

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 28 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16H01795

研究課題名(和文)炭素循環コプロダクション型水素製造システムの研究

研究課題名(英文)Functional nanocarbon and hydrogen co-production systems for zero emission industry

研究代表者

本間 格 (HONMA, Itaru)

東北大学・多元物質科学研究所・教授

研究者番号：90181560

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 32,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では水素と有価な機能性ナノ炭素材料を炭化水素原料から同時製造(コプロダクション)することにより炭素資源循環、高付加価値炭素の製造を行い水素の安価量産化を目的としている。アモルファスカーボンの堆積を抑えつつ、グラフェンのみを低温成長させるために、亜臨界水を溶媒に用いた水熱電解合成法を開発した。その結果、常温常圧水中ではアモルファスカーボンのみが堆積したのに対し、300程度の亜臨界水中で酢酸を電気分解することにより、白金表面にグラフェンが合成できることを世界で初めて見出し、新規合成法として電気分解(水熱電解)法の開発に成功した。コプロダクションによりグラフェンと水素の同時生成を実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、高付加価値の炭素素材を水素と同時生産することにより結果的に水素製造のコストダウンを実現するところにシステム工学的に革新性がある。地球温暖化対策のキーテクノロジーである水素は低コスト化と量産化が課題であるが、これをコプロダクションというシステムのなアプローチで解決できれば、工学上の難問に対する素晴らしい解答であり、環境技術としてのイノベーションになることが期待できる。コプロダクションが実現すれば、ゼロエミッション燃料である水素燃料の格段の低コスト化、市場普及するに違いない。持続可能社会に貢献する強力なゼロエミッション技術の創成は、産業経済への広範な波及効果が予想できる。

研究成果の概要(英文)：In this research project, we have developed a novel co-production processes of mono-layer graphene and hydrogen via hydrothermal cathodic reduction under a subcritical water. In the developed process, the hydrothermal subcritical water solution was used to enhance the electrochemical reaction kinetics due to an increased electrolytic dissociation rate of the water and prevent the formation of undesirable amorphous carbon. The hydrothermal electrochemical reaction enabled low-temperature graphene growth on a Pt cathode surface with simultaneous hydrogen production. The conversion of hydrocarbons/basic chemicals to the high-value-added nanocarbons, including graphene, carbon nanotubes, and fullerenes, with valuable hydrogen has high potential economic/environmental benefits.

研究分野：エネルギー材料化学

キーワード：グラフェン 水素製造 コプロダクション 水熱電解 超臨界流体 亜臨界水 ナノカーボン 脱炭素

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19（共通）

### 1. 研究開始当初の背景

水素社会実現の最も大きな課題は水素燃料の経済性が極めて悪いことである。しかしながら、水素製造プロセス、特に電気化学を用いる水蒸気・水電解プロセス技術は、ほぼ完成しているため、高活性な電極触媒開発、低コスト化を図るための白金フリー代替電極材料の探索など、限られた視野の中で既往の研究が進んできた。現状では長い研究の歴史がある単一システムとしての水蒸気・水電解でのブレークスルーは困難であり、特に最大の課題である低コスト化は従来技術では不可能に近い。従って、この困難な課題解決のため、このような背景の中、本研究ではメタン・天然ガス等の在来型化石資源だけでなく、バイオマスなどの再生可能資源も原料に用いて、これらの安価資源を超臨界流体・高温高压流体中の水熱電気化学反応プロセスにて水素と機能性炭素材料の同時生産を行い、高付加価値のクリーン燃料と産業素材のコプロダクションを可能とするプロセスシステムの基礎研究を行う。水素分離型の水熱電気化学反応システムを構築すれば、メタン・天然ガスやバイオマスなど安価で資源偏在性の無いクリーンエネルギー資源から共に高付加価値の水素と機能性ナノ炭素素材を製造できるはずである。

