

令和 4 年 5 月 24 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03041

研究課題名(和文) イオン液体/電極界面におけるホッピングによる溶質イオン新規拡散モデルの研究

研究課題名(英文) Study of hopping-like diffusion behavior of metal ions at ionic liquid/electrode interface

研究代表者

今西 哲士 (Imansihi, Akihito)

大阪大学・基礎工学研究科・准教授

研究者番号：60304036

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,200,000円

研究成果の概要(和文)：EC-XPS、クロノアンペロメトリー等を用いてイオン液体中、カソード電位下における電極付近の金属イオンの拡散挙動について我々オリジナルのホッピング拡散モデルをベースに調べた。拡散を制御できる因子として、ホール濃度、イオン液体構造、溶液温度などがあることが分かり、これらが拡散挙動を支配するメカニズムについて明らかにした。また、ホール濃度を制御することによって、極性ドメインから非極性ドメインへ拡散移動パスが変化することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究成果によって、イオン液体中における金属イオン拡散の物理的描像より明確になり、定式化によって拡散係数に関する種々のパラメータが定量的に扱えることになったことの学術的な意義は非常に大きい。また、これによって、イオン液体を電解液として用いることの出来る多くの電気化学デバイスの設計指針がより明確になり、これまで解決が難しいと言われていた問題の解決糸口を与えるものである。こうした意味で本研究が社会に与える意義は大きいものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：We investigated the diffusion behavior of metal ions in ionic liquid close to the electrode under the cathodic potential by using of Electrochemical XPS (EC-XPS) and Chronoamperometry, based on our original hopping-like diffusion model. We found a few factors to control the diffusion behavior of metal ions such as hole concentration, structure of ionic liquid molecule, solution temperature and clarified how those factors affect the diffusion behavior. On the other hand, we found that the diffusion path was switched from polar domain to non-polar domain by controlling the hole concentration.

研究分野：物理化学

キーワード：電気化学 イオン液体 拡散 ホッピング 電極

### 1. 研究開始当初の背景

近年、イオン液体はその難燃性や不揮発性といった性質から、蓄電池や燃料電池、電気化学トランジスタ等、様々なデバイスの新しい電解質として注目を集めている。しかし、その一方でその中で物質挙動は未解明な点が非常に多い。特にイオン液体中における反応物質の拡散挙動に関しては、以前から、従来の液体モデルである Stokes-Einstein 式に従わないことがある等、不可解な点が度々指摘されてきたが、確定的な拡散モデルは出ておらず、大きな争点となっている。特に、こうした拡散挙動は、電極近傍の電気二重層領域からさらに沖合の(電極から数 nm ~ 数百 $\mu\text{m}$ ) 拡散層と呼ばれる領域(電極反応により溶質の濃度がバルクとは異なっている領域)において非常に重要な役割を果たし、上記デバイスにおける電流挙動をはじめとするパフォーマンスに非常に大きな影響を与える。こうした拡散層内での分子挙動は、これまで伝統的な電気化学的手法によって解明が続けられてきたが、マクロスコピックな情報が多く、分子論的な検証を行うには至っていない。一方、申請者は、3 極系電気化学セル中の電極反応を光電子分光法を用いてその場観察出来るシステムを世界で初めて開発、イオン液体電解液中の電極近傍における反応メカニズムの研究に着手した。最近になり、電極近傍における溶質金属イオンの濃度が非常に低い領域が数百 $\mu\text{m}$ にも渡って形成(以下、欠乏層と呼ぶ)(図1)されることを発見した。このことは、拡散層内において溶質イオンが異常高速拡散をしていることを示唆している。さらに、この領域では溶質濃度変化に対して、粘度がほとんど一定にもかかわらず、溶質の拡散係数が大きく変化していることが分かり、Stokes-Einstein 式には全く従わないことが分かった。このことから、液中に形成されたホールを介した新しい液中 Hopping 様のモデルを提案するに至った。このモデルは、上記の拡散挙動論争に非常に大きなインパクトを与えるものである。

