

令和 6 年 6 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H04607

研究課題名（和文）次世代燃料電池ITFCを実現する電極反応の全貌解明とその高速化

研究課題名（英文）Elucidation of electrode reactions and their acceleration to realize the next generation fuel cell ITFC

研究代表者

小俣 孝久（Omata, Takahisa）

東北大学・多元物質科学研究所・教授

研究者番号：80267640

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 33,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、dry-ITFCの実現に向けた電極材料の開発の一環として、W03プロトン電子混合伝導体を用いたケーススタディーと、新たなプロトン電子混合伝導体の探索を行った。これにより、スパッタリング時のプロセスガスの圧力が、W03薄膜の微構造に与える影響、ガラス電解質/電極界面のプロトン移動抵抗が燃料電池の出力を大きく低減すること、MgIn204およびNbドープしたTiO2が優れたプロトン電子混合伝導体であることなどを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により見出された成果は、メタノールやメチルシクロヘキサンなどの有機液体水素キャリアを直接燃料として使用可能な、300℃付近で作動する燃料電池の実現に貢献する。また、本研究により見出された新たなプロトン電子混合伝導体は、燃料電池に限らず水素の製造や利用に関わる各種のデバイスへの応用も期待でき、物質科学の進展だけでなく、水素社会への移行にも大きく貢献する。

研究成果の概要（英文）：In this study, a case study using a mixed protonic and electronic conductor W03 and exploring new mixed protonic and electronic conductors have been performed as part of the development of electrode materials for the realization of dry-ITFC using a proton conducting glass as an electrolyte. We found that the process gas pressure during sputtering affects the microstructure of the W03 thin film, that the large resistance of proton migration at the glass electrolyte/electrode interface greatly reduces the output power of the fuel cell, and that MgIn204 and Nb-doped TiO2 are excellent mixed protonic and electronic conductors.

研究分野：無機材料化学

キーワード：混合伝導体 プロトン伝導体 燃料電池 空気極材料

1. 研究開始当初の背景

無加湿雰囲気での 250~400°C で動作する中温作動型燃料電池 (dry-ITFC) は、水の管理機器が不要でシンプルなシステムとなる、起動・停止性が良いなど、既存の固体高分子形 (PEFC) や固体酸化物形 (SOFC) 燃料電池の欠点を克服した、水素社会の実現に必須の次世代燃料電池に位置づけられている。これまでに、dry-ITFC の固体電解質としてプロトン伝導性の CsH₂PO₄ などの固体酸やガーネット型構造を有するニオブ/タンタル酸塩などが検討されてきたが、いずれも無加湿雰囲気下や 250°C 以上ではプロトンキャリアを保持できないという本質的課題を有し、dry-ITFC は開発に着手することさえできない「夢の燃料電池」となっていた。2018 年に、300°C で世界最高のプロトン伝導度 (2×10⁻³ S cm⁻¹) を長期間にわたって発現するガラス電解質 (36H ガラス) を代表者のグループが発見し dry-ITFC 用電解質の突破口を開いた (図 1)。ガラス電解質を使用した dry-ITFC で、実用的出力 (> 200 mW cm⁻²) の発生に向けた最後の課題は、電極反応による抵抗

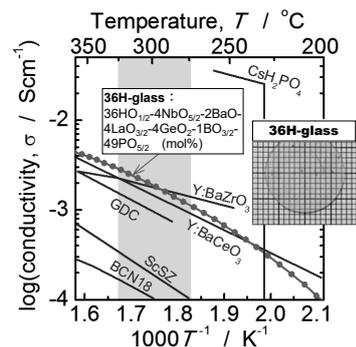


図 1. 代表者らの開発した 36H ガラスのプロトン伝導度のアレニウスプロット

(分極抵抗) が 1 Ω cm² 以下となる電極材料の創製である。ガラスを電解質とした dry-ITFC では、白金などの貴金属電極が有効でないという不思議もあり、最終課題の突破には、中温域ならではの電極材料の科学を解き明かし、優れた電極材料を開発せねばならない。

優れた電極材料の具備すべき要件は、プロトンと電子の混合伝導性であり、WO₃ 系酸化物はその候補の 1 つである。これを足掛かりとして、優れた電極材料を開発することが、実用的な出力を有する dry-ITFC を実現に近づける。

2. 研究の目的

本研究では、WO₃ 系プロトン・電子混合伝導体を電極とした dry-ITFC の電極素反応を律する因子は何か、反応促進の鍵は何かを核心をなす学問的問いに位置づけ、これらの解明を目的として研究を推進し、WO₃ 系プロトン・電子混合伝導体を電極材料へと仕上げるとともに、より優れた電極開発に向けて、新たな材料の探索を行う。