### 2. 研究の目的

本研究では、高付加価値の水素と炭素素材を同時生産することにより結果的に水素製造のコストダウンを実現するところにシステム工学的な革新性を追求することである。地球温暖化対策のキーテクノロジーである水素は低コスト化と量産化が課題であるが、これをコプロダクションというシステムのなアプローチで解決できれば、工学上の難問に対する素晴らしい解答であり、環境技術としてのイノベーションになることが期待できる。本研究で追及するシステムが実現すれば、ゼロエミッション燃料として基幹的エネルギーである水素燃料の格段の低コスト化により市場普及が加速するに違いない。さらに本研究で最終目標に据えるバイオマスから水素の低コスト生産を行う革新的な資源転換技術が確立されれば、脱炭素技術として社会実装はさらに加速するであろう。持続可能社会に貢献する強力なクリーンエネルギー利用の基盤技術の創成は、産業経済への広範な波及効果が予想できる。地球温暖化の抜本的対策は化石燃料から排出される二酸化炭素のゼロエミッション化およびカーボンニュートラル循環の構築であるから、本研究の最終目的とする天然ガス、バイオマス等を原料として、超臨界流体や亜臨界水などの高温高压流体における電気分解により、化石資源からゼロエミッション燃料である水素とグラフェン、カーボンナノチューブ等の機能性炭素材料を同時製造（コプロダクション）するシステムを構築できれば、課題解決の有効な技術オプションを提供できるはずである。その独創的な点は原料炭化水素中の炭素を従来のガス改質の様に二酸化炭素として排出するのではなく、経済的利潤が得られる機能性炭素材料として固定化・循環することである。図1に示したようなトータルシステムとして、社会的課題である水素製造の低コスト化と、水素製造時の二酸化炭素のゼロエミッション化を実現する画期的な炭素循環コプロダクション型水素製造技術の開発を目的とする

炭素循環コプロダクション型水素製造システムの特長

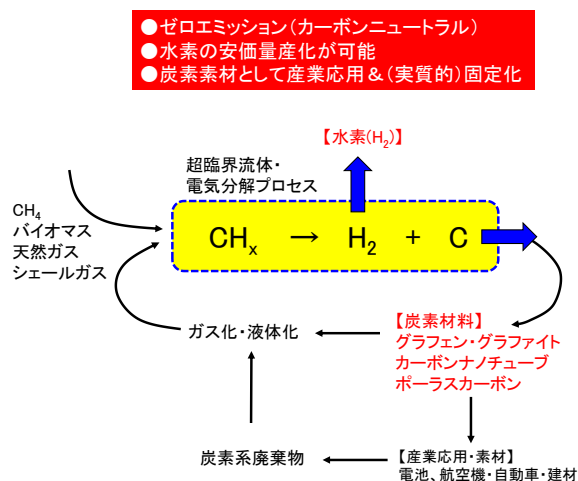


図1 炭素循環コプロダクション型水素製造システムの特長と社会実装

### 3. 研究の方法

我々、エネルギーデバイス化学研究グループにおいて、超臨界流体プロセスを用いた機能性材料の省エネ・量産化システム開発、特に日本の産業競争力向上において最重要な炭素素材の高機能化・低コスト製造を目的とした、超臨界流体中でのグラファイト結晶の直接剥離を利用したグラフェンの量産化技術、また亜臨界流体中での電気化学プロセスによる単原子層グラフェンの電析（メッキ）合成技術などを開発してきた。

特に常温常圧の熱力学的平衡条件から大きくシフトした化学反応が起こる“高温高压流体”（亜臨界水）中での電気化学反応では、炭化水素原料を効率的に水素と炭素に分解することが可能である。これは、高温高压条件においては、水のイオン積が常温常圧と比較し2桁程度向上することで電気分解反応が促進されることに加え、水自身が触媒的な機能を発現することによる。我々は、この電気分解により生成された炭素の電極への堆積を結晶成長学的に制御することで、従来の合成手法では1000℃以上の高温を必要とするグラフェン製造を、300℃の低温条件で実現する、新しい電気化学的なグラフェン製造法を開発することとした。

他方同時に分解生成された水素は、水素分離膜と組み合わせることにより、高压水素として高収率で分離回収することが可能である。これら一連の電気分解反応をコプロダクションシステムとして捉え、結果的に水素製造の低コスト化が実現するシステム構築を目指す。このような水素製造の低コスト化の課題に対して系統的にアプローチしている研究は少ない。在来型化石資源（例えばメタン・天然ガス等）から電解で水素製造を行い、余剰成分の炭素を二酸化炭素として放出するのではなく、グラフェンやカーボンナノチューブなど高付加価値素材として高い経済性を有する炭素材料として同時合成（コプロダクション）することで、クリーンエネルギーの創成と温暖化対策促進、さらには炭素素材を産業応用することにより産業競争力向上に貢献する。

