

研究業績

先進機能材料研究部門・環境材料研究グループ

< 論文 >

“Effect of B site substitution on the catalytic activity of La-based perovskite for oxidative coupling of methane”

R. Gan, Y. Nishida, M. Haneda

Physica Status Solidi B – Basic Solid State Physics, **259**, 2100544 (2022)

A サイトに La を含むペロブスカイト触媒のメタン酸化カップリング活性に及ぼす B サイト置換元素の影響について検討した。検討した触媒の中で、B サイトに Al、Ga、In、Yb を置換した触媒が高い触媒活性を示した。XPS や 16O/18O 交換反応より、B サイト元素が酸素の活性化に寄与することが明らかとなり、移動性の高い表面酸素種がメタン酸化カップリング反応に重要であることが明らかとなった。

“Synthesis and acid catalytic activity of Al-doped spiky-shaped niobium pentoxide”

T. Fuchigami, Y. Oyamada, M. Haneda, S. Nakamura, K. Kakimoto

Physica Status Solidi B – Basic Solid State Physics, **259**, 2100667 (2022)

耐水蒸気性の高い固体酸性を示す Al をドーブした酸化ニオブの合成を検討した。Al 添加量 (1-6mol%) に関係なく、いずれにおいても突起形状の酸化ニオブ粒子を合成できた。4mol% Al をドーブした酸化ニオブがストレッカー反応に対して最も高い触媒活性を示した。ラマン分光測定や NH₃-TPD より、NbO₄ と歪んだ NbO₆ が形成されることで発現する酸点が活性点として作用することを明らかにした。

“Nitrile hydrogenation to secondary amines under ambient conditions over palladium-platinum random alloy nanoparticles”

Y. Nishida, K. Sato, C. Chaudhari, H. Yamada, T. Toriyama, T. Yamamoto, S. Matsumura, S.M. Aspera, H. Nakanishi, M. Haneda, K. Nagaoka

Catalysis Science & Technology, **12**, 4128-4137

(2022)

Pd と Pt のランダム合金ナノ粒子がニトリルの水素化を常温常圧下で触媒し、2 級アミンを高収率で与えることを見出した。相図上、Pd と Pt は非混和性だが、マイクロ波の急速加熱効果を利用した金属塩の還元速度制御によりランダム合金化に成功した。Pd と Pt のランダム合金化で電荷が偏った Pd δ +Pt δ - サイトが形成し、本サイト上でニトリルの吸着および活性化が促進されることを分光分析および DFT 計算により示した。

“Slow synthesis methodology - Directed immiscible octahedral Pd_xRh_{1-x} dual-atom-site catalysts for superior three-way catalytic activities over Rh”

Z. Tan, M. Haneda, H. Kitagawa, B. Huang

Angewandte Chemie International Edition, **61**, e202202588 (2022)

通常の方法では混ざらない Pd と Rh を原子レベルで均一に合金化したナノ粒子の合成に成功した。合金状態は XRD および TEM-EDS 分析により確認した。Rh に対して 1/9 ~ 3/7 の原子比で Pd と合金化することにより、Rh 単独や Pd 単独と比較して高い三元触媒活性を発現することを見出した。

“Operando Spectroscopic Study of the Dynamics of Ru Catalyst during Preferential Oxidation of CO and the Prevention of Ammonia Poisoning by Pt”

K. Sato, S. Zaitzu, G. Kitayama, S. Yagi, Y. Kayada, Y. Nishida, Y. Wada, K. Nagaoka

JACS Au, **2**, 1627-1637 (2022)

改質ガス中の CO を選択的に酸化する Ru/*a*-Al₂O₃ と Pt-Ru/*a*-Al₂O₃ の劣化機構を Operando 条件での XAFS と IR の同時分析により検討した。Ru/*a*-Al₂O₃ では、反応中に生成する NO によって Ru 表面が酸化され、経時的に触媒活性が低下した。これに対し、Ru の 10% を Pt で置換することで Ru-Pt 合金が形成し、Ru の表面酸化が抑制されることで高い耐久性が発現することを立証した。

< 総説・解説・報文・その他 >

「高温排ガス処理を施した貴金属触媒の反応解析」

羽田政明

触媒技術の動向と展望（触媒年鑑），pp.85-93（2022）

「パラジウム-白金ランダム合金ナノ粒子によるニトリルから2級アミンへの選択的水素化」

西田吉秀・佐藤勝俊・永岡勝俊

触媒(Catalysts and Catalysis), 64 (2) pp.73-78 (2022)

「My 研究室ライフ」

後藤玄樹

PETROTECH, 46 (1), 38 (2023)

「ナノエンジニアリングによる高性能触媒の開発」

西田吉秀

触媒(Catalysts and Catalysis), 64 (5) pp.280-284 (2022)

< 口頭発表 >

「アルミナ担持白金触媒のNO酸化活性に及ぼすLa添加の効果」

栗本慶吾・西田吉秀・羽田政明

2022年度第4回資源・環境関連材料部会討論会、
2022年6月30日、名古屋

“Three-way catalytic performance of IrRh nanoparticles supported on Y-stabilized ZrO₂”

Y. Nishida, K. Aono, H. Togashi, S. Ohishi, M. Haneda

12th International Conference on Environmental Catalysis (ICEC2022), 30 July - 2 August, 2022, Osaka

“Effect of crystallite structure of Y-doped ZrO₂ on the morphology of IrRh particles and the three-way catalytic performance of supported IrRh catalyst”

M. Haneda, Y. Nishida, K. Aono, H. Togashi, S. Ohishi

TOCAT9, 24-29 July, 2022, Fukuoka

“Reactivity of lattice oxygen in Ti-site substituted SrTiO₃ catalyst for CO oxidation”

S. Hosokawa, Y. Yoshiyama, M. Haneda, H. Asakura, K. Teramura, T. Tanaka

12th International Conference on Environmental Catalysis (ICEC2022), 30 July - 2 August, 2022, Osaka

“Metal nanoparticles catalyzed hydrogenation of nitriles under ambient conditions”

Y. Nishida, C. Chaudhari, K. Sato, K. Nagaoka, M. Haneda

TOCAT9, 24-29 July, 2022, Fukuoka

“Utilization of highly crystallized CeO₂ as an additive of Pt based catalyst for exhaust gas purification”

H. Tanaka, I. Morita, Y. Nagao, Y. Endo, T. Wakabayashi, M. Haneda

12th International Conference on Environmental Catalysis (ICEC2022), 30 July - 2 August, 2022, Osaka

“Elucidation of oxygen reactivity at Pd-CZ interface in engine-aged three-way catalyst”

M. Haneda, Y. Nakamura, T. Tsuda, F. Kimata, S. Hosokawa, H. Asakura, K. Iwachido

12th International Conference on Environmental Catalysis (ICEC2022), 30 July - 2 August, 2022, Osaka (Invited)

“Spiky-shaped Nb₂O₅ nanoparticles: synthesis, stability and surface reactivity”

T. Fuchigami, Y. Oyamada, P.G. Choi, Y. Masuda, M. Haneda, S. Nakamura, K. Kakimoto

IUMRS-ICYRAM 2022, 3-6 August, 2022, Fukuoka

「イリジウム-ロジウム触媒の合金状態に対するイットリア安定化ジルコニア担体の影響」

西田吉秀・青野剛輝・富樫ひろ美・大石隼輔・羽田政明
日本セラミックス協会 第35回秋季シンポジウム、
2022年9月14-16日、徳島

“Effect of Ca addition on the catalytic activity of BaTiO₃ for oxidative coupling of methane”