3. 研究の方法

(1) 36H ガラス/WO₃ 積層体の作製。

従来は WO₃ 焼結体上に 36H ガラスをホットプレスすることで、ガラス電解質/WO₃ 積層体を作製していたが、焼結体の強度が弱く再現性良く試料が作製できない等の課題があった。本研究では WO₃ 薄膜をスパッタリング法でガラス基板上に堆積し、積層体を作製する方法を採用した。

(2) 交流インピーダンス法等による電極反応を律する過程の解明。

36H ガラス/WO₃ 薄膜積層体の化学的、電気化学的評価により、電極反応を律する過程を明らかにする。WO₃ のプロトン混合伝導性の詳細を明らかにし、新たなプロトン・n 型電子混合伝導体の探索指針を構築する。

(3) WO₃ 系での知見に基づく、新たなプロトン・n 型電子混合伝導体の探索。

探索指針に従って候補物質を選定し、プロトン・n 型電子混合伝導性を明らかにし、電極反応を高速化する電極材料を探索する。

4. 研究成果

(1) 36H ガラス/WO₃ 積層体の作製

スパッタリング法はもっとも代表的な WO₃ 薄膜の作製方法であり、プロセスガス中の酸素濃度が高くなると結晶性の薄膜が得られることはよく知られているが、プロセスガスの圧力が WO₃ 薄膜の結晶性や組織、物性に及ぼす効果は知られていない。本研究では、36H ガラス/WO₃ 積層体の作製の準備として、WO₃ 焼結体をターゲットとした rf スパッタリング法による WO₃ 薄膜の堆積において、プロセスガス圧力の効果を検討した。

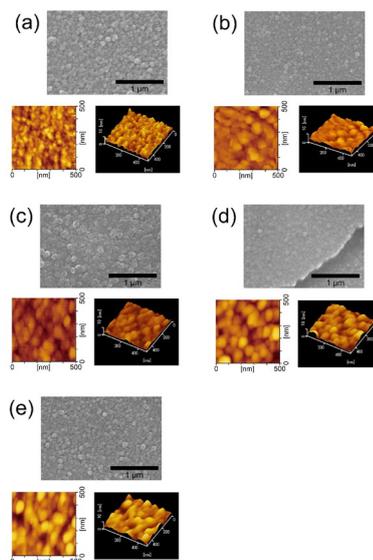


図 2. 各種プロセスガス圧力で堆積した WO₃ 薄膜の SEM 及び AFM 像. (a) 4.0Pa, (b) 1.0Pa, (c) 0.50Pa, (d) 0.35Pa, (e) 0.20Pa.

図2は50% O₂-50% ArをプロセスガスとしてSiO₂ガラス基板上(基板温度250°C)に堆積した薄膜の表面SEM像及びAFM像である。いずれの薄膜でも少し角のある円形の粒子表面が観察された。4.0 Paの薄膜では粒子の直径は10~70 nm程度と観察された。1.0 Paの薄膜では4.0 Paの薄膜と粒子の大きさにそれほど大きな違いは見られないが、小さい粒子の割合が少し少ないように見える。さらに圧力を下げた0.5 Paでは、大きいものでは100 nm程度の粒子も見られ、1.0 Paよりも粒子が大きくなったように見える。さらに0.35, 0.20 Paと圧力が下がると、10 nm程度の小さな粒子の割合が増加したように見える。SEM像で観察されたこのような変化はAFM像ではよりはっきりと観察され、4.0 Paでは10~50 nmであったものが、1.0 Paと0.50 Paでは50~70 nm、0.35 Paと0.20 Paでは80 nm程度の大きな粒子はそのままに、10~20 nmの小さな粒子が散見された。

この一連の成膜ではプロセスガスの圧力が基板上に到達するパーティクルの運動エネルギーを大きく変える。一般に、飛来するパーティクルの運動エネルギーが大きいと、基板上でのマイグレーションが大きくなり、結晶の成長が促進される。また薄膜の堆積速度は1.0 Paは4.0 Paの2倍以上であり、圧力の減少に伴って基板上へ飛来する粒子の運動エネルギーだけでなく数も増加している。従って、4.0 Paから1.0 Paへの圧力の低下による粒子サイズの増大は基板上に飛来する粒子数の増加とその運動エネルギーの増加により結晶成長が促進された結果と理解できる。さらに圧力を下げた場合の粒子サイズの減少は、運動エネルギーの変化からの予測の逆である。成膜速度は0.50 Pa~0.20 Paの範囲ではほぼ一定であるので、基板上に飛来する粒子の数には大きな違いはない。このサイズ変化は後述するように、プロセスガス圧力の低下による、結晶成長場での酸素活量の低下に起因する。

