

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 24 日現在

機関番号：14401

研究種目：学術変革領域研究(B)

研究期間：2021～2023

課題番号：21H05097

研究課題名（和文）表面水素工学の学理構築と活用に関する研究総括

研究課題名（英文）Surface Hydrogen Engineering: Utilization of Spillover Hydrogen and Verification of Quantum Tunneling Effect

研究代表者

森 浩亮 (Mori, Kohsuke)

大阪大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：90423087

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 1,200,000円

研究成果の概要（和文）：本領域では、スピルオーバーにより生成した活性水素種を使いこなすための制御因子を正しく理解し、またその画期的な活用法を提案することを目的とした。さらに、ポテンシャル障壁を透過して化学反応が進行する『量子トンネル効果』の関与を検証し、従来の速度論的・熱力学的概念を覆す新たな反応制御のパラダイムとして利用するための学理（表面水素工学）構築を目指した。

目的達成のため、材料化学、触媒化学、電気化学、表面科学、理論計算分野を牽引する次世代が、新材料合成、新機能発現、新原理の創出をターゲットに連携した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られた知見は全くの未知であり学術的価値は極めて高く、環境、エネルギーを指向した新しい魅力ある研究分野を創成できる。また、水素スピルオーバーの利用による新しい材料の開発は、既存プロセスの高効率化・省エネ化・低コスト化を実現する可能性を秘め、先進的なマテリアルサイエンス分野へも多大な波及効果をもたらす。さらに、基礎研究のレベルを各段に押し上げる効果が表れるだけでなく、近い将来実現される水素社会のさらにその先を見据えた次世代水素社会のキーテクノロジーとなる。すなわち水素スピルオーバー技術を基盤に、いかに新たなイノベーションを創出するかに関して、重要な指針と共通認識を提供する。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this project is to understand the controlling factors for making full use of active hydrogen species generated by spillover, and to propose innovative ways to utilize them. Furthermore, we verified the involvement of "quantum tunneling effect" in which chemical reactions proceed through potential barriers, and established a theory (surface hydrogen engineering).

To achieve this goal, the next generation of leaders in the fields of materials chemistry, catalytic chemistry, electrochemistry, surface science, and theoretical calculations collaborated to target the synthesis of new materials, the expression of new functions, and the creation of new principles.

研究分野：触媒科学

キーワード：スピルオーバー 水素拡散 特殊合金ナノ粒子 量子トンネル効果

1. 研究開始当初の背景

1964年の観測以来、スピルオーバーは多くの科学者の関心を集め、その機構解明だけでなく、新規水素化法としての利用が研究された。しかしながら、次第に研究が下火になった。その最も大きな要因は、多くの研究が触媒化学を専門とする研究者のみによってなされ、応用が限定されていたためである。昨今、水素社会構築のための技術が期待されている。そのなかで、触媒分野はもとより、水素燃料電池、水素貯蔵材料分野においても、水素スピルオーバーが関与していると思われる技術が散見されるようになりその重要性が再認識され始めている。しかしながら現状体系的な研究はなされておらず、国内外で画期的なムーブメントは未だ起こっていない。

2. 研究の目的

そこで本領域では、高速に固体表面を移動する高活性なスピルオーバー水素を使いこなすための学理構築と、革新的応用分野の開拓をターゲットにする。さらに『量子トンネル効果』という新たなキーワードを加味し、その関連性を精査する。本領域は、『水素スピルオーバー』を単なる現象論として片付けるのではなく、材料化学、触媒化学、電気化学、表面科学、理論計算を専門とする研究者が多角的に問題を抽出、他分野へフィードバックし、その制御因子の解明や、応用範囲の拡大を狙い、世界に先駆け新たな学術的知見を蓄積する。

3. 研究の方法

本研究の大きな達成課題は、『革新的応用分野の提案』、『制御因子解明・学理構築』、『量子トンネル効果の寄与を検証』の3点である。それぞれの課題に対し、材料化学、触媒化学、電気化学、理論計算、表面科学から独自の手法で多角的にアプローチし、新材料合成、新機能発現、新原理の創出を目指す。

A01班(材料化学)では、還元力の強いスピルオーバー水素を駆動力とし、触媒材料として未開拓な特殊合金ナノ粒子合成技術へと拡張する。一方で、スピルオーバーの支配因子を系統的に制御した試料を調製し、その速度を *in situ* FT-IR を用いた H/D 交換反応において定性的に評価することで、最重要な因子を実験的に導き出す。

