

令和 6 年 6 月 12 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2021～2023

課題番号：21H05011

研究課題名（和文）よく定義されたゼオライト合成と詳細な構造組織の総合的理解

研究課題名（英文）Synthesis procedure of well-defined zeolite and comprehensive understanding of detailed structure

研究代表者

村松 淳司（Muramatsu, Atsushi）

東北大学・国際放射光イノベーション・スマート研究センター・教授

研究者番号：40210059

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 149,400,000円

研究成果の概要（和文）：本課題では、「よく定義されたゼオライト合成と詳細な構造組織の総合的理解」を目的として研究を推進してきた。ゼオライト合成では、各研究者が有する独自の合成手法を基軸にゼオライト骨格内の原子位置制御に取り組んだ。結果として、これまでには報告されていないレベルでの原子位置制御を実現すると共に新奇な合成手法の開発にも成功した。また、構造組織の総合的理解については、放射光計測を駆使することで、これまでブラックボックスとされてきたゼオライトの結晶化過程についても多くの知見を得ることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ゼオライトは固体酸触媒として古くから用いられており、カーボンニュートラルの達成やSDGsの実現等、昨今の地球規模の課題解決にも貢献できるポテンシャルを有している。一方で、その触媒能や結晶化過程の詳細については未知な点も多い。本研究課題を通して、これまでよりも高い触媒性能を有するゼオライトを開発することができた。また、その要因を放射光計測を駆使することで明らかとした。これらの成果は、学術的意義は勿論のこと、地球環境課題解決の側面における社会的意義も大きいと言える。

研究成果の概要（英文）：The objective of this study was to "synthesis procedure of well-defined zeolite and comprehensive understanding of detailed structure". The original zeolite synthesis technique of each researcher was used to control the location of heteroatoms in the zeolite framework. As a result, we achieved a previously unreported level of atomic location control and developed a new synthesis method. In addition, for a comprehensive understanding of the detailed structure, various synchrotron radiation measurements have provided a great deal of information on the crystallization process of zeolite, which has been considered a black box until now.

研究分野：触媒化学

キーワード：ゼオライト 同型置換 精密構造解析 放射光

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

欲しいものを欲しいだけ、容易に、安全に、環境にやさしく作れるような「モノ作り」はまさに「SDGs」に合致している。モノが「化学品」である場合、鍵となるのは触媒である。本研究では、高度に制御されたナノ空間を有し、選択性、活性、耐久性を兼ね備えたゼオライト触媒に着目した。ゼオライトは、吸着、触媒、イオン交換といったさまざまな目的で古くから工業的に利用されているにも関わらず、その合成・物性に関するケミストリーについては、現代においても未解明な部分が多い。例えば、結晶化機構は勿論、ナノ空間を構成するゼオライト骨格の原子配列ですら未解明であり、その制御手法は確立されていない。ゼオライトの骨格構造は、基本的に SiO_2 から成っているが、Si の一部を他の異種原子 = ヘテロ原子で置換することが可能である。Si 原子との同型置換により導入されたヘテロ原子は、“ $\equiv\text{SiO}$ ” によって囲まれ高度に孤立しているため、ごく少量の導入であっても、通常の担持触媒にはない触媒機能を示し、そこに細孔構造に起因する形状選択性も加わり、ゼオライト触媒は、固体触媒の代表格として幅広く応用されてきた。つまり、ゼオライトの多様な触媒機能の根源は、骨格内に存在しているヘテロ原子(異種原子)であると言える。したがって、近年では、ヘテロ原子(活性点)位置の制御に着目した研究が盛んに行われている。ゼオライト骨格中のヘテロ原子(活性点)位置制御の究極の理想形は、原子(T サイト:四面体(Tetrahedron)部分構造の中心)レベルでの配列制御であり、ゼオライト触媒機能の真の力を引き出すには必要不可欠な技術である。これらの理想形の実現には、「局所構造を原子レベルで解析する技術の欠如」といった大きな問題点が存在する。現状では、計算化学、リートベルト解析、イオン交換能の評価、固体 NMR 測定、触媒性能などの間接的な証拠をかき集めることによって、ぼんやりと証明しているに過ぎず、まだまだ課題は山積みである。

このような状況下で、近年、目まぐるしい発展を遂げているのが、放射光を用いた材料解析である。1895年にX線が発見されてから今日まで、その平均輝度は約15桁以上にも向上しており、現在では様々な科学分野で必須のツールとなっている。触媒化学の分野もその例外ではなく、非破壊な触媒解析ツールとして、構造解析は勿論のこと、*in-situ* および *operand* 測定による触媒反応機構の推定にも用いられている。放射光を利用した測定では、単にモノを拡大して見るだけでなく、元素識別、化学結合など電子状態や、磁気的性質を可視化する、様々な測定手法が利用可能である。しかしながら、放射光を利用したゼオライト触媒の解析手法は、X線吸収分光(XAS)測定などによる、ヘテロ原子のゼオライト骨格内導入の有無の確認程度で、より高度な解析へと応用しきれていないのが現状である。もし、放射光を利用することで、ゼオライト構造を原子レベルで理解することが可能になれば、ゼオライト科学の発展に大きく立ちはだかっている「局所構造を原子レベルで解析する技術の欠如」という壁を取り壊すブレイクスルーになることは自明である。このような背景から本研究の立案に至った。

2. 研究の目的

本研究では、「よく定義されたゼオライト合成と詳細な構造組織の総合的理解」を目的としている。合成したゼオライトの原子レベルでの局所構造解析は勿論のこと、それに基づくゼオライト結晶化機構の解明、さらには新しいゼオライト材料の創製を目指す。まずは、「よく定義されたゼオライト合成」を行う必要がある。ここで「よく定義された」とは「サイズ、形態、組成、構造が一義的に決まっいて、それ以外の不純物が無い状態のこと」を意味する。得られた「よく定義されたゼオライト」を用いた局所構造の解析手法の開発、さらにはそれに基づく結晶化機構の解明までを目的とすることで、従来、ゼオライト科学の分野でブラックボックスとされてきた多くの謎を解き明かす。

3. 研究の方法

本研究は、合成班と解析班に大別され、役割および研究方法は以下の通りである(図1)。

【合成班:村松G・横井G・藪下G】

村松Gでは、メカノケミカル法によるゼオライトナノ粒子合成を行う。メカノケミカル法を用いることで、骨格中に均一にヘテロ原子を配置することができる。これに加え、横井Gは有機・無機相互作用を駆使したヘテロ原子位置制御型ゼオライト合成を進めることでメカノケミカル法とは異なるヘテロ原子配置を実現する。さらに藪下Gは原子配列・構造制御型複合酸化物をゼオライト合成の前駆体とすることでヘテロ原子位置を制御する手法に取り組んでいるため、各Gの手法を用いることで、同じゼオライト骨格構造でも、ヘテロ原子の位置が異なるゼオライトを合成することが可能であると同時に、様々な金属種に対応できる。

【解析班:西堀G・脇原G・真木G・大須賀G】

放射光を用いた精密構造解析では、XAFS、DAFS測定(西堀G)、放射光X線の全散乱・異常散乱(脇原G)、粉末X線構造回折と電子密度分布測定(真木G)の3つを主軸において検討を