図3は薄膜の面外X線回折パターンである。4.0 Paでは結晶に由来するシャープな回折線は観察されず2θが約21°を中心とするハローピークだけが観察され、堆積した薄膜はX線的にアモルファスであることを示している。1.0~0.20 Paで堆積した薄膜では明瞭な回折線が観察され、圧力の低下により基板に到達する粒子の運動エネルギーが増大し、結晶化が促進されたようだ。図4に示した1.0 Paおよび0.20 Paで堆積した薄膜のRamanスペクトルは、いずれも単斜晶γ-WO₃粉末のそれがブロードニングしたものであったので、1.0~0.20 Paの圧力で堆積した薄膜を構成する結晶相は単斜晶γ-WO₃であると同定された。

図3で観察された回折線が、γ-WO₃粉末のそれに比べて圧倒的に少ないのは、1.0~0.50 Paの薄膜は001配向しており、0.20 Paの薄膜は111配向していることによる。1.0 Paで観測された2θ=22.98°の002回折線は、0.50 Paでは2θ=22.5°へシフトし、その強度も弱くなっている。0.35 Paでは002回折線の強度はさらに弱くなり、41°付近にブロードで弱い222回折線が現れている。このことは、プロセスガス圧力が0.50 Paより小さくなると、001配向から111配向へと配向性を変えることを表している。002回折線のピークシフトを詳細に観察すると(図5(a)), 002回折線はプロセスガス圧力が1.0~0.50 Paの間で連続的にシフトしており、1.0 Paから0.50 Paへのプロセスガス圧力の低下により、格子定数cは0.772 nmから0.792 nmへと2.6%伸びたことを表している(図5(b))。図5(a)では、プロセスガス圧力が1.0 Paから下がると002回折線のシフトに加え、回折線の幅も広がっている。これは001方向の結晶子のサイズが、小さくなっていることに対応する。結晶子サイズをシェラーの式から決定すると、1.0 Paの膜では28 nm、0.50 Paの膜では21 nmである。0.20 Paの222回折線(図2)の幅から求めた結晶子のサイズは6 nmであるので、プロセスガス圧力の低下は結晶子サイズの減少をもたらすことも明らかである。GI-XRDとIn-plane XRDから配向方位以外の方位の結晶子サイズはいずれの方位でも数nmであることも明らかとなっている。

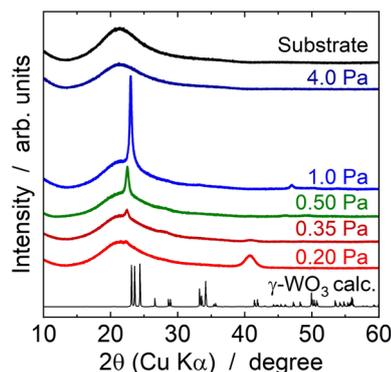


図3. 各種プロセスガス圧力で堆積したWO₃薄膜のXRDパターン。

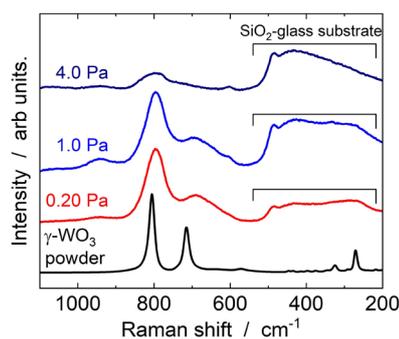


図4. 各種プロセスガス圧力で堆積したWO₃薄膜のRamanスペクトル。

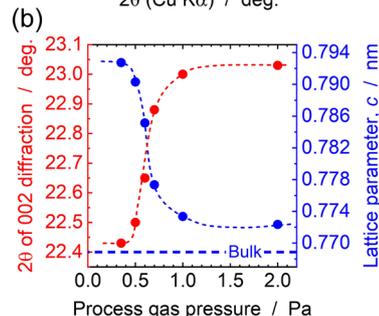
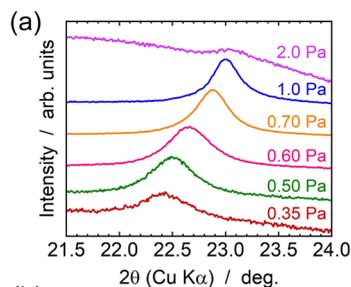