R. Gan, Y. Nishida, M. Haneda
第52回石油・石油化学討論会（国際セッション）、
2022年10月27-28日、長野

「低温で機能するハイエントロピー酸化物系酸素吸放出材の開発」

後藤玄樹・西田吉秀・羽田政明
日本セラミックス協会 第35回秋季シンポジウム、
2022年9月14-16日、徳島

「活性金属添加前に飽和脂肪酸添加による重質油脱硫活性の向上」

時津総一郎・小森一幸・山田 晃・羽田政明
第52回石油・石油化学討論会、2022年10月27-28日、
長野

「金属ドーブ Nb₂O₅ ユニ状ナノ粒子の水熱合成と触媒活性」

測上輝顕・松岡拓実・中村修一・羽田政明・柿本健一
日本セラミックス協会 第35回秋季シンポジウム、
2022年9月14-16日、徳島

「リンと亜鉛が水素化脱硫触媒のアルミナ担体へ与える影響」

山田 晃・小森一幸・羽田政明
第52回石油・石油化学討論会、2022年10月27-28日、
長野

「アルミナ担持白金触媒のNO酸化活性に対するランタン添加の影響」

栗本慶吾・西田吉秀・羽田政明
第130回触媒討論会、2022年9月20-22日、富山

「亜鉛・チタンまたは亜鉛・ホウ素添加直接脱硫触媒の開発」

鈴木伸也・山田 晃・小森一幸・羽田政明
第52回石油・石油化学討論会、2022年10月27-28日、
長野

「N₂O分解のための酸化コバルト触媒に対する異種元素添加の効果」

篠原慧也・西田吉秀・羽田政明
第130回触媒討論会、2022年9月20-22日、富山

「アルミナ担体の水熱処理による水素化脱硫触媒活性への影響」

高橋駿佑・山田 晃・鈴木伸也・小森一幸・羽田政明
第52回石油・石油化学討論会、2022年10月27-28日、
長野

「異なる雰囲気熱処理した担持ロジウム触媒上での三元触媒反果」

山川智也・西田吉秀・細川三郎・朝倉博行・羽田政明
第130回触媒討論会、2022年9月20-22日、富山

「アルミナを添加したセリアージルコニア複合体の酸素吸放出特性」

井手水美・西田吉秀・鎌田雅也・三浦真秀・羽田政明
2022年度日本セラミックス協会東海支部 学術研究発表会、2022年12月3日、オンライン

「結晶相の異なるYSZに担持されたIr-Rhバイメタルナノ粒子の合金構造の制御」

西田吉秀・青野剛輝・富樫ひろ美・大石隼輔・羽田政明
第130回触媒討論会、2022年9月20-22日、富山

「酸化物系NO_x吸着材の吸着脱離特性」

薫田創太・西田吉秀・羽田政明
2022年度日本セラミックス協会東海支部 学術研究発表会、2022年12月3日、オンライン

「ジルコニア担持パラジウム触媒によるニトリルの選択的水素化反応」

岸本真明・西田吉秀・羽田政明
第52回石油・石油化学討論会、2022年10月27-28日、
長野

「イリジウムと異種元素を複合化した三元触媒の開発」

羽田政明
ESICBシンポジウム2023、2023年3月8日、オンライン（依頼講演）

「二酸化炭素からのメタン変換のための担持ルテニウム触媒の調製条件の影響」

三田剛志・西田吉秀・羽田政明
第52回石油・石油化学討論会、2022年10月27-28日、
長野

「異種元素置換型 SrTiO₃ 触媒による CO 酸化」
細川三郎・吉山優志・羽田政明・朝倉博行・寺村謙太郎・
田中庸裕

日本セラミックス協会 2023 年年会、2023 年 3 月
8-10 日、横浜

< ポスター発表 >

「担持型ルテニウム触媒による CO₂ メタン化反応と触
媒調製条件の検討」

三田剛志・西田吉秀・羽田政明
石油学会 第 26 回 JPIJS ポスターセッション、2022
年 5 月 30 日、東京

「水熱合成法によるハイエントロピー酸化物の作製と
OSC 材への応用」

後藤玄樹・西田吉秀・羽田政明
石油学会 第 26 回 JPIJS ポスターセッション、2022
年 5 月 30 日、東京

「温和な条件下でニトリルを 1 級アミンへ選択的に水
素化する担持型触媒の開発」

岸本真明・西田吉秀・羽田政明
石油学会 第 26 回 JPIJS ポスターセッション、2022
年 5 月 30 日、東京

「調製条件の検討による CO₂ メタン化触媒の高活性化」

三田剛志・西田吉秀・羽田政明
2022 年度触媒学会西日本支部第 13 回触媒科学研究
発表会、2022 年 6 月 10 日、金沢

「希土類元素を用いたハイエントロピー酸化物の OSC
材への応用」

後藤玄樹・西田吉秀・羽田政明
2022 年度触媒学会西日本支部第 13 回触媒科学研究
発表会、2022 年 6 月 10 日、金沢

「担持パラジウム触媒によるニトリルの選択的水素化反応」

岸本真明・西田吉秀・羽田政明
2022 年度触媒学会西日本支部第 13 回触媒科学研究
発表会、2022 年 6 月 10 日、金沢

“Effective improvement of Pt catalyst for exhaust gas
purification by using the highly crystallized CeO₂
as an additive”

H. Tanaka, I. Morita, Y. Nagao, Y. Endo, T.
Wakabayashi, M. Haneda
12th International Congress on Catalysis and
Automotive Pollution Control (CAPoC12), 29-31
August, 2022, Brussels, Belgium

「担持型触媒による常温常圧下での選択的ニトリルの水
素化」

西田吉秀・岸本真明・羽田政明
第 131 回触媒討論会、2023 年 3 月 16-17 日、横浜

「NO に対する貴金属種の反応性解析」

富樫ひろ美・青野剛輝・大石隼輔・羽田政明
第 131 回触媒討論会、2023 年 3 月 16-17 日、横浜

< 受賞 >

「Best Presentation Award」

H. Tanaka, I. Morita, Y. Nagao, Y. Endo, T.
Wakabayashi, M. Haneda

12th International Conference on Environmental
Catalysis (ICEC2022), 30 July - 2 August, 2022,
Osaka

先進機能材料研究部門・エネルギー材料研究グループ

< 論文 >

“Fabrication of ultra-bright carbon nano-onions via a one-step microwave pyrolysis of fish scale waste in seconds”

Y. Xin, K. Odachi, T. Shirai

Green Chemistry, 24, 3969 (2022)

本研究では、魚の鱗から抽出したコラーゲンを原料として、コラーゲン分子中のペプチド官能基およびその三重螺旋構造に形成されたマクロ双極子モーメントに起因する高いマイクロ波吸収性を利用し、コラーゲンを急速熱分解することにより、ワンステップで高結晶性を持つカーボンナノオニオンの合成に成功した。また、マイクロ波分解中、カーボンナノオニオンの表面が水酸基やカルボンオキシル基に選択的に修飾され、可視光発光性および極性溶液中での高い分散性を実現した。これまでに報告されている他手法により合成されたカーボンナノオニオンと比べ10倍以上高い発光効率を示し、現在世界最高の発光効率を発現した。また、カーボンナノオニオンの水分散液を用いた液体塗布法により、フレキシブル薄膜やLEDの作製にも成功した。

“A novel sustainable and green mechanochemical route from a $(\text{HSiO}_{1.5})_n$ polymer to emissive silicon nanocrystals”

Y. Xu, Y. Xin, K. Kato, T. Shirai

Journal of Materials Chemistry C, 10, 12588 (2022)

本研究では、室温での遊星型ボールミルを用いて、 $(\text{HSiO}_{1.5})_n$ ポリマーに機械的なエネルギーを加えることにより、Si ナノ粒子が形成する新たなメカノケミカル反応経路を見出した。 $(\text{HSiO}_{1.5})_n$ ポリマーは安価、合成しやすいなど特徴を持つ無機材料であり、近年Si ナノ粒子の前駆体として多く利用されている。しかし、従来のSi ナノ粒子の合成プロセスでは、1100度以上の高温や長時間での水素供給が必要などの問題点があった。メカノケミカル処理下において、 $(\text{HSiO}_{1.5})_n$ 分子の中のSi-H結合が解離することにより水素が生成し、生成された水素は反応容器中で還元雰囲気としてSiラジカルの生成およびSi-O-Si結合の再配列を促進し、水素供給が不要なプロセスを実現することに成功した。また、メカノケミカル処理条件におけるボールのサイズおよび処理時間を調整するこ

とで、Si ナノ粒子のサイズを簡単に制御することができた。 SiO_2 マトリクスを化学エッチングすることにより、炭化水素により表面修飾されたSi ナノ粒子を選択的に抽出し、極性溶媒に良分散できる高効率可視光発光性Si ナノ粒子の合成にも成功した。

“Binder Derived Semi-Conductive Graphite/Alumina Composites via Novel One-Step Pulsed Electric Current Sintering”

H. H. Nguyen, Y. Xin, T. Shirai

Advanced Powder Technology, 33, 12 (2022)

