科研費

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 7 日現在

機関番号: 17401

研究種目: 基盤研究(B)(一般)

研究期間: 2018~2020

課題番号: 18H01835

研究課題名(和文)ナノシートを用いた新規二酸化炭素分離膜の開発

研究課題名(英文)Development of novel carbon dioxide separation membrane using nanosheets

研究代表者

畠山 一翔 (Hatakeyama, Kazuto)

熊本大学・産業ナノマテリアル研究所・助教

研究者番号:30773965

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文):ナノシートはその極限の2次元構造と特異性により、様々な応用分野へ展開されている。本研究では、申請者らが持つナノシートの物性制御・層間制御の技術を用いることで、新規分離プロセスによる二酸化炭素分離膜の開発を行った。結果として、分子サイズに逆行した二酸化炭素の選択性を得ることに成功した。選択性はナノシート薄膜の表面状態や層間隔に依存せず、常識的な透過メカニズムとは異なるメカニズムにより駆動していることが示唆された。

研究成果の学術的音義や社会的音義

研究成果の子柄的息義や任芸的息義 本研究により、ナノシートを用いた二酸化炭素分離膜の開発が進展した。ナノシートは極限に薄い「紙」であり、ナノシートから作製された分離膜は、従来の分離膜の性能を突破できる可能性を持つ。例えば本研究で得られた、分子のサイズに逆行した分離性のもその1つとみることができる。このように、本研究で得られた成果は、地球上の二酸化炭素削減に寄与し、自足可能な社会の発展に貢献できるものである。

研究成果の概要(英文): Nanosheets have been introduced into various application fields due to their extreme two-dimensional structure and specific properties. In this study, we tried to develop a carbon dioxide selective membrane via a new separation mechanism by our techniques for controlling the nanosheet property and interlayer space. As a result, we succeeded in obtaining the selectivity of carbon dioxide opposite to the molecular size. It was suggested that the gas permeation through nanosheet film is driven by a anomalous mechanism different from the common-sense one because the selectivity didn't depend on the surface state and layer spacing of the nanosheet thin film.

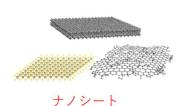
研究分野: ナノ材料

キーワード: ナノシート 二酸化炭素分離

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、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

ナノシートは、その有益な特性と高い応用性から新な科学技術イノベーションの創出をもたらす「新材料」として、世界中の研究者から注目を集めている。最近では、同種・異種ナノシートの相互作用によって、その層間で予想もしないユニークな特性が発現することが報告され、ナノシート積層膜の研究が活発化している。申請者らは、ナノシートの1つである酸化グラフェン(GO)の配向自立膜に関する研究にいち早く取り組み、GO配向自立膜の層間を利用した高速プロトン伝導性を発見し、層間の特異性を実証した。また、GO配向自立膜が固体電解質として利用可能であることも提唱し、オールカーボン型燃料電池を開発するまで至った。今では、GO配向自立膜は次世代の逆浸透膜や固体電解質として年間90報以上の論文が発表されるなど、世



- ・究極の2次元性
- 完全な分子不透過性
- ・高い柔軟性、機械的強度、安定性

図 1 ナノシートの模式図と その特徴

界的に認知されている。このように大きな可能性を秘めたナノシートの応用展開として高いポテンシャルを持つ分野が、膜分離である。これは、ナノシートが持つ究極の2次元性を最大限利用できるからである。実際にGOを用いた逆浸透膜は、現存の性能を超えるとして、世界に衝撃を与えた $(Nat.\ Nanotechnol.\ 12,546(2017))$ 。このようにナノシートを用いることで、膜分離にイノベーションをもたらす可能性がある。

