

令和 5 年 6 月 14 日現在

機関番号：11501

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02430

研究課題名（和文）不規則性が加速する固体内高速イオン伝導機構の解明と革新的材料創製への展開

研究課題名（英文）Study on the ion acceleration mechanism in innovative fast-ion conductive structurally-disordered materials

研究代表者

臼杵 毅 (Usuki, Takeshi)

山形大学・理学部・教授

研究者番号：70250909

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：室温において高イオン伝導性をもつガラスは、液漏れのない二次電池などの次世代電気化学デバイスの完全固体化において鍵を握る材料である。本研究では、元素選択精密構造解析実験と量子計算シミュレーションを駆使することにより、イオン伝導性ガラスにおける可動イオン周囲の精密構造研究を推進した。その結果、固体内の高速イオン拡散経路の構築過程に関する重要な知見を得ることに成功した。さらに、イオン伝導性の向上において最適な不規則性が存在することを突き止めた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、室温での高イオン伝導性を発現するガラス物質の可動イオン周囲の精密構造情報が可視化され、イオン伝導を向上させる最適な不規則性が存在することが明らかとなった。今後、この不規則性の積極制御を通じた革新的イオン伝導材料開発への道が開けることとなり、本研究成果の社会的な意義は極めて高い。また、本研究で開発された研究手法は、他の様々な不規則材料における基礎研究にも大きなブレークスルーを与える。

研究成果の概要（英文）：Structure modelling for AgI-doped chalcogenide glasses has been performed by the reverse Monte Carlo technique using data sets of neutron, high energy X-ray diffraction and anomalous X-ray scattering experiments in order to construct the detailed three-dimensional structure of the system. The first principle molecular dynamics simulations have also been performed. It was successfully demonstrated that the structure of the present glasses is microscopically phase-separated mixture of host network matrix and Ag-related conduction units where mobile Ag ions are correlated each other within a short length scale. It was also suggested that suitable disorders in the environmental structure around mobile Ag ions are strongly related to the enhancement of fast-ionic migration in the systems.

研究分野：不規則系材料物性

キーワード：イオン伝導性ガラス 量子ビーム 固体イオニクス X線異常散乱 構造モデリング イオン伝導経路
不規則系材料 高イオン伝導材料

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。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

固体における室温での高イオン伝導性発現手法としてガラス化が有用である。例えば、AgI 添加ガラスでは、室温で溶液並みの Ag イオン伝導度を示す。また、AgI 添加量に対して指数関数的にイオン伝導度が向上し、AgI 添加量を 2 倍にするとイオン伝導度が 100 倍になる、などの興味ある性質も報告されている。次世代の全固体電池の開発においても、Li イオン伝導ガラスなど、ガラス系の研究が盛んであるが、そもそも「ガラス化することでなぜ高イオン伝導性が発現するのか?」という根本的な問題が未解明であるため、新規材料の開発も手探り状態である。この状況を打破し、革新的イオン伝導材料の創製のためにも、ガラス中でのイオン伝導機構の全容解明が極めて重要となる。ここで、材料中での可動イオン周囲の配位環境や構造とイオン輸送現象との相関を調べることは、不規則性材料における高イオン伝導性発現機構を解明する上で極めて重要となる。本研究では、量子ビームを最大限に活用した元素選択精密構造解析実験と量子計算シミュレーションを駆使することにより、ガラス構造及びイオン拡散経路の構築過程を完全に可視化し、理論との連携を通して、ガラス系でのイオン伝導機構の全容解明の壁を突破できると確信し、本研究を着想するに至った。

2. 研究の目的

本研究では、ガラス系において不規則性が加速するイオン伝導機構の全容を解明し、革新的イオン伝導材料の創製へと展開をはかることを目的とする。不規則性がなぜ、どのような機構により、固体内のイオン伝導性を指数関数的に加速するのか、イオン伝導性向上において最適な不規則性とはいったいどのようなものか、について実験と理論の両面から追究する。

その実現のために本研究では以下の研究を精力的に推し進める。

研究ポイント 先端量子ビームを最大限に活用して、不明瞭のままの中距離・長距離のイオン伝導ガラス構造を元素選択的に観測し、不規則性を直接捉える。

研究ポイント 量子計算と元素選択三次元構造モデリングを融合した新たな研究手法を開発し、ガラス中のマトリックス構造及び可動イオン周囲のイオン伝導経路・結合性を可視化する。