本研究では、アルミナとバインダー混合した粉末のバルス通電焼結を用いて、半導体アルミナ・黒鉛複合材料の新規作製手法の開発に成功した。アルミナと汎用性高いバインダー材ポリビニルアルコールをボールミルより簡単に混合し、ポリビニルアルコールの添加濃度、および焼結中の温度や保持時間の調整により、高性能半導体アルミナ・黒鉛複合材料を作製した。また、分散剤の添加により、作製した複合材料中のキャリア種を制御し、pおよびnタイプ半導体セラミックスの作製にも見出した。

“Synthesis of Hydroxyapatites via Wet Mechanochemical Process for Enhanced Catalytic Decomposition of Volatile Organic Compounds”

S. Nakagawa, Y. Xin, H. Nishikawa, R. Yoneyama, T. Nakagawa, A. Yoshikawa, T. Shirai

Catalysis Letters, <https://doi.org/10.1007/s10562-023-04335-w> (2023)

本研究では、メカノケミカル処理を用いて、従来液中反応しない水酸カルシウムとリン酸一水素カルシウムを反応させ水酸アパタイトの新規合成手法の創立に成功した。異なるメカノケミカル処理で合成された水酸アパタイトの粒子サイズ、形態、結晶性、化学組成および表面化学状態を詳しく評価した。メカノケミカル処理中前駆体のイオン溶出挙動を調査することにより、反応メカニズムを推測した。また、得られた水酸アパタイトを用いて、揮発性有機物用分解触媒として応用し、メカノケミカル処理で合成した水酸アパタイトの化学構造に及ぼす触媒活性への影響について報告した。

< 総説・解説・報文・その他 >

“Hydroxyapatite as Green Catalyst for Environmental Cleaning”

辛 韻子・白井 孝

先進セラミックス研究センター年報 10 (2021) 6-15、
2022 年 7 月

「局所反応場および表面制御から挑む新規機能性材料の設計と創製」

辛 韻子

セラミックス 57、8 (2021) 502-504、2022 年 8 月

「水酸アパタイトを利用した新規環境浄化触媒の開発」

白井 孝・辛 韻子

Phosphorus Letters No.106 (1st, Feb, 2023)

< 口頭発表 >

「界面反応場を利用した機能性材料の創製」

白井 孝

先進セラミックス第 124 委員会 第 168 回会議、2022
年 6 月 16 日、横浜国立大学、ハイブリット形式（依頼講演）

「材質の異なるボールを用いた石炭灰のメカノケミカル活性化及び化学構造の変化」

三宮拓実・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝

日本セラミックス協会 第 35 回秋季シンポジウム、
2022 年 9 月 14-16 日、徳島大学

「マイクロ波局所反応による高効率可視光発光カーボンナノオニオンの合成」

辛 韻子・白井 孝

日本セラミックス協会 第 35 回秋季シンポジウム、
2022 年 9 月 14-16 日、徳島大学

「マイクロ波が拓く宇宙インフラの未来：建設材料の地産地消技術開発」

加藤邦彦・白井 孝・田島孝敏・淵田安浩・石川洋二
第 66 回宇宙科学技術連合講演会、2022 年 11 月 1-4 日、
熊本城ホール

「メカノケミカルプロセスにおける水素スピルオーバー現象と新規複合ナノ材料の創製」

加藤邦彦・須藤隆文・辛 韻子・白井 孝

日本セラミックス協会 第 35 回秋季シンポジウム、
2022 年 9 月 14-16 日、徳島大学

「SDGs に資するセラミックスプロセスデザイン」

白井 孝

第 20 回五セラミックス研究機関合同講演会、2022 年
11 月 7 日、名古屋工業大学（依頼講演）

「水素シルセスキオキサンのメカノケミカル処理による機能性シリコンナノ粒子の作製」

徐 玉萍・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝

日本セラミックス協会 第 35 回秋季シンポジウム、
2022 年 9 月 14-16 日、徳島大学

「マイクロ波誘起表面・界面反応によるコアシェル型複合ナノ粒子合成」

加藤邦彦・辛 韻子・白井 孝

2022 年度日本セラミックス協会東海支部学術研究発表会、2022 年 12 月 3 日、オンライン

「粒子配合を制御したゲルキャスト成形体の還元焼結における黒鉛化挙動」

舟橋由晃・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝

日本セラミックス協会 第 35 回秋季シンポジウム、
2022 年 9 月 14-16 日、徳島大学

「マイクロ波水熱反応による HAp/Cu 複合粒子の合成」

鈴木凌平・加藤邦彦・辛 韻子・白井 孝

2022 年度日本セラミックス協会東海支部学術研究発表会、2022 年 12 月 3 日、オンライン

「石炭灰のメカノケミカル表面改質およびボールの材質による化学構造への影響」

三宮拓実・加藤邦彦・辛 韻子・白井 孝
2022 年度日本セラミックス協会東海支部学術研究発表会、2022 年 12 月 3 日、オンライン

「メカノケミカル反応による水素タンゲステンブロンズ合成と固体酸触媒への応用」

矢吹晃隆・加藤邦彦・辛 韻子・白井 孝
2022 年度日本セラミックス協会東海支部学術研究発表会、2022 年 12 月 3 日、オンライン

「マイクロ波ポリオール反応を用いた金属ナノ粒子の精密合成」

西尾瑛至・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝
2022 年度日本セラミックス協会東海支部学術研究発表会、2022 年 12 月 3 日、オンライン

「水酸アパタイト粒子の水熱合成及び固体酸塩基触媒への応用」

神谷遙斗・加藤邦彦・辛 韻子・白井 孝
2022 年度日本セラミックス協会東海支部学術研究発表会、2022 年 12 月 3 日、オンライン

“Synthesis of Functional Silicon Nanocrystal via Novel Mechanochemical Processing of $(\text{HSiO}_{1.5})_n$ polymer”

Y. Xu, Y. Xin, K. Kato, T. Shirai
2022 年度日本セラミックス協会東海支部学術研究発表会、2022 年 12 月 3 日、オンライン

「局所反応場から挑む次世代発光材料の設計と創製」

辛 韻子
日本セラミックス協会 マテリアル・ファブリケーション・デザイン研究会、2022 年 12 月 21-22 日、浜松（依頼講演）

“Functional Silicon Nanoparticles Prepared via a Novel and Facile Mechanochemical Processing of Hydrogen Silsesquioxane”

Y. Xin, Y. Xu, K. Kato, T. Shirai
第 61 回セラミックス基礎科学討論会、2023 年 1 月 7-8 日、岡山大学

「ケイ素助剤中構造の異なるケイ酸イオンが及ぼす石炭灰の固化挙動への影響」

三宮拓実・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝
第 61 回セラミックス基礎科学討論会、2023 年 1 月 7-8 日、岡山大学

「マイクロ波ポリオール反応による銀ナノ粒子の合成および結晶構造制御」

西尾瑛至・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝
第 61 回セラミックス基礎科学討論会、2023 年 1 月 7-8 日、岡山大学

「メカノケミカルプロセスによる水素タンゲステンブロンズの室温合成」

矢吹晃隆・加藤邦彦・辛 韻子・白井 孝
第 61 回セラミックス基礎科学討論会、2023 年 1 月 7-8 日、岡山大学

“Synthesis of Visible-Photoluminescent Silicon Quantum Dots via a Novel and Facile Mechanochemical Reaction of Hydrogen Silsesquioxane”

Y. Xin, Y. Xu, K. Kato, T. Shirai
日本セラミックス協会 2023 年年会、2023 年 3 月 8-10 日、神奈川大学

「マイクロ波プラズマアシスト反応によるホモ-ヘテロ接合形成と可視光応答型光触媒への応用」

加藤邦彦・松井亮介・辛 韻子・白井 孝
日本セラミックス協会 2023 年年会、2023 年 3 月 8-10 日、神奈川大学

「石炭灰の固化挙動に影響を及ぼす構造が異なるケイ酸イオンの構造評価」

三宮拓実・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝
日本セラミックス協会 2023 年年会、2023 年 3 月 8-10 日、神奈川大学

「キレート錯体を用いた水酸アパタイトのマイクロ波水熱合成」

神谷遙斗・加藤邦彦・辛 韻子・白井 孝
日本セラミックス協会 2023 年年会、2023 年 3 月 8-10 日、神奈川大学

「高効率可視光発光カーボンナノオニオンの新規合成および LED への応用」

辛 韻子・大舘 快・白井 孝
第 70 回応用物理学会春季学術講演会、2023 年 3 月 15-18 日、上智大学

“Visible-Photoluminescent Silicon Quantum Dots via a Novel and Facile Mechanochemical Reaction of Hydrogen Silsesquioxane”

