

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 17 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2019

課題番号：16H06042

研究課題名(和文) ナノ電気化学イメージングによる二次元電子系材料の触媒活性の可視化

研究課題名(英文) Visualization of Electrocatalytic Activities on Two-Dimensional Materials by Nanoscale Electrochemical Imaging

研究代表者

熊谷 明哉 (Kumatani, Akichika)

東北大学・材料科学高等研究所・准教授

研究者番号：50568433

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,700,000円

研究成果の概要(和文)：グラフェンに代表される原子1層から成る二次元電子系材料の電極触媒活性をナノ電気化学イメージング技術にて定量的に可視化した。検証した電気化学反応は、当初予定していた電極触媒反応：水素発生反応・酸素還元反応のみならず、酸化還元種によるレドックス反応やリチウムイオン脱挿入反応の検証への展開も行った。更に、反応性に関与する各要因：エッジ領域及び構造、層数、しわ、化学修飾に元素ドーピングなどの検証にも成功した。空間分解能も30 nmの開口径：ピペットと顕微鏡装置の測定条件を最適化した。これらの結果からナノ電気化学イメージング技術により、多様な二次元電子系材料における特異な電気化学反応性が解明されつつある。

研究成果の学術的意義や社会的意義

二次元電子系材料はその特異性から様々な応用展開が期待されている。電極触媒反応もその一つであり、クリーンエネルギー：水素の発生電極や二酸化炭素の還元用電極として多くの研究報告がなされている。本研究では、ナノ電気化学イメージングを用い、その特異性を導く要因である材料構造をナノスケールでおこる電気化学の定量的な評価及び可視化に成功した。これにより、材料が持つポテンシャルを最大限に引き出す最適な構造設計の指針へとつなげることが可能となる。更に、今後全固体電池やフレキシブルな薄膜電池などのイオンの脱挿入に関与した反応系の検証も可能であり、エネルギー創電・蓄電分野への貢献が期待できる。

研究成果の概要(英文)：The unique and exotic phenomena in electrochemical properties of two-dimensional (2D) materials was visualized by nanoelectrochemical imaging technique in this project. The investigated reactions were not only electrocatalytic reactions: hydrogen evolution reaction and oxygen reduction reaction, but also the redox activities via redox mediator and lithium-ion (de)intercalation process were examined. Further, various types of factors to introduce their high activities were successfully quantified by the technique such as edge-basal structures, number layers, wrinkle, chemical dopants. Their spatial resolution was improved with a 30 nm diameter pipette and optimized measurement control system. From those results, the intrinsic mechanism of their electrochemical properties in nanoscale will be unveiled.

研究分野：分析化学

キーワード：プローブ顕微鏡 電気化学 表面化学 二次元材料 分析化学 走査型プローブ顕微鏡 二次元電子系材料 表面・界面物性

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

原子 1 層の理想的な平面構造を持つ原子膜である二次元電子系材料は、その理想的な構造から特異な物性を持ち、エレクトロニクス、エネルギー創電・蓄電、バイオ関連応用まで幅広い応用展開が可能であり、学際的な研究が盛んに行われている。その中でも電気化学反応を利用したエネルギー関連への応用は、日々新たな機能性創発の観測に成功した論文発表がなされている。それら材料の機能性の分析・測定評価には、材料自体が原子・分子で構造を制御しているのにも関わらず、バルク体を用いた電気化学評価、もしくはコンダクティブ AFM などの電子物性評価から評価が多い。空間分解能を持ち電気化学分析を評価するには、通常、電気化学顕微鏡などによる電気化学イメージング技術による局所的な領域の分析手法が用いられるが、マイクロ電極のプロブ径の大きさと測定材料自体を電解液に浸漬させ評価することによる反応領域の制御に課題があり、高空間分解能を可能とする電気化学反応の分析に課題があった。従って、マイクロスコピックな電気化学反応をマイクロ・ナノメートルスケールで直接取得できれば、二次元電子系材料が機能性を発現するメカニズムを適切な空間分解能で解明でき、それを材料設計指針につなげることで革新的に機能性が期待できる。

本研究では、通常電気化学顕微鏡で用いるマイクロ電極とは異なる、電解液と参照極を充填したサブマイクロメートル程度の開口径を持つガラスピペットをプローブとして用いるナノ電気化学セル顕微鏡（または走査型電気化学セル顕微鏡：SECCM）を用いた。電解液と測定試料間で微小な液滴を電気化学セルとして形成することで、その電気化学セルの局所的な領域での電気化学計測が可能となる。プローブを走査することで電気化学反応に起因する電流応答を可視化するナノ電気化学イメージングとして取得することで、二次元電子系材料の電気化学反応に起因する特異性の要因が可能となる。

