

課題番号	GR060
------	-------

**先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)  
実施状況報告書(平成24年度)**

本様式の内容は一般に公表されます

研究課題名	ナノプロトニクス燃料電池の創成
研究機関・ 部局・職名	北陸先端科学技術大学院大学・マテリアルサイエンス研究科・准教授
氏名	長尾 祐樹

1. 当該年度の研究目的

本研究では、本研究者が独自に見出すことができたナノ・サブマイクロ領域で観測されるプロトンキャリアーの高速輸送現象(ナノプロトニクス現象)を利用し、ボトムアップとトップダウンプロセスの融合を通じて、機能性分子の素子化をはかりながら化学素子化燃料電池の開発をめざす。

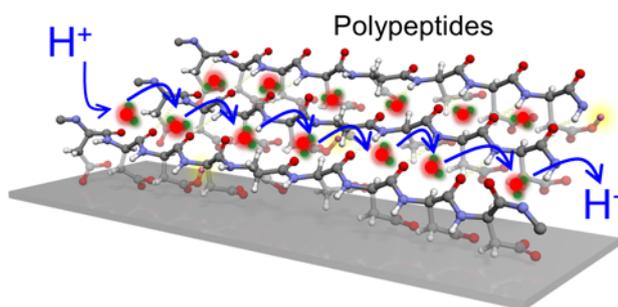
H24年度は、前年度見出した薄膜内プロトンの高速輸送現象「ナノプロトニクス」をさらに発展させつつ、その応用先の一つとしてマイクロ燃料電池の予備的な実験の実施を試みる。これに伴い業務内容が前年度の合成を主軸としたものよりも工学的な燃料電池マイクロ燃料電池ヘフェーズシフトするため、インプリントに対する専門性の高い研究員の雇用を行う。

化学素子化技術に対しても、脱白金化触媒を中心に開発を進める。インクジェットプロセスの利用を視野に入れる。

2. 研究の実施状況

<優れた成果があがったもの>

プロトン伝導性を有するバルク物質を薄膜化するとプロトン伝導性が飛躍的に向上する理由は、配向に由来することまでは前年度までに得られていたが、構造の詳細はわからなかった。H24年度はタンパクにおけるポリペプチドの自己組織化をヒントに、その構造を解析したところ、ポリマー鎖が基板に平行に配列された非周期的2次構造である珍しいαシート状構造を含むことがわかった。(図)この結果が意味することは、同じポリマーでもその配列や高次構造を制御すれば、プロトン輸送特性を飛躍的に向上させることができることを初めて実験的に証明したことになる。Nafion のような物質でも界面を利用して配向膜化することは可能であることを証明し、プロトン伝導性を変化させることができることもわかった。さらに、基板の選択で同一ポリマーでも配向構造を変えることができることも証明し、原著論文は Editor's choice に選ばれた。本成果から界面を利用することで物質設計の自由度を向上させるだけでなく、プロトン輸送特性を向上させることができることを明らかにできたため、燃料電池電解質に対して従来のミクロ相分離構造に基づいた物質設計指針と



様式19 別紙1

は全く異なる設計コンセプトを提案することができた。

<その他>

マイクロ燃料電池の予備実験では、ガスリークが起こることが問題となっており、ホットプレス機の平行度の精度を向上させるために、市販の装置の使用をやめ、装置を一から作り直した。これにはインプリントを専門とする博士研究員を採用してその実施を行った。

脱白金化触媒は、多孔性金属錯体(MOF)や共有結合性有機骨格構造(COF)のコンセプトを用いて、基板上にそれらを構築することを試みた。作成した表面 MOF および COF いずれにおいても、積層数に応じて酸素を還元する反応が促進され、酸素還元開始電位は 0.5V 程度であった。得られた成果を用いて北陸先端大 産学官連携総合推進センターを通じて特許出願した。(2件)

