
「ハイドロジェノミクス：高次水素機能による
革新的材料・デバイス・反応プロセスの創成」

領域番号：6001

平成30年度～令和4年度
科学研究費助成事業（科学研究費補助金）
（新学術領域研究（研究領域提案型））
研究成果報告書

令和6年6月

領域代表者 折茂 慎一 東北大学・材料科学高等研究所・教授

はしがき

高密度凝集や高速移動等の材料中の水素が示す個別の水素機能の高度化と融合により、多彩な高次水素機能を誘起、次々世代のエネルギー変革等にも資する革新的材料・デバイス・反応プロセスを創成する。これらの研究を通じて変幻自在な（＝結合多様性を示す）水素の性質を“使いこなす”ための指導原理となる新たな水素科学（＝ハイドロジェノミクス）を構築することを、本領域の目的とする。

水素は、変幻自在な元素である。極めて広い濃度（＝水素密度）範囲で材料中に存在し、高い移動性や量子性、そして他の元素と多様な反応性を示す。この時、周囲の状況に応じて、原子状態や共有結合性・イオン性（しかもプロトン H^+ とヒドリド H^- の両極性）、またそれらの中間状態にもなり、さらに各状態で水素自体の大きささえも劇的に変える。これらの性質を精密に捉えることは現在でも容易ではないが、実社会では水素の有効な機能（＝水素機能）として多方面での活用が進められている。燃焼や燃料電池反応等の様々な反応を介したエネルギー源や有用物質の原料としての活用、材料中に入出入りすることでの材料特性向上のための活用等である。これらの社会的重要性から、工学・化学・物理学・生物学等の各学問分野において個別の水素機能を追求する研究が鋭意進められてきた。

注目すべき最近の状況は、従来の延長線上にない水素科学の萌芽である。合成・解析技術の進歩により新たな高密度水素化物やヒドリド置換化合物の報告例が増加するとともに、 $LiBH_4$ や H_2S 等の既知の水素化物でも超イオン伝導や超伝導が観測されている。水素化物ルネサンスとされるこの萌芽の本質は、複数の水素機能の関与、即ち複数の水素機能の相乗効果による、従来は顕在化しなかった“高次水素機能”の誘起であることを領域研究者らは掴んでいる。この誘起により個別の水素機能だけでは実現困難な革新的材料・デバイス・反応プロセスの創成が期待される。例えば、材料中の水素が「高密度凝集して水素クラスターを形成する機能」と「高速移動する機能」との高次水素機能の誘起により、超イオン伝導や新発想デバイス等の実現が期待できる。まさに“ $1+1 \gg 2$ の機能”といえる。

実際に多彩な高次水素機能を誘起するためには、学問分野の枠を超えた異分野間での有機的連携に基づく新たな視点の水素科学が必要となる。しかし従来の研究で得られた個別の情報を持ち寄るだけでは真の連携が進まないことは明白である。各国が水素化物ルネサンスに基づく探索研究を活発化させるなか、日本の優位性低下につながる水素科学連携の遅れは決して看過することはできない。

以上の学術的背景から、合成・解析技術を含めた研究基盤を共有し、さらに数理科学を含めた異分野技術も果敢に取込むことで、新たな水素科学（本提案でハイドロジェノミクスと命名、Hydrogen（水素）-omics（～の学問体系））を早期・確実に構築すべき、との着想に至った。まさに、水素の性質を“使いこなす”ために必要な指導原理を獲得する研究提案である。学問分野の枠を大きく超えて新たな水素科学の構築を目指す研究提案は、国内外を含め、また歴史的にも、類を見ない。

研究組織（令和5年3月末現在。ただし完了した研究課題は完了時現在、補助事業廃止の研究課題は廃止時現在。）

計画研究

領域代表者 折茂 慎一（東北大学・材料科学高等研究所・教授）

（総括班）ハイドロジェノミクスの研究推進

研究代表者 折茂 慎一（東北大学・材料科学高等研究所・教授）

研究分担者 一杉 太郎（東京工業大学・物質理工学院・特任教授）

研究分担者 福谷 克之（東京大学・生産技術研究所・教授）

（計画研究 A01）高密度水素による超機能材料の合成

研究代表者 折茂 慎一（東北大学・材料科学高等研究所・教授）

研究分担者 山室 修（東京大学・物性研究所・教授）

研究分担者 齋藤 寛之（量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 放射光科学研究センター・上席研究員）

（計画研究 A02）局在水素によるヘテロ界面機能の強化

研究代表者 一杉 太郎（東京工業大学・物質理工学院・特任教授）

研究分担者 宇佐美 徳隆（名古屋大学・工学研究科・教授）

研究分担者 秋山 英二（東北大学・金属材料研究所・教授）

（計画研究 A03-1）高速移動水素による次世代創蓄電デバイスの設計

研究代表者 宮武 健治（山梨大学・大学院総合研究部・教授）

研究分担者 福井 賢一（大阪大学・基礎工学研究科・教授）

研究分担者 小柳津 研一（早稲田大学・先進理工学部・教授）

（計画研究 A03-2）高速・局所移動水素と電子とのカップリングによる新発想デバイスの設計

研究代表者 森 初果（東京大学・物性研究所・教授）

研究分担者 小林 玄器（理化学研究所・開拓研究本部・主任研究員）

研究分担者 樋口 芳樹（兵庫県立大学・生命理学研究科・教授）

（計画研究 A04）高活性水素の精密制御による新規反応プロセスの創出

研究代表者 山内 美穂（九州大学・先導物質化学研究所・教授）

研究分担者 吉信 淳（東京大学・物性研究所・教授）

研究分担者 張 浩徹（中央大学・理工学部・教授）

研究分担者 島 隆則（理化学研究所・開拓研究本部・専任研究員）

研究分担者 藤田 健一（京都大学・人間・環境学研究科・教授）

（計画研究 A05-1）水素の先端計測による水素機能の高精度解析

研究代表者 福谷 克之（東京大学・生産技術研究所・教授）

研究分担者 大友 季哉（高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・教授）

研究分担者 町田 晃彦（量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 放射光科学研究センター・上席研究員）

（計画研究 A05-2）水素の先端計算による水素機能の高精度予測

研究代表者 常行 真司（東京大学・大学院理学系研究科・教授）

研究分担者 濱田 幾太郎（大阪大学・工学研究科・准教授）
研究分担者 志賀 基之（日本原子力研究開発機構・システム計算科学センター・研究主幹）
研究分担者 杉野 修（東京大学・物性研究所・教授）

公募研究

令和元年度～令和2年度

（公募研究 A01）

研究代表者 近藤 剛弘（筑波大学・数理物質系・准教授）
研究代表者 飯村 壮史（東京工業大学・元素戦略研究センター・助教）
研究代表者 前里 光彦（京都大学・理学研究科・准教授）
研究代表者 宮岡 裕樹（広島大学・自然科学研究支援開発センター・准教授）

（公募研究 A02）

研究代表者 北野 政明（東京工業大学・元素戦略研究センター・准教授）

（公募研究 A03）

研究代表者 中村 将志（千葉大学・大学院工学研究院・准教授）
研究代表者 田中 秀和（大阪大学・産業科学研究所・教授）
研究代表者 加藤 浩之（大阪大学・理学研究科・准教授）
研究代表者 山田 鉄兵（東京大学・大学院理学系研究科・教授）
研究代表者 森本 正和（立教大学・理学部・教授）

（公募研究 A04）

研究代表者 藤田 健一（京都大学・人間・環境学研究科・教授）
研究代表者 劔 隼人（大阪大学・基礎工学研究科・准教授）
研究代表者 石元 孝佳（広島大学・先進理工系科学研究科(工)・教授）

（公募研究 A05）

研究代表者 中村 崇司（東北大学・多元物質科学研究所・准教授）
研究代表者 大山 研司（茨城大学・理工学研究科・教授）
研究代表者 重田 育照（筑波大学・計算科学研究センター・教授）
研究代表者 越智 正之（大阪大学・理学研究科・准教授）
研究代表者 犬飼 宗弘（徳島大学・大学院社会産業理工学研究部・講師）
研究代表者 立川 仁典（横浜市立大学・データサイエンス学部・教授）

令和3年度～令和4年度

（公募研究 B01）

研究代表者 近藤 剛弘（筑波大学・数理物質系・教授）
研究代表者 長尾 祐樹（北陸先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・教授）
研究代表者 榮永 茉利（大阪大学・基礎工学研究科・助教）

（公募研究 B02）

研究代表者 前野 禅（工学院大学・先進工学部・准教授）
研究代表者 山田 鉄兵（東京大学・大学院理学系研究科・教授）
研究代表者 正井 宏（東京大学・大学院総合文化研究科・助教）
研究代表者 北野 政明（東京工業大学・元素戦略 MDX 研究センター・教授）
研究代表者 大木 靖弘（京都大学・化学研究所・教授）

研究代表者 加藤 浩之（大阪大学・理学研究科・准教授）
 研究代表者 中西 匠（九州大学・先導物質化学研究所・学術研究員）
 研究代表者 川脇 徳久（東京理科大学・理学部第一部応用化学科・講師）
 （公募研究 A05）
 研究代表者 大山 研司（茨城大学・理工学研究科・教授）
 研究代表者 堀 優太（筑波大学・計算科学研究センター・助教）
 研究代表者 立川 仁典（横浜市立大学・生命ナノシステム科学研究科・教授）
 研究代表者 石河 孝洋（東京大学・大学院理学系研究科・特任研究員）
 研究代表者 中野 智志（物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・主幹研究員）

交付決定額

年度	合計	直接経費	間接経費
平成 30 年度	289,510,000 円	222,700,000 円	66,810,000 円
令和元年度	260,260,000 円	200,200,000 円	60,060,000 円
令和 2 年度	255,840,000 円	196,800,000 円	59,040,000 円
令和 3 年度	259,480,000 円	199,600,000 円	59,880,000 円
令和 4 年度	255,710,000 円	196,700,000 円	59,010,000 円
合計	1,320,800,000 円	1,016,000,000 円	304,800,000 円