コプロダクション型水素製造システムの構築において、以下の研究開発計画を立案した。

- ① 超臨界流体中での電気化学的脱水素反応プロセス設計
- ② 超臨界流体中での電気化学的グラフェン合成
- ③ バイオマス等再生可能資源の利用検討
- ④ 炭素素材への収率評価
- ⑤ 水素転化率評価
- ⑥ 高温高压水フロー型リアクター設計
- ⑦ 生成された炭素材料の分析

上記項目を明らかにすることにより、本提案のコプロダクションシステムにおける水素製造と炭素素材製造の生産効率を把握し、経済的成立性を定量的に評価する。さらに、水素燃料のコプロダクションシステムの設計指針を確立する

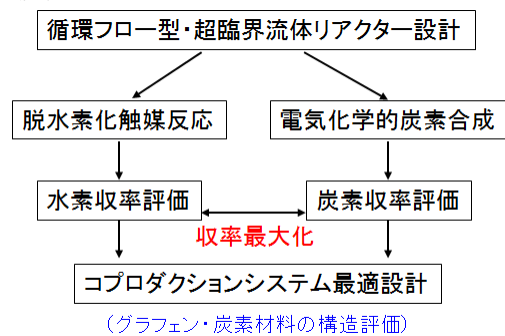


図2 研究計画

### 4. 研究成果

図3に使用した超臨界・亜臨界水熱電解装置と実験条件を示した。電極導入端子付き圧力容器、直流電源で主に構成されている。実際の実験では1%酢酸水溶液を封入し、昇温（300℃）、昇圧（10-12 MPa）した容器中の電極間に3.5 Vの電圧を30分間印加して電解実験を行ったところ、白金陰極表面にグラフェンが堆積したことを確認した。平滑な薄膜グラフェンシート

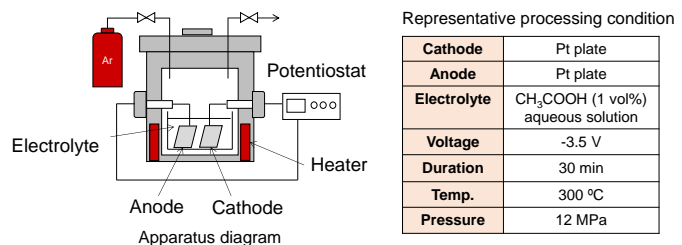
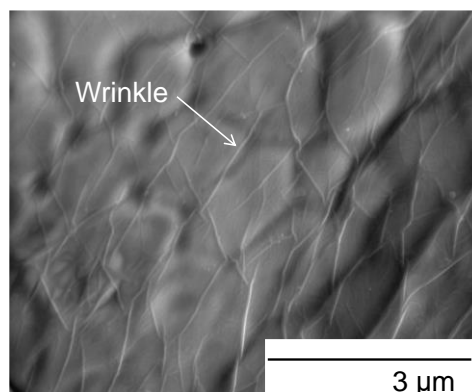


図3 超臨界・亜臨界水熱電解装置と合成条件

が白金電極表面に均一にコーティングされていることが判明した。シートサイズとして数百ミクロン級のグラフェンフィルムがわずかに300℃の低温プロセスで炭化水素原料である酢酸から合成出来たのは世界初の成果である（図4）。更に水熱電解法によるグラフェンの合成メカニ

ズムについて解析し、酢酸以外にも蟻酸、エタノール、メタノールなど水溶性の炭化水素分子からも同様のグラフェン合成が出来ることを明らかにした。このような世界初の合成例である水熱電解によるグラフェンの生成メカニズムを解明するために、室温から亜臨界水である300℃まで合成温度を変えながら製膜し、生成したグラフェンの構造をラマン分光解析で評価した結果を図5に示した。合成温度が200℃くらいまでは広がったGバンドと強いDバンドが観測され、さらに2Dバンドは観測されなかった。これはアモルファス的な結晶性の低いグラフェンが生成していることを示唆している。他方、250℃以上の亜臨界水条件での水熱電解ではシャープなGバンドおよび明瞭な2Dバンドが確認され結晶が高い単原子層に近いグラフェンが製膜していることが判明した。