3. 研究発表等

<p>雑誌論文 計 5 件</p>	<p>(掲載済み一査読有り) 計 4 件</p> <p>1. <u>Y. Nagao</u> Substrate Dependence of the Proton Transport and Oriented Structure in Oligo[(1,2-propanediamine)-alt-(oxalic acid)] Thin Films [Editor's choice] Chem. Lett., 42, 468- 470 (2013). <a href="http://dx.doi.org/10.1246/cl.130019">http://dx.doi.org/10.1246/cl.130019</a></p> <p>2. <u>Y. Nagao</u> Highly Oriented Sulfonic Acid Groups in a Nafion Thin Film on Si Substrate J. Phys. Chem. C, 117, 3294 - 3297 (2013). <a href="http://dx.doi.org/10.1021/jp311622p">http://dx.doi.org/10.1021/jp311622p</a></p> <p>3. <u>Y. Nagao</u> A study on the plasma-treated surfaces of MgO(100) and quartz substrates by infrared multiple-angle incidence resolution spectrometry e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, 10, 229 - 233 (2012). <a href="http://dx.doi.org/10.1380/ejssnt.2012.229">http://dx.doi.org/10.1380/ejssnt.2012.229</a></p> <p>4. <u>Y. Nagao</u> Proton Transport Property of Nafion Thin Films on MgO(100) with Anisotropic Molecular Structure e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, 10, 114 - 116 (2012). <a href="http://dx.doi.org/10.1380/ejssnt.2012.114">http://dx.doi.org/10.1380/ejssnt.2012.114</a></p> <p>(掲載済み一査読無し) 計 0 件</p> <p>(未掲載) 計 1 件</p> <p>1. <u>Y. Nagao</u>, J. Matsui, T. Abe, H. Hiramatsu, H. Yamamoto, T. Miyashita, N. Sata, H. Yugami Enhancement of Proton Transport in an Oriented Polypeptide Thin Film Langmuir.,accepted.</p>
<p>会議発表 計 18 件</p>	<p>専門家向け 計 15 件</p> <p>1. <u>長尾祐樹</u>, 松井淳, 平松弘嗣, 宮下徳治 ポリアスパラギン酸薄膜の階層構造を用いたプロトン輸送 電気化学会第 80 回大会、仙台、2013, 3, 29-31、電気化学会</p> <p>2. <u>長尾祐樹</u>, 松井淳, 平松弘嗣, 宮下徳治 ポリペプチドの階層構造を利用したプロトン伝導 第 60 回応用物理学会春季学術講演会、厚木、2013, 3, 27-30、応用物理学会</p> <p>3. 野呂優喜, <u>長尾祐樹</u> スルホン化ポリイミド薄膜のプロトン輸送特性 日本化学会第 93 春季年会(2013)、草津、2013, 3, 22-25、日本化学会</p> <p>4. 大山隆宏, <u>長尾祐樹</u> 基板表面に Co(II)ポルフィリンを形成した燃料電池触媒の研究 日本化学会第 93 春季年会(2013)、草津、2013, 3, 22-25、日本化学会</p>