2. 研究の目的

グラフェンに代表される二次元電子系材料は、界面・表面において特異な機能性を有しており、既存のバルク特性を凌駕する。この機能性を電極触媒活性（例えば、水素発生反応や酸化還元反応）に活かし、燃料電池などのプラチナの代替材料として、次世代エネルギー材料へ応用化が期待されている。しかし、これらの電気化学反応に起因した電極触媒の分析評価法は、電気化学活性反応であるのにもかかわらず、STM などの二次元的な電子状態を局所的に評価するか、バルクの電気化学活性を評価・分析するものが多く、その電気化学的な活性を局所的に評価した報告は未だ少ない。本研究では、ナノピペットに充填された電解液で形成する電気化学セルを介した局所的な電気化学反応を評価可能な電気化学顕微鏡：SECCM を用いて、二次元電子系材料の電気化学活性に起因する電流応答を可視化する。得られた知見から機能性発現領域を特定し、その機能性発現の本質的な発現原理の解明と高機能化を狙う。

3. 研究の方法

本研究では、二次元電子系材料を用いて、局所領域で起こる特異的な電気化学活性を定量的に議論し、その反応性をナノ電気化学イメージング技術で可視化することで、二次元電子系材料の機能性発現のメカニズムを材料設計指針に反映することである。そのためには、ナノ電気化学イメージングを取得可能な電気化学顕微鏡の一種である SECCM を用いた。また、空間分解能を改善するため、プローブとして用いるガラスピペットの先鋭化と計測測定環境の整備（グローブボックス内における計測雰囲気制御）、測定シーケンスの最適化を行った。また、測定に用いる二次元電子系材料には、主にグラフェン、 MoS_2 、 WS_2 などを作製し計測した。作製には、単結晶をスコッチテープでへき開し転写するへき開・転写法と化学気相成長（CVD）法を用いた。電極触媒反応の測定には、ピペット内の条件を精査した。水素発生反応では、電解液に硫酸と参照極にパラジウム金属をナノピペットに充填し、酸素還元反応では、KCL アルカリ溶液、銀を用いて、アルゴンガス雰囲気化にて計測を行った。更に、リチウムイオン電池用電極の応用として、一般的な電池用電解液（エチレンカーボネート：ジエチルカーボネート）とリチウム金属を用いて、アルゴンガス雰囲気化で計測を行った。各々の反応系の確認には、サイクリックボルタンメトリー（CV）測定の結果と反応電位下における電流応答によるナノ電気化学イメージング像から、酸化または還元電流の反応性を検出し、バルク計測結果と比較した。

4. 研究成果

本研究期間で、以下の研究成果を主に得ることが可能となった。(1) SECCM 計測環境の整備: 30 nm 程度のナノピペットの作製と測定環境の整備による電気化学反応系への応用、(2) グラフェン、グラファイトにおけるナノ電気化学イメージングの取得: メディエータを用いた酸化還元反応の可視化、電極触媒反応によるグラフェン構造における高反応領域の特定、リチウムイオン挿入過程におけるグラフェン・グラファイト表面におけるリチウムイオン反応領域の可視化

(1) SECCM 計測環境の整備:

SECCM は、参照極と電解液を充填したナノピペットをプローブとして用いる。そのプローブが試料表面に接触することでできる微小液滴（電気化学セル）を介して電気化学計測を行うことでピペット開口径に依存した計測が可能となる。これにより、通常困難であった空間分解能を持った規定領域での電気化学反応性の可視化が可能となり、ナノ電気化学イメージングの取得が可

能となった(図1)。さらに、ピペットは、ガラスキャピラリーをCO₂レーザーブラー(P-2000、Sutter社製)のレーザー強度の制御を精緻に検証することで30nm程度の開口径の作製に成功している。従って、測定の空間分解能の改善にも成功し、二次元電子系材料の高空間分解能電気化学計測が可能となった。また、これらの装置は、グローブボックス内に配置することで測定環境の整備(H₂O < 1 ppm, O₂ < 1 ppm)も可能となり、通常の電池計測雰囲気化と同等の環境下で評価も可能となり、多様な計測系に応用可能となっている。

ナノ電気化学イメージング

ナノメートルレベルの空間分解能にて
電気化学計測を行うSECCM

1. 電気化学活性を直接評価
2. 局所評価が可能(高活性領域の特定)

