

令和 3 年 6 月 19 日現在

機関番号：32689

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K19120

研究課題名(和文)高密度レドックス流体：蓄電科学を革新する新原理の探索

研究課題名(英文)Development of High-density Redox Fluid for Charge Storage

研究代表者

小柳津 研一(Oyaizu, Kenichi)

早稲田大学・理工学術院・教授

研究者番号：90277822

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：「レドックス活性なコロイド流体に蓄電容量密度の限界は存在するか」といった問いへの挑戦を通して、高密度レドックス流体を与える高分子ナノ粒子を創出した。また、ナノ粒子間の交換反応に基づく電荷輸送・貯蔵機構を解明し、高速・大容量フロー蓄電の基礎原理を明確にした。具体的には、有機安定ラジカル種の可逆で速い電子授受に着目し、ラジカルを電荷交換席として繰り返し単位あたり高密度に置換した非晶質ポリマーによる高速電荷輸送を実現した。この高分子を活物質とした有機ラジカル電池を動作実証し、高分子が水系電解質に分散したナノ粒子の形態で高密度蓄電を担う斬新な有機フロー活物質を創製した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高密度レドックス高分子のナノ粒子は、有機レドックスフロー電池の活物質として有用であることを明らかにした。有機フロー活物質をカソライトおよびアノライトとして用い、多孔質セパレータを組み合わせた有機レドックスフロー電池を試作した。これを用いて、充放電のサイクル特性やレート特性など、蓄電に関わる基礎的性質を明らかにし、ナノ粒子当たりの定量的な電荷貯蔵により、高密度レドックス流体として振る舞うことを明確にした。これは、有機物のみで構成された環境合致の蓄電デバイスであり、大容量蓄電にも適合する次世代型の大型電源としての可能性を有することを明確にした。

研究成果の概要(英文)：Polymer nanoparticles capable of giving high density redox fluids were developed, in pursuit of the challenge to unravel the limit of charge storage density anticipated for redox-active colloidal fluid. Mechanisms of charge transport and storage based on the exchange reaction of nanoparticles were determined, which led to the design principle of organic materials for fast and large capacity energy storage. In particular, amorphous polymers bearing organic robust radicals per repeating unit to undergo the exchange reaction were developed, which demonstrated the fast charge transport properties. The polymers were employed as the electrode-active materials in organic radical batteries, especially in organic redox-flow batteries in which the aqueous electrolyte dispersion of the nanoparticulate polymers allowed high density and reversible charge storage.

研究分野：高分子化学

キーワード：有機電極活物質 ナノ粒子 電荷貯蔵 電子授受 レドックスフロー電池

1. 研究開始当初の背景

レドックスフロー電池は、2つの電極とセパレータからなる電気化学セルと、レドックス活性な活物質を貯蔵するタンクから構成されている。タンクに蓄えられた正極および負極活物質は、ポンプによってセルに供給され、充放電深度によらず電解質溶液に溶解または分散しているため、それぞれカソライトおよびアノライトと呼ばれ、バナジウムほか多様なレドックス活性種が検討されている。セパレータは支持電解質イオンを透過する一方、これらのレドックス活性物質に対してはクロスオーバー抑制のため不透過であることが求められる。

有機レドックスフロー電池は、レドックス活性な有機物質をカソライトまたはアノライト、あるいはその両方として用いたレドックスフロー電池である。有機レドックスフロー電池は、希少原料を一切使用せず、ありふれた元素のみで大容量蓄電を可能とする点で、高い拡張性もった環境合致の大規模蓄電技術としての潜在力を有する。また、有機レドックス活性種を対象とすることにより、有機物ならではの分子設計の自由度や、流動特性など化学工学的な観点からの設計性も期待できる。硫酸電解液を使用する現在のバナジウムレドックスフロー電池と比較して、有機レドックスフロー電池は中性電解質水溶液から有機系電解液まで幅広く選択できるため、安全性、環境適合性、拡張性の観点から注目され、研究例が急増している。しかし、セパレータには上記のような透過選択性を有する高分子電解質膜を用いることが必須であり、これが抵抗損失による効率低下の大きな原因となっていた。Li イオン電池に用いられているような低損失の多孔質セパレータの適用に向けては、レドックス活性なコロイド流体が有望であると考えられるが、その具体的なアイデアや方法論についてはこれまで殆ど検討例がなかった。

