

実験と理論・計算・データ科学を融合した材料開発の革新
2018 年度採択研究代表者

2020 年度 年次報告書

山崎 仁丈

九州大学 稲盛フロンティア研究センター/エネルギー研究教育機構/大学院工学府
教授

実験と計算科学の融合による革新的プロトン伝導性無機化合物の創製

§ 1. 研究成果の概要

本研究の目標は、実験と理論・計算・データ科学を融合したプロトン伝導性無機化合物や関連材料の創製手法を開発し、中温度域(300~450°C)において 0.01 Scm^{-1} 以上の高いプロトン伝導度と高い安定性を兼ね備えた革新的プロトン伝導性無機化合物及びそれを用いた革新的プロトン伝導性デバイスを創製することである。

本年度の代表的な成果として、中温度域(396~534°C)、水蒸気分圧 0.02 atm において、実用化要求値(0.01 Scm^{-1} 以上)を満たし高い化学的安定性を兼ね備えた革新的プロトン伝導性無機化合物 $\text{BaZr}_{0.4}\text{Sc}_{0.6}\text{O}_{3-\delta}\text{H}_{0.55}$ を見出した(Hyodo et al., *Adv. Energy Mater.*)。この高いプロトン伝導性は 400°Cにおいて 200 時間維持され、本酸化物は 400 °C、98%という高濃度 CO_2 雰囲気下においても 240 時間安定であることをその場 X 線回折実験により実証した。後者は大気中、400°Cにおいて 67 年間安定であることに相当するため、プロトン伝導性燃料電池や電気化学デバイスの電解質として極めて有望である。中温度域におけるプロトン伝導度の予測を可能にする新記述子を発見し、第一原理計算からプロトン伝導度を予測することに成功した(Yamazaki et al., *Chem. Mater.*)。また、第一原理計算に基づいた大規模熱力学サンプリングにより、格子欠陥が高濃度で導入された材料における点欠陥の安定配置を探索する手法を開発した。さらに、結晶構造データベースから所定の条件に基づいて抽出した化合物群に対して水和エネルギーのハイスループット計算を実施、 BaZrO_3 と同程度のプロトン溶解能を持つことが期待される母結晶を見出した。機械学習を用いた燃料電池作製条件の推薦システム構築を目的としたデータベースを構築している。

§ 2. 研究実施体制

(1) 革新材料創製グループ

①研究代表者: 山崎 仁丈 (九州大学 稲盛フロンティア研究センター/エネルギー研究教育機構/大学院工学府、教授)

②研究項目

- ・実験データを活用したバーチャルスクリーニングと材料開発
- ・理論的材料スクリーニングと材料開発
- ・高性能プロトン伝導性無機化合物の根源的理解に基づく材料開発
- ・実験データを活用したデバイス開発と実証

(2) 計算材料開発グループ

①主たる共同研究者: 桑原 彰秀 (ファインセラミックスセンター ナノ構造研究所、主任研究員)

②研究項目

- ・実験データを活用したバーチャルスクリーニングと材料開発
- ・理論的材料スクリーニングと材料開発
- ・高性能プロトン伝導性無機化合物の根源的理解に基づく材料開発

(3) デバイス実証グループ

①主たる共同研究者: 奥山 勇治 (宮崎大学 工学教育研究部、准教授)

②研究項目

- ・実験データを活用したバーチャルスクリーニングと材料開発
- ・高性能プロトン伝導性無機化合物の根源的理解に基づく材料開発
- ・実験データを活用したデバイス開発と実証

【代表的な原著論文情報】

- [1] J. Hyodo, K. Kitabayashi, K. Hoshino, Y. Okuyama, Y. Yamazaki, “Fast and stable proton conduction in heavily scandium-doped polycrystalline barium zirconate at intermediate temperatures”, *Adv. Energy Mater.*, 10 (25), 2000213, 2020.
- [2] Y. Yamazaki, A. Kuwabara, J. Hyodo, Y. Okuyama, C.A.J. Fisher, S.M. Haile, “Oxygen affinity: the missing link enabling prediction of proton conductivities in doped barium zirconates”, *Chem. Mater.*, 32 (17), 7292–7300, 2020.
- [3] S. Kasamatsu, O. Sugino, T. Ogawa, A. Kuwabara, “Dopant arrangements in Y-doped BaZrO₃ under processing conditions and their impact on proton conduction: a large-scale first-principles thermodynamics study” *J. Mater. Chem. A*, 8 (25), 12674–12686, 2020.
- [4] T. Fujii, K. Toyoura, T. Uda, S. Kasamatsu, “Theoretical study on proton diffusivity in Y-doped BaZrO₃ with realistic dopant configurations” *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 23 (10), 5908–5918, 2021.
- [5] S. Kasamatsu, Y. Motoyama, K. Yoshimi, U. Matsumoto, A. Kuwabara, T. Ogawa, “Enabling ab initio configurational sampling of multicomponent solids with long-range interactions using neural network potentials and active learning” *arXiv preprint: 2008.02572*.
- [6] K. Hoshino, J. Hyodo, Y. Yamazaki, “Non-linear behavior for chemical expansion in yttrium-doped barium zirconate upon hydration”, *Chem. Lett.*, 50 (5), 899–902, 2021.
- [7] Y. Uchiyama, J. Hyodo, Y. Yamazaki, “Water vapor reduces the effect of Cl-poisoning on CO oxidation over Pt/CeO₂ heterogeneous catalysts”, *Chem. Lett.*, 50 (5), 888–891, 2021.