進める。放射光 X 線の全散乱・異常散乱を用いた解析では、合成後のゼオライトのみではなく、ゼオライトができる前の非晶質にも適用可能であるため、*in-situ* 測定へと展開することで、ゼオライト結晶化過程の解明に向けたアプローチが可能である。XAFS 測定では、Al に着目する。Al の K 吸収端のエネルギーは Si の K 吸収端と近接しているため、EXAFS 解析が困難であり、ゼオライトに関する報告例が極端に少ない。西堀 G では、XANES スペクトル解析から近接原子間の結合長比を求める手法を確立しており、ゼオライト中の金属 - 酸素間結合長の解析へ適用することでより精密な局所構造解析に取り組む。粉末 X 線構造回折と電子密度分布測定では、アモルファスから、結晶性の高い「よく定義された」材料になるまでの合成プロセスを含めて、構造組織の不均一性を評価することが可能であり、MEM/Rietveld 法を活用して、導入元素が骨格構造に含まれるかを評価する手法を確立する。また、これらの分析データをサポートする形で、IR や Raman、NMR などを組み合わせた構造解析を行っていく（大須賀 G）。特にプローブ分子を用いた *in-situ* IR 測定では、プローブ分子のサイズを適切に選択することで、ヘテロ原子の存在する細孔サイズなどを特定することが可能である。

【実用ゼオライト触媒の構造解析と新規なゼオライト開発：全 G】

本研究の集大成として、進化した合成技術と放射光を駆使した詳細解析手法により、真にヘテロ原子位置が制御されたゼオライト合成、つまりヘテロ原子を導入する T サイトを自由自在に操ることを達成する。また、解析班としては、これまで工業触媒として第一線で活躍している ZSM-5 (MFI 型) のような複雑な実用触媒を対象とし、精密構造解析を行うことで、高性能なゼオライト触媒の要因を解明する。

4. 研究成果

■合成班：村松 G・横井 G・藪下 G

合成班では、各 G の合成戦略に基づいた独自のアプローチで「よく定義されたゼオライト」の合成に取り組み、論文発表や学会発表を行ってきた。村松 G では、藪下 G と連携し、メカノケミカル (MC) 法を用いた Fe 含有 MWW 型ゼオライト ([Fe]-MWW) の合成に成功した (図 2, *J. Jpn. Petrol. Inst.*, 2022, 66, 246-253)。Fe を骨格内に含有するゼオライトは、合成後の焼成段階などにおいて、骨格外の Fe 種が生成しやすいと言った欠点が存在する。今回合成した Fe-MWW は、従来の水熱合成方で合成した Fe-MWW に比べ、より多くの Fe 種を骨格内に導入されていることが確認され、触媒としては勿論のこと、本申請研究で目指す精密構造解析の対象としても優れていると言える。実際に西堀 G と連携し、放射光を用いた種々の分析を開始している。また、最近では本合成手法を用いることで Fe 含有 CHA 型 ([Fe]-CHA) ゼオライトを合成可能であることを見出した。[Fe]-CHA は、通常の水熱合成法により合成ができなかった一方で、MC 法を用いることで単相での合成が実現できた。これまで、MC 法を用いることでヘテロ元素の骨格導入が容易なることを報告してきたが、本系においてはゼオライトの結晶化自体を促進する効果が見出され、今後さらなる発展が期待できる成果となった。

横井 G では有機・無機相互作用を駆使したヘテロ原子位置制御型ゼオライト合成を進めることでメカノケミカル法とは異なるヘテロ原子配置に挑んだ。成果の一つとして、2021 年度～2022 年度に取り組んだ大細孔と中細孔からなる 3 次元細孔構造を有しており、注目されているゼオライトの 1 種である MSE 型ゼオライトの Al 原子位置分布の評価に関して記載する (*Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2022, 24, 4358-4365)。MSE 型ゼオライトは三次元細孔構造を持ち、互いに交差した 12-10-10 員環と 10 員環のみと繋がっているスーパーケージを持っている。現在、MCM-68 と UZM-35 の 2 種類の MSE 型ゼオライトが報告されており、それらは異なる有機構造規定剤 (OSDA) を用いて合成される。合成に用いられる OSDA の違いにより、ゼオライト内の酸点分布が異なるかを調べるため、²⁷Al MAS ならびに ²⁷Al MQMAS NMR 測定を実施した。この他、pyridine (Py) と 2,6-di-tert-butylpyridine (DTBPy) をプローブ分子として用い *in-situ* FTIR 測定により実施し、MSE

よく定義されたゼオライトの合成

～精密制御されたゼオライトの設計から合成法開発まで～

- 村松 淳司 (代表者、東北大学・教授)
- 研究総括 / メカノケミカル法ゼオライト合成法開発
- 横井 俊之 (分担者、東京工業大学・准教授)
- ゼオライト骨格内ヘテロ原子位置の制御手法の開発
- 藪下 瑞帆 (分担者、東北大学・助教)
- 原子配列・構造が制御された前駆体を用いたゼオライト合成

ゼオライトの詳細な構造組成解析

～放射光を用いた全く新しい評価手法の開発～

- 西堀 麻衣子 (分担者、東北大学・教授):
- XANES, XAFS, DAFS 等による構造解析
- 脇原 徹 (分担者、東京大学・教授)
- 放射光 X 線全散乱・異常散乱による構造解析
- 真木 祥千子 (分担者、東北大学・講師):
- 放射光を用いた粉末 X 線回折・電子密度解析
- 大須賀 遼太 (分担者、東北大学・助教)
- IR, Raman, NMR による局所構造解析

研究協力者:

西堀 英治 (筑波大学・教授)

小原 真司 (物質・材料研究機構・主幹研究員)

図 1 本研究のメンバーと役割

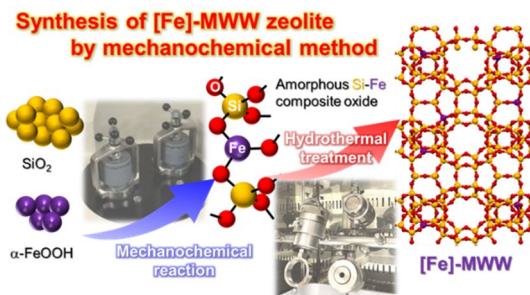


図 2. メカノケミカル法による Fe-MWW の合成 (村松 G・藪下 G・西堀 G)

型ゼオライトの 12 員環及び 10 員環に存在する Brønsted 酸量を区別して算出した。これらの検討は大須賀 G との連携の下で行われた。両ゼオライトの ^{27}Al MQMAS NMR スペクトルを図 3 に示す。12 員環に存在する骨格内 Al の量 (T-c サイト) が、UZM-35 と比べて MCM-68 の方が多いことが分かった。また、2 種類のプローブ分子を用いた *in-situ* IR 測定から、MCM-68 の方が UZM-35 と比べて、12 員環に存在する Brønsted 酸量の割合が約 20% 高いことが分かった。以上より、同じ骨格構造であっても、合成に用いる OSDA により骨格内 Al 原子位置分布を制御できることが分かった。また、2023 年度には MFI 型アルミノシリケートのである ZSM-5 の酸点位置分布制御に関して、よりハイシリカ領域での制御に成功した (論文投稿中)。これまで横井 G では、MFI 型ゼオライトにおいては、図 4 に示したように、骨格内 Al 原子の位置として広い空間 (チャンネルとチャンネルの交差点にあたるインターセクション) に優先的に配置する、またはチャンネルのみの狭い空間に優先的に配置する手法の開発に成功している。しかし、狭い空間に優先的に配置する場合、ハイアルミな領域 ($\text{Si}/\text{Al} < 30$) でしか達成できていならず、触媒応用が制限されていた。今回、pentaerythritol (PET) と Tetrapropylammonium Hydroxide (TPAOH) を混合することで、 $\text{Si}/\text{Al} = 100$ 程度の領域でも狭い空間に優先的に配置されている ZSM-5 の合成に成功した。PET の存在により TPA^+ と $[\text{AlO}_4]^-$ が抑えられ、広い空間への Al の導入量を減らすことができたと考えている。加えて、アルコール類の転換反応において長寿命化を達成した。

