

マテリアルズインフォマティクスから見出された AE(TM)₂Bi₂O₉ (AE: Ca, Sr, Ba, TM: Nb, Ta)系酸化物イオン伝導体の合成と評価

Synthesis and characteristics of AE(TM)₂Bi₂O₉ system (AE: Ca, Sr, Ba, TM: Nb, Ta) oxide ion conductors found by materials informatics

豊田中研¹, 〇田島伸¹, 大庭伸子¹, 鈴木彰敏¹, 増岡優美¹, 旭良司¹

Toyota Central R&D Labs., Inc.¹, 〇Shin Tajima¹, Nobuko Ohba¹, Akitoshi Suzumura¹, Yumi Masuoka¹, and Ryoji Asahi¹

E-mail: e0954@mosk.tytlabs.co.jp

マテリアルズインフォマティクス (MI) による高速材料探索技術の構築を行っている。今回、ターゲットとして酸化物イオン伝導体を選択した。組成や構造の特徴量を記述子として用い、29種類の既知の材料データに対して機械学習モデルを構築した。そのモデルにより無機結晶構造データベース (ICSD) に登録された約 13,000 件の酸化物の酸化物イオン伝導度を予測することで、バーチャルスクリーニングを行った。その結果、高伝導度候補材料群の 1 つとして AE(Nb or Ta)₂Bi₂O₉ 系 (AE、アルカリ土類: Ca, Sr, Ba) が見出された。この候補材料群を合成・評価して、MI 予測の有効性を実験的に検証した。

合成実験は、通常の固相法で行った。具体的な組成は、SrTa₂Bi₂O₉、SrNb₂Bi₂O₉、BaNb₂Bi₂O₉、CaTa₂Bi₂O₉ である。所定比で原料粉末を混合し仮焼 (900°C、10h) 後に再粉碎して焼結 (1150°C、1h) し、焼結体を得た。得られた焼結体の、組成 (XRF)、結晶相や不純物相 (XRD)、微細構造 (SEM) および伝導度 (AC インピーダンス法) について評価した。また、一部の試料では酸化物イオンの正確な輸率を評価するため酸素濃淡電池での起電力測定を行った。

化学量論組成の場合、各焼結体は、ほぼ文献通りの XRD ピークを示し、密度や微細構造からイオン伝導が評価可能な試料が得られたと判断した。それらの 973 K の MI 予測および実験による実測酸化物イオン伝導度を表 1 に示す。酸化物イオンの輸率は 95% 以上であり、今回の化合物が酸化物イオン伝導体であることを初めて実験的に検証できた。ドーピングなしの化学量論組成でも比較的高いイオン伝導度を示していることが特徴である。この材料系は層状化合物であるため、その層間がイオン伝導パスになっている可能性が示唆された。我々の MI が酸化物イオン伝導体探索に有効であることがわかった。一方、その実測伝導度は、MI 予想値より低かった。焼結体中に少量の不純物が存在するため、プロセス条件の最適化が十分でなかった可能性がある。加えて、我々の MI の定量的な精度も十分ではなかったと考えている。今後は、さらなるデータベースの拡充や最適記述子の探索により、予測精度の向上を目指す。

表 1 AE(Ta or Nb)₂Bi₂O₉ 系焼結体の 973 K の酸化物イオン伝導度の予測値と実測値

	SrTa ₂ Bi ₂ O ₉	SrNb ₂ Bi ₂ O ₉	BaNb ₂ Bi ₂ O ₉	CaTa ₂ Bi ₂ O ₉
予測値 (S/cm)	6.2x10 ⁻³	6.5x10 ⁻³	1.4x10 ⁻²	3.6x10 ⁻³
実測値 (S/cm)	3.3x10 ⁻³	1.4x10 ⁻³	9.6x10 ⁻⁴	0.5x10 ⁻⁴