SEM image of carbon film deposited by hydrothermal electrolysis

図4 製膜したグラフェンのSEM像

他方、グラフェンの製膜中、陰極表面では、酢酸や溶媒の水の電気化学的還元により水素が発生している。すなわち、有機物中の炭素を高付加価値なグラフェンとして固定化しつつ、同時に対極では水素を取り出すという、グラフェン-水素のコプロダクションプロセスが実現していることを示唆している。水素とグラフェンのコプロダクションが実現していると考え、その効率向上の検討やグラフェンが生成する反応プロセス解析を行った。

反応解析を行った結果、電解電流の内、60%が水素製造に使われ、のこりの40%の一部がグラフェン生成に用いられていることが判明した。完全なコプロダクションシステムを構築するためには、基本的に投入した電力エネルギーが酢酸のグラフェンへの転換に用いられ、この転換反応に寄与しなかった電流は全て水素製造に使用されれば投入した電力エネルギーの無駄のない高付加価値化が可能である。この電力エネルギーを太陽光発電などの再生可能エネルギーから得れば、二酸化炭素を放出することなくグラフェンと水素を製造できる。さらに酢酸よりグラフェンや水素の方が高価なので経済的にも成立するプロセスシステムである。原料を酢酸だけでなくバイオマス、バイオエタノール、さらには二酸化炭素まで広げることが出来れば水素コプロダクションしながらの炭素固定化にもなるので理想的な温暖化対策技術としての低炭素化エネルギーシステムが構築できる。今後はこの目標を目指して水熱電解プロセスのシステム研究を展開する。

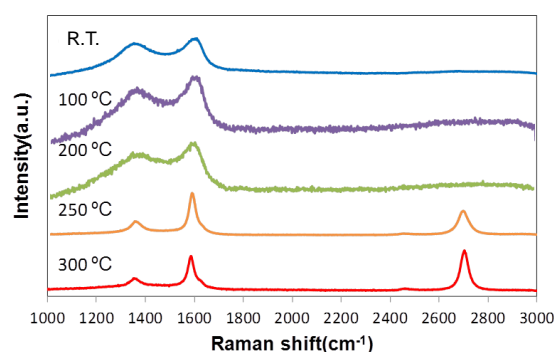


図5 合成温度を室温から300℃まで変えて製膜したグラフェンのラマン分析

将来的に、太陽電池や風力発電等の再生可能電力を利用して、バイオマス資源や天然ガスなどから、クリーンエネルギーである水素と高機能性カーボンであるグラフェンを同時製造できれば、二酸化炭素の固定化や水素エネルギーの低コスト化につながり、サーキュラーエコノミー実現とSDGs達成に大きく貢献することが期待できる。