藪下 G は、ヘテロ原子ペアサイト構造 (原子配列: $\text{M}-\text{O}-\text{Si}-\text{O}-\text{M}$; $\text{M} = \text{Al}$ or Ga) を意図的に構築するための新規手法の確立を目標として研究を推進した。ここで「意図的な」と表記しているのは、ゼオライト骨格中のヘテロ原子含有量を増やすことによって確率論的にペアサイト構造を構築する事例と明確に区別するためである。本研究では、まず、ヘテロ原子含有量を増やすことによって確率論的にペアサイト量を増大させた非晶質 $\text{Si}-\text{M}$ 複合酸化物を錯体重合法によって調製し、これを水熱処理に供することによって、あらかじめ形成したペアサイト構造をゼオライト骨格中に転写することを試みた。その結果、非晶質 $\text{Si}-\text{Ga}$ 複合酸化物を前駆体とした場合に、CHA 型あるいは MFI 型骨格中に Al ペアサイトを転写・構築が可能であり、また、前駆体を母ゲルに加えてからの室温での攪拌時間に応じて Al ペアサイト量を変化させられることを明らかにした (図 5, *Chem. Commun.* 2021, 57, 13301–13304 (Back Cover に採用); *J. Jpn. Petrol. Inst.* 2023, 66, 246–253)。特定の骨格構造中に Al ペアサイトを意図的に構築可能するための方法はこれまでに幾つか報告例があるが (総説: *CrystEngComm* 2021, 23, 6226–6233)、本研究のような複数種類の骨格構造にそのまま適用可能な方法は世界初である。続いて、非晶質 $\text{Si}-\text{Ga}$ 複合酸化物を前駆体として、上記と同様のアプローチを適用したところ、Ga ペアサイトの構築に成功した (*Chem. Commun.* 2024, 60, 3681–3684)。この場合も母ゲルに前駆体を加えてからの攪拌時間によって Ga ペアサイト量のコントロールが可能である。Ga ペアサイトの構築例がそもそも存在せず、同一手法によって複数種類のヘテロ原子ペアサイト構築を達成した例も無いことを踏まえると、上述の結果と合わせ、本研究で開発した手法・転写法は、世界初の汎用的ペアサイト構築法であると言える。また、上記で構築した

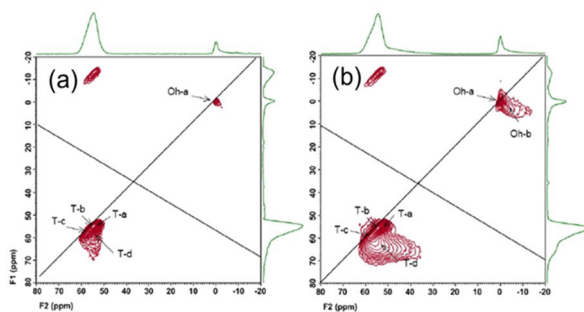


図 3. (a) UZM-35 と MCM-68 の ^{27}Al MQMAS NMR スペクトル (横井 G・大須賀 G)

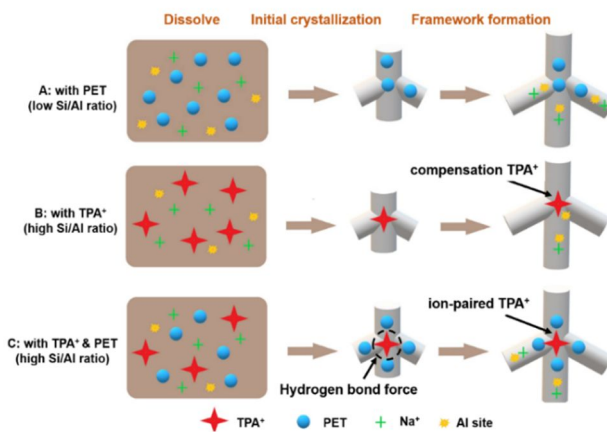


図 4. OSDA と有機添加剤を駆使した骨格内 Al 原子位置制御 (横井 G)

を混合することで、 $\text{Si}/\text{Al} = 100$ 程度の領域でも狭い空間に優先的に配置されている ZSM-5 の合成に成功した。PET の存在により TPA^+ と $[\text{AlO}_4]^-$ が抑えられ、広い空間への Al の導入量を減らすことができたと考えている。加えて、アルコール類の転換反応において長寿命化を達成した。

藪下 G は、ヘテロ原子ペアサイト構造 (原子配列: $\text{M}-\text{O}-\text{Si}-\text{O}-\text{M}$; $\text{M} = \text{Al}$ or Ga) を意図的に構築するための新規手法の確立を目標として研究を推進した。ここで「意図的な」と表記しているのは、ゼオライト骨格中のヘテロ原子含有量を増やすことによって確率論的にペアサイト構造を構築する事例と明確に区別するためである。本研究では、まず、ヘテロ原子含有量を増やすことによって確率論的にペアサイト量を増大させた非晶質 $\text{Si}-\text{M}$ 複合酸化物を錯体重合法によって調製し、これを水熱処理に供することによって、あらかじめ形成したペアサイト構造をゼオライト骨格中に転写することを試みた。その結果、非晶質 $\text{Si}-\text{Ga}$ 複合酸化物を前駆体とした場合に、CHA 型あるいは MFI 型骨格中に Al ペアサイトを転写・構築が可能であり、また、前駆体を母ゲルに加えてからの室温での攪拌時間に応じて Al ペアサイト量を変化させられることを明らかにした (図 5, *Chem. Commun.* 2021, 57, 13301–13304 (Back Cover に採用); *J. Jpn. Petrol. Inst.* 2023, 66, 246–253)。特定の骨格構造中に Al ペアサイトを意図的に構築可能するための方法はこれまでに幾つか報告例があるが (総説: *CrystEngComm* 2021, 23, 6226–6233)、本研究のような複数種類の骨格構造にそのまま適用可能な方法は世界初である。続いて、非晶質 $\text{Si}-\text{Ga}$ 複合酸化物を前駆体として、上記と同様のアプローチを適用したところ、Ga ペアサイトの構築に成功した (*Chem. Commun.* 2024, 60, 3681–3684)。この場合も母ゲルに前駆体を加えてからの攪拌時間によって Ga ペアサイト量のコントロールが可能である。Ga ペアサイトの構築例がそもそも存在せず、同一手法によって複数種類のヘテロ原子ペアサイト構築を達成した例も無いことを踏まえると、上述の結果と合わせ、本研究で開発した手法・転写法は、世界初の汎用的ペアサイト構築法であると言える。また、上記で構築した

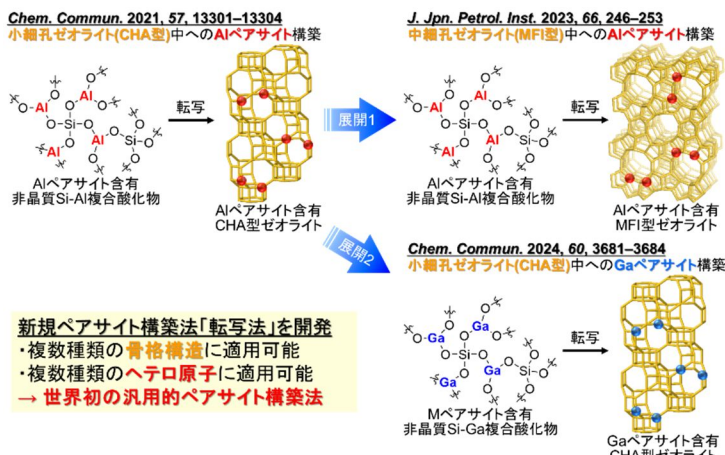


図 5. 転写法によるヘテロ原子ペアサイトの構築 (藪下 G・村松 G)

