

電極界面における電解液反応シミュレーション ～リチウムイオン二次電池の安全性・機能性向上に向けて～

物材機構 MANA・MI²I¹、京大 ESICB²、JST さきがけ³、館山佳尚^{1,2}、袖山慶太郎^{1,3}
TATEYAMA.Yoshitaka@nims.go.jp

新しいエネルギー社会の構築に向けて大型蓄電池の開発が現在盛んに行われています。しかし実用化には、高性能化に加えて安全性向上などの高信頼性の確立が待たれています。具体的には、さらなる高エネルギー密度の実現の一方、熱暴走を防ぐための電極界面被膜の設計や安定性の高い電解液の開発が急務となっています。しかし、実験観察の困難さも相まってその原子・分子レベルでの実態はまだわかっていません。

このような電極界面被膜 (SEI 膜)、新規電解液、劣化の微視的機構を明らかにするためには、予言性の高い量子力学に基づいた第一原理計算シミュレーションが必要となります。しかし第一原理計算は計算コストが非常に大きく、多数の原子・分子が関わる複雑な構造・現象の取り扱いには限度がありました。私たちは京コンピュータなどの大規模スパコンを高効率利用可能な第一原理計算プログラム(statCPMD)の改良・開発を行うことで、電池の動作温度における原子・分子の複雑なダイナミクスを精度よくシミュレーションできるようにしました。

それを用いて、まず電解質分子の還元分解に関する新規反応メカニズムを提案しました (図 (a)) [1,2]。さらにその分解物をベースにした有機系界面被膜の形成についても”near-shore aggregation”という新機構を提案するに至りました (図 (b)) [3]。また近年着目されている高濃度リチウム塩電解液の電気化学安定性や優れたイオン輸送特性の起源を理論的に示しました

(図 (c)) [4,5]。これらの新コンセプトは、蓄電池の微視的機構の理解に大きなインパクトを与えるものとなっています。私たちはさらに実験・企業との連携を積極的に推進し、電池内の複雑な原子・分子挙動の解明を強力に進めている所です。近い将来、計算科学研究がエネルギー改革に大きく寄与する日が来るかもしれません。(本講演の内容は、富士フイルム奥野幸洋博士、後瀉敬介氏、東京大学山田淳夫教授、山田裕貴助教との共同研究によるものです。)

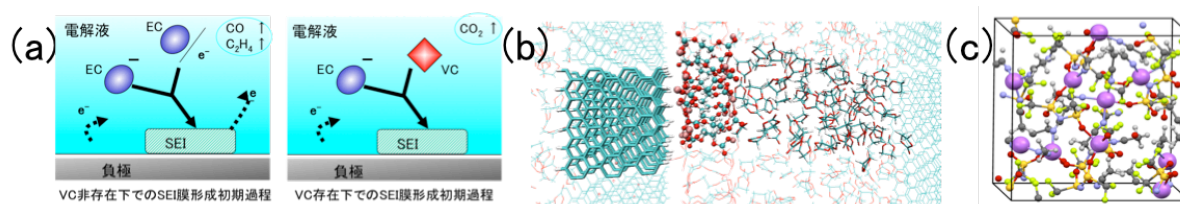


図 (a)電解質分子の還元分解機構 (b) 有機 SEI 膜モデル (c) 高濃度リチウム塩電解液モデル

参考文献:

- [1] K. Ushirogata, *Y. Tateyama et al., J. Am. Chem. Soc. **135**, 11967-11974 (2013).
- [2] YouTube rikenchannel 「リチウムイオン電池～分子の宇宙から未来の電池へ～」
<https://www.youtube.com/watch?v=Tx1RHU7Zw2c>
- [3] K. Ushirogata, *Y. Tateyama et al., J. Electrochem. Soc. **162**, A2670-2678 (2015).
- [4] Y. Yamada, Y. Tateyama et al., J. Am. Chem. Soc. **136**, 5039-5046 (2014).
- [5] K. Sodeyama, *Y. Tateyama et al., J. Phys. Chem. C **118**, 14091-14097 (2014).