A02班(触媒化学)では、固体材料・有機分子・金属錯体を触媒活性点として精密に制御・集積させ、水素スピルオーバー現象の特長を最大限引き出す。具体的には、i) 「基質捕捉分子」を導入による高選択的官能基変換、ii) 不安定中間体の生成抑制による高選択的連続反応、および iii) 水素の逆スピルオーバー現象による不活性な C-H 結合の活性化、である。また、水素の電子状態と反応性、選択性の相関を系統的に検証し、触媒的水素化反応における新たな指導原理を示す。

A03班(電気化学)では、固体表面上のスピルオーバー拡散が、プロトン/電子(H^+/e^-)、またはヒドリド/電子(H^-/e^-)の両極性拡散であるという仮説を検証して新たな学理を提案する。この結果を基に、混合伝導性を示す材料を新規に合成し、スピルオーバー長の増加を試みる。また、新たな利用法として、イミド系ポリマー電解質を用いた中温作動セルのカソードに適用し、水素スピルオーバーによる有効反応場を飛躍的に増大させ活性の向上を試みる。

A04班(表面科学)では、水素様素粒子であるミュオンをプローブとする『触媒反応オペランドミュオンスピン回転・緩和・共鳴法(μ SR法)』を新規開発し、表面科学的手法(走査

トンネル顕微鏡や光電子分光法など) と組み合わせることで水素スピルオーバーのダイナミクスや電子状態変化を原子レベルで理解する。超高真空から大気圧まで動作する in-situ 測定を独自に開発することで、圧力ギャップの課題を克服し、実触媒の活性相の解明や反応機構を理解する。

A05 班(理論化学)では、スピルオーバーメカニズムの理論的・系統的理解を独自に進め、さらに実験班に対し理論的裏付けの提供、あるいは理論的な提言を行う役割を担う。第一に、電荷密度の等密度面の凹凸をもとに、H 拡散を自動判定する手法を構築する。また、複数の異種界面(金属-金属、金属-酸化物、酸化物-酸化物、等)の組み合わせに対し、網羅的に H スピルオーバーの活性化エネルギーを求め、異種界面 H スピルオーバーの制御因子を決定する。

4. 研究成果

A01 班(材料化学): 御因子の解明

では、酸化還元レドックス機構に基づきスピルオーバーが進行する金属酸化物を用いて討したところ、TiO₂、CeO₂では表面のスピルオーバーが優先的に起こるのにして、WO₃では内部のスピルオーバーが優先的に起こることがわかった。また、酸化グラフェン(GO)において有利な水素スピルオーバー経路を H-D 交換反応ならびに理論計算を用いて系統的に評価した。

GO を空気焼成することで基底面にエーテル基を含む炭素欠陥が豊富に生成し、水素が容易に拡散可

能になることがわかった。特特殊合金ナノ粒子合成への応用では、還元性担体である CeO₂ 上での水素スピルオーバーを利用することで還元電位の異なる Co²⁺、Ni²⁺、Cu²⁺、Zn²⁺、Pd²⁺ イオンを同時還元し、ハイエントロピー合金(HEA)ナノ粒子を合成した。CeO₂ 担体の形態制御に基づく露出結晶面制御により水素スピルオーバー特性が変化し、還元性の高い(110)面を優先的に露出したロッド CeO₂ 上では 1 nm 以下の HEA サブナノクラスターが形成した。NO 還元反応にて CeO₂ ロッド上の HEA サブナノクラスターは最も高い活性を示し、金属 Pd ナノ粒子触媒よりも飛躍的に活性が向上した。さらにこのサブナノクラスターは NO/H₂ 流通下で 金属 Pd ナノ粒子とは異なる特異な酸化還元応答性に伴う可逆的な構造変化を示すことを見出した(図 1)。