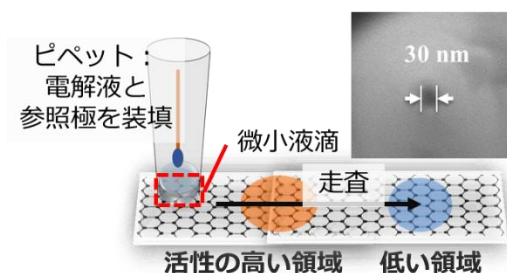


図1. ナノ電気化学イメージングの概略図と利点

(2) グラフェン、グラファイトにおけるナノ電気化学イメージングの取得：
本研究に用いたグラフェンは、HOPGやキシュグラファイトなどをへき開し、シリコン基板上に転写した試料と、新規にCVD装置を作製し、銅基板上に成膜した試料を用いた。作製した試料は、ラマン顕微鏡やAFMを用いて、構造同定や欠陥・しわ領域の特定、層数の把握などを行った。これらの試料をSECCMにてナノ電気化学イメージングを取得した所、始めに、ベール面とエッジ領域においてエッジ領域にて高い電流応答性を示すことがわかった(図2)。更に、ラマン分光法にて特定した構造欠陥に起因するD-bandの高い領域では、先ほどのエッジ領域とほぼ同程度の反応性を確認することが出来た。逆にしわのある領域では、それらの領域程ではないがベール領域と比較し、やや反応性が高いことも観測された。これらの結果は、メディエータを用いた酸化還元反応及び、水素発生反応、酸素還元反応において観測することが出来た。また、層数についてもAFMで層数を規定し、同一領域にてナノ電気化学イメージングを計測した結果、電気化学反応の応答性は層数に比例せず、一定層のところまで飽和することが分かった。

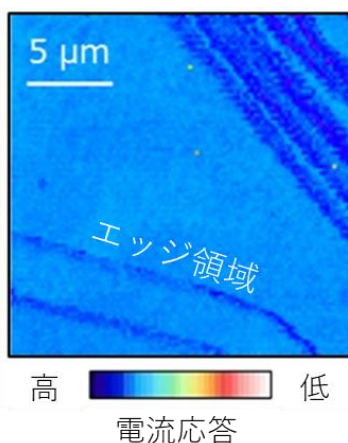


図2. グラフェン・グラファイトエッジ領域におけるナノ電気化学イメージング
*本測定はルテニウム錯体イオンの酸化還元反応を利用し計測

更に、水素発生反応に関しては、エッジ構造のみならず、いくつかの元素種のドーブ効果についても検証した。他の研究グループと共同研究を行うことで、数学的な観点でグラフェンのエッジ構造を捉え、窒素(N)およびリン(P)を化学ドーブすることで幾何学的歪みを意図的に作製し、DFT計算の結果とも比較することで、ナノ電気化学イメージング(図3)にて検証した結果、設計した構造と化学ドーブの相乗効果により、水素発生反応が飛躍的に向上することを突き止めた。

これらの結果から、グラフェンにおいてエッジ構造および構造欠陥がグラフェンの電極触媒反

応を含む電気化学反応性の特異性に関与していることが分かった。また、この特異性は層数と比例的な相関はなかったことから、総合して、材料設計においてはエッジ・構造欠陥・化学種ドーピングを総合的に行った単層構造を作製することが電極触媒反応の向上に最適であるとわかった。これらの計測は、他の二次元電子系材料（ MoS_2 や SnS_2 、 WS_2 ）などに応用しており、同様にエッジ領域での高い応答性を示すものが多いことも確認している。

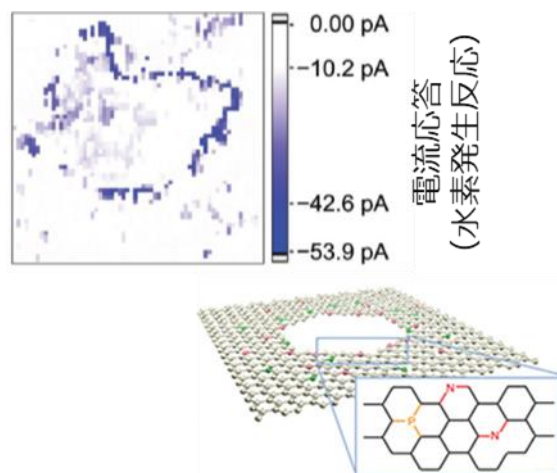


図 3. 取得したナノ電気化学イメージング。開口したグラフェンのエッジ構造が水素の発生する反応性の高い領域となっており、構造と NP ドープが電極触媒性の向上に大きく関与していることを、電気化学反応を直接可視化。*グラフェン構造は筑波大学：伊藤良一准教授により作製され、グラフェンエッジ構造への NP ドープ DFT 計算は大阪大学：大戸達彦助教による。

