科学研究費助成事業

研究成果報告書

今和 6 年 6 月 2 0 日現在 機関番号: 82110 研究種目: 基盤研究(B)(一般) 研究期間: 2021~2023 課題番号: 21H01751 研究課題名(和文)水素イオン透過ヘテロ電極界面による水素同位体分離能の制御 研究課題名(英文)Control of hydrogen isotope separation by hydrogen ion permeable hetero electrode interface 研究代表者 保田 諭 (Yasuda, Satoshi) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 先端基礎研究センター・ 研究主幹

研究者番号:90400639

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 13,000,000 円

研究成果の概要(和文):二次元材料であるグラフェンとパラジウム金属膜からなるヘテロ電極が持つ水素同位 体分離能の起源とその制御法に関する検証を行った。固体高分子膜からなる電気化学デバイスと質量ガス分析法 を適用して評価した結果、グラフェンの分離能の起源はグラフェンを透過する水素同位体イオンの量子トンネル 効果に起因していることを明らかにした。また、グラフェンへの空孔構造導入による分離能の変調効果に関する 基礎的知見も得た。

国産製造化と日本の産業の活性化と国際競争力強化といった貢献が期待でき社会的意義も高い。

研究成果の概要(英文):We performed verification on the origin and its control of the hydrogen isotope separation ability of a hetero-electrode which consists of two-dimensional material, graphene and a palladium metal film. It was found that the origin of the separation ability of graphene is due to the penetration of hydrogen isotope ions through graphene by a quantum tunneling effect. In addition, we obtained fundamental knowledge regarding the effect of introducing a vacancy structure into graphene on the separation ability.

研究分野: 表面科学,ナノカーボン

キーワード: 水素同位体 グラフェン 電気化学 トンネル効果

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

水素同位体である重水素は、IOT や 5G 向けの LSI の長寿命化や光ファイバーの透過率向 上、重水素化医薬品の開発、薬物代謝のトレーサーに必須の原料で、今後も需要の増大が予想 されている。重水素は、主に化学交換法や深冷蒸留法、電解法などを用いて分離濃縮されて得 られるが、H と D を分ける能力である H/D 分離能が低いだけでなく電力コストがかかるため 製造コストが高い。このため、そのほとんどを海外からの輸入に頼っている。今後の需要増大 と国産化による安定供給の観点から、高い H/D 分離能を有し低コストでの重水素分離濃縮の 技術開拓が切望されている。

グラフェンは炭素原子からなる一原子層のナノ材料であり、高電気伝導性と高機械的強度に よりデバイス材料として研究されているが、D⁺よりも H⁺を多く透過し、H/D 分離能を有す ることが報告されている。

近年、この H/D 分離能を有するグラフェンを、高分子電解質膜からなる電気化学水素ポン ピング(PEM-ECHP)法に組み込むことで、水素と重水素の混合ガスから重水素ガスを選択 的に分離濃縮するデバイスを構築できることが報告されている。PEM-ECHP は、アノードの 電極触媒に供給された水素分子を酸化反応によりプロトンに変換、高分子電解質膜を介してカ ソードの電極触媒上での還元反応により、再度、水素分子に変換するデバイスである。水素ガ スの高圧化や高純度化に利用され、室温・大気圧動作が可能であること、固体の電解質膜を用 いるため操作性やメンテナンスが容易であること、拡張性が高い特徴からコストパフォーマン スに優れている。

研究代表者は、水素透過性をもち電気化学的に H⁺と D⁺の放出・吸収が可能なパラジウム (Pd) 膜電極とグラフェンのヘテロ構造からなる電極構造を構築し、PEM-ECHP に組み込 んだ結果、分離能が大きく向上することを見出した。将来的により高い分離能を発現する電極 構造の設計指針を得るためには、グラフェンそのものの分離機構を解明するだけでなく、その 知見に基づきヘテロ構造界面を制御することが重要となる。しかしながら、グラフェンの H/D 分離機構に関する実験的知見は得られていないばかりか、さらなる分離能向上に関する 基礎的知見について研究が行われていない。