Al ペアサイトや Ga ペアサイトは 2 価カチオン捕捉サイトとして機能することができることを実証した。例えば、Al ペアサイト含有 CHA 型ゼオライトは、同位体の一つに放射性のものがある Sr^{2+} を効率的に捕捉可能であり、通常の方法で調製した対照試料 (= 意図的なペアサイト構築を行っていない試料) と比べて高いイオン交換容量を示す。すなわち、開発したペアサイト含有ゼオライトは、水質浄化のためのイオン交換体としての応用が期待される。

■解析班：西堀 G・脇原 G・真木 G、大須賀 G

西堀 G では、放射光 X 線分光を用いてゼオライト骨格中ヘテロ原子 (Fe) を元素選択的に分析し、ヘテロ原子の局所構造解析に挑んだ。なお、測定対象は Fe 含有ゼオライトとし、メカノケミカル (MC) 反応を活用して MWW 型を合成した。Fe K-edge XAFS スペクトルから MC 反応による Fe 局所構造変化を追跡したところ、BM 処理時間に応じて酸化鉄に由来する Fe-Fe 結合が減少するとともに、配位数が低下することがわかった。このことは、MC 反応により原料として用いた $\alpha\text{-FeOOH}$ が FeO_4 として SiO_2 中に固溶し、BM 処理時間とともに置換の程度が変化することを示唆する。さらに、MC 反応で得た非晶質前駆体を水熱処理することで Fe 含有 MWW 型ゼオライト (Fe-MWW) を合成したところ、Fe K-edge XAFS スペクトルから前駆体の Pre-edge ピーク強度を維持していることを確認した。つまり、MC 反応によって SiO_2 中に固溶した Fe は水熱処理によって再溶解せず、非晶質前駆体の局所構造を保持したままゼオライトの骨格構造を形成することが明らかとなった (図 6)。また、村松 G、横井 G、大須賀 G との連携による関連成果を学術論文として報告した (*J. Jpn. Petrol. Inst.*, **2022**, *66*, 246–253; *ACS Catal.*, **2023**, *13*, 11057–11068; *ACS Catal.*, **2023**, *13*, 16168–16178)。

脇原 G は、高エネルギー X 線全散乱 (HEXTS) 法と異常 X 線散乱 (AXS) 法を駆使して、ゼオライトの結晶化過程の解明に取り組んだ。CHA 型ゼオライトの結晶化過程を研究するために、*in-situ* HEXTS 測定を行った。その結果、6 員環と 8 員環 (6R および 8R) の数が著しく増加する前の誘導期において、秩序化した 4 員環 (4R) が支配的に形成されること明らかとなった。これらの予め形成された秩序化 4R は、有機構造指示剤の助けを借りて、6R と 8R を含む *d6r* と *cha* 複合構成単位の形成に寄与し、ゼオライト結晶子の構築につながる。ゼオライト合成の誘導期において、このような明確な環形成情報を得たのは本成果が初めてである (図 7, *J. Am Chem. Soc.*, **2022**, *144*, 23313–23320)。

これらの結果に基づき、さらに脱アルミニウムによって非晶質前駆体の局所構造を操作し、CHA 結晶化に有利な局所秩序構造を得ることで、CHA 型ゼオライトの高速合成にも成功した。また、真木 G は脇原 G と連携することで *in-situ* PDF 解析用のセルを開発した。大須賀 G は、赤外分光 (IR) 法を用いたゼオライト骨格内の酸点位置分布制御に取り組んだ。特に横井 G が推進してきた骨格内 Al 原子分布が制御されたゼオライト触媒を重点的に解析し、MSE 型ゼオライトの骨格内 Al 原子位置の違いを明らかにした (図 8, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **2022**, *24*, 4358–4365)。

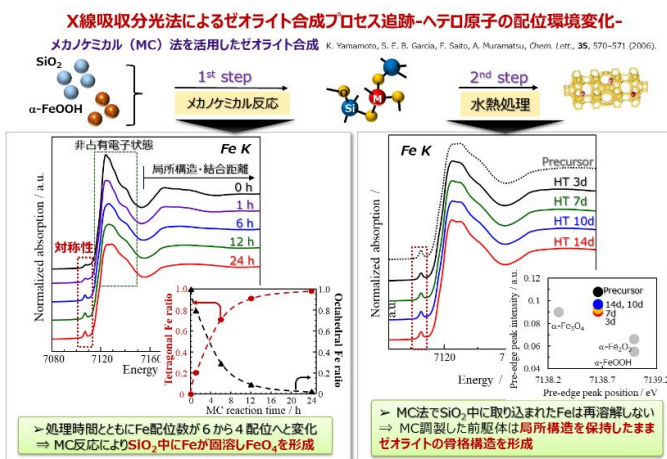


図 6. X 線吸収分光法によるゼオライト合成プロセスの追跡 (西堀 G・村松 G・大須賀 G)

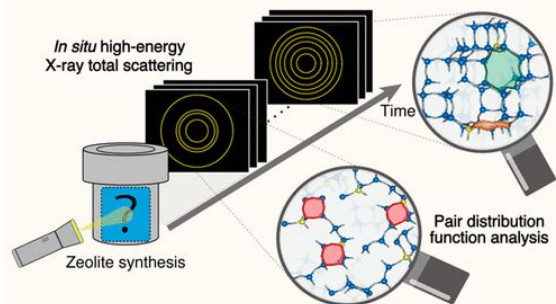


図 7. *in-situ* HEXTS 測定による CHA 型ゼオライトの結晶化過程の解明 (脇原 G)



図 8. *in-situ* IR 測定によるゼオライト骨格内 Al 原子位置の解析 (大須賀 G・横井 G)

大須賀 G は、赤外分光 (IR) 法を用いたゼオライト骨格内の酸点位置分布制御に取り組んだ。特に横井 G が推進してきた骨格内 Al 原子分布が制御されたゼオライト触媒を重点的に解析し、MSE 型ゼオライトの骨格内 Al 原子位置の違いを明らかにした (図 8, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **2022**, *24*, 4358–4365)。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計27件（うち査読付論文 25件 / うち国際共著 11件 / うちオープンアクセス 7件）