2. 研究の目的

本研究では、ナノシートを用いた CO2分離膜の開発を目指した。日本では、2030 年度までに 2013 年度比 26%の温室効果ガス削減を目標に掲げおり、CO₂削減コストに優れた膜分離は最優 先に取り組むべき課題であり、多くの研究者が労力を注いでいる。ナノシートは、幅はマイクロ スケールでありながら厚さは数 nm 程度しかなく、高い柔軟性、機械的強度、物理的・化学的安 定性、分子不透過性といった特徴を持つ。また、ナノシートを単位ユニットとして層間に種々の 機能イオン、分子をインターカレートした超格子からなる層状物質を自由かつ容易に作製でき る他の物質では見られないユニークな特徴を有している。そのため、ナノシートから構築された ガス分離膜は、従来の分離膜が抱えるトレードオフ問題解決に対して高いポテンシャルがある と考えた。実際に、ナノシートを用いたガス分離膜が、高分子が有する性能の限界値を超えたと いう報告が発表され(Science 342, 95 (2013) & Science 342, 91 (2013))、そのポテンシャルの高 さが実証されている。しかし、それまでに報告されているナノシートの空孔やシート間の隙間を 通したガス分離プロセスでは、分子サイズに依存した分離プロセスから生じる問題を打破でき ていなかった。さらに、ナノシートを用いたガス分離膜の研究は世界でホットな研究テーマの1 つであるにも拘わらず、国内における研究はほとんど行われていなかった。そこで、申請者らは、 これまでの空孔・隙間を利用したガス分離プロセスに、我々が持つポテンシャルであるナノシー トの物性制御・層間制御の概念を導入することで、新規分離プロセスを持つ CO2 分離膜の開発 を目指した。

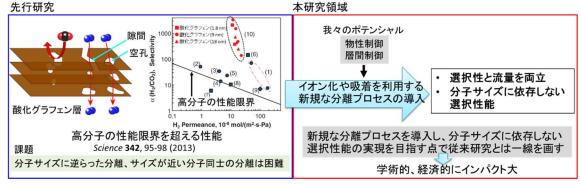


図 2 GO を用いた分離膜のポテンシャルと本研究の位置づけ

3. 研究の方法

本研究は、1)ナノシートの作製・構造設計、2)ナノシートの薄膜化・機能設計、3)分離性能評価、の3 つのプロセスで進めた。ナノシートとしては申請者が得意とする GO を主に用いた。1)では、シートサイズの異なる GO(約2 μ m と15 μ m)を作製した(図3)。Hummers'法により作製した酸化グラファイトを、水中で超音波を用いて剥離することで、単層の GO が高分散した水溶液を作製した。作製した GO ナノシートの評価は、原子間力顕微鏡(AFM)、X 線光電子分光法(XPS)などで評価した。2)では、GO 分散液を、スピンコート法、吸引ろ過法、滴下法を用いることで、支持膜上に薄膜を作製した。滴下する GO の濃度、滴下量を変えることで、膜厚が異なる薄膜を作製した。薄膜を空気中(酸素存在下)、窒素中、水蒸気中で様々な温度で

熱還元を実施することで、層間隔とシート構造が異なるGO薄膜を作製した。また、ヒドラジンおよびヨウ化水素蒸気により化学還元も実施した。また、硫酸を添加することで、層間隔を拡大した薄膜も作製した。また、ヘキサメチレンジイソシアネートで化学修飾することで表面にアミン基を付加した薄膜も作製した。薄膜の層間隔はX線回折(XRD)により評価した。3)では、期間中に立ち上げた気体透過特性評価を行うことで、薄膜の気体選択性を評価した。また、高性能の気体バリア測定装置も立ち上げ、薄膜の気体バリア性についても評価を行った。

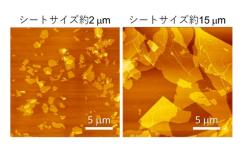


図 3 作製した異なるシートサイズ の GO の AFM 像

4. 研究成果

図4に今回作製したGO薄膜のSEM像を示す。表面のSEM観察から(図4a)、GO薄膜には欠陥はなく、支持膜の表面を均一に覆っていることが確認された。断面測定からは、GO薄膜の厚さが約50nmであることがわかった。この結果により、ナノレベルの均一な薄膜を、支持膜上に作製できたと結論付けた。薄膜のXRD測定から、還元および硫酸添加により層間隔が変化していることが観察された。

図 5 に、サイズのことなる GO を用いた薄 膜を通した気体透過測定の結果を示してい る。気体の選択率 (N₂/CO₂) を N₂ の透過速度 に対してプロットした。図から、GO 薄膜は N2 に対して CO₂ の選択性を示すことが確認され た。また、同じ透過速度では、シートサイズが 大きな GO を用いた方が選択率が高いことが わかった。薄膜を気体が透過する場合、気体は シートの層間 (シートの面内) およびエッジか ら相互作用を受ける。シートサイズが大きな GO を使用した薄膜では、層間の効果が強調さ れる一方で、シートサイズが小さい GO を使 用した薄膜ではエッジの効果が強調されると 考えられる。図5で示された結果は、GO薄膜 の選択性に対して、シートの面内の効果が大 きいことを示す。また、N2および CO2の動的 分子半径はそれぞれ、0.364 nm および 0.33 nm であり、図5に示された結果は、分子サイズに 逆らった分離を実現できていることを示す。