2.研究の目的

本研究では、研究代表者が開発した Pd グラフェンヘテロ電極を組み込んだ PEM-ECHP とガス分析法を用いて、グラフェンの H/D 分離機構を明らかにすると共に、ヘテロ界面を制 御することでさらなる分離能向上に関する基礎的知見を得ることを目的とする。

3.研究の方法

固体電解質膜(PEM)である Nafion(厚さ 51µm)の 片面にグラフェンを転写し、その上に Pd(厚さ 6 ~ 10 nm)を蒸着した二層構造からなるアノードを作製した (Fig. 1(a))。このヘテロ構造を PdGr(Gr はグラフェン) と呼ぶ。また、燃料電池の一般的な電極触媒である Pt ナノ微粒子がナノカーボン材料に担持された Pt/C をカ ソードとして用いた。カーボンペーパーであるガス拡散 層に Pt/C 粉末を塗布した Pt/C ガス拡散電極(Pt/C GDE) を作製して Nafion のもう片面に接着し、PdGr - Nafion -Pt/C GDE から構成される膜電極集合体(MEA)を作製 した。この MEA を PdGr-MEA と呼ぶ(Fig. 1(a))。H/D 分離能の検証用のため、アノードとしてグラフェンが無 い膜状の Pd でカソードには Pt/C GDE からなる Pd-MEA、 両電極とも Pt/C GDE からなる Pt/C-MEA も作製した。



図 1. (a) Pd/グラフェン電極 (PdGr)と Pt/C GDE からなる 膜電極集合体(MEA)の概念図.

これら MEA は電気化学反応セルにそれぞれ組み込み(図 2(a)) アノードには H₂と D₂の混 合ガスを、カソードには加湿した Ar ガスを供給した。カソードの排出口には、H と D の定量 評価のため四重極質量ガス分析装置を接続した(図. 2(b))。二つの電極間に電圧を印加すると、 アノードでは一部の H₂と D₂が水素酸化反応によりイオン化されてそれぞれイオンになる。こ れらイオンは PEM 内をカソード方向に拡散し、カソードで水素発生反応により H₂と D₂、HD となって放出される。MEA に PdGr-MEA を用いた場合(図 2(c))、アノードの PdGr に供給さ れた水素と重水素ガスは、Pd 膜によりイオン化し、グラフェンがある面から H⁺と D⁺が放出 される。このときグラフェンを透過し、カソードで H₂、D₂、HD となって放出される。これら のガスの量を四重極質量ガス分析により決定し、H と D の選択性能である分離能を見積もっ た。この分離能は H/D として定義し、カソードで排出される H と D の量の割合をアノードに 供給される H と D の量の割合で割った数値である(H/D = [H/D]_{カソード}/[H/D]_{アノード})。



図 2. (a) 電気化学反応セルの写真. (b)PEM-ECHP とガス分析装置を組み合わせた実験系の 概念図. (c) PdGr-MEA を用いた時の PEM-ECHP による分離能評価.

4.研究成果

図 3(a)は 3 種類の MEA を用いた時の、ある一定電流値 (25mA cm⁻²)で観察された H/D を示す。一般的な燃料電 池で用いられている MEA である Pt/C-MEA では、H/D は 1.2 程度とほとんど分離能が発現しない。一方、グラフェンを含まない Pd-MEA の H/D は 2.5 程度で、グラフェンを 含む PdGr-MEA では 8 程度の値を示すことが分かった。 Pd-MEA の分離能は、予期した通り、Pd 膜自身の水素同位 体の分離特性に由来するものであり、Pd 膜中の H および D 原子の溶解度や拡散定数の違いを反映した結果である。 PdGr-MEA の場合では、H/D が Pd-MEA のそれよりも大き な値が観察されたが、この結果はグラフェンの水素同位体 イオンの選択透過性に由来しているものと示唆される。

