

第一原理計算及び多変量解析による YSZ ドーパント分布解析

Dopant configuration analysis of YSZ from multivariable analysis combined with first principles calculations

東工大, JST-CREST ○竹本整司, 多田朋史

Tokyo Tech, JST-CREST, °Seiji Takemoto, Tomofumi Tada

E-mail: takemoto.s.ad@m.titech.ac.jp

イットリア安定化ジルコニア(YSZ)は、高温環境下で安定かつ高い酸素イオン伝導性を示すため、固体酸化物形燃料電池(SOFC)の電解質材料として使用されている。また Ni-YSZ サーメットは高い電極反応性、酸素イオン及び電子伝導性を示すので、SOFC のアノード材料に用いられている。

これまで、我々の研究グループでは、固体酸化物形燃料電池のアノードにおける反応メカニズムを解析するために、第一原理計算と動的モンテカルロ法(KMC)[1]により酸素イオン拡散や表面吸着水素などのダイナミクスを解析してきた。イオンダイナミクスをシミュレートする際、1500K における酸素空孔と Y イオンの拡散係数のオーダーは 10^7 乗[2]もの開きがあるので、初期構造としてランダムに配置した Y イオンはそのサイトに固定し KMC を実行する近似が取られる。そのため、Y イオンの偏析を考慮する場合は、酸素空孔拡散とは異なる時間スケールで KMC によりシミュレーションをするか、時間スケールを考慮しないモンテカルロ法を用いて出現しうる Y イオンの偏析パターンを求めた上で酸素拡散の KMC を実行する必要がある。

そこで、我々は表面やバルクでの Y イオン偏析を KMC の初期配置に取り入れるため、メトロポリスモンテカルロ法(MMC)を用いて熱平衡下でのドーパント分布を解析した。MMC に用いられる二体ポテンシャルは、第一原理計算によって見積もられた全エネルギーと欠陥配置データを用いて多変量解析を行うことで作製した[3]。本手法は、第一原理計算からバルク中などの欠陥相互作用のみを直接抽出するので、Buckingham 型ポテンシャルなどを用いる場合に比べて、MMC にかかる計算コストが非常に少ない。図 1 にバルク中での Y-Vo, Y-Y 間の二体ポテンシャルの計算結果を示す。図 1 に示された二体ポテンシャルより Y-Vo 間の最も安定な配置は第二近接配置であり、Y-Y 間では第二近接配置が最も不安定であることが分かる。この結果は、同手法による先行研究[3,4]と定性的に良い一致を示している。本講演では、作成した欠陥間二体ポテンシャルの詳細に加えて、MMC によるバルクのドーパント分布解析について発表する。

[参考文献]

[1] T. Tada and N. Watanabe, ECS Transactions 57, 2437 (2013)

[2] R. L. Gonzalez-Romero, Solid. State. Ionics, 204, 1 (2011)

[3] G. Stapper, et. al., Phys. Rev. B 59, 797 (1999)

[4] R. Pornprasertsuk, J. App. Phys. 98, 103513 (2005)

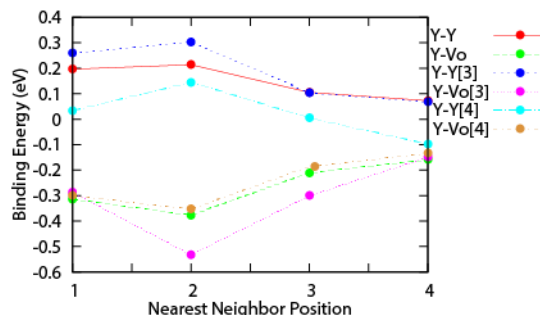


図 1 欠陥間の二体ポテンシャル。