図5. プロセスガス圧力による(a)002回折線と(b)格子定数cの変化。

図 6(a)に薄膜の透過スペクトルを示す。膜によってその厚さが多少異なるため、干渉によるフリンジの位置は多少異なるが、いずれの薄膜も 300 nm 付近に基礎吸収をもち、可視光～近赤外のほぼ全域で透明な薄膜であった。これは、結晶相が γ - WO_3 であり、タングステンが W^{6+} として存在することと一貫している。吸収端付近を詳細にみると (図 6(a) 挿入図) X 線的にアモルファスである 4.0 Pa の膜は吸収端が他の膜よりも明らかに短波長にある。さらに、 c 軸が長くなる 1.0 Pa~0.50 Pa では圧力の低下に伴って、吸収端が長波長側にシフトしている。Koffyberg ら実験結果に基づき多くの研究では γ - WO_3 は間接遷移型半導体として扱われてきたが、最近報告されている第一原理計算では直接遷移型であることが明らかになっている。堆積した薄膜中の γ - WO_3 の光学ギャップ E_g は、図 6(b) の Tauc's plot ($h\nu$ vs. $(ah\nu)^2$) で決定した。1.0 Pa で堆積した薄膜の E_g は 3.89 eV であり、圧力の低下とともに減少し、0.50 Pa で堆積した薄膜では 3.80 eV となった。 E_g の減少が生じる圧力範囲は、 c 軸が伸びる範囲と同じなので、 E_g の減少と c 軸長の変化によるものと言える。

γ - WO_3 の {001} および {002} 面および {111} および {222} 面の原子配列をみると、{001} および {002} 面は酸素原子のみから構成され、{111} および {222} 面はタングステン原子からのみ構成されている。この構造に基づく、結晶成長場での酸素の活量が高いと酸素の露出する 001 面の表面エネルギーが小さく 001 配向が安定化し、逆に、酸素の活量が低いとタングステンが露出する 111 面の表面エネルギーが小さくなり 111 配向が安定化するだろうことに容易に行きつく。1.0 から 0.50 Pa の範囲では、圧力が低下すると酸素活量が低下し 001 面が不安定化するものの、111 配向に転じるには至らない範囲であるために、001 方向での結晶子のサイズの減少が生じたのだろう。結晶の大きさのナノオーダーでの微細化によりしばしば観察される現象として、結晶格子サイズの変化が知られている。 c 軸長が長くなる圧力範囲は、002 回折線がブロードニングする圧力範囲と一致しているので、 c 軸長の増大は γ - WO_3 の結晶子サイズが 28 nm から 21 nm へと減少したことにより生じた変化と理解してよさそうである。

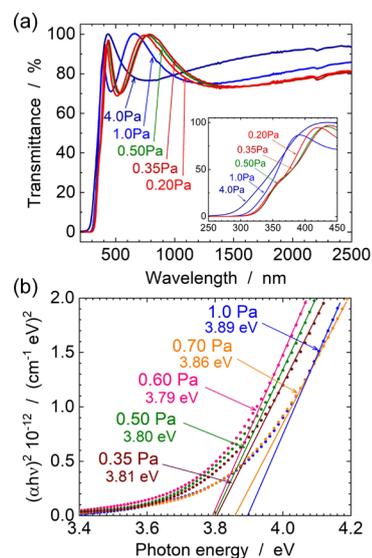


図 6. 各種圧力で堆積した WO_3 薄膜の(a)光透過スペクトルと(b)Tauc's プロット。

(2)交流インピーダンス法等による電極反応を律速する過程の解明

36H ガラスを電解質として、図 7(a)のセルを作製し交流インピーダンスを測定した。300°C で測定した Nyquist プロットを図 7(b)に示す。図 7(b)で観察された円弧は電極/電解質界面、もしくは、電極抵抗に対応する。このセルでは厚さが 0.45 mm の厚い電解質を使用しているが、電極に関連する抵抗は 20 Ω と非常に大きい。また、円弧は 30 分後には 30 Ω まで大きくなっており、電極反応もしくは電極/電解質界面の抵抗が律速過程であり、それが時間とともに大きくなるのが観察された。Pd と 36H ガラスの界面に WO_3 を挿入したセル (図 8(a)) では高周波側の円弧が大きくなり、特に 36H ガラス/ WO_3 /界面の抵抗が非常に大きいことがわかる (図 8(b))。これらから、電極材料には高いプロトン・n 型電子混合伝導性に加え、ガラス/電極界面でのプロトンの移動抵抗を低減する材料が必要であることが明らかとなった。そのような材料の開発にあたり、どのような物質で電極/ガラス界面の抵抗が低減できるかを明らかにせねばならない。

