

国際共同研究事業 平成 3 1 年度実施報告書

令和 2 年 4 月 1 日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

共同研究代表者

所属機関・部局 九州大学・カーボンニュートラル・エネルギー国際研究所

(ふりがな) (いしはら たつみ)
職・氏 名 教授・石原 達己

1. 事業名 国際共同研究事業国際共同研究教育パートナーシッププログラム
2. 研究課題名 (和文) 化学燃料製造における活性な材料・界面の計算材料工学による設計
(英文) Integrated Computational Materials Engineering for Active Materials and
Interfaces in Chemical Fuel Production
3. 共同研究実施期間 (全採用期間)
平成 27 年 11 月 16 日 ~ 令和 2 年 11 月 15 日 (5 年 0 ヶ月)
4. 研究参加者 (代表者を含む)
(1) 日本側参加者 7 名 (2) 相手国側参加者 16 名
5. 主要な物品購入状況 (単価 (一品又は一組) 若しくは一式の価格が 50 万円以上のものを購入した場合は記載)

物品名	仕様 型・性能等	数量	単価(円)	金額(円)	設置研究機関名	備考
ユニットコムオリ ジナル PC	密度汎関数法の ための計算機	2	1,499,300	2,998,600	九州大学カーボンニュート ラル・エネルギー国際研究所 第 1 研究棟 サーバー ルーム	

備考：本事業の委託費と他の経費とを合算使用する際は、合算使用した旨を備考欄に記載した上で、金額は本事業の委託費によるもののみ計上してください。

8. 研究実施状況

※ 申請書の内容及び当該年度実施計画書の「5. 本年度実施計画の概要」と対応させつつ、当該年度の研究の実施状況を簡潔に記入してください。年度途中で当初計画を変更した場合にはその内容及び理由も明記してください。

研究項目 A に関しては、プロトン溶解の原理について引き続き進めている。九大ポスドク（藤崎 学術研究員）がイリノイ大に渡航し、Ertekin イリノイ大准教授のグループと共同研究を行った。九大ではプロトンの結晶中への溶解のしやすさは酸素空孔周りの原子に依存していると仮説を立てており、これに関して酸素空孔の周りの原子配置を理論的に検証した。イリノイ大博士課程の NamHoon らと共にクラスターエクспанション・モンテカルロシミュレーションに取り組んだ結果、プロトン伝導性酸化物が焼成温度(約 1600 °C)に晒されると、酸素空孔はドーパントに囲まれにくくなることが理論計算によって予測された。この予測を基に、藤崎氏は現在、実験的に上記の理論計算の結果を検証することを試みており、Ertekin 准教授のグループと共著論文発表を行う予定であり、また、その結果の一部は PPCC2019 (2019 年 10 月、フランス)、PETITE (2019 年 10 月、ノルウェー) および第 45 回固体イオニクス討論会 (2019 年 11 月、福岡) で報告した。

研究項目 B に関しては、プロトン-電子混合伝導性電極の探索について九大において電極材料の探索を行い、いくつかの候補材料を選定した。今後、九大では混合伝導性および電極活性に関する電気化学試験を行うとともに、その理論計算をイリノイ大にて実施する。

研究項目 C に関しては、ノースウェスタン大学のバーネット教授のグループにおいて、経時劣化の測内電極材料が開発された。この材料に関しては、月例のミーティングでも議論され、今後、イリノイ大学において理論的検証を行う。

米国 NSF 側 PIRE プログラムの活動の一環として x-Fusion というタイトルで学部学生の交換留学を受け入れた。2019 年 6 月-8 月の間の 2 ヶ月間、イリノイ大学から 6 名、カリフォルニア大学から 1 名、計 7 名の学生を研究室に受け入れ、実験研究を実施した。また、工学・文化の多面における日本の紹介を行い、昨年に引き続き、7 月 17-18 日には三菱重工業総合研究所を見学した。

個別の研究進捗報告・打ち合わせを令和元年 11/29 から 12/1 に Centre Énergie Matériaux Télécommunications の Kulbir 助教授と藤崎学術研究員が行い、プロトン伝導性酸化物の結晶界面における理論計算を用いた研究方法について、今後の研究の方向性を議論した。

