



配布先: 文部科学記者会、科学記者会、名古屋教育記者会

2025 年 9 月 22 日

報道機関 各位

機械学習により従来を凌駕する活性・耐久の合金触媒を特定 触媒設計の新たな戦略を確立、次世代燃料電池の実現に寄与

【本研究のポイント】

- ・機械学習(ML)^{注1)}駆動の触媒設計: 7 種類の高エントロピー合金(HEA)^{注2)}候補と 21 万超の合金組成をスクリーニングし、モリブデン(Mo)が鍵元素であり、10~20at.% の組成で水分子の解離を促進し、CO 被毒^{注3)}を低減できることを特定した。
- ・優れた触媒性能: PtPdRhRuMo は電流密度 18.20mA/cm²および質量活性 9.89A/mgPt⁻¹を達成し、市販 Pt-C(白金-炭素)触媒の約 8 倍の性能を示した。
- ・耐久性: 10,000 秒後に約 50%の活性を維持し、市販 Pt-C 触媒系が 16%しか維持できなかったのに比べ、圧倒的に優れていた。
- ・将来展望: この戦略は、より安価な HEA への展開も可能であり、低コストかつ高性能な触媒の発見を加速し、さまざまなエネルギー応用に寄与することが期待される。

【研究概要】

高エントロピー合金(HEA)は、特異な物理化学的性質、卓越した耐久性、そして複雑な多電子移動反応を高い選択性で駆動できる能力から、有望な触媒材料群として注目されています。しかし、その構造の複雑さや有効な設計戦略の欠如により、研究の進展は限定的でした。これらの課題を克服するため、名古屋大学大学院工学研究科の山内 悠輔 卓越教授の研究チームは「モデリングーメイキングーモジュレーティング (Modeling-Making-Modulating)」と名付けた新しいボトムアップ型戦略を開発しました。本戦略は、機械学習、第一原理計算、実験的検証を統合することで、卓越した活性と耐久性を有する HEA 電極触媒の探索を加速するものです。

元素スクリーニングと原子組成の最適化における機械学習の効果的な統合により、メタノール酸化反応(MOR)のような複雑反応に対する HEA 触媒の合理的設計が可能となりました。特に、新規に開発された PtPdRhRuMo 合金は市販 Pt-C 触媒の約 8 倍の性能を記録しました。注目すべきは、この新しい HEA が 10,000 秒の安定性試験後も約 50% の活性を保持した点であり、市販 Pt-C が 16%しか維持できなかったのと比較して優れていたことです。

今回の合金は高価な白金族金属に依存していたものの、提案手法による正確な予測は、今後より安価で地殻に豊富に存在する金属にも幅広く応用可能です。これにより、複雑な多電子移動反応に適した低コストかつ高効率な次世代触媒の実現に道を拓くことが期待されます。

本研究は、山内卓越教授を中心とする JST-ERATO 山内物質空間テクニクスプロジェクトの一環として、遂行されました。研究成果は 2025 年 9 月 3 日に「Journal of the American Chemical Society」にオンライン掲載されました。

【研究背景と内容】

メタノール燃料電池^{注4)}におけるメタノール酸化反応(MOR)の触媒として、市販 Pt-C はベンチマークと見なされています。しかし、その高コスト、反応速度の遅さ、特に反応中に生成して表面に強く吸着する中間体である CO による被毒の問題が、効率と耐久性を著しく制限しています。

一方、高エントロピー合金(HEA)は 5 種類以上の金属元素から構成され、その安定性は主として無秩序な固溶体構造に由来する高いエントロピーによって支配されていることから、有望な代替候補として注目を集めています。HEA の多様な表面原子配列は複数の活性サイトを形成でき、反応速度の改善、選択性の向上、被毒耐性の増大をもたらす可能性があります。しかし、これまでの HEA 触媒研究の多くは試行錯誤的な実験に依存しており、元素選択の合理性や効率的な設計戦略は未だ明確ではありません。そこで本研究では、高エントロピー合金(HEA)触媒の設計を加速するために、以下の方法論を確立しました。