更に、本計測をリチウムイオン電池の電極へと応用しており、薄膜グラファイトを用いて検証した結果、電解液の分解による形成される被膜の生成領域や、リチウムイオンの挿入反応応答の高い領域の特定も可能となった（図 4）。その結果、エッジ領域からリチウムイオンが挿入することを可視的に捉えることが可能となり、今後充放電などの電池特性への影響の評価や他の蓄電デバイス材料への応用も期待できる。

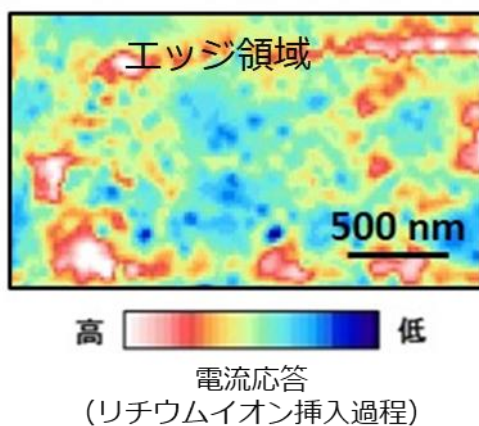


図 4. 薄膜グラファイト表面にリチウムイオン挿入過程に起因する電流応答のナノ電気化学イメージング結果

以上のように、SECCM を用いた高分解能電気化学計測によるナノ電気化学イメージングにより、二次元電子系材料の電極触媒反応の可視化に成功した。本計測評価により、グラフェンを始めとした二次元電子系材料の電極触媒反応における特異性を創発する構造もしくは領域の特定が可能となった。また、リチウムイオンの挿入過程の可視化にも成功し、エネルギー創電・蓄電の材料設計に必要な知見の特定に応用可能となった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Kumatani Akichika, Miura Chiho, Kuramochi Hirotaka, Ohto Tatsuhiko, Wakisaka Mitsuru, Nagata Yuki, Ida Hiroki, Takahashi Yasufumi, Hu Kailong, Jeong Samuel, Fujita Jun ichi, Matsue Tomokazu, Ito Yoshikazu	4. 巻 NA
2. 論文標題 Chemical Dopants on Edge of Holey Graphene Accelerate Electrochemical Hydrogen Evolution Reaction	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Advanced Science	6. 最初と最後の頁 1900119 ~ 1900119
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi.org/10.1002/adv.201900119	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 Inomata Hirotaka, Takahashi Yasufumi, Takamatsu Daiko, Kumatani Akichika, Ida Hiroki, Shiku Hitoshi, Matsue Tomokazu	4. 巻 55
2. 論文標題 Visualization of inhomogeneous current distribution on ZrO ₂ -coated LiCoO ₂ thin-film electrodes using scanning electrochemical cell microscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 545 ~ 548
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8cc08916g	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 Kumatani Akichika, Takahashi Yasufumi, Miura Chiho, Ida Hiroki, Inomata Hirotaka, Shiku Hitoshi, Munakata Hirotaku, Kanamura Kiyoshi, Matsue Tomokazu	4. 巻 51
2. 論文標題 Scanning electrochemical cell microscopy for visualization and local electrochemical activities of lithium-ion (de) intercalation process in lithium-ion batteries electrodes	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Surface and Interface Analysis	6. 最初と最後の頁 27 ~ 30
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi.org/10.1002/sia.6538	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 Ma Li, Zhou Han, Sun Yao, Xin Shuli, Xiao Chunhui, Kumatani Akichika, Matsue Tomokazu, Zhang Penghui, Ding Shujiang, Li Fei	4. 巻 252
2. 論文標題 Nanosheet-structured NiCoO ₂ /carbon nanotubes hybrid composite as a novel bifunctional oxygen electrocatalyst	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Electrochimica Acta	6. 最初と最後の頁 338 ~ 349
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.electacta.2017.08.192	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 Ida Hiroki, Takahashi Yasufumi, Kumatani Akichika, Shiku Hitoshi, Matsue Tomokazu	4. 巻 89
2. 論文標題 High Speed Scanning Ion Conductance Microscopy for Quantitative Analysis of Nanoscale Dynamics of Microvilli	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Analytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 6015 ~ 6020
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.analchem.7b00584	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 Takahashi Yasufumi, Ida Hiroki, Matsumae Yoshiharu, Komaki Hirokazu, Zhou Yuanshu, Kumatani Akichika, Kanzaki Makoto, Shiku Hitoshi, Matsue Tomokazu	4. 巻 19
2. 論文標題 3D electrochemical and ion current imaging using scanning electrochemical scanning ion conductance microscopy	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 26728 ~ 26733
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7CP05157C	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 Ma Li, Zhou Han, Sun Yao, Xin Shuli, Xiao Chunhui, Kumatani Akichika, Matsue Tomokazu, Zhang Penghui, Ding Shujiang, Li Fei	4. 巻 252
2. 論文標題 Nanosheet-structured NiCoO ₂ /carbon nanotubes hybrid composite as a novel bifunctional oxygen electrocatalyst	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Electrochimica Acta	6. 最初と最後の頁 338 ~ 349
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.electacta.2017.08.192	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 Ida Hiroki, Takahashi Yasufumi, Kumatani Akichika, Shiku Hitoshi, Matsue Tomokazu	4. 巻 89
2. 論文標題 High Speed Scanning Ion Conductance Microscopy for Quantitative Analysis of Nanoscale Dynamics of Microvilli	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Analytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 6015 ~ 6020
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.analchem.7b00584	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 Takahashi Yasufumi、Kumatani Akichika、Shiku Hitoshi、Matsue Tomokazu	4. 巻 89
2. 論文標題 Scanning Probe Microscopy for Nanoscale Electrochemical Imaging	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Analytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 342 ~ 357
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.analchem.6b04355	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 -

