

固体酸化物燃料電池統合シミュレーション環境の開発

○古山通久¹、大串巧太郎¹、久保百司^{1,2}、宮本明^{1,3}

¹東北大学大学院工学研究科応用化学専攻 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 07)

²科学技術振興機構さきがけ (〒332-0012 埼玉県川口市本町 4-1-8)

³東北大学未来科学技術共同センター (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 10)

【緒言】

固体酸化物燃料電池の開発において、電子・原子レベルの微視的視点、システムレベルの巨視的視点の双方が重要である。電子・原子レベルでの情報を提供可能な量子計算、量子分子動力学計算、分子動力学計算は電池システム内で起きる現象の解析、新規材料設計の指針の提示において大きな役割を果たし得る一方で、それらの手法に基づく研究をより有効に行うためには、対象とする系における律速過程などの把握が重要である。対象で起きる現象の把握を支援する新規計算手法および電子・原子レベルでの知見を与え得る計算化学手法による電極特性に関する検討について報告する。

【モデルの創発的発見と統合に基づくシミュレーション】

これまで、反応・移動現象を含む現象論的計算モデルの多くは特定の系の定性的理解に基づき開発され、特定の系に対しての定量理解を与えるものであったが、対象系において起きる現象を再現する計算モデルの実装が必要とされ、系の挙動の十分な理解が得られない段階でのシミュレーションは困難であった(図1左部)。一方で、場とその初期条件を与えた時に対象とする系のシミュレーションを実現するための、モデルの創発的発見と統合に基づく新規計算手法の概念が提案された(図1)。提案された手法を利用することにより、往々にして場当たりの現象論レベルでのシミュレーションの分野において、半決定論的計算化学シミュレーション環境が実現可能となると考えられる。その概要および詳細について報告する。

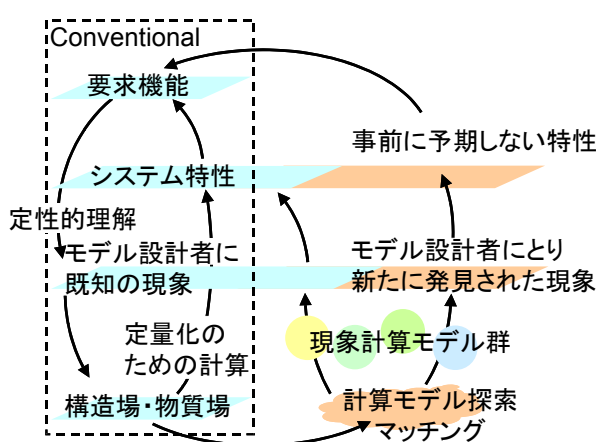


図1 モデルの創発的発見と統合に基づくシミュレーション手法

【固体酸化物燃料電池極反応に関する量子化学的検討】

固体酸化物燃料電池燃料極のモデルとして、 $\text{CeO}_2(111)$ 表面上にCuの4原子クラスターを配置したモデルを作成し、高速化量子分子動力学プログラム Colors を用いて電荷の分布を計算した結果を図2に示す。Cuから CeO_2 への電子の移動、すなわちCuが正に帯電し、 CeO_2 が還元されるという現象が観測された。 CeO_2 の還元は電子伝導性の向上へと繋がり、 CeO_2 表面のCuの帯電状態は電極触媒特性へと影響すると考えられる。続いて銅表面酸素の安定性に対する帯電状態の影響について密度汎関数プログラム Dmol³を用いて計算した。図3Aのように酸素とCuクラスターの距離を変化させた時の系の安定化エネルギーを図3Bに示す。銅の帯電状態によって安定性は大きく変化せず、Cu/ CeO_2 燃料極における酸化物の表面酸素の安定性への影響は小さい可能性が示唆された。

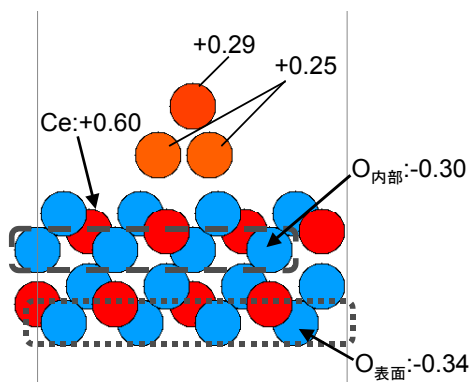


図2 Cu/ CeO_2 燃料極中電荷分布

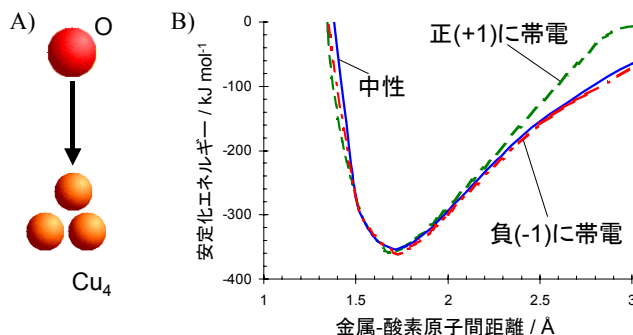


図3 酸素の安定性に対する銅クラスターの電荷の影響
A) 銅クラスター表面への酸素の吸着、B) 銅クラスターの各帯電状態における酸素の安定性