研究ポイント 不規則性と輸送現象との相関に関する理論を検証し、不規則性がガラス中のイオン伝導を加速するメカニズムを検討する。

研究ポイント 革新的イオン伝導材料の開発における学術的指針を提案する。

3. 研究の方法

研究ポイント ~ に沿って、次のような研究方法をとり研究を進める。まず、広いエネルギー領域をカバーする高強度 X 線を利用可能なビームラインでの元素選択 X 線異常散乱実験環境の高度化を精力的に進める。これと並行して、XAFS 実験及び中性子回折実験を実施する。次に、異常散乱実験データを用いた信頼性の高いモデリングを行うための最適な計算条件を導き、イオン伝導経路の可視化を実現する。さらに、RMC 法により可視化されたガラス構造に対し、密度汎関数法 (DFT 法) 計算および分子動力学シミュレーションを実施し、イオン伝導経路中の可動イオンの結合性および可動イオンの動的構造を明らかにする。これらの研究により得られる全ての知見を総動員することで、「ガラス化することで何故高イオン伝導性が発現するのか?」という根本的な疑問へのユニバーサルな答えを導き、関連する理論を検証する。その上で、不規則性を積極的に制御することによる革新的高イオン伝導材料創製への展開につながる学術的指針を提言したい。対象試料として、イオン伝導度等の物性評価が最も進んでいる AgI-As₂Se₃ 混合系に対し、液体急冷法およびメカニカルミリング (MM) 法を併用して測定試料を作製した。MM 法は、出発結晶からガラス化完了までの過程を追跡でき、不規則性の導入に伴うイオン伝導性の発現を調査するのに適している。得られた試料に対しイオン伝導度等の輸送特性の組成・温度・ミリング時間依存性を追跡した。また、SPring-8 や KEK-PF、J-PARC 等において量子ビーム実験 (高エネルギー X 線回折、X 線異常散乱、EXAFS、中性子回折) を行った。これらのデータから、可動イオン周囲の環境構造情報を導き、さらに逆モンテカルロ法 (RMC) 法による三次元構造モデリング及び第一原理分子動力学計算を行うことで、不規則構造の特徴の抽出を試みた。

4. 研究成果

まず、輸送特性について振り返る。一例として、AgI-As₂Se₃ 系のガラス化進行に伴うイオン伝導度変化を図 1 に示す。出発結晶の Bragg ピークが完全に消失しガラス特有のハローパターンのみとなりガラス化が完了する MM 40 h 試料のイオン伝導度は、液体急冷 (RQ) 法で作製されたガラス試料の伝導度とほぼ同じ値を示す。興味深いことに、XRD 的には結晶ピークが残るミリング初期の段階で (図 2) イオン伝導度がすでに急上昇している。40 mol% AgI 組成に至っては、ミリング初期の方がイオン伝導度が高く、最大値を示すという興味深い結果となっている。

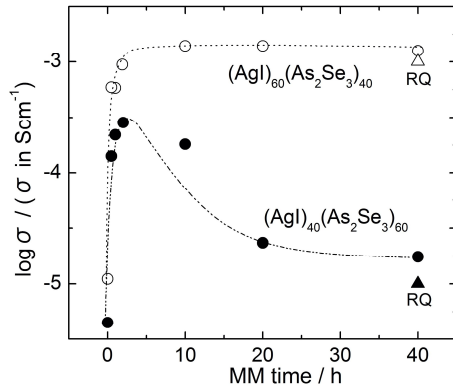


図1 . AgI-As₂Se₃ 系のイオン伝導度のミリング時間依存性 (RQ:液体急冷) .

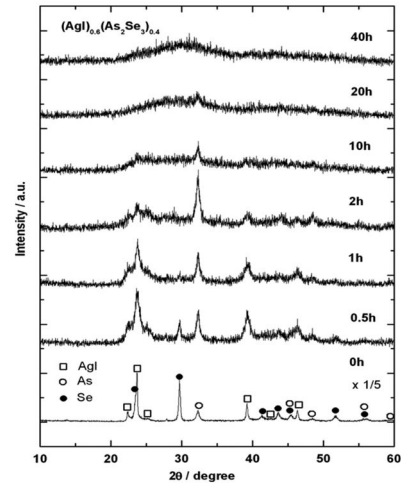


図2 . (AgI)₆₀(As₂Se₃)₄₀ 試料の XRD パターンのミリング時間依存性 .

これらの結果は、系の構造不規則性が増加することで Ag イオン伝導性が発現すること、さらにはイオン伝導度が最高値を示す最適な不規則性が存在することを示唆している。

次に、SPring-8 での高エネルギー X 線回折実験で得られた (AgI)₆₀(As₂Se₃)₄₀ 試料のガラス化進行に伴う構造因子 $S(Q)$ の変化を図3に、二体分布関数 $g(r)$ を図4に示す。2.4 Å 付近と 2.8 Å 付近のピークは、それぞれ As-Se 関連および Ag-I 関連の二体相関に対応している。2.8 Å 付近の Ag-I 関連のピークは、ガラス化の進行とともに位置や半値幅の変化は小さいものの積分強度が優位に減少することがわかる。このことから、結晶状態よりも可動 Ag イオン周囲の構造に不規則性が生じていることが考えられる。3 Å 以上の中距離領域でもガラス化進行に伴う変化は大きい。例えば、MM0h の 4.2 ~ 5.3 Å 付近の大きなピークは、主に結晶 AgI の Ag-Ag および I-I 骨格に対応しており、ガラス化進行とともにこれらが大きく崩れつつ新たな相関がより近距離に生じるために、3 ~ 4.2 Å 付近が増加する挙動を示していると考えられる。