研究発表

○主な雑誌論文

計画・公募研究を含めた雑誌論文等は計 722 報（領域設置～令和 5 年 6 月まで）。

計画研究 (A01)

- [1] *K. Kisu, R. Mohtadi, and *S. Orimo, "Calcium metal batteries with long cycle life using a hydride-based electrolyte and copper sulfide electrode", *Advanced Science*, 10(11), 2301178(1-9), 2023.
- [2] *R. Sato, K. Akagi, S. Takagi, K. Sau, K. Kisu, H. Li, and *S. Orimo, "Topological data analysis of ion migration mechanism", *J. Chem. Phys.*, 158(14), 144116(1-8), 2023.
- [3] *T. Sato, K. Ikeda, T. Honda, L.L. Daemen, Y.Q. Cheng, T. Otomo, H. Sagayama, A.J. Ramirez-Cuesta, S. Takagi, T. Kono, H. Yang, W. Luo, L. Lombardo, A. Züttel, and S. Orimo, "Effect of Co-substitution on hydrogen absorption and desorption reactions of YMgNi₄-based alloys", *J. Phys. Chem. C*, 126(40), 16943-16951, 2022.
- [4] Y. Ohmasa, S. Takagi, K. Toshima, K. Yokoyama, W. Endo, *S. Orimo, H. Saitoh, T. Yamada, Y. Kawakita, K. Ikeda, T. Otomo, H. Akiba, and O. Yamamuro, "Rotation of complex ions with ninefold hydrogen coordination studied by quasielastic neutron scattering and first-principles molecular dynamics calculations", *Phys. Rev. Res.*, 4(3), 33215(1-9), 2022.
- [5] E.M. Dematteis, *S. Orimo et al., "Hydrogen storage in complex hydrides: past activities and new trends", *Prog. Energy*, 4(3), 032009(1-41), 2022.
- [6] *H. Saitoh, T. Sato, M. Tanikami, K. Ikeda, A. Machida, T. Watanuki, T. Taguchi, S. Yamamoto, T. Yamaki, S. Takagi, T. Otomo, and S. Orimo, "Hydrogen storage by earth-abundant metals, synthesis and characterization of Al₃FeH_{3.9}", *Mater. Des.*, 208, 109953(1-7), 2021.
- [7] *K. Kisu, S. Kim, T. Shinohara, K. Zhao, A. Züttel, and S. Orimo, "Monocarborane cluster as a stable fluorine-free calcium battery electrolyte", *Sci. Rep.*, 11, 11915(1-9), 2021.
- [8] *S. Takagi, T. Ikeshoji, T. Sato, and S. Orimo, "Pseudorotating hydride complexes with high hydrogen coordination: A class of rotatable polyanions in solid matter", *Appl. Phys. Lett.*, 116, 173901(1-5), 2020.
- [9] *S. Kim, H. Oguchi, N. Toyama, T. Sato, S. Takagi, T. Otomo, D. Arunkumar, N. Kuwata, J. Kawamura, and *S. Orimo, "A complex hydride lithium superionic conductor for high-energy-density all-solid-state lithium metal batteries", *Nat. Commun.*, 10, 1081(1-9), 2019.

計画研究 (A02)

- [10] *R.S. Varanasi, *M. Koyama, H. Saitoh, R. Utsumi, T. Sato, S. Orimo, and E. Akiyama, "Phase transformations and microstructure evolutions during depressurization of hydrogenated Fe-Mn-Si-Cr alloy", *Int. J. Hydrog. Energy*, 48(27), 10081-10088, 2023.
- [11] *R. Nakayama, Y. Kawaguchi, R. Shimizu, K. Nishio, H. Oguchi, S. Kim, S. Orimo, and T. Hitosugi, "Fabrication and growth orientation control of NaBH₄ epitaxial thin films using infrared pulsed-laser deposition", *Cryst. Growth Des.*, 22(11), 6616-6621, 2022.
- [12] S. Chon, Y. Sugisawa, S. Kobayashi, K. Nishio, M. Wilde, N. Kishi, D. Sekiba, K. Fukutani, T. Hitosugi, and R. Shimizu, "Selective epitaxial growth of Ca₂NH and CaNH thin films by reactive magnetron sputtering under hydrogen partial pressure control", *J. Phys. Chem. Lett.*, 13(43), 10169-10174, 2022.
- [13] H. Kakinuma, S. Ajito, T. Hojo, M. Koyama, and E. Akiyama, "Real-time visualization of hydrogen distribution in metals using polyaniline: An ultrasensitive hydrogenochromic sensor", *Adv. Mater. Interfaces*, 9(18), 2101984(1-7), 2022.
- [14] Y. Komatsu, *R. Shimizu, *R. Sato, M. Wilde, K. Nishio, T. Katase, D. Matsumura, H. Saitoh, M. Miyauchi, J. Adelman, R. McFadden, D. Fujimoto, J. Ticknor, M. Stachura, I. McKenzie, G.D. Morris, W. Macfarlane, J. Sugiyama, K. Fukutani, S. Tsuneyuki, and T. Hitosugi, "Repeatable photoinduced insulator-to-metal transition in yttrium oxyhydride epitaxial thin films", *Chem. Mater.*, 34(8), 3616-3623, 2022.
- [15] R. Tsubata, *K. Gotoh, M. Matsumi, M. Wilde, T. Inoue, Y. Kurokawa, K. Fukutani, and *N. Usami, "Silicon nanocrystals embedded in nanolayered silicon oxide for crystalline silicon solar cells", *ACS Appl. Nano Mater.*, 5, 1820-1827, 2022.
- [16] *M. Koyama, H. Saitoh, T. Sato, S. Orimo, and E. Akiyama, "Depressurization-induced diffusionless transformation in pure iron hydrogenated under several gigapascals", *Mater. Lett.: X*, 11, 100078(1-3), 2021.
- [17] *R. Shimizu, Y. Sasahara, I. Hamada, H. Oguchi, S. Ogura, T. Shirasawa, M. Kitamura, K. Horiba, H. Kumigashira, S. Orimo, K. Fukutani, and T. Hitosugi, "Polarity reversal of the charge carrier in tetragonal TiH_x (x=1.6-2.0) at low temperatures", *Phys. Rev. Res.*, 2, 033467(1-9), 2020.
- [18] *S. Ajito, T. Hojo, M. Koyama, K. Fujita, and E. Akiyama, "Application of an iridium complex for detecting hydrogen permeation through pure iron", *Int. J. Hydrogen Energy*, 45, 25580-25586, 2020.
- [19] *K. Gotoh, M. Wilde, S. Kato, S. Ogura, Y. Kurokawa, K. Fukutani, and N. Usami, "Hydrogen concentration at a-Si:H/c-Si heterointerfaces - the impact of deposition temperature on passivation performance", *AIP Adv.*, 9, 075115(1-7), 2019.
- [20] *T. Mochizuki, K. Gotoh, Y. Kurokawa, T. Yamamoto, and N. Usami, "Local structure of high performance TiO_x electron-selective contact revealed by electron energy loss spectroscopy", *Adv. Mater. Interfaces*, 6,

計画研究 (A03-1)

- [21] M. Yonenaga, Y. Kaiwa, K. Oka, K. Oyaizu, and *K. Miyatake, "All-solid-state rechargeable air batteries using dihydroxybenzoquinone and its polymer as the negative electrode", *Angew. Chem. Inter. Ed.*, 62(30), e202304366(1-5), 2023.
- [22] R. Kumao and *K. Miyatake, "Sulfonated and fluorinated aromatic terpolymers as proton conductive membranes: Synthesis, structure, and properties", *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 95(5), 707-712, 2022.
- [23] M. Yonenaga, Y. Kaiwa, K. Oka, K. Oyaizu, K. Miyatake, Y. Morino, and *K. Fukui, "Interface behavior of electrolyte/quinone organic active material in battery operation by *Operando* surface enhanced Raman spectroscopy", *Langmuir*, 38, 3951-3958, 2022.
- [24] K. Oka, Y. Tobita, M. Kataoka, K. Kobayashi, Y. Kaiwa, H. Nishide, and *K. Oyaizu, "Hydrophilic isopropanol/acetone-substituted polymers for safe hydrogen storage", *Polym. Int.*, 71, 348-351, 2022.
- [25] Z. Long and *K. Miyatake, "ePTFE reinforced, sulfonated aromatic polymer membranes enable durable, high-temperature operable PEMFCs", *iScience*, 24, 102962(1-15), 2021.
- [26] *Y. Morino, Y. Yokota, K. Bando, H. Hara, A. Imanishi, J. Takeya, and *K. Fukui, "*Operando* atomic force microscopy study of electric double-layer transistors based on ionic liquid/rubrene single crystal interfaces", *Appl. Phys. Lett.*, 118, 243301(1-4), 2021.
- [27] *K. Hatakeyama-Sato and *K. Oyaizu, "Generative models for extrapolation prediction in materials informatics", *ACS Omega*, 6, 14566-14574, 2021.
- [28] K. Shiino, T. Otomo, T. Yamada, H. Arima, K. Hiroi, S. Takata, J. Miyake, and *K. Miyatake, "Structural investigation of sulfonated polyphenylene ionomers for the design of better performing proton-conductive membranes", *ACS Appl. Polym. Mater.*, 2, 5558-5565, 2020.
- [29] J. Miyake, Y. Ogawa, T. Tanaka, J. Ahn, K. Oka, K. Oyaizu, and *K. Miyatake, "Rechargeable proton exchange membrane fuel cell containing an intrinsic hydrogen storage polymer", *Commun. Chem.*, 3, 138(1-7), 2020.
- [30] K. Oka, Y. Kaiwa, M. Kataoka, K. Fujita, and *K. Oyaizu, "A polymer sheet-based hydrogen carrier", *Eur. J. Org. Chem.*, 2020, 5876-5879, 2020.
- [31] Z. Long, J. Miyake, and *K. Miyatake, "Proton exchange membranes containing densely sulfonated quinquephenylene groups for high performance and durable fuel cells", *J. Mater. Chem. A*, 8, 12134-12140, 2020.
- [32] K. Shiino, J. Miyake, and *K. Miyatake, "Highly stable polyphenylene ionomer membrane from dichlorobiphenyls", *Chem. Commun.*, 55, 7073-7076, 2019.