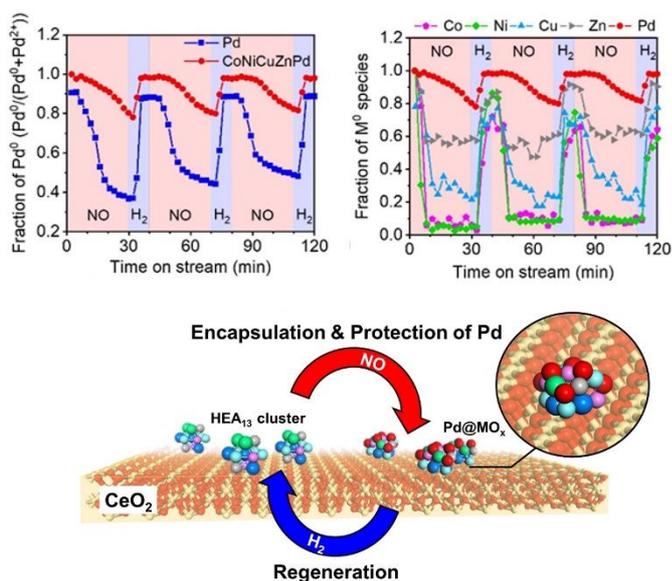


図 1

A02 班(触媒化学): 固体酸触媒であるゼオライトの外表面に Pd ナノ粒子を固定した触媒を開発し、酸点と Pd 粒子間の水素移動を活用することで、この触媒がアルカンを直接用いる芳香族アルキル化反応に活性な触媒となることを見出した。これまでの研究で異なる触媒粒子間での水素スピルオーバーによって触媒反応の速度が向上することが明らかになっていたが、同一触媒粒子に二つの活性点を導入することで水素の移動距離が短縮され、反応効率がさらに向上することが明らかになった。さらに、ゼオライト中での原子状水素の安定性を領域内共同研究による μ SR 測定で明らかにし、合成洗剤などの前駆体となるアルキル

ベンゼンの新たな製造手法として公開した。加えて、分岐アルカンをアルキル化剤とする芳香族アルキル化反応および、固体表面でのスピオーバー水素を活用する Ru-Sn バイメタル粒子によるメタン脱水素カップリング反応系を構築した。

A03 班 (電気化学):プロトン性固体酸化電池 (H^+ -SOC) による H_2O-N_2 共電解は、再生可能電力による空気と水からの純粋なアンモニアを生産できるため、 CO_2 を排出しないグリーンアンモニア製造法として大きな期待が寄せられている。本研究では、よく知られた岩塩型構造の金属窒化物である $VN_{0.9}$ が、水素スピルオーバーが多結晶内部表面にまで及んだ現象と捉えることができる水素粒界拡散性を示し、また水素発生反応 (HER) に対する低い触媒活性を併せ持つため、 H^+ -SOC アンモニア合成の有効な電極材料であることをつきとめた(図2)。プロトン伝導性 $BaZr_{0.4}Ce_{0.4}Y_{0.1}Yb_{0.1}O_{3-\delta}$ (BZCYYb4411) 電解質上に $VN_{0.9}$ 緻密薄膜カソード ($x = 0.9$ および 1.1) をスパッタ堆積することによってモデルセルを構築した。電気化学水素ポンピングの解析により、 $VN_{0.9}$ カソードは表面での HER を効果的に遅抑制する一方で、水素イオンの粒界拡散による水素透過性をもつことがわかった。したがって、Ru 表面層を担持した $VN_{0.9}$ カソードを用いたセルにより、 H_2O-N_2 共電解アンモニア合成のファラデー効率 12%、また生成速度 $3.8 \times 10^{-9} \text{ mol cm}^{-2}$ を達成した。これらの値は、従来の金属カソードを使用した H^+ -SOC 共電解よりも2桁高かった。電気化学測定と MASS 分光法を組み合わせることで、Ru 担持 $VN_{0.9}$ カソードにおけるアンモニア生成反応の律速過程は、アンモニア生成物の脱離過程であることがわかった。従って表面化学吸着した NH_3 の脱離を促進し触媒の再活性化を行うために、開回路電圧で定期的に休止しながら、50 時間にわたってアンモニア電解合成を行った。その結果平均速度 $2.1 \times 10^{-9} \text{ mol cm}^{-2}$ での連続的なアンモニア生成が起こり、よってこの電極は耐久性も十分兼ね備えているといえる。

