

スパコンがもたらす蓄電池現象の新たな理解

物質・材料研究機構¹、早稲田大学²、東京工業大学³
館山 佳尚^{1,2,3}

蓄電池デバイスは、電子・ホールとイオンの両者が可動で、かつそれらが頻繁に電極界面を横切り、さらにその動きが外部電気化学ポテンシャル変化(外部バイアス)でコントロールされるという点で、他の電子デバイス・エネルギーデバイスと比較して遥かに複雑で、かつ面白い系であると言えるだろう。この蓄電池デバイスの開発において蓄電池内部で起こっているミクロな現象の理解は必要不可欠である。実験サイドでは SPring-8 や J-PARC における空間・時間に関して高分解能なオペランド計測が、理論サイドでは「富岳」を用いた高精度な大規模第一原理計算・分子動力学(MD)計算が囑望されている。このような状況下で、我々が理論サイドから取り組んできた蓄電池内ミクロ現象研究について紹介する。

我々は実験に先んじて理論的に提案をすることを目標に、精度を十分担保しかつ複雑な構造をできるだけそのままモデル化した大規模第一原理計算を行う技術を蓄積してきた。その中で、スーパーコンピュータ「京」「富岳」の高効率利用に向けたコード開発・チューニングも進めてきた。それにより蓄電池内ミクロ現象の最難関ともいえる電極-電解質界面における電子・イオン移動のメカニズム解析を大きく進めることができた¹。特に構造サンプリングが(固液界面に比べても)より困難な固固界面に対して、AI 手法の1つである粒子群最適化(PSO)を組み合わせた「ヘテロ界面 CALYPSO 法」を開発した。これにより出現確率の高い固固界面を効率的に得ることが可能になり、よりリアリスティックな電極-電解質界面現象を記述できるようになった。これと第一原理計算を組み合わせることで、界面におけるイオン移動や電子状態変化(バンドオフセット)の見える化に成功した。これらを SPring-8 等の実験と比較することで、「蓄電固体の界面科学」の理解が大きく進むことが期待できる。

我々はまた硫化物・酸化物・有機系固体電解質におけるイオン伝導に関する MD 計算研究も積極的に進めている²。特に最近では酸化物固体電解質の「粒界」に関する第一原理 MD に挑戦し、新たな理論的知見を獲得した。ただし、これらの知見は今後 X 線・中性子利用の実験と連携しながらより refine していく必要があると考えている。

最後に、これらの国際的競争力のある計算技術は、一方で企業等へ技術移転することにより我が国の産業競争力強化につなげることもまた重要である。我々は諸先生方とともに文部科学省「富岳」成果創出加速プログラム採択の「富岳」電池課題を推進している³。このシンポジウムを通して、多くの蓄電池研究者・開発者との交流・連携が深まることを期待したい。

[1] Chem. Mater. **32**, 85 (2020). ACS Appl. Mater. Interfaces **12**, 16350 (2020). ACS Appl. Mater. Interfaces, **12**, 54752 (2020). ACS Appl. Mater. Interfaces **13**, 11765 (2021).

[2] Chem. Mater. **32**, 8373 (2020). J. Mater. Chem. A **9**, 14897 (2021). Adv. Energy Mater. **12**, 2102151 (2022). J. Mater. Chem. A, **10**, 10083 (2022).

[3] <https://www.nims.go.jp/fugaku-denchi/>