日米間の月例ミーティングを月に一度の頻度で開催した（日本時間で朝の 8:30 より実施）。全体打ち合わせと各研究者の報告を行い、研究テーマや進捗状況の共有を図った。

9. 研究発表（平成 31 年度の研究成果）

【雑誌論文】 計（18）件 うち査読付論文 計（18）件

通番	共著の有無*	論文名、著者名等**
1		Ghuman K., Tozaki K., Sadakiyo M., Kitano S., Oyabeb T., Yamauchi M. (2019). Tailoring widely used ammonia synthesis catalysts for H and N poisoning resistance. Physical Chemistry Chemical Physics. 21: 5117-5122.
2		R. Gao et al., Designing Optimal Perovskite Structure for High Ionic Conduction. Adv Mater 32, e1905178 (2020).
3		E. Lupi et al., Large Polarization and Susceptibilities in Artificial Morphotropic Phase Boundary $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$ Superlattices. Advanced Electronic Materials 6, (2020).
4		B. Ouyang et al., Cluster Expansion Framework for the $\text{Sr}(\text{Ti}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{O}_{3-x/2}$ ($0 < x < 1$) Mixed Ionic Electronic Conductor: Properties Based on Realistic Configurations. Chemistry of Materials 31, 3144-3153 (2019).
5		J. Kim et al., Epitaxial Strain Control of Relaxor Ferroelectric Phase Evolution. Adv Mater 31, e1901060 (2019).
6		M. Y. Lu et al., Mechanisms of PrOx performance enhancement of oxygen electrodes for low and intermediate temperature solid oxide fuel cells. Materials Today Energy 14, (2019).
7		M. Y. Lu et al., Stable high current density operation of $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ oxygen electrodes. Journal of Materials Chemistry A 7, 13531-13539 (2019).
8		N. H. Perry, N. Kim, E. Ertekin, H. L. Tuller, Origins and Control of Optical Absorption in a Nondilute Oxide Solid Solution: $\text{Sr}(\text{Ti},\text{Fe})\text{O}_{3-x}$ Perovskite Case Study. Chemistry of Materials 31, 1030-1041 (2019).
9		R. Xu et al., Kinetic control of tunable multi-state switching in ferroelectric thin films. Nat Commun 10, 1282 (2019).
10		S. Pandya et al., Understanding the Role of Ferroelastic Domains on the Pyroelectric and Electrocaloric Effects in Ferroelectric Thin Films. Adv Mater 31, e1803312 (2019).
11		S. Pandya et al., New approach to waste-heat energy harvesting: pyroelectric energy conversion. NPG Asia Materials 11, (2019).
12		S.-L. Zhang et al., Electrochemical performance and stability of $\text{SrTi}_{0.3}\text{Fe}_{0.6}\text{Co}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ infiltrated $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3\text{Zr}_{0.92}\text{Y}_{0.16}\text{O}_{2-\delta}$ oxygen electrodes for intermediate-temperature solid oxide electrochemical cells. Journal of Power Sources 426, 233-241 (2019).
13		T. Chen et al., Modifying Grain Boundary Ionic/Electronic Transport in Nano-Sr- and Mg-Doped $\text{LaGaO}_{3-\delta}$ by Sintering Variations. Journal of The Electrochemical Society 166, F569-F580 (2019).
14		Y. Takamura, K. Leonard, A. Luo, L. W. Martin, H. Matsumoto, Platinum nanoparticle induced nanoionic effects on electrical conduction in strontium cerate and zirconate. Journal of Solid State Electrochemistry 23, 953-963 (2019).
15		T. A. Schmauss, J. G. Railsback, M. Y. Lu, K. Y. Zhao, S. A. Barnett, ZrO_2 atomic layer deposition into $\text{Sr}_{0.5}\text{Sm}_{0.5}\text{CoO}_{3-\delta}$ - $\text{Ce}_{0.9}\text{Gd}_{0.1}\text{O}_{2-\delta}$ solid oxide fuel cell cathodes: mechanisms of stability enhancement. Journal of Materials Chemistry A 7, 27585-27593 (2019).
16		Y. Kim, M. Watanabe, A. Takagaki, J. Matsuda, T. Ishihara, Spark Plasma Sintering Treatment for Introduction of Oxygen Vacancy in Pt Dispersed SrTiO_3 for Increasing Photocatalytic Water Splitting Activity. ChemCatChem 11, 6270-6274 (2019)

