

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

2021 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  
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  $0.01 \text{ Scm}^{-1}$  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、山崎 G、桑原 G、奥山 G の連携により精密実験データと機械学習を活用した材料探索手法を開発し、水和実験データ、機械学習および水和反応の物理化学的知見を融合させることにより、広大な多元空間において水和反応の温度依存性を予測し、たった1回の試行実験でプロトン伝導性酸化物発見から 40 年間知られていなかった新規プロトン伝導性酸化物  $\text{SrSn}_{0.8}\text{Sc}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  を発見した(Hyodo et al., *ACS Energy Letters*, impact factor : 23.101)。

金属酸化物にプロトン伝導性を発現させるためには、構成元素の一部をアクセプター元素で置換し、酸素欠損欠陥  $\delta$  を生成、プロトン導入反応を誘起する必要があるが、新規材料においてどのような元素を組み合わせればプロトン伝導が発現するのかわかっていない。また、材料を構成する元素の組み合わせは無限にあるため、新規プロトン伝導性電解質の開発は、従来、開発者の経験と勘に基づいて行われていた。さらに無機化合物においては、材料中に存在する若干の欠陥が材料特性を大きく左右するため、機械学習を用いた新材料の発見には至っていなかった。

本研究では、まず、22 組成の既存材料を合成し、熱重量分析により得られた精度の高いプロトン濃度データと信頼できる文献値を合わせることで、65 組成・761 データで構成された信頼性の高い訓練データベースを構築した。本訓練データを、構成元素情報を示す 80 の記述子およびプロトン導入反応の物理化学的知見とともに学習させることで、未知材料のプロトン濃度の温度依存性を予測する機械学習モデルを開発した。この際に、「金属酸化物中におけるプロトン濃度はアクセプター濃度に比例する」という物理化学的知見を機械学習モデルに学習させることで、761 点という少ない訓練データ数にも関わらず、材料中におけるプロトン濃度の温度依存性を精度よく予測できた。これにより、機械学習を用いた新材料探索が困難であるという常識を打破することができ、新規プロトン伝導性物質の発見につながった。本手法は実験とデータ科学の融合により得られた研究成果であり、本モデルを活用することで、プロトン伝導性電解質材料の探索のみならず、プロトン伝導性物質変換デバイスにおける作動条件最適化など、幅広い利用が期待される。

## § 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 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 主席研究員)
- 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 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. Tsujikawa, M. Shiga, Y. Okuyama, Y. Yamazaki, “Accelerated discovery of proton-conducting perovskite oxide by capturing physicochemical fundamentals of hydration”, ACS Energy Letters, 6 (2021), 2985–2992.