グラフェンの分離機構に関するより詳細な知見を得るた め、それぞれの MEA に対して H/D の電圧依存性について も評価を行った(図 3(b))。その結果、PdGr-MEA では、 電圧の増加に伴い H/D も減少する傾向があることが明らか となり、特に電圧が低い、すなわち反応電流が低い場合に は、H/D 分離能は 20 程度と大きな値を示した。一方、 Pt/C-MEA と Pd-MEA においては、H/D は電圧によらず一 定値を示すことが明らかとなった。PdGr-MEA の H/D は、 グラフェンと Pd のそれぞれの分離能の相乗効果によるも のであるため、グラフェンのみの H/D は、PdGr-MEA の H/D を Pd-MEA のそれで割ることで見積もることができる。 図 4 は、算出したグラフェンの H/D の電圧依存性のグラフ を示すが、低電圧領域では H/D は 10 程度で、電圧増加に より減少していく特徴を示すことが分かった。

以上の観察された H/D の電圧依存性について電気化学の 観点から考察する。PdGr-MEA の PdGr では、酸化反応に より Pd 膜中に取り込まれた水素同位体はグラフェンがあ る面からイオンとして放出される。この Pd 膜から放出さ れた水素同位体イオンは、グラフェンの六員環構造の中央 部位を透過して電解質膜に移動するものと考えられる。こ の透過過程でエネルギー障壁があるため、この障壁を乗り 越える必要があるが、電極間に電圧を加えるとグラフェン と電解質膜の界面には強い電場が加わるため、このエネル ギー障壁も変化することが考えられる。この考察を踏まえ、 グラフェンの分離機構について理論的検証を行った。これ までの研究によると、主に二つの分離能機構が提唱されて



図3. (a) 各 MEA による H/D (25 mAcm⁻²での値). (b) 各 MEA の電圧依存性. 〇が PdGr-MEA、 が Pd-MEA、 ×が Pt/C-MEA.



いる。一つは、グラフェン近傍に存在する水などの水酸基と水素同位体イオンの相互作用が関 与したものである。D⁺がH⁺よりも質量が2倍程度重たいことによるゼロ点振動エネルギー差 によりD⁺が水酸基とより強く相互作用し、結果としてH⁺が多く透過するモデルである。しか しながら、このモデルでは、印加電圧によりエネルギー障壁が変化しても、ゼロ点振動エネル ギー差は影響を受けないため、H/D は電圧依存性を示さないものと考えられる。二つ目は、グ ラフェンのエネルギー障壁を水素同位体イオンが量子トンネル効果により透過するモデルであ る。質量が軽いH⁺は、D⁺よりも高い透過確率を示すことから、H⁺が多くグラフェンを透過で きる。これらイオンの透過確率は、電圧によるエネルギー障壁の高さや幅の変化に対して変化 するため、実験で観察されたH/D の電圧依存性を説明することができる。以上の考察から、



図5.(a) グラフェンを介して水素同位体イオンが透過するモデルポテンシャルと電圧による変化.(b) 理論計算で得られた全透過確率(左縦軸:)と実験で得られた電流密度(右縦軸:)の電圧依存性.(c) 理論計算()と実験()で得られた H/D の電圧依存性のグラフ.