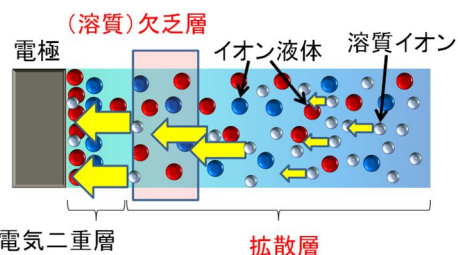


図1: 電極付近の溶液構造の概念図

### 2. 研究の目的

本研究では、申請者が提案した新しい Hopping 様拡散モデルをベースに、In-situ 型の電気化学 X 線光電子分光法(EC-XPS)、AFM、クロノアンペロメトリー、インピーダンス法等を用い、分子論的観点から、電極近傍におけるイオン液体溶媒および溶質金属イオンの拡散挙動や拡散層の形成メカニズムを明らかにすることを目的とする。

### 3. 研究の方法

申請者が提案している新しい Hopping 様拡散モデルをベースに、以下の3つの実験を柱としてイオン液体中電極付近の金属イオンの拡散挙動を調べ、拡散モデル中に含まれる各パラメータの物理的な意味や性質を明らかにし、溶質金属イオンの拡散メカニズムの解明と制御を行う。

- ・クロノアンペロメトリー等で電極還元反応電流の性質を観察し、イオン液体中における金属イオンの拡散係数の金属イオン濃度依存性、イオン液体種依存性、金属イオン種依存性を調べる。

- ・走査型電気化学 XPS (図2) 等を用い、拡散層領域における溶質の濃度空間分布を調べる。これらの実験と先のクロノアンペロメトリーで得られた拡散係数を用いて、拡散層形成プロセスのシミュレーションを行い、実験結果と比較することにより、拡散層形成メカニズムを明らかにする。

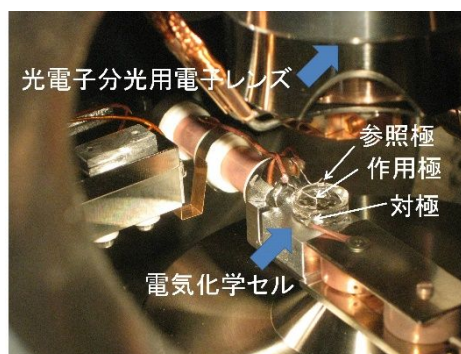


図2: 走査型電気化学 XPS 装置

### 4. 研究成果

#### 4-1. 金属イオン拡散速度制御因子の解明と応用研究

拡散挙動の金属イオン種依存性や反応しない金属イオンの添加効果、それらが電析物の形状に与える影響を詳しく調べた。還元反応中、Scanning EC-XPS 測定より求めた電極付近における  $\text{Ag}^+$  イオンの濃度の空間分布を図3 上段に示す。電位を印加することによって電極表面上で金属イオンが消費され、金属イオン濃度の極めて低い拡散層領域(欠乏層領域(Depletion layer))が形成されているのが分かる。我々の拡散モデルをベースにしたシミュレーションを行った結果、この特徴的な欠乏層領域の形成は、高速 Hopping 拡散が原因であることが分かった。一方、これ

らの溶液に Li+を加えると(図3 下段)、欠乏層の領域が小さくなり、水溶液系でよく見られるような、電極表面から急激に濃度が立ち上がるタイプの濃度分布が観察された。これらの結果は、Li+イオンが金属イオンのホッピングサイトであるホール(イオン液体間に形成される空隙)を占有したために、高速な Hopping 拡散が抑制されたことを示唆している。図3の右列に、それぞれの溶液中で電極表面上に析出した Ag 電析物の SEM 像を示す。Ag+/BMI-TFSA 溶液の場合、デンドライト状の析出物が観察されたのに対し、Ag+/Li+/BMI-TFSA 溶液の場合は、粒子状の析出物が観察された。これは、Li+添加により Hopping 拡散が抑制されることにより、単位時間あたりの金属電析量が大きく抑制され、速度論支配的な析出(デンドライト析出)から、熱力学支配的な析出(粒状析出)に変化したものと考えられる。一方、同様の実験を、Au<sup>3+</sup>イオンを溶かした溶液に対して行くと、Ag+溶液の場合と同様に、Li+イオン添加によって Hopping 拡散は抑制され、欠乏層は小さくなるものの、Ag+イオン溶液ほどの添加効果は見られなかった。

