Mi2i最終報告会

MI^{2}I蓄電池材料グループの研究成果

中山 将伸 (名工大)
館山 佳尚 (大GREEN)
袖山 慶太郎 (MaDiS)

目次

1. MI²I蓄電池材料グループ紹介
2. 研究の成果紹介
3. 人財・知識のアウトプット
4. まとめ

Mi2i 蓄電池材料グループ紹介

出口連携プロジェクト

ESICB Elements Strategy Initiative for Catalysts & Batteries　電池元素戦略

ALCA SPRING Specially Promoted Research for Innovative Next Generation Batteries　多価イオン

RIKEN AICS　ポスト京 フラッグシップ2020プロジェクト
界面＆基盤計算理論

さきがけ PRESTO　×4名　袖山･烏山･ハレム･石川

Interface IONICS　科研費新学術 蓄電固体界面（班長：館山）

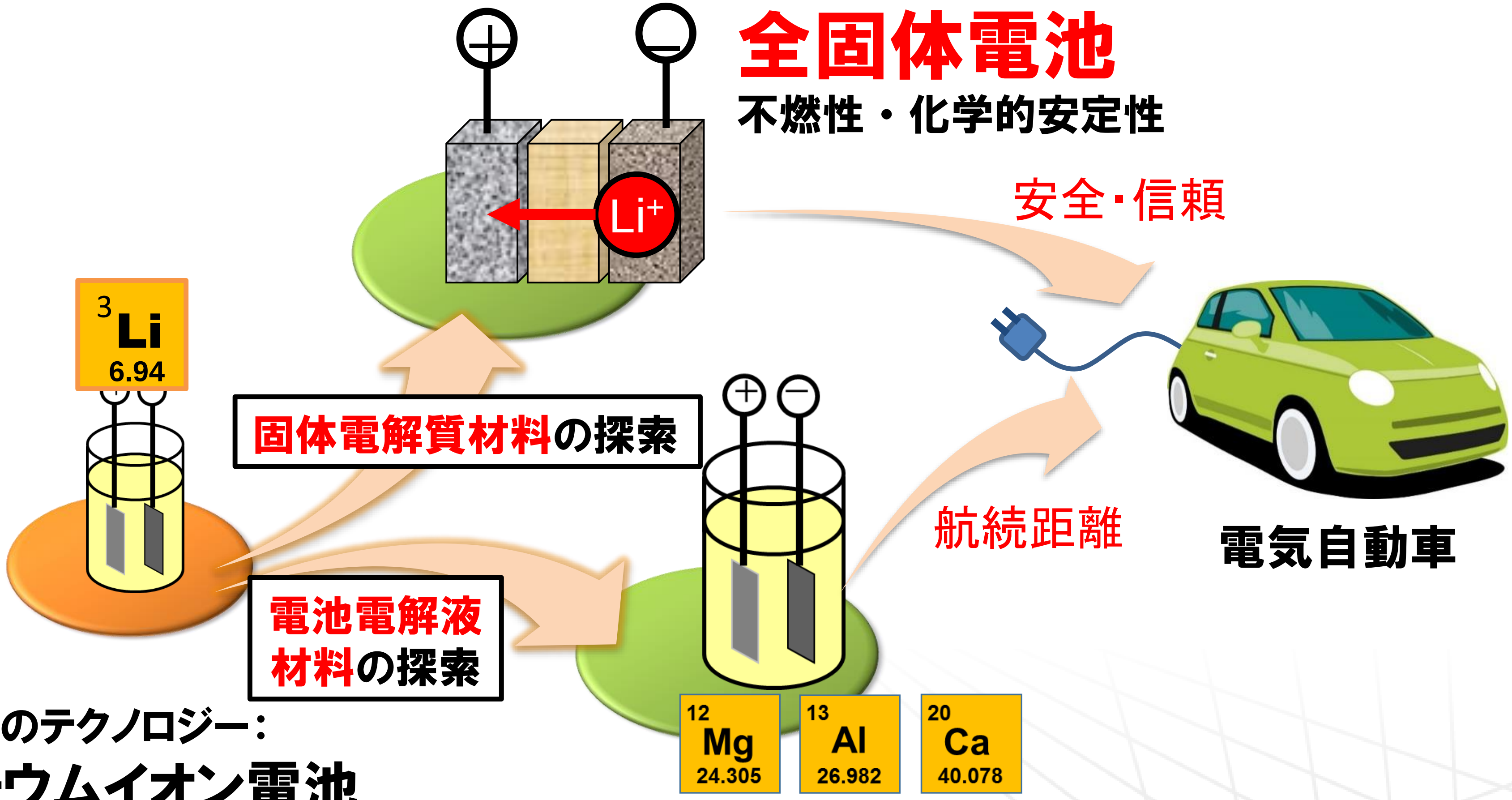
民間企業　10社以上

研究ターゲット

将来電池1：

全固体電池

不燃性・化学的安定性



現在のテクノロジー：

リチウムイオン電池

性能限界に到達？

将来電池2：

多価カチオン電池

電池容量の倍加

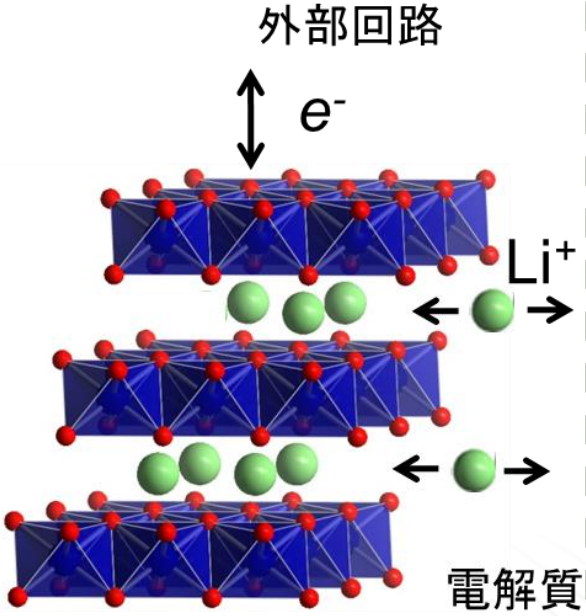
研究ターゲット

熱力学特性

単位重量・単位体積当に蓄えられる電荷（容量）

リチウムの出入りに伴うエネルギー移動（電圧）

先行研究有
Materials Project他



速度論特性

電子の固体内移動速度

リチウムイオンの固体内移動速度

電極｜電解質界面電荷移動速度

ターゲット

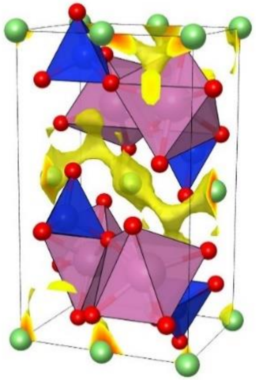
結晶構造

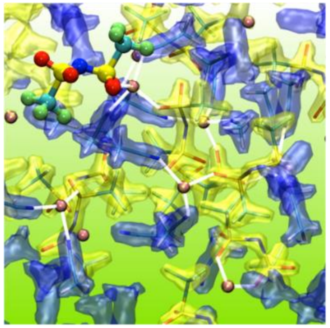
大規模DB 有 (ICSD, CoDなど)

