

酸水素化ランタン $\text{LaH}_{3-2x}\text{O}_x$ の高速ヒドリドイオン伝導とその機構

Fast H^- conduction and diffusion mechanism in lanthanum oxyhydride $\text{LaH}_{3-2x}\text{O}_x$

東工大¹, 高エネ研² Tokyo Tech.¹, KEK²

○(D) 福井 慧賀¹, 飯村 壮史¹, 多田 朋史¹, 藤津 悟¹, 笹瀬 雅人¹, 玉造 博夢²,
本田 孝志², 池田 一貴², 大友 季哉², 細野 秀雄¹

°Keiga Fukui¹, Soshi Iimura¹, Tomofumi Tada¹, Satoru Fujitsu¹, Masato Sasase¹, Hiromu Tamatsukuri², Takashi Honda², Kazutaka Ikeda², Toshiya Otomo², and Hideo Hosono¹

E-mail: k-fukui@mces.titech.ac.jp

水素は化学合成プロセスにおける重要な原料であると同時に、石油に代わる次世代のエネルギー担体としても注目されている。電場印加によって水素を輸送するプロトン (H^+) 伝導体などの電解質は水素を利用するうえで有用な材料であるが、化学反応に適した $100\sim 600^\circ\text{C}$ の中温域で高い伝導度を示す H^+ 伝導体は未だ実現していない。ノルビーギャップと呼ばれるこの領域では、低温で動作する固体酸や高分子電解質は分解してしまい、反対に高温で動作する無機電解質では熱エネルギーが足りず高い伝導度が得られない¹。我々は水素の陰イオンであるヒドリドイオン (H^-) に着目し新規 H^- 伝導体の探索を行い、酸水素化ランタン $\text{LaH}_{3-2x}\text{O}_x$ がノルビーギャップを超える性能を示すことを明らかにした²。

中性子回折を用いて決定した $\text{LaD}_2\text{O}_{0.5}$ ($x = 0.5$) の結晶構造 (図 1 (a)) によると、酸素は四面体サイトのみを占有する一方で水素は四面体および八面体サイトの両方を部分占有し、四面体—八面体間を飛び移る H^- の伝導が期待できる。交流インピーダンス法を用いて測定したイオン伝導度は水素量の増加に伴って向上し、 $x = 0.25$, 340°C において既報の H^- 伝導体中で最も高い伝導度 $2.6 \times 10^{-2} \text{ S cm}^{-1}$ を記録した。イオン伝導度と電子伝導度から見積もったイオン輸率は $x = 0.25$, 0.50 において 99%以上となり、 350°C における分子動力学シミュレーションからは酸素の拡散は無視できる程度で水素のみが伝導することを確認した。さらに図 1(b) に示すような H^- の協調的移動が頻繁に観察された。これは $\text{LaH}_{3-2x}\text{O}_x$ の H^- 伝導が準格子間拡散機構により発現していることを示唆していると考えられる。

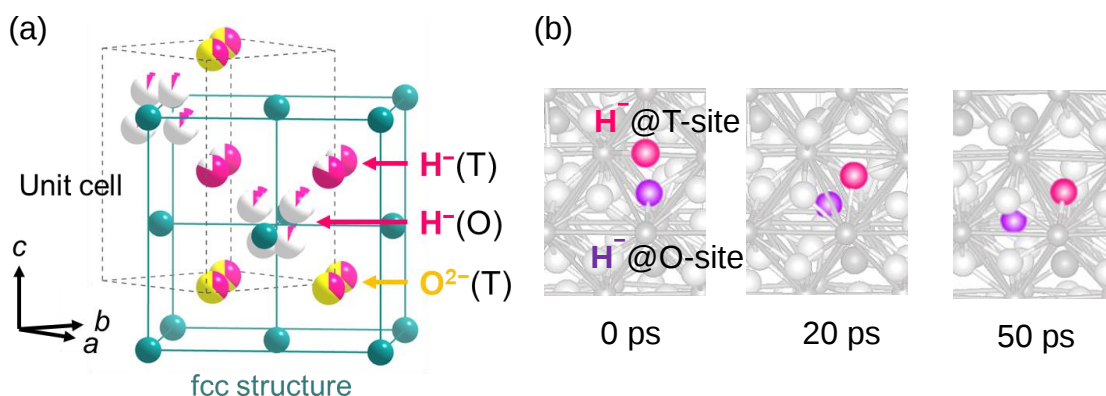


Fig 1. (a) Crystal structure of $\text{LaD}_2\text{O}_{0.5}$ ($x = 0.5$). T: tetrahedral site, O: octahedral site. (b) Cooperative migration of H^- in tetrahedral (T) and octahedral (O) site observed in molecular dynamics simulations.

1. T. Norby, *Solid State Ion.*, **125**, 1 (1999).

2. K. Fukui *et al.*, *Nat. Commun.*, **10**, 2578 (2019).