続いて、可動 Ag イオン周囲の詳細な構造情報を得るために、SPring-8 の BL13XU において Ag K 吸収端近傍の X 線異常散乱実験を行なった。異常散乱項の違いによる near edge と far edge での散乱強度の違いは非常に小さいが、有意な強度差を持つ散乱強度の測定に成功した。ここから差分を取ることで、Ag 原子のみが関与する環境構造データを持つ部分構造因子 $S(Q)$ を導出した(図5)。14 Å 近傍まで明瞭な振動が得られている。この部分構造因子をフーリエ変換することで部分二体分布関数 $g(r)$ を得た(図6)。図4とは異なり、図6では 2.8 Å 付近の Ag-I 相関の第1ピークのみが分離され明瞭に得られていることがわかる。

次に、メカニカルミリングにより作製された試料に対する EXAFS 実験データを詳細に解析し、イオン伝導性の発現に伴う可動 Ag イオン周囲の環境構造変化を精査した。ここで、EXAFS によって決定された Ag-I の配位数とイオン伝導度との相関を検討するために、横軸に Ag-I の配位数、縦軸にイオン伝導度をプロットしたものを図7に示す。60 と 40 mol% AgI の両方の組成のデータは一つの山形カーブに乗るような変化を示す。そして、組成によらず配位数が 3 程度の時にイオン伝導度が最大となっている。ミリングのかなり初期でまだ不規則性の導入がわずかで配位数が 4 に近くても、逆に長時間のミリングにより不規則性が導入されすぎて配位数が 3 を下回っても、イオン伝導度は下がる。この変化は、イオン伝導度が最大値を取る最適な配位数

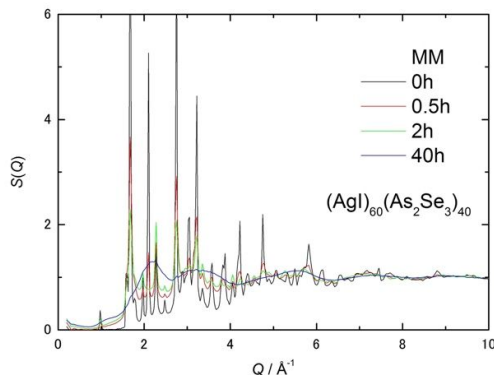


図3 . (AgI)₆₀(As₂Se₃)₄₀ 試料のガラス化進行に伴う構造因子 $S(Q)$ 変化 .

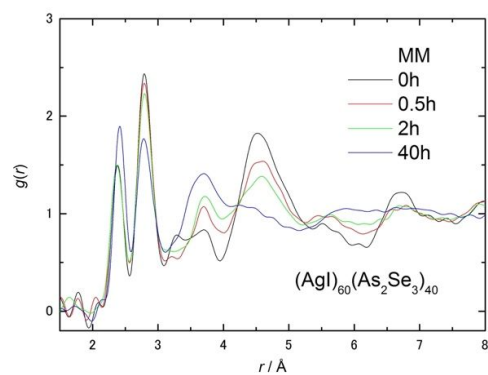


図4 . (AgI)₆₀(As₂Se₃)₄₀ 試料のガラス化進行に伴う二体分布関数 $g(r)$ 変化 .

(や結合距離)が存在する、言い換えれば最適な不規則性が存在する可能性があることを暗示している。この点は、さらなる検証が必要であるが、現時点で、不規則性の度合いとイオン伝導度の向上に関する重要なポイントの1つであると考えている。

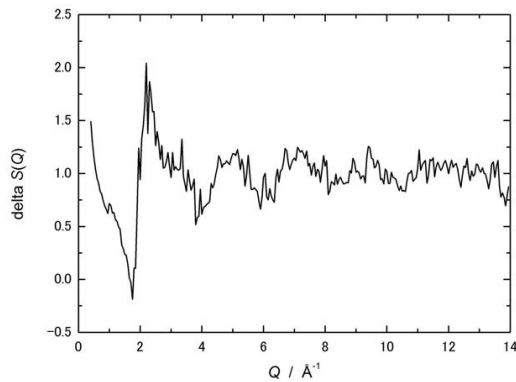


図5 . $(\text{AgI})_{60}(\text{As}_2\text{Se}_3)_{40}$ ガラス試料の Ag 部分構造因子 $S(Q)$.

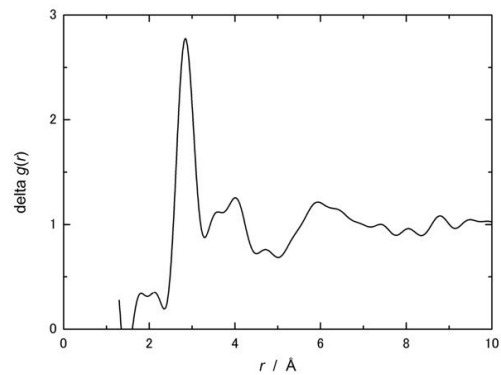


図6 . $(\text{AgI})_{60}(\text{As}_2\text{Se}_3)_{40}$ ガラス試料の Ag 部分二体分布関数 $g(r)$.

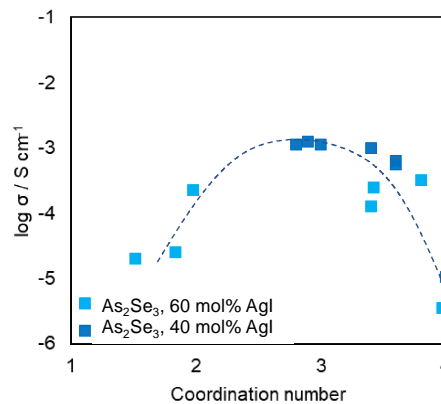


図7 . EXAFS で決定された Ag-I 配位数とイオン伝導度との関係 .