量子トンネル効果に基づく理論モデルを構築し、実験結果との比較検証を行った。

図 5(a)は、H⁺がグラフェンの六員環の中心を透過するときのエネルギーポテンシャルのモデ ル図である。H⁺の位置がゼロのところにグラフェンが存在し、マイナス側が Pd 膜、プラス側 が電解質膜である。H⁺が Pd 膜表面から脱離してグラフェンに近づき、六員環の中心を透過し たとき(位置がゼロのとき)にエネルギー障壁の高さが最大となり、その高さは 0.5eV 程度と第 一原理計算によって見積もられた。実験系を再現するように電圧を印加したときのモデルポテ ンシャルを図中に示すが(点線)、印加する電圧の大きさによって、エネルギー障壁の高さや 幅が大きく変化することが分かる。このグラフェンのエネルギー障壁を介して水素同位体イオ ンが電解質膜側に移動するプロセスには、熱エネルギーによりエネルギー障壁を乗り越える古 典的な移動プロセスと障壁をすり抜ける量子トンネル効果に基づく移動プロセスの2つが存在 する。これら二つの移動プロセスの寄与による水素同位体イオンの全透過確率(電流に対応) と H/D の電圧依存性について、図 5(a)のモデルポテンシャルを用いて計算を行った。図 5(b)は 理論計算で得られた全透過確率と実験で得られた電流密度の電圧依存性の結果を示すが、電圧 が増加するにつれて、両結果ともに増加するのが分かる。H/D の電圧依存性についても、理論 計算と実験結果の両方とも、電圧増加により H/D が減少することが明らかになった(図 5(c))。 このように古典的および量子トンネル効果に基づく移動プロセスを考慮したモデルを適応する と、実験で得られた電流と H/D の電圧依存性の結果を良く

再現できることが分かった。

図6は、実験及び理論で得られた電圧とH/Dの電圧依存 性を説明した水素同位体イオンのエネルギーポテンシャル の概念図である。印加電圧が低い場合、グラフェンのエネ ルギー障壁が高いため、イオンがこの障壁を熱エネルギー で乗り越えて移動する古典的なプロセス(点線)よりも、 量子トンネル効果(実線)により透過するプロセスが優勢 となる。量子トンネル効果による移動プロセスは、水素同 位体イオンの質量差に起因する透過確率の違いを反映して 高い H/D 分離能が発現する。このため低電圧では高い H/D を示すが、透過するイオン量は少ないため電流は小さい。 一方、印加電圧が高くなると、グラフェンのエネルギー障 壁が低くなるため、量子トンネル効果よりも古典的な移動 プロセスが支配的となる。古典的な移動プロセスでは H/D 分離能が小さい。このため H/D は減少していくが、障壁の 低下によりイオンの移動量が増加するため、電流は大きく 増加していく。以上の理論と実験結果から、グラフェンの H/D 分離能は、水素同位体イオンの量子トンネル効果に起 因していることを明らかにした。

H/D 分離能のさらなる向上とその制御を目指し、ヘテロ 界面が H/D 分離能に与える基礎的知見を得ることも試みた。 界面の変調法として、グラフェンへの高密度な空孔構造の 導入が分離能に与える影響についても検証を行った。



図 6. 電圧による水素同位体 イオンの移動プロセスの変 化の概念図.

これまでに確立した高真空 Ar イオン照射法による空孔構造導入技術を用い、PdGr ヘテロ電 極のグラフェンに空孔構造を導入することで水素同位体分離能に与える影響を精査した。およ そ 2~5nm 間隔程度の高密度でグラフェン内に空孔構造を導入した PdGr-MEA を構築し、水素 同位体分離能を評価した結果、分離能と印加電圧の減少が観察された。この結果は、空孔構造 導入によってグラフェンのバリア高さが減少したことでトンネル効果による分離能の影響が低 減した一方で、印加電圧が小さくなったと考えられる。図 3(b)のグラフから分かる通り、グラフェンのトンネル効果による水素同位体分離は、グラフェンのバリア高さが高いため印加電圧が高い。これらの結果は、バリア高さを低減することで、分離能は減少するが印加電圧も低減、すなわち反応量に対応する電流量を増加させる制御因子になりえることを示したものである。 今後は理論計算と合わせ変調効果の有効性について検証を行う。