Y. Xin, Y. Xu, K. Kato, T. Shirai
第 70 回応用物理学会春季学術講演会、2023 年 3 月 15-18 日、上智大学

「メカノケミカル反応による H_xWO_3 /カーボン複合
ナノ粒子合成と光触媒応用」

加藤邦彦・辛 韻子・白井 孝

第 70 回応用物理学会春季学術講演会、2023 年 3 月
15-18 日、上智大学

< ポスター発表 >

“One-Step Synthesis of Hydrophobic Silicon
Nanocrystals with Visible Photoluminescence”

Y. Xu, Y. Xin, K. Kato, T. Shirai

日本セラミックス協会 東海支部 第 62 回東海若手セラミスト懇話会 2022 年夏期セミナー、2022 年 6 月
17 日、オンライン

「遷移金属含有水酸アパタイトの合成および VOC 酸化
触媒特性への影響」

鈴木凌平・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝

日本セラミックス協会 東海支部 第 62 回東海若手セラミスト懇話会 2022 年夏期セミナー、2022 年 6 月
17 日、オンライン

「メカノケミカル処理を用いた石炭灰の表面活性化およびその化学構造解析」

三宮拓実・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝

日本セラミックス協会 東海支部 第 62 回東海若手セラミスト懇話会 2022 年夏期セミナー、2022 年 6 月
17 日、オンライン

「メカノケミカル反応場制御による H_xWO_3 合成と触媒
応用」

矢吹晃隆・加藤邦彦・辛 韻子・白井 孝

日本セラミックス協会 マテリアル・ファブリケーション・デザイン研究会、2022 年 12 月 21-22 日、浜松

「異なるマイクロ波加熱条件におけるポリオール反応での
金属ナノ粒子の生成挙動」

西尾瑛至・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝

日本セラミックス協会 マテリアル・ファブリケーション・デザイン研究会、2022 年 12 月 21-22 日、浜松

「キレート錯体を用いた水酸アパタイトのマイクロ波アシスト水熱合成」

神谷遥斗・加藤邦彦・辛 韻子・白井 孝

日本セラミックス協会 マテリアル・ファブリケーション・デザイン研究会、2022 年 12 月 21-22 日、浜松

< 受賞 >

“Best Material Design Presentation Award”

舟橋由晃・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝

日本セラミックス協会 第 35 回秋季シンポジウム、
2022 年 9 月 14-16 日、徳島大学

“Fighting spirit Award”

三宮拓実・辛 韻子・加藤邦彦・白井 孝

日本セラミックス協会 第 35 回秋季シンポジウム、
2022 年 9 月 14-16 日、徳島大学

“Best Processing Design Presentation Award”

Y. Xu, Y. Xin, K. Kato, T. Shirai

日本セラミックス協会 第 35 回秋季シンポジウム、
2022 年 9 月 14-16 日、徳島大学

先進材料設計研究部門・材料創製研究グループ

< 論文 >

“Enhanced CO₂ conversion on highly-strained and oxygen-deficient BiVO₄ photocatalyst.”

S. Akrami, Y. Murakami, M. Watanabe, T. Ishihara, M. Arita, Q. Guo, M. Fuji, K. Edalati

Chemical Engineering Journal, 442, 136209, 2022

BiVO₄は低いバンドギャップと高い安定性から、光触媒によるCO₂変換に大きな注目を集めているが、電子-正孔再結合率が高いため光触媒活性に限界がある。本研究では、この欠点を克服するため、高圧ねじり加工 (high-pressure torsion process) により、BiVO₄に酸素空孔と格子歪みを同時に導入した。高圧ねじり加工後のBiVO₄は、TiO₂ (P25) 光触媒に匹敵する活性を示し、高い光触媒CO₂変換率を示した。本研究は、格子歪みと欠陥のエンジニアリングによって、CO₂変換のための活性化光触媒の開発のための実現可能な道筋を提示している。

“Cattail (Typha angustifolia) flowers derived porous carbons supported electroplated Ni and Cu catalysts for hydrogenation of methyl levulinate to γ -valerolactone”N. Kaewtrakulchai, W. Gunpum, M. Fuji, A. Eiad-ua
Biomass Conversion and Biorefinery, 2021 (online)

ヒメガマ (Typha angustifolia) の花から水熱プロセスによる複合炭化によって炭素担体を調製し、電気めっき法を用いて炭素担持金属触媒の新規合成法を開発した。調製したカーボンは、高表面積、多孔質、優れた電気伝導性を示した。電気めっきプロセスでは、溶液温度 50°C、印加電圧 4V が、炭素担体上に均一な金属相と高い金属分散性を有する触媒を合成するための最適条件となった。合成したNi-C触媒およびCu-C触媒は優れた触媒活性を示し、レブリン酸メチルの γ -バレロラクトンへの水素化反応の触媒として用いた場合、レブリン酸メチル変換率はそれぞれ32.68%および29.17%であった。

“Nanoporous carbon from water hyacinth via hydrothermal carbonization assisted chemical activation for dye adsorption in wastewater”

M. Sukulbrahman, S. Siraorarnroj, N. Suksai, N. Kaewtrakulchai, S. Chutipaijit, S. Chanpee, P.

Puengjinda, M. Fuji, A. Eiad-ua, S. KlomKlao, A. Jaruvanawat

Current Applied Science and Technology, 22 (4), 1-9, 2022

本研究では、ウォーターヒヤシンスを原料として、化学的活性化を伴う水熱炭化によりナノポーラスカーボンを作製した。合成した試料の比表面積は最大942.818 m²/gとなり、メソ孔の存在が明らかになった。また、合成した試料を用いて、廃水中の有機汚染物質であるメチレンブルー (MB) の除去実験を行い、pH、染料濃度、吸着時間などのパラメータが及ぼす影響を調べた。その結果、MBの最高除去効率は10～30分の吸着時間内で約96.8～99.9%となり、優れた吸着性能を示すことがわかった。シミュレーションにより、吸着等温線はFreundlich式に一致し吸着挙動は重力によって起こることが示唆された。

“Significant CO₂ photoreduction on a high-entropy oxynitride”

S. Akrami, P. Edalati, Y. Shundo, M. Watanabe, T. Ishihara, M. Fuji, K. Edalati

Chemical Engineering Journal, 449, 137800, 2022

光触媒を用いたCO₂光還元は、利用可能な触媒では電荷キャリアの分離が難しく、再結合しやすいため、まだ効率が低い。本研究では、光還元活性を有する光触媒として、高エントロピー源である酸窒化物を導入した。この材料は、対応する高エントロピー酸化物、ベンチマーク光触媒であるP25 TiO₂、および文献で紹介されているほぼすべての触媒と比較して、高い光触媒CO₂-CO変換能を示した。この酸窒化物の高い活性と化学的安定性は、光の吸収が大きく電子と正孔が分離しやすいこと、電荷キャリアの再結合が少ないこと、表面へのCO₂吸着が高いことに起因していると考え、高エントロピー源である酸窒化物がCO₂光還元有望な光触媒であることが確認された。

“Change in the dispersion states of short-length-cellulose nanofibers upon dilution investigated by a time-domain nuclear magnetic resonance (TD-NMR)”

C. Takai-Yamashita, J. Ikeda, Y. Wada, Y. Ohya, Y.

Yamagata, Y. Takasaki, M. Fuji, M. Senna

Cellulose, 29, 7049-7062, 2022

高圧ホモジナイザーで調整した水性ゾルの短尺のセルロースナノファイバー (CNF) は 20wt% から 1wt% に希釈すると、低磁場 1H 核磁気共鳴 (NMR) の低磁場での緩和時間 (T2) が急激に長くなっていることがわかった。30 分間の磁気攪拌により繊維ネットワークが解離し、1wt% の CNF ゾルでは断片化した繊維が出現した。希釈ゾルの比粘度が低下すると、1 wt% 以下ではレオロジー挙動が指数関数的から線形に変化し、繊維間相互作用が著しく低下することが示唆された。高圧ホモジナイザーによる繊維の破碎が進むと粘度が上昇するのは、繊維間水分子がより強固に保持されているためと考えられる。高粘度 CNF ゾルの複雑な挙動を理解することで CNF 関連技術を開発する道が開ける可能性がある。