計画研究 (A03-2)

- [33] K. Okamoto, F. Takeiri, Y. Imai, M. Yonemura, T. Saito, K. Ikeda, T. Otomo, T. Kamiyama, and *G. Kobayashi, "Impact of Na concentration on the phase transition behavior and H⁻ conductivities in the Ba-Li-Na-H-O oxyhydride system", *Adv. Sci.*, 10, 2203541(1-7), 2023.
- [34] *S. Dekura, M. Mizuno, and *H. Mori, "Isotropic anhydrous superprotonic conductivity cooperated with installed imidazolium molecular motions in a 3D hydrogen-bonded phosphate network", *Angew. Chem. Inter. Ed.*, 61, e202212872(1-7), 2022.
- [35] K. Okamoto, F. Takeiri, Y. Imai, M. Yonemura, T. Saito, K. Ikeda, T. Otomo, T. Kamiyama, and *G. Kobayashi, "Stabilization of a high H⁻-conducting phase via K doping of Ba-Li oxyhydride", *J. Mater. Chem. A*, 10, 23023(1-5), 2022.
- [36] *H. Mori, S. Yokomori, S. Dekura, and A. Ueda, "Proton-electron-coupled functionalities of conductivity, magnetism, and optical properties in molecular crystals", *Chem. Commun.*, 58(38), 5668-5682, 2022.
- [37] F. Takeiri, A. Watanabe, K. Okamoto, D. Bresser, S. Lyonnard, B. Frick, A. Ali, Y. Imai, M. Nishikawa, M. Yonemura, T. Saito, K. Ikeda, T. Otomo, T. Kamiyama, R. Kanno, and *G. Kobayashi, "Hydride-ion-conducting K₂NiF₄-type Ba-Li oxyhydride solid electrolyte", *Nat. Mater.*, 21, 325-330, 2022.
- [38] S. Dekura, Y. Sunairi, K. Okamoto, F. Takeiri, G. Kobayashi, *Y. Hori, Y. Shigeta, and *H. Mori, "Effects of mechanical grinding on the phase behavior and anhydrous proton conductivity of imidazolium hydrogen succinate", *Solid State Ion.*, 372, 115775(1-7), 2021.
- [39] T. Hiromoto, K. Nishikawa, *T. Tamada, and *Y. Higuchi, "The challenge of visualizing the bridging hydride at the active site and proton network of [NiFe]-hydrogenase by neutron crystallography", *Top. Catal.*, 64, 622-630, 2021.
- [40] *Y. Kanematsu, H.S. Kato, S. Yoshimoto, A. Ueda, S. Yamamoto, H. Mori, J. Yoshinobu, I. Matsuda, and M. Tachikawa, "A computational examination of the electric-field-induced proton transfer along the interface hydrogen bond between proton donating and accepting self-assembled monolayers", *Chem. Phys. Lett.*, 741, 137091(1-4), 2020.
- [41] Y.K. Nakagawa, K. Nishikawa, S. Nakashima, S. Inoue, T. Ohta, T. Ogura, Y. Shigeta, K. Fukutani, T. Yagi, and *Y. Higuchi, "New assay method based on Raman spectroscopy for enzymes reacting with gaseous substrates", *Protein Sci.*, 28(3), 663-670, 2019.

計画研究 (A04)

- [42] Y.H. Choi, S.E.M. Putra, Y. Shiozawa, S. Tanaka, K. Mukai, I. Hamada, Y. Morikawa, and J. Yoshinobu, "The quantitative study of methane adsorption on the Pt(997) step surface as the initial process for reforming reactions", *Surf. Sci.*, 732, 122284(1-8), 2023.
- [43] M. Yamauchi, H. Saito, *T. Sugimoto et al., "Sustainable organic synthesis promoted on titanium dioxide using coordinated water and renewable energies/resources", *Coord. Chem. Rev.*, 472, 214773(1-29), 2022.
- [44] W. Osada, S. Tanaka, K. Mukai, M. Kawamura, Y.H. Choi, F. Ozaki, T. Ozaki, and *J. Yoshinobu, "Elucidation of the atomic-scale processes of dissociative adsorption and spillover of hydrogen on the single atom alloy catalyst Pd/Cu(111)", *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 24(36), 21705(1-9), 2022.
- [45] Q. Zhuo, J. Yang, Z. Mo, X. Zhou, T. Shima, *Y. Luo, and *Z. Hou, "Dinitrogen cleavage and functionalization with carbon dioxide in a dititanium dihydride framework", *J. Am. Chem. Soc.*, 144, 6972-6980, 2022.
- [46] S. Kitano, *M. Yamauchi et al., "Heterointerface created on Au cluster-loaded unilamellar hydroxide electrocatalysts as a highly active site for the oxygen evolution reaction", *Adv. Mater.*, 34, 2110552(1-11), 2022.
- [47] *D.R. Rocabado, T.G. Noguchi, S. Hayashi, N. Maeda, *M. Yamauchi, and *T. Ishimoto, "Adsorption states of N₂/H₂ activated on Ru nanoparticles uncovered by modulation-excitation infrared spectroscopy and density functional theory calculations", *ACS Nano.*, 15, 20079-20086, 2021.
- [48] *K. Fujita, T. Inoue, T. Tanaka, J. Jeong, S. Furukawa, and R. Yamaguchi, "Iridium complex catalyzed hydrogen production from glucose and various monosaccharides", *Catalysts*, 11, 891(1-9), 2021.
- [49] H. Eguchi, T. Kobayashi, *T. Yamada, D.S. Rivera Rocabado, *T. Ishimoto, and *M. Yamauchi, "Inversely polarized thermo-electrochemical power generation via the reaction of an organic redox couple on a TiO₂/Ti mesh electrode", *Sci. Rep.*, 11, 13929(1-7), 2021.
- [50] G. Toyooka, T. Tanaka, K. Kitayama, N. Kobayashi, T. Watanabe, and *K. Fujita, "Hydrogen production from cellulose catalyzed by an iridium complex in ionic liquid under mild conditions", *Catal. Sci. Technol.*, 2021, 2273-2279, 2021.
- [51] S. Hu, T. Shima, and *Z. Hou, "Hydrodeoxygenative cyclotetramerization of carbon monoxide by a trinuclear titanium polyhydride complex", *J. Am. Chem. Soc.*, 142, 19889-19894, 2020.
- [52] T. Fukushima and *M. Yamauchi, "Electrosynthesis of amino acids from biomass-derivable acids on titanium dioxide", *Chem. Commun.*, 55, 14721-14724, 2019.

計画研究 (A05-1)

- [53] *S. Yasuda, H. Matsushima, K. Harada, R. Tanii, T. Terasawa, M. Yano, H. Asaoka, J.S. Gueriba, W.A. Dino, and K. Fukutani, "Efficient hydrogen isotope separation by tunneling effect used graphene-based heterogeneous electrocatalysts in electrochemical hydrogen isotope pumping", *ACS Nano*, 16(9), 14362-14369, 2022.
- [54] *K. Fukutani, J. Yoshinobu, M. Yamauchi, T. Shima, and S. Orimo, "Hydrogenomics: Efficient and selective hydrogenation of stable molecules utilizing three aspects of hydrogen", *Catal. Lett.*, 152, 1583-1597, 2022.
- [55] N. Nagatsuka, K. Kato, M. Wilde, S. Ogura, and K. Fukutani, "Absence of mid-gap states due to excess electrons donated by adsorbed hydrogen on the anatase TiO₂ (101) surfaces", *Phys. Rev. B*, 105, 045424(1-6), 2022.
- [56] Y. Nagaya, H. Nakatsu, S. Ogura, K. Shimazaki, H. Ueta, K. Takeyasu, and *K. Fukutani, "Focusing and spin polarization of atomic hydrogen beam", *J. Chem. Phys.*, 155, 194201(1-6), 2021.
- [57] *N. Oshime, K. Ohwada, K. Sugawara, T. Abe, R. Yamauchi, T. Ueno, A. Machida, T. Watanuki, S. Ueno, I. Fujii, S. Wada, R. Sato, T. Teranishi, M. Yamauchi, K. Ishii, H. Toyokawa, K. Momma, and Y. Kuroiwa, "Bragg coherent diffraction imaging allowing simultaneous retrieval of three-dimensional shape and strain distribution for 40-500 nm particles", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 60, SFFA07(1-6), 2021.
- [58] *K. Ikeda, F. Fujisaki, T. Otomo, H. Ohshita, T. Honda, T. Kawamata, H. Arima, K. Sugiyama, H. Abe, H. Kim, K. Sakaki, Y. Nakamura, A. Machida, T. Sato, S. Takagi, and S. Orimo, "Generating mechanism of catalytic effect for hydrogen absorption/desorption reactions in NaAlH₄-TiCl₃", *Appl. Sci.*, 11(18), 8349(1-16), 2021.
- [59] *H. Ueta, Y. Sasakawa, D. Ivanov, S. Ohno, S. Ogura, and *K. Fukutani, "Direct measurement of fast *ortho-para* conversion of molecularly chemisorbed H₂ on Pd(210)", *Phys. Rev. B*, 102, 121407(R)(1-5), 2020.
- [60] *Y. Nakamura, K. Sakaki, H. Kim, K. Asano, T. Watanuki, and A. Machida, "Reaction paths via a new transient phase in nonequilibrium hydrogen absorption of LaNi₂Co₃", *Int. J. Hydrog. Energy*, 45, 21655-21665, 2020.
- [61] T. Ozawa, R. Shimizu, S. Ogura, T. Hitosugi, and K. Fukutani, "Fabrication of nm-thick palladium hydride and observation of its relaxation", *J. Vac. Surf. Sci.*, 62, 492-497, 2019.
- [62] *S. Ogura, S. Ohno, K. Mukai, J. Yoshinobu, and K. Fukutani, "H-D exchange mechanism of butene on a D-adsorbed Pd-Au alloy surface", *J. Phys. Chem.*, 123, 7854-7860, 2018.