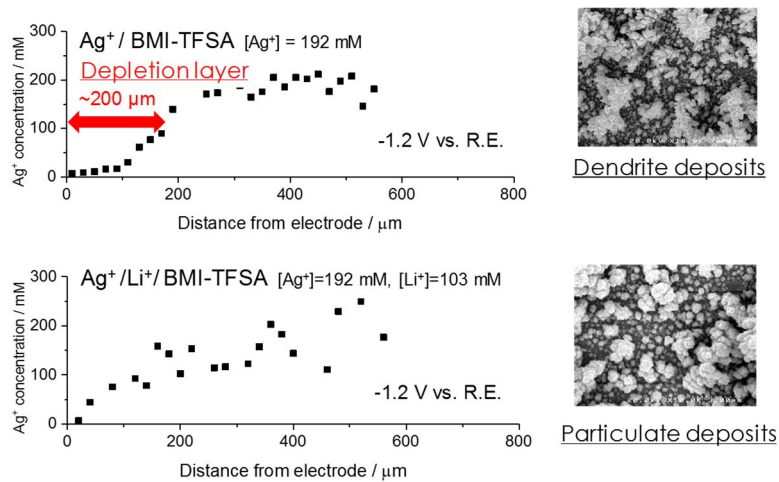


図3:(上段)Scanning EC-XPS 測定より求めた電極付近における Ag+イオンの濃度の空間分布。(下段)上段と同じ溶液に Li+イオンを加えた場合。それぞれの右側に電極上に析出した Ag の SEM 像を示す。

このほかにも、種々の金属イオンで実験を行うことにより、金属イオンとイオン液体分子との相互作用だけでなく、金属イオンがホールにトラップされた際のデバイ振動数などが拡散挙動に大きく効いていることが分かり、これらを利用することによって、電極近傍における金属イオン拡散の速度を厳密に制御できることが分かった。これらの研究結果は、種々の電気化学デバイスにおける溶質拡散電流を制御できる新しい手法を提案できる。さらに電析形状が制御可能になるということは、現在二次電池等で問題になっている金属イオン析出によるショート問題等の解決にも資する結果であり、応用面においてのインパクトは大きいものとする。

#### 4-2. 金属イオン拡散パスに関する研究

カソード印加電位下(拡散律速条件下)において 200 mM Ag+/BMI-TFSA 電解液中の Ag+イオンの拡散挙動を観察したところ、拡散律速によって濃度が薄くなった電極近辺で、Hopping 様の非常に早い拡散挙動が観察された。同じ溶液に 100 mM Li+を添加した電解液を用いて実験を行ったところ、Li+イオンがホッピングサイトであるホールを占有することによって、Ag+イオンの Hopping 拡散が抑制されることがわかった。次に、200 mM Ag+/BMI-TFSA 電解液に 500 mM Li+を加えた溶液を用いて、同様の実験を行ったところ、100 mM Li+を加えた Ag+/BMI-TFSA 溶液中よりも

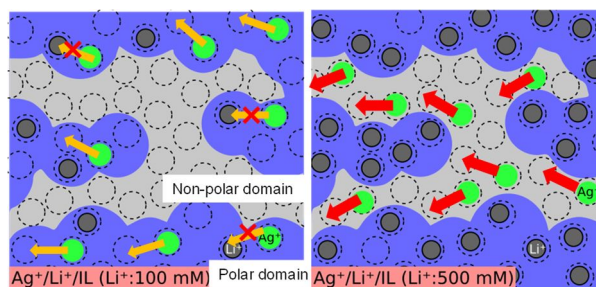


図4: BMI-TFSA 中の Ag+イオン拡散のようす。(左) Li+イオンを 100 mM 加えたとき。(右) Li+イオンを 500 mM 加えたとき。

Ag+イオンの Hopping 拡散が促進されることがわかった。これまでの我々の研究では、添加した Li+は、ホッピングサイトであるホールを占有することによって、ホール濃度を下げ、速い Hopping 拡散を抑制する効果を持つとしていたが、この結果はこれまでのモデルと矛盾することになる。そこで、500 mM Li+添加溶液のホール濃度を観察したところ、100 mM Li+添加溶液よりも少し小さいか、ほとんど同じであることが分かった。このことは、500 mM Li+添加溶液での Hopping 拡散の促進は、ホール濃度の変化によるものではないことを示している。次に、温度依存性の実験を行い、Hopping 拡散の障壁エネルギーを見積もったところ、100 mM Li+添加溶液と比較して、500 mM Li+添加溶液では、障壁が小さくなっていることが分かり、これが Hopping 拡

散促進の主要原因であることが分かった。更なる詳しい実験によって、この障壁の変化は、過剰に添加した Li<sup>+</sup>イオンによって、Ag<sup>+</sup>イオンの拡散パスが、極性ドメインから非極性ドメインに移ったことによるものであることが分かった(図 4)。