以上、1 原子層の厚さしかないグラフェンが、水素同位体イオンの量子トンネル効果によっ て高い同位体分離能が発現すること初めて明らかにした。また、グラフェンへの空孔構造導入 が分離能の制御因子になる基礎的知見も得た。

これまでに様々な原理に基づく水素同位体分離の研究が行われてきたが、1 原子層の厚みの 二次元材料への水素同位体イオンの量子トンネル効果を動作原理にした分離技術は、これまで に報告例が無く、全く新しい学術分野と手法になりえる。今後は、理論と実験を合わせた設計 指針に基づき、量子トンネル効果がより効果的に発現する電極設計を進め、低コストの水素同 位体分離デバイスの開発を進める。

5.主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件(うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件)	
1 著者名	4
	+ · E
rasuda satoshi, Matsushima Hisayoshi, Harada Kenji, Tanii Kisako, Terasawa Tomo-o, rano	10
Masahiro, Asaoka Hidehito, Gueriba Jessiel Siaron, Dino Wilson Agerico, Fukutani Katsuyuki	
2.論文標題	5 . 発行年
Efficient Hydrogen Lectone Separation by Tunneling Effect Using Graphone Based Heterogeneous	2022年
Entretent hydrogen isotope separation by runnering Entret sing Graphene-based neterogeneous	20224
Electrocatalysts in Electrochemical Hydrogen Isotope Pumping	
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
ACS Nano	14362-14369
	14002 14000
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 1021/acchano 2c0/655	右
10.1021/acShah0.200+055	F
オーブンアクセス	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.者者名	4.
Terasawa Tomo-o, Matsunaga Kazuva, Havashi Naoki, Ito Takahiro, Tanaka Shin-ichiro, Yasuda	7
Satoshi Asaoka Hidehito	
4	3. 発行年
Band Gap Opening in Graphene by Hybridization with Au (001) Reconstructed Surfaces	2023年
2 14社夕	6 旦辺と旦後の百
	0.取例で取役の貝
Phys. Rev. Mater.	14002
	木詰の左仰
掲載: 冊又のDOT(デンタルオノンエクト 識別士)	直記の有無
10.1103/PhysRevMaterials.7.014002	有
オープンマクセフ	国際井茎
	国际六百
オーフンアクセスではない、又はオーフンアクセスが困難	-
1	/ 类
	+ · E
Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi,Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien	127
Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi,Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo	127
Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi,Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2 論文標題	5 举行在
 1. 1日日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2. 論文標題 Probing Static and Paping along a Craphone Wrightle Uning Tip Enhanced Paper Spectroscopy 	5.発行年 2022年
 Yalan Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 	127 5 . 発行年 2023年
 P. 4 日日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 	127 5 . 発行年 2023年
 1.4百日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 	・ビュ 127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁
 T. 省百日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 L Phys. Chem. C 	 ・ビュー127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5082-5090
 Yaladi Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 	 ・ビー127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990
 T. 4百日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi,Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 	・ビ 127 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 5982-5990
 A a b d Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 	・ビュ 127 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 5982-5990
 1.4日日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 	 ・ご 127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無
 1.1日日日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acc.incc. 2c08529 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無
 1.1 日日日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi,Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有
 1.1 日日日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 	 ・ビュ 127 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有
 1.4目日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス 	 ・ 2 127 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著
 1.1日日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著
 T. 4 a b l Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 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 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 -
 1.4目白 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 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 	・ビュ 127 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 -
 1. 省音口 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2. 論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 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 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 -
 1.省日口 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス 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 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 	127 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 125
 1. 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125
 1. 音音口 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2. 論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス 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 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2. 論文標題 	 ・ビュ 127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125
 1.1 音音口 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス オープンアクセス 1.著者名 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2.論文標題 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年
 1.1 著音口 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス オープンアクセス 1.著者名 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2.論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年
 1.1番目口 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス オープンアクセス オープンアクセスctはない、又はオープンアクセスが困難 1.著者名 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2.論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年
 1. 1 きょうし Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2. 論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス オープンアクセス オープンアクセスが困難 1. 著者名 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2. 論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 3. 雑誌名 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁
 1.1 日日口 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2. 論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス オープンアクセス オープンアクセスにはない、又はオープンアクセスが困難 1. 著者名 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2. 論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 3. 雑誌名 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁
 1.4日日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス オープンアクセス オープンアクセスclassing 1.著者名 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2.論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁 22154-22162
 1.1 1.1 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2. 論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス 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 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2. 論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁 22154-22162
 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁 22154-22162
 1.1 1.1 1.1 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2. 論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 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 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2. 論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁 22154-22162 李詩の有無
 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1 1.1	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁 22154-22162 査読の有無 22154-22162 査読の有無 2
 1.1 1.1 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2.論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス 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 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2.論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 3.雑誌名 J. Phys. Chem. C 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁 22154-22162 査読の有無 6.最初と最後の頁 22154-22162 査読の有無 有
 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1. 1	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁 22154-22162 査読の有無 方 査読の有無 方
 1.1 日日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2. 論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス オープンアクセス オープンアクセスの 1. 著者名 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2. 論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 1. 著者名 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2. 論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c03322 オープンアクセス	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁 22154-22162 査読の有無 6.最初と最後の頁 22154-22162 査読の有無 有 国際共著
 1.1 日日 Balois-Oguchi Maria Vanessa, Hayazawa Norihiko, Yasuda Satoshi, Ikeda Katsuyoshi, Nguyen Tien Quang, Escano Mary Clare, TanakaTakuo 2. 論文標題 Probing Strain and Doping along a Graphene Wrinkle Using Tip-Enhanced Raman Spectroscopy 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c08529 オープンアクセス 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. 著名名 Yasuda Satoshi, Tamura Kazuhisa, Kato Masaru, Asaoka Hidehito Yagi Ichizo 125 2. 論文標題 Electrochemically Driven Specific Alkaline Metal Cation Adsorption on a Graphene Interface 3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C 	127 5.発行年 2023年 6.最初と最後の頁 5982-5990 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 125 5.発行年 2021年 6.最初と最後の頁 22154-22162 査読の有無 7 査読の有無 7 百際共著