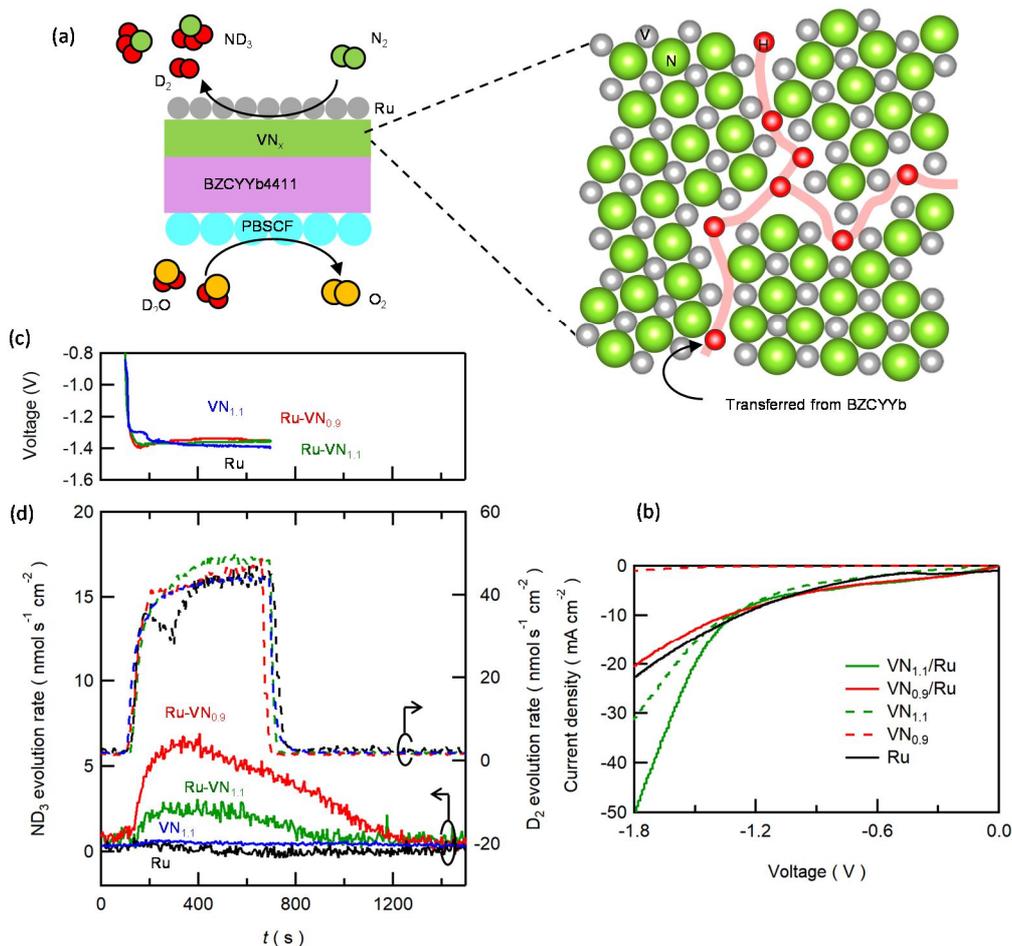


図 2

A04 班 (表面科学): 素粒子であるミュオンをプローブとして用いたミュオンスピン回転 (μ^+ SR) 法によりスピルオーバー水素の電荷状態や吸着サイトを明らかとした。具体的には、以下の3点を明らかとした。

- 1、 本領域の本倉らの開発したベンゼンの直接アルキル化反応に有効な Pd/H-ZSM-5 触媒上で触媒条件で安定な水素の電荷状態を水素の同位体であるミュオンを用いて検討し、反応の中間体として考えられる原子状水素が H-ZSM-5 上で反応に十分な寿命で存在することを見出した。
- 2、 本領域の青木らの開発した電池材料であるプロトン/ヒドリド伝導体 $\text{BaZr}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{O}_{2.5}(\text{OH})_{0.5}$ (BZI) と $\text{BaZr}_{0.5}\text{In}_{0.5}\text{O}_{2.25}\text{H}_{0.5}$ (H-BZI) の μ^+ SR 測定を行った。H-BZI の μ^+ SR スペクトルの温度依存性からプロトンからヒドリドへの電荷移動エネルギー障壁を明らかとした。BZI の μ^+ SR 測定の結果を併せて、H-BZI 内部の酸素欠陥でのプロトン-ヒドリド変換過程をプローブであるミュオンにより in-situ 観測できた。
- 3、 本領域の森らの開発した新規水素吸蔵触媒である Pt/Al-MgO の μ^+ SR 測定を行った。Pt/Al-MgO と比較試料の Pt/MgO の μ^+ SR スペクトルに若干の差異があることを見出し、これが Al-MgO 特有の水素種を示すことを示唆した。DFT 計算を用いて詳細を検討する予定である。

μ^+ SR 法は比較的新しい測定手法であり、主に物理の分野で用いられてきた手法で化学への応用は極めて少ない。今回、本領域で、より複雑な条件での測定となる触媒の領域へ μ^+ SR 法を応用し、実際触媒反応に直接かかわる電荷や構造についての情報を得られたことは意義深い。