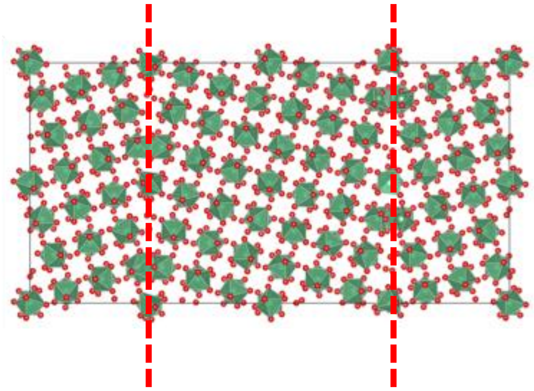
蓄電池グループの課題設定

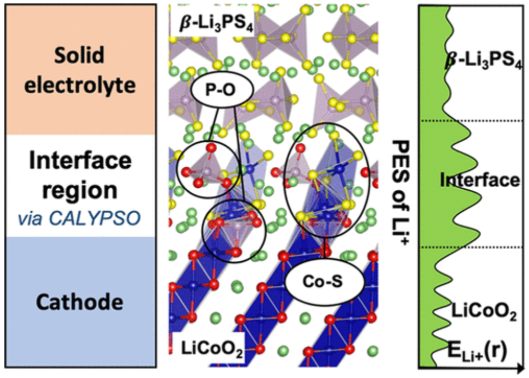
イオン・電子・電荷の移動

ヘビーな計算
少ない物性DB
材料設計に役立つ知識









固体内
バルク

電解液内
バルク

粒界

電極｜電解質
界面

ソリューション・ツール

・自動網羅計算
・転移学習
・回帰分析
・第一原理計算
・組成記述子
・メタヒューリスティクス
・構造記述子
・ベイズ最適化
・多目的最適化
・古典力場計算
・能動学習
・分類分析