[学会発表] 計68件 (うち招待講演 22件 / うち国際学会 30件)

1. 発表者名 A. Kumatani
2. 発表標題 Spatially Resolved Electrochemical Microscopy: Scanning Electrochemical Cell Microscopy on Energy Functional Materials
3. 学会等名 EPFL Seminar (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Kumatani
2. 発表標題 Electrochemical Hydrogen Evolution Reaction and Lithium-ion Transport Imaging on Energy Functional Materials
3. 学会等名 isCEBT2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Kumatani
2. 発表標題 Recent Progress on Electrochemical Imaging by Scanning Electrochemical Cell Microscopy
3. 学会等名 ICCEMT2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 A. Kumatani, H. Ogawa, H. Ida, Y. Takahashi, H. Shiku, Y. P. Chen, T. Matsue
2 . 発表標題 Electrochemical imaging correlated to hydrogen evolution reaction on two-dimensional materials
3 . 学会等名 ALC19 (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 A. Kumatani, H. Ida, Y. Takahashi
2 . 発表標題 Scanning Electrochemical Cell Microscopy for Local Ion Transport Analysis on All-Solid-State Lithium-ion Batteries
3 . 学会等名 2nd World Conference on Solid Electrolytes for Advanced Applications: Garnets and Competitors (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 A. Kumatani
2 . 発表標題 Determination and Initiation of Electrochemical Active Sites on Two-dimensional Material Surface by Nanoscale Electrochemical Technique
3 . 学会等名 EMRS Fall Meeting (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 A. Kumatani
2 . 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging on Energy Functional Materials by Scanning Electrochemical Cell Microscopy
3 . 学会等名 EMRS Spring Meeting (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Kumatani, Y. Takahashi, C. Miura, M. Shimura, H. Shiku, T. Matsue
2. 発表標題 Scanning Electrochemical Cell Microscopic Analysis for Graphite/Graphene
3. 学会等名 EMRS Spring Meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Takahashi, H. Inomata, D. Takamatsu, A. Kumatani, H. Shiku, T. Matsue
2. 発表標題 Visualization of Inhomogeneous Reactivity on Battery Material Using Scanning Electrochemical Cell Microscopy
3. 学会等名 235th ECS Meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Kumatani
2. 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging on Electrodes of Lithium-ion Batteries
3. 学会等名 NanoMAT (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Kumatani, Y. Sato, Y. Takahashi, H. Shiku, and T. Matsue
2. 発表標題 Scanning Electrochemical Cell Microscopy for Analysis of Solid Electrolyte Interface on Negative Electrodes in Lithium-ion Batteries
3. 学会等名 235th ECS Meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小川寛人、熊谷明哉、上野啓司、遠藤尚彦、小林佑、宮田耕充、井田大貴、高橋康史、末永智一、珠玖仁
2. 発表標題 SnS ₂ 二次元薄膜における水素発生反応のナノスケール電気化学イメージング
3. 学会等名 日本分析化学会第67年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 安永幹生、熊谷明哉、田中元基、高橋康史、末永智一、珠玖仁
2. 発表標題 水素貯蔵合金表面におけるナノ電気化学イメージング
3. 学会等名 日本分析化学会第67年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小川 寛人、熊谷 明哉、遠藤 尚彦、小林 佑、井田 大貴、高橋 康史、末永 智一、宮田 耕充、珠玖 仁
2. 発表標題 単層/二層WS ₂ における水素発生反応のナノスケール電気化学イメージング
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤悠人、熊谷明哉、渡邊徹弥、珠玖仁、末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡とToF-SIMSを用いた SEI 生成制御とその評価
3. 学会等名 第49回セミコンファレンス、第31回東北若手の会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 志村実優、熊谷明哉、井田大貴、珠玖仁、Y. P. Chen、末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学イメージングによるグラフェン構造欠陥の検証
3. 学会等名 第49回セミコンファレンス、第31回東北若手の会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 熊谷明哉、立野佑太、井田大貴、高橋康史、珠玖仁
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡を用いた固体電解質のイオン伝導応答の可視化
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 熊谷明哉、佐藤悠人、高橋康史、珠玖仁、末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セルを用いたリチウムイオン電池負極の規定構造領域における SEI形成過程の検証