さらにポストグラフェン材料として注目されている遷移金属ダイカルコゲナイド ナノシートを水熱電解や超臨界流体を用いて合成し水素発生電極触媒に応用出来ることを見出した。超臨界流体を用いてバルク MoSe<sub>2</sub> 結晶から MoSe<sub>2</sub> の単原子層シートまたは多層ナノシートの剥離合成を行い、その構造観察を行ったシート内およびエッジ部に多量の格子欠陥を含んだナノシートが生成していることが判明した。その水素発生の電極特性を評価した結果、過電圧 300mV で水素発生電流密度が 10mA/cm<sup>2</sup>、ターフェル勾配 90mV/decade の活性な電極触媒材料であることが判明した。多くの欠陥を含む遷移金属ダイカルコゲナイド MoS<sub>2</sub>, MoSe<sub>2</sub> ナノシートがレアメタルフリーの高活性水素発生電極材料になることを見出した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計18件（うち査読付論文 18件 / うち国際共著 6件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Quang Duc Truong, Nguyen T. Hung, Yuta Nakayasu, Keiichiro Nayuki, Yo-shikazu Sasaki, Murukanahally Kempaiah Devaraju, Li-Chang Yin, Takaaki Tomai, Riichiro Saito, Itaru Honma	4. 巻 8
2. 論文標題 Inversion Domain Boundary in MoSe2 Layers	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 33391- 33397
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8ra07205a	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 Linh N. Nguyen, Ung Thi Dieu Thuy, Quang Duc Truong, Itaru Honma, Quang Liem Nguyen and Phong Dinh Tran	4. 巻 13
2. 論文標題 Electrodeposited amorphous tungsten-doped cobalt oxide as an efficient catalyst for the oxygen evolution reaction	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chemistry - An Asian Journal	6. 最初と最後の頁 1530- 1534
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/asia.201800401	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 Yuta Nakayasu, Yoji Yasui, Ryosuke Taniki, Kotaro Oizumi, Hiroaki Kobayashi, Naoka Nagamura, Takaaki Tomai and Itaru Honma	4. 巻 6
2. 論文標題 One-pot rapid synthesis of Mo(S,Se)2 nanosheets on graphene for highly efficient hydrogen evolution	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Sustainable Chemistry & Engineering	6. 最初と最後の頁 11502 - 11510
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssuschemeng.8b01614	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 Shoichi Sugata, Noriko Saito, Akio Watanabe, Ken Watanabe, Je-Deok Kim, Kan Kitagawa, Yosuke Suzuki and Itaru Honma	4. 巻 319
2. 論文標題 Quasi-solid-state lithium batteries using bulk-size transparent Li7La3Zr2012 electrolytes	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Solid State Ionics	6. 最初と最後の頁 285-290
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ssi.2018.02.029	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 Sven Stauss and Itaru Honma	4. 巻 91
2. 論文標題 Biocompatible batteries -Materials and chemistry, fabrication, applications, and future prospects	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Bull. Chem. Soc. Jpn. (Accounts & Reviews)	6. 最初と最後の頁 492- 505
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20170325	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 Naoka Nagamura, Ryosuke Taniki, Yuta Kitada, Asuna Masuda, Hiroaki Kobayashi, Nobuto Oka and Itaru Honma	4. 巻 1
2. 論文標題 Electronic states of quinones for organic energy devices: The effect of molecular structure on electrochemical characteristics	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 3084 -3092
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.7b00156	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 Takaaki Tomai, Yoji Yasui, Shinji Watanabe, Yuta Nakayasu, Liwen Sang, Masatomo Sumiya, Takeshi Momose, Itaru Honma	4. 巻 120
2. 論文標題 Fabrication of three-dimensional CuInS <sub>2</sub> solar-cell structure via supercritical fluid processing	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Journal of Supercritical Fluids	6. 最初と最後の頁 448-452
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.supflu.2016.05.026	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 Takaaki Tomai, Shunichi Ishiguro, Naoki Tamura, Yuta Nakayasu, Itaru Honma	4. 巻 33
2. 論文標題 Structure-Based Selective Adsorption of Graphene on a Gel Surface: Toward Improving the Quality of Graphene Nanosheets	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 5406-5411
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.7b00254	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 Quang Duc Truong, Murukanahally Kempaiah Devaraju, Yuta Nakayasu, Naoki Tamura, Yoshikazu Sasaki, Takaaki Tomai, Itaru Honma	4. 巻 2
2. 論文標題 Exfoliated MoS <sub>2</sub> and MoSe <sub>2</sub> nanosheets by supercritical fluid process for hybrid Mg-Li-ion battery	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 2360-2367
