

電子やイオン等の能動的制御と反応
2020年度採択研究代表者

2022年度
年次報告書

竹入 史隆

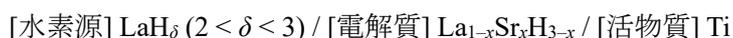
自然科学研究機構 分子科学研究所
助教

複合アニオン固体電解質を用いたヒドリドインターカレーション反応の開拓

研究成果の概要

水素の負イオンであるヒドリド(H⁻)は大きな分極率をもつ1価のアニオンであり、それがイオン導電種としてふるまう物質(ヒドリドイオン導電体)の報告が増えている。本研究課題では、中低温(<500 °C)で高い導電率を示す H⁻導電体を固体電解質として用いたインターカレーション反応を開拓し、通常の焼成反応では得られない新たなヒドリド化合物の創製に挑戦する。得られた化合物では、H⁻の強い還元力や特異な軌道相互作用に起因するユニークな化学・物理機能の発現が期待できる。

2021年度までの「電解質探索」によって、蛍石型構造を有する La_{1-x}Sr_xH_{3-x} が室温で作動可能なヒドリド導電体であることを見出していた。2022年度には次の電気化学セル:



を構築し、 $x \geq 0.2$ の組成領域において、外部からくわえた電気量のほぼ 100%を活物質の水素反応に用いることに成功した。ここ 10 年ほどでヒドリドイオン導電体の物質報告は増加しているが、その電気化学的な評価のほとんどは交流インピーダンス法による伝導度評価にとどまっており、実際のセルにおける電解質作動には大きな価値がある。一方で、 $x = 0.1$ では活物質の十分な水素化反応が進行せず、アルカリ土類金属の添加量が電子伝導性の抑制に大きな影響を与えることが示唆された。本成果は近日中に論文投稿予定である。またこれまでの材料探索の過程で見つかったいくつかの新物質については、ヒドリド導電現象のみならず、幅広い切り口での探求と論文化をすすめている。

上述の室温作動型ヒドリド電解質の開発に成功したため、本研究のメインターゲットである電気化学的なヒドリドインターカレーション反応に本格的に着手した。ホスト化合物として層状構造を有する遷移金属酸化物などを選択し、遷移金属イオンの酸化をともなうインターカレーション反応を狙ったが、電流または電圧の印加後もホストの XRD パターンに変化は見られなかった。外部から印加した電気エネルギーが界面での水素発生 ($2\text{H}^- \rightarrow \text{H}_2$) に用いられている可能性が高い。水素発生を抑制できる条件でのヒドリド挿入が可能なホストを探索する必要があり、引き続き実験と計算の両面から検討を進める。