2. 研究の目的

本研究は、レドックス活性なコロイド流体を与えるポリマーの微粒子に着目し、その蓄電容量密度の限界を追究することにより、高密度かつ高レート特性を有するレドックスフロー電池として動作実証することを目指した。具体的には、高密度レドックス流体を与えるナノ構造体を、電子交換に基づく電荷伝播の解析から創出し、微粒子全体が可逆的に素早く充放電する、いわゆる「レドックス凝縮相」を形成するコロイド流体の設計指針を導出するとともに、交換反応に基づく電荷輸送・貯蔵機構の解明を経て、高速・大容量フロー蓄電の基礎原理を明確にすることを目的として研究展開した。

3. 研究の方法

電解質に分散した微粒子の形態で電荷貯蔵を担うポリマーを合成するため、可逆的かつ速い電子授受能を有する有機レドックス席に着目した。2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-1-オキシ (TEMPO) (P1) やピオロゲン (P2)、キノン類 (P3) などを電荷交換席として繰返し単位あたり高密度に置換した非晶質ポリマーを設計し、水系電解質への分散安定性や、蓄電密度・速度 (レート特性)、サイクル特性などを解析し、有機レドックスフロー電池 (図1) のプロトタイプの基本性能から分子設計にフィードバックさせる方法で、レドックス活性なコロイド流体を創出した。粒子内の電荷拡散係数 D を求め、自己電子交換の二次反応速度定数 k_{ex} を主な因子としてレート特性を定量的に把握した。有機レドックス席の速い外圏の電子移動が、ポリマー粒子でも大きな k_{ex} を与えることを、多様な実例をもとに検討し、これを一般性ある知見として確立することを試みた。実測容量がレドックス席数と直線関係にある条件 (即ちレドックス凝縮相の形成要件) を明らかにし、レドックス活性種として理想的振舞いを示す範囲を分散粒子の特性として把握した。

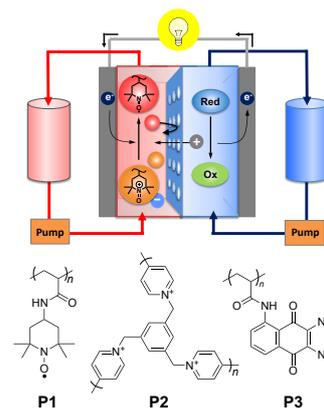


図1. 有機レドックスフロー電池を構成したポリマーの例.

4. 研究成果

図1に例示した高密度レドックスポリマーの微粒子は、電解質溶液に分散させた場合、その表面部位だけでなく内部まで粒子全体としてレドックス活性を発現することを明らかにした。これは無機酸化物や金属の微粒子にはない有機物ならではの性質であり、高いエネルギー密度を達成するために有用である。また、微粒子のサイズ効果に基づいて、多孔膜によるクロスオーバー抑制がレドックスフロー電池においても可能であり、従前的高分子電解質膜を用いた場合に比べ、内部抵抗が顕著に低減することが明確になった。迅速かつ繰り返し可能な充放電特性を得るには、電気化学的に可逆な酸化還元反応を行うレドックス活性分子と、電解液で膨潤し、対イオンによる電荷補償を妨げないポリマー骨格を選択する必要がある。このような性質を持ったポリマーとして、P1をはじめ多様な高密度レドックスポリマーを合成し、電荷輸送・蓄積に関わる基礎的な性質を以下のように解明した。

レドックスポリマーの微粒子が、粒子「全体」でレドックス反応を行うためには、電荷補償イオンの拡散が充分行き渡るとともに、微粒子の内部で自己電子交換反応が生じし、反応場が3次元的に拡がる必要がある。電解質に分散した微粒子がポンプによる流動によって集電極まで輸送される際の輸送性を、以下のように解析した。

レドックス活性種が電解質に濃度 C_{bulk} で均一分散している場合 (図 2 右), 輸送性を表す拡散項 (D_{app}) には物理的拡散 (D_{phys}) と, Dahms-Ruff 式に基づく交換反応による電荷拡散 (D_{et}) の両方が寄与する (ただし, D_{et} は電子移動に基づく拡散係数, δ は電子移動距離)。拡散電流 (J_{total}) を与える流束は, 両者の和で表される ($J_{\text{total}} = J_a + J_d$)。