一方、このモデルが正しいならば、拡散パスが極性から非極性ドメインに移るときの Li<sup>+</sup>添加量閾値が、2種のドメインの体積比に依存すると考えられる。そこで、異なるドメイン構造を持つ複数種のイオン液体を用いて、ホッピング拡散係数と Li<sup>+</sup>添加量との関係を調べた。少量の Li<sup>+</sup>を添加した際には、添加量増加に伴い拡散係数が減少(ホール占有による)するが、400 mM あたりから、急激に増加に転じていることが分かった。同じ実験を、EMI-TFSA に対して行ったところ、拡散係数が増加に転じる閾値が、約 550 mM へシフトしたことが確認された。これは、非極性ドメインを形成するアルキル鎖の短い EMI-TFSA の方が、BMI-TFSA と比べて極性ドメインの体積が相対的に大きいため、極性ドメイン内のホール(ホッピングサイト)を埋めるのに必要な Li<sup>+</sup>添加量が多くなり、閾値が増加したとも考えられる。

これらの結果は、イオン液体のドメイン構造が溶質金属イオンの拡散挙動に強い影響を与えることを示唆している。イオン液体がドメイン構造を持つことは、以前から知られており、これが物質輸送に影響を与えることも指摘されていた。しかし、これらのメカニズムを定量的に扱うことは難しかったため、物質輸送の“制御”のこれらのドメインを積極的に利用することはできなかった。今回の研究結果は、物質輸送に与える影響が大きく異なる2つのドメインを利用する術を得たと言っても良く、今後の研究分野の発展に寄与するものと考えられる。



## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計17件（うち査読付論文 17件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Y. Yokota, H. Miyamoto, A. Imanishi, K. Inagaki, Y. Morikawa, K. Fukui	4. 巻 20
2. 論文標題 Structural and dynamic properties of 1-butyl-3-methyl-imidazolium bis(trifluoromethanesulfonyl)imide / mica and graphite interfaces revealed by molecular dynamics simulation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 6668-6676
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7cp07313e	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 Y. Yokota, H. Miyamoto, A. Imanishi, J. Takeya, K. Inagaki, Y. Morikawa, K. Fukui	4. 巻 20
2. 論文標題 Microscopic properties of ionic liquid / organic semiconductor interfaces revealed by molecular dynamics simulations	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 13075-13083
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8CP01043A	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 T. Tsuda, A. Imanishi, T. Sano, A. Sawamura, T. Kamidaira, C. Y. Chen, S. Uchida, S. Kusumoto, M. Ishikawa, S. Kuwabata	4. 巻 279
2. 論文標題 In situ electron microscopy and X-ray photoelectron spectroscopy for high capacity anodes in next-generation ionic liquid-based Li batteries	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Electrochimica Acta	6. 最初と最後の頁 136-142
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.electacta.2018.05.081	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 H. Miyamoto, Y. Yokota, A. Imanishi, K. Inagaki, Y. Morikawa, K. Fukui	4. 巻 20
2. 論文標題 Potential dependent changes of structural and dynamical properties of 1-butyl-3-methylimidazolium bis(trifluoromethanesulfonyl)imide on graphite electrode revealed by molecular dynamics simulation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 19408-19415
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c8cp02733a	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 Y. Yao, R. Izumi, T. Tsuda, Y. Oshima, A. Imanishi, N. Oda, S. Kuwabata	4. 巻 27
2. 論文標題 Platinum and PtNi Nanoparticle-Supported Multiwalled Carbon Nanotube Electrocatalysts Prepared by One-Pot Pyrolytic Synthesis with an Ionic Liquid	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Appl. Energy Mater.	6. 最初と最後の頁 4865-4872
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.9b00561	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 Y. Yokota, S. Akiyama, Y. Kaneda, A. Imanishi, K. Inagaki, Y. Morikawa, K. Fukui	4. 巻 19
2. 論文標題 Computational investigations of electronic structure modifications of ferrocene-terminated self-assembled monolayers: Effects of electron donating/withdrawing functional groups attached on ferrocene moiety	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 32715-32722
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7CP07279A	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 K. Amano, Y. Yokota, T. Ichii, N. Yoshida, N. Nishi, S. Katakura, A. Imanishi, K. Fukui, T. Sakka	4. 巻 19
2. 論文標題 Relationship between Force Curve Measured by Atomic Force Microscopy in Ionic Liquid and its Density Distribution on a Substrate	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 30504-30512
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7CP06948K	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 Y. Yokota, H. Miyamoto, A. Imanishi, K. Inagaki, Y. Morikawa, K. Fukui	4. 巻 20
2. 論文標題 Structural and dynamic properties of 1-butyl-3-methyl-imidazolium bis(trifluoromethanesulfonyl)imide / mica and graphite interfaces revealed by molecular dynamics simulation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 6668-6676
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C7CP07313E	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 Y. Yokota, H. Miyamoto, A. Imanishi, J. Takeya, K. Inagaki, Y. Morikawa, K. Fukui	4. 巻 20
2. 論文標題 Microscopic properties of ionic liquid / organic semiconductor interfaces revealed by molecular dynamics simulations	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys., 20, 13075 (2018) .	6. 最初と最後の頁 13075-13083
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8CP01043A	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 T. Tsuda, A. Imanishi, T. Sano, A. Sawamura, T. Kamidaira, C. Chen, S. Uchida, S. Kusumoto, M. Ishikawa, S. Kuwabata	4. 巻 279
2. 論文標題 In situ electron microscopy and X-ray photoelectron spectroscopy for high capacity anodes in next-generation ionic liquid-based Li batteries	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Electrochimica. Acta	6. 最初と最後の頁 136-142
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.electacta.2018.05.081	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 H. Miyamoto, Y. Yokota, A. Imanishi, K. Inagaki, Y. Morikawa, K. Fukui	4. 巻 20
2. 論文標題 Potential dependent changes of structural and dynamical properties of 1-butyl-3-methylimidazolium bis (trifluoromethanesulfonyl)imide on graphite electrode revealed by molecular dynamics simulation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 19408
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8CP02733A	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 Hosoya Kei, Kamidaira Toshiki, Tsuda Tetsuya, Imanishi Akihito, Haruta Masakazu, Doi Takayuki, Inaba Minoru, Kuwabata Susumu	4. 巻 1
2. 論文標題 Lithium-ion battery performance enhanced by the combination of Si thin flake anodes and binary ionic liquid systems	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Materials Advances	6. 最初と最後の頁 625 ~ 631
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0MA00296H	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 Morino Yusuke, Yokota Yasuyuki, Hara Hisaya, Bando Ken-ichi, Ono Sakurako, Imanishi Akihito, Okada Yugo, Matsui Hiroyuki, Uemura Takafumi, Takeya Jun, Fukui Ken-ichi	4. 巻 22
2. 論文標題 Rapid improvements in charge carrier mobility at ionic liquid/pentacene single crystal interfaces by self-cleaning	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 6131 ~ 6135
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0CP00149J	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 Okaue Daijiro, Tanabe Ichiro, Ono Sakurako, Sakamoto Kota, Sato Taiki, Imanishi Akihito, Morikawa Yoshitada, Takeya Jun, Fukui Ken-ichi	4. 巻 124
2. 論文標題 Ionic-Liquid-Originated Carrier Trapping Dynamics at the Interface in Electric Double-Layer Organic FET Revealed by Operando Interfacial Analyses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 2543 ~ 2552
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b10636	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 Morino Yusuke, Yokota Yasuyuki, Bando Ken-ichi, Hara Hisaya, Imanishi Akihito, Takeya Jun, Fukui Ken-ichi	4. 巻 118
2. 論文標題 <i>Operando</i> atomic force microscopy study of electric double-layer transistors based on ionic liquid/rubrene single crystal interfaces	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 243301 ~ 243301
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0053848	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 IMANISHI Akihito	4. 巻 88
2. 論文標題 In situ measurement of diffusion behavior of metal ion close to electrode in ionic liquid	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Denki Kagaku	6. 最初と最後の頁 109 ~ 113
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5796/denkikagaku.20-FE0011	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 IMANISHI Akihito	4. 巻 72
2. 論文標題 Interpretation and Use of Mott-Schottky Plots at the Semiconductor-liquid Interfaces	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of The Surface Finishing Society of Japan	6. 最初と最後の頁 479 ~ 486
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4139/sfj.72.479	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47件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 23件)