A05 班 (理論化学): 不均一系触媒反応におけるスピルオーバーのような表面現象の動力学を解析する際には、表面原子の拡散経路とその活性化エネルギーを同定することが重要である。本研究では、既に同定された妥当な吸着サイトを結ぶ拡散経路を導出するために、ポロノイテッセレーションを用いた幾何学的アルゴリズムを開発した。1つの妥当な吸着サイトのポロノイセルが Voronoi ridge を共有し、2つの吸着サイトを結ぶ線分が対応するポロノイセル境界と交差するとき、拡散経路の存在が推定される。このアルゴリズムをルチル型 $\text{TiO}_2(110)$ 表面と再構成 $\text{CeO}_2(001)$ 表面に適用した。得られた経路に対して Nudged elastic band 計算を行った結果、水素のスピルオーバーに必要な活性化エネルギーは TiO_2 で 1.2eV、 CeO_2 で 0.6eV であった(図3)。このアルゴリズムは、原理的にはどのようなタイプの表面や吸着原子種にも適用可能である。このアルゴリズムは、単純な表面から複雑な表面まで、水素スピルオーバーやその他の状況における表面拡散の妥当性を研究する際に、目視することなく合理的な表面拡散経路を系統的に求めることができる。その他、A01 班と共同し、HEA 活性評価、グラフェン上の H 拡散制御も検討した。