様式19 別紙1

	<p>5. 久保隆広, <u>長尾祐樹</u>          プロトン化率によるポリアスパラギン酸の電気伝導特性変化          日本化学会第 93 春季年会(2013)、草津、2013, 3, 22-25、日本化学会</p> <p>6. <u>長尾祐樹</u>          Nafion-酸化物界面の配向構造とプロトン輸送特性          日本化学会第 93 春季年会(2013)、草津、2013, 3, 22-25、日本化学会</p> <p>7. <u>Yuki Nagao</u> [依頼講演]          Proton Conduction Enhancement by Hierarchical Polypeptide          JAIST International Symposium on Ionics Materials、石川、2013, 3, 15、北陸先端大</p> <p>8. 久保隆広, <u>長尾祐樹</u>          プロトン化率の異なるポリアスパラギン酸における電気伝導特性          第1回日本バイオマテリアル学会北陸若手研究発表会、石川、2012, 12, 25、バイオマテリアル学会</p> <p>9. <u>長尾祐樹</u> [依頼講演]          燃料電池関連技術の動向と課題          砥粒加工学会 平成 24 年度 第 2 回見学・講習会、横須賀、2012, 12, 14 (日産自動車(株)追浜工場)、砥粒加工学会</p> <p>10. <u>Y. Nagao</u>, J. Matsui, H. Hiramatsu, T. Miyashita          Enhancement of Proton Transport Properties by an Oriented Structure in Polymer Thin Films          The 9th SPSJ International Polymer Conference (IPC2012)、神戸、2012, 12, 11-14、高分子学会</p> <p>11. <u>Y. Nagao</u>, J. Matsui, T. Miyashita          Proton Transport Enhancement by an Oriented Structure in Polymer Thin Films          2012 MRS Fall Meeting、ポストン、2012, 11, 25-30、MRS</p> <p>12. N. Sata, S. Tamura, Y. Fujiwara, Y. Shibata, F. Iguchi, H. Yugami, <u>Y. Nagao</u>, H. Kageyama, K. Nomura          Study of Crystal Growth in Oxide Thin Films Fabricated by Pulsed Laser Deposition          PRiME 2012、ハワイ、2012, 10, 7-12、電気化学会他</p> <p>13. <u>Y. Nagao</u>, J. Matsui, N. Sata, H. Hiramatsu, T. Abe, T. Miyashita          Enhancement of Proton Transport by a Highly Oriented Structure in Polymer Thin Film          16th international conference of Solid State Protonic Conductors、フランス、2012, 9, 10-14、CEA 他</p> <p>14. T. Higuchi, F. Iguchi, <u>Y. Nagao</u>, N. Sata, H. Yugami          ELECTRONIC STRUCTURE OF PROTON CONDUCTOR BaZr<sub>1-x</sub>Y<sub>x</sub>O<sub>3</sub> PROBED BY SOFT-X-RAY SPECTROSCOPY          ACSSI-13、仙台、2012, 7, 16-20、固体イオニクス学会</p> <p>15. <u>Y. Nagao</u>          Nanoprotonics in polymer thin films          International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference、仙台、2012, 5, 16、コロイド学会          一般向け 計 3 件</p> <p>1. <u>長尾祐樹</u>、大山隆宏, 久保隆広, 野呂優喜          長尾研究室の紹介          JAIST 交流フォーラム(企業、一般向け)、石川、2013, 2, 15、北陸先端大</p> <p>2. <u>長尾祐樹</u>          最先端・次世代研究開発支援プログラムについて          金沢大学・北陸先端大第12回研究交流会(職員、一般向け)北陸先端大、2012, 12, 3、金沢大学・北陸先端大</p> <p>3. <u>長尾祐樹</u>          創発するプロトニクスへの挑戦          学内連携セミナー 第5回 J-BEANS セミナー(職員、一般向け)、北陸先端大、2012, 10, 31、北陸先端大</p>
<p>図 書 計 1 件</p>	<p>長尾祐樹、界面を活用したプロトニクスの研究、ADVANCED、北陸先端科学技術大学院大学大学院大学支援財団、2013、4 ページ</p>