さらに、詳細な三次元構造を可視化する目的で、X線および中性子回折実験で得られた全構造因子及びX線異常散乱実験で得られた部分構造因子を全て活用し、RMC法による三次元構造モデリングを試みた。60 mol% AgI 組成ガラスの構造モデルを図8に示す。添加された AgI は、 $\text{AsSe}_{3/2}$ ネットワーク間に微視的な相分離状態で溶け込む描像が確認された。また、Ag イオン周囲の不規則性の度合いがかなり高く、歪んだ AgI 構造単位の連結による Ag イオン伝導パスが形成されていることが分かった。ここで、距離の閾値を上げながら Ag-Ag の連結性を調査したところ、ほぼ全ての Ag イオンが 3.5 Å 以下の距離で近接分布している様子が確認できる (図9)。

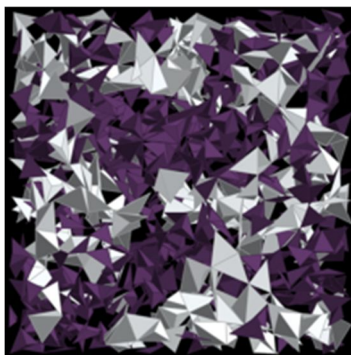


図8 . $(\text{AgI})_{60}(\text{As}_2\text{Se}_3)_{40}$ ガラス試料の三次元構造モデル .

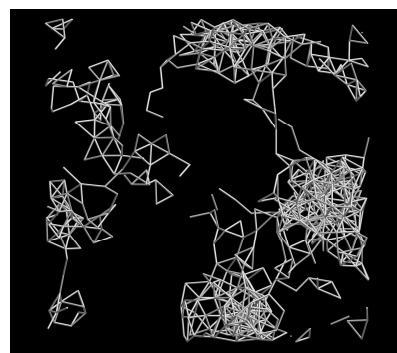


図9 . $(\text{AgI})_{60}(\text{As}_2\text{Se}_3)_{40}$ ガラス試料の可動 Ag イオンの分布 .

ガラス中で可動 Ag イオンが互いに近距離に分布しているという結果は、Ag イオンが互いに影響を及ぼし合いながら拡散（協同運動）していることを示している。室温結晶相には存在しない Ag-Ag 近距離相関を生じていることが、本ガラス系の室温での高イオン伝導特性の発現と極めて密接に関連していると考えている。

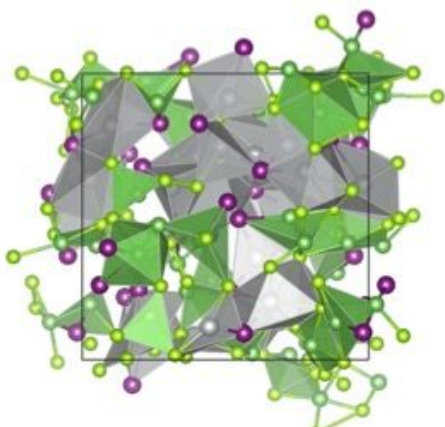


図 1 0 . (AgI)₆₀(As₂Se₃)₄₀ ガラス試料の第一原理計算で得られた三次元構造 .

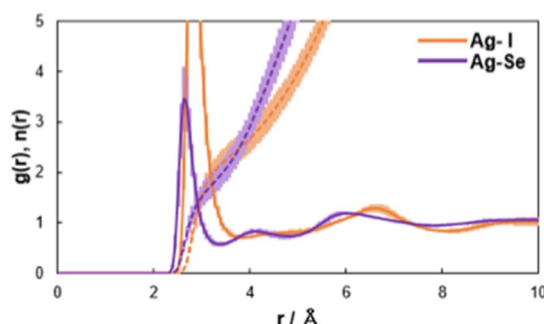


図 1 1 . (AgI)₆₀(As₂Se₃)₄₀ ガラス試料の Ag-I 及び Ag-Se 分布と配位数変化 .

次に、60 mol% AgI 組成（160 原子）に対して行なった第一原理分子動力学法をの結果（スナップショット）を図 1 0 に、Ag-I 及び Ag-Se の部分二体分布関数と配位数変化を図 1 1 に示す。RMC 法と比較して第一原理計算では扱える原子数がかなり少ないが、RMC 法で得られた描像と類似して微視的な相分離状態にであることが確認された。また、二体分布関数では、約 2.4 Å に Ag-Se、約 2.8 Å に Ag-I の最近接相関ピークが存在しており、可動 Ag イオンは、I だけでなく Se とも近接し混合配位環境であることが判明した。第一配位圏の平均配位数を計算すると、60 mol% AgI 組成では Ag イオンは約 2 個の I と約 2 個の Se に隣接しているという結果となった。そこで、Ag イオンがどのような種類の混合配位環境に置かれているかを調査した(図 1 2)。合計 4 配位の Ag イオンを取り出し、I と Se の配位数の異なる組み合わせの存在割合をプロットしたもので、横軸の指数は(I の配位数, Se の配位数)を表現している。60 mol% AgI 組成では I との配位が多く、逆に 40 mol% AgI 組成では Se との配位が多いことがわかる。次に、それぞれの配位環境にある Ag イオンがどの程度動き易いかの指標として、同一時間内に移動した距離の分布を算出したところ、I の配位数が多い環境にある Ag イオンの方が長距離の移動を行なう傾向にあることがわかった。これらのことから、ガラス内の可動 Ag イオンの置かれている配位環境も、不規則系材料における高イオン伝導性の発現と密接に関係していることを改めて認識できる。なお、ガラス化完了よりミリング初期においてイオン伝導度が最大値を示す 40 mol.% AgI 組成の特異な現象も、混合配位に置かれている Ag イオンの配位環境の変化が関与していることが示唆される。さらなる検証が必要であるが、混合配位の Ag イオンの存在は、イオン伝導度の向上に関するもう一つの重要な（あるいは最も根本的な）ポイントとなる可能性を秘めている。

