalysis	6. 最初と最後の頁 247 ~ 253
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jcat.2019.10.004	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 該当する

1. 著者名 Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Tayal Akhil, Song Chulho, Kumara L. S. R., Dekura Shun, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 9
2. 論文標題 The relationship between crystalline disorder and electronic structure of Pd nanoparticles and their hydrogen storage properties	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 21311 ~ 21317
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9ra02942g	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 該当する

1. 著者名 Song Chulho, Tayal Akhil, Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Chen Yanna, Hiroi Satoshi, Kumara L. S. R., Kusada Kohei, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 1
2. 論文標題 Correlation between the electronic/local structure and CO-oxidation activity of PdxRu1-x alloy nanoparticles	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nanoscale Advances	6. 最初と最後の頁 546 ~ 553
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8NA00305J	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 該当する

1. 著者名 Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Hiroi Satoshi, Song Chulho, Kumara L. S. R., Tayal Akhil, Chen Yanna, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 113
2. 論文標題 Lattice constant, bond-orientational order, and solid solubility of PdPt bimetallic nanoparticles	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 071907 ~ 071907
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5040661	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 該当する

1. 著者名 Taya Akhil, Chen Yanna, Song Chulho, Hiroi Satoshi, Kumara L. S. R., Palina Natalia, Seo Okkyun, Mukoyoshi Megumi, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 57
2. 論文標題 Local Geometry and Electronic Properties of Nickel Nanoparticles Prepared via Thermal Decomposition of Ni-MOF-74	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 10072 ~ 10080
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.8b01230	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 該当する

1. 著者名 Taya Akhil, Seo Okkyun, Kim Jaemyung, Kumara L.S.R., Song Chulho, Hiroi Satoshi, Chen Yanna, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi, Sakata Osami	4. 巻 791
2. 論文標題 Effects of interfacial structure of Pd-Pt nanoparticles on hydrogen solubility	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 1263 ~ 1269
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2019.03.342	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 Chen Yanna, Sakata Osami, Nanba Yusuke, Kumara Loku Singgappulige Rosantha, Yang Anli, Song Chulho, Koyama Michihisa, Li Guangqin, Kobayashi Hirokazu, Kitagawa Hiroshi	4. 巻 1
2. 論文標題 Electronic origin of hydrogen storage in MOF-covered palladium nanocubes investigated by synchrotron X-rays	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Communications Chemistry	6. 最初と最後の頁 61-1 ~ 8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s42004-018-0058-3	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 該当する

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 10件)

1. 発表者名 SAKATA Osami
2. 発表標題 Visualization of local bending of lattice planes of a GaN wafer by extending SR X-ray RC imaging
3. 学会等名 ASCA2022, 17th International Conference of the Asian Crystallographic Association (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Seo Okkyun, SAKATA Osami
2. 発表標題 Stacking fault density of fcc metal nanoparticles analyzed by Rietveld method
3. 学会等名 ASCA2022, 17th International Conference of the Asian Crystallographic Association (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Osami Sakata
2. 発表標題 Powerful synchrotron x-ray techniques for metal nanoparticle studies
3. 学会等名 The Workshop on Neutron and X-ray Characterizations on Caloric Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 GUEYE Ibrahima
2. 発表標題 Analysis of selective surface interaction of Ruthenium nanoparticles by hard X-ray photoemission spectroscopy
3. 学会等名 ECASIA-19 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Satoshi Hiroi
2. 発表標題 Structural Modeling Technique for Crystalline Metal Nanoparticles by X-ray Total Scattering Data
3. 学会等名 MRM2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 廣井慧、Song Chulho、坂田修身
2. 発表標題 Structural modelnig of metal nanoparticles by x-ray total scattering data
3. 学会等名 AsCA2018 (The Asian Crystallographic Association) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Osami Sakata
2. 発表標題 Synchrotron X-ray researches: Nanosecond-time resolved diffraction for ferroelectric films and photoelectron spectroscopy for metal Rh-based nanoparticles
3. 学会等名 International center for quantum and molecular structure (ICQMS) seminar (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Osami Sakata, C. Song, A. Yang, N. Palina, M. Koyama, & H. Kitagawa
2. 発表標題 Electronic discovery of Rh based alloy nanoparticle catalysts
3. 学会等名 International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure-14 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 廣井慧、Song Chulho、坂田修身
2. 発表標題 The structural modeling technique of metallic nanoparticle using x ray total scattering data
3. 学会等名 79th JSAP Autumn Meeting 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Osami Sakata
2. 発表標題 Research on atomic structures and electronic states of metal nanoparticles
3. 学会等名 Frontier Lectures for New Energy Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Osami Sakata
2. 発表標題 Synchrotron X-ray studies of nanomaterials of ultra-thin films and metal nanoparticles
3. 学会等名 The 13th National Conference on X-ray Diffraction and ICDD Workshop of of Chinese Crystallographic Society (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計0件

〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 結晶格子面分布測定方法	発明者 坂田 修身, キム ジェ ミヨン, ソ オッキュ ン	権利者 国立研究開発法 人物質・材料研 究機構
産業財産権の種類、番号 特許、7134427	取得年 2022年	国内・外国の別 国内

〔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
研究協力者	ソ オッキュン (Seo Okkyun)		
研究協力者	グエイ イブライマ (Gueye Ibrahima)		

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