

三次元多孔質シミュレータの開発と応用

○古山通久¹、扇谷 恵¹、服部達哉¹、福長 博²、鈴木 愛³、Riadh Sahnoun¹、
坪井秀行¹、畠山 望¹、遠藤 明¹、高羽洋充¹、Carlos Del Carpio¹、
Ramesh C. Deka³、久保百司⁴、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 6-6-11-1302)

²信州大学繊維学部精密素材工学科 (〒386-8567 長野県上田市常田 3-15-1)

³東北大学未来科学技術共同研究センター (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-10)

⁴東北大学大学院工学研究科附属エネルギー安全科学国際研究センター
(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-701)

数十 nm から数 μm の不規則な細孔構造を有する多孔体 (不規則性多孔体) は、自動車触媒、排ガス処理用フィルタ、燃料電池用電極触媒、リチウム電池用電極触媒などをはじめとして様々な用途に用いられている。これら不規則性多孔体の研究開発アプローチは Figure 1 に示す 3 つに大別される。すなわち、元素置換・組成制御・助触媒などに代表されるナノ物性制御(Nano-Material Design)、相互作用界面に注目したナノ界面制御(Nano-Interface Design)、大表面積・高活性化のための構造制御 (Meso-Structure Design) である。

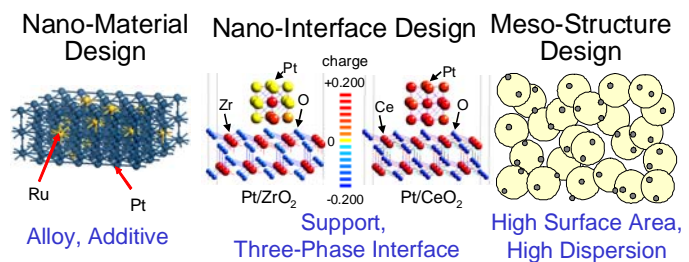


Figure 1 Three design approaches for irregular porous materials

近年の計算機や計算技術の発達に伴い、物性制御や界面制御に向けて量子化学手法の積極的な活用がなされてきている。一方で多孔質構造制御に向けたシミュレーション技術は、古典的な多孔質電極理論やパーコレーション理論が確立されているものの、現実的な複雑微細構造を考慮することは不可能であり、実験的にも有効な手法が確立されていないことから、現状の不規則性多孔体の研究開発は多分に試行錯誤的で経験的の暗黙知に大きく依存しており、微細構造の合理的最適化に向けた新規手法の開発が必須である。

この課題に対して著者らは、不規則性多孔体の構造制御のためには複雑な多孔質構造をモデル化し微細構造を定量的に評価する技術の確立が必須であると考え、三次元多孔質シミュレータPOCO²を開発してきた[1-5]。三次元多孔質シミュレータは、Figure 2 に示す独自の重複許容粒子パッキング法に基づき様々な不規則性多孔質構造を構築可能である。また、三次元多孔質シミュレータにより構築された多孔質構造に基づき複雑な多孔質微細構造を定量的に評価することが可能である。個別の応用ごとに特性シミュレータを開発することで、POCO²により構築された構造モデルの微細構造パラメータや多孔質構成材料の物性などを入力として、実特性のシミュレーションが可能である。