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 熊谷 明哉、三浦 千穂、高橋 康史、井田 大貴、珠玖 仁、末永 智
2. 発表標題 グラフェンエッジにおける電気化学活性のナノスケール電気化学イメージング
3. 学会等名 日本分析化学会 第67年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 熊谷明哉
2. 発表標題 ナノ電気化学イメージングによる電気化学反応の可視化:二次電池電極から水素貯蔵合金まで
3. 学会等名 「鉄鋼関連材料の化学状態分析の新しい展開」フォーラム 第2回講演会(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hirotō Ogawa, Akichika Kumatani, Takahiko Endo, Yu Kobayashi, Hiroki Ida, Yasufumi Takahashi, Tomokazu Matsue, Yasumitsu Miyata, Hitoshi Shiku
2. 発表標題 Nanoscale electrochemical imaging for hydrogen evolution reaction on WS ₂ mono-/bilayers
3. 学会等名 日本化学会99春季年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Akichika Kumatani
2. 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging for Functional Materials
3. 学会等名 2019 Taiwan-Nippon Workshop on Innovation of Emergent Materials(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Akichika Kumatani
2. 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging for Energy Functional Materials
3. 学会等名 Japan-Taiwan Workshop on Electrochemistry JTWE 2019(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Akichika Kumatani, Yasufumi Takahashi, Tomokazu Matsue
2. 発表標題 Scanning Electrochemical Microscopy for Nanoscale Electrochemical Imaging on Energy Materials
3. 学会等名 2019年度化学系学協会東北大会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akichika Kumatani
2. 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging by Spatially Resolved Electrochemical Microscopy: From Battery Electrodes to 2D Materials
3. 学会等名 AI-Mat seminar (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akichika Kumatani
2. 発表標題 Spatially resolved electrochemical imaging on energy materials: From battery electrodes to 2D materials
3. 学会等名 TCECM 2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akichika Kumatani
2. 発表標題 Visualization of Electrochemical Activities on 2D Materials
3. 学会等名 isCEBT2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akichika Kumatani, Takeru Okada, Takahashi Yasufumi, Miyu Shimura, Hitoshi Shiku, Seiji Samukawa, Tomokazu Matsue
2. 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging of Aligned Semiconducting and Metallic Single-Walled Carbon Nanotube Bundles
3. 学会等名 AiMES 2018 ECS and SMEQ Joint International Meeting (国際学会) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akichika Kumatani
2. 発表標題 Spatially Resolved Electrochemical Imaging on Energy Materials
3. 学会等名 nanoHUB (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akichika Kumatani
2. 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging on Energy Materials
3. 学会等名 UCL-Tohoku Partnership 'kick-off' workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 A. Kumatani, Y. P. Chen, Y. Takahashi, T. Matsue
2. 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging for Functional Energy Materials
3. 学会等名 2018 Sustainable Industrial Processing Summit & Exhibition SIPS (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akichika Kumatani
2. 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging by Scanning Electrochemical Microscopies on Energy Materials
3. 学会等名 uTAS2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 A. Kumatani
2. 発表標題 Visualization of Electrochemical Activities on Energy Materials by Scanning Electrochemical Cell Microscopy
3. 学会等名 The 3rd Tohoku Univ. & GREEN Joint Symposium (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 三浦千穂, 熊谷明哉, 岡田健, 寒川誠二, 珠玖仁, 高橋康史, 末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡を用いたグラフェン/グラファイト表面構造における電気化学活性の評価
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 熊谷明哉
2. 発表標題 グラフェン・グラファイトの表面構造におけるナノ電気化学イメージング