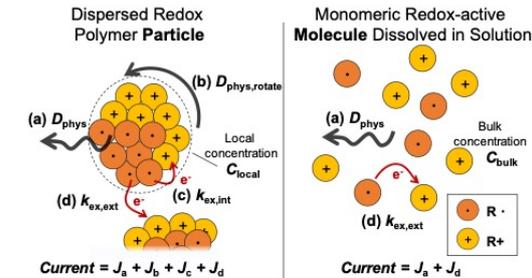


図 2. レドックスポリマー微粒子の電荷輸送モデル。

$$D_{\text{app}} = D_{\text{phys}} + D_{\text{et}} = D_{\text{phys}} + \frac{k_{\text{ex}}\delta^2 C_{\text{bulk}}}{6}$$

一方, 微粒子 (図 2 左) の D_{phys} は, r を球状粒子の半径, η を溶液粘度として, Stokes-Einstein の式で表される (ただし η は粘度, $P(r)$ は確率密度関数)。

$$D_{\text{phys}} = \frac{k_B T}{6\pi\eta r} \left(= \int_0^\infty \frac{k_B T}{6\pi\eta r} P(r) dr \right)$$

クロノクーロメトリの電流応答に Cottrell 式を適用して得られる拡散係数 (D_{app}) は, $J_{\text{total}} = (nF/\pi^{1/2}t^{1/2})D_{\text{app}}^{1/2}C_{\text{bulk}}$ による。しかし, 微粒子内の電荷交換を議論する場合は, 濃度項として当量のレドックス席が均一分散した濃度 (C_{bulk}) ではなく, 微粒子「内」のレドックス席濃度 (C_{local}) を適用する必要がある。微粒子の回転に基づく拡散項 ($D_{\text{phys,rotate}}$) は, D_{phys} の 4/3 倍と近似でき, 微粒子間の電荷交換に基づく拡散項 ($k_{\text{ex,ext}}$) による流束への寄与は, 電子ホッピング確率が距離に対して指数関数的に減少するため無視できる ($J_{\text{total}} = J_a + J_b + J_c + J_d \approx J_a + J_b + J_c$) ので,

$$J_{\text{total}} = \frac{nF}{\pi^{1/2}t^{1/2}} \left\{ \left(\frac{7D_{\text{phys}}}{4} \right)^{1/2} C_{\text{bulk}} + x D_{\text{et}}^{1/2} C_{\text{local}} \right\}$$

ここで, 修正因子 x は時間平均での表面被覆率に相当する。この式を用いると, $C_{\text{bulk}} > \text{ca. } 0.1 \text{ M}$ の領域で x が支配的になることが明確になった。つまり, 動的光散乱 (DLS) から求まる微粒子の D_{phys} よりも一桁大きい D_{app} が微粒子のレドックス反応において観測され, 高密度レドックスコロイド流体の実例が見出された。レドックス活性を有し, かつ, 分子サイズが分布を持たない離散的粒径を有するコロイド粒子として検討されたトリス(2,2'-ビピリジル)ルテニウム(II)の dendrimer は, 粒径がナノサイズ ($r = 20 \text{ nm}$) であったため D_{phys} の寄与が大きく, 交換反応に基づく粒子内の電荷拡散の効果を実証することは不可能であった。一方, p -クロロメチルスチレンとジビニルベンゼンの乳化重合により得られた微粒子にビオロゲンを高分子反応で導入した場合, 粒径が大きいため ($r = 400 \text{ nm}$) 交換反応の寄与が現れ, D_{phys} より若干大きい値の D_{app} が観測されているが, このような実例は極めて乏しく, また, C_{bulk} を系統的に変えた定量的な解析はなされていなかった。本研究は, 一連のレドックスポリマー微粒子を用いて, 交換反応の寄与を初めて明確にした成果と位置付けられる。