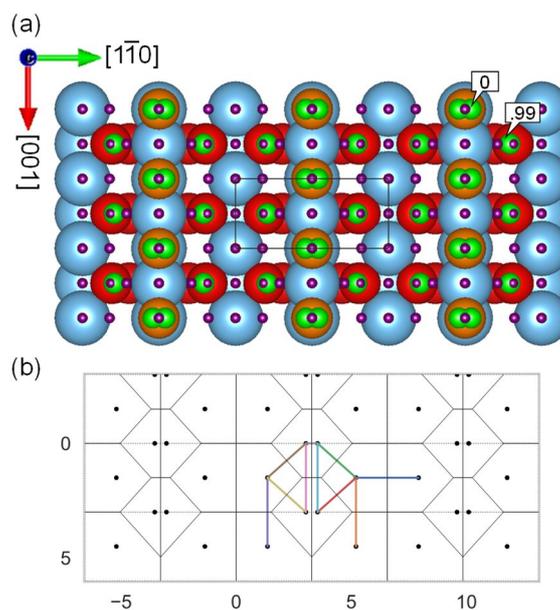


図 3

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計26件（うち査読付論文 25件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Kuramochi Nanako, Yoshida-Hirahara Miru, Ogihara Hitoshi, Kurokawa Hideki	4. 巻 7
2. 論文標題 Proton exchange membrane electrolysis of methanol for simultaneously synthesizing formaldehyde and hydrogen	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Sustainable Energy & Fuels	6. 最初と最後の頁 778 ~ 785
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2SE01472F	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 Abdelnasser Shady, Hakamata Takumi, Ogihara Hitoshi, Kurokawa Hideki	4. 巻 928
2. 論文標題 Electrochemical oxidation of 1-propanol through proton exchange membrane electrolysis	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Electroanalytical Chemistry	6. 最初と最後の頁 117009 ~ 117009
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jelechem.2022.117009	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 Mori Kohsuke, Hata Hiroto, Yamashita Hiromi	4. 巻 320
2. 論文標題 Interplay of Pd ensemble sites induced by GaO modification in boosting CO ₂ hydrogenation to formic acid	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Catalysis B: Environmental	6. 最初と最後の頁 122022 ~ 122022
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apcatb.2022.122022	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 Mori Kohsuke, Fujita Tatsuya, Yamashita Hiromi	4. 巻 1
2. 論文標題 Boosting the activity of PdAg alloy nanoparticles during H ₂ production from formic acid induced by CrO _x as an inorganic interface modifier	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 EES Catalysis	6. 最初と最後の頁 84 ~ 93
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d2ey00049k	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 Hinuma Yoyo, Mori Kohsuke	4. 巻 3
2. 論文標題 CO2 adsorption on the (111) surface of fcc-structure high entropy alloys	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials: Methods	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/27660400.2022.2161807	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 Hinuma Yoyo	4. 巻 2
2. 論文標題 Systematic derivation of maximally orthogonalized supercells	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials: Methods	6. 最初と最後の頁 266 ~ 279
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/27660400.2022.2093094	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 Hinuma Yoyo	4. 巻 2
2. 論文標題 Modeling interfaces of fluorite-structure compounds using slab charge distribution	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials: Methods	6. 最初と最後の頁 392 ~ 401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/27660400.2022.2126739	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 Tang Chunmei, Wang Ning, Zhu Ruijie, Kitano Sho, Habazaki Hiroki, Aoki Yoshitaka	4. 巻 10
2. 論文標題 Design of anode functional layers for protonic solid oxide electrolysis cells	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry A	6. 最初と最後の頁 15719 ~ 15730
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d2ta02760g	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 Toriumi Hajime, Jeong SeongWoo, Kitano Sho, Habazaki Hiroki, Aoki Yoshitaka	4. 巻 7
2. 論文標題 Enhanced Performance of Protonic Solid Oxide Steam Electrolysis Cell of Zr-Rich Side BaZr _{0.6} Ce _{0.2} Y _{0.2} O ₃ Electrolyte with an Anode Functional Layer	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 9944 ~ 9950
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.2c00569	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 Shun Kazuki, Mori Kohsuke, Masuda Shinya, Hashimoto Naoki, Hinuma Yoyo, Kobayashi Hisayoshi, Yamashita Hiromi	4. 巻 13
2. 論文標題 Revealing hydrogen spillover pathways in reducible metal oxides	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 8137 ~ 8147
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d2sc00871h	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 Takabatake Moe, Motokura Ken	4. 巻 3
2. 論文標題 Montmorillonite-based heterogeneous catalysts for efficient organic reactions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nano Express	6. 最初と最後の頁 014004 ~ 014004
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2632-959X/ac5ac3	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 Hinuma Yoyo, Mori Kohsuke	4. 巻 63
2. 論文標題 Geometrical Determination of Surface Atom Diffusion Paths	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 720 ~ 725
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2320/matertrans.MT-M2021225	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 Kohsuke Mori, Naoki Hashimoto, Naoto Kamiuchi, Hideto Yoshida, Hisayoshi Kobayashi, Hiromi Yamashita	4. 巻 12
2. 論文標題 Hydrogen Spillover-driven Synthesis of High Entropy Alloy Nanoparticles as a Robust Catalyst for CO ₂ Hydrogenation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 3884-3893
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-021-24228-z	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 Kadono Ryosuke, Hiraishi Masatoshi, Okabe Hirotsuka, Koda Akihiro, U Ito Takashi	4. 巻 35
2. 論文標題 Local electronic structure of interstitial hydrogen in MgH ₂ inferred from muon study	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 285503 ~ 285503
