

シンポジウム | イノベーション共創プログラム (CIP) : マテリアルズ・インフォマティクスの実践的応用 : 多元素化による未踏機能の創出

■ 2025年3月29日(土) 9:00 ~ 11:40 ■ [E]F401(第2学舎 4号館 [4階] F401)

[[E]F401-4am] マテリアルズ・インフォマティクスの実践的応用 : 多元素化による未踏機能の創出

座長、シンポジウム関係者 : 鎌田 洋平、古山 通久、是津 信行

化学分野の材料開発はこれまで経験と勘に重打ちされた実験的手法が中心的な役割を果たしてきましたが、新物質の発見から実用化までに長い時間とコストを必要とします。蓄積された多くのデータ・情報を駆使して所望の構造・材料候補を導き出すデータ駆動型科学「マテリアルズ・インフォマティクス(MI)」の重要性が益々高まっています。材料開発現場では、概念や理論の構築に留まらず、MI戦略を実践に移す段階にきました。本セッションでは、多元素化による未踏機能の開拓と材料創製インフォマティクスを主眼に、ハイスループット実験・計算やデジタル技術を駆使する、MI応用の新潮流に焦点をあて最新の研究成果について講演頂きます。

本セッションは午前、午後に実施されます。

聴講後の[アンケート](#)へのご協力をお願いいたします。

9:00 ~ 9:05

開会挨拶

◆ 日本語 ◆ 基調講演

9:05 ~ 9:55

[[E]F401-4am-01]

ナノ材料の界面・構造制御プロセスサイエンスプロジェクト

○阿尻 雅文¹ (1. 東北大学)

◆ 日本語 ◆ 依頼講演

9:55 ~ 10:25

[[E]F401-4am-02]

硫化物系Liイオン導電体の開発 ; 組成複雑化とデータベース

○堀 智¹ (1. 東京科学大学)

10:25 ~ 10:30

休憩

◆ 日本語 ◆ 依頼講演

10:30 ~ 11:00

[[E]F401-4am-03]

多元素ナノ物質開発と触媒への応用

○草田 康平¹ (1. 京大)

◆ 日本語 ◆ 依頼講演

11:00 ~ 11:30

[[E]F401-4am-04]

ハイレントロピー固固界面イオニクス

○是津 信行¹ (1. 信州大学)

11:30 ~ 11:40

[4E_F40101-04-7add]

インキュベーションタイム

ナノ材料の界面・構造制御プロセスサイエンスプロジェクト

(東北大未来科学技術共同研究センター¹・東北大材料科学高等研究所²) ○阿尻 雅文^{1,2}

Nanomaterials Interface and Structure Control Process Science Project (¹*New Industry Creation Hatchery Center, Tohoku University*, ²*WPI – Advanced Institute for Materials Research, Tohoku University*) ○Tadafumi Adschiri^{1,2}

Unlike process design in chemical industry, the development of nanomaterials lacked a rational design basis. The Process Science Project initiated by the Ministry of Education in 2019 aims to establish this scientific foundation. It newly established nano-thermodynamics for nanomaterials, enabling the prediction of nano fluid properties and phase equilibrium. Based on this, it reconstructed the “unit operation” of processes for material manufacturing. Consequently, it became possible to predict the structure formation during processes such as coating and drying.

Keywords : Nanomaterials, Interfaces, Structure Control, Nano thermodynamics

化学製品とは異なり、材料開発、特にナノ材料開発において、合理的な設計基盤がなかった。2019 年から始まった文部科学省プロセスサイエンスプロジェクトは、そのサイエンス基盤を構築することが目的である。分子系と同様、ナノ材料に対してナノ熱力学を新たに構築し、物性・相平衡推算を可能とした。それに基づき、種々材料製造のプロセス単位操作体系を作り直した。それにより、例えば塗布乾燥工程での構造形成も予測できるようになった。

硫化物系 Li イオン導電体の開発；組成複雑化とデータベース

(東京科学大学) ○堀 智

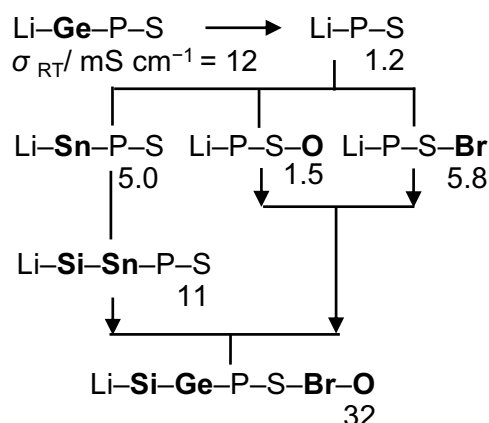
Development of sulfide-type fast Li conductors; synthesis in complex compositional systems and construction of databases (*Institute of Integrated Research, Institute of Science Tokyo*)