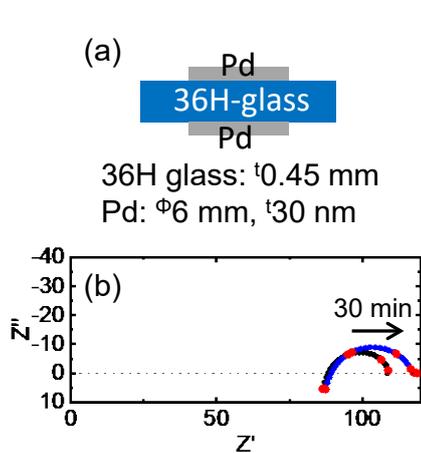


図 7. (a) Pd/36H ガラス/Pd セルの模式図と (b) Nyquist プロット。

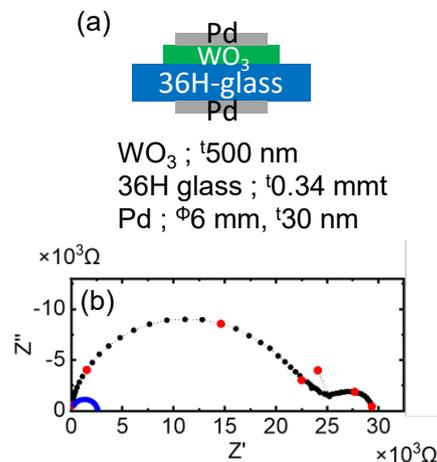


図 8. (a) Pd/ WO_3 /36H ガラス/Pd セルの模式図と (b) Nyquist プロット. (b)の青点は 36H ガラスの Nyquist プロット

(3)WO₃系での知見に基づく、新たなプロトン・n型電子混合伝導体の探索

WO₃の混合伝導性を明らかにする以前の研究により、プロトンのカウンターチャージとなる電子の非局在性が高いn型酸化物半導体では高いプロトン移動度が期待できることが示唆されている。n型電子伝導性酸化物の中でもd¹⁰s⁰電子配置を有するカチオンを含む酸化物は、WO₃のようなd⁰電子配置を持つカチオンを含む酸化物よりも電子は大きな移動度であることが知られている。本研究項目では、イオン注入により結晶中に挿入したプロトンが300°C程度で拡散する現象が報告されているスピネル型MgIn₂O₄を例に、そのプロトン電子混合伝導性を明らかにすることに取り組んだ。

最初にMgIn₂O₄焼結体を作製し、空気中および水素中でその全電気伝導度を測定した(図9)。水素中で昇温すると200°C付近から空気中での値をはずれ、伝導度が大きい側にずれ始めた。水素中で450°Cまで昇温したのち室温まで降温しても、電気伝導度は空気中よりも1.4倍大きな値を保った。雰囲気を変えて空気中へ戻すと、150°C付近から伝導度は小さい側に外れはじめ、450°Cで保持すると最初に空気中で測定した値に戻った。Hall測定および昇温脱離の結果から、水素中での伝導度の増大は、MgIn₂O₄中に水素が溶解し、それがH₂(gas) → 2H_i⁺ + 2e⁻によりイオン化し、伝導電子を供給することによることが明らかとなった。すなわち、MgIn₂O₄結晶は水素雰囲気中で結晶中に水素が溶解しプロトンを生成することが明らかとなった。

次にこのプロトンの伝導性を、36Hガラスをブロッキング電極とした図10(a)に示すセルを用いて研究した。得られたNyquistプロット(図10(b))を図10(c)に示す等価回路でフィッティングし、R1, R2, R3の値を評価した。R1は36Hガラスの抵抗に一致したのでガラスのプロトン輸送抵抗に帰属された。MgIn₂O₄薄膜の厚さを2倍にして同様な測定を行ったところ、R2は約2倍となったことからR2がMgIn₂O₄のプロトン輸送抵抗であることが示された。R3はガラスとMgIn₂O₄との界面もしくはPdの電極反応の抵抗と推察される。R2から求めたプロトン伝導度は250°Cで1.1×10⁻⁶ Scm⁻¹であり、1.0×10¹ Scm⁻¹の電子伝導度を有するプロトン電子混合伝導体であることを明らかにした。プロトンの部分伝導度は非常に小さい値であったが、プロトン密度(2.1×10¹⁸ cm⁻³)から算出されるプロトンの移動度は3.2×10⁻⁶ cm²V⁻¹s⁻¹とWO₃やTiO₂で報告される値よりも大きく、電子の非局在性が高いほどプロトンの移動度は大きいという仮説を支持した。しかし、電極材料に必要な物性である部分プロトン伝導度は大きくないので、よりプロトン密度が大きくなるルチル型NbドープしたTiO₂を候補物質として、そのプロトン電子混合伝導性を検討した。