“Visible-light photocatalytic oxygen production on a high-entropy oxide by multiple-heterojunction introduction”

P. Edalati, Y. Itagoe, H. Ishihara, T. Ishihara, H. Emami, M. Arita, M. Fuji, K. Edalati

Journal of Photochemistry & Photobiology, A: Chemistry, 433, 114167, 2022

本研究では、可視光駆動型の光触媒を実現するために、Ti-Zr-Nb-Ta-W-O 系に 10 種類のヘテロ接合を同時導入した。高圧ねじり法と酸化により合成された酸化物は、共触媒の添加なしに可視光下で水から酸素を生成することに成功した。この光触媒性能は、高い可視光吸収率、低いバンドギャップ、適切なバンド構造、複数のヘテロ接合の存在、それに伴う容易な電子-正孔分離と遅い再結合に起因すると考えられる。これらの結果は、新しい可視光活性光触媒としての高エントロピー酸化物の可能性を示すだけでなく、可視光下での光触媒反応を実現する戦略として、多重ヘテロ接合の導入も紹介している。

“Porous biochar supported transition metal phosphide catalysts for hydrocracking of palm oil to bio-jet fuel”

N. Kaewtrakulchai, A. Smuthkochorn, K. Manatura, G. Panomsuwan, M. Fuji, A. Eiad-ua

Materials, 15 (19), 6584, 2022

植物性油脂の水素化処理による液体輸送燃料へのアップグレードは、バイオ燃料を製造するための最も魅力的で有望な技術的経路となっている。本研究では、多孔質炭素触媒に担持された様々な金属リン化合物の上でパームオレイン油から水素化分解によりバイオジェット燃料 (C9-C14 炭化水素) を製造し、バイオ

ジェット燃料製造のための最高性能の触媒を検討した。PFC 担持のコバルト、ニッケル、鉄、モリブデン金属リン化合物 (Co-P/PFC、Ni-P/PFC、Fe-P/PFC、Mo-P/PFC) 触媒を、湿式含浸と還元処理によって金属担持量 10wt.% で合成し、触媒の性能についてテストした。Fe-P/PFC 触媒は、他の合成触媒よりも高い活性相分散性と高い酸性度により、100% 転化率で最高の水素化分解性能を示し、バイオジェット選択率 94.6% を達成した。さらに、Fe-P/PFC 触媒は、C9 (35.4%) および C10 (37.6%) 炭化水素に対して最も選択的であることが判明した。

“Catalytic deoxygenation of palm oil over metal phosphides supported on palm fiber waste derived activated biochar for producing green diesel fuel”

N. Kaewtrakulchai, M. Fuji, A. Eiad-ua

RSC Advances, 40, 26051-26069, 2022.

本研究では、パーム繊維を担体とするリン化ニッケル (Ni-P) およびリン化鉄 (Fe-P) 触媒を湿式含浸法により合成し、いくつかの手法により広範な特性評価を行った。その結果、PFAC 担体は高炭素量、高空隙率 ($S_{\text{BET}} 1039.64 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$, $VT0.572 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$) といった、触媒調製に適した物理化学的特性を示した。また、担持された Ni-P および Fe-P 触媒の優れた触媒性能により 63.37 ~ 79.65% の優れた液体炭化水素収率が得られた。金属リン化合物/PFAC 触媒は優れた触媒活性、簡単な調製、大規模な脱酸素反応によるバイオ燃料製造のための代替触媒として、大きな可能性を持っていると考えられる。

“Surface activities of silica powders produced by milling”

T. T. T. Hien, T. Shirai, M. Fuji

AIP Conference Proceedings 2610, 020001, 2022

2 種類のシリカ粉末 (IOTA と SFP) をボールミル処理によって機械的に改質した。回転速度 (100、200、300rpm)、処理時間 (15、30、60 分)、ボールの大きさ (01、05、10mm) を変えて実験を行った。ボールミル条件が Si イオンのアンモニア水溶液への溶出に及ぼす影響を調査した。アンモニア水への溶存 Si^{4+} イオン量と振とう時間の関係を原料粉末と処理粉末のボールミル条件を変えて調査した。非晶質粉末では 20 時間振とうしたときの溶存 Si イオンで測定した比表面活性が 950 から 1700ppm/m² に上昇した。さらに、回転数を 200rpm、処理時間を 30 分にすると表面活性はそれぞれ 13.6%、10.6% だけ増加した。さらに、回転数を 300rpm、処理時間を 60 分に上げたが、表面活性はそれ以上向上しなかった。これらの結果はボールの大きさの影響を受けなかった。ボールミル処

理により溶解した Si イオンの量は結晶性粉末で 88%、非晶質粉末で 63% 増加した。

“Preparation of activated carbon from various biomasses by single-stage pyrolysis”

S. Thowphan, N. Kaewtrakulchai, A. Jaruvanawat, S. Chutipaijit, P. Puengjinda, N. Chollacoop, M. Fuji, A. Eiad-ua

Journal of Physics: Conference Series, 2175, 012009, 2022

現在、バイオマスから合成されたナノサイズ孔をもつ活性炭は、大気汚染の解決や水質汚濁の解決など、様々な用途に広く使用されている。本研究では、ココナッツ殻、ココナッツ葉、ココナッツの苞葉、キャットテールフラワー、キャットテールの葉、マンゴスチンの苞葉、ドリアンの苞葉、トウモロコシの葉、ユーカリの苞葉、サトウキビの葉、トディヤシの苞葉から合成した活性炭が熱分解温度に与えられる影響を調査した。各種バイオマスの熱分解を、100ml/min の N2 フロー下、700 ~ 900℃ の温度で 2 時間かけて、その構造や物理化学的特性を調べた。その結果、バイオマスの種類と熱分解温度は、細孔構造、表面官能基、元素組成

など、活性炭の構造と物理化学的特性に影響を与えることがわかった。なお、800℃、2 時間で得られた活性炭は、非晶質相、多孔質、表面積が他条件に比べて最も高かった。

“Evaluating surface smoothness of composite films of well-dispersed silica particles Surface Engineering”

Q. Wen, F. Tanahashi, M. Fuji

Surface Engineering, 38, 786-796, 2023

誘電率の測定値は測定サンプルの表面平滑性の影響を受けることが知られている。本実験においては、ポリイミドとシリカ粒子の複合フィルムを作製し、測定治具の電極表面とフィルムの表面に生じるギャップが誘電率の測定値に与える影響について評価した。フィラーとして用いるシリカ粒子は異なる方法で表面修飾を施して、ポリイミドに導入した。誘電率測定結果はフィルム中における粒子の分散状態よりもサンプル表面の粗さから受ける影響の方が大きいことが分かった。フィルムの表面平滑性が上昇すると誘電率の測定値が高くなることが分かった。本実験に用いた平滑性の評価方法は平滑性の異なるフィルムの評価結果を比較することによって確認した。

< 著書 >

「第 66 回粉体入門セミナー II 「粉をつくりそして利用するために」」

3. 粉体成形・粉体を形にする

藤 正督

日本粉体工業技術協会、66-90、2022

粉体成形を利用したセラミックス製造では、最終製品の材料特性に影響する微構造が重要となるがこの微構造は成形体内の粉体充填構造により決定され、プロセスの前半で材料の運命は決まっている。焼結後に残った気孔の中で最大で扁平な気孔が材料の破壊減となる。また、まったく同じ材料であっても強度をそのまま測定するときと、小さく分割して測定するときでは、平均強度は後者のほうが高い。これは材料の体積効果として知られている。

粉体成形に関して、固 / 気 / 液分散系の充填状態ではドライ域からスラリー域の中のいずれかの充填状態をとるが、飽和度 S という指標はマクロな充填状態を定量的に表現するに当たって重要となる。

加圧成形に関しては、乾式一軸加圧成形は量産性と寸法精度に優れている成形方法であり、電子材料・耐火レンガ・タイル・機械部品・切削工具などに応用され

ている。

押出成形は、一定断面形状物の作成に向いている。応用例は、耐火物（中空）、ハニカム触媒担体、透明アルミナ管などがある。

射出成形は、射出成形機内で粉体と樹脂のコンパウンドを加熱溶融して流動性を付与した後、溶融コンパウンドを金型に射出充填し、冷却して成形体を作製する方法である。タービンブレード、ギア、高寸法精度が求められる場合に有効な成形法である。