1.著者名 保田 諭	4.巻 ⁸⁹
2.論文標題	5 . 発行年
グラフェンの選択的プロトン透過能を利用した水素貯蔵電極材料の創製	2021年
3. 雑誌名	6.最初と最後の頁
電気化学	256-261
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.5796/denkikagaku.21-FE0023	無
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
YASUDA Satoshi、DINO Wilson Agerico、FUKUTANI Katsuyuki	₆₆
2.論文標題	5 . 発行年
グラフェンを介したヒドロンの量子トンネリングによる水素同位体分離	2023年
3.雑誌名	6 . 最初と最後の頁
Vacuum and Surface Science	514~519
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1380/vss.66.514	無
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	4.巻
YASUDA Satoshi、DINO Wilson Agerico、FUKUTANI Katsuyuki	¹³
2.論文標題	5 . 発行年
固体高分子形電気化学デバイスと質量ガス分析法を組み合わせたグラフェンの水素同位体分離能評価	2023年
3.雑誌名	6 . 最初と最後の頁
Isotope News	13~16
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	査読の有無
なし	無
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
YASUDA Satoshi	75
2.論文標題	5 . 発行年
グラフェンを用いた量子トンネル効果による水素同位体分離技術	2024年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
表面技術	131 ~ 135
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
なし	無
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	-

〔学会発表〕 計7件(うち招待講演 1件/うち国際学会 0件)

1.発表者名

Yasuda Satoshi, Matsushima Hisayoshi, Terasawa Tomo-o, Yano Masahiro, Asaoka Hidehito, Gueriba Jessiel Siaron, Dino Wilson Agerico, Fukutani Katsuyuki