1. 著者名 Xiao Peipei, Wang Yong, Lu Yao, Nakamura Kengo, Ozawa Nobuki, Kubo Momoji, Gies Hermann, Yokoi Toshiyuki	4. 巻 146
2. 論文標題 Direct Oxidation of Methane to Methanol over Transition-Metal-Free Ferrierite Zeolite Catalysts	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 10014 ~ 10022
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.4c00646	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 Zhao Liang, Xiao Pei-Pei, Wang Yong, Lu Yao, Karim Tahta Muslim, Gies Hermann, Yokoi Toshiyuki	4. 巻 16
2. 論文標題 Modulation of Al Distribution in High-Silica ZSM-5 Zeolites for Enhancing Catalytic Performance	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 17701 ~ 17714
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssami.4c02311	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 Xiao Peipei, Wang Yong, Wang Lizhuo, Toyoda Hiroto, Nakamura Kengo, Bekhti Samya, Lu Yao, Huang Jun, Gies Hermann, Yokoi Toshiyuki	4. 巻 15
2. 論文標題 Understanding the effect of spatially separated Cu and acid sites in zeolite catalysts on oxidation of methane	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 2718
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-024-46924-2	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 Xiao Peipei, Wang Yong, Lu Yao, Nakamura Kengo, Ozawa Nobuki, Kubo Momoji, Gies Hermann, Yokoi Toshiyuki	4. 巻 146
2. 論文標題 Direct Oxidation of Methane to Methanol over Transition-Metal-Free Ferrierite Zeolite Catalysts	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 10014 ~ 10022
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.4c00646	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 Kaneko Takumi, Yabushita Mizuho, Osuga Ryota, Sawada Yugo, Sato Kei, Liu Ben, Nakagawa Yoshinao, Nakajima Kiyotaka, Tomishige Keiichi	4. 巻 60
2. 論文標題 Formation of paired Ga sites in CHA-type zeolite frameworks <i>via</i> a transcription-induced method	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 3681 ~ 3684
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D4CC00186A	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 Hu Peidong, Deguchi Makiko, Yamada Hiroki, Kobayashi Kentaro, Ohara Koji, Sukenaga Sohei, Ando Mariko, Shibata Hiroyuki, Machida Akihiko, Yanaba Yutaka, Liu Zhendong, Okubo Tatsuya, Wakihara Toru	4. 巻 26
2. 論文標題 Revealing the evolution of local structures in the formation process of alkaline earth metal cation-containing zeolites from glasses	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 116 ~ 122
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3CP04954J	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 Yoshioka Tatsushi, Iyoki Kenta, Yanaba Yutaka, Okubo Tatsuya, Wakihara Toru	4. 巻 132
2. 論文標題 Dealumination of RHO zeolite by acid treatment and recrystallization with organic pore filler	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 45 ~ 49
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.23156	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 IMANISHI Yoshiyasu, OSUGA Ryota, MURAMATSU Atsushi, YABUSHITA Mizuho	4. 巻 66
2. 論文標題 Construction of Paired Al Sites in High-silica MFI-type Zeolite Framework via Transcription-induced Method	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Petroleum Institute	6. 最初と最後の頁 246 ~ 253
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1627/jpi.66.246	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 Xiao Peipei, Nakamura Kengo, Lu Yao, Huang Jun, Wang Lizhuo, Osuga Ryota, Nishibori Maiko, Wang Yong, Gies Hermann, Yokoi Toshiyuki	4. 巻 13
2. 論文標題 One-Pot Synthesized Fe-AEI Zeolite Catalysts Contribute to Direct Oxidation of Methane	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 16168 ~ 16178
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.3c04675	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 Li Boqing, Iyoki Kenta, Techasarintr Piyapatch, Elangovan Shanmugam P., Simancas Raquel, Okubo Tatsuya, Yokoi Toshiyuki, Wakihara Toru	4. 巻 13
2. 論文標題 Hydrophobicity Manipulation of Titanium Silicalite-1 with Enhanced Catalytic Performance via Liquid-Mediated Defect Healing Treatment	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 15155 ~ 15163
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.3c03339	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 Xiao Peipei, Wang Yong, Nakamura Kengo, Lu Yao, De Baerdemaeker Trees, Parvulescu Andrei-Nicolae, Müller Ulrich, De Vos Dirk, Meng Xiangju, Xiao Feng-Shou, Zhang Weiping, Marler Bernd, Kolb Ute, Osuga Ryota, Nishibori Maiko, Gies Hermann, Yokoi Toshiyuki	4. 巻 13
2. 論文標題 Highly Effective Cu/AEI Zeolite Catalysts Contribute to Continuous Conversion of Methane to Methanol	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 11057 ~ 11068
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.3c02271	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 Yabushita Mizuho, Osuga Ryota, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi	4. 巻 13
2. 論文標題 Zeolite-based catalysts for oxidative upgrading of methane: design and control of active sites	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Catalysis Science & Technology	6. 最初と最後の頁 4020 ~ 4044
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3CY00482A	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 Sada Yuki, Miyagi Shoko, Yoshioka Masato, Ishikawa Tomoya, Naraki Yusuke, Sano Tsuneji, Okubo Tatsuya, Wakihara Toru	4. 巻 52
2. 論文標題 Fast Synthesis of CHA-type Zeolite Using Dealuminated Amorphous Aluminosilicates with High Reactivity	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 691 ~ 695
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.230243	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 Nakamura Kengo, Xiao Peipei, Osuga Ryota, Wang Yong, Yasuda Shuhei, Matsumoto Takeshi, Kondo Junko N., Yabushita Mizuho, Muramatsu Atsushi, Gies Hermann, Yokoi Toshiyuki	4. 巻 -
2. 論文標題 Impacts of framework Al distribution and acidic properties of Cu-exchanged CHA-type zeolite on catalytic conversion of methane into methanol followed by lower hydrocarbons	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Catalysis Science & Technology	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) 10.1039/D3CY00127J	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 Xiao Peipei, Wang Yong, Lu Yao, De Baerdemaeker Trees, Parvulescu Andrei-Nicolae, Müller Ulrich, De Vos Dirk, Meng Xiangju, Xiao Feng-Shou, Zhang Weiping, Marler Bernd, Kolb Ute, Gies Hermann, Yokoi Toshiyuki	4. 巻 325
2. 論文標題 Effects of Al distribution in the Cu-exchanged AEI zeolites on the reaction performance of continuous direct conversion of methane to methanol	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Catalysis B: Environmental	6. 最初と最後の頁 122395 ~ 122395
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcatb.2023.122395	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 Yoshida Yuki, Sada Yuki, Sano Tsuneji, Okubo Tatsuya, Wakihara Toru	4. 巻 23
2. 論文標題 Accelerated Crystallization of LTA Zeolite Using a Combination of High-Silica FAU Zeolite with Low Crystallinity and Additional Al Sources	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 2231 ~ 2238
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.cgd.2c01277	査読の有無 無
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 Osuga Ryota, Yabushita Mizuho, Matsumoto Takeshi, Sawada Masato, Yokoi Toshiyuki, Kanie Kiyoshi, Muramatsu Atsushi	4. 巻 58
2. 論文標題 Fluoride-free synthesis of high-silica CHA-type aluminosilicates by seed-assisted aging treatment for starting gel	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 11583 ~ 11586
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2CC04032H	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 Osuga Ryota, Neya Atsushi, Yoshida Motohiro, Yabushita Mizuho, Yasuda Shuhei, Maki Sachiko, Kanie Kiyoshi, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi	4. 巻 61
2. 論文標題 Improvement of Catalytic Activity of Ce-MFI-Supported Pd Catalysts for Low-Temperature Methane Oxidation by Creation of Concerted Active Sites	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Industrial & Engineering Chemistry Research	6. 最初と最後の頁 9686 ~ 9694
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.iecr.2c01410	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 Wang Yong, Yokoi Toshiyuki, Tatsumi Takashi	4. 巻 -
2. 論文標題 Selective production of light olefins over zeolite catalysts: Impacts of topology, acidity, and particle size	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Microporous and Mesoporous Materials	6. 最初と最後の頁 112353 ~ 112353
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.micromeso.2022.112353	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 Minami Ayano, Hu Peidong, Sada Yuki, Yamada Hiroki, Ohara Koji, Yonezawa Yasuo, Sasaki Yukichi, Yanaba Yutaka, Takemoto Masanori, Yoshida Yuki, Okubo Tatsuya, Wakihara Toru	4. 巻 144
2. 論文標題 Tracking Sub-Nano-Scale Structural Evolution in Zeolite Synthesis by In Situ High-Energy X-ray Total Scattering Measurement with Pair Distribution Function Analysis	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 23313 ~ 23320
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.2c05722	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 Tsunoji Nao, Gies Hermann, Funase Natsumi, Kolb Ute, Yokoi Toshiyuki, Sadakane Masahiro, Sano Tsuneji	4. 巻 51
2. 論文標題 Dual Templating for AFX/LEV Intergrowth Zeolite	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 121 ~ 123
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.210605	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 藪下瑞帆	4. 巻 64
2. 論文標題 非晶質複合酸化物からの金属導入ゼオライトの合成とその特異な触媒作用	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 触媒	6. 最初と最後の頁 195 ~ 199
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 Toyoda Hiroto, Osuga Ryota, Wang Yong, Park Sungsik, Yazawa Koji, Gies Hermann, Gilbert Christopher J., Yilmaz Bilge, Kelkar C. P., Yokoi Toshiyuki	4. 巻 24
2. 論文標題 Clarification of acid site location in MSE-type zeolites by spectroscopic approaches combined with catalytic activity: comparison between UZM-35 and MCM-68	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 4358 ~ 4365
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2CP00215A	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 OSUGA Ryota, TANAKA Ginpei, YABUSHITA Mizuho, NINOMIYA Kakeru, MAKI Sachiko, NISHIBORI Maiko, KANIE Kiyoshi, MURAMATSU Atsushi	4. 巻 65
2. 論文標題 Development of Synthetic Route for Fe-substituted MMW-type Zeolites Using Mechanochemical Method	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Petroleum Institute	6. 最初と最後の頁 67 ~ 77
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1627/jpi.65.67	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 Yabushita Mizuho, Imanishi Yoshiyasu, Xiao Ting, Osuga Ryota, Nishitoba Toshiki, Maki Sachiko, Kanie Kiyoshi, Cao Wenbin, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi	4. 巻 57
2. 論文標題 Transcription-induced formation of paired Al sites in high-silica CHA-type zeolite framework using Al-rich amorphous aluminosilicate	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 13301 ~ 13304
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CC05401E	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 Zhendong, Chokkalingam Anand, Miyagi Shoko, Yoshioka Masato, Ishikawa Tomoya, Yamada Hiroki, Ohara Koji, Tsunoji Nao, Naraki Yusuke, Sano Tsuneji, Okubo Tatsuya, Wakihara Toru	4. 巻 24
2. 論文標題 Revealing scenarios of interzeolite conversion from FAU to AEI through the variation of starting materials	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 4136 ~ 4146
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CP03751J	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 Yabushita Mizuho, Osuga Ryota, Muramatsu Atsushi	4. 巻 23
2. 論文標題 Control of location and distribution of heteroatoms substituted isomorphously in framework of zeolites and zeotype materials	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 CrystEngComm	6. 最初と最後の頁 6226 ~ 6233
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CE00912E	査読の有無 無
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60件 (うち招待講演 19件 / うち国際学会 25件)