Ti_{0.96}Nb_{0.04}O₂焼結体を作製し、その伝導度の雰囲気、温度依存性を測定したところ、MgIn₂O₄と同様に水素雰囲気中で高い電気伝導度を呈した。焼結体に電子ブロッキング電極となる36Hガラスをホットプレスし、交流インピーダンスを測定し、MgIn₂O₄の場合と同様にプロトン部分伝導度を決定した。結果を電子伝導度とともに図11に示す。NbドープしたTiO₂では10⁰ Scm⁻¹オーダーの高い電子伝導性を有しながら、250°Cで5×10⁻³ Scm⁻¹の高いプロトン伝導性を併せ持つことが明らかとなった。このプロトン伝導度は電解質に要求される1×10⁻² Scm⁻¹に迫る値であり、活性化エネルギーから外挿すると300°Cでは1×10⁻² Scm⁻¹に達する。

以上のように本研究により、MgIn₂O₄やNbドープしたTiO₂の高いプロトン電子混合伝導性を見出すことに成功した。今後はこれを電極とした燃料電池を構成し、電極性能を研究することで、ガラス電解質/電極界面の抵抗が小さい電極材料が見出され、dry-ITFCが実現へと近づくことが期待できる。

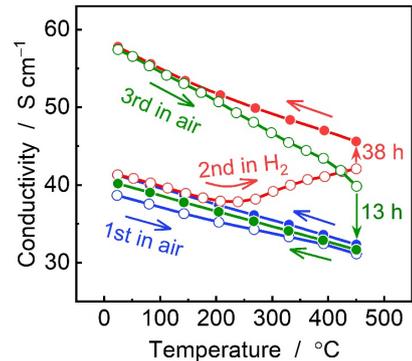


図9. MgIn₂O₄ 焼結体の電気伝導度の温度と雰囲気による変化

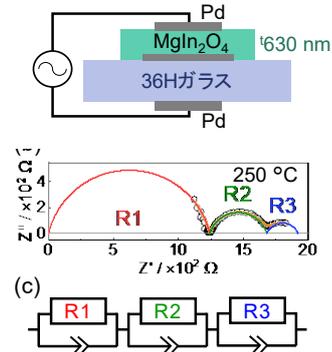


図10. (a)36Hガラスをブロッキング電極としたMgIn₂O₄薄膜のプロトン伝導性を評価するセルの模式図、(b)250°Cで測定したNyquistプロット、(c)(b)のフィッティングに使用した等価回路。

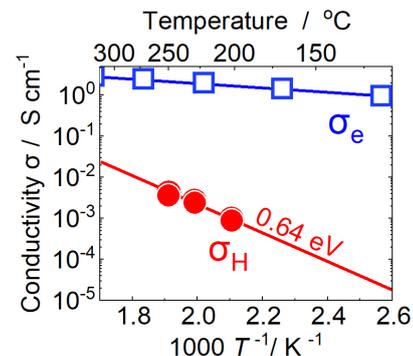


図11. Ti_{0.96}Nb_{0.04}O₂の部分プロトン伝導度(赤色)と部分電子伝導度(青色)のアレニウスプロット。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sharma Aman, Suzuki Issei, Ishiyama Tomohiro, Omata Takahisa	4. 巻 25
2. 論文標題 Enhancing proton mobility and thermal stability in phosphate glasses with WO ₃ : the mixed glass former effect in proton conducting glasses	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 18766 ~ 18774
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3CP01453C	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 Tatebayashi Takashi, Ishiyama Tomohiro, Kinoshita Takuya, Fang Tong, Ren Yang, Zagazusem Khurelbaatar, Fujioka Masaya, Zhao Gaoyang, Liu Meng, Omata Takahisa, Nishii Junji	4. 巻 403
2. 論文標題 High proton conductivity and thermal stability at intermediate temperatures of phosphate glasses and their melts containing rare-earth oxides achieved by high thermal stability of proton carriers	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Solid State Ionics	6. 最初と最後の頁 116413 ~ 116413
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.ssi.2023.116413	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 Omata Takahisa, Sharma Aman, Kinoshita Takuya, Suzuki Issei, Ishiyama Tomohiro, Kohara Shinji, Ohara Koji, Ono Madoka, Fang Tong, Ren Yang, Fujioka Masaya, Zhao Gaoyang, Nishii Junji	4. 巻 9
2. 論文標題 Investigating the role of GeO ₂ in enhancing the thermal stability and proton mobility of proton-conducting phosphate glasses	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry A	6. 最初と最後の頁 20595 ~ 20606
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1TA04445A	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 Ishiyama Tomohiro, Yamaguchi Takuya, Omata Takahisa	4. 巻 130
2. 論文標題 Proton-conducting phosphate glass: Recent development as an electrolyte in intermediate temperature fuel cells	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 1 ~ 9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.21110	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 Omata Takahisa, Sharma Aman, Suzuki Issei, Ishiyama Tomohiro, Kohara Shinji, Ohara Koji, Ono Madoka, Ren Yang, Zagazusem Khurelbaatar, Fujioka Masaya, Zhao Gaoyang, Nishii Junji	4. 巻 23
2. 論文標題 Anhydrous Silicophosphoric Acid Glass: Thermal Properties and Proton Conductivity	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ChemPhysChem	6. 最初と最後の頁 e2021008
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cphc.202100840	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 Ishiyama Tomohiro, Yamaguchi Takuya, Nishii Junji, Yamashita Toshiharu, Kawazoe Hiroshi, Omata Takahisa	4. 巻 169
2. 論文標題 Origin of the Temperature Dependence of Proton Conductivity in Phosphate Glass Prepared by Alkali-Proton Substitution Technique	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of The Electrochemical Society	6. 最初と最後の頁 034517 ~ 034517
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/1945-7111/ac5793	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 工藤咲季、鈴木一誓、山崎智之、小俣孝久、谷村洋、市坪哲	4. 巻 23
2. 論文標題 n型酸化物半導体MgIn2O4の電気伝導性の雰囲気依存性その起源	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 燃料電池	6. 最初と最後の頁 66 ~ 72
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 -