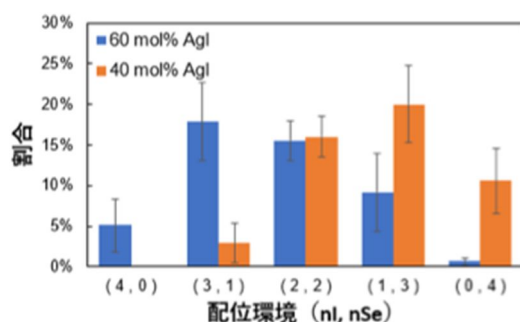


図 1 2 . (AgI)₆₀(As₂Se₃)₄₀ ガラス試料の異なる配位環境の Ag イオンの割合 .

これまでをまとめると、(1) AgI は As₂Se₃ ガラスネットワーク中で相分離的に分布し、3 次元の連結によるイオン伝導パスが形成される。同時に、(2) 可動イオン周囲の不規則性の導入とともに Ag-Ag 近距離相関が生じ、可動イオンの協同運動による高い伝導性を引き起こす。ここで(3) 混合配位の Ag イオンの環境構造が Ag イオンの移動度と強く関連し、(4) 不規則性には最適値が存在する可能性が示唆された。これらの特徴が、ガラス化による高イオン伝導性発現と密接に関連していると結論付けられる。以上により、最適な不規則性（可動イオンの配位環境）を制御することで、室温における高イオン伝導性材料を設計できる可能性が示された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計23件（うち査読付論文 23件 / うち国際共著 7件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Kassem Mohammad, Benmore Chris J., Usuki Takeshi, Ohara Koji, Tverjanovich Andrey, Bokova Maria, Brazhkin Vadim V., Bychkov Eugene	4. 巻 13
2. 論文標題 Transient Mesoscopic Immiscibility, Viscosity Anomaly, and High Internal Pressure at the Semiconductor-Metal Transition in Liquid Ga ₂ Te ₃	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 10843 ~ 10850
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.2c02899	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 Matsutani Kenta, Yamauchi Asumi, Kasamatsu Shusuke, Usuki Takeshi	4. 巻 91
2. 論文標題 Structural Analysis of Amorphous GeO ₂ under High Pressure Using Reverse Monte Carlo Simulations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 124601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.91.124601	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 臼杵 毅、一條 泰也、尾原 幸治、小野寺 陽平	4. 巻 10
2. 論文標題 イオン伝導性ガラス材料における不規則性導入と輸送特性との相関	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 SPRING-8/SACLA利用研究成果集	6. 最初と最後の頁 414 ~ 417
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.18957/rr.10.5.414	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 Zeidler Anita, Salmon Philip S., Usuki Takeshi, Kohara Shinji, Fischer Henry E., Wilson Mark	4. 巻 157
2. 論文標題 Structure of molten NaCl and the decay of the pair-correlations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 094504 ~ 094504
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0107620	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 Zaiter Rayan, Kassem Mohammad, Fontanari Daniele, Bokova Maria, Cousin Fabrice, Usuki Takeshi, Bychkov Eugene	4. 巻 584
2. 論文標題 Chemically-invariant percolation in silver thioarsenate glasses and two ion-transport regimes over 5 orders of magnitude in Ag content	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Non-Crystalline Solids	6. 最初と最後の頁 121513 ~ 121513
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnoncrysol.2022.121513	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 Kassem Mohammad, Benmore Chris J., Tverjanovich Andrey, Usuki Takeshi, Khomenko Maxim, Fontanari Daniele, Sokolov Anton, Ohara Koji, Bokova Maria, Kohara Shinji, Bychkov Eugene	4. 巻 11
2. 論文標題 Glassy and liquid Sb ₂ S ₃ : insight into the structure and dynamics of a promising functional material	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry C	6. 最初と最後の頁 4654 ~ 4673
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d3tc00081h	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 Zaiter Rayan, Kassem Mohammad, Fontanari Daniele, Sokolov Anton, Usuki Takeshi, Bokova Maria, Hannon Alex C., Benmore Chris J., Cousin Fabrice, Ozheredov Ilya, Bychkov Eugene	4. 巻 216
2. 論文標題 Unexpected role of metal halides in a chalcogenide glass network	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Materials & Design	6. 最初と最後の頁 110547 ~ 110547
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.matdes.2022.110547	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 安仁屋勝, 白杵毅	4. 巻 57
2. 論文標題 イオン導電性カルコゲナイドガラス	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 固体物理	6. 最初と最後の頁 21 ~ 33
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Hagihara K., Aniya M.	4. 巻 2440
2. 論文標題 A model for the particle size dependence of the ionic conductivity	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 30002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0075028	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 Murata K., Aniya M.	4. 巻 2440
2. 論文標題 Particle size and dimensionality dependence of the Gruneisen parameter	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 AIP Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 30004
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0075031	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 Aniya Masaru	4. 巻 330
2. 論文標題 Correlating the Annealing Temperature Dependence of the Structural Inhomogeneity and the Diffusion in Zr-Ti-Cu-Ni-Be Glassy System	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Solid State Phenomena	6. 最初と最後の頁 11 ~ 15
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4028/p-m5a30s	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 Aniya Masaru, Ikeda Masahiro	4. 巻 1059