1. 発表者名 Akihito Imanishi
2. 発表標題 Control of Diffusion Behavior of Metal Ions at Ionic Liquid/Electrode Interface and Its Effect on Electrodeposits
3. 学会等名 235th ECS(The Electrochemical Society) Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ken-ichi Fukui, Akihiro Takahashi, Hiroki Ueda, Akihito Imanishi
2. 発表標題 Potential dependent diffusion behavior of Mg <sup>2+</sup> ions at interfacial ionic liquid on Au electrode analyzed by electrochemical XPS
3. 学会等名 21st International Vacuum Congress (IVC-21) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Akihito Imanishi, Hideki Ishikawa, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Influence of Nano Structure of TiO <sub>2</sub> Single Crystal Electrode on Water Photooxidation Reaction Process -Facet and Edge Effects-
3. 学会等名 The 29th International Conference on Photochemistry (ICP2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡上大二朗, 大野桜子, 阪本康太, 名藤広晃, 佐藤大輝, 田邊一郎, 今西哲士, 竹谷純一, 福井賢一
2. 発表標題 電気二重層有機 FETの動作過程における界面イオン液体の分子スケールダイナミクス
3. 学会等名 第13回分子科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小山翔大, 福井賢一, 今西哲士
2. 発表標題 イオン液体中電極近傍におけるホッピング拡散に誘起された金属イオン欠乏層形成と金属電析への影響
3. 学会等名 第13回分子科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡上大二朗, 大野桜子, 阪本康太, 名藤広晃, 佐藤大輝, 田邊一郎, 今西哲士, 竹谷純一, 福井賢一
2. 発表標題 電気二重層有機トランジスタの不安定動作を引き起こす界面イオン液体の分子ダイナミクス
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡上大二朗, 大野桜子, 阪本康太, 名藤広晃, 佐藤大輝, 田邊一郎, 今西哲士, 竹谷純一, 福井賢一
2. 発表標題 イオン液体ゲート電気二重層有機トランジスタの界面層構造とデバイス動作安定性との相関
3. 学会等名 2019日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今西哲士
2. 発表標題 走査型電気化学光電子分光法と電気化学測定法を用いた電極界面近傍におけるイオン液体と溶質金属イオンの挙動解析
3. 学会等名 2019日本表面真空学会学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Akihito Imanishi, Shodai Koyama, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Depletion Layer Formation Induced by Unusual Diffusion Behavior of Metal Ions at Ionic Liquid/Electrode Interface and Its Effect on Electrodeposits
3. 学会等名 OKINAWA COLLOIDS 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今西哲士, 小山翔大, 津田哲哉, 桑畑進, 福井賢一
2. 発表標題 電極近傍における金属イオンのホッピング様拡散挙動とこれに誘起されたイオン欠乏層形成および金属電析への影響
3. 学会等名 第10回イオン液体討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Daijiro Okaue, Ichiro Tanabe, Sakurako Ono, Kota Sakamoto, Taiki Sato, Akihito Imanishi, Yoshitada Morikawa
2. 発表標題 The Reversible Structuring of Ionic-Liquid Monolayer in Electric Double Layer OFET Revealed by Operand Investigations
3. 学会等名 International Symposium for Nano Science (ISNS2019)（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroki Ueda, Akihiro Takahashi, Ichiro Tanabe, Akihito Imanishi, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Structure of ionic liquid / Au(111) electrode interface dependent on Mg <sup>2+</sup> concentration and an electrode voltage analyzed by XPS
3. 学会等名 International Symposium for Nano Science (ISNS2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takahiro Koyake, Kota Sakamoto, Akihito Imanishi, Ichiro Tanabe, Jun Takeya, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 28. Local Operational Mechanism of Electric Double Layer OFET at the Ionic liquid/Organic Semiconductor Interface revealed by Electrochemical Frequency Modulation AFM Analyses
3. 学会等名 International Symposium for Nano Science (ISNS2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yoshinobu Fujihira, Ken-ichi Fukui, Akihito Imanishi
2. 発表標題 Behavior of Solute Metal Ions at Ionic Liquid/Electrode Interface Studied by Electrochemical Impedance Spectroscopy
3. 学会等名 International Symposium for Nano Science (ISNS2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Akihito Imanishi
2. 発表標題 Influence of Nano-Structuring of Substrate Materials on Local Structure of Ionic Liquid
3. 学会等名 231st ECS ( The Electrochemical Society) Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 今西哲士
2. 発表標題 単結晶金属酸化物表面の物理化学特性