3. 学会等名 日本分析化学会東北支部: 平成29年度東日本若手交流会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 A. Kumatani, Y. Takahashi, H. Shiku, T. Matsue
2. 発表標題 Scanning Electrochemical Cell Microscopy for Analyzing Local Electrochemical Performance at Lithium-ion Battery Electrodes
3. 学会等名 IWNET-2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 A. Kumatani
2. 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging for 2D Materials
3. 学会等名 International Workshop on Frontier and Cutting-edge Technologies over 2D Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 熊谷明哉、田中元基、近真紀雄、陶山博司、西山博史、中西真二、珠玖仁、高橋康史、射場英紀、末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡を用いたBCC系合金における水素貯蔵過程の可視化
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 田中元基、熊谷明哉、近真紀雄、陶山博司、西山博史、珠玖仁、高橋康史、射場英紀、末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡を利用したBCC系合金表面における水素吸蔵反応分布の観察
3. 学会等名 第56回電池討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 志村 実優, 熊谷 明哉, 岡田 健, 三浦 千穂, 井田 大貴, 寒川 誠二, 珠玖 仁, 高橋 康史, 末永 智一
2. 発表標題 電気化学イメージングによる金属/半導体カーボンナノチューブの酸化還元反応の検証
3. 学会等名 電気化学会第85回大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 A. Kumatani, Y. Takahashi, H. Munakata, H. Shiku, K. Kanamura and T. Matsue
2. 発表標題 Scanning Electrochemical Cell Microscopy for Visualization of Lithium-ion (De)intercalation Process in Lithium-ion Batteries Electrodes
3. 学会等名 ALC '17 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 A. Kumatani, C. Miura, H. Shiku, Y. Takahashi, T. Matsue
2. 発表標題 Redox Activities on the Surface/Edge Structures of Graphene/Graphite
3. 学会等名 232th ECS Meeting (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 A. Kumatani, Y. Sato, Takahashi, Kubota, H. Shiku, S. Komaba and T. Matsue
2. 発表標題 SECCM Analysis for Investigation of functionalities of Negative Electrodes on Lithium-ion Battery
3. 学会等名 SECM-9 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 熊谷 明哉, 志村 実優, 高橋 康史, 三浦 千穂, 岡田 健, 井田 大貴, 珠玖 仁, 寒川 誠二, 末永 智一
2. 発表標題 酸化還元反応の差異による半導体・金属カーボンナノチューブの検出
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 今井俊輔, Fei Li, Peng Yang, 井田大貴, 熊谷明哉, 高橋康史, 伊野浩介, 珠玖仁, 末永智一
2. 発表標題 走査型イオンコンダクタンス顕微鏡によるタンパク質薄膜の電荷マッピング
3. 学会等名 電気化学東北支部：第30回東北若手の会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 三浦千穂、熊谷明哉、岡田健、高橋康史、珠玖仁、寒川誠二、末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡を用いたグラフェンの電気化学応答評価
3. 学会等名 電気化学東北支部：第30回東北若手の会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 志村実優、熊谷明哉、岡田健、高橋康史、珠玖仁、寒川誠二、末永智一
2. 発表標題 金属/半導体単層カーボンナノチューブのナノ電気化学イメージング
3. 学会等名 化学系学協会東北大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Y Sato, A. Kumatnai, Y. Takahashi, K. Kubota, S. Shiku, S Komaba, T. Matsue
2. 発表標題 Scanning Electrochemical Cell Microscopy for Investigation of Negative Composite Electrodes in Lithium-ion Batteries
3. 学会等名 化学系学協会東北大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 M. Shimura, A. Kumatnai, T Okada, Y. Takahashi, H. Shiku, S. Samukawa, T. Matsue
2. 発表標題 Redox Activity on Metallic and Semiconducting Single Walled Carbon Nanotubes by Nanoscale Meniscus
3. 学会等名 化学系学協会東北大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 佐藤悠人、熊谷明哉、高橋康史、久保田圭、珠玖仁、駒場慎一、末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡を利用したリチウムイオン電池用Si-黒鉛複合電極表面の電池特性評価
3. 学会等名 日本分析化学会東北支部：平成29年度東日本若手交流会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 A. Kumatani
2. 発表標題 Nanoscale Electrochemical Imaging for Redox Activities at Edges of Graphene/Graphite
3. 学会等名 isCEBT2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1 . 発表者名 A. Kumatani, T. Watanabe, Y. Takahashi, K. Kubota, H. Ida, H. Shiku, S. Komaba, T. Matsue
2 . 発表標題 Localized Electrochemical Analysis of Polyacrylate Binders on Graphite-Silicon Negative Electrodes in Lithium-Ion Batteries
3 . 学会等名 230th ECS Meeting (国際学会)
4 . 発表年 2016年