鋳込み成形では、液中で粒子間に作用する力が重要である。引力としては、ファンデルワールス力、斥力としては、電気二重層の重なりによる静電相互作用が挙げられ、この二つのポテンシャルの曲線の形によって凝集するかが決まる。

テープ成形では、一般的に有機溶剤を用いたスラリーが用いられ、概ね 0.02mm ~ 1mm のシートが得られる。多層基板、多層コンデンサー、圧電素子などの製造に用いられる。この成形方法では、粒子のアスペクト比が大きい場合には粒子配向が生じる。また、テープ成形は乾燥により硬化を行うため、有機溶剤を用いるが環境に配慮して水系でも試みられている。

新しい成形方法として、ゲルキャストリング成形法がある。セラミックス粉体と結合剤モノマーと分散材、

水を混合したスラリーを铸込みゲル化させ、離型する。その後、乾燥、脱脂、焼結を得て固化体を作製する。

< 総説・解説 >

「無焼成固化セラミックスの開発」

藤 正督

CERAMICS JAPAN、57 (4)、238-241、2022

当研究グループでは焼成工程を経ないセラミックス固化体、いわゆる「無焼成セラミックス」の研究を行っている。本技術では窯業原料粉の表面を摩砕し化学活性を得て固化する方法である。高温や高圧を必要としないことから省エネ、低コスト、温室効果ガス排出量削減など環境にやさしいものづくりである。

ただし、すべての焼成セラミックスを代替するような方法ではない。本稿では無焼成セラミックスの概要、セラミックス原料の表面活性化メカニズムや応用研究に一部の成果について説明する。

「無焼成セラミックスと粒子界面Ⅲ」

藤 正督

JCMA、61、17-20、2022

無焼成セラミックスの理解に必要な知識として寄稿を始めて、3回目となる本号においては粉体表面の高い活性を緩和させる「化学的表面緩和現象」と「物理吸着による緩和現象」について解説する。化学的表面緩和は、活性を持つ表面と酸素などの大気中の反応性を持つ気体と化学反応することによって起こる。特に酸化物表面においては水蒸気が化学吸着し、表面水酸基で被覆された状態となる。物理吸着による表面緩和は、極性を持つ表面において水蒸気の物理吸着することによって起こり、表面自由エネルギーを低下させる。吸着水の存在により固体表面が安定化され、物質の化学的、力学的、電気的性質は著しく影響を受ける。粉体物性においては、粒子間付着力が変化し凝集、固結現象に変化がみられることが知られている。

“Advanced Photocatalysts for CO₂ Conversion by Severe Plastic Deformation (SPD)”

S. Akrami, T. Ishihara, M. Fuji, K. Edalati

Materials, 16, 1081, 2023

化石燃料の使用による過剰な CO₂ 排出は、地球温暖

化や環境危機を引き起こしている。この問題を解決する方法として、CO₂ を光触媒で CO や有用成分に変換することが新たな戦略として注目されている。この点で、CO₂ 光還元の高い効率を持つ光触媒の探索が大きな課題となっている。近年、高圧ねじり (HPT) プロセスによる強塑性変形 (SPD) が、CO₂ 変換のための新規活性触媒の開発に効果的に利用されている。これらの光触媒は、(i) 酸素空孔と歪み制御、(ii) 高圧相の安定化、(iii) 欠陥のある高エントロピー酸窒化物の合成、(iv) 低バンドギャップの高エントロピー酸窒化物の合成、という4つの主要戦略に基づいて設計されてきた。これらの戦略は、CO₂ 吸着の改善、光吸収率の向上、バンド構造の調整、バンドギャップの狭小化、電荷キャリアの移動の加速、電子と正孔の再結合率の抑制、光触媒反応の活性サイトの提供などにより、従来の光触媒やベンチマーク光触媒と比較して光触媒効率を向上させることが可能である。本稿では、SPD を応用した光触媒 CO₂ 変換用機能性セラミックスの開発に関する最近の進展について紹介した。

「無焼成焼成セラミックスを用いた多孔体」

藤 正督

粉体および粉末冶金、70 (2)、89-99、2023

カーボンニュートラルな社会の実現は、経済的・産業的に現実的な段階を迎えている。このような背景において、省エネルギー、低コスト、温室効果ガス排出量の削減など、環境に配慮したものづくりの観点から、高温・高圧を必要としない「無焼成セラミックス」の研究が注目されている。この技術は、セラミック原料粉末の表面を研磨して化学的活性を促進させ、固化させる方法である。本稿では、無焼成セラミックスの概要、セラミック原料の表面活性化のメカニズム、多孔質材料への応用について紹介する。本手法は、すべての焼結セラミックスを代替するものではないが、新しいものづくりの方向性を示すものとして貢献できるものと期待する。

<その他>

「MIと放射光を活用した中空粒子中量産化と機能性材料の加速的開発」

藤 正督

科学技術交流ニュース、1、11、2022

「プロジェクトコアインダストリー ナノ中空粒子を用いた環境対応建材の研究開発」

藤 正督

知の拠点あいち重点プロジェクトIVキックオフセミナー、18-21、2022

「CO₂排出を削減！カーボンニュートラル時代を支える低温及び無焼成で作るセラミックス」

藤 正督

国立大学 国大協広報誌、65 (12)、2022

「大学教員に魅力なし？」

藤 正督

粉体技術、10 (10)、2022

「プロジェクトコアインダストリー C9 ナノ中空粒子を用いた環境対応建材の研究開発」

藤 正督

知の拠点あいち重点プロジェクトIV、6、2022

<口頭発表>

「中空シリカナノ粒子合成におけるシェル密度の制御」

棚橋郁弥・間 全越・藤本恭一・藤 正督

粉体工学会 2022 年度春期研究発表会、2022 年 5 月 17 日 -18 日、姫路/ZOOM によるオンライン

「粉体成形・粉体を形にする」

藤 正督

日本粉体工業技術協会 第 66 回粉体入門セミナー II、2022 年 6 月 21 日、オンライン (依頼講演)

「中空ナノシリカ粒子-複合ポリマー膜の光学特性評価」

三井康弘・高井千加・大矢 豊・藤 正督

粉体工学会 2022 年度春期研究発表会、2022 年 5 月 17 日 -18 日、姫路/ZOOM によるオンライン

「無焼成セラミックスの現状と可能性」

藤 正督

第 188 回電子セラミック・プロセス研究会プログラム、2022 年 8 月 29 日、オンライン (依頼講演)

「蛍光体担持中空ナノシリカ粒子の作製と評価」

古田大悟・高井千加・大矢 豊・藤 正督

粉体工学会 2022 年度春期研究発表会、2022 年 5 月 17 日 -18 日、姫路/ZOOM によるオンライン

「時間領域核磁気共鳴 (TD-NMR) を用いたセルロースナノファイバーゾルの評価」

高井千加・池田純子・和田雄也・山縣義文・高崎祐一・藤 正督・仙名 保・大矢 豊

セルロース学会第 29 回年次大会、2022 年 7 月 21-22 日、金沢

「無焼成固化法による多孔体の作製」

藤 正督

粉体粉末冶金協会 2022 年度春季大会 (第 129 回講演大会)、2022 年 5 月 24 日 -26 日、オンライン (招待講演)

「シェル表面に蛍光体分子を担持した中空ナノシリカ粒子の構造評価」

成田 望・大矢 豊・藤 正督・高井千加

日本セラミックス協会 第 35 回秋季シンポジウム、2022 年 9 月 14-16 日、徳島 (ハイブリッド)

「多孔質ナノシリカ粒子の合成と光学特性」

高井千加・藤 正督・大矢 豊

粉体粉末冶金協会 2022 年度春季大会 (第 129 回講演大会)、2022 年 5 月 24 日 -26 日、オンライン

「中空シリカナノ粒子合成におけるシェルの界面構造と細孔構造の制御」

吉田祐生・Q. Wen・X. Jiang・藤本恭一・堀田 禎・石原真裕・藤 正督
日本セラミックス協会 第35回秋季シンポジウム、2022年9月14-16日、徳島（ハイブリッド）

「多量体シリカ前駆体を出発原料として合成した中空シリカナノ粒子のシェル構造制御」

水越 葵・Q. Wen・X. Jiang・藤本恭一・堀田 禎・石原真裕・藤 正督
日本セラミックス協会 第35回秋季シンポジウム、2022年9月14-16日、徳島（ハイブリッド）