3. 学会等名 横浜国立大学グリーン水素研究センターセミナー（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 阪本康太, 大野桜子, 岡上大二 朗, 名藤広晃, 佐藤大輝, 今西哲士, 田邊一郎, 竹谷純一, 福井賢一
2. 発表標題 イオン液体を用いた電気二重層FETのキャリア移動度と界面構造との相関
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 岡上大二朗, 大野桜子, 阪本康太, 名藤広晃, 佐藤大輝, 田邊一郎, 今西哲士, 竹谷純一, 福井賢一
2. 発表標題 イオン液体 / ルブレノFETの界面局所構造とキャリア移動度
3. 学会等名 第5回インタラクティブ交流会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Akihito Imanishi, Nao Miyaguchi, Koji Takagi, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Influence of Nano-structuring of Electrode on Solvation layer of Ionic Liquid Studied by Impedance Spectroscopy
3. 学会等名 The 8th International Symposium on Surface Science (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Daijiro Okaue, Sakurako Ono, Kota Sakamoto, Hiroaki Nato, Taiki Sato, Ichiro Tanabe, Akihito Imanishi, Jun Takeya, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Correlation between Interfacial Career Mobility and Local Structure of Ionic Liquid / Rubrene Interface in Organic FET Device
3. 学会等名 The 8th International Symposium on Surface Science (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Chiaki Katayama, Fumiya Chujo, Akihito Imanishi, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Diffusion of magnesium ion in ionic liquid thin film on Au(111) analyzed by angle resolved X-ray photoelectron spectroscopy
3. 学会等名 The 8th International Symposium on Surface Science (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小田奈緒子, 紀本千智, 有村孝, 津田哲哉, 桑畑進, 福井賢一, 今西哲士
2. 発表標題 ナノ細孔内イオン液体中における金属イオンの挙動とX線還元による金属微粒子形成
3. 学会等名 第8回イオン液体討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Chiaki Katayama, Fumiya Chujo, Akihito Imanishi, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Analysis on diffusion behavior of Mg <sup>2+</sup> solute in ionic liquid thin film on Au(111) using angle-resolved XPS
3. 学会等名 5th Kansai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium (国際学会)
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 岡上大二朗, 大野桜子, 阪本康太, 名藤広晃, 佐藤大輝, 田邊一郎, 今西哲士, 竹谷純一, 福井賢一
2. 発表標題 電気二重層有機FETの界面に生じるキャリア - イオン液体間相互作用の解析
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akihito Imanishi
2. 発表標題 Influence of Nanoscale Surface Structure of TiO <sub>2</sub> Single Crystal Electrode on Water Photooxidation Reaction Process
3. 学会等名 233rd ECS(The Electrochemical Society) Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akihito Imanishi, Shodai Koyama, Tetsuya Tsuda, Susumu Kuwabata, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Unusual Diffusion Behavior of Metal Ions at Ionic Liquid/Electrode Interface during Electrodeposition and Its Effect on Electrodeposits
3. 学会等名 69th Annual Meeting of the International Society of Electrochemistry (ISE 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akihiro Takahashi, Chiaki Katayama, Taiki Sato, Saeyun Kim, Akihito Imanishi, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Diffusion of Mg <sup>2+</sup> Ions at Interfacial Ionic Liquid on Au Electrode Analyzed by AR-XPS and EC-XPS
3. 学会等名 69th Annual Meeting of the International Society of Electrochemistry (ISE 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 岡上大二朗, 大野桜子, 阪本康太, 名藤広晃, 佐藤大輝, 田邊一郎, 今西哲士, 竹谷純一, 福井賢一
2. 発表標題 電気二重層有機FET動作環境下におけるイオン液体/有機半導体界面の電気二重層キャパシタンス測定
3. 学会等名 2018年電気化学秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋堯広, 片山千滉, 佐藤大輝, 田邊一郎, 今西哲士, 福井賢一
2. 発表標題 光電子分光による金属電極上のイオン液体中の金属イオン拡散挙動の新規解析手法
3. 学会等名 第122回触媒討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 A. Imanishi, S. Koyama, T. Tsuda, S. Kuwabata, K. Fukui
2. 発表標題 Diffusion Behaviour of Metal Ions at Ionic Liquid/Electrode Interface and Its Effect on Electrodeposits