1. 発表者名 Yokoi Toshiyuki
2. 発表標題 Control of distribution of framework Al atoms in 8-ring zeolites and its impact on catalytic activation of N ₂ O with CH ₄
3. 学会等名 Post-symposium of EAZC5 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Ninomiya Kakeru、Nishibori Maiko、Osuga Ryota、Tanaka Ginpei、Yabushita Muzuho、Kanie Kiyoshi、Muramatsuastushi
2. 発表標題 Synchrotron X-ray spectroscopy for the local structure analysis of heteroatoms in the zeolite
3. 学会等名 APS March Meeting 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yabushita Mizuho
2. 発表標題 Oxidative conversion of methane over heteroatom-introduced zeotype catalysts synthesized from amorphous metallosilicates
3. 学会等名 JPI-KFUPM FY2022 Online Young Researcher Exchange Program (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Nishibori Maiko
2. 発表標題 Synchrotron X-ray Absorption Spectroscopy for heteroatoms in Fe-Substituted Zeolites by Mechanochemical Method
3. 学会等名 4th International Symposium on Porous Materials 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Osuga Ryota
2. 発表標題 Synthesis of high-silica CHA-type aluminosilicates by the seed-assisted aging treatment without fluoride media
3. 学会等名 4th International Symposium on Porous Materials 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ninomiya Kakeru, Osuga Ryota, Tanaka Ginpei, Yabushita Mizuho, Kanie Kiyoshi, Muramatsu Atsushi, Nishibori Maiko
2. 発表標題 X-ray spectroscopy for the distribution analysis of heteroatoms in the zeolite
3. 学会等名 4th International Symposium on Porous Materials 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Michinobu Ryoma, Osuga Ryota, Ninomiya Kakeru, Yabushita Mizuho, Maki Sachiko, Nishibori Maiko, Kanie Kiyoshi, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Synthesis of Ga-Substituted Zeolites by Mechanochemical Method and Their Application to Methane Reforming Reaction
3. 学会等名 4th International Symposium on Porous Materials 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Imanishi Yoshiyasu, Yabushita Mizuho, Osuga Ryota, Kanie Kiyoshi, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Transcription-induced synthesis of zeolites with paired Al sites from Al-rich amorphous aluminosilicate precursor
3. 学会等名 4th International Symposium on Porous Materials 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yokoi Toshiyuki
2. 発表標題 Metal-containing zeolite catalyst: Importance of zeolite framework
3. 学会等名 2022 Taipei International Conference on Catalysis (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yokoi Toshiyuki
2. 発表標題 A new class of zeolite catalyst with location and state of active sites controlled
3. 学会等名 The 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Imanishi Yoshiyasu, Xiao Ting, Yabushita Mizuho, Osuga Ryota, Nishitoba Toshiki, Maki Sachiko, Kanie Kiyoshi, Cao Wenbin, Tokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Transcription-induced formation of Al pair sites in CHA-type aluminosilicate using Al-rich amorphous aluminosilicate precursor
3. 学会等名 The 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yabushita Mizuho, Yoshida Motohiro, Osuga Ryota, Muto Fumiya, Iguchi Shoji, Yasuda Shuhei, Neya Atsushi, Horie Mami, Maki Sachiko, Kanie Kiyoshi, Yamanaka Ichiro, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Mechanochemical Route for MFI Zeolites with Small Ce Species and Their Application to Low-Temperature Oxidative Coupling of Methane
3. 学会等名 The 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Osuga Ryota, Tanaka Ginpei, Yabushita Mizuho, Ninomiya Kakeru, Maki Sachiko, Nishibori Maiko, Kanie Kiyoshi, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Mechanochemical Synthesis of Fe-Substituted MWW-type Zeolite Catalysts
3. 学会等名 The 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Michinobu Ryoma, Osuga Ryota, Ninomiya Kakeru, Yabushita Mizuho, Maki Sachiko, Nishibori Maiko, Kanie Kiyoshi, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Synthesis of Ga-Substituted Zeolites by Mechanochemical Method and Their Catalytic Application to Methane Reforming Reaction
3. 学会等名 The 9th Tokyo Conference on Advanced Catalytic Science and Technology (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hu Peidong
2. 発表標題 Revealing the amorphous-to-crystalline transformation in zeolite synthesis using high-energy X-ray total scattering measurement
3. 学会等名 Post Symposium of TOCAT9 in Sendai -Next Generation Synchrotron Radiation Facility Utilization for Catalysts Characterization (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Michinobu Ryoma, Osuga Ryota, Ninomiya Kakeru, Yabushita Mizuho, Maki Sachiko, Nishibori Maiko, Kanie Kiyoshi, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Synthesis of Ga-Substituted Zeolites by Mechanochemical Method and Their Catalytic Performance in Methane Reforming Reaction
3. 学会等名 Post Symposium of TOCAT9 in Sendai -Next Generation Synchrotron Radiation Facility Utilization for Catalysts Characterization (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Imanishi Yoshiyasu, Xiao Ting, Yabushita Mizuho, Osuga Ryota, Nishitoba Toshiki, Maki Sachiko, Kanie Kiyoshi, Cao Wenbin, Tokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Formation of paired Al sites in CHA-type zeolites by using Al-rich amorphous aluminosilicate precursors
3. 学会等名 Post Symposium of TOCAT9 in Sendai -Next Generation Synchrotron Radiation Facility Utilization for Catalysts Characterization (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yabushita Mizuho, Kaneko Takumi, Imanishi Yoshiyasu, Xiao Ting, Osuga Ryota, Nakagawa Yoshinao, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi, Keiichi Tomishige
2. 発表標題 Transcription-Induced Formation of Paired Heteroatom Sites in Zeolite Framework and Their Performance for Divalent Cation Exchange
3. 学会等名 The 6th Symposium for the Core Research Clusters for Materials Science and Spintronics, and the 5th Symposium on International Joint Graduate Program in Materials Science (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Imanishi Yoshiyasu, Xiao Ting, Yabushita Mizuho, Osuga Ryota, Nishitoba Toshiki, Maki Sashiko, Kanie Kiyoshi, Cao Wenbin, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Formation of Al pair sites in CHA-type zeolite frameworks via transcription from Al-rich amorphous aluminosilicates
3. 学会等名 ACS Meetings & Expositions Fall 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Osuga Ryota, Neya Atsushi, Yoshida Motohiro, Yabushita Mizuho, Yasuda Shuhei, Maki Sachiko, Kanie Kiyoshi, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Creation of Concerted Active Sites for Improvement of Catalytic Performance of Ce-MFI-Supported Pd Catalysts in Low-Temperature Methane Oxidation
3. 学会等名 ACS Meetings & Expositions Fall 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Nishibori Maiko, Ninomiya Kakeru, Osuga Ryota, Tanaka Ginpei, Yabushita Mizuho, Mako Sachiko, Kanie Kiyoshi, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 X-ray absorption fine structure analysis of Fe-substituted zeolites synthesized by mechanochemical method
3. 学会等名 Asia-Oceania International Conference on Synchrotron Radiation Instruments (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hu Peidong、Chen Ching-Tien、Iyoki Kenta、Minami Ayano、Sada Yuki、Yamada Hiroki、Ohara Koji、Okubo Tatsuya、Wakihara Toru
2. 発表標題 Revealing the amorphous-to-crystalline transformation in zeolite synthesis by HEXTS with pair distribution function analysis
3. 学会等名 The 20th International Zeolite Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 村松淳司
2. 発表標題 よく定義された結晶性メタロシリケートの合成と放射光を利用した精密構造解析法の開発
3. 学会等名 CREST「革新的触媒」領域 公開成果報告会 「メタン利用革新触媒創生への挑戦から生まれたもの」(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 大須賀遼太、藪下瑞帆、保田修平、真木祥千子、蟹江澄志、横井俊之、村松淳司
2. 発表標題 メカノケミカル法により合成したゼオライト触媒を用いた低温メタン酸化カップリング反応
3. 学会等名 CREST「革新的触媒」領域 公開成果報告会 「メタン利用革新触媒創生への挑戦から生まれたもの」
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 横井俊之
2. 発表標題 N ₂ O-ゼオライトシステムによるメタン増炭反応
3. 学会等名 2022年度 高難度選択酸化反応研究会シンポジウム(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 横井俊之
2. 発表標題 ゼオライト触媒プロセスの最前線：活性点の位置・状態制御と触媒性能
3. 学会等名 第 16 回 触媒劣化セミナー（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 横井俊之
2. 発表標題 ゼオライト触媒による化学品製造プロセスの脱炭素化
3. 学会等名 第32回「規則性多孔体研究会」セミナー（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 二宮翔、西堀麻衣子、大須賀遼太、田中銀平、藪下瑞帆、蟹江澄志、村松淳司
2. 発表標題 X線吸収・発光分光法によるゼオライト骨格中異種金属原子の局所構造解析
3. 学会等名 第36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 2023年