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.7b00379	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 Yuta Nakayasu, Takaaki Tomai, Nobuto Oka, Kanako Shojiki, Shigeyuki Kuboya, Ryuji Katayama, Liwen Sang, Masatomo Sumiya and Itaru Honma	4. 巻 638
2. 論文標題 Fabrication of Cu <sub>2</sub> ZnSnS <sub>4</sub> thin films using a Cu-Zn-Sn-O amorphous precursor and supercritical fluid sulfurization	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Thin Solid Films	6. 最初と最後の頁 244-250
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tsf.2017.07.063	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 Naoki Tamura, Takaaki Tomai, Nobuto Oka and Itaru Honma	4. 巻 428
2. 論文標題 Capacity improvement of the carbon-based electrochemical capacitor by zigzag-edge introduced graphene	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 986-989
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2017.09.187	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 Quyen T. Nguyen, Phuc Dinh Nguyen, Duc N. Nguyen, Quang Duc Truong, Tran Thi Kim Chi, Thuy Ung, Itaru Honma, Nguyen Quang Liem, and Phong D. Tran	4. 巻 10
2. 論文標題 Novel amorphous molybdenum selenide as an efficient catalyst for the hydrogen evolution reaction	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 8659 -8665
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsmi.7b18675	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 Takanori Tamaki, Hailin Wang, Nobuto Oka, Itaru Honma, Seong-Ho Yoon and Takeo Yamaguchi	4. 巻 43
2. 論文標題 Correlation between the carbon structures and their tolerance to carbon corrosion as catalyst supports for polymer electrolyte fuel cells	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 International Journal of Hydrogen Energy	6. 最初と最後の頁 6406- 6412
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ijhydene.2018.01.205	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 Yuta Nakayasu, Siobhan Bradley, Hiroaki Kobayashi, Keiichiro Nayuki, Yoshikazu Sasaki, Takaaki Tomai, Thomas Nann and Itaru Honma	4. 巻 1
2. 論文標題 Rapid Synthesis of Defective and Composition-controlled Metal Chalcogenide Nanosheets by Supercritical Hydrothermal Processing	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nanoscale Advances	6. 最初と最後の頁 3383-3387
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9na00435a	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 Yuto Katsuyama, Yuta Nakayasu, Kotaro Oizumi, Yui Fujihara, Hiroaki Kobayashi and Itaru Honma	4. 巻 3
2. 論文標題 Quinone-based Redox Supercapacitor Using Oak-derived Hard Carbon Fabricated by Traditional Carbonization Method	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Advanced Sustainable Systems	6. 最初と最後の頁 1900083
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adsu.201900083	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 Quang Duc Truong, Yuta Nakayasu, Quyen T. Nguyen, Duc N. Nguyen, Chuc T. Nguyen, Murukanahally Kempaiah Devaraju, Dinesh Rangappa, Keiichiro Nayuki, Yoshikazu Sasaki, Phong D. Tran, Takaaki Tomai, Itaru Honma	4. 巻 505
2. 論文標題 Defect-Rich Exfoliated MoSe <sub>2</sub> Nanosheets by Supercritical Fluid Process as an Attractive Catalyst for Hydrogen Evolution in Water	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 144537
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2019.144537	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 Takaaki Tomai, Yuta Nakayasu, Yusuke Okamura, Shunichi Ishiguro, Naoki Tamura, Shusuke Katahira and Itaru Honma	4. 巻 158
2. 論文標題 Bottom-up synthesis of graphene via hydrothermal cathodic reduction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Carbon	6. 最初と最後の頁 131-136
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbon.2019.11052	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 Yuki Takahashi, Yuta Nakayasu, Kazuyuki Iwase, Hiroaki Kobayashi and Itaru Honma	4. 巻 49
2. 論文標題 MoS <sub>2</sub> Nanosheets Having Controlled Numbers of Layers and Phase Structure by Supercritical Hydrothermal Processing	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Dalton Transactions	6. 最初と最後の頁 9377- 9384
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0dt01453b	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22件 (うち招待講演 5件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 Yuta Nakayasu, Hiroaki Kobayashi and Itaru Honma
2. 発表標題 Synthesis of Mo(S,Se) <sub>2</sub> and (Mo, W)S <sub>2</sub> nanosheets from metal- oxide and pure- chalcogen precursors in supercritical fluids