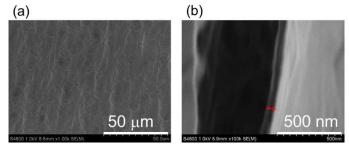


図 4 支持膜上に作製した GO 薄膜の(a)表面、(b)断面の SEM 像

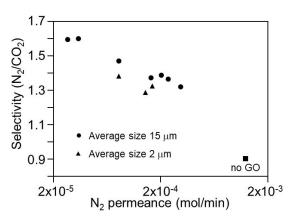


図 4 GO 薄膜を通した N_2 の透過速度に対する気体選択性 (N_2/CO_2) 。図にはシートサイズの異なる 2 種類の GO を用いた結果および支持膜のみの結果を示す。

単純な微小な細孔内を通過する分離機構では、気体透過の抵抗が分子量の平方根に比例するため、 CO_2 と N_2 の場合は選択率(N_2/CO_2)が 1.25 となるはずである。本研究の場合、選択率が 1.6 に達しており、単純な細孔の分離とは異なるメカニズムにより、選択性が発現していることがわかった。このような選択性がみられる理由として、GO 薄膜に多量に存在する層間水の効果が考えられる。 CO_2 はイオンとして水に溶け込めるため、層間水に溶け込み、イオンとして透過する可能性がある。一方で GO はマイナスチャージを持つため、マイナイオンは透過しにくいということが我々の研究で明らかにされてきている。そのため、 CO_2 は単純な分子サイズから予想される透過速度より遅く、 N_2 の透過速度との逆転が起きたと考えれる。しかし、分子サイズに逆らった選択性については、今後もメカニズム解明の必要があり、研究を続けていきたい。

次に、層間隔や表面チャージを制御した GO 薄膜を分離膜として用いることで、選択性の 向上、ナノシート薄膜の気体透過のメカニズ ム解明を行った。図5に、熱還元、化学還元、 化学修飾、硫酸添加した GO 薄膜を用いた気 体透過特性評価結果を示す。図4と同様に、 N₂の透過速度に対して選択性(N₂/CO₂)をプ ロットしている。この結果から、GO 薄膜にど の処理を行っても、気体透過特性が変化しな いことが明らかになった。今回行った処理に より GO 薄膜は、層間隔や表面状態(チャー ジなど) が大きく変化することが確認されて いる。熱還元および化学還元では、GO の酸素 官能基が分解され、グラフェンに近い構造に なる。そのため、層間距離は通常の GO 薄膜 の半分以下であるグラフェンの 0.33 nm に近 づき、表面チャージもニュートラルになる。化 学修飾では、今回はアミン基を付加したため、

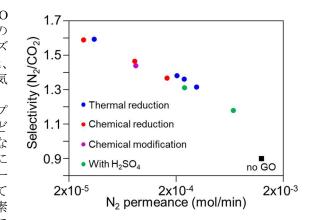


図 5 熱還元、化学還元、化学修飾、硫酸添加した GO 薄膜を通した N₂ の透過速度に対する気体選択性 (N₂/CO₂)。

表面はマイナスチャージからプラスチャージに変化したはずである。また、硫酸添加では、層間隔が約2倍近くにまで広がる。このような劇的な構造変化を設計したにも関わらず気体透過特性に変化がないという結果は予想から大きく外れた結果であった。以上の結果から、ナノシート薄膜の気体透過は、常識的な透過メカニズムとは異なるメカニズムにより駆動していると考えられ、今後の研究によりそれらメカニズム解明および制御により、高度な分離膜の開発が期待される。

5 . 主な発表論文等

「雑誌論文 〕 計12件(うち査読付論文 12件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件)

