

【特別推進研究】

理工系



研究課題名 非平衡合成による多元素ナノ合金の創製

京都大学・理学研究科・教授

きたがわ ひろし

北川 宏

研究課題番号： 20H05623 研究者番号：90234244

キーワード： 多元素ナノ合金、ハイエントロピー、非平衡プロセス、触媒

【研究の背景・目的】

本研究では、多元素ハイエントロピー効果により、多くの元素種を固溶化させることで、新しいナノ固溶合金を開発すると共に、革新的な触媒機能の創成を行います。研究代表者が独自に開発した、超臨界ソルボサーマル連続フロー合成法により、多種元素を原子レベルで融合させ、新元素、新物質、新材料の探索を徹底的に行います。具体的にはこれまで誰も成功していない、1) 貴金属多元素からなるハイエントロピー固溶ナノ合金の作製、2) 貴金属-卑金属の多元素からなるハイエントロピー固溶ナノ合金、3) 貴金属-卑金属-軽元素の多元素からなるハイエントロピー固溶ナノ合金の作製に挑戦します。さらに、プロセス・インフォマティクスの適用により、一貫貫型の革新的プロセス開発を行います。本研究開発により、人間の経験知からでは獲得出来ない、個々の触媒反応に関する「元素の特徴・特性」を機械学習を通して知り得るものと期待されます。

【研究の方法】

非平衡合成、ナノサイズ化、水素プロセス、ソルボサーマル連続フロー合成などの手法を駆使した固溶ナノ合金化技術の確立を徹底的に行います。これまで研究代表者は、ナノサイズ化と非平衡合成の手法を用いることで、バルク状態では決して混じり合うことのない金属元素同士を原子レベルで混合させる研究開発を行ってきました。しかしながら、金属原料溶液の噴霧スプレーにより金属イオンを還元させる手法では、還元スピードの上昇には限界があり、還元性が大きく異なる金属イオン種を瞬時に同時還元させることは難しく、均一に混和させることには成功していませんでした。そこで、水熱反応およびソルボサーマル反応を用いた超高速還元連続合成法（ソルボサーマル連続フロー合成法）を適用することで、超臨界・亜臨界における非平衡状態による固溶合金化技術の確立を行います。ソルボサーマル合成法とは、高温または高圧の溶媒（または超臨界流体）を用いて固体を合成する方法であり、溶媒が水の場合は水熱合成と呼ばれます。この手法を用いると、様々な金属イオンが溶けている溶媒を瞬時に超臨界・亜臨界流体に移行させ、高温・高圧下で各金属イオンを瞬時に金属原子に還元・合金化し、瞬時に室温に冷却させて1 nm級の固溶合金を合成することが出来る手法です。セリアなどの金属酸化物を除き、合金ナノ粒子の合成に関しては数年前までは例が無く、研究代表者が

これまで世界をリードしてきました。研究代表者が独自に開発したソルボサーマル連続フロー合成法の特長は、1) 40 MPa、450°Cまでの加圧・加熱可能、2) エタノールでも 300°Cまで還元剤として使用可能、3) エタノール 10%まで水希釈しても金属イオンを還元できる、4) 3液混合可能、5) 固溶ナノ合金の安定合成・量産化が可能であるという点にあります。

【期待される成果と意義】

非平衡超臨界・亜臨界ソルボサーマル連続フロー反応プロセスを用いることによって、任意の元素を好きなだけ選び、それらを任意の割合で原子レベルにて混ぜ合わせる事がほぼ可能になることが期待されます。しかし、自由自在性が高まると任意性も格段に高まります。2 元系や 3 元系の合金の組み合わせなら、物質化学者としての物質勘も通用することがありますが、多元系となるともはや経験則は通用しなくなります。そこで、プロセス・インフォマティクスの活用が不可欠となります。超臨界・亜臨界ソルボサーマル連続フロー合成装置を用いて、データ駆動型プロセス開発を実施します。装置の限界性能を極限まで広げ、合成失敗作も学習させることによって、マテリアルズ・インフォマティクスや人間の思考の常識を越える一貫貫型の材料開発が可能になるものと期待されます。この非常識とも言える機械学習により、人間の経験知では知り得ない、個々の触媒反応に関する「各元素の特徴・特性」が浮かび上がるものと期待されます。

【当該研究課題と関連の深い論文・著書】

- Platinum-group-metal High-entropy-alloy Nanoparticles, D. Wu, K. Kusada, T. Yamamoto, T. Toriyama, S. Matsumura, S. Kawaguchi, Y. Kubota, H. Kitagawa, *J. Am. Chem. Soc.*, 142, 32, 13833-13838 (2020).
- New Aspects of Platinum Group Metal-based Solid-solution Alloy Nanoparticles: Binary to High-entropy Alloys, K. Kusada, D. Wu, H. Kitagawa, *Chemistry - A European Journal*, 26, 5105-5130 (2020).

【研究期間と研究経費】

令和2年度－6年度 486,100千円

【ホームページ等】

http://kuchem.kyoto-u.ac.jp/osscc/j_index.html
kitagawa@kuchem.kyoto-u.ac.jp