〔学会発表〕 計26件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 14件)

1. 発表者名 T. Omata, T. Ishiyama, J. Nishii
2. 発表標題 Phosphate and phosphoric acid glasses: Promising electrolytes for next-generation fuel and electrolysis cells operating at around 300 °C.
3. 学会等名 2023 Annual Meeting of Society of Glass Technology, September 4-6, 2023, Cambridge, UK (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Omata, A. Sharma, I. Suzuki, T. Ishiyama
2. 発表標題 Enhancing proton migration in phosphate glasses by addition of W03
3. 学会等名 21st International conference on solid state proton conductors, 17-22 September, Fukuoka, Japan (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Ishiyama, Y. Yamada, H. Nagashima, I. Suzuki, M. Fujioka, M. Ono, T. Omata, J. Nishii
2. 発表標題 Suppression of proton migration by SiO6 in phosphate glasses and its mitigation by AlO6 substitution
3. 学会等名 21st International conference on solid state proton conductors, 17-22 September, Fukuoka, Japan (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Omata
2. 発表標題 Controlling proton transport in phosphate glasses
3. 学会等名 3rd ELSICS (Energy Landscapes and Structure in Ion Conducting Solids) Workshop and Bunsen-Colloquium, 4-6 October, 2023, Ulm, Germany (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Omata
2. 発表標題 Phosphate and phosphoric acid glasses as electrolytes in electrochemical cells operating around 300 °C
3. 学会等名 2023 Tohoku-NTUT Joint Symposium, December 11-12, 2023, Taipei, Taiwan (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松尾蘭太郎, 小俣孝久, 石山智大, 山口拓哉
2. 発表標題 中温域でプロトン・電子混合伝導性を発現する材料 $HxWO_3$ の混合伝導性
3. 学会等名 第17回 固体イオニクスセミナー (2023.8.7-9) 山形蔵王温泉ルーセントタカミヤ
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 工藤咲季, 小俣孝久
2. 発表標題 $MgIn_2O_4$ の水素雰囲気における高温でのプロトン-電子混合伝導性
3. 学会等名 第17回 固体イオニクスセミナー (2023.8.7-9) 山形蔵王温泉ルーセントタカミヤ
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 白岩拓真, 小俣孝久
2. 発表標題 TiO_2 の水素雰囲気下中温域におけるプロトン - 電子混合伝導性
3. 学会等名 第17回 固体イオニクスセミナー (2023.8.7-9) 山形蔵王温泉ルーセントタカミヤ
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 工藤咲季, 鈴木一誓, 山崎智之, 小俣孝久
2. 発表標題 $MgIn_2O_4$ の水素雰囲気におけるプロトン-電子混合伝導性
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第36回秋季シンポジウム (2023.9.6-8) 京都工芸繊維大学, 京都市
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 白岩拓真, 山崎智之, 小俣孝久
2. 発表標題 水素雰囲気下におけるNbドーピングしたTiO ₂ のプロトン-電子混合伝導性
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第36回秋季シンポジウム (2023.9.6-8) 京都工芸繊維大学, 京都市
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小俣孝久
2. 発表標題 プロトン伝導性酸化物中のO-H結合の強度を律する機構
3. 学会等名 第49回固体イオニクス討論会 (2023.11.15-17) 北海道大学, 札幌市
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Omata, T. Ishiyama, J. Nishii
2. 発表標題 Proton conducting phosphate glass: A method to inject highly concentrated proton carriers achieving high proton conductivity at intermediate temperatures
3. 学会等名 18th Asian Conference on Solid State Ionics (19-22 February, 2024), Chennai, India (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 S. Kudo, T. Omata
2. 発表標題 Mixed protonic and electronic conduction in MgIn ₂ O ₄ under hydrogen atmosphere and its proton partial conductivity
3. 学会等名 18th Asian Conference on Solid State Ionics (19-22 February, 2024), Chennai, India (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 T. Omata
2. 発表標題 Phosphate and phosphoric acid glasses: Promising materials for electrolytes in next-gen fuel cells and electrolysis cells operating around 300