計画と進捗状況（中間評価後）

FY-H27　FY-H28　FY-H29　FY-H30　FY-H31

全固体電池組

例1）バルク物性の最適化

例2）粒界記述子の開発

多価電池組

例3）電解液記述子の開発

例4）電極｜電解質界面反応の理解

基盤技術構築　例5）　独自古典力場プログラム開発（NAP）

3つの課題設定

新物質探索
実験実証
計算の最適化・自動化
電池材料への展開
計算自動化
機械学習
メタヒューリスティクス

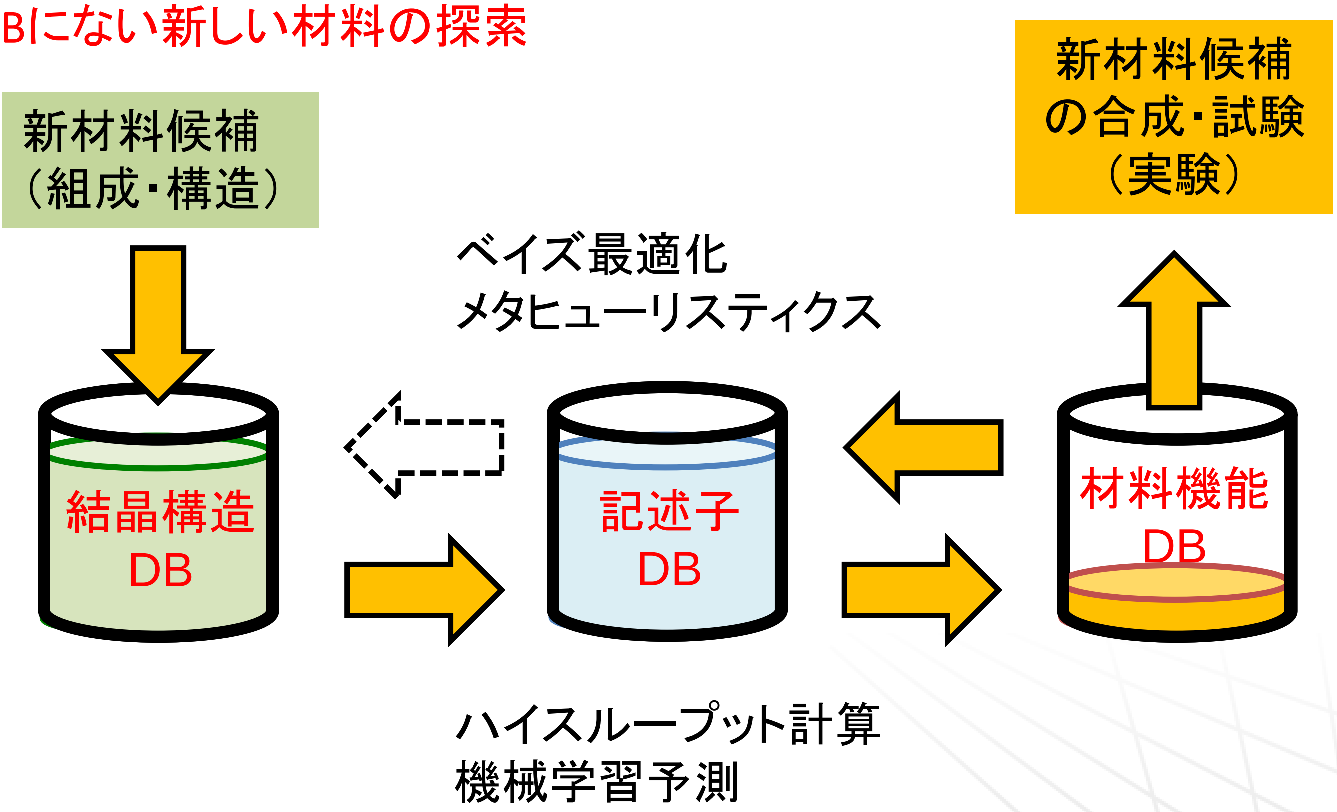
界面計算連携

記述子開発連携

基本戦略とMi2i後半の共通3目標

課題3：新材料発見・効率的な実験

課題1：DBにない新しい材料の探索



課題2：電解液や界面の記述子
効率的物性推測法

目次

1. MI^{2}I蓄電池材料グループ紹介
2. 研究の成果紹介
3. 人財・知識のアウトプット
4. まとめ

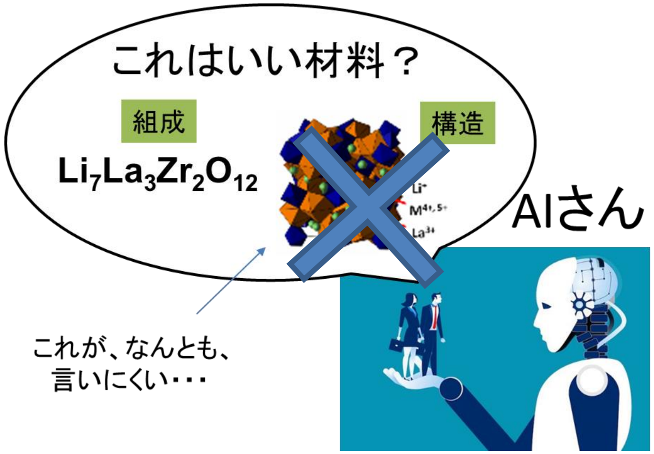
組成情報のみからの物性予測

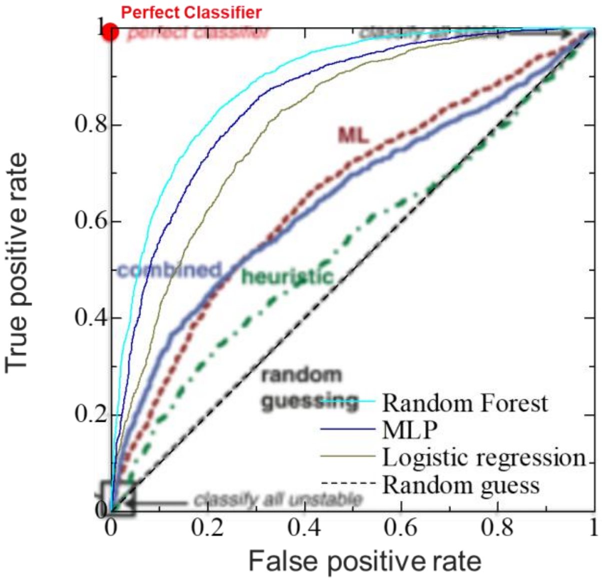
中山・竹内・小林・野田
Jalem・館山

【目的1：新材料探索】