2. 論文標題 Network Relaxation and Cooperativity in Ion Conducting Polymers PEO-Li: An Analysis Based on the BSCNF Model	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Materials Science Forum	6. 最初と最後の頁 129 ~ 134
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4028/p-279msx	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 Aniya Masaru, Noda Hiroyuki	4. 巻 927
2. 論文標題 Optical Dielectric Constant and Electronegativity Difference in ANB8-N Type Binary Compounds	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Key Engineering Materials	6. 最初と最後の頁 167 ~ 171
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4028/p-00inyj	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 Ikeda Masahiro, Aniya Masaru	4. 巻 103
2. 論文標題 An extended theory of vacancy formation and its application to ionic conduction in the intrinsic and extrinsic regions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Philosophical Magazine	6. 最初と最後の頁 101 ~ 118
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/14786435.2022.2129111	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 Tverjanovich Andrey, Khomenko Maxim, Benmore Chris J., Bokova Maria, Sokolov Anton, Fontanari Daniele, Kassem Mohammad, Usuki Takeshi, Bychkov Eugene	4. 巻 33
2. 論文標題 Bulk Glassy GeTe ₂ : A Missing Member of the Tetrahedral GeX ₂ Family and a Precursor for the Next Generation of Phase-Change Materials	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemistry of Materials	6. 最初と最後の頁 1031 ~ 1045
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.0c04409	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 Masahiro Ikeda, Masaru Aniya	4. 巻 47
2. 論文標題 Predicting the Temperature Range of Arrhenius Crossover of Structural Relaxation in Fragile Glass-forming Liquids	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Glass Physics and Chemistry	6. 最初と最後の頁 427 ~ 430
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1134/S1087659621050072	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 Aniya Masaru, Sadakuni Haruhito, Hirano Eita	4. 巻 11
2. 論文標題 Ionic Conductors: Effect of Temperature on Conductivity and Mechanical Properties and Their Interrelations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 1008 ~ 1008
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/cryst11081008	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 Ikeda Masahiro, Aniya Masaru	4. 巻 555
2. 論文標題 Linking the glass-forming ability to the Arrhenius crossover of structural relaxation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Non-Crystalline Solids	6. 最初と最後の頁 120617 ~ 120617
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnoncrysol.2020.120617	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 Aniya Masaru, Ikeda Masahiro	4. 巻 1016
2. 論文標題 Model Description of the Unusual Temperature Dependence of the Viscosity of Metallic Glass-Forming Liquids	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Science Forum	6. 最初と最後の頁 30 ~ 35
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4028/www.scientific.net/MSF.1016.30	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 Tverjanovich Andrey, Khomenko Maxim, Bereznev Sergei, Fontanari Daniele, Sokolov Anton, Usuki Takeshi, Ohara Koji, Le Coq David, Masselin Pascal, Bychkov Eugene	4. 巻 22
2. 論文標題 Glassy GaS: transparent and unusually rigid thin films for visible to mid-IR memory applications	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 25560 ~ 25573
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0cp04697c	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 該当する

1. 著者名 Ikeda Masahiro, Aniya Masaru	4. 巻 861
2. 論文標題 Ionic Diffusion and Dissociation in Room-Temperature Ionic Liquids	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Key Engineering Materials	6. 最初と最後の頁 264 ~ 269
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4028/www.scientific.net/KEM.861.264	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 Aniya Masaru, Ikeda Masahiro	4. 巻 27
2. 論文標題 The bond strength-coordination number fluctuation model of viscosity: Concept and applications	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Polymer Research	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10965-020-02066-9	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 Ohara Koji, Masuda Naoya, Yamaguchi Hiroshi, Yao Atsushi, Tominaka Satoshi, Yamada Hiroki, Hiroi Satoshi, Takahashi Masakuni, Yamamoto Kentaro, Wakihara Toru, Uchimoto Yoshiharu, Utsuno Futoshi, Kimura Shigeru	4. 巻 257
2. 論文標題 Observation of Liquid Phase Synthesis of Sulfide Solid Electrolytes Using Time Resolved Pair Distribution Function Analysis	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 physica status solidi (b)	6. 最初と最後の頁 2000106 ~ 2000106
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssb.202000106	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 -