3. 学会等名 2018 MRS Fall Meeting and Exhibit (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中安 祐太、小林弘明、本間 格
2. 発表標題 水素発生電極に資するエッジリッチ構造を有したMo(S,Se) <sub>2</sub> と(Mo,W)S <sub>2</sub> ナノシートの超臨界水熱合成
3. 学会等名 2019年 第66回応用物理学会春季学術講演会 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 片平 周介、中安 裕太、小林 弘明、本間 格
2. 発表標題 水熱電気化学プロセスによる水分解用MoS <sub>2</sub> ナノシート電極の作製
3. 学会等名 化学工学会 第84年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 片平周介、中安祐太、小林弘明、本間格
2. 発表標題 水熱電解プロセスを用いたMoS <sub>2</sub> 薄膜電極の作製と水素発生反応触媒活性
3. 学会等名 第86回電気化学学会大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 片平 周介、小林 弘明、中安 祐太、本間 格
2. 発表標題 水素発生用MoS <sub>2</sub> 薄膜の水熱電解合成
3. 学会等名 資源・素材2018 平成30年度資源素材関係学協会合同秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 中安祐太、片平周介、小林弘明、本間格
2. 発表標題 水熱電解析出法による水分解用MoS <sub>2</sub> /グラフェンカソードの作製
3. 学会等名 化学工学会第50回秋季年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Itaru Honma
2. 発表標題 Advanced Nanomaterials Processing for Next Generation Secondary Batteries, Solar and Fuel Cells
3. 学会等名 Joint Workshop of Tohoku University & University of Science and Technology Beijing (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shusuke Katahira, Hiroaki Kobayashi, Yuta Nakayasu Itaru Honma
2. 発表標題 Fabrication of edge-rich MoS <sub>2</sub> cathode for water splitting via hydrothermal electrodeposition
3. 学会等名 2018 MRS Fall Meeting and Exhibit
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 石黒駿一、筈居高明、田村直貴、中安祐太、本間格
2. 発表標題 アリルデキストランゲル表面へのグラフェンの構造選択的吸着
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 本間 格
2. 発表標題 先端電池材料創製に向けた超臨界流体プロセスの展開
3. 学会等名 資源・素材 & EARTH2017 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 本間 格
2. 発表標題 機能性ナノマテリアルの次世代電池材料への応用
3. 学会等名 素材プロセッシング第69委員会(招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Yuta Nakayasu, Takaaki Tomai and Itaru Honma
2. 発表標題 Environmentally- friendly synthesis of Cu <sub>2</sub> ZnSn(S,Se) <sub>4</sub> thin film and Mo(S,Se) <sub>2</sub> nanoflower for energy conversion devices employing supercritical fluid processing
3. 学会等名 2017 MRS Fall meeting & Exhibits (招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 石黒駿一、小林弘明、笈居高明、本間格
2. 発表標題 水熱電解を用いた新たなダイヤモンド合成法の開発
3. 学会等名 平成30年度応用物理学会春季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋 裕紀, 中安 祐太, 岩瀬 和至, 小林 弘明, 本間 格
2. 発表標題 有機還元剤を用いた超臨界還元場によるMoS <sub>2</sub> ナノシートの形態制御合成
3. 学会等名 東北大学環境科学研究科 環境科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuki Takahashi, Yuta Nakayasu, Hiroaki Kobayashi and Itaru Honma
2. 発表標題 Synthesis of MoS <sub>2</sub> nanosheets by supercritical hydrothermal process and their electrocatalytic properties for hydrogen evolution
3. 学会等名 The 18th Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress (APCChE 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuta Nakayasu, Hiroaki Kobayashi, Shusuke Katahira, Itaru Honma
2. 発表標題 Rapid fabrication of metallic MoS <sub>2</sub> thin film under hydrothermal electrodeposition for electrocatalytic hydrogen evolution reaction
3. 学会等名 The 18th Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress (APCChE 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋裕紀・岩瀬和至・中安祐太・小林弘明・本間格
2. 発表標題 有機還元剤を用いた超臨界還元場によるMoS <sub>2</sub> ナノシートの選択的合成
3. 学会等名 第9回化学フェスタ2019 (9th CSJ Chemistry Festa)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroaki Kobayashi, Shunsuke Katahira, Yuta Nakayasu and Itaru Honma
2. 発表標題 Facile Synthesis of MoS <sub>2</sub> Cathode for Water Splitting Catalyst Using Electrochemical Reduction Under Hydrothermal Condition
3. 学会等名 The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM 13) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋裕紀、岩瀬和至、中安祐太、小林弘明、本間格
2. 発表標題 超臨界水熱反応場における二硫化モリブデンの構造制御合成
3. 学会等名 日本セラミック協会2020年年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高橋 裕紀、岩瀬 和至、中安 祐太、小林 弘明、本間 格
2. 発表標題 超臨界水熱合成法を用いたMoS <sub>2</sub> の構造制御合成とその水素発生活性
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会(2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuta Nakayasu, Hiroaki Kobayashi, Yuki Takahashi, Shusuke Katahira, Kazuyuki Iwase and Itaru Honma
2. 発表標題 Rapid synthesis of 1T-rich MoS <sub>2</sub> under hydrothermal reductive conditions
3. 学会等名 EMSF2020, Bordeaux, France (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Itaru Honma
2. 発表標題 Challenges for post-lithium ion batteries via functional nanomaterials processing
3. 学会等名 Tohoku-Melbourne University, International Workshop (招待講演)
4. 発表年 2020年