「酸化亜鉛無焼成固化体の作製とその固化メカニズムについて」

長江勇飛・藤 正督
粉体工学会 省エネルギーに貢献する粒子設計・粉体プロセスの薬工連携研究会 2022年度若手研究者討論会 2022年9月27日 オンラインとオンサイトのハイブリッド形式

「中空粒子/ポリイミド複合体の作製と誘電特性評価」

宮脇豪記・棚橋郁弥・Q. Wen・藤本恭一・藤 正督
粉体工学会 省エネルギーに貢献する粒子設計・粉体プロセスの薬工連携研究会 2022年度若手研究者討論会、2022年9月27日、オンラインとオンサイトのハイブリッド形式

「ナノ中空粒子を用いた環境対応建材の研究開発」

藤 正督
「知の拠点あいち重点研究プロジェクトⅣ期」キックオフセミナー、2022年10月18日、豊田（招待講演）

「カルサイトナノ粒子合成とこれを用いたシリカナノ中空粒子合成」

藤 正督・前原万純・堀 雅裕・藤本恭一・堀田 禎
無機マテリアル学会 第145回学術講演会、2022年11月10-11日、熊本

「中空シリカナノ粒子合成のシェル構造の制御」

棚橋郁弥・Q. Wen・X. Jiang・藤本恭一・堀田 禎・藤 正督
無機マテリアル学会 第145回学術講演会、2022年11月10-11日、熊本

“Facile preparation of MoP/TiO₂ photocatalysts for highly efficient photocatalytic H₂ production”

X. Jiang, M. Fuji
無機マテリアル学会 第145回学術講演会、2022年11月10-11日、熊本

“In-situ photodeposition of MoS_x as a co-catalyst on TiO₂ nanoparticles for efficient photocatalytic H₂ evolution”

X. Jiang, M. Fuji
ICCCI2022, 15-18 November, 2022, Yamanashi, Japan

“A novel evaluating method for surface smoothness of composite film of well-dispersed silica particles”

Q. Wen, F. Tanahashi, M. Fuji
ICCCI2022, 15-18 November, 2022, Yamanashi, Japan

「無焼成セラミックス」

藤 正督
日本ファインセラミックス協会 標準化専門委員会 (EC-8) 講演会、2022年11月21日、東京/オンライン（依頼講演）

「無焼成固化法を用いた Y₂O₃ 固化体の作製と強度評価」

加藤宏幸・藤 正督
2022年度セラミックス協会東海支部 学術研究発表会、12月3日、オンライン

“Challenge to the conversion of CO₂ using TiO₂-II photocatalyst synthesized by mechanical stress”

S. Akrami, M. Watanabe, T. H. Ling, T. Ishihara, M. Arita, M. Fuji, K. Edalati
2022年度セラミックス協会東海支部 学術研究発表会、12月3日、オンライン

“Preparation and application of high-entropy oxynitrides by mechanical stress”

P. Edalati, X. F. Shen, M. Watanabe, T. Ishihara, M. Arita, M. Fuji, K. Edalati
2022年度セラミックス協会東海支部 学術研究発表会、12月3日、オンライン

「中空シリカナノ粒子におけるシェル特性の制御」

棚橋郁弥・Q. Wen・X. Jiang・堀田 禎・藤本恭一・藤 正督
2022年度セラミックス協会東海支部 学術研究発表会、12月3日、オンライン

「酸化亜鉛無焼成固化体の作製とその固化メカニズムについて」

長江勇飛・藤 正督

2022 年度セラミックス協会東海支部 学術研究発表会、12 月 3 日、オンライン

「粒子の小さな空間がもたらす大きな性能！」

藤 正督

日本粉体工業技術協会 技術シーズ賞受賞記念講演会、2022 年 12 月 8 日、東京（招待講演）

“Synthesis a high-entropy oxynitride by mechanical stress for photocatalytic H₂ evolution”

P. Edalati, X. F. Shen, M. Watanabe, T. Ishihara, M. Arita, M. Fuji, K. Edalati

日本粉体工業技術協会 第 59 回粉体に関する討論会、12 月 21-23 日、京都

“Photocatalytic CO₂ conversion using TiO₂-II fabricated by mechanical stress”

S. Akrami, M. Watanabe, T. H. Ling, T. Ishihara, M. Arita, M. Fuji, K. Edalati

日本粉体工業技術協会 第 59 回粉体に関する討論会、12 月 21-23 日、京都

「再生フッ化カルシウムを原料とした蛍光材料の作製」

加藤宏幸・堀田 禎・藤 正督・古田貴之・加藤健治
第 61 回セラミックス基礎科学討論会、2023 年 1 月 7-8 日、岡山

「無焼成固化セラミックスの開発最前線」

藤 正督

とこなめ焼技術協議会 窯業技術講習会、2023 年 3 月 2 日、常滑（依頼講演）

「ナノ中空粒子を用いた観光対応建材の研究開発」

藤 正督

「知の拠点あいち重点研究プロジェクトⅣ期」公開セミナー、3 月 14 日、豊田

< ポスター発表 >

「多量体シリカ前駆体を出発原料として合成した中空シリカナノ粒子のシェル構造制御」

水越 葵・Q. Wen・X. Jiang・藤本恭一・堀田 禎・石原真裕・藤 正督

粉体工学会 2022 年度粉体工学会秋期研究発表会、2022 年 12 月 6-7 日、東京

「中空シリカナノ粒子合成におけるシェルの界面構造と細孔構造の制御」

吉田祐生・Q. Wen・X. Jiang・藤本恭一・堀田 禎・石原真裕・藤 正督

粉体工学会 2022 年度粉体工学会秋期研究発表会、2022 年 12 月 6-7 日、東京

「スケルトン粒子の合成とスケルトン粒子含有薄膜の光学特性評価」

宮脇豪記・池田弘樹・高井千加・瀬名ハヂイ・藤本恭一・石原真裕・藤 正督

粉体工学会 2022 年度粉体工学会秋期研究発表会、2022 年 12 月 6-7 日、東京

< 受賞 >

「ベストディスカッション賞」

吉田祐生

日本セラミックス協会東海支部 第 63 回東海若手セラミスト懇話会、2022 年 10 月 7 日、名古屋（ハイブリッド開催）

「ベストディスカッション賞」

棚橋郁弥

日本セラミックス協会東海支部 第 63 回東海若手セラミスト懇話会、2022 年 10 月 7 日、名古屋（ハイブリッド開催）

先進材料設計研究部門・材料機能研究グループ

< 総説・解説・報文・その他 >

「フェライト-シリカ複合多孔体の合成と評価」

“Synthesis and Characterization of Ferrite-Silica Porous Materials”

安達信泰・大口恭平

セラミックス、**57 (5)** (2022 May)、pp.355-358.

超臨界乾燥法を用いて作製したシリカエアロゲルにフェライトめっき法と有機金属分解法の 2 種類の方法で作製を行い、多孔性と磁気特性の評価について述

べた。有機溶媒を用いる MOD 法を用いて、シリカ内部にまで、 CoFe_2O_4 、 $(\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.5})\text{Fe}_2\text{O}_4$ 、Bi-YIG フェライトを析出することができ、フェライトシリカエアロゲルを合成できるようになった。これらの様々な種類のフェライト-シリカ多孔体を作製することで、GHz 帯に及ぶ高周波域での電磁波吸収体としての応用に期待を期待できる。

< 口頭発表 >

「亜鉛フェライト薄膜のコバルト置換による磁気特性の制御」

安達信泰・難波研一・中田勇輔・新海圭亮

第 46 回日本磁気学会学術講演会、2022 年 9 月 8 日、長野

「有機金属分解法による磁性ガーネットフォトニック結晶の作製について」

鈴木亜美・菊地 匠・安達信泰

2022 年度日本セラミックス協会東海支部 学術研究発表会、2022 年 12 月 3 日、オンライン

「有機金属分解法を用いた磁気ガーネット多層膜の作製と磁気光学特性」

菊地 匠・鈴木亜美・安達信泰

日本セラミックス協会第 35 回秋季シンポジウム
2022 年 9 月 15 日 徳島

「有機金属分解法によるマグネシウムフェライト薄膜の合成と磁気特性」

安達信泰・近藤達也

日本セラミックス協会 2023 年年会、2023 年 3 月 9 日、横浜

< ポスター発表 >

「有機金属分解法による磁性フォトニック結晶の合成について」

菊地 匠・安達信泰

日本セラミックス協会東海支部 第62回 東海若手セラミスト懇話会 2022年夏期セミナー、2022年6月17日、オンライン

「フェライト-シリカエアロゲル複合多孔体の合成と評価」

長屋勘太郎・大口恭平・安達信泰

日本セラミックス協会東海支部 第62回 東海若手セラミスト懇話会 2022年夏期セミナー、2022年6月17日、オンライン

「フェライトめっき法を用いた MnFe_2O_4 中空粒子の合成と特性の評価」

大藪倫一郎・安達信泰

日本セラミックス協会東海支部 第62回 東海若手セラミスト懇話会 2022年夏期セミナー、2022年6月17日、オンライン

先進材料設計研究部門・材料設計研究グループ

< 論文 >

“Convolution and deconvolutional treatment on sample transparency aberration in Bragg-Brentano geometry”

T. Ida

Powder Diffr. **37**, 13–21 (Mar. 2022).