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

〔雑誌論文〕 計12件(うち査読付論文 12件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件)	
1 . 著者名 Irisa Kenichiro、Hatakeyama Kazuto、Yoshimoto Soichiro、Koinuma Michio、Ida Shintaro	4.巻 11
2. 論文標題 Oxygen reduction reaction activity of an iron phthalocyanine/graphene oxide nanocomposite	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 RSC Advances	6.最初と最後の頁 15927~15932
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d1ra01001h	 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 Hatakeyama Kazuto、Ishikawa Yoshie、Kirihara Kazuhiro、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Ito Kohzo、Terashima Kazuo、Hakuta Yukiya、Shimizu Yoshiki	4.巻 12
2. 論文標題 Slide-Ring Material/Highly Dispersed Graphene Oxide Composite with Mechanical Strength and Tunable Electrical Conduction as a Stretchable-Base Substrate	5 . 発行年 2020年
3.雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6.最初と最後の頁 47911~47920
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsami.0c12687	 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 Taniguchi Takaaki、Wong Kar Chun、Nurdiwijayanto Leanddas、Hatakeyama Kazuto、Awaya Keisuke、 Ida Shintaro、Koinuma Michio、Ueda Shigenori、Osada Minoru、Yokoi Hiroyuki	4.巻 177
2 .論文標題 Reversible hydrogenation and irreversible epoxidation induced by graphene oxide electrolysis	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 Carbon	6.最初と最後の頁 26~34
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbon.2021.02.057	 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 Hamidah Nur Laila、Shintani Masataka、Ahmad Fauzi Aynul Sakinah、Kitamura Shota、Mission Elaine G.、Hatakeyama Kazuto、Sasaki Mitsuru、Quitain Armando T.、Kida Tetsuya	4.巻 93
2.論文標題 Electrochemical hydrogen production from humid air using cation-modified graphene oxide membranes	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 Pure and Applied Chemistry	6.最初と最後の頁 1~11
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1515/pac-2019-0807	 査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスでけない 又けオープンアクセスが困難	国際共著

1.著者名	4 1/
	4 . 巻
Ahmad Fauzi Aynul Sakinah, Hamidah Nur Laila, Sato Shinya, Shintani Masataka, Putri Ghina	323
Kifayah, Kitamura Shota, Hatakeyama Kazuto, Quitain Armando T., Kida Tetsuya	
2.論文標題	5.発行年
Carbon-based potentiometric hydrogen sensor using a proton conducting graphene oxide membrane	2020年
coupled with a WO3 sensing electrode	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Sensors and Actuators B: Chemical	128678 ~ 128678
Sensors and Actuators B. Chemical	120078 ~ 120078
In which is a constant of the	
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1016/j.snb.2020.128678	有
オープンアクセス	国際共著
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	-
1 . 著者名	4 . 巻
Ye Nan, Ohnishi Satoka, Okada Mitsuhiro, Hatakeyama Kazuto, Seki Kazuhiko, Kubo Toshitaka,	59
Shimizu Tetsuo	
2 . 論文標題	5 . 発行年
Fabrication of layer-by-layer graphene oxide thin film on copper substrate by electrophoretic	2020年
deposition	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Japanese Journal of Applied Physics	125001 ~ 125001
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.35848/1347-4065/abc3a2	有
	1.3
オープンアクセス	国際共著
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	国际六省
オーノファッセス こはない、又はオーノファッセスが必難	
#115	
1.著者名	4 . 巻
Hamidah Nur Laila, Shintani Masataka, Ahmad Fauzi Aynul Sakinah, Putri Ghina Kifayah, Kitamura	3
Shota、Hatakeyama Kazuto、Sasaki Mitsuru、Quitain Armando T.、Kida Tetsuya	
2 論文標題	5 発行在
2. 論文標題 Graphono Ovido Membranes with Carium Ephaneod Proton Conductivity for Water Vapor Floatrolycic	5 . 発行年
2 . 論文標題 Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis	5 . 発行年 2020年
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis	2020年
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名	2020年 6.最初と最後の頁
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis	2020年
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名	2020年 6.最初と最後の頁
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名	2020年 6.最初と最後の頁
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3 . 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	2020年 6.最初と最後の頁
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3 . 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	2020年 6 . 最初と最後の頁 4292~4304
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 オープンアクセス	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 オープンアクセス	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1.著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 -
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1.著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1.著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2.論文標題	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1.著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2.論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1.著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2.論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally conductive tough flexible composite	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年 2020年
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1.著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2.論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1.著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2.論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally conductive tough flexible composite 3.雑誌名	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年 2020年 6.最初と最後の頁
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1.著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2.論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally conductive tough flexible composite	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年 2020年
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1.著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2.論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally conductive tough flexible composite 3.雑誌名	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年 2020年 6.最初と最後の頁
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3 . 雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1 . 著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2 . 論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally conductive tough flexible composite 3 . 雑誌名 Composites Science and Technology	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年 2020年 6.最初と最後の頁 108009~108009
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3.雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1. 著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2. 論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally conductive tough flexible composite 3. 雑誌名 Composites Science and Technology	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年 2020年 6.最初と最後の頁 108009~108009
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3 . 雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1 . 著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2 . 論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally conductive tough flexible composite 3 . 雑誌名 Composites Science and Technology	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年 2020年 6.最初と最後の頁 108009~108009
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3 . 雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1 . 著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2 . 論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally conductive tough flexible composite 3 . 雑誌名 Composites Science and Technology 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1016/j.compscitech.2020.108009	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年 2020年 6.最初と最後の頁 108009~108009 査読の有無 有
Graphene Oxide Membranes with Cerium-Enhanced Proton Conductivity for Water Vapor Electrolysis 3 . 雑誌名 ACS Applied Nano Materials 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsanm.0c00439 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 1 . 著者名 Goto Taku、Ito Tsuyohito、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Shimizu Yoshiki、Hatakeyama Kazuto、Ito Kohzo、Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo 2 . 論文標題 Movable cross-linked elastomer with aligned carbon nanotube/nanofiber as high thermally conductive tough flexible composite 3 . 雑誌名 Composites Science and Technology	2020年 6.最初と最後の頁 4292~4304 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 190 5.発行年 2020年 6.最初と最後の頁 108009~108009