2.発表標題

Hydrogen Isotope Separation by Tunneling Effect used Graphene-based Heterogeneous Electrocatalysts in Electrochemical Hydrogen Pumping

3.学会等名

The 22nd International Vacuum Congress IVC-22

4.発表年

2022年

1 . 発表者名 保田 諭,松島永佳,矢野雅大,寺澤知潮,朝岡秀人,J.S.Gueriba,W.A.Dino,福谷克之

2.発表標題

グラフェンの量子トンネル効果による水素同位体分離

3.学会等名第70回 応用物理学会 春季学術講演会

4.発表年 2023年

1.発表者名

保田 諭,松島永佳,矢野雅大,寺澤知潮,朝岡秀人,J.S.Gueriba,W.A.Dino,福谷克之

2.発表標題

単層グラフェンを用いた量子トンネル効果による水素同位体分離

3.学会等名

学術変革領域研究(B) 表面水素工学「スピルオーバー水素の活用と量子トンネル効果の検証」

4 . 発表年 2023年

1. 発表者名

保田諭、松島永佳、朝岡秀人、福谷克之

2.発表標題

固体高分子形電気化学セルを用いた水素同位体ガス分離の研究

3 . 学会等名

第4回ハイドロジェノミクス研究会

4 . 発表年 2021年 1.発表者名 保田諭、松島永佳、朝岡秀人、福谷克之

2.発表標題

水素ポンピング法によるグラフェンー金属ヘテロ電極を用いた水素同位体ガスの分離

3.学会等名第82回 応用物理学会 秋季学術講演会

4 . 発表年

2021年

1.発表者名

保田諭、松島永佳、矢野雅大、寺澤知潮、 朝岡秀人、J. S. Gueriba、 W. A. Dino、福谷克之

2.発表標題

グラフェン パラジウム電極の量子トンネル効果による水素同位体分離能の発現

3 . 学会等名

電気化学会第89回大会

4.発表年 2022年

1.発表者名 保田 諭

2.発表標題

グラフェンを介した水素同位体イオンの量子トンネル効果と水素同位体分離技術への応用

3 . 学会等名

ニューダイヤモンドフォーラム 2023年度第1回研究会(招待講演)

4 . 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計0件

〔取得〕 計2件

産業財産権の名称	発明者	権利者
水素同位体濃縮装置	保田諭、朝岡秀人、	同左
	松島 永佳	
産業財産権の種類、番号	取得年	国内・外国の別
特許、2022-139472	2022年	国内
産業財産権の名称	発明者	権利者
水素同位体濃縮装置	保田諭、朝岡秀人、	同左
	松島 永佳	
産業財産権の種類、番号	取得年	国内・外国の別
特許、2022-139473	2022年	国内

〔その他〕

2022/08/31 プレスリリース 原子一個の厚みのカーボン膜で水素と重水素を分ける https://www.jaea.go.jp/02/press2022/p22083101/

2023/03/13 応用物理学会春季学術講演会 注目講演プレスリリース 原子一個分の厚さの「グラフェン」を活用し、重水素の新たな精製技術を実証 https://www.jsap.or.jp/docs/pressrelease/JSAP-2023spring-chumoku-09.pdf

2023/06/01 新技術説明会(オンライン、口頭発表) グラフェンを活用した水素・重水素の新規精製装置」

2024/02/07 東海村新産業創出セミナー(ハイブリッド,口頭発表) 「水素社会に向けたJAEAの挑戦 水素、そして重水素が創る新しい未来 」

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
研究分担者	福谷 克之 (Fukutani Katsuyuki)	東京大学・生産技術研究所・教授	
	(10228900)	(12601)	
研究分担者	矢野 雅大 (Yano Masahiro)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究 部門 原子力科学研究所 先端基礎研究センター・研究職	
	(30783790)	(82110)	

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