

(6) 各研究領域の産学連携事例紹介

024

「京」コンピュータを駆使した第一原理 MD 法による電解液開発支援

DFT-MD studies on the K computer toward battery electrolyte development

館山 佳尚 TATEYAMA.Yoshitaka@nims.go.jp

(国研)物質・材料研究機構

1. はじめに

リチウムイオン電池 (LIB) などの二次電池の大型化、安全性強化はエネルギー・環境問題のソリューションや Society 5.0 への貢献のみならず、社会構造を劇的に変えうる重要課題です。その核心は安全な電解液・電解質の開発、および電極—電解質界面の制御と言って良いでしょう。しかし、二次電池内の電子・イオンの動きは複雑なため、実験的に全貌を明らかにすることは未だ困難であり、試行錯誤的な研究開発がまだ大半です。

このような状況を打破すべく、「京」コンピュータなどの大型スパコンを駆使した計算 (+ データ) 科学研究に、筆者らは取り組んできました。それらの事例について紹介します。

2. 計算について

未知現象を取扱う場合、計算側にも相応の精度が求められます。筆者らは実験家・産業界への予言性を担保すべく、計算コストは高いが精度も高い第一原理 MD (DFT-MD) を採用しました。さらにこれを使い倒すために、「京」コンピュータ上での高度並列化を実装し、NIMS 版の DFT-MD コード、“stat-CPMD”を早くから構築しました。このコードは数万ノードを用いることで、複雑な化学反応自由エネルギーを1ジョブで計算できる特徴を持っています。また筆者は酸化還元電位の汎用的な DFT 計算手法開発等も行っており、電気化学・溶液化学・界面科学に広く精通しています。そのノウハウが世界初となるようなインパクトのある共同研究成果を可能としました。

3. 研究成果

(1) 東大の山田淳夫先生、山田裕貴先生、及び関連企業の方々と共に共同研究を実施し、濃厚電解液の微視的機構解明に貢献しました。特に今では広く受け入れられている“アニオン分解”のコンセプトは、stat-CPMD による還元分解反応解析が主導して証明したものです [1,2]。(希釈溶液向けのより簡便な計算手法(力場計算など)は確立していましたが、濃厚電解液を精度の不安なく扱うためには筆者らのアプローチが必須という認識ができています。)この新コンセプトを指針の一つとして、東大及び関連企業が様々な電解液の開発を行い、筆者らも理論計算による機構解明に貢献してきました。代表的なものの一つが、ハイドレートメルト (Nat. Energy (2016)) です。この水系の電解液は、二次電池における“水”の役割を再考させるきっかけとなり、その後多くの研究が国内外で行われています。さらに京大触媒電池元素戦略拠点でターゲットとする Na-ion 電池 (NIB) についても、消火性電解液の開発に至っています [3]。

(2) 筆者らはこれ以外にも「京」上での stat-CPMD 計算による LIB 電解液・界面解析を企業と共同で行ってきました。その代

表的成果は富士フィルムの奥野博士らと行ったものです。筆者らは電解液の負極近辺での還元分解反応機構についてまず予言を行い [4]、その後負極界面にできる SEI 膜と言われる被膜の形成機構について、“Near-shore aggregation”というコンセプトを提案しました (実際には有機系の SEI 構成物にのみ有効) (JES (2015))。さらに SEI 内における Li_xF クラスターの描像も提案しました (PCCP (2016))。これらの提案コンセプトは実験による検証を誘導し、様々な知見が得られつつあります。

(3) 京大触媒電池拠点内では、NIB の新規材料に関する共同研究を東理大の駒場先生・久保田先生、阪府大の林先生らと最近進めています。ここでも筆者らは新コンセプトの提案・予言を目指して高精度計算を駆使しているところです。

(4) 筆者らはこの他に、全固体電池電解質—電極界面に関する DFT サンプリング解析を強力に推進しております。昨年、複雑な固固界面を高精度・高効率にサンプリングする計算手法の開発に成功しました (Chem. Mater. (2019))。さらにマテリアルズ・インフォマティクスを用いた固体電解質探索も鋭意進めています。

4. おわりに

このように「京」による高精度計算で様々な理論的予言を行うことができました。筆者らはさらに計算コードの高度化を行い、次世代機「富岳」を駆使する準備も進めております。二次電池のブレークスルーを目指して、今後も実験家・産業界と連携した計算 (+ データ) 科学研究を推進したいと考えております。

【共著者(所属)】

山田 淳夫(東大)・山田 裕貴(東大)・奥野 幸洋(富士フィルム)

【関連プロジェクト】

元素戦略プロジェクト<研究拠点形成型>触媒・電池材料拠点

【参考文献】

[1] Y. Yamada, Y. Tateyama, A. Yamada et al., J. Am. Chem. Soc. 136, 5039–5046 (2014).

[2] K. Sodeyama, A. Yamada, Y. Tateyama et al., J. Phys. Chem. C 118, 14091–14097 (2014).

[3] J. Wang, Y. Yamada, Y. Tateyama, A. Yamada et al., Nat. Energy 3, 22–29 (2018).

[4] K. Ushirogata, Y. Okuno, Y. Tateyama et al., J. Am. Chem. Soc. 135, 11967–11974 (2013).

【関連 WEB】

[1] 館山研究室: <https://www.nims.go.jp/group/cs/>

[2] 「京」を用いた研究成果ビデオ(youtube):

<https://www.youtube.com/watch?v=s1TEKrM1xNg>