様式19 別紙1

<p>産業財産権 出願・取得状 況  計 2 件</p>	<p>(取得済み) 計 0 件  (出願中) 計 2 件 1. 発明の名称: 高分子電解質、プロトン伝導膜、燃料電池 出願番号: 2013-45191 発明者: <u>長尾祐樹</u> 権利者: 北陸先端科学技術大学院大学 出願年月日: 2013/3/7 2. 発明の名称: 燃料電池用積層体、燃料電池 出願番号: 2013-45190 発明者: <u>長尾祐樹</u> 権利者: 北陸先端科学技術大学院大学 出願年月日: 2013/3/7</p>
<p>Webページ (URL)</p>	<p>JSPS 最先端・次世代研究開発支援プログラムナノプロトニクス燃料電池の創成 プロジェクト Web page ナノプロトニクス燃料電池の創成 <a href="http://www.nanoprotonics.jp/">http://www.nanoprotonics.jp/</a>  ナノプロトニクス成果公開用 Web page <a href="http://www.jaist.ac.jp/ms/labs/nagao-www/">http://www.jaist.ac.jp/ms/labs/nagao-www/</a>  ナノプロトニクス成果公開用 Facebook <a href="https://www.facebook.com/NanoprotonicsLab">https://www.facebook.com/NanoprotonicsLab</a>  ナノプロトニクス成果公開用 Twitter <a href="https://twitter.com/nanoprotonics">https://twitter.com/nanoprotonics</a></p>
<p>国民との科 学・技術対話 の実施状況</p>	<p>企業、一般向けの JAIST 交流フォーラム(2013/2/15 開催、金沢勤労者プラザ、参加者 50 名程度)等にて科学技術対話を行った。また、本事業の成果を Facebook や Twitter などのソーシャルメディアを用いて宣伝するとともに、科学技術対話を行った。</p>
<p>新聞・一般雑 誌等掲載 計 0 件</p>	
<p>その他</p>	<p>石川県の再生可能エネルギーに対する活動のアピールとして、石川県の地場産業振興センターに本事業に関連した研究内容を展示(期間:H25年度)</p>

4. その他特記事項

## 実施状況報告書(平成24年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されます

## 1. 助成金の受領状況(累計)

(単位:円)

	①交付決定額	②既受領額 (前年度迄の 累計)	③当該年度受 領額	④(=①-②- ③)未受領額	既返還額(前 年度迄の累 計)
直接経費	66,000,000	24,390,000	21,900,000	19,710,000	0
間接経費	19,800,000	7,317,000	6,570,000	5,913,000	0
合計	85,800,000	31,707,000	28,470,000	25,623,000	0

## 2. 当該年度の収支状況

(単位:円)

	①前年度未執 行額	②当該年度受 領額	③当該年度受 取利息等額 (未収利息を除 く)	④(=①+②+ ③)当該年度 合計収入	⑤当該年度執 行額	⑥(=④-⑤) 当該年度未執 行額	当該年度返還 額
直接経費	3,700,830	21,900,000	0	25,600,830	19,200,106	6,400,724	0
間接経費	0	6,570,000	0	6,570,000	6,570,000	0	0
合計	3,700,830	28,470,000	0	32,170,830	25,770,106	6,400,724	0

## 3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	16,537,802	1インチRFスパッタ装置、吸着ガス/蒸気制御装置、光学基板、試薬、高純度ガス等
旅費	1,351,622	研究発表旅費等
謝金・人件費等	545,868	研究員人件費、講演謝金等
その他	764,814	学会参加費、装置修理費等
直接経費計	19,200,106	
間接経費計	6,570,000	
合計	25,770,106	

## 4. 当該年度の主な購入物品(1品又は1組若しくは1式の価格が50万円以上のもの)

物品名	仕様・型・性能等	数量	単価 (単位:円)	金額 (単位:円)	納入 年月日	設置研究機関名
吸着ガス/蒸気制御装置	BEL-Flow-1	1	3,223,500	3,223,500	2012/12/13	北陸先端科学技術大学院大学
1インチRFスパッタ装置	KSP-110	1	4,756,500	4,756,500	2013/3/19	北陸先端科学技術大学院大学
BX51 システム工業顕微鏡(落射透過偏光組合せ)	BX51-N23M US-SP	1	1,264,032	1,264,032	2013/3/27	北陸先端科学技術大学院大学
DP26顕微鏡デジタルカメラ(デスクトップPC用組み合わせ)	DP26-B-2	1	768,768	768,768	2013/3/27	北陸先端科学技術大学院大学