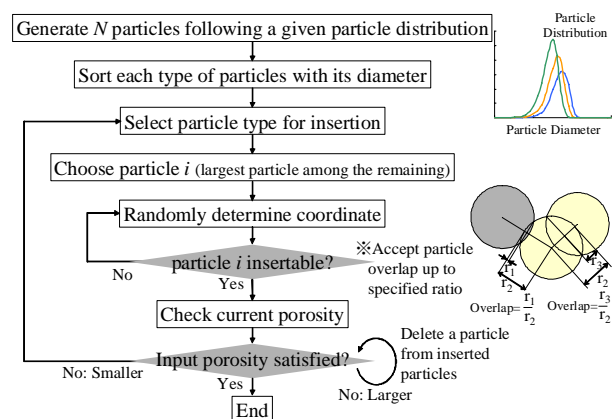


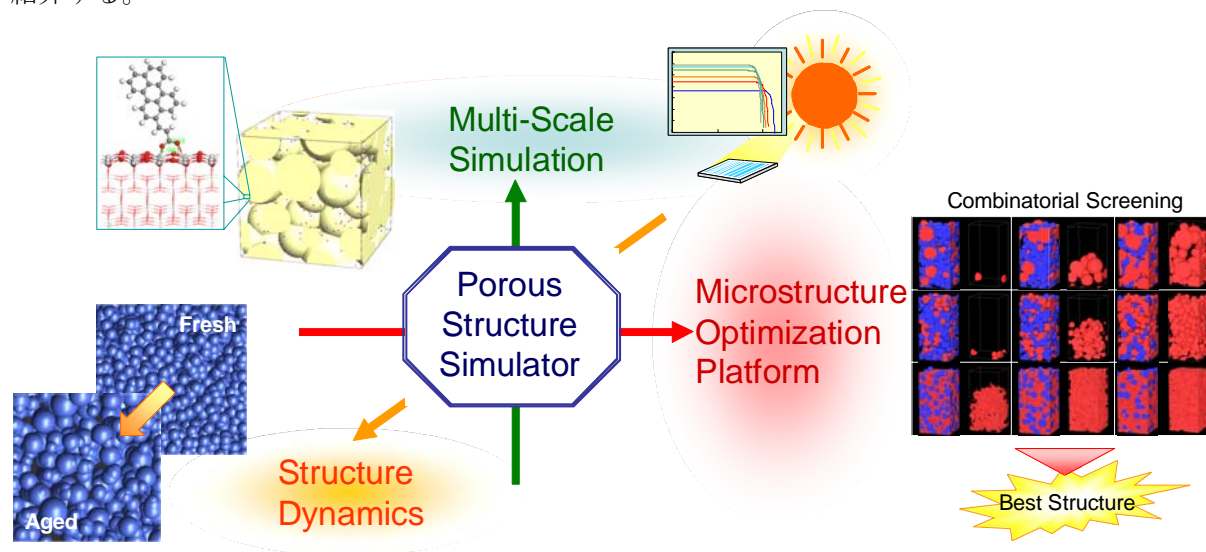
Figure 2 Basic Algorithm of Overlap-allowed Particle Packing Method

著者らは、これまでに三次元多孔質シミュレータを固体酸化燃料電池 (SOFC) 燃料極[1, 4]、色素増感型太陽電池TiO₂電極[2]、自動車排出ガス処理用担持貴金属触媒[3]、固体高分子形燃料

電池空気極[5]など様々な不規則性多孔体に応用してきた。Figure 3には、SOFC燃料極への応用例を示す。Figure 3(a)には、POCO²により構築されたNi-YSZ燃料極構造モデルの典型例を示す。POCO²により構築された構造モデルに対して各粒子のネットワークや有効三相界面長など微細構造を評価し、それらを反映させて様々なNi-YSZ燃料極過電圧特性を評価した結果をFigures 3(b)、(c)に示す。著者らの結果から、Ni-YSZの混合比、粒径など微細構造を制御することによる過電圧の低減可能性が示された (Figure 3(b))。さらに、異なる物性 (O²⁻イオン伝導率: σ_{ion})、作動条件 (燃料利用率) に対する結果から、開発手法によりマイクロ物性向上や作動条件が過電圧特性に与える影響を定量的に評価可能であることがわかる (Figure 3(c))。

Figure 4には、三次元多孔質シミュレータPOCO²を活用した研究の方向性を示す。一つは、Figure 3にも示したような多孔質構造と特性の関係の定量化に基づく微細構造最適化基盤の確立であり、もう一つは、ミクロな材料物性と多孔質メソ構造をともに考慮したマクロ特性評価が可能なマルチスケールシミュレーション環境の構築であり、最後は、多孔体調製プロセスや長期運用時における構造ダイナミクス予測基盤の構築である。それらの実現に向けた取り組みについて紹介する。

Figure 4には、三次元多孔質シミュレータPOCO²を活用した研究の方向性を示す。一つは、Figure 3にも示したような多孔質構造と特性の関係の定量化に基づく微細構造最適化基盤の確立であり、もう一つは、ミクロな材料物性と多孔質メソ構造をともに考慮したマクロ特性評価が可能なマルチスケールシミュレーション環境の構築であり、最後は、多孔体調製プロセスや長期運用時における構造ダイナミクス予測基盤の構築である。それらの実現に向けた取り組みについて紹介する。



References

Figure 4 Future research perspectives based on POCO².

- [1] M. Koyama, K. Ogiya, T. Hattori, H. Fukunaga, A. Suzuki, R. Sahnoun, H. Tsuboi, N. Hatakeyama, A. Endou, H. Takaba, M. Kubo, C. A. Del Carpio, and A. Miyamoto, *J. Comput. Chem. Jpn.*, published online.
- [2] K. Ogiya, C. Lv, A. Suzuki, R. Sahnoun, M. Koyama, H. Tsuboi, N. Hatakeyama, A. Endou, H. Takaba, M. Kubo, C. A. Del Carpio, and A. Miyamoto, *Jpn. J. Appl. Phys.*, in press.
- [3] M. Koyama, A. Suzuki, R. Sahnoun, H. Tsuboi, N. Hatakeyama, A. Endou, H. Takaba, M. Kubo, C. A. Del Carpio, and A. Miyamoto, *Appl. Surf. Sci.*, in press.
- [4] M. Koyama, H. Tsuboi, N. Hatakeyama, A. Endou, H. Takaba, M. Kubo, C. A. Del Carpio, and A. Miyamoto, *ECS Trans.*, **7**, 2057 (2007).
- [5] 古山通久、服部達哉、鐘 慧峰、坪井秀行、畠山 望、遠藤 明、高羽洋充、久保百司、Carlos A. Del Carpio、宮本明, *Electrochem.*, **75**, 411 (2007).