1. 発表者名 大須賀遼太
2. 発表標題 赤外分光法を用いたゼオライトの触媒特性評価
3. 学会等名 第6回ゼオライトセミナー/GSCセミナー（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西堀麻衣子
2. 発表標題 放射光 X 線吸収・発光分光法による金属酸化物ナノ粒子の電子状態解析
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(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西堀麻衣子
2. 発表標題 放射光X線分光による 無機・有機界面相互作用へのアプローチ
3. 学会等名 第41回無機高分子研究討論会(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大須賀遼太、藪下瑞帆、松本剛、澤田真人、蟹江澄志、横井俊之、村松淳司
2. 発表標題 フッ素を用いないハイシリカCHA型アルミノシリケートの合成とMTO反応活性評価
3. 学会等名 第38回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 二宮翔、西堀麻衣子、大須賀遼太、田中銀平、藪下瑞穂、蟹江澄志、村松淳司
2. 発表標題 放射光X線分光によるゼオライト骨格中ヘテロ原子位置分布解析
3. 学会等名 第38回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 吉田悠希、佐田侑樹、佐野庸治、大久保達也、脇原徹
2. 発表標題 低結晶性FAU型ゼオライトを用いたLTA型ゼオライトの結晶化の促進
3. 学会等名 化学工学会第53回秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 吉田悠希、佐田侑樹、佐野庸治、大久保達也、脇原徹
2. 発表標題 低結晶性FAU型ゼオライトを用いたLTA型ゼオライト合成
3. 学会等名 第38回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hu Peidong, Minami Ayano, Sada Yuki, Yamada Hiroki, Ohara Koji, Okubo Tatsuya, Wakihara Toru
2. 発表標題 Revealing the amorphous-to-crystalline transformation in zeolite synthesis using in situ high-energy X-ray total scattering measurement
3. 学会等名 第38回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西堀麻衣子、二宮翔、大須賀遼太、田中銀平、藪下瑞帆、真木祥千、蟹江澄志、村松淳司
2. 発表標題 X線吸収分光によるゼオライト合成メカニズムの追跡
3. 学会等名 第38回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西堀麻衣子、二宮翔、大須賀遼太、田中銀平、藪下瑞帆、真木祥千子、蟹江澄志、村松淳司
2. 発表標題 放射光X線分析によるゼオライト合成メカニズムの解析
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第35回秋季シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 道信亮真、大須賀遼太、二宮翔、藪下瑞帆、真木祥千子、西堀麻衣子、蟹江澄志、横井俊之、村松淳司
2. 発表標題 Ga含有ゼオライト触媒を用いたメタン改質反応
3. 学会等名 第130回触媒討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大須賀遼太、藪下瑞帆、松本剛、蟹江澄志、横井俊之、村松 淳司
2. 発表標題 フッ素フリー条件下でのハイシリカCHA型ゼオライトの合成とMTO反応用触媒としての応用
3. 学会等名 第130回触媒討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 今西佳保、藪下瑞帆、大須賀遼太、真木祥千子、蟹江澄志、横井俊之、村松淳司
2. 発表標題 Alベアサイトを有するゼオライトの合成とSr ²⁺ イオン交換特性評価
3. 学会等名 第52回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大須賀遼太、根谷温、芳田元洋、藪下瑞帆、保田修平、真木祥千子、蟹江澄志、横井俊之、村松淳司
2. 発表標題 Ce含有MFI型ゼオライト担持金属触媒を用いた低温メタン酸化カップリング反応
3. 学会等名 第52回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中村研吾、Xiao Peipei、保田修平、松本剛、大須賀遼太、藪下瑞帆、村松淳司、横井俊之
2. 発表標題 メタンからメタノール、さらには低級オレフィンの直接合成を可能にするゼオライト触媒の創製
3. 学会等名 第52回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 道信 亮真、大須賀遼太、二宮翔、藪下瑞帆、真木祥千子、西堀麻衣子、蟹江澄志、横井俊之、村松淳司
2. 発表標題 Ga含有ゼオライト触媒の合成とメタン転換反応への応用
3. 学会等名 第26回JPIJS若手研究者のためのポスターセッション
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 道信亮真、大須賀遼太、二宮翔、藪下瑞帆、真木祥千子、西堀麻衣子、蟹江澄志、村松淳司
2. 発表標題 メカノケミカル法によるGa含有ゼオライトの合成とメタン改質反応用触媒としての応用
3. 学会等名 日本化学会第 102 春季年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大須賀遼太、藪下瑞帆、二宮翔、保田修平、真木祥千子、西堀麻衣子、蟹江澄志、横井俊之、村松淳司
2. 発表標題 金属担持Ce含有ゼオライトを用いた低温メタン酸化カップリング反応
3. 学会等名 21 回東北大学多 元物質科学研究所研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大須賀遼太、藪下瑞帆、松本剛、蟹江澄志、横井俊之、村松淳司
2. 発表標題 ハイシリカなCHA 型ゼオライトのフッ素フリー合成とMTO 反応活性評価
3. 学会等名 第 37 回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 今西佳保、Ting Xiao、大須賀遼太、藪下瑞帆、真木祥千子、蟹江澄志、横井俊之、村松淳司
2. 発表標題 Alベアサイトを有するCHA型ゼオライトの合成とイオン交換特性評価
3. 学会等名 第 37 回ゼオライト研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tanaka Ginpei、Osuga Ryota、Yabushita Mizuho、Maki Sachiko、Kanie Kiyoshi、Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Synthesis of Fe-containing MWWzeolites via a mechanochemical method and evaluation of catalytic activity
3. 学会等名 The 18th Japan-Korea Symposium on Catalysis (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Imanishi Yoshiyasu, Ting Xiao, Yabushita Mizuho, Osuga Ryota, Nishitoba Toshiki, Maki Sachiko, Kanie Kiyoshi, Cao Wenbin, Yokoi Toshiyuki, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Synthesis of CHA-type zeolites with paired Al sites using Al-rich amorphous aluminosilicate
3. 学会等名 2021 Annual Joint Symposium Tohoku University & National Taipei University of Technology: Exploration-Expansion-Acceleration (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大須賀遼太、芳田元洋、根谷温、保田修平、二宮翔、藪下瑞帆、真木祥千子、西堀麻衣子、蟹江澄志、横井俊之、村松 淳司
2. 発表標題 Ce 含有ゼオライト担持金属触媒による低温メタン酸化カップリング反応
3. 学会等名 第51回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 藪下瑞帆、芳田元洋、大須賀遼太、武藤郁弥、井口翔之、保田修平、根谷温、堀江真未、真木祥千子、蟹江 澄志、山中一郎、横井俊之、村松淳司
2. 発表標題 Ce含有MFI型ゼオライト担持パラジウム触媒による低温メタン酸化カップリング反応
3. 学会等名 第51回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 二宮翔、西堀麻衣子、田中銀平、大須賀遼太、藪下瑞帆、真木祥千子、蟹江澄志、村松淳司
2. 発表標題 メカノケミカル反応によるFe含有非晶質複合酸化物合成メカニズム
3. 学会等名 第51回石油・石油化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tanaka Ginpei, Osuga Ryota, Yabushita Mizuho, Ninomiya Kakeru, Maki Sachiko, Nishibori Maiko, Kanie Kiyoshi, Muramatsu Atsushi
2. 発表標題 Synthesis of Fe-substituted MWW-type zeolites via a mechanochemical method
3. 学会等名 International Symposium on Porous Materials 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 横井俊之
2. 発表標題 ゼオライトの骨格内Al原子位置制御と触媒特性
3. 学会等名 化学工学会 反応分離分科会反応分離シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yabushita Mizuho
2. 発表標題 Heteroatom-containing zeolite catalysts prepared from amorphous metallosilicates for oxidative conversion of methane
3. 学会等名 The 9th Workshop on Next-Generation Utilization of Natural Gas (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Osuga Ryota
2. 発表標題 Synthesis of zeolite catalysts with well-controlled location of catalytic active sites
3. 学会等名 The 5th Foresight Symposium on Organic/Inorganic Nanohybrid Platforms for Precision Tumor Imaging and Therapy (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 非晶質メタロシリケートを前駆体に用いたヘテロ元素含有ゼオライトの合成とその応用
2. 発表標題 藪下瑞帆
3. 学会等名 2021 年度石油学会ジュニア・ソサイアティ討論会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 村松淳司、藪下瑞帆、大須賀遼太、真木祥千子、西堀麻衣子
2. 発表標題 ゼオライト骨格構造評価への放射光計測のアプローチ
3. 学会等名 第 128 回触媒討論会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中銀平、大須賀遼太、藪下瑞帆、真木祥千子、蟹江澄志、村松淳司
2. 発表標題 メカノケミカル法によるFe 含有10員環細孔ゼオライトの合成と触媒活性評価
3. 学会等名 第 128 回触媒討論会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計3件