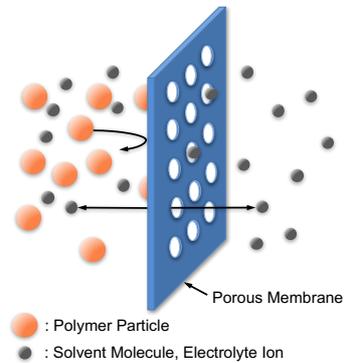


図 3. 多孔膜セパレータによるレドックスポリマー微粒子のクロスオーバー抑制。

分子量が充分大きい場合, 統計的広がりを持った溶存高分子鎖でも排除体積効果に基づいて多孔膜によるクロスオーバー抑制が可能である。しかし, 濃厚溶液を用いると高粘度になり, ポンプによる流動の際のエネルギー損失が増大するため, エネルギー密度の限界が問題となっていた。これに対し, 本研究で明らかにしたメソスケールサイズの微粒子からなるコロイド流体では, 高濃度の微粒子分散液でも低粘性が維持され, 多孔膜によるクロスオーバー抑制 (図 3) が容易であり, 孔径 30 nm の多孔膜を介して理論容量比 95% 以上でサイクル特性高く繰り返し充放電できることが明確になった (図 4)。

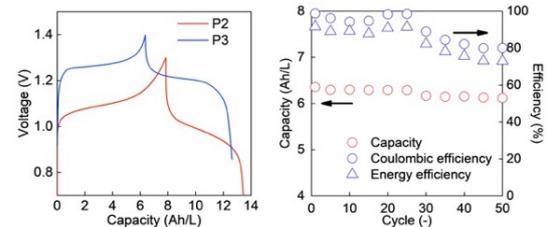


図 4. カソライト (P1) およびアノライト (P2 または P3) に有機レドックスポリマー微粒子分散液を用いた全有機レドックスフロー電池の動作実証データ。