3. 学会等名 International Seminar on "Emerging Materials for Energy Application", organized by PG & Research Department of Physics, Mannar Thirumalai Naicker College, Madurai, Tamil Nadu, India on 24th Feb 2024. (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 T. Omata
2. 発表標題 Application of statistical approaches to proton-conducting phosphate glasses: Study of the effect of oxide components on proton mobility and thermal stability
3. 学会等名 MRS/ACerS Joint AI and ML Virtual Workshop, (26-27, March, 2024) On-line (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 アマン シャルマ, 鈴木 一誓, 石山 智大, 小俣 孝久
2. 発表標題 リン酸塩ガラスの熱安定性とプロトン伝導性に及ぼすW03添加の効果
3. 学会等名 日本セラミックス協会2024年年会 (2024.3.14-16) 熊本大学黒髪キャンパス, 熊本市
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 白岩拓真, 山崎智之, 小俣孝久
2. 発表標題 NbドープしたTiO2に水素雰囲気下で溶解したプロトンの伝導性と化学環境
3. 学会等名 日本セラミックス協会2024年年会 (2024.3.14-16) 熊本大学黒髪キャンパス, 熊本市
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 T. Omata, A. Sharma, I. Suzuki, T. Ishiyama, J. Nishii
2. 発表標題 Proton conductivity and thermal stability of anhydrous silico- and germano-phosphoric acid glasses
3. 学会等名 23rd International Conference on Solid State Ionics (SSI-23) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 工藤咲季, 鈴木一誓, 小俣孝久
2. 発表標題 d10s0電子配置を有する陽イオンからなる酸化物半導体MgIn ₂ O ₄ の高温での電気伝導性
3. 学会等名 第16回固体イオニクスセミナー
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松尾 蘭太郎, 石山 智大, 山口 拓哉, 小俣 孝久
2. 発表標題 プロトン伝導性リン酸塩ガラスを電子ブロッキング電極とした中温域でのHxWO ₃ のプロトン伝導度測定
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第35回秋季シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小俣 孝久, Aman Sharma, 鈴木 一誓, 石山智大, 西井準治
2. 発表標題 新たな擬固体リン酸ポリマー 無水シリコリン酸・ゲルマノリン酸ガラスの プロトン伝導性と中温域での安定性
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 A. Sharma, I. Suzuki, T. Omata
2. 発表標題 Experimental study of the effect of WO ₃ on proton mobility and thermal stability of proton conducting phosphate glasses
3. 学会等名 17th Asian Conference on Solid State Ionics (ACSSI-2020) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Omata
2. 発表標題 Promotion of proton migration by controlling phosphate framework in proton conducting phosphate glasses
3. 学会等名 Chonnam National University - Tohoku University Ionics Workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Omata, I. Suzuki, A. Sharma, T. Kinoshita, T. Ishiyama, S. Kohara, T. Yamashita, H. Kawazoe, T. Fang, Y. Ren, M. Fujioka, M. Ono, G. Zhao, J. Nishii
2. 発表標題 Understanding the effect of oxide components on proton mobility in phosphate glasses; statistical analysis and experimental studies
3. 学会等名 International workshop on solid state proton conductors (SSPC-20), Online Conference, September 27 - October 1, 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Ishiyama, T. Yamaguchi, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe, T. Omata
2. 発表標題 Technique for evaluating isotope exchange reaction coefficients on proton-conducting phosphate glass surfaces by Raman spectroscopy
3. 学会等名 International workshop on solid state proton conductors (SSPC-20), Online Conference, September 27 - October 1, 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小俣 孝久、Aman Sharma、鈴木 一誓、石山智大、西井準治
2. 発表標題 GeO2添加によるリン酸塩ガラスのプロトン移動度と熱安定性の向上
3. 学会等名 第47回固体イオニクス討論会, 徳島, 2021.12.8
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	石山 智大 (Ishiyama Tomohiro) (30760194)	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	鈴木 一誓 (Suzuki Issei) (60821717)	東北大学・多元物質科学研究所・講師 (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
研究協力者	山崎 智之 (Yamasaki Tomoyuki) (20981690)	東北大学・多元物質科学研究所・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	Xi'an University of Technology			
ドイツ	Philipps - Universitat Marburg	Technische Universitat Darmstadt		