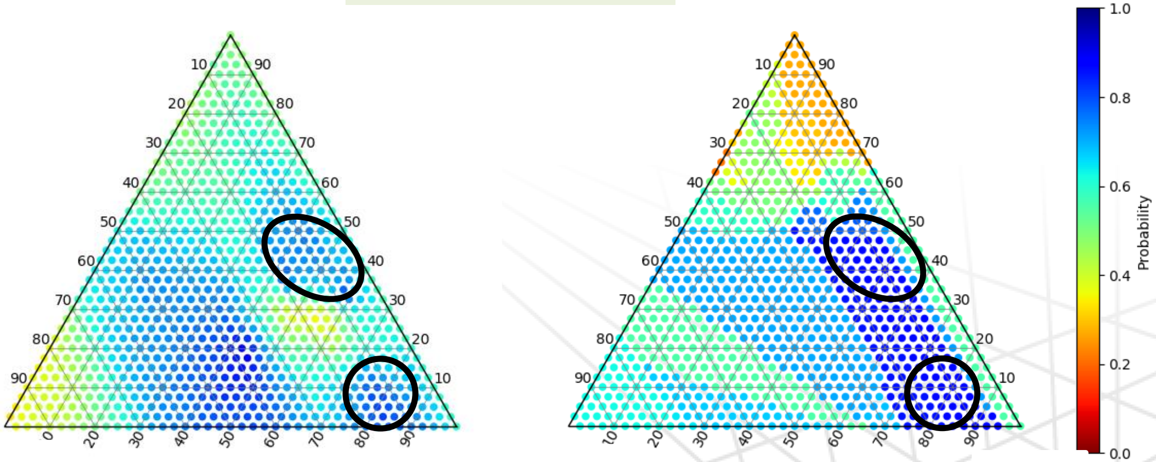
成果）機械学習予測に用いる記述子を組成情報のみに限定し新材料探索を容易に。開発した組成記述子は、比較的良好な正答率を実現。 合成可否・イオン伝導性などで検証。

Jalem et al. *STAM*, 19, 231-242 (2018)
Nakayama et al. *Chem. Record*, 19, 771-778 (2019) 他 論文執筆中





新規組成探索



相安定性　　高イオン伝導可能性

[1] B. Meredig *et al.*, Phys. Rev. B 2014, 89, 094104
[2] A..Seko et al., J. Chem. Phys. 2018, 148, 241719

固体電解質材料の多目的組成最適化

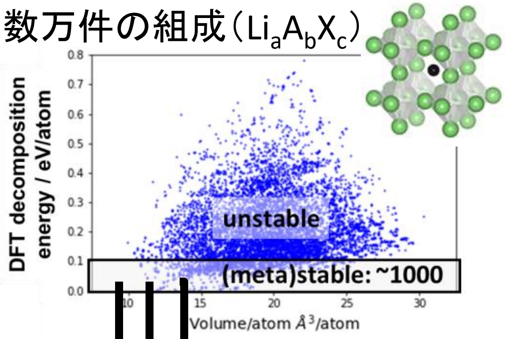
JALEM・館山・高田・中山

【目的1：新材料　→　目的3：実験検証】

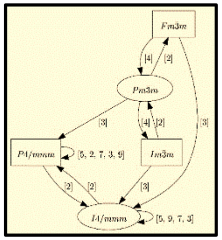
数万件の組成（$Li_aA_bX_c$）

成果）HT-DFTと多目的ベイズ最適化を組み合わせて、逆ペロブスカイト型の固体電解質における数万件レベルの合理的最適化を実証。(論文2件予定)