以上を総合して, 交換反応に立脚した高速・高密度の可逆的電荷蓄積を担うコロイド流体について, その基礎を解明するとともに, 全有機レドックスフロー電池を構成する斬新な活物質として, 安定性・耐久性の観点も含め明らかにした。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計31件（うち査読付論文 31件 / うち国際共著 4件 / うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Wang Yu, Hasegawa Yui, Serikawa Takuma, Oyaizu Kenichi, Nishide Hiroyuki	4. 巻 56
2. 論文標題 Ultrahigh oxygen-scavenging norbornene copolymers bearing imidazolyl iron complexes for fabricating active and sustainable packaging films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 964 ~ 967
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9cc08788e	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 Wang Yu, Nakamura Ryota, Suga Takeo, Li Shengtao, Ohki Yoshimichi, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi	4. 巻 2
2. 論文標題 Facile Synthesis of Isotactic Polyacrylonitrile via Template Polymerization in Interlayer Space for Dielectric Energy Storage	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Polymer Materials	6. 最初と最後の頁 775 ~ 781
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsapm.9b01074	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 Hatakeyama-Sato Kan, Tezuka Toshiki, Umeki Momoka, Oyaizu Kenichi	4. 巻 142
2. 論文標題 AI-Assisted Exploration of Superionic Glass-Type Li ⁺ Conductors with Aromatic Structures	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 3301 ~ 3305
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.9b11442	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 Oka Kouki, Furukawa Shuhei, Murao Saki, Oka Tatsuya, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi	4. 巻 56
2. 論文標題 Poly(dihydroxybenzoquinone): its high-density and robust charge storage capability in rechargeable acidic polymer-air batteries	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 4055 ~ 4058
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0CC00660B	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 Hatakeyama Sato Kan, Tezuka Toshiki, Ichinoi Rieka, Matsumono Satoshi, Sadakuni Karin, Oyaizu Kenichi	4. 巻 13
2. 論文標題 Metal Free, Solid State, Paperlike Rechargeable Batteries Consisting of Redox Active Polyethers	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ChemSusChem	6. 最初と最後の頁 2443 ~ 2448
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cssc.201903175	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 Hatakeyama-Sato Kan, Akahane Tomoki, Go Choitsu, Kaseyama Takahiro, Yoshimoto Takuji, Oyaizu Kenichi	4. 巻 5
2. 論文標題 Ultrafast Charge/Discharge by a 99.9% Conventional Lithium Iron Phosphate Electrode Containing 0.1% Redox-Active Fluoflavin Polymer	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Energy Letters	6. 最初と最後の頁 1712 ~ 1717
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acseenergylett.0c00622	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 Oka Kouki, Strietzel Christian, Emanuelsson Rikard, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi, Str?mme Maria, Sj?din Martin	4. 巻 13
2. 論文標題 Conducting Redox Polymer as a Robust Organic Electrode Active Material in Acidic Aqueous Electrolyte towards Polymer?Air Secondary Batteries	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ChemSusChem	6. 最初と最後の頁 2280 ~ 2285
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cssc.202000627	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 Suwa Koki, Suga Takeo, Oyaizu Kenichi, Segawa Hiroshi, Nishide Hiroyuki	4. 巻 10
2. 論文標題 Phenolic antioxidant-incorporated durable perovskite layers and their application for a solar cell	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 MRS Communications	6. 最初と最後の頁 312 ~ 316
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1557/mrc.2020.25	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 Oka Kouki, Kaiwa Yusuke, Furukawa Shuhei, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi	4. 巻 2
2. 論文標題 Reversible Hydrogen Fixation and Release under Mild Conditions by Poly(vinylquinoxaline)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Polymer Materials	6. 最初と最後の頁 2756 ~ 2760
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsp.0c00338	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 Wang Yu, Oyaizu Kenichi, Nishide Hiroyuki	4. 巻 92
2. 論文標題 Allylic hydrocarbon polymers complexed with Fe(II)(salen) as a ultrahigh oxygen-scavenging and active packaging film	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Pure and Applied Chemistry	6. 最初と最後の頁 871 ~ 882
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1515/pac-2020-0102	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 Hatakeyama-Sato Kan, Umeki Momoka, Tezuka Toshiki, Oyaizu Kenichi	4. 巻 2
2. 論文標題 Charge-Transfer Complexes for Solid-State Li ⁺ Conduction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Electronic Materials	6. 最初と最後の頁 2211 ~ 2217
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.0c00393	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 Hatakeyama-Sato Kan, Oyaizu Kenichi	4. 巻 1
2. 論文標題 Integrating multiple materials science projects in a single neural network	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Communications Materials	6. 最初と最後の頁 49
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s43246-020-00052-8	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 Oka Kouki, L?fgren Rebecka, Emanuelsson Rikard, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi, Str?mme Maria, Sj?din Martin	4. 巻 7