1 . 発表者名 A. Kumatani, Y. Takahashi, T. Watanabe, K. Kubota, K. Yamagiwa, H. Ida, H. Shiku, S. Komaba, T. Matsue
2 . 発表標題 v.Localized electrochemical analyses on high capacity electrodes in lithium-ion batteries
3 . 学会等名 EMNT2016
4 . 発表年 2016年

1 . 発表者名 C. Miura, A. Kumatani, T. Okada, Y. Takahashi, H. Shiku, S. Samukawa and T. Matsue
2 . 発表標題 Visualization of Electrochemical Activity at Graphene/Graphite Edges
3 . 学会等名 The AIMR International Symposium 2017 (国際学会)
4 . 発表年 2017年

1 . 発表者名 A. Kumatani, Y. Takahashi, T. Watanabe, K. Yamagiwa, K. Kubota, H. Inomata, H. Ida, H. Shiku, S. Komaba and T. Matsue
2 . 発表標題 Localized Electrochemical Analysis for the Formation of Solid Electrolyte Interface in Graphite-Silicon-Polyacrylate Electrodes for Li-ion Batteries
3 . 学会等名 Single Entity Electrochemistry: Faraday Discussion (国際学会)
4 . 発表年 2016年

1. 発表者名 熊谷明哉, 佐藤悠人, 高橋康史, 久保田圭, 瀧本一樹, 水田浩徳, 岡本訓明, 珠玖仁, 駒場慎一, 末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡によるSi-C複合電極用架橋型ポリアクリル酸バインダーの局所電気化学評価
3. 学会等名 第84回電気化学会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 熊谷明哉, 渡邊徹弥, 高橋康史, 久保田圭, 佐藤悠人, 珠玖仁, 駒場慎一, 末永智一
2. 発表標題 iii. ナノ電気化学セル顕微鏡を用いたリチウムイオン電池Si-黒鉛複合負極の評価
3. 学会等名 第64回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 A. Kumatani, C. Miura, T. Okada, S. Samukawa, H. Shiku, Y. Takahashi, T. Matsue
2. 発表標題 Scanning Electrochemical Cell Microscopy for Visualization of Local Electrochemical Activities on Graphene/Graphite
3. 学会等名 第52回 フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 田中元基, 熊谷明哉, 近真起雄, 陶山博司, 西山博史, 中西真二, 珠玖仁, 高橋康史, 射場英紀, 末永智一
2. 発表標題 水素 / 空気二次電池用水素吸蔵合金における電気化学応答の可視化
3. 学会等名 第 84 回電気化学会, 2017年 3月
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 三浦千穂, 熊谷明哉, 岡田健, 寒川誠二, 珠玖仁, 高橋康史, 末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡によるグラフェン/グラファイト構造における電気化学活性の局所電気化学測定と可視化
3. 学会等名 第 64 回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 渡邊徹弥, 熊谷明哉, 高橋康史, 久保田圭, 井田大貴, 珠玖仁, 駒場慎一, 末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡による Si-黒鉛複合負極の局所電気化学特性評価
3. 学会等名 第 56 回電池討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 渡邊徹弥, 熊谷明哉, 阿部真知子, 岡崎智子, 伊藤友一, 佐藤悠人, 井田大貴, 珠玖仁, 高橋康史, , 射場英紀, 末永智一
2. 発表標題 ナノ電気化学セル顕微鏡の局所電気化学測定を利用した SEI 被膜生成過程の解析
3. 学会等名 第 56 回電池討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 三浦千穂, 熊谷明哉, 岡田健, 高橋康史, 井田大貴, 珠玖仁, 寒川誠二, 末永智一
2. 発表標題 グラフェン/グラファイト表面構造における電気化学応答の可視化
3. 学会等名 みちのく分析化学シンポジウム2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 今井俊輔、井田大貴、高橋康史、熊谷明哉、伊野浩介、珠玖仁、未永智一
2. 発表標題 高感度バイオセンシングのためのプローブ型ISFETセンサーの開発とpH応答性評価
3. 学会等名 みちのく分析化学シンポジウム2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 田中元基、伊藤秀矩、熊谷明哉、伊野浩介、珠玖仁、未永智一
2. 発表標題 電気化学シリンジと核酸タグを用いた単一細胞解析法の開発
3. 学会等名 みちのく分析化学シンポジウム2016
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 今井俊輔、井田大貴、高橋康史、熊谷明哉、伊野浩介、珠玖仁、未永智一
2. 発表標題 Fabrication of probe type pH sensor based on ISFET
3. 学会等名 化学系学協会東北大会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 田中元基、伊藤秀矩、熊谷明哉、伊野浩介、珠玖仁、未永智一
2. 発表標題 Single cell analysis using electrochemical nanopipette and mRNA barcoding tags
3. 学会等名 化学系学協会東北大会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 三浦千穂、熊谷明哉、岡田健、高橋康史、井田大貴、珠玖仁、寒川誠二、未永智一
2. 発表標題 Visualization of Electrochemical Activity at Graphite Edges
3. 学会等名 化学系学協会東北大会
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 熊谷明哉	4. 発行年 2018年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 522
3. 書名 電気化学・インピーダンス測定の実験手法と事例集 第2章 第5節	

〔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