○Satoshi Hori

Lithium superionic conductors such as $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$ (LGPS) and its derivatives have been searched for to develop solid electrolytes used in all-solid-state lithium batteries. The author will report two topics: (1) synthesis of LGPS-type solid electrolytes in complex chemical compositional systems and (2) experimental data bases for supporting such a material development. On the former topic the reasonable selection from among complex chemical compositions is discussed, followed by the report about experimental validations of the substitution-phases formation and the improved ionic conductivity. On the topic of the database construction, the approach and framework, as well as challenges faced during the practical construction and application are reported.

Keywords : All-solid-state batteries; $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$; Solid electrolytes; High entropy; Data base

室温の Li^+ 導電率が 10 mS cm^{-1} に達する $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$ (LGPS)¹⁾ および一連の構造類似化合物は、全固体 Li イオン電池の無機固体電解質としての応用が期待される。右図に Li^+ 導電率向上を目的に開拓された物質群を、組成の複雑化の視点で整理して示す。本報告前半の主題はこのような、ハイエントロピー化と呼ばれアルカリイオン導電体の設計指針²⁾とされる、複雑組成の置換体合成である。回折測定により目的構造と同定された物質が、電気化学交流インピーダンス法で測定したイオン導電率において、既報の Li^+ 導電体の中で最高の値を示したことを報告する³⁾。



当該物質の組成選定時に、組成の複雑性および目的構造生成それぞれの指標を、既報のデータを基に考案し用いた。指針に基づく探索の鍵は、過去のデータから組成-結晶構造- Li^+ 導電率の傾向を掴み組成を絞り込むことである。加えて、混相が生成し易い多成分系における探索で目的相を単相で合成するためには、合成条件を含めて相関係を捉える必要がある。本講演後半の主題は、固体電解質の開発を加速するための合成および測定結果のデータベースである。構築の方針、および構築と活用の実践時の課題について報告する。

1) The original $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$ phase was reported. N. Kamaya, *et. al.*, *Nat. Mater.* **2011**, 10, 682; 2) The high-entropy design was rationalized by theoretical calculations and exemplified by experiments. Y. Zeng, *et. al.*, *Science* **2022**, 378, 1320; 3) The high-entropy design was applied for the $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$ -type crystal. Y. Li, *et. al.*, *Science* **2023**, 381, 50.

多元素ナノ物質開発と触媒への応用

(京大白眉セ¹ 京大院理¹ 京大 iCeMS¹) ○草田 康平^{1,2,3}

Multi-Element Nanomaterials for Catalytic Applications

(¹*The Hakubi Center for Advanced Research, Kyoto University*, ²*Graduate School of Engineering, Kyoto University*, ³*iCeMS, Kyoto University*) ○Kohei Kusada,^{1,2,3}

Although multi-element nanomaterials are complex and challenging to understand, they, particularly in high-entropy materials, have been studied because of their nearly infinite compositional combinations. We have reported many examples of multi-element alloy nanoparticles¹⁻⁵) and found that alloying with multi-elements significantly modifies electronic states for each atom, depending on their coordination environments²). This uniqueness may lead to their exceptional catalytic activity, such as in electrochemical hydrogen evolution. Building on our results of nanoalloys, we successfully synthesized 10-element perovskite-type multi-element nanoxides (Figure) and 10-element 3d transition metal nanoxides using solution synthesis. Notably, perovskite-type nanoxides demonstrated highly active lattice oxygen, as revealed through CO oxidation reactions⁶). The synthesis of these materials, their catalytic applications, and the origins of their unique electronic states will be discussed in this presentation. **Keywords** : *High entropy; Alloy; Oxide; Catalysis*

多元素ナノ物質は複雑で理解が困難であるが、構成元素の組成の組み合わせが無限に近く、近年、ハイエントロピー材料を中心に新規物質開発が盛んに行われている。我々はこれまでに液相合成により、多数の多元素ナノ合金を開発し¹⁻⁵)、多元素化することにより、同じ元素であっても配位環境により各原子が大きく異なる電子状態を有し、それが電気化学的水素発生触媒活性など特異な物性発現に起因している可能性を見出してきた²)。さらに、ナノ合金の知見を活かし、同じく液相合成法により、10 元系ペロブスカイト型多元素ナノ酸化物 (右図) や 10 元系 3d 遷移金属多元素ナノ酸化物の合成に成功した。ペロブスカイト型多元素ナノ酸化物では多元素化により、非常に活性な格子内酸素が存在することが CO 酸化反応を通してわかった⁶)。本講演では、それらの合成および、触媒への応用、特殊な電子状態に関して議論を行う。