2. 論文標題 Conducting Redox Polymer as Organic Anode Material for Polymer Manganese Secondary Batteries	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ChemElectroChem	6. 最初と最後の頁 3336 ~ 3340
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cefc.202000711	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 Oka Kouki, Kaiwa Yusuke, Kataoka Miho, Fujita Ken ichi, Oyaizu Kenichi	4. 巻 2020
2. 論文標題 A Polymer Sheet Based Hydrogen Carrier	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 European Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 5876 ~ 5879
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/ejoc.202001004	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 Watanabe Seigo, Oyaizu Kenichi	4. 巻 93
2. 論文標題 Methoxy-Substituted Phenylsulfide Polymer with Excellent Dispersivity of TiO ₂ Nanoparticles for Optical Application	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Bulletin of the Chemical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 1287 ~ 1292
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20200170	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 Miyake Junpei, Ogawa Yasunari, Tanaka Toshiki, Ahn Jinju, Oka Kouki, Oyaizu Kenichi, Miyatake Kenji	4. 巻 3
2. 論文標題 Rechargeable proton exchange membrane fuel cell containing an intrinsic hydrogen storage polymer	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Communications Chemistry	6. 最初と最後の頁 138
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s42004-020-00384-z	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 Wylie Luke, Blesch Thomas, Freeman Rebecca, Hatakeyama-Sato Kan, Oyaizu Kenichi, Yoshizawa-Fujita Masahiro, Izgorodina Ekaterina I.	4. 巻 8
2. 論文標題 Reversible Reduction of the TEMPO Radical: One Step Closer to an All-Organic Redox Flow Battery	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Sustainable Chemistry & Engineering	6. 最初と最後の頁 17988 ~ 17996
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssuschemeng.0c05687	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 Oka Kouki, Muraio Saki, Kobayashi Kazuki, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi	4. 巻 3
2. 論文標題 Charge- and Proton-Storage Capability of Naphthoquinone-Substituted Poly(allylamine) as Electrode-Active Material for Polymer?Air Secondary Batteries	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 12019 ~ 12024
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.0c02178	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 Hatakeyama-Sato Kan, Tezuka Toshiki, Nishikitani Yoshinori, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi	4. 巻 48
2. 論文標題 Synthesis of Lithium-ion Conducting Polymers Designed by Machine Learning-based Prediction and Screening	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 130 ~ 132
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.180847	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 Hatakeyama-Sato Kan, Nagano Takashi, Noguchi Shiori, Sugai Yota, Du Jie, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi	4. 巻 1
2. 論文標題 Hydrophilic Organic Redox-Active Polymer Nanoparticles for Higher Energy Density Flow Batteries	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Applied Polymer Materials	6. 最初と最後の頁 188 ~ 196
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsapm.8b00074	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 Hatakeyama Sato Kan, Wakamatsu Hisato, Yamagishi Kento, Fujie Toshinori, Takeoka Shinji, Oyaizu Kenichi, Nishide Hiroyuki	4. 巻 15
2. 論文標題 Ultrathin and Stretchable Rechargeable Devices with Organic Polymer Nanosheets Conformable to Skin Surface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Small	6. 最初と最後の頁 1805296 ~ 1805296
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smll.201805296	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 Wylie Luke, Oyaizu Kenichi, Karton Amir, Yoshizawa-Fujita Masahiro, Izgorodina Ekaterina I.	4. 巻 7
2. 論文標題 Toward Improved Performance of All-Organic Nitroxide Radical Batteries with Ionic Liquids: A Theoretical Perspective	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Sustainable Chemistry & Engineering	6. 最初と最後の頁 5367 ~ 5375
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssuschemeng.8b06393	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 Perticarari Sofia, Grange Elodie, Doizy Tom, Pellegrin Yann, Quarez Eric, Oyaizu Kenichi, Fernandez-Ropero Antonio Jesus, Guyomard Dominique, Poizot Philippe, Odobel Fabrice, Gaubicher Jo?l	4. 巻 31
2. 論文標題 Full Organic Aqueous Battery Based on TEMPO Small Molecule with Millimeter-Thick Electrodes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemistry of Materials	6. 最初と最後の頁 1869 ~ 1880
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.8b03282	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 Hatakeyama-Sato Kan, Ichinoi Rieka, Sasada Yoshito, Sasaki Yusuke, Oyaizu Kenichi, Nishide Hiroyuki	4. 巻 48
2. 論文標題 n-Type Redox-active Benzoylpyridinium-substituted Supramolecular Gel for an Organogel-based Rechargeable Device	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 555 ~ 557
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.190085	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 Kato Ryo, Oka Kouki, Yoshimasa Keisuke, Nakajima Masataka, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi	4. 巻 40
2. 論文標題 Reversible Hydrogen Releasing and Fixing with Poly(Vinylfluorene) through a Mild Ir Catalyzed Dehydrogenation and Electrochemical Hydrogenation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Macromolecular Rapid Communications	6. 最初と最後の頁 1900139 ~ 1900139