ステップ 1: 密度汎関数理論(DFT)^{注5)}計算を用いて、異なる元素の組み合わせから HEA モデルを構築しました。電気伝導性および触媒特性は、MOR の主要な中間体(CH₃OH、CO、COOH)の吸着エネルギーに基づき、オープンソース OC20 プロジェクト^{注6)}の 2 億 6000 万件以上の DFT 計算により学習された機械学習モデルを用いて、すべての HEA 候補に対してスクリーニングを行いました。この結果、PtPdRhRuMo が最も有望な触媒として特定されました。

ステップ 2: 1,600 件の DFT 計算による CO と COOH の吸着エネルギーデータセットを基に、新たな機械学習モデルを構築し、21 万以上の PtPdRhRuMo 組成の性能を予測しました。その解析により、Mo を 10~20 at.% 含有させることで、CO 被毒に対する最適な耐性を示し、MOR 活性を向上させることが明らかになりました。

ステップ 3: 理論的予測を実験的に検証しました。高分子ミセルを鋳型として用いて、化学還元法および電解析出法を用いて、PtPdRhRuMo のメソポーラス^{注7)}ナノ粒子および薄膜試料を合成しました。実験の結果、この合金は卓越した活性と長期的な耐久性を示し、PtPdRhRuMo は市販 Pt/C 触媒の 8 倍の活性を示すとともに、同条件下で最近報告された Pt 系触媒をも凌駕する性能を発揮しました。

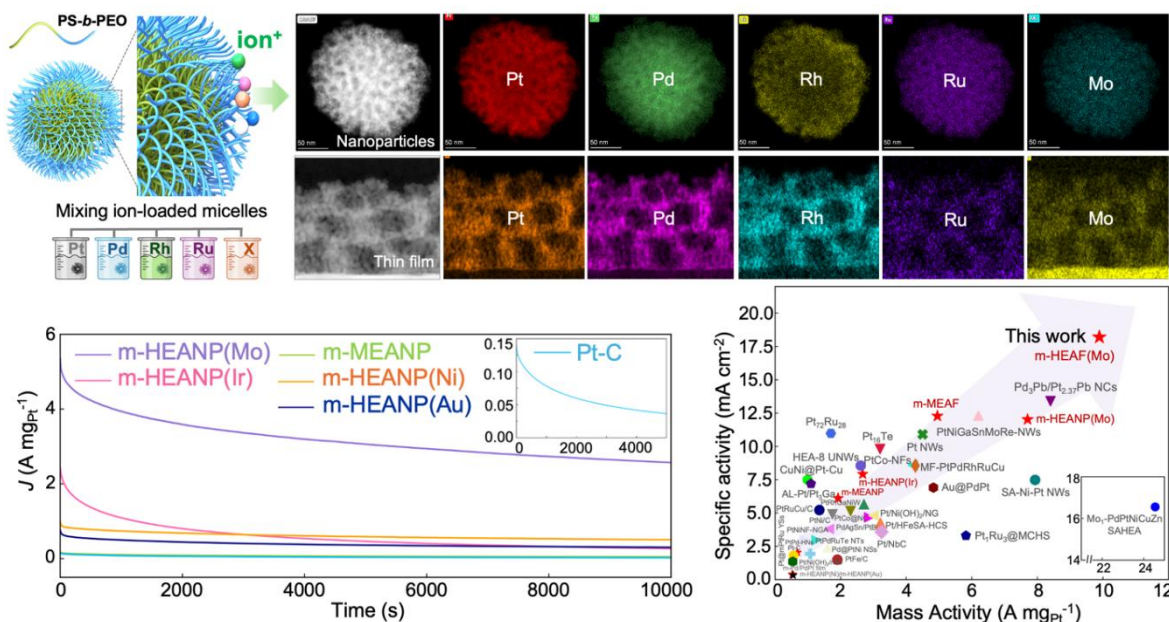


図 1. 新規に設計されたメソポーラス高エントロピー合金 PtPdRhRuMo 触媒は、メタノール酸化反応において卓越した活性と耐久性を示す。

【成果の意義】

新しいメタノール酸化反応用材料の発見により、従来の市販触媒(Pt)や最近提案された多くの候補を凌駕する性能が実証され、次世代直接メタノール燃料電池の実現に一步近づきました。これにより、携帯電子機器から自動車システムに至る幅広い応用において、より実用的な電源としての可能性が高まります。より広い視点から見ると、本研究はクリーンで持続可能なエネルギー社会への世界的な移行を後押しするものです。さらに、本研究で開発された計算フレームワークは、より複雑で産業的に重要な化学プロセスに適用可能であり、触媒の探索と最適化を加速させます。このことは、材料探索を推進し、触媒科学全体における革新を促進する道を拓くものです。

