

TSUBAME 共同利用 令和元年度 学術利用 成果報告書

第一原理計算による電池・触媒メカニズム解明と新物質探索
Materials science of batteries and catalysts via first principles calculation

館山 佳尚
Yoshitaka Tateyama

物質・材料研究機構
National Institute for Materials Science
<https://www.nims.go.jp/group/cs/>

邦文抄録

蓄電池・触媒の多くは電極および電解質(液)から構成され、電極—電解質界面における化学反応および酸化還元反応が最も重要な素過程となっている。しかしながら埋もれた界面のその場観察はいまだに難しく、界面過程の微視的機構は不明な点が多い。我々はこのような界面過程について電子・原子状態を高精度に扱うことのできる第一原理計算を用いた理論計算研究を行ってきた。本利用課題では TSUBAME を利用して、全固体電池の酸化物電極—硫化物電解質界面状態に対する第一原理計算研究を遂行し、その微視的構造の解明を行った。その結果、硫化物電解質では界面相互拡散が十分起きることが示された。

英文抄録(100 words 程度)

We have been working on reactions around buried interfaces between electrolyte and electrolyte in battery and catalyst by means of density functional theory based first-principles calculations with certain accuracy. In this project, we set up the first-principles calculation scheme on TSUBAME, and investigated microscopic structures of oxide cathode – sulfide electrolyte interfaces in all-solid-state batteries. It then turned out that the mutual diffusion across the interfaces is highly possible.

Keywords: 第一原理計算、蓄電池、触媒、表面・界面

背景と目的

蓄電池・触媒の多くは電極—電解液界面における化学反応および酸化還元反応が最も重要な素過程となっている。しかしこれらの界面過程の原子スケール描写は実験的にもいまだ難しく、予言性の高い理論計算のニーズが非常に高い。実際に当研究室では、第一原理計算解析をもとに電池・触媒反応における界面の微視的過程について予測・提案を行ってきており、それが実験研究の動機・駆動力となるケースを何度か経験してきた。また当研究室では「京」向けに開発した第一原理サンプリングコード stat-CPMD を始め、第一原理計算とより広範囲な構造・反応サンプリングを可能にするモジュール開発も進めている。

このような背景の下、本プロジェクトでは TSUBAME において、これらの計算プログラムの高効率実行を行い、電池・触媒系の界面過程に関する理論計算メカニズム解析をさらに発展的に進めることを目的とする。

概要

全固体電池などの蓄電固体デバイス内に存在する異なる材料間のヘテロ固固界面の電子・イオン状態を高精度・高効率に解析可能な計算手法の開発に最近成功した。この第一原理計算手法を用いて、全固体電池の固固界面の安定な微視的構造の探索を実行し、界面相互拡散の可能性について明らかにした。

結果および考察

本研究では、異なる材料間のヘテロ固固界面における原子・イオンの格子不整合、集団緩和、局所緩和に関するあらゆる最適化と、高効率構造予測計算手法 CALYPSO 法の界面構造探索への適用、電子状態を高精度に取り扱える密度汎関数理論(DFT)計算を全て組み合わせることで開発したヘテロ固固界面の高精度シミュレーション手法を用いて、硫化物系全固体電池の酸化物正極—硫化物電解質界面の微視的構造探索を実施した。その結果、硫化物電解質で

は界面相互拡散が十分起きうることが示された。

まとめ、今後の課題

当研究室で使用している第一原理計算プログラムを TSUBAME 上で実行可能な状態にし、全固体電池界面に関する計算を実行した。

今後も第一原理計算プログラムの TSUBAME 上での運用を拡充し、電池・触媒メカニズムに関するさらなる第一原理計算研究を実行していく予定である。