〔学会発表〕 計52件 (うち招待講演 5件 / うち国際学会 12件)

1. 発表者名 奈良大地, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 AgI-Ag ₂ MO ₄ (M = Mo, W)系のガラス化進行に伴うイオン伝導性の発現III
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 立川翔太, 笠松秀輔, 臼杵毅
2. 発表標題 八口ゲン化銀-炭酸銀混合系の輸送特性
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kenta MATSUTANI, Shusuke KASAMATSU and Takeshi USUKI
2. 発表標題 Training a neural network potential on beyond-semilocal functionals: application to investigation of intermediate-range order in amorphous GeO ₂
3. 学会等名 Psi-k conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kenta MATSUTANI, Shusuke KASAMATSU and Takeshi USUKI
2. 発表標題 GeO ₂ glass structure from neural network potential molecular dynamics -dependence of intermediate-range order on density functional approximation
3. 学会等名 The 18th International Conference on Liquid and Amorphous Metals (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松谷健太, 笠松秀輔, 臼杵毅
2. 発表標題 機械学習力場による高圧GeO ₂ ガラスの密度汎関数依存性と構造解析
3. 学会等名 日本セラミックス協会2023年年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masahiro Ikeda and Masaru Aniya
2. 発表標題 Ionic Conductivity across the Glass Transition in AgI-based Superionic Conducting Glasses: Nonlinear Coupling between Charge Carrier Concentration and Mobility
3. 学会等名 The 3rd International Congress on Advanced Materials Sciences and Engineering (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masaru Aniya and Shosuke Ikeda
2. 発表標題 Studying the Relation between the Optical and Atomic Transport Properties in Ionic Conductors
3. 学会等名 7th International Conference on Functional Materials and Devices (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masaru Aniya, Kotaro Noguchi and Masahiro Ikeda
2. 発表標題 Breakdown of the Stokes-Einstein Law in AgI-AgPO3 and M-PO3 (M = Mg, Ca, Sr, Ba) Melts
3. 学会等名 The 15th Asia Pacific Physics Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 安仁屋勝、池田昌弘
2. 発表標題 アモルファスイオン導電体における緩和のデカップリング
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 池田昌弘、安仁屋勝
2. 発表標題 AgIを基にした超イオン導電ガラスにおける可動イオンの濃度と易動度の関係
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masaru Aniya and Masahiro Ikeda
2. 発表標題 Ionic Conductivity, Fragility and Cooperativity in Structurally Disordered Materials: A Study based on the BSCNF Model
3. 学会等名 17th Asian Conference on Solid State Ionics
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Keisuke Iikawa and Masaru Aniya
2. 発表標題 Bulk Modulus of Ionic Conductors: A Study based on a Microscopic Empirical Model
3. 学会等名 The 6th International Conference on Materials Engineering and Nanotechnology
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 池田昌弘、安仁屋 勝
2. 発表標題 AgIを基にした超イオン導電ガラスのイオン伝導度：可動イオンにおける濃度と易動度の非線形連結
3. 学会等名 第128回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 安仁屋勝
2. 発表標題 超イオン導電体のゼーベック係数：結合揺らぎモデルの観点から
3. 学会等名 第48回固体イオニクス討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Masaru Aniya and Masahiro Ikeda
2. 発表標題 Network Relaxation in Ion Conducting Polymers: A Study based on the BSCNF Model
3. 学会等名 7th International Conference on Advances in Functional Materials
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Masahiro Ikeda and Masaru Aniya
2. 発表標題 Mechanism of Ionic Conduction in AgI-based Superionic Conducting Glasses: A Relation between Charge Carrier Concentration and Mobility of Ions
3. 学会等名 4th Edition of International Conference on Materials Science and Engineering
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 安仁屋勝、池田昌弘
2. 発表標題 アモルファスイオン導電体における緩和のデカップリング II
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 池田昌弘、安仁屋勝
2. 発表標題 コンジット固体電解質における外因性イオン伝導と欠陥形成機構
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Kazuma Hagihara and Masaru Aniya
2. 発表標題 A Model for the Particle Size Dependence of the Ionic Conductivity
3. 学会等名 The 4th International Conference on Materials Engineering and Nanotechnology (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kazuho Murata and Masaru Aniya
2. 発表標題 Particle Size and Dimensionality Dependence of the Gruneisen Parameter
3. 学会等名 The 4th International Conference on Materials Engineering and Nanotechnology (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Masaru Aniya and Masahiro Ikeda
2. 発表標題 Model Description of the Unusual Temperature Dependence of the Viscosity of Metallic Glass-Forming Liquids
3. 学会等名 International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Masaru Aniya and Masahiro Ikeda
2. 発表標題 Model Description of the Viscosity of Glass-Forming Chalcogenides
3. 学会等名 14th International Conference on Solid State Chemistry (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Masaru Aniya and Masahiro Ikeda
2. 発表標題 Network Relaxation and Cooperativity in Ion Conducting Polymers PEO-Li: An Analysis based on the BSCNF Model