1 . 著者名	4 . 巻
Hatakeyama Kazuto, Hakuta Yukiya, Sugiyama Jun-ichi, Shimizu Yoshiki	58
2 . 論文標題 A simple ozone bubbling procedure for the preparation of graphene oxide	5 . 発行年 2019年
3.雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6.最初と最後の頁 SIIA05~SIIA05
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab1e3f	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 Hatakeyama Kazuto、Koinuma Michio、Shimizu Yoshiki、Hakuta Yukiya	4.巻 92
2 . 論文標題 A Two-Step Method for Stable and Impurity-Free Graphene Oxide Dispersion in Various Organic Solvents without a Stabilizer or Chemical Modification	5.発行年 2019年
3.雑誌名 Bulletin of the Chemical Society of Japan	6.最初と最後の頁 511~520
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20180309	 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 Goto Taku、Iida Masaki、Tan Helen、Liu Chang、Mayumi Koichi、Maeda Rina、Kitahara Koichi、 Hatakeyama Kazuto、Ito Tsuyohito、Shimizu Yoshiki、Yokoyama Hideaki、Kimura Kaoru、Ito Kohzo、 Hakuta Yukiya、Terashima Kazuo	4.巻 82
2. 論文標題 Development of High Thermally Conductive Flexible Elastomer as a Composite Material of Slide-Ring Material and Plasma-Surface-Modified Boron Nitride Particles: Effect of Plasma-Surface Modification of Boron Nitride Particles	5.発行年 2018年
3.雑誌名 Journal of the Japan Institute of Metals and Materials	6.最初と最後の頁 403~407
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/jinstmet.JAW201809	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 Kida Tetsuya、Kuwaki Yuta、Miyamoto Azumi、Hamidah Nur Laila、Hatakeyama Kazuto、Quitain Armando T.、Sasaki Mitsuru、Urakawa Atsushi	4.巻
2.論文標題 Water Vapor Electrolysis with Proton-Conducting Graphene Oxide Nanosheets	5 . 発行年 2018年
3.雑誌名 ACS Sustainable Chemistry & Engineering	6 . 最初と最後の頁 11753~11758
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssuschemeng.8b01998	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11件(うち招待講演 1件/うち国際学会 6件)
1. 発表者名
畠山 一翔、伯田 幸也、 杉山 順一、清水 禎樹
2.発表標題 A O in the O construction of the interest of the original production of the original productio
A Simple Ozone Treatment for Oxidizing Carbon Materials using Barrier Discharge
3.学会等名
10th International Workshop of Microplasma (国際学会)
4.発表年
2019年
1. 発表者名
畠山 一翔、伯田 幸也、杉山 順一、清水 禎樹
2 . 発表標題
オゾンバブリングによる酸化グラフェン作製技術の検討
3.学会等名
第12回酸 化グラフェンシンポジウム
4 . 発表年 2010年
2019年
1.発表者名
また。 畠山 一翔、鯉沼陸央、清水 禎樹、伯田 幸也
2.発表標題
有機溶媒に対する高分散性酸化グラフェンの開発
3.学会等名
第 46回炭素材料学会年会
4.発表年
2019年
1.発表者名
1. 光視自由 畠山 一翔、伯田 幸也、清水 禎樹、伊藤 剛仁、寺嶋和夫、伊藤耕三
2 · 光表標題 靭性、電気伝導性にすぐれた環動高分子 / 酸化グラフェン複合体の作製
The state of the s
3 . 子会等名 グラフェン・酸化グラフェン合同シンポジウム
4 . 発表年
2019年