1. 著者名 村松淳司、大須賀遼太、藪下瑞帆	4. 発行年 2023年
2. 出版社 シーエムシー・リサーチ	5. 総ページ数 442
3. 書名 “メカノケミカル法による結晶性メタロシリケート合成と低温メタン酸化カップリング用触媒への応用” メタンと二酸化炭素 ～その触媒的変換技術の現状と展望～	

1. 著者名 横井俊之	4. 発行年 2023年
2. 出版社 シーエムシー・リサーチ	5. 総ページ数 442
3. 書名 “メタン部分酸化用ゼオライト系触媒の設計” メタンと二酸化炭素 ~その触媒的化学変換技術の現状と展望~	

1. 著者名 Osuga Ryota, Yokoi Toshiyuki	4. 発行年 2022年
2. 出版社 Springer, Singapore	5. 総ページ数 397
3. 書名 "Position Control of Catalytic Elements in Zeolites" Crystalline Metal Oxide Catalysts	

〔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	横井 俊之 (Yokoi Toshiyuki) (00401125)	東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授 (12608)	
研究分担者	藪下 瑞帆 (Yabushita Mizuho) (00835142)	東北大学・工学研究科・助教 (11301)	
研究分担者	真木 祥千子 (Maki Sachiko) (10747299)	東北大学・国際放射光イノベーション・スマート研究センター・講師 (11301)	

6. 研究組織（つづき）

	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	西堀 麻衣子 (Nishibori Maiko) (20462848)	東北大学・国際放射光イノベーション・スマート研究センター・教授 (11301)	
研究分担者	大須賀 遼太 (Osuga Ryota) (30874250)	北海道大学・触媒科学研究所・助教 (10101)	
研究分担者	脇原 徹 (Wakihara Toru) (70377109)	東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・教授 (12601)	

	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	西堀 英治 (Nishibori Eiji)		
研究協力者	小原 真司 (Kohara Shinji)		

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