計画研究 (A05-2)

- [63] Y. Zhao, R. Sato, and S. Tsuneyuki, "Accelerating simulated annealing of glassy materials with data assimilation", *J. Non-Cryst. Solids*, 600, 122028(1-6), 2023.
- [64] T. Goto, S.-i. Ito, S.L. Shinde, I. Matsuda, *I. Hamada, H. Hosono, and T. Kondo, "Carbon dioxide adsorption and conversion to ethane on hydrogen boride sheets", *Commun. Chem.*, 5, 118(1-10), 2022.
- [65] S. Yoshikawa, *R. Sato, R. Akashi, S. Todo, and S. Tsuneyuki, "A noise-robust data assimilation method for crystal structure determination using powder diffraction intensity", *J. Chem. Phys.*, 157, 224112(1-8), 2022.
- [66] *H. Kimizuka, B. Thomsen, and M. Shiga, "Artificial neural network-based path integral simulations of

- hydrogen isotope diffusion in palladium", J. Phys. Energy., 4, 034334(1-14), 2022.
- [67] K. Takeyasu, S. Yasutaka, T. Imabayashi, S.E.M. Putra, H.H. Halim, J. Quan, Y. Hamamoto, I. Hamada, Y. Morikawa, T. Kondo, T. Fujitani, and *J. Nakamura, "Hydrogenation of formate species using atomic hydrogen on a Cu(111) model catalyst", J. Am. Chem. Soc., 144(27), 12158-12166, 2022.
- [68] *B. Thomsen and M. Shiga, "Structure of liquid and aqueous water isotopologues at ambient temperature from ab initio path integral simulations", Phys. Chem. Chem. Phys., 24, 10851-10859, 2022.
- [69] K.I. Rojas, N.T. Cuong, H. Nishino, R. Ishibiki, S. Ito, M. Miyauchi, Y. Fujimoto, S. Tominaka, S. Okada, H. Hosono, N.J. Arboleda, *T. Kondo, Y. Morikawa, and *I. Hamada, "Chemical stability of hydrogen boride nanosheets in water", Commun. Mater., 2, 81(1-8), 2021.
- [70] *A. Shiotari, S.E.M. Putra, Y. Shiozawa, Y. Hamamoto, K. Inagaki, Y. Morikawa, Y. Sugimoto, J. Yoshinobu, and I. Hamada, "Role of intermolecular interactions in catalytic reaction of formic acid on Cu(111)", Small, 17, 2008010(1-10), 2021.
- [71] *M. Ghim, N. Sato, R. Akashi, S.-H. Jhi, and S. Tsuneyuki, "Coexistence of spontaneous polarization and superconductivity in hole-doped oxyhydrides $ATiO_2H$ ($A=K, Rb, Cs$): First-principles study", Phys. Rev. Mater., 5, 054802(1-10), 2021.
- [72] *L. Yan, Y. Yamamoto, M. Shiga, and O. Sugino, "Nuclear quantum effect for hydrogen adsorption on Pt(111)", Phys. Rev. B, 101, 165414(1-9), 2020.
- [73] *A. Shiotari, I. Hamada et al., "Manipulable metal catalyst for nanographene synthesis", Nano Lett., 20, 8339-8345, 2020.
- [74] *D. Adachi, N. Tsujimoto, R. Akashi, S. Todo, and S. Tsuneyuki, "Search for common minima in joint optimization of multiple cost functions", Comput. Phys. Commun., 241, 92-97, 2019.

公募研究

- [75] *K. Sugawara, S. Orimo, M. Toyoda, S. Saito, T. Kondo, *T. Sato et al., "Direct imaging of band structure for powdered rhombohedral boron monosulfide by microfocused ARPES", Nano Lett., 23(5), 1673-1679, 2023.
- [76] K. Fukui, *S. Jimura, T. Honda, K. Ikeda, T. Otomo, *H. Hosono et al., "Characteristic fast H^- ion conduction in oxygen-substituted lanthanum hydride", Nat. Commun., 10, 2578(1-8), 2019.
- [77] G.C. Lim, M. Maesato, R. Nakayama, D.W. Lim, and H. Kitagawa, "Reversible resistance switching by excess hydrogen doping in rutile TiO_2 ", Appl. Phys. Express., 13, 105502/1-5, 2020.
- [78] K. Ogasawara, T. Nakao, K. Kishida, T. Ye, Y. Lu, H. Abe, Y. Niwa, M. Sasase, *M. Kitano, and *H. Hosono, "Ammonia decomposition over $CaNH$ -supported Ni catalysts via an NH_2^- -vacancy-mediated Mars-van Krevelen mechanism", ACS Catal., 11, 11005-11015, 2021.
- [79] R. Hosoda, N. Kamoshida, N. Hoshi, Y. Einaga, and M. Nakamura, "In situ infrared spectroscopy of dopamine oxidation/reduction reactions on a polycrystalline boron-doped diamond electrode", Carbon., 171, 814-818, 2020.
- [80] R. Iwai, *M. Morimoto, and M. Irie, "Turn-on mode fluorescent diarylethenes: Effect of electron-donating and electron-withdrawing substituents on photoswitching performance", Photochem. Photo. Sci., 19, 783-789, 2020.
- [81] T. Yamanaka, *A. Hattori, L. Paması, S. Takemoto, K. Hattori, H. Daimon, K. Sato, and *H. Tanaka, "Effects of off-stoichiometry in the epitaxial $NdNiO_3$ film on the suppression of its Metal-Insulator-Transition properties", ACS Applied Electronic Materials., 1, 2678-2683, 2019.
- [82] R. Muneyasu, T. Yamada, M. Akai-Kasaya, and *H.S. Kato, "Self-assembly of heterogeneous bilayers stratified by Au-S and hydrogen bonds on Au(111)", Phys. Chem. Chem. Phys., 24, 22222(1-9), 2022.
- [83] H. Zhou, H. Inoue, M. Ujita, and *T. Yamada, "Advancement of electrochemical thermoelectric conversion with molecular technology", Angew. Chem. Inter. Ed., 62(2), e202213449(1-18), 2022.
- [84] J. Jeong, T. Shimbayashi, and *K. Fujita, "Effect of a Substituent in Cyclopentadienyl Ligand on Iridium-Catalyzed Acceptorless Dehydrogenation of Alcohols and 2-Methyl-1,2,3,4-tetrahydroquinoline", Catalysts., 9, 846, 2019.
- [85] Y. Ueda, *H. Tsurugi, and *K. Mashima, "Cobalt - Catalyzed E - Selective Cross - Dimerization of Terminal Alkynes: A Mechanism Involving Cobalt(0/II) Redox Cycles ", Angew. Chem. Int. Ed., 59, 1552-1556, 2020.
- [86] N. Yodsin, H. Sakagami, T. Udagawa, T. Ishimoto, *S. Jungstittiwong, and *M. Tachikawa, "Metal-doped carbon nanocones as highly efficient catalysts for hydrogen storage: Nuclear quantum effect on hydrogen spillover mechanism", Mol. Catal., 504, 111486(1-10), 2021.
- [87] N. Wang, H. Toriumi, Y. Sato, C. Tang, T. Nakamura, K. Amezawa, S. Kitano, H. Habazaki, and Y. Aoki, " $La_{0.8}Sr_{0.2}Co_{1-x}Ni_xO_{3-\delta}$ as the Efficient Triple Conductor Air Electrode for Protonic Ceramic Cells", ACS Appl. Energy Mater., 4, 554-563, 2021.
- [88] *K. Hayashi, M. Lederer, Y. Fukumoto, M. Goto, Y. Yamamoto, N. Happe, M. Harada, Y. Inamura, K. Oikawa, K. Ohoyama, and P. Wellmann, "Determination of site occupancy of boron in 6H-SiC by multiple-wavelength neutron holography", Appl. Phys. Lett., 120, 132101 (1-6), 2022.
- [89] A. Sato, Y. Hori, and Y. Shigeta, "Characterization of the geometrical and electronic structures of the active site and its effects on the surrounding environment in reduced high-potential iron-sulfur proteins investigated by the density functional theory approach", Inorg. Chem., 62(5), 2040-2048, 2023.
- [90] M. Ochi and K. Kuroki, "Quantifying the stability of the anion ordering in $SrVO_2H$ ", Phys. Rev., B 102, 134108-

- (1-7), 2020.
- [91] *K. Kisu, S. Kim, M. Inukai, H. Oguchi, S. Takagi, and *S. Orimo, "Magnesium Borohydride Ammonia Borane as a Magnesium Ionic Conductor", ACS Appl. Energy Mater., 3, 4, 3174-3179, 2020.
 - [92] Md. M. Hasan and Y. Nagao, "Christmas-tree-shaped Palladium Nanostructures Decorated on Glassy Carbon Electrode for Ascorbic Acid Oxidation in Alkaline Condition", ChemistrySelect., 6, 5885-5892, 2021.
 - [93] S. Yasumura, Y. Wen, T. Toyao, Y. Kanda, K. Shimizu, and Z. Maeno, "Propane Dehydrogenation Catalysis of Titanium Hydrides: Positive Effect of Hydrogen Co-feeding", Chemistry Letters., 51, 88-90, 2022.
 - [94] G.M. Russell, T. Kaneko, *H. Masai, and *J. Terao, "Transient photodegradability of photostable gel Induced by simultaneous treatment with acid and UV light for phototuning of optically functional materials", Adv. Funct. Mater., 32, 2205855(1-9), 2022.
 - [95] K. Masaoka, M. Ohkubo, H. Taue, M. Wakioka, Y. Ohki, and M. Ogasawara, "Synthesis of Monophosphaferrocenes Revisited", ChemistrySelect., 7, e202104472, 2022.
 - [96] T. Kawawaki, *Y. Negishi et al., "Creation of high-performance heterogeneous photocatalysts by controlling ligand desorption and particle size of gold nanocluster", Angew. Chem. Int. Ed., 60, 21340-21350, 2021.
 - [97] *Y. Hori, *S. Dekura, Y. Sunairi, T. Ida, M. Mizuno, H. Mori, and Y. Shigeta, "Proton conduction mechanism for anhydrous imidazolium hydrogen succinate based on local structures and molecular dynamics", J. Phys. Chem. Lett., 12, 5390-5394, 2021.

