

2020年度 TIA 連携プログラム探索推進事業「かけはし」

調査研究報告書(公開版)

【研究題目】 エネルギーデバイスおよびミトコンドリアにおける燃料電池システム

【整理番号】 TK20-051

【代表機関】 筑波大学

【調査研究代表者(氏名)】

中村潤児 029-853-5279 nakamura@ims.tsukuba.ac.jp

【TIA 内連携機関：連携機関代表者】

物質・材料研究機構(NIMS)：有賀克彦、高エネルギー加速器研究機構(KEK)：間瀬一彦

【TIA 外連携機関】

SLAC：小笠原寛人、慶應義塾大学：近藤寛、日立製作所：西村勝憲

【報告書作成者】

中村潤児

【報告書作成年月日】

2021年3月30日

【連携推進(具体的な連携推進活動内容とその活動の効果等)】

- ◆TIA かけはしメンバー5名を共同研究者(有賀克彦博士、岡田晋教授、近藤寛教授、神原貴樹教授、武安光太郎助教)として申請した科研費基盤研究A「カーボン系燃料電池触媒の機能解明と材料設計」が採択された。
- ◆カーボン系酸素還元触媒の最大の技術的課題は酸性電解質での活性劣化であるが、その原因解明の糸口を掴んだ。これは最大の成果であった。
- ◆物質・材料研究機構との共同研究として、ユニークな構造を有するフラレンを用いたカーボン系酸素還元触媒を調製することに成功した。
- ◆Science 誌(2016)の論文の引用回数が2200回を突破した。
- ◆研究会：2019年11月2日に研究メンバーが集まり、オンラインで、研究内容、プロジェクトの進め方について話し合った。
- ◆ミトコンドリアの熱産生について、長崎大学の北潔グループとの共同研究を開始した。
- ◆企業からの外部資金(300万円)を得た。

【調査研究内容(実験等中心に背景・課題と実行された課題解決の内容と結果)】

窒素ドーパカーボン触媒の最大の謎「アルカリ電解質中では白金並みの触媒活性が酸電解質中では劣化する」を解決する糸口が見えてきた。それは、酸素分子の吸着(熱反応)と連動した電気化学反応(ピリジニウム窒素の還元)反応($\text{Pyri-NH}^+ + e^- + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_{2,a} + \text{pyri-NH}$)である。既に我々はピリジン型窒素(pyri-N)が触媒活性点を形成することを報告してきた(Science 351,361-365 (2016))。2020年度の研究においては、ピリジニウム型窒素の役割が明らかになってきた。すなわち、pyri-Nのプロトン化とその還元過程によって酸素分子が吸着するという熱反応と電気化学過程の連動したメカニズムを提案し、以下の論文で発表した。

“Role of Pyridinic Nitrogen in the Mechanism of the Oxygen Reduction Reaction on Carbon Electrocatalysts”, Kotaro Takeyasu, Moeko Furukawa, Yuto Shimoyama, Santosh K. Singh, and Junji Nakamura, Angew. Chem. 60, 5021-5024, 2021.

この論文は Top 10%論文に選ばれた。さらに、本論文についてプレスリリースを行った。

ミトコンドリアのエナジェティクス研究に関しては、我々にとって異分野であった生体エネルギー学会で研究成果を報告した。反響があり、長崎大学の著名な研究者である北潔教授グループとの交流が開始した。