3. 学会等名 5th International Conference on Composite Material, Polymer Science and Engineering (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Keita Wakabayashi and Masaru Aniya
2. 発表標題 Describing the Dynamics of Relaxor Ferroelectrics based on the Bond Strength-Coordination Number Fluctuation Model
3. 学会等名 The 5th International Conference on Materials Engineering and Nanotechnology (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安仁屋勝
2. 発表標題 固体イオニクスの周辺分野から考えるイオン伝導機構
3. 学会等名 第47回固体イオニクス討論会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋和樹, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 ニューラルネットワークポテンシャルを用いたイオン伝導性AgI-As ₂ Se ₃ ガラスの分子動力学解析
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 奈良大地, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 AgI-Ag ₂ MO ₃ (M=Mo,W)系のガラス化進行に伴うイオン伝導性の発現
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松谷健太, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 ニューラルネットワークポテンシャルを用いた高圧アモルファスGeO ₂ の構造解析
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 奈良大地, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 AgI-Ag ₂ MO ₃ (M=Mo,W)系のガラス化進行に伴うイオン伝導性の発現II
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松谷健太, 笠松秀輔, 臼杵毅
2. 発表標題 ニューラルネットワークポテンシャル分子動力学計算によるガラス構造解析-中距離構造の密度汎関数近似依存性
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 若林佳汰, 安仁屋勝
2. 発表標題 結合強度・配位数ゆらぎモデルによるPLZTの緩和現象の解析
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 池田昌弘, 安仁屋勝
2. 発表標題 アルカリ及び銀ハライド結晶におけるイオン伝導度の温度及び不純物濃度依存性
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安仁屋勝, 池田昌弘
2. 発表標題 Ag-In-Sb-Te系の粘性の温度依存性
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 池田昌弘、安仁屋勝
2. 発表標題 水性電解質における粘性の温度及び濃度依存性に対するモデル
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 安仁屋勝、池田昌弘
2. 発表標題 ポリマー電解質におけるイオン伝導とフラジリティ
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋和樹, 一條泰也, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 イオン伝導性AgI-As ₂ Se ₃ ガラスの第一原理分子動力学法による解析
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松谷健太, 山内明日美, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 第一原理計算とリバースモンテカルロ法による高圧アモルファスGeO ₂ の構造解析
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松谷健太, 山内明日美, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 第一原理計算とリバースモンテカルロ法による高圧GeO ₂ ガラスの構造解析
3. 学会等名 物性研究所スパコン共同利用・CCMS合同研究会「計算物質科学の新展開2020」
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松谷健太, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 ニューラルネットワークポテンシャルによる高圧アモルファスGeO ₂ の構造解析
3. 学会等名 物性科学におけるデータ科学の今と未来
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高橋和樹, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 AgI-As ₂ Se ₃ ガラスの局所構造とイオン輸送特性の第一原理解析
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松谷健太, 笠松秀輔, 白杵毅
2. 発表標題 ニューラルネットワークポテンシャルを用いた高圧アモルファスGeO ₂ の構造解析
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Masahiro Ikeda, Masaru Aniya
2. 発表標題 Ionic Diffusion and Dissociation in Room-Temperature Ionic Liquids
3. 学会等名 9th International Conference on Advanced Materials and Engineering Materials (ICAMEM2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 池田昌弘, 安仁屋勝
2. 発表標題 構造緩和のアレニウス・クロスオーバー現象とガラス形成能 II
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 安仁屋勝, 池田昌弘
2. 発表標題 アモルファスイオン導電体における緩和のデカップリングと高温物性 II
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 若林佳汰, 安仁屋勝
2. 発表標題 結合強度・配位数ゆらぎモデルによるPLZTの緩和現象の解析
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 野口航太郎, 安仁屋勝, 池田昌弘
2. 発表標題 リン酸塩系融体における粘性とイオン伝導度 II
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 行武太郎, 安仁屋勝
2. 発表標題 NASICON型イオン導電体の熱膨張に対するモデル II
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 村田一步, 安仁屋勝
2. 発表標題 イオン導電体の熱的性質に対する粒子サイズ依存性
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 安仁屋勝, 池田昌弘
2. 発表標題 イオン導電性カルコゲナイドガラスの力学物性: BSCNFモデルによる考察
3. 学会等名 第46回固体イオニクス討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 安仁屋勝
2. 発表標題 物性の相関と化学結合性：イオン導電体を中心に
3. 学会等名 第77回固体イオニクス研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安仁屋勝, 池田昌弘
2. 発表標題 イオン導電性カルコゲナイドガラスの力学物性 III
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 若林佳汰, 安仁屋勝
2. 発表標題 結合強度・配位数ゆらぎモデルによるPLZTの緩和現象の解析 II
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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	尾原 幸治 (Ohara Koji) (00625486)	公益財団法人高輝度光科学研究センター・回折・散乱推進室・主幹研究員 (84502)	

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	安仁屋 勝 (Aniya Masaru) (30221724)	熊本大学・大学院先端科学研究部（理）・教授 (17401)	
研究分担者	笠松 秀輔 (Kasamatsu Shusuke) (60639160)	山形大学・理学部・助教 (11501)	

	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	ラスロー ブスタイ (Laszlo Pusztai)		
研究協力者	ユージン ビチコフ (Eugene Bychkov)		

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			
	フランス	リトラル大学	レンヌ第1大学	
ハンガリー	ハンガリー科学アカデミー			