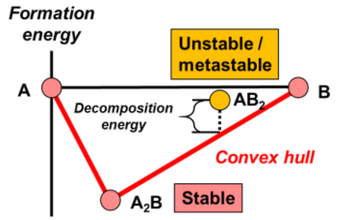
数万件の組成（$Li_aA_bX_c$）



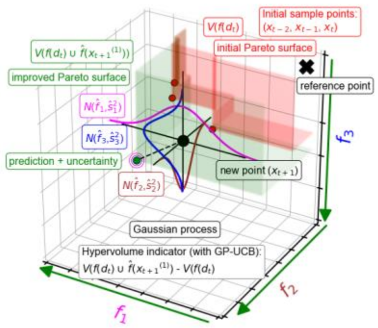
空間群によるイオン置



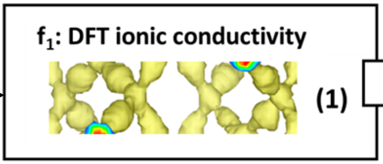
熱力学的安定性の評価



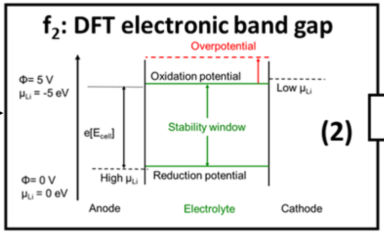
多目的ベイズ最適化



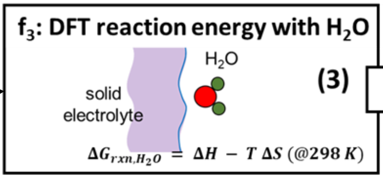
イオン電導度

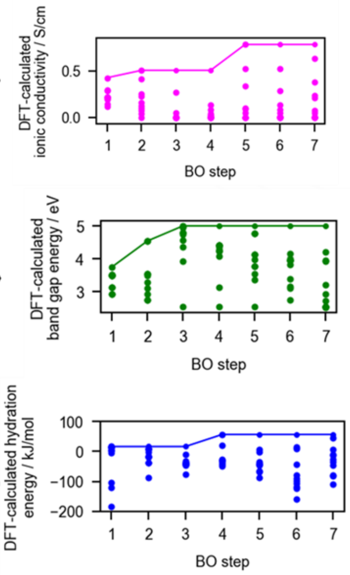


電位窓

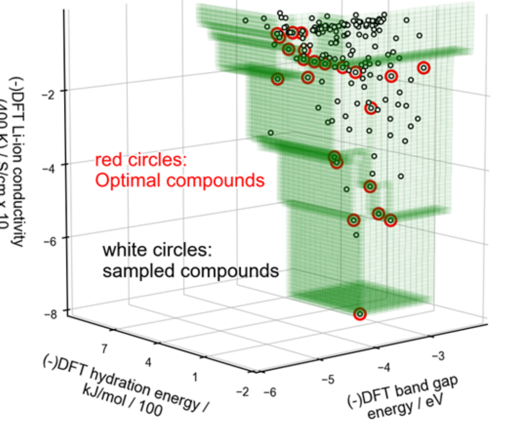


化学的安定性





全固体電池材料における物性の3D擬似パレート面



- Non-dominated points in red.

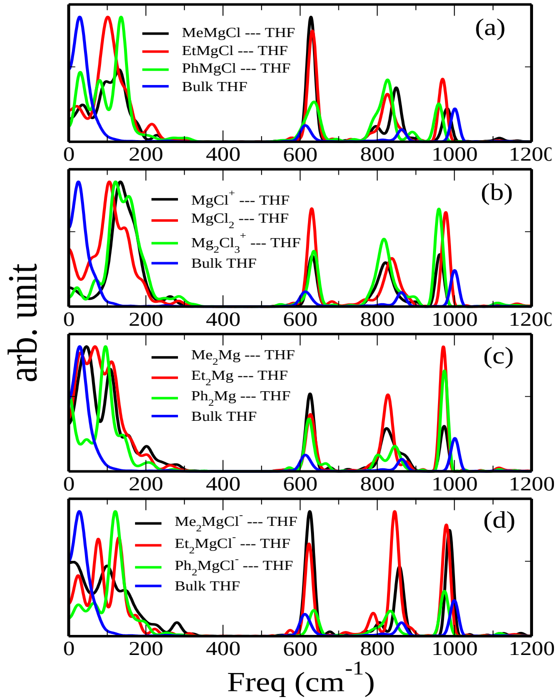
Mg金