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648x/acccc7	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 Hashimoto Naoki, Mori Kohsuke, Matsuzaki Shuichiro, Iwama Kazuki, Kitaura Ryota, Kamiuchi Naoto, Yoshida Hideto, Yamashita Hiromi	4. 巻 3
2. 論文標題 Sub-nanometric High-Entropy Alloy Cluster: Hydrogen Spillover Driven Synthesis on CeO ₂ and Structural Reversibility	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 JACS Au	6. 最初と最後の頁 2131 ~ 2143
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacsau.3c00210	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 Abdelnasser Shady, Matsushita Hibiki, Kurokawa Hideki, Ogihara Hitoshi	4. 巻 52
2. 論文標題 Effect of Nafion Ionomer on Proton Exchange Membrane Electrolysis of Benzyl Alcohol	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 560 ~ 563
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.230178	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 Motokura Ken, Mizuno Ayaka, Hasegawa Shingo, Nambo Masayuki, Takabatake Moe, Suzuki Kenta, Manaka Yuichi, Uemura Yohei, Tsubaki Shuntaro, Chun Wang-Jae	4. 巻 127
2. 論文標題 In Situ Formation of RuSn Bimetallic Particles for Non-Oxidative Coupling of Methane	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 15185 ~ 15194
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.3c03078	査読の有無 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 Motokura Ken, Nakamura Yukina, Takabatake Moe, Suzuki Kenta, Hasegawa Shingo	4. 巻 425
2. 論文標題 Direct alkylation of benzene with branched alkanes using solid acids: Unexpected product selectivity based on the tertiary carbon position	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Catalysis Today	6. 最初と最後の頁 114363 ~ 114363
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cattod.2023.114363	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 Misaki Satoshi, Ariga-Miwa Hiroko, Ito Takashi U., Yoshida Takefumi, Hasegawa Shingo, Nakamura Yukina, Tokutake Shunta, Takabatake Moe, Shimomura Koichiro, Chun Wang-Jae, Manaka Yuichi, Motokura Ken	4. 巻 13
2. 論文標題 Pd Nanoparticles on the Outer Surface of Microporous Aluminosilicates for the Direct Alkylation of Benzenes using Alkanes	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 12281 ~ 12287
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.3c02309	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 Yasumura Shunsaku, Kamachi Takashi, Toyao Takashi, Shimizu Ken-ichi, Hinuma Yoyo	4. 巻 8
2. 論文標題 Prediction of Stable Surfaces of Metal Oxides through the Unsaturated Coordination Index	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 29779 ~ 29788
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.3c04253	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 Hinuma Yoyo, Yasumura Shunsaku, Toyao Takashi, Kamachi Takashi, Shimizu Ken-ichi	4. 巻 3
2. 論文標題 Two descriptors avoiding explicit bond consideration on relative surface energies of various terminations in a crystal	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials: Methods	6. 最初と最後の頁 2278323
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/27660400.2023.2278323	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 Hashimoto Naoki, Mori Kohsuke, Yamashita Hiromi	4. 巻 127
2. 論文標題 In Situ Investigation on the Formation Mechanism of High-Entropy Alloy Nanoparticles Induced by Hydrogen Spillover	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 20786 ~ 20793
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.3c05375	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 Ito T. U., Higemoto W., Shimomura K.	4. 巻 108
2. 論文標題 Understanding muon diffusion in perovskite oxides below room temperature based on harmonic transition state theory	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 224301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.108.224301	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 Shun Kazuki, Matsukawa Satoshi, Mori Kohsuke, Yamashita Hiromi	4. 巻 20
2. 論文標題 Specific Hydrogen Spillover Pathways Generated on Graphene Oxide Enabling the Formation of Non Equilibrium Alloy Nanoparticles	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Small	6. 最初と最後の頁 2306765
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smll.202306765	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 Motokura Ken	4. 巻 2024
2. 論文標題 Interparticle Hydrogen Spillover in Enhanced Catalytic Reactions	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Chemistry An Asian Journal	6. 最初と最後の頁 e202301083
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/asia.202301083	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 Kamitani Naoki, Jeong SeongWoo, Habazaki Hiroki, Aoki Yoshitaka	4. 巻 12
2. 論文標題 Vanadium Nitride Is an Efficient Hydrogen-Diffusive Cathode for Green Ammonia Electrochemical Synthesis by Protonic Solid Oxide Electrolysis Cells	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 ACS Sustainable Chemistry and Engineering	6. 最初と最後の頁 2100 ~ 2109
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssuschemeng.3c07736	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24件 (うち招待講演 15件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 荻原 仁志