その他の論文：

- ◆“Edge Morphology effect on field emission properties of graphene thin films”, Yanlin Gao and Susumu Okada, *Carbon*, **157**, 33-39 (2020).
- ◆”Energetics and electronic structures of single walled carbon nanotubes encapsulated in boron nitride nanotubes”, Kaoru Hisama, Shohei Chiashi, Shigeo Maruyama, and Susumu Okada, *Applied Physics Express*, **13**, 015004 (2020).
- ◆”One-dimensional van der Waals heterostructures, Rong Xiang, Taiki Inoue, Yongjia Zheng, Akihito Kumamoto, Yang Qian, Yuta Sato, Ming Liu, Daiming Tang, Devashish Gokhale, Jia Guo, Kaoru Hisama, Satoshi Yotsumoto, Tatsuro Ogamoto, Hayato Arai, Yu Kobayashi, Hao Zhang, Bo Hou, Anton Anisimov, Mina Maruyama, Yasumitsu Miyata, Susumu Okada, Shohei Chiashi, Yan Li, Jing Kong, Esko I. Kauppinen, Yuichi Ikuhara, Kazu Suenaga, and Shigeo Maruyama”, *Science*, **367**, 537-542 (2020).
- ◆“Momentum selective optical absorption in triptycene molecular membrane”, Masashi Akita, Yasumaru Fujii, Mina Maruyama, Susumu Okada, and Katsunori Wakabayashi, *Physical Review B*, **101**, 085418 (2020).
- ◆”Mechanical properties of carbon nanotube under uniaxial tensile strain”, Kazufumi Yoneyama, Mina Maruyama, Yanlin Gao, and Susumu Okada, *Japanese Journal of Applied Physics*, **59**, SIID02 (2020).
- ◆”Molecular Engineering of β -Substituted Oxoporphyrinogens for Hydrogen-Bond Donor Catalysis”, Chahal, Mandeep K.; Payne, Daniel T.; Matsushita, Yoshitaka; Labuta, Jan; Ariga, Katsuhiko; Hill, Jonathan P., *Eur. J. Org. Chem.*, **1**, 82-90 (2020). (**VIP Paper**)
- ◆”Adaptive Liquid Interfacially Assembled Protein Nanosheets for Guiding Mesenchymal Stem Cell Fate”, Jia, Xiaofang; Minami, Kosuke; Uto, Koichiro; Chang, Alice Chinghsuan; Hill, Jonathan P.; Nakanishi, Jun; Ariga, Katsuhiko, *Adv. Mater.*, **32** (4), 1905942 (2020).
- ◆”Operando direct observation of spin-states and charge-trappings of blue light-emitting-diode materials in thin-film devices”, F. Osawa and K. Marumoto, *Scientific Reports*, **10**, 18800-1-12 (2020).
- ◆”How Rh surface breaks CO₂ molecules under ambient pressure”, Jeongjin Kim, Hyunwoo Ha, Won Hui Doh, Kohei Ueda, Kazuhiko Mase, Hiroshi Kondoh, Bongjin Mun, Hyun You Kim, Jeong Park *Nature Commun.*, **11**, 5649 (2020).
- ◆”Orientation-Dependent Hindrance to the Oxidation of Pd-Au Alloy Surfaces”, R. Toyoshima, K. Amemiya, K. Mase, H. Kondoh *J. Phys. Chem. Lett.*, **11**, 9249-9254 (2020).
- ◆”Air-stable Pd(0) catalyst bearing dual phosphine ligands: a detailed evaluation of air stability and catalytic property in cross-coupling reactions”, Ryota Sato, Takaki Kanbara, and Junpei Kuwabara, *Dalton Trans.*, **49**, 12814–12819 (2020).

◆”Facile Access to Conjugated Polymers under Aerobic Conditions via Pd-Catalyzed Direct Arylation and Aryl Amination Polycondensation”, Xi Chen, Akito Ichige, Junhui Chen, Iori Fukushima, Junpei Kuwabara, and Takaki Kanbara, *Polymer*, **207**, 122927 (2020).

◆”Step-economical synthesis of conjugated polymer materials composed of three components: donor, acceptor, and π units”, Junpei Kuwabara and Takaki Kanbara, *Macromol. Rapid Commun.*, **42**, 2000493 (2021) (Review article)

◆”Ethanol-ethylene conversion mechanism on hydrogen boride sheets probed by in situ infrared absorption spectroscopy”, Asahi Fujino, Shin-ichi Ito, Taiga Goto, Ryota Ishibiki, Ryota Osuga, Junko Nomura Kondo, Tadahiro Fujitani, Junji Nakamura, Hideo Hosono, Takahiro Kondo* (*corresponding author), *Phys. Chem. Chem. Phys.* (2021) Advance Article

◆”Cracking of squalene into isoprene as chemical utilization of algae oil”, Kazuya Kimura, Kazuma Shiraishi, Takahiro Kondo, Junji Nakamura and Tadahiro Fujitani, *Green Chemistry*, **22**, 3083-3087 (2020).

受賞：なし

招待講演：

◆「燃料電池用窒素ドーブカーボン触媒の活性点 (Active site of nitrogen-doped carbon catalysts for fuel cell)」中村潤児 第 59 回 フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム、オンライン開催、2020 年 9 月 18 日.

◆「コロナ対策への化学の貢献ー感染・医療崩壊・コンタクトトレーシングのキネティクス解析」中村潤児 第 14 回日本化学連合シンポジウム「化学研究・教育マネジメントーコロナで変わった研究と教育ー」、オンライン開催、2021 年 3 月 9 日.

学会：

【今後の活動予定】

- ① 外部資金による共同研究を継続して、触媒実用化を視野に入れて研究を拡大してゆく。
- ② ミトコンドリアの共同研究を開始する。
- ③ 大型外部資金獲得に向けて努力する。企業との大型共同研究を模索する。
- ④ オンラインの研究会・勉強会を定期的に開催する。