3. 学会等名 The 27th Conference on Molten Salts and Ionic Liquids (EuCheMSIL 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Daijiro Okaue, Sakurako Ono, Kota Sakamoto, Hiroaki Nato, Taiki Sato, Ichiro Tanabe, Akihito Imanishi, Jun Takeya, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Analyses on Carrier Trapping Behavior of Ionic Liquid Electrolyte in Electric Double Layer Organic FET
3. 学会等名 14th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-14) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akihiro Takahashi, Chiaki Katayama, Taiki Sato, Saeyun Kim, Ichiro Tanabe, Akihito Imanishi, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Diffusion Behavior of Mg <sup>2+</sup> Ions at Interfacial Ionic Liquid on Metal Electrode Analyzed by Electrochemical XPS
3. 学会等名 14th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-14) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小山翔大, 津田哲哉, 桑畑進, 福井賢一, 今西哲士
2. 発表標題 イオン液体/電極界面における金属イオンの高速拡散挙動と金属電析への影響
3. 学会等名 第9回イオン液体討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 片山千滉, 中条文哉, 田邊一郎, 今西哲士, 福井賢一
2. 発表標題 角度分解 XPS測定による Mg <sup>2+</sup> の濃度勾配をもつ イオン液体薄膜中での拡散挙動評価
3. 学会等名 2018年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 岡上大二朗, 大野桜子, 阪本康太, 名藤広晃, 佐藤大輝, 田邊一郎, 今西哲士, 竹谷純一, 福井賢一
2. 発表標題 電気二重層有機FET界面におけるイオン液体のキャリアトラップダイナミクス
3. 学会等名 2018年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Daijiro Okaue, Sakurako Ono, Kota Sakamoto, Hiroaki Nato, Taiki Sato, Ichiro Tanabe, Akihito Imanishi, Jun Takeya, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Dynamics of Carrier Trapping / Detrapping by Ionic Liquid at the Interface of Electric Double Layer Organic FET
3. 学会等名 The International Symposium for Materials Scientists III (ISMS III) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 片山千滉, 高橋堯広, 田邊一郎, 今西哲士, 福井賢一
2. 発表標題 X線光電子分の深さ方向解析によるイオン液体薄膜中でのMg <sup>2+</sup> の拡散挙動
3. 学会等名 日本化学会第99回春季年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小山翔大, 津田哲哉, 桑畑進, 福井賢一, 今西哲士
2. 発表標題 イオン液体中での金属イオン拡散機構の解明とアノード電析反応挙動への影響
3. 学会等名 電気化学会第86回大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今西哲士
2. 発表標題 酸化物半導体科学からのアプローチ
3. 学会等名 横浜国立大学グリーン水素研究センターセミナー (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤 大輝, 上田 滉輝, 高橋 堯広, 田邊 一郎, 今西 哲士, 福井 賢一
2. 発表標題 電気化学 X 線光電子分光法によるグラファイト電極の電位に応じた界面イオン液体の局所構造変化の解析
3. 学会等名 2020年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Akihito Imanishi
2. 発表標題 Diffusion Control of Metal Ions Close to Electrode in Ionic Liquid -Effect of Local Structure of Ionic Liquid-
3. 学会等名 239th The Electrochemical Society Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉本浩正, 小山翔大, 福井賢一, 今西哲士
2. 発表標題 電極付近におけるイオン液体の局所構造が溶質金属イオンの拡散挙動へ与える影響
3. 学会等名 2021年電気化学秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 今西哲士, 吉本浩正, 小山翔大, 福井賢一
2. 発表標題 イオン液体のドメイン構造が還元電位印可下の金属イオン拡散挙動へ与える影響
3. 学会等名 第11回イオン液体討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Taiki Sato, Hiroki Ueda, Akihiro Takahashi, Yuki Hirota, Ichiro Tanabe, Akihito Imanishi, Ken-ichi Fukui
2. 発表標題 Analyses of the interfacial ionic liquid on Au (111) electrode using electrochemical XPS through the precursor film region
3. 学会等名 9th International Symposium on Surface Science (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Daijiro Okaue, Ichiro Tanabe, Sakurako Ono, Kota Sakamoto, Taiki Sato, Akihito Imanishi, Yoshitada Morikawa, Jun Takeya, Ken-Fukui
2. 発表標題 Ionic-Liquid-Originated Carrier Trapping Dynamics for the Electric Double-Layer Organic FET Revealed by Operando Interfacial Analyses
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 A. Imanishi, S. Koyama, K. Yoshimoto and K. Fukui
2. 発表標題 Influence of Local Structure of Ionic Liquid on Diffusion Behavior of Metal Ions Close to Electrode
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宇野弘樹, 宮口奈穂, 福井賢一, 今西哲士
2. 発表標題 電極の半球状ナノ構造がもたらすイオン液体の電気化学的挙動の変化
3. 学会等名 電気化学会第89回大会
4. 発表年 2022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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------