2. 発表標題 アルコールを高付加価値物質と水素に転換する電解プロセスの構築
3. 学会等名 水素エネルギー協会 (HESS) 170回定例研究会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森 浩亮
2. 発表標題 次世代水素技術としてのスピルオーバー水素を活用した多元系合金ナノ粒子の合成
3. 学会等名 水素エネルギー協会 (HESS) 170回定例研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 神内直人
2. 発表標題 環境制御型透過電子顕微鏡による触媒ナノ構造のその場観察
3. 学会等名 2022年度超高分解能顕微鏡法分科会研究討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森 浩亮
2. 発表標題 カーボンニュートラル社会構築を目指した次世代触媒開発のための理論計算の活用
3. 学会等名 令和4年度触媒学会コンピューターの利用研究会セミナー
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森浩亮
2. 発表標題 カーボンニュートラル社会構築を目指した金属有機ハイブリッド触媒の開発
3. 学会等名 産研 次世代材料セミナー < 金属有機融合材料に関する最新研究紹介と社会実装に向けた将来展望 >
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森浩亮
2. 発表標題 次世代合金ナノ粒子触媒開発のための理論計算の活用
3. 学会等名 Daikin Webinar】カーボンニュートラル社会へ向けたCO2分解・回収・再利用 研究事例のご紹介
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kohsuke Mori
2. 発表標題 Nanocatalyst Engineering for CO ₂ Hydrogenation to Formic Acid as a Promising Hydrogen Storage Material
3. 学会等名 ICEC2022
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kohsuke Mori
2. 発表標題 Controlled Release of Hydrogen Isotope Compounds in the Heterogeneously-catalyzed Formic Acid Dehydrogenation
3. 学会等名 Taipei International Conference on Catalysis (TICC-2022)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 本倉健
2. 発表標題 Development of Supported Catalyst Systems for Highly Efficient/Challenging Organic Reactions
3. 学会等名 International Conference on State-of-the Art Catalysis and Surface/Interface Science for Sustainable Society - 11th Iwasawa Conference
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 本倉健
2. 発表標題 固体酸触媒と金属錯体・金属ナノ粒子の協奏効果による反応加速
3. 学会等名 令和3年度 触媒学会東日本支部講演会（第31回 規則性多孔体セミナー） 固体酸触媒能の究明に向けて
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kohsuke Mori
2. 発表標題 Nanocatalyst Engineering for Formic acid/CO ₂ -mediated Chemical Hydrogen Delivery/Storage
3. 学会等名 1st Japan-China Symposium on Catalysis (1stJCSC) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kohsuke Mori
2. 発表標題 Nanocatalyst Engineering for CO ₂ Hydrogenation to Formic Acid as a Promising Hydrogen Storage Material
3. 学会等名 17th Japan-Taiwan Joint Symposium on Catalysis (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ken Motokura
2. 発表標題 Development of Supported Catalyst Systems for Highly Efficient/Challenging Organic Reactions
3. 学会等名 International Conference on State-of-the Art Catalysis and Surface/Interface Science for Sustainable Society - 11th Iwasawa Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 本倉健
2. 発表標題 固体酸触媒と金属錯体・金属ナノ粒子の協奏効果による反応加速
3. 学会等名 令和3年度 触媒学会東日本支部講演会 (第31回 規則性多孔体セミナー) 固体酸触媒能の究明に向けて (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ken Motokura
2. 発表標題 Synergistic Catalysis of Supported Metal Catalysts for Fine Chemicals Synthesis
3. 学会等名 The 2nd International Electronic Conference on Catalysis Sciences, A Celebration of Catalysts 10th Anniversary (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 本倉健
2. 発表標題 同一固体表面および触媒粒子間での協奏的触媒作用によるファインケミカルズ合成
3. 学会等名 第128回触媒討論会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi U. Ito
2. 発表標題 μ +SR as a Potential Tool for Depth-resolved Detection of Oxygen Vacancies in Perovskite Oxides
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi U. Ito
2. 発表標題 Positive Muons in SrTiO ₃ : Electronic Structure of the Hydrogen-Like Defects and Their Potential Use in Depth-Resolved Detection of Oxygen Vacancies
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 森浩亮
2. 発表標題 水素キャリアとしてのギ酸の利用に向けたナノ構造触媒の開発
3. 学会等名 第12回JACI/GSCシンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森浩亮
2. 発表標題 水素キャリアとしてのギ酸の利用に向けたナノ構造触媒
3. 学会等名 合成樹脂工業協会 第13回環境・リサイクル研究部会講演会, (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takashi U. Ito
2. 発表標題 Nonequilibrium Dynamics of Hydrogen in SrTiO ₃ Simulated with Positive Muons
3. 学会等名 The 73rd JSCC Conference (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森浩亮
2. 発表標題 ギ酸を利用したエネルギー資源革命
3. 学会等名 近畿大学アグリ技術革新研究所 第29回オープンセミナー (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森浩亮
2. 発表標題 次世代水素利用技術としてのスピルオーバー水素を駆動力とした多元系合金ナノ粒子触媒の合成
3. 学会等名 金属学会シンポジウム(カーボンニュートラル・水素社会実現に向けた触媒材料の研究・開発の最新動向) (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 森浩亮
2. 発表標題 メタネーション触媒の新展開
3. 学会等名 第74回アナログ技術トレンドセミナー(HAB研セミナー) (招待講演)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>表面水素工学 http://www.mat.eng.osaka-u.ac.jp/surface-hydrogen-engineering/index.html 表面水素工学 http://www.mat.eng.osaka-u.ac.jp/surface-hydrogen-engineering/achievements.html</p>

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	青木 芳尚 (Aoki Yoshitaka) (50360475)	北海道大学・工学研究院・教授 (10101)	

6. 研究組織（つづき）

	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	日沼 洋陽 (Hinuma Yoyo) (80648238)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・主任研究員 (82626)	
研究分担者	本倉 健 (Motokura Ken) (90444067)	横浜国立大学・大学院工学研究院・教授 (12701)	
研究分担者	三輪 寛子 (Miwa Hiroko) (90570911)	電気通信大学・燃料電池・水素イノベーション研究センター・特任准教授 (12612)	

	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
研究協力者	吉田 秀人 (Yoshida Hideto) (00452425)	大阪大学・産業科学研究所・准教授 (14401)	
研究協力者	荻原 仁志 (Ogihara Hitoshi) (60452009)	埼玉大学・理工学研究科・教授 (12401)	
研究協力者	伊藤 孝 (Ito Takashi) (10455280)	日本原子力研究開発機構・原子力科学研究所・研究副主幹 (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