17		B. Kang, J. Matsuda, T. Ishihara, Cu-Fe-Ni nano alloy particles obtained by exsolution from Cu(Ni)Fe ₂ O ₄ as active anode for SOFCs. Journal of Materials Chemistry A 7, 26105-26115 (2019).
18		Y. Kim et al., Chemo-mechanical strain effects on band engineering of the TiO ₂ photocatalyst for increasing the water splitting activity. Journal of Materials Chemistry A 8, 1335-1346 (2020).

〔学会発表〕計 (19) 件 うち招待講演 計 (3) 件

通番	共著の有無*	標題、発表者名等**
1	◎	Yを添加したSrCeO ₃ とSrZrO ₃ の化学膨張を理解するための酸素空孔の大きさについて ○藤崎 貴也・アレクサンダー スティコフ・クワティ レオナルド・松本 広重,ユーハン ジン・ナラヤン アルール『第15回固体イオニクスセミナー』2019年9月1日
2	◎	○Takaya Fujisaki , Aleksandar Tsekov Staykov , Yuhang Jing ,Kwati Leonard , Narayan R Aluru, Hiroshige Matsumoto 「Roles of Oxide Ion Vacancies and Covalency to Explain Chemical Expansion Difference between Yttrium-Doped Strontium Cerate and Zirconate」 『5th International Workshop: Prospects on Protonic Ceramic Cells (PPCC 2019)』, Montpellier France, Japan, October 16-18 2019
3	◎	○Takaya Fujisaki , Aleksandar Tsekov Staykov , Yuhang Jing ,Kwati Leonard , Narayana R Aluru, Hiroshige Matsumoto 「Chemical Expansion Difference between Y-doped SrCeO ₃ and Y-doped SrZrO ₃ 」 『11th Petite Workshop』, Tromsø Norway, October 19-22
4	◎	Takaya Fujisaki , Aleksandar Tsekov Staykov , Yuhang Jing ,Kwati Leonard , Narayana R Aluru, Hiroshige Matsumoto 「Oxide Ion Vacancies and Covalency Difference to Understand Volume Expansion by Hydration Reaction between Yttrium-Doped SrCeO ₃ and SrZrO ₃ 」 December 19-22, 2019
5	◎	藤崎 貴也, アレクサンダー スティコフ, ユーハン ジン, クワティ レオナルド, ナラヤン アルール, 松本 広重, 「Yを添加したSrCeO ₃ とSrZrO ₃ の化学膨張を理解するための酸素空孔の大きさと共有結合性」 『第45回 固体イオニクス討論会』、福岡、2019年11月
6		Tatsumi Ishihara, SunJae Kim, Taner Akbay Metal Dispersed Pr ₂ NiO ₄ as Active Cathode for Intermediate Temperature Solid Oxide Fuel Cells 22nd International Conference on Solid State Ionics Korea Oral 2019/6/21
7		Yoonyoung Kim, Motonori Watanabe, Atsushi Takagaki, Tatsumi, Ishihara Strain Effects Induced By Au Dispersion Into SrTiO ₃ for Increasing Activity of Water Splitting 8th Asia Pacific Congress on Catalysis (APCAT-8) Thailand Poster 2019/8/5 Conference
8		Tatsumi Ishihara, Byeong Su Kang, Atsushi Takagaki Improved oxide ion diffusivity in Sm(Sr)CoO ₃ by double columnar layer for active cathode of Solid Oxide Fuel Cells EUR OMAT2019 Sweden Oral 2019/9/3 Conference
9		Tatsumi Ishihara, ByeongSu Kang, Atsushi Takagaki Double Columnar Interlayer for Increased Cathodic Activity of Intermediate Temperature Solid Oxide Fuel Cells 16th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVI) Japan Oral 2019/9/10 Conference
10		ByeongSu Kang, Atsushi Takagaki, Tatsumi Ishihara Exsolution of Nano Metal Particle on Anode for Increased Performance at Low Temperature Operation 16th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-XVI) Japan Oral 2019/9/13 Conference
11		Yoonyoung Kim, Motonori Watanabe, Atsushi Takagaki, Tatsumi Ishihara Improvement of photocatalytic activity of SrTiO ₃ to water splitting by strain effect induced by Au dispersion 第124回触媒討論会 Japan Oral 2019/9/20 Conference