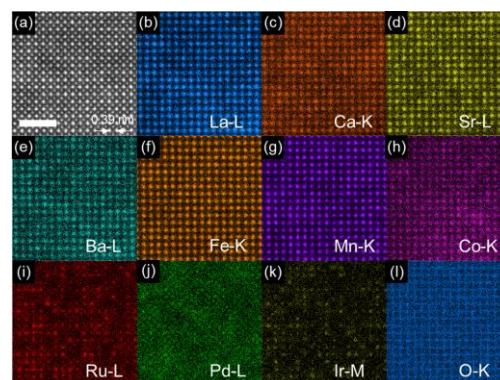


Figure: Atomic-resolution HAADF-STEM image (a) and element maps (b-l) of the denary perovskite HEO NP. The scale bar in (a) corresponds to 2 nm.

1) Wu, K. Kusada, H. Kitagawa, et al., *JACS*, **2020**, 142, 13833. 2) D. Wu, K. Kusada, H. Kitagawa, et al., *JACS*, **2022**, 144, 3365. 3) D. Wu, K. Kusada, H. Kitagawa, et al., *Chem. Sci.*, **2020**, 11, 12731. 4) H. Minamihara, K. Kusada, H. Kitagawa, et al., *JACS*, **2022**, 144, 11525. 5) H. Minamihara, K. Kusada, H. Kitagawa, et al., *JACS*, **2023**, 145, 17136. 6) S. Hanabata, K. Kusada, H. Kitagawa, et al., *JACS*, **2024**, 146, 181-186.

ハイエントロピー固固界面イオニクス

(信州大学アクア・リジェネレーション機構) ○是津 信行

High-entropy Solid-solid Interface Ionics (Institute for Aqua-Regeneration, *Shinshu University*) Nobuyuki Zettsu

A The ionic conductivity of a solid electrolyte is optimized by its constituent elements, composition, atomic arrangement, and crystal structure. In the solid-solid interface region, where the atomic arrangement became disordered, as comparing to that of bulk, it has widely accepted the conductivity decreases by more than two orders of magnitude compared to the bulk region. In this talk, I will outline our efforts in the development of innovative solid-state electrolytes, focusing on the control of solid-solid interface ionics by multi-element high entropy effect, using multi-element substituted garnet-type solid electrolytes as model materials.

Keywords : Solid electrolyte; High-entropy oxides; Multi-element; Garnet, $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$

ガーネット型固体電解質 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ (LLZO) およびその関連化合物は、室温で $10^{-3} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 級の高いリチウムイオン伝導度を示す。世界各地で伝導度をより高めるための研究開発が行われているが、粒界や異相界面の安定性を主眼に置く研究はほとんど行われていなかった。結晶構造や組成、原子配列によってリチウムイオン伝導度は最適化されるため、原子配列の乱れをともなう粒界や異相界面ではリチウムイオン伝導度は低下する¹⁻²⁾。

当研究室では、ハイエントロピー効果を新機軸とする新たな固体電解質材料開発の中で、多元素置換による効果が粒界抵抗の低抵抗化と異相界面の化学的安定性の向上に効果があることを見出した³⁾。例えば、Zr サイトのみを多元素置換化合物において顕著な効果が見られた。一方で、Li/La サイトを多元素置換した化合物では、バルク領域の伝導度の顕著な向上が認められた。

本講演では、多元素置換ガーネット型固体電解質をモデル材料とし、多元素ハイエントロピー効果による固固界面イオニクスの自在制御を主眼に置いた、革新的固体電解質の開発に関する取組内容について概要する。独自に作成した機械学習モデルにより、バルクや粒界におけるイオン伝導度、活性化エネルギーに対する各説明因子の寄与率を明らかにすることで、全イオン伝導度は世界最高レベルに到達した。

- 1) Li-Ion Conduction Characteristics at Grain Boundaries in Garnet $\text{Li}_{7-x}\text{La}_3\text{Zr}_{2-x}\text{Nb}_x\text{O}_{12}$ ($0 \leq x \leq 2$), H. Shiiba, M. Koyama, N. Zettsu*, K. Teshima, *Chemistry of Materials*, **2024**, 36, 6370.
- 2) Molecular dynamics studies on the lithium ion conduction behaviors depending on tilted grain boundaries with various symmetries in garnet-type $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, H. Shiiba, N. Zettsu*, M. Yamashita, H. Onodera, R. Jalem, M. Nakayama, K. Teshima, *Journal of. Physical Chemistry C*, **2018**, 122, 21755.
- 3) 是津信行 他 特願 2023-189668, 2023-199178, 2024-192365, 2024-202809