○主な学会発表 国際学会における招待講演：250件、国際学会における基調講演：34件 計画研究

- [1] S. Orimo, "Super-ionic conduction of mono-/di-valent cations and advanced battery application of complex hydrides: Viewpoint from "HYDROGENOMICS" project", 15th International Symposium Hydrogen & Energy (2023年, オンライン) 基調講演
- [2] N. Usami, "Research on next-generation PV technology in Japan", 2nd Indo-Japan Joint Workshop on Photovoltaics (2023年, チェンナイ) 招待講演
- [3] K. Miyatake, "Polyphenylene ionomer membranes: Effect of reinforcement", Solid State Proton Conductors, SSPC-20 (2021年, オンライン) 招待講演
- [4] K. Oyaizu, "Polymers for High Density Organic Batteries", Organic Battery Days (2022年, ヒューストン) 基調講演
- [5] H. Mori, "Novel proton-electron coupled functionalities in molecular materials", Materials Research Meeting (MRM2021) (2021年, 横浜) 招待講演
- [6] Y. Higuchi, "Structural study on [NiFe]-hydrogenases", I2CNER INTERNATIONAL WORKSHOP CATALYTIC MATERIALS TRANSFORMATIONS RESEARCH DIVISION (2020年, 福岡) 基調講演
- [7] M. Yamauchi, "Inorganic nanocatalysts for efficient electrochemical material conversion", 20th Science Council of Asia Conference (2021年, 上海) 招待講演
- [8] K. Fukutani, "Development of channeling 15N-NRA for structure analysis of hydrogen in nanofilms and subsurfaces", 10th International Workshop on High-Resolution Depth Profiling, HRDP-10 (2022年, イラク リオン) 招待講演
- [9] S. Tsuneyuki, "Computational materials science from first principles, from data, and in between", Int. Conf. on Discrete Geometric Analysis for Materials Design (2021年, 東京) 基調講演
- [10] M. Shiga, "CMD Studies and Special Lecture: Path integral Simulations", 37th Computational Materials Design Workshop (2020年, オンライン) 基調講演

公募研究

- [11] H. Tanaka, "Control of electrical properties on transition metal oxide thin films via protonic-electronic coupling", 6th Conference of Bangladesh Crystallographic Association (2021年, オンライン) 基調講演
- [12] T. Kondo, "Boron-based new two-dimensional materials: synthesis, characterization, and application", 第60回 フラレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム (2021年, オンライン) 基調講演
- [13] Y. Nagao, "INTERFACIAL H+/OH- TRANSPORT IN POLYMER ELECTROLYTE THIN FILMS", 7th Virtual International Conference on Functional Materials and Devices 2022 (ICFMD2022) (2022年, クアラルンプール) 基調講演
- [14] M. Kitano, "Novel Solid Catalysts with Functional Anion Sites for Ammonia Synthesis", International Conference on Solid Compounds of Transition Elements (SCTE2022) (2022年, ボルドー) 基調講演
- [15] T. Nakanishi, "Development of Iron(II) Complexes Exhibiting Thermo- and Photo-induced Proton Transfer Coupled Spin Transition", 24th International Conference on Horizons in Hydrogen Bond Research (2022年, ビルバオ) 基調講演

○主な書籍

- [1] 折茂慎一, 福谷克之, 藤田健一編著：““水素”を使いこなすためのサイエンス ハイドロジェノミクス” (共立出版, 2022) p. 224.
- [2] Shin-ichi ORIMO, Katsuyuki FUKUTANI, and Ken-ichi FUJITA “Hydrogenomics: The Science of Fully

Utilizing Hydrogen” (Kyoritsu Shuppan, 2023) p. 304.

- [3] Motomichi Koyama, Burak Bal, Dermican Canadinc, Kishan Habib, Toshihiro Tsuchiyama, Kaneaki Tsuzaki and Eiji Akiyama, “Advances in Hydrogen Embrittlement Study (Potential Effects of Short-Range Order on Hydrogen Embrittlement of Stable Austenitic Steels — A Review)” (Springer, 2021) pp. 1-18.
- [4] 福井賢一, “表面分析ハンドブック (雰囲気制御・電気化学走査トンネル顕微鏡)” (朝倉書店, 2021) pp. 434-439.
- [5] 古川翔一, 藤田健一, “水中有機合成の開発動向 (イリジウム錯体による水中触媒反応)” (シーエムシー出版, 2022) pp. 30-41.
- [6] 吉信淳, “2020 版 薄膜作製応用ハンドブック (薄膜の表面・界面制御と信頼性)” (エヌ・ティー・エス, 2020) 第3編第2章第7節.
- [7] 常行真司, “マテリアルズ・インフォマティクス開発事例最前線 (不完全な粉末回折実験データを用いたデータ同化結晶構造探索)” (エヌ・ティー・エス, 2021) 第3編第1章第2節.
- [8] 田中秀和, 服部梓, “化学と物理が融合した量子物質の展開 - イオンと電子の相関をナノ構造で制御する” (化学同人, 2022) pp. 68-69.
- [9] Takahiro Kondo and Iwao Matsuda, “2D Boron: Boraphene, Borophene, Boronene (Chemically Modified Borophene)” (Springer, 2021) pp. 89-119.
- [10] Masaaki Kitano and Hideo Hosono, “Crystalline Metal Oxide Catalysts (Crystalline Support)” (Springer, 2022) pp. 197-218.

○研究成果による産業財産権の出願・取得状況 多数あるため、取得および公開のみ記載

- [1] 名称: 水素吸蔵材、水素化水素吸蔵材の製造方法および水素吸蔵合金の製造方法、発明者: 齋藤寛之、谷上真惟、森本勝太、綿貫徹、特許権者: 量子科学技術研究開発機構、番号: 特許 7207685、出願年: 2018 年
- [2] 名称: 陰イオン交換樹脂、電解質膜、電極触媒層形成用バインダー、電池電極触媒層および燃料電池、発明者: 宮武健治、三宅純平、木村太郎、横田尚樹、永瀬勝也、今野陽介、朝澤浩一郎、高野葵、加藤豪士、特許権者: 山梨大学、タカハタプレジジョン株式会社、ダイハツ工業株式会社、番号: 特許7233642、出願年: 2019年
- [3] 名称: 燃料電池セル、発明者: 宮武健治、小柳津研一、特許権者: 山梨大学、早稲田大学、番号: 特許7466121、出願年: 2019年
- [4] 名称: 水素発生装置、発明者: 疋田育之、世登裕明、近藤剛弘、伊藤伸一、特許権者: 株式会社デンソー、筑波大学、東京工業大学、番号: 特許7485287、出願年: 2020年
- [5] 名称: 合金、水素取出システム、水素吸蔵材、および合金の製造方法、発明者: 山本春也、齋藤寛之、田口富嗣、八巻徹也、出願人: 量子科学技術研究開発機構、番号: 特開2022-073947、出願年: 2021年
- [6] 名称: 化合物、組成物、導電助剤、電極及び積層体、発明者: 南風盛将光、筈井重和、清野美勝、中村浩昭、森初果、藤野智子、出倉駿、小野塚洸太、出願人: 出光興産株式会社、東京大学、番号: 特開2023-034332、出願年: 2021年
- [7] 名称: ヒドリドイオン導電体及びその製造方法並びに全固体電池、発明者: 小林玄器、泉善貴、竹入史隆、出願人: 自然科学研究機構、番号: 特開2023-128076、出願年: 2022年
- [8] 名称: X線回折測定方法およびX線回折測定装置、発明者: 大和田謙二、町田晃彦、押目典宏、菅原健人、綿貫徹、出願人: 量子科学技術研究開発機構、番号: 特開2023-169846、出願年: 2022年
- [9] 名称: 固体高分子形燃料電池用セパレーター及びその製造方法、発明者: 長尾祐樹、ホシリ、出願人: 北陸先端科学技術大学院大学、番号: 特開2023-079636、出願年: 2021年
- [10] 名称: 熱電変換用電解液、これを備える熱電変換素子、熱化学電池、温度調節装置、および熱電センサー、発明者: 山田鉄兵、君塚信夫、小林傑、的場史憲、出願人: 東京大学、番号: 特開2023-054907、出願年: 2021年

○主なアウトリーチ活動 一般向け講演会・セミナー: 34件、小・中・高校生向け授業・実験: 50件、サイエンスカフェ: 3件、イベント参加・出店: 21件、プレスリリース: 21件、他多数有り

- [1] 齋藤寛之, “令和2年度文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム 学生研究プログラム” (2020年8月3〜7日, 佐用)
- [2] 一杉太郎, “高大連携特別授業 サマーレクチャー” (2019年9月3日, 東京)
- [3] 福井賢一, “阪大SEEDSプログラム 化学が拓く新たな科学” (2020年10月7日, 豊中)
- [4] 森初果, “東京大学柏キャンパス一般公開(物性研究所)” (2022年10月22日, 柏)
- [5] 樋口芳樹, “兵庫県高校教育研究会 科学部会・生物部会総会” (2021年7月8日, 姫路)
- [6] 藤田健一, “令和4年度京都大学大学院人間・環境学研究科公開講座「世界情勢とエネルギー問題」” (2022年8月9日, 京都)
- [7] K. Fukutani, “The 18th CNS International Summer School” (2019年8月23-24日, 東京)
- [8] 志賀基之, 春山潤, 濱田幾太郎, “PIMD ハンズオンチュートリアル” (2020年1月16日, 柏)
- [9] 榮永茉莉, “第5回女性研究者サミット” (2023年3月14日, 豊中)
- [10] 山田鉄兵, “第75回サイエンスカフェ” (2020年7月10日, 福岡)