本研究で提案した触媒を構成する 5 種類の金属のうち 4 種類は白金族金属であり、希少かつ価格が高騰しています。一方で、これまでに本触媒が検証されたのは、直接メタノール燃料電池に用いられるメタノールに対してのみです。今後の研究では、以下の 2 つの課題に取り組む予定です。第一に、白金族金属の使用量を削減し、理想的にはゼロにする触媒設計を目指します。第二に、本研究で確立した設計戦略を他の種類の燃料電池、とりわけカーボンフリーの純水素型燃料電池に展開し、より持続可能な社会に資するインパクトの大きなソリューションを実現します。

【研究者からコメント】

山内 悠輔 卓越教授(名古屋大学、責任著者):

「本研究は、新しい材料の開発にとどまらず、機械学習・理論・実験を統合した触媒設計の包括的戦略を確立した点に大きな意義があります」

ホー・ゴック・ナム 特任助教(名古屋大学、筆頭著者):

「私たちのアプローチは、将来のエネルギー変換技術に向けて、効率的で低コストかつ持続可能な触媒の発見への道を切り拓きます」

【用語説明】

注 1)機械学習(ML):

人工知能の一分野で、コンピュータがデータからパターンを学習し、逐一プログラムされなくてもタスクの性能を向上させる技術。

注 2)高エントロピー合金(HEA):

5 種類以上の元素から構成され、原子がランダムに配列した構造をもつ合金。

注 3)CO 被毒:

一酸化炭素分子が触媒表面に強く吸着しすぎることによって活性サイトを塞ぎ、性能を低下させる現象。

注 4)メタノール燃料電池:

アノードでのメタノール酸化反応とカソードでの酸素還元反応を通じて、化学エネルギーを直接電気に変換するデバイス。

注 5)密度汎関数理論(DFT):

電子密度を基本変数として、原子・分子・固体の電子構造や基底状態の物性を計算する量子力学的手法。

注 6)OC20 プロジェクト:

Meta 社の Fundamental AI Research (FAIR) とカーネギーメロン大学の共同によるオープンソースデータベースで、多様な化学種や触媒における電極触媒の緩和過程に関する数百万件の分子データを収録している。

注 7)メソポーラス構造:

直径 2～50 nm の細孔をもつ構造。活性表面積を増加させ、物質輸送を促進する。

【論文情報】

雑誌名: Journal of the American Chemical Society (JACS)

論文タイトル: Modeling-Making-Modulating High-Entropy Alloy with Activated Water-Dissociation Centers for Superior Electrocatalysis

著者: Nam, Ho Ngoc (Nagoya Univ); Nandan, Ravi (NIMS); Fu, Lei (Nagoya Univ); Zhao, Yingji (Nagoya Univ); Kang, Yunqing (Nagoya Univ); Fukushima, Tetsuya (AIST), Sato, Kazunori (Osaka Univ); Asakura, Yusuke (Nagoya Univ), Cretu, Ovidiu (NIMS), Kikkawa, Jun (NIMS); Henzie, Joel (NIMS); P. Hill, Jonathan (NIMS); Yanai, Takeshi (Nagoya Univ); Phung, Quan Manh (Nagoya Univ); Yamauchi, Yusuke (Nagoya Univ, Univ of Queensland)

DOI: 10.1021/jacs.5c08012

URL: <https://pubs.acs.org/doi/full/10.1021/jacs.5c08012>



東海国立大学機構は、岐阜大学と名古屋大学を運営する国立大学法人です。
国際的な競争力向上と地域創生への貢献を両輪とした発展を目指します。



東海国立大学機構 HP <https://www.thers.ac.jp/>