

マテリアルズ・インフォマティクスによる

二次電池の電解液材料探索

○袖山慶太郎^{1,2,3}, 五十嵐康彦⁴, 岡田真人^{2,4}¹JST さきがけ, ²NIMS MI²I, ³京大 ESICB, ⁴東大新領域

SODEYAMA.Keitaro@nims.go.jp

[諸言] リチウムイオン電池(LIB)を初めとする二次電池では現在、高容量化や高出力化といった性能向上を目指した開発が精力的に進められている。しかし必要とされる「高性能化」や「安全性向上」といった複数の機能を同時に両立させるような新規材料を、電池の種類に応じた数だけ探し出すには多大な時間が必要となるため、材料探索スピードの加速が産業界からも強く求められている。これら二次電池は正極、負極、そして電解液から成っており、各構成要素それぞれに対して最適な材料探索の必要がある。正極および負極固体材料の探索に関してはこれまでに数多くの報告がある一方で、Li イオン伝導を担う電解液材料は、LIBが商業的に発売されて以来現在に至るまで同じものが使用され続けている。さらにこの唯一の電解液についても、近年開発された新しい高電位正極材料では使用できないことが分かっている。高電位にも耐えられる新規電解液材料の開発は、現在の LIB 開発において喫緊の課題となっている。本発表では、データ科学手法を用いた記述子の自動抽出とそれに基づいた新規電解液探索手法確立に向けた取り組みについて紹介する。具体的には、Li イオンの配位エネルギーを予測する記述子抽出を例にとり、データ科学手法を適用する。

[方法] 記述子候補のデータベースを構築するため、電池の実験に際してよく用いられるキシダ化学株式会社のカatalogより、バッテリーグレードの溶媒 103 種に関して Gauss 関数を用いたクラスターモデル計算(B3LYP/cc-pVDZ)を行った。さらに Li イオンに配位した構造に関して構造最適化を行った。これらの計算により得られた配位エネルギーや Li イオンに配位している原子の Mulliken 電荷、HOMO, LUMO の値、Li と溶媒間の距離、さらにカatalog上の各種物性値(沸点、融点、引火点、密度、分子量、双極子モーメント)を記述子としてデータベースを構築した。これらに対しデータ科学手法(多変数線形回帰(MLR)および LASSO)を用いた機能予測を行った。

[結果と考察] クラスターモデル計算により得られた配位エネルギーを予測すべき機能とし、それ以外の 10 種の特徴量から機能予測を行った。交差検証により求めた予測結果を図 1 に示す。MLR で寄与の大きい特徴量は Mulliken 電荷、Li と溶媒間の距離、密度の三つであったが、LASSO では Mulliken 電荷のみが記述子として抽出され、その他の特徴量は刈り込まれた。いくつかのサンプルでは LASSO による予測値は MLR によるものに比べて悪化しているが、全ての記述子を用いる MLR に比べると LASSO は平均予測誤差が約 20%減少した。このようなデータ科学手法は、電解液の機能を説明する記述子の抽出に有効であり、今後 DFT-MD 法を用いた電解液のトラジェクトリーから記述子を抽出することで、より広範な機能に対する電解液探索が可能になると期待できる。当日は東京大学岡田研究室で開発中の線形回帰による全状態探索法を用いた結果についても議論する。

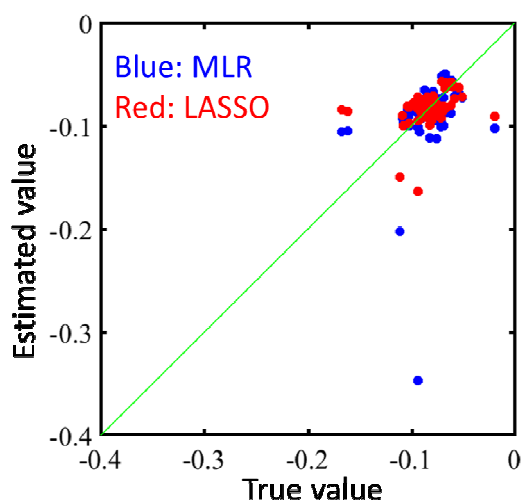


図 1. データ科学手法(MLR および LASSO)による 103 種の溶媒分子における配位エネルギーの予測結果