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/marc.201900139	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 Oka Kouki, Strietzel Christian, Emanuelsson Rikard, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi, Str?mme Maria, Sjdin Martin	4. 巻 105
2. 論文標題 Characterization of PEDOT-Quinone conducting redox polymers in water-in-salt electrolytes for safe and high-energy Li-ion batteries	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Electrochemistry Communications	6. 最初と最後の頁 106489 ~ 106489
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.elecom.2019.106489	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 Hatakeyama-Sato Kan, Masui Tomomi, Serikawa Takuma, Sasaki Yusuke, Choi Wonsung, Doo Seok-Gwang, Nishide Hiroyuki, Oyaizu Kenichi	4. 巻 2
2. 論文標題 Nonconjugated Redox-Active Polymer Mediators for Rapid Electrocatalytic Charging of Lithium Metal Oxides	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 6375 ~ 6382
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.9b01007	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 Oka Kouki, Kato Ryo, Oyaizu Kenichi, Nishide Hiroyuki	4. 巻 28
2. 論文標題 Poly(vinylidenedibenzothiophenesulfone): Its Redox Capability at Very Negative Potential Toward an All Organic Rechargeable Device with High Energy Density	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Advanced Functional Materials	6. 最初と最後の頁 1805858 ~ 1805858
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adfm.201805858	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 Suwa Koki, Tanaka Suguru, Oyaizu Kenichi, Nishide Hiroyuki	4. 巻 67
2. 論文標題 Arylamine polymers prepared via facile paraldehyde addition condensation: an effective hole-transporting material for perovskite solar cells	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Polymer International	6. 最初と最後の頁 670 ~ 674
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pi.5545	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 Hatakeyama-Sato Kan, Wakamatsu Hisato, Katagiri Ryu, Oyaizu Kenichi, Nishide Hiroyuki	4. 巻 30
2. 論文標題 An Ultrahigh Output Rechargeable Electrode of a Hydrophilic Radical Polymer/Nanocarbon Hybrid with an Exceptionally Large Current Density beyond 1 A cm ²	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 1800900 ~ 1800900
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.201800900	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 Nishikitani Yoshinori, Cho Tetsuyuki, Uchida Soichi, Nishimura Suzushi, Oyaizu Kenichi, Nishide Hiroyuki	4. 巻 83
2. 論文標題 Polymer-Based White-Light-Emitting Electrochemical Cells with Very High Color-Rendering Index Based on Blue-Green Fluorescent Polyfluorenes and Red-Phosphorescent Iridium Complexes	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ChemPlusChem	6. 最初と最後の頁 463 ~ 469
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/cplu.201800198	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15件 (うち招待講演 13件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 蓄エネ機能高分子の設計: 有機電池と水素キャリア高分子
3. 学会等名 2020年度水素・燃料電池材料研究会講座 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 機械学習による全固体リチウムイオン電池用電解質の設計
3. 学会等名 第10回CSJ化学フェスタ（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 水素を貯める高分子
3. 学会等名 第69回高分子討論会（特定テーマ依頼発表）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 蓄エネ機能高分子の設計：有機電池・水素キャリアの最新動向
3. 学会等名 プリントデバイス技術研究会第25回技術交流会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 有機電極活物質を用いた二次電池・レドックスフロー電池
3. 学会等名 電気化学会第396回電池技術委員会講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 機能高分子設計のための機械学習とその実践 (イオン伝導性などを例として)
3. 学会等名 NEC生産財Value Chainセミナー, 「研究開発領域のデジタル化とMIの取組について」(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 イオン伝導性高分子設計のための機械学習とその実践
3. 学会等名 第9回CSJ化学フェスタ, 「量研特別企画: データ科学・インフォマティクスは高分子機能性材料研究に利用できるか?」(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 有機系蓄電池の電荷貯蔵機構と将来性
3. 学会等名 応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小柳津研一, 畠山歓
2. 発表標題 蓄エネ機能高分子の設計と有機電池の新展開 (特定テーマ依頼発表)
3. 学会等名 第68回高分子討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Oyaizu
2. 発表標題 Redox-active Polyelectrolytes for Organic Fast-charging Batteries
3. 学会等名 16th International Symposium on Polymer Electrolytes (ISPE-16) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Oyaizu
2. 発表標題 Polymers for Efficient Charge and Hydrogen Storage
3. 学会等名 Organic Battery Days (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 分子構造の解析
3. 学会等名 高分子学会関東支部『高分子のための機器分析セミナー』(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Oyaizu
2. 発表標題 Polymers for Organic Rechargeable Batteries
3. 学会等名 1st G' L' owing Polymer Symposium in KANTO (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 レドックス活性高分子を用いた有機二次電池
3. 学会等名 日本学術振興会情報科学用有機材料第142委員会『インテリジェント有機材料部会第140回研究会, 有機2次電池開発のいま』(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小柳津研一
2. 発表標題 蓄電機能高分子の分子設計と電極活物質への応用
3. 学会等名 高分子学会関東支部第94回千葉地域活動高分子研究交流講演会(招待講演)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計3件

1. 著者名 小柳津研一	4. 発行年 2020年
2. 出版社 東京化学同人	5. 総ページ数 1
3. 書名 “ラジカル電池”, 『基礎高分子科学』第2版, 高分子学会編(分担執筆)	

1. 著者名 小柳津研一	4. 発行年 2020年
2. 出版社 三共出版	5. 総ページ数 20
3. 書名 “エネルギー変換材料”, 錯体化学会フロンティア選書『フロンティア機能高分子金属錯体』, 山元公寿, 西原寛編(分担執筆)	

1. 著者名 K. Oyaizu, H. Nishide	4. 発行年 2019年
2. 出版社 CRC Press/Taylor & Francis	5. 総ページ数 13
3. 書名 “Redox-active Polymers as an Organic Energy Storage Material”, in Handbook of Conducting Polymers	

〔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
---------	---------