○主なシンポジウム等

- [1] 金属学会2019年度秋季大会シンポジウム、岡山大学（2019年9月11日-13日）
 - [2] 第80回応用物理学会秋季学術講演会シンポジウム、北海道大学（2019年9月18-21日）
 - [3] 第5回日韓水素シンポジウム、東京工業大学大岡山キャンパス（2019年11月6日-8日）
 - [4] MRM2019、横浜シンポジア（2019年12月11日-12月13日）
 - [5] 第1回ハイドロジェノミクス国際会議、ホテルモントレエーデルホフ札幌（2020年1月5日-10日）
 - [6] 日本物理学会 2020年秋季大会シンポジウム、オンライン（2020年9月10日）
 - [7] 日本化学会 第101春季年会シンポジウム、オンライン（2021年3月19日）
 - [8] The 9th International Symposium on Surface Science, Online (November 28- December 1, 2021)
 - [9] MRM2021、パシフィコ横浜（2021年12月12日-16日）
 - [10] 第2回ハイドロジェノミクス国際会議、オンライン（2022年5月16日-19日）
- 他、ハイドロジェノミクス研究会5件、領域横断研究会5件等開催

○主なメディア報道

国内 160件、海外 112件

○ホームページ

<https://hydrogenomics.jp/>

研究成果

本研究領域は、日本発信の新たな学問領域として、水素を使いこなすための水素科学である「ハイドロジェノミクス」を提案・実践、国内外に研究成果の情報を意欲的に発信してきた。

複数の水素機能の相乗効果としての「高次水素機能」の誘起により、従来の「水素エネルギー」の視点だけでなく、蓄電池や超伝導・太陽電池等の広域的なエネルギー分野全体へ展開できることを実証した。世界に先駆けたハイドロジェノミクスの構築により水素の性質を“使いこなす”ことが可能となり、以下のような材料・デバイス・反応プロセスの創成に関する成果が期待できる：

- ・水素化物超伝導・超イオン伝導材料等の超機能材料の合成
- ・水素化物エレクトロニクスデバイスの原理実証や太陽電池・高強度鋼の特性強化
- ・水素を用いた次世代創蓄電デバイスおよび水素－電子カップリングやヒドリド超イオン伝導材料を利用した新発想デバイスの設計
- ・水素を効果的に有用物質に変換する新規反応プロセスの創出
- ・水素データ同化技術等の数理科学による水素機能の発現機構の解明や解析・予測技術の高精度化

これらの視点は、広く政策的提言にも取り入れられ、各種研究プロジェクト等にも展開され始めている。

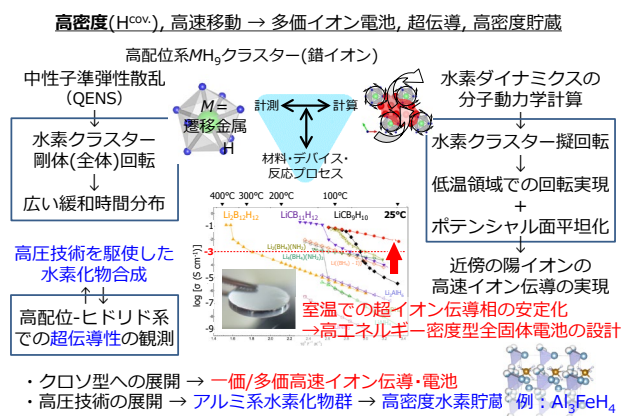
○研究項目ごとの研究成果（領域内連携に【☆】を付記）

●研究項目 A01 水素高密度凝集機能



計画研究

- ・適温での水素放出が見込まれ、かつ大気中で取り扱いが可能なアンモニアボラン (NH_3BH_3) 等を用いた独自の水素源開発を進めることで、水素の高密度化技術を確認、単核金属 M では最高配位の MH_9 型水素クラスター（錯イオン）や $\text{B}_{12}\text{H}_{12}$ を代表とするクロソ（籠）型水素クラスターを有する多彩な高密度水素化物の合成とそれらを用いた高次水素機能の研究が可能となった。
- ・また水素先端計測・計算が主体となる領域内連携（下段に例示）により、中性子準弾性散乱法（QENS）での水素クラスターの剛体回転における広い緩和時間分布の観測に成功、低温からの擬回転によるポテンシャル面平坦化による多様な陽イオンの高速伝導性等の高次水素機能の予測も進んだ。【☆】
- ・これらの結果、Li や Na 等の一価陽イオンに加えて、Mg や Ca、Mn 等の二価陽イオンが高速（超）イオン伝導性を示す新たな高密度水素化物の合成が加速でき、固体・液体電解質としての開発や次世代電池実証が進展するとともに、高圧下での超伝導性に関する研究にも展開できた。【☆】
- ・さらに、Al と Fe 等の汎用金属だけから構成される Al_3FeH_4 や、水素が層状に局在した Al_2MnH_3 等、新たな高密度水素化物の高圧合成に成功した。後者では高分解能電顕での水素の直接観察にも成功した。従来は合成困難とされてきた Al ベースの新たな高密度水素貯蔵材料の開発に向けた研究が進展した。【☆】



公募研究（顕著な研究成果の例）

- ・超高压力下で高温超伝導を示す硫化水素への他元素ドーピングとその超伝導の実証【☆】
- ・錯体水素化物アンミン錯体における水素間相互作用の解明
- ・ホウ水素化カルシウム高压相の構造解明とそのアンモニアボラン複合体の高压相の発見【☆】

●研究項目 A02 水素界面局在機能

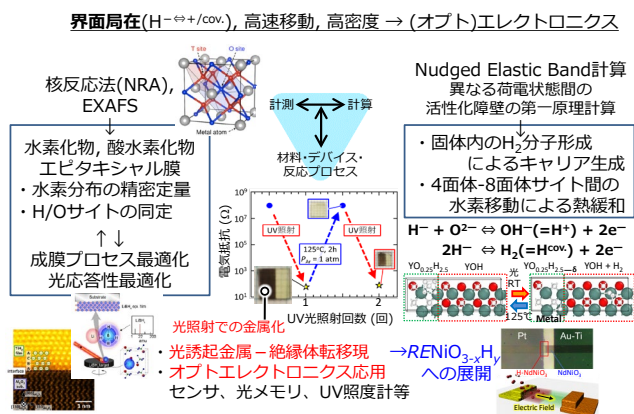


計画研究

- ・パルスレーザー堆積法におけるレーザーパワーや基板等の最適化により、水素を高精度に局在化させたヘテロ界面を創成する技術を構築、 TiH_2 や NbH 等の金属水素化物に加えて、 LiBH_4 や NaBH_4 等の錯体水素化物、 YO_3H_y や Ca_2NH 等の酸・窒水素化物のような高度な水素化物エピタキシャル膜の合成と

それらを用いた高次水素機能の研究が可能となった。

- また水素先端計測・計算が主体となる領域内連携（下段に例示）により、核反応分析（NRA）での原子層ごとの水素分布の精密定量に成功するとともに、Nudged Elastic Band 計算による異なる荷電状態間の活性化障壁の第一原理計算により、酸水素化物中での H_2 分子形成によるキャリア生成や四面体－八面体サイト間の水素移動等の解析が進んだ。【☆】
- これらの結果、例えば酸水素化物 YO_xH_y での光誘起金属－絶縁体転移現象等の高次水素機能の誘起と機構解明、電場での増強効果等の研究が加速でき、水素化物オプトエレクトロニクス応用に向けた研究にも展開した。また、 TiO_x/c (結晶)－ Si ヘテロ界面に対して水素プラズマ処理を実施、その界面での水素の局在性や結合性を詳細に解明することで、電子伝導や表面パッシベーション機能の観点で優れた高効率 Si 系太陽電池の設計指針を得た。【☆】
- さらに、触媒材料として知られる Ir 系金属錯体や導電性高分子として知られるポリアニリンの水素化反応に伴う色彩変化を利用して、鉄中を透過した水素の可視化にも成功した。ヘテロ界面に関わる高次水素機能を利用した新たな水素検出（定量化と分布観察）技術（＝新原理のリアルタイム水素可視化技術（ハイドロジェノクロミズム））の原理実証であることに加え、金属工学－錯体化学という顕著な異分野連携の例として大いに注目される。【☆】



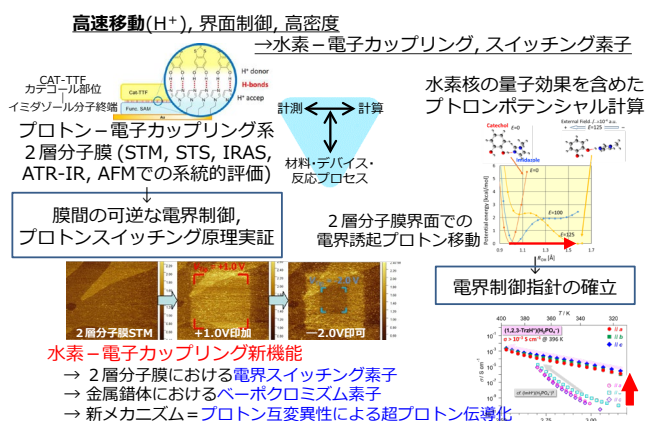
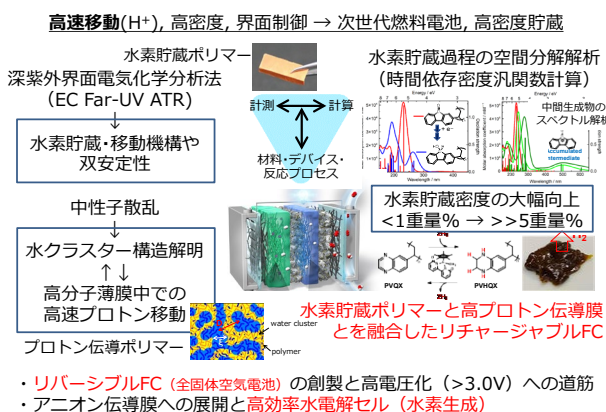
公募研究（顕著な研究成果の例）

- カルシウムイミドのアニオン欠陥を利用した貴金属フリー低温アンモニア分解触媒の実現 【☆】
- 水素化強相関ニッケル酸化物超薄膜を用いた高速抵抗スイッチングデバイスの創成 【☆】
- 水素化学種のセンシング・イメージングへ向けた蛍光スイッチ分子の設計指針の確立 【☆】