Bragg-Brentano 型粉末 X 線回折装置の試料透過性収

差について厳密な数学モデルと近似的なモデルについて調べた。現実的な測定装置と計算システムを利用する場合に一次近似モデルを用いることが正当化されることを示した。有限な厚さを持つ試料の透過性収差を、安直二段階逆畳込的により修正する方法を開発した。

< 総説・解説・報文・その他 >

「デスクトップ型粉末回折装置と PDF-4/Organics データベースを利用した有機化合物の分析」

井田 隆

名古屋工業大学先進セラミックス研究センター年報 2021、**10**、25–30 (2022)

デスクトップ型粉末回折装置を用いて D-glucose の

X 線回折測定を行い、逆畳込的な処理を施して PDF-4/Organics データベースとの照合を行った。デスクトップ型粉末回折装置であっても有機化合物の同定に有効な場合があること、PDF-4+ データベースの導入された環境に、PDF-4/Organics データベースを追加することは検討に値することを示した。

< 口頭発表 >

“Effect of finite width of specimen on sample transparency aberration in Bragg-Brentano geometry”

T. Ida

Denver X-ray Conference 2022, 7-11 August, Bethesda, MD, USA

「反射型粉末回折測定における有限な試料厚さと試料幅の効果」

井田 隆

2022 年度日本結晶学会年会、2022 年 11 月 26-27 日、西宮

< ポスター発表 >

「コランダム回折強度の密度汎函数理論計算」

井田 隆

2022 年度日本結晶学会年会、2022 年 11 月 26-27 日、西宮

地域連携グループ

< 論文 >

“Macroporous ceramics for the sustainable development goals (SDGs): Review”

M. Fukushima and T. Ohji

International Journal of Applied Ceramic Technology, 20 (2), 660-680 (2023)

2015 年の国連総会で採択された 17 の目標を持つ持続可能な開発目標 (SDG) に向けて、人類は地球資源を有効に活用しなければならない。マクロポーラスセラミックスは、地球温暖化対策、環境保護、エネルギー問題の解決など SDG に関連する多くの技術的課題の解決に役立ち、SDG の達成に大きく貢献することができる。ここでは、ろ過と精製、農業と水産業、熱管理、センシングデバイス、建設などの分野で使用されているマクロポーラスセラミックスの現状と将来展望について概説した。

“Effect of microstructures on dielectric breakdown strength of sintered reaction-bonded silicon nitride ceramics”

Y. Nakashima, Y. Zhou, K. Tanabe, S. Arima, K. Hirao, T. Ohji, N. Murayama, M. Fukushima

Journal of the American Ceramic society, 106 (2), 1139-1148 (2023)

イットリアとマグネシアを焼結助剤として用いてケイ素の原料から窒化反応と後焼結により窒化ケイ素セラミックスを作製し、その微細構造と絶縁破壊強度に及ぼす後焼結時間の影響を評価した。後焼結時間を 48 時間まで長くすると、窒化ケイ素の柱状粒子が成長し、それらの最大粒子長さは 150 μm 以上に達した。このため、薄い窒化ケイ素基板 (0.05 mm) の場合、絶縁破壊強度は 10 kV/mm 以下に劇的に減少し、窒化ケイ素粒子と粒界相との間の界面が絶縁破壊の経路となっていることが考察された。

“Fracture toughness evaluation of silicon nitride from microstructures via convolutional neural network”

R. Furushima, Y. Maruyama, Y. Nakashima, M. C. Ngo, T. Ohji, M. Fukushima

Journal of the American Ceramic society, 106 (2), 817-821 (2023)

窒化ケイ素セラミックスの破壊靭性を、畳み込みニューラルネットワークモデルを使用したディープラーニングにより、微細構造から直接評価した。45種類の窒化ケイ素試料から入力特徴量として、微細構造画像と相対密度を含む合計 156 データセットを作成し、目的変数としての破壊靭性と関連付けた。微細構造のみを入力特徴量とした場合でも決定係数は約 0.8 であり、相対密度を加えるとさらに改善された。窒化ケイ素セラミックスの破壊靭性は微細構造から評価できることが明らかになった。

“Effects of nitridation temperature on properties of sintered reaction-bonded silicon nitride”

Y. Nakashima, Y. Zhou, K. Tanabe, S. Arima, K. Hirao, T. Ohji, M. Fukushima

International Journal of Applied Ceramic Technology, 20 (2), 1071-1080 (2023)

イットリアとマグネシアを焼結助剤として用いてケイ素の原料から窒化反応と後焼結により窒化ケイ素セラミックスを作製し、その微細構造、曲げ強度、破壊靭性および熱伝導率に及ぼす窒化温度の影響を評価した。窒化温度の上昇とともに窒化成形体中のβ相の比率は増加し、格子酸素含有量が減少して、熱伝導率が向上した。しかし、微細構造には明確な違いはなく、曲げ強度、破壊靭性は窒化温度によらずほぼ一定であった。

< 総説・解説・報文・その他 >

「エンジニアリングセラミックスの研究開発と将来展望」

清原正勝

部会別研究技術動向 エンジニアリングセラミックス部会

日本セラミックス協会 CERAMICS JAPAN 2022 4 セラミックス Vol.57

「良く観察、ありのままを観ることは商品開発でも基本である」

清原正勝

日本ファインセラミックス協会 (JFCA)

FINE CERAMICS REPORT 2022 春号 Vol.40 No.2

特集：粒子積層分科会特集 巻頭言

「エアロゾルデポジション (AD) 法技術 - AD 法技術の半導体製造装置部材への応用 -」

清原正勝

日本粉体工業技術協会、粉体技術 12 December Vol.14, No.12, 2022

1996年工業技術院（現：産業総合技術研究所）で研究されていた常温の乾式環境下で、セラミック微粒子を高速で基材に衝突させることで、緻密なセラミック製膜体形成技術は、加熱工程を用いない製膜技術であることから当時注目され、昨今のカーボンニュートラル時代にマッチングした技術である。我々は、この技術をエアロゾルデポジション法 (AD 法) 技術と称し、2011年に世界で初めて半導体製造装置用部材として応用・製品化に成功した。

今回の「粒子積層技術分科会特集」において、粉体積層プロセスであるこのAD法技術の説明とこの技術を応用した商品を紹介する。

< 口頭発表 >

“Ceramic Education in Japan”

T. Ohji
Pan American Ceramics Congress 2022, 24-28 July,
2022, Virtual (Invited)

**“Novel Processing of Porous Ceramics for
Unidirectional Porous Structures”**

T. Ohji and M. Fukushima
Pan American Ceramics Congress 2022, 24-28 July,
2022, Virtual (Invited)

“Mechanical Reliability of Silicon Nitride Ceramics”

T. Ohji and J. Tatami
7th International Conference on the Characterization
and Control of Interfaces for High Quality Advanced
Materials
15-18 November, 2022, Yamanashi, Japan (Invited)

「大学での研究と企業の研究」

清原正勝
日本セラミックス協会 関東支部 第10回若手研究発
表交流会、2022年12月3日、神奈川大学 横浜キャ
ンパス

< 受賞 >

「日本学術振興会先進セラミックス第124委員会 技術
奨励賞」

航空 機部品加工用切削工具 BIDE MICS
勝 祐介・茂木 淳・光岡 健
2022年6月16日

「日本セラミック協会 技術賞」

航空機部品 加工用切削工具材料 BIDE MICS の開発
勝 祐介・茂木 淳・光岡 健
2022年11月29日

「The American Ceramic Society, Distinguished Life
Member」

大司達樹
2022年10月10日