## 〔図書〕 計7件

1. 著者名 本間格	4. 発行年 2020年
2. 出版社 応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会	5. 総ページ数 9
3. 書名 有機二次電池の電極材料とデバイス	

1. 著者名 小林弘明、筈居高明、本間格	4. 発行年 2018年
2. 出版社 日本化学会	5. 総ページ数 3
3. 書名 有機低分子を活かした高容量高出力型の水系蓄電デバイス —プロトンロッキングチェア型有機二次電池—	

1. 著者名 谷木良輔、増田有沙、北田祐太、永村直佳、本間格	4. 発行年 2018年
2. 出版社 (株)技術情報協会	5. 総ページ数 3
3. 書名 「有機正極材料を用いたリチウムイオン電池の開発」、電気化学・インピーダンス測定の実験と事例集	

1. 著者名 筈居 高明、宮脇 仁、尹 聖昊、本間 格	4. 発行年 2018年
2. 出版社 日本セラミックス協会誌	5. 総ページ数 5
3. 書名 超臨界流体を利用したナノシートプロセッシング (附置研究所アライアンス特集号) 53巻6号	

1. 著者名 Quang Duc Truong and Itaru Honma	4. 発行年 2016年
2. 出版社 CRC Press, Taylor and Francis	5. 総ページ数 269 - 294
3. 書名 Graphene: Electrochemical Exfoliation and Applications	

1. 著者名 本間格、筈居高明	4. 発行年 2017年
2. 出版社 シーエムシー出版	5. 総ページ数 14
3. 書名 スラリー型レドックスフロー電池/キャパシタ	

1. 著者名 本間格、筈居高明	4. 発行年 2016年
2. 出版社 応用物理学会	5. 総ページ数 5
3. 書名 有機レドックス分子を用いたスーパーキャパシタ	

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 ダイヤモンド合成方法およびダイヤモンド合成装置	発明者 本間格、筈居高明、 小林弘明、石黒駿一	権利者 東北大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-017754	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 多孔質体、多孔質体の製造方法、電極材料および蓄電装置	発明者 中安祐太、本間格	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2019-124890	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件



〔その他〕

本間研究室（東北大学多元物質科学研究所）  
<http://www2.tagen.tohoku.ac.jp/lab/honma/>  
 東北大学多元物質科学研究所 金属資源プロセス研究センター  
<http://www2.tagen.tohoku.ac.jp/lab/cmpm/>

プレスリリース 「グラフェンの新しい合成法 ～亜臨界水熱電解によるグラフェンと水素のコプロダクション～」東北大学 菅居高明准教授、本間格教授、中安祐太助教、2019/12/10、東北大学ホームページ、日本経済新聞電子版、他6件

プレスリリース 「電気分解でグラフェン 亜臨界水活用し合成」東北大学 本間格教授、2020/1/22、化学工業日報

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	小林 弘明  (Kobayashi Hiroaki)  (90804427)	東北大学・多元物質科学研究所・助教   (11301)	
研究分担者	菅居 高明  (Tomai Takaaki)  (80583351)	東北大学・多元物質科学研究所・准教授   (11301)	

	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
連携研究者	中安 祐太  (Nakayasu Yuta)  (20827042)	東北大学・学際科学フロンティア研究所・助教   (11301)	

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		
中国	中国科学技術院		
ベトナム	ベトナム科学技術院	ハノイ科学技術大学	
韓国	Hanyang 大学		

共同研究相手国	相手方研究機関			
インド	ピスベスバラヤ工科大学			
韓国	Hanyang 大学			
オーストラリア	メルボルン大学	ニューカッスル大学	南オーストラリア大学	