●研究項目 A03 水素高速移動機能

計画研究

- 計画研究 A03-1 においては、スルホン酸化ポリフェニレン系での高速プロトン導電ならびにキノン系での高密度水素貯蔵等、高分子材料中での多様な高次水素機能の誘起に成功した。
- さらに、水素先端計測・計算が主体となる領域内連携（下段左に例示）により、深紫外界面電気化学分析法（EC Far-UV ATR）での水素貯蔵・移動機構における双安定性の解明、中性子散乱での水クラスター構造の解明、時間依存密度汎関数計算での水素貯蔵過程の空間分解解析等が進み、プロトン導電（従来の 4.5 倍）や水素貯蔵（1 重量%以下から 5 重量%以上）双方の機能の大幅向上を実現した。【☆】



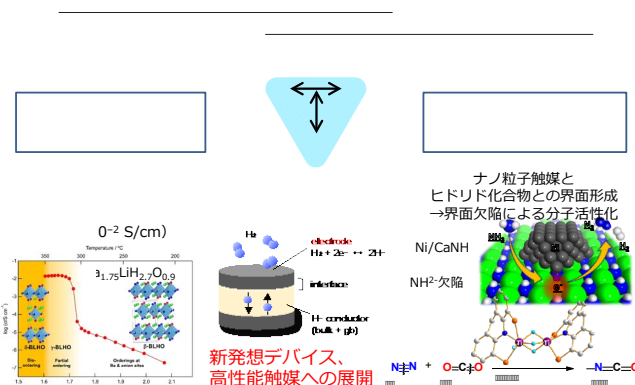
- これらの結果、双方の高分子材料を組み合わせることで、次世代創電デバイスとしてのリチャージャブル／リバーシブル燃料電池（可逆反応を示す全固体空気電池）が開発でき、80℃での発電と放電サイクル等の実証に成功するとともに、高電圧化のための開発指針も解明した。【☆】
- 計画研究 A03-2 においては、水素－電子カップリングの視点での有機・無機材料や生体材料における多様な高次水素機能の研究が進展した。【☆】
- ここでも水素先端計測・計算が主体となる領域内連携（上段右に例示）により、例えば、アゾール系有機材料 2 層分子膜の場合、走査トンネル顕微鏡／同分光（STM／STS）等を駆使した系統的解析に加え

て、水素の量子効果を含めたプロトンポテンシャル計算が進み、水素の局所移動と電場印加が連動した可逆的な π 電子系スイッチング機能や圧力印加で超伝導機能の研究が加速できた。また、生体材料としての Ni-Fe 系ヒドロゲナーゼでの触媒反応場と中間体の分子線多光子共鳴イオン化法 (REMPI) 測定による核スピン異性体比のその場計測によるオペランド反応解析にも成功した。

- さらに、酸水素化物（無機）材料 Ba-Li-H-O 系の、Li の局所ダイナミクスに伴う新たな格子間位置や欠陥生成とヒドリド (H⁻) 集団運動によるヒドリド超イオン伝導や高効率物質変換反応の誘起、さらに金属水素化物との組み合わせによる水素の価数変化を利用した新発想デバイスの原理実証にも成功した（右下に例示）。【☆】

公募研究（顕著な研究成果の例）

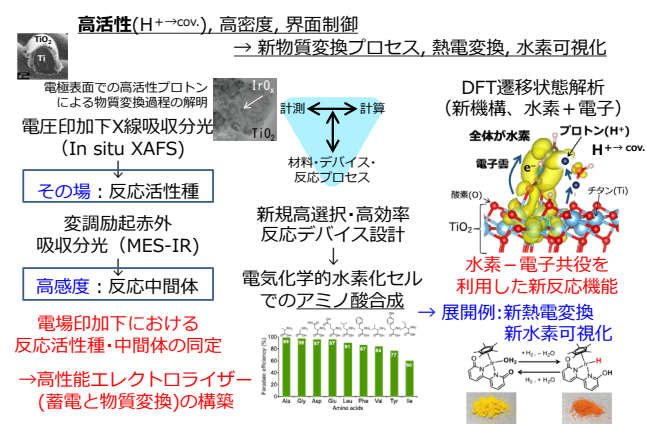
- 中温域で世界最高のヒドリドイオン伝導度を示す材料を開発【☆】
- 水素ドナー／アクセプタ型二分子膜を用いた抵抗変化型分子メモリの実証
- ゼオライト内 Ga ヒドリド種の構造制御によるエタン脱水素反应用高機能 Pt フリー固体触媒の開発【☆】
- プロトンと光を組み合わせた結合切断反応で高分子材料の温和な分解を実現【☆】
- 固体中におけるプロトン移動・スピン転移・分子配向の変化に基づく新たな水素移動現象の実現【☆】



●研究項目 A04 水素反応プロセス促進機能

計画研究

- プロトンやヒドリドに加えて原子状およびラジカル水素等、様々な高活性水素の生成とそれらを利用した高次水素機能による高選択／高効率／高純度／高難度反応プロセスに関する研究が進んだ。【☆】
- 並行して進めた水素先端計測・計算が主体となる領域内連携（下段に例示）により、例えば、TiO₂ 電極上に発生する電界活性化プロトンの場合、電圧印加下 X 線吸収分光法 (in-situ XAFS) での反応活性種や変調励起赤外吸収分光法 (MES-IR) での反応中間体の精密解析も踏まえた DFT 遷移状態解析に至った。また、水素を効果的に高活性化する反応場としての PdCu 合金透過膜等の原子状（スピルオーバー）水素に関する雰囲気光電子分光 (AP-XPS)・表面赤外分光を用いた解析等も進んだ。
- これらの結果、各種反応プロセスの研究が加速でき、前者では水素－電子カップリングを利用したバイオマス由来の原料から室温でのアミノ酸の高選択合成に成功、高効率水電解技術の開発に向けた研究にも展開した。また、後者では Pd サイトで解離し Cu(111) 表面にスピルオーバーした原子状水素と Cu 表面間の振動の観測等に成功、合金透過膜表面でのメタノール等の有用物質の高効率合成やグラフェン等の高純度合成にも展開した。【☆】
- さらに、多核ヒドリドクラスターを用いた窒素とアルケンからのアミン合成、Ir 錯体を用いたバイオマス由来のプロトンとヒドリドからの水素製造等、多様な高難度反応に関する研究も進展した。【☆】



公募研究（顕著な研究成果の例）

- 2つの金属を反応に関わらせる分子反応場の構築とコバルト二核錯体の合成【☆】
- プロトン共役電子移動反応を利用した電気化学ペルチェ素子の実証【☆】
- Pt ナノクラスター触媒による高効率な光触媒水分解水素生成反応の発現【☆】

●研究項目 A05 水素先端計測・シミュレーション

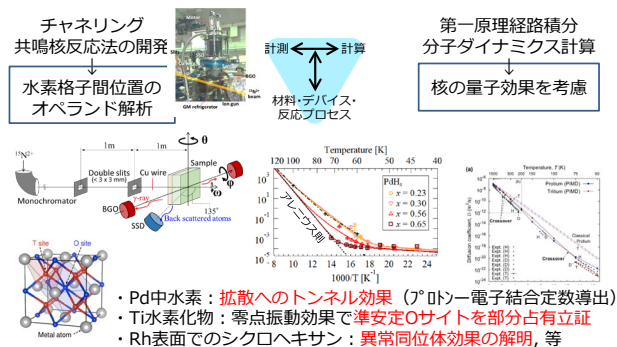
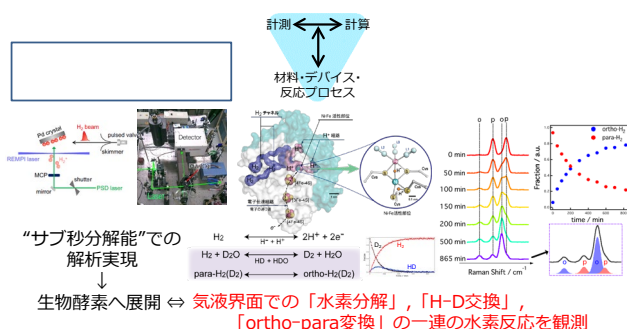
計画研究

- 水素先端計測として、イオンビームを用いたチャネリング核反応分析法 (NRA) や放射光ブラッグコヒーレント回折イメージング法 (BCDI) 等の高度化に成功し、ナノ～メソスケールのトランススケール

ルオペランド水素計測を実現した。これらを駆使して、 $B_{12}H_{12}$ を代表とするクロソ（籠）型水素クラスターの原子構造の解明、Ti 水素化物薄膜における水素占有サイトや量子効果の詳細な解析、界面水素量を制御した高性能 Si 系太陽電池の創出、Pd 水素化物中の量子拡散におけるプロトン-電子カップリングの評価、金属ナノ粒子を含む水素化物の詳細な反応機構の解明、さらにはヒドロゲナーゼでの触媒反応場と中間体の解析に至るまで、高次水素機能の誘起に関わる領域内連携において極めて多彩かつ不可欠な貢献をした（下段左右に例示）。【☆】

- 水素先端計算に関しては、まず計算手法の開発を進めた。水素データ同化に関してはペナルティ関数を導入した実験データを利用する構造探索技術を確認、また水素原子核の量子効果を取り入れた第一原理計算に関してはオープンソース・ソフトウェア PIMD の高度化と公開を進めた。これらの計算手法を高次水素機能の誘起に関わる課題に適用することで、高速イオン伝導や金属-絶縁体転移を示す高密度水素化物群の原子構造解析、固体表面での高効率・高選択物質変換における（異常）同位体効果、水素の量子拡散における共鳴トンネル効果、氷中プロトンの存在状態、などの詳細な解明に至り、水素先端計測と同様に領域内連携において極めて多彩かつ不可欠な貢献をした（下段右に例示）。【☆】