1	発 表名
	. #.481917

清水 禎樹、畠山 一翔、伯田 幸也

2 . 発表標題

Decoration of ZnO film with gold nanoparticles in open air by atmospheric-pressure micro-plasma jet and the photocatalytic properties of the decorated film

3.学会等名

10th International Workshop of Microplasma (国際学会)

4.発表年

2019年

1.発表者名

飯田 雅樹、後藤 拓、畠山 一翔、伊 藤 剛仁、清水 禎樹、伯田 幸也、寺嶋 和夫

2 . 発表標題

Surface-modifications of graphene nano-plates via plasma in liquid

3 . 学会等名

XXXIV ICPIG & ICRP-10 (国際学会)

4.発表年

2019年

1.発表者名

清水 禎樹、畠山 一翔、伯田 幸也

2 . 発表標題

Direct deposition of plasmonic nanoparticles via sputtering performed in open air for easy manufacturing of plasmonic nanocomposite film

3.学会等名

2019 MRS Fall Meeting (国際学会)

4.発表年

2019年

1.発表者名

Hatakeyama Kazuto, Shimizu Yoshiki

2.発表標題

New Preparation Method for Graphene-like Carbon Material

3 . 学会等名

ACSIN14 & ICSPM26 (国際学会)

4. 発表年

2018年

1.発表者名 Hatakeyama Kazuto、Koinuma Michio、Shimizu Yoshiki、Hakuta Yukiya
2.発表標題
Preparation of Stable and Impurity-Free Graphene Oxide Dispersion in Various Organic Solvents
3.学会等名 1 & 2D Materials International Conference and Exhibition(国際学会)
4.発表年 2019年
1.発表者名 畠山一翔、鯉沼陸央、清水禎樹、伯田幸也
2 . 発表標題 高安定な酸化グラフェン有機溶媒分散液の開発
3 . 学会等名 第11回酸化グラフェンシンポジウム
4.発表年 2018年
1.発表者名 畠山一翔
2.発表標題 酸化グラフェンの特徴と実用化への取り組み
3 学会等名

6.子云寺台 第1回 2D材料研究会(招待講演)

4 . 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計4件

産業財産権の名称	発明者	権利者
導電性被覆が形成された金属材料	関和彦、久保利隆、	国立研究開発法
	岡田光博、畠山一	人産業技術総合
	翔、古賀健司、清水	研究所
産業財産権の種類、番号	出願年	国内・外国の別
特許、特願2020-010602	2020年	国内

産業財産権の名称 強柔軟・高誘電性エラストマーとその製造方法	発明者 伯田幸也、寺嶋和 夫、後藤拓、清水禎 樹、畠山一 翔、他4	権利者 国立研究開発法 人産業技術総合 研究所
産業財産権の種類、番号	出願年	国内・外国の別
特許、特願2019-165646	2019年	国内

産業財産権の名称 高放熱・高柔軟・高靭性ナノコンポジットとその製造方法	発明者 伯田幸也、寺嶋和 夫、清水禎樹、畠山 一翔、他4名	権利者 国立研究開発法 人産業技術総合 研究所
産業財産権の種類、番号	出願年	国内・外国の別
特許、特願2019-121160	2019年	国内

産業財産権の名称 様々な溶媒に対して高安定性を有する酸化グラフェン分散液とその製造技術	発明者 畠山一翔、清水禎 樹、伯田幸也	権利者 産業技術総合研 究所
産業財産権の種類、番号	出願年	国内・外国の別
特許、特願2018-177559	2018年	国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

_

6.研究組織

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	
	木田 徹也	熊本大学・大学院先端科学研究部(工)・教授		
研究分担者	(Kida Tetsuya)			
	(70363421)	(17401)		
	伊田 進太郎	熊本大学・大学院先端科学研究部(工)・教授		
研究分担者	(Ida Shintaro)			
	(70404324)	(17401)		
研究分担者	伯田 幸也 (Hakuta Yukiya)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・ラボチーム長		
	(30250707)	(82626)		

	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
	原 重樹	国立研究開発法人産業技術総合研究所	
研究協力者	(Hara Shigeki)		
	(90357814)	(82626)	
	清水 禎樹	国立研究開発法人産業技術総合研究所	
研究協力者	(Shimizu Yoshiki)		
	(20371049)	(82626)	
	杉山順一	国立研究開発法人産業技術総合研究所	
研究協力者	(Sugiyama Jun-ichi)		
	(10235905)	(82626)	

7.科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------