12		Tatsumi Ishihara, Sunjae Kim, Atsushi Takagaki Strain Effects on Oxygen Dissociation Activity of Pr ₂ NiO ₄ for Low Temperature Solid Oxide Fuel Cells The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM13) Japan Oral 2019/10/28 Conference
13		Kang ByeongSu, Atsushi Takagaki, Tatsumi Ishihara Deposition of Y ₂ O ₃ stabilized ZrO ₂ film on Ni-Fe metal substrate by PLD for toughness solid oxide fuel cell 第45回固体イオニクス討論会 Japan Oral 2019/11/26 Conference
14		ByeongSu Kang, Atsushi Takagaki, Tatsumi Ishihara 低温作動型SOFCのためのダブルカルムナー界面相の作成とカソード活性の向上 第28回SOFC研究発表会 Japan Oral 2019/12/13 Conference
15		(Invited) S. A. Barnett, S. L. Zhang, T. Zhu, M. Y. Lu, and L. V. Mogni, "Titanate-Based Electrodes for Solid Oxide Cells," 236th Electrochemical Society meeting, Atlanta GA, October 12-17, 2019.
16		(Invited) Scott A Barnett, High-Efficiency Electrical Energy Storage Using Reversible Solid Oxide Cells, West Virginia University, Department of Mechanical Engineering, August 30, 2019, Morgantown, WV
17		Yvonne A. Chart, Matthew Y. Lu, Scott A. Barnett, "High-Performance Oxygen Electrodes for Low Temperature Solid Oxide Cells," 235th Electrochemical Society meeting, Dallas, TX, May 26-30, 2019.
18		Matthew Y. Lu, Shan-Lin Zhang, Beom-Kyeong Park, Yvonne A. Chart, Scott A. Barnett, "Degradation of High-Performance Oxygen Electrodes for Solid Oxide Cells," 235th Electrochemical Society meeting, Dallas, TX, May 26-30, 2019.
19		(Invited) Scott A Barnett, "Electrochemical and Microstructural Studies of Degradation Mechanisms in Solid Oxide Cells," 235th Electrochemical Society meeting, Dallas, TX, May 26-30, 2019.

〔図 書〕 計 (0) 件

通番	共著の有無*	題名、著者名等**
1		

* 相手国研究代表者との共著（共同発表）がある場合は○、相手国研究代表者との共著であり謝辞等に事業名を明記している場合は◎と記入。

** 当該発表等を同定するに十分な情報を記載すること。例えば学術論文の場合は、論文名、著者名、掲載誌名、巻号や頁等、発表年（西暦）、学会発表の場合は標題、発表者名、学会等名、発表年（西暦）、著書の場合はその書誌情報、など（順番は入れ替わってもよい）。

*** 足りない場合は適宜行を追加すること。

1. この報告書は、最終年度を除く毎年度提出してください。
2. 本会の事業報告等に記載するための適当な図・写真等があれば、説明を付して添付してください。
3. この報告書は、本共同研究の成果として本会ウェブサイトに掲載します。また、この報告書を本会の事業報告として刊行する場合、内容に影響しない範囲で修正を行うことがあります。
4. 知的財産権等の事情で本報告書の一部の公開を希望しない場合は、対応についてあらかじめ本会担当者に相談してください。