水素反応オペランド計測、水素核スピン/H-D交換
→ 生物酵素の機能解析・設計

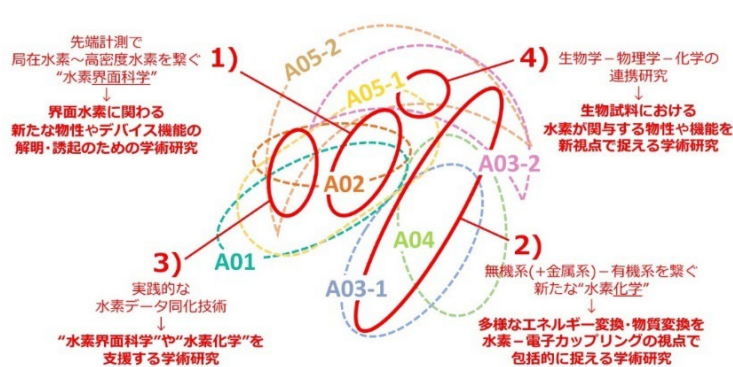


公募研究（顕著な研究成果の例）

- 中性子ホログラフィーでの Si および Pd 単結晶中の水素の観測 【☆】
- プロトン伝導セラミックス燃料電池の空気極反応機構の解明 【☆】
- 新規第一原理経路積分法の開発による水素移動反応での Grotthuss 機構の H/D 同位体効果の解明 【☆】
- 理論計算による無水プロトン伝導物質の伝導機構や酸水素化物の非従来型超伝導物性の解明 【☆】
- タンパク質に対する実験データを同化させた自由エネルギー計算手法の確立

○研究組織の連携体制

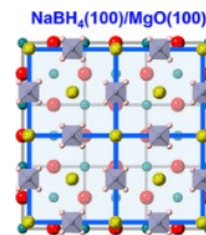
- 論文検索エンジン等から、期間前半で「領域全体での有機的連携」が構築されたことを可視化し、以下の新たな学術領域の萌芽が認められた（下図右は期間を通じた連携研究の実数）：



	計画研究					第1期公募研究					第2期公募研究				
	A01	A02	A03-1	A03-2	A05-1	A01	A02	A03-1	A03-2	A05-1	B01	B02	A05		
計画研究	A01	10	11	3	4	4	6	6	3		2	2	6	4	1
	A02	13	6	2	3	3	4	2	2	1	1	3		2	6
	A03-1	3	2	4	2	3	1	2			2		1	1	
	A03-2	4	3	2	2	1	3	4	1	1	1	3	3	1	5
	A04	4	3	3	1	13	2	2			2	5	2	2	1
	A05-1	6	4	1	3	2	5	7	5		1	1	1	3	2
	A05-2	6	2	2	4	2	7	3	1	1	1	1	3	2	1
第1期公募研究	A01	3	2	1		5	1	2	1		1	1	1	1	
	A02		1		1		1								
	A03-1			2	1									1	
	A03-2				1		3	2	1	1			1	1	
	A04	2	1	2		5			1		1	1	1	1	
	A05-1	2	3				1		3	1					
	A05-2				3	2		2	1		1	1	1	1	
公募研究 第2期	B01	6			1	1	2	3	4				1	2	4
	B02	4	2	1	5	1							2	2	6
	A05	7	5		6	2			1				4	6	2

- これを受け、期間後半では、第2回国際会議（オンライン）や最終報告会（対面）の場でも1)～4)を集中して議論、以下の例に示す連携体制が強化されることで秀逸な成果創出につながった。

- 1) 水素界面科学に関する A01/A02/A05-1/A05-2/公募 が主導する連携体制
例：高密度水素化物のエピタキシャル成膜合成
“Fabrication and growth orientation control of NaBH_4 epitaxial thin films using infrared pulsed-laser deposition”, R. Nakayama et al., Cryst. Growth Des., 22(11), 6616-6621, 2022.



例：ホウ化水素シート表面での二酸化炭素のメタン／エタン低温転換反応の実現
“Carbon dioxide adsorption and conversion to methane and ethane on hydrogen boride sheets”, T. Goto et al., Commun. Chem., 5, 118(1-10), 2022.

- 2) 水素－電子カップリングに関する A03-2/A03-1/A04/A05-2/公募 を含む領域全体での連携体制
例：分子回転によるプロトン伝導促進、超プロトン伝導化
“Isotropic anhydrous superprotonic conductivity cooperated with installed imidazolium molecular motions in a 3D hydrogen-bonded phosphate network”, S. Dekura et al., Angew. Chem. Int. Ed., 61(49), e202212872(1-7), 2022.
→後述の「水素の結合多様性とそのずれの認識」にもつながり**領域全体に展開**した。

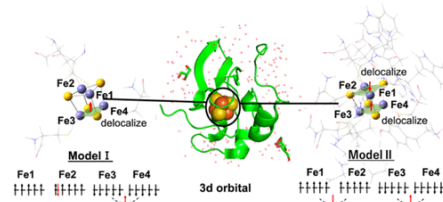
- 3) 水素データ同化等の計算科学・数理科学に関する A05-2/A05-1 が主導する領域全体での連携体制
例：経路積分分子動力学法 (PIMD) コードの整備や半古典分子動力学法 (BCMD) の開発等、水素の量子効果を考慮したシミュレーションに必要な基盤技術が劇的に進展した。
→既述の「トランススケールでの水素先端計測技術」とも連携して**領域全体に展開**した。

- 4) 生物試料における水素が関与する物性等の A03-2/A05-2/公募 を含む連携体制

例：水素結合によるタンパク質中の鉄硫黄クラスターの活性化機構解明

“Characterization of the geometrical and electronic structures of the active site and its effects on the surrounding environment in reduced high-potential iron-sulfur proteins investigated by the density functional theory approach”, A. Sato et al., Inorg. Chem., 62(5), 2040-2048, 2023.

→生物試料での水素－電子カップリングの研究を通じて、上記 2) との連携も進展した。



○若手研究者の育成に関する取組実績

- ・研究遂行の主軸としての**本領域に関わる延べ 282 名の若手研究者・学生** (39 歳以下、直接雇用の 13 名を含む) に対して、以下の**重層的視点での若手育成**を着実に展開した：

1) 領域全体からの視点：水素先端計測等に関わる海外研究拠点・施設との共同研究やそれに向けた協議の場に積極的に参加させることで、**実践的に国際的視野を広げる**取り組みを進めた。例えば、米国・オークリッジ国立研究所等との金属間化合物に関する研究を若手研究者が主体となり進めた。これらの**若手研究者を中心とした海外連携に向けた取り組みは 30 件以上**にのぼる。

2) 各計画研究からの視点：ハンズオンチュートリアル等の企画を通じて、**異分野連携の素養を高める**取り組みを進めた。例えば、物質・分子科学の研究者に対して、原子核の量子効果を取り入れた第一原理計算の実務指導を行うことで、水素データ同化技術とニューラルネットワークポテンシャルとを組合せて構造探索の高精度化を狙う、等の**若手研究者相互の新たな連携研究が活発化**した。

3) 若手主体の視点：若手研究者が中心となり宿泊型の若手育成スクールを開催することで、講演テーマの設定等も含めた**企画・運営・発信に至る総合的な研究遂行能力の向上を図る**取り組みを進めた。計 9 回、延べ 350 名の参加があり、**領域全体での連携研究をいっそう加速**させた。

4) 総括班からの視点

設備等の多くを領域内での共用装置として整備・管理した結果、それらを**プラットフォームとする若手研究者相互の新たな連携が数多く創出**された。また、若手研究者の**海外での研究成果発表支援**を実施、大学院生 5 名を含む 10 名が利用、その後の**キャリアパス拡大**にも至った。

これらの結果、国内外の学協会・財団等からの**若手研究者の受賞件数は 108 件**にものぼる。

○当該学問分野及び関連学問分野への貢献の状況

1) 水素の結合多様性だけでなく、それらの結合状態からの逸脱(ずれ)や状態間の連続的な変化が高次水素機能の発現における支配要因となりうることを提起した

既述のように、水素を“使いこなす”ために重要となる高次水素機能の発現には、申請時に想定していた水素の結合多様性だけでなく、周囲の原子・電子構造の揺らぎ等に起因する理想的な結合性からの逸脱や異なる結合性への連続的な変化が支配要因になりうることを提起した。これは、異分野間の有機的連携による水素科学における包括的な学理創成のための新たな基盤として強調したい。今後、これらの定量化や制御・応用展開等も含めて、水素科学分野のさらなる進展が期待される。

2) 水素科学が、エネルギー・GX 分野全体にわたり広く貢献できることを実証した

高次水素機能の誘起により、従来のいわゆる「水素エネルギー」の視点だけでなく、蓄電池や超伝導・太陽電池等の広域的なエネルギー分野あるいはグリーントランスフォーメーション (GX) 分野全体に貢献できることを実証した意義は極めて大きい。これらの視点は、広く政策的提言にも取り入れられ、各種研究プロジェクト等にも展開され始めている。また、「異分野での有機的連携」や「水素感の共有(研究マインドの変化)」については、本領域の研究成果と、同時期の全世界の関連論文(約2万報)とをコンサルタント企業とともに比較分析することで、その波及効果の大きさを定量化した。さらに、関連する国際レビュー論文(参考: “Hydrogenomics: Efficient and selective hydrogenation of stable molecules utilizing three aspects of hydrogen”, K. Fukutani, J. Yoshinobu, M. Yamauchi, T. Shima, and S. Orimo, Catal. Lett., 152, 1583-1597, 2022.) の執筆等を通じて、新たな学術分野としての Hydrogenomics の認知度を短期間で高めた。

以上のとおり、領域全体での「学問分野の枠を超えた有機的連携」を最重要の活動目的として、研究推進は勿論のこと、全体会議や計画研究代表者会議、国際会議やハイドロジェノミクス研究会等の企画や運営、装置共用の実施、海外研究拠点・施設との共同研究の推進、研究遂行の主軸である若手研究者の育成、国内外への研究成果の発信・戦略広報、本領域の取り組みに関するニュースレターや解説書の出版、など領域全体での活動を意欲的に実施した。また、「水素を使いこなすための水素科学」としてのハイドロジェノミクスの継続的な維持・発展のためのプラットフォームとなる「日本 MRS 水素科学技術連携研究会」を設立、ハイドロジェノミクスの多様な成果の社会還元と産学連携での研究推進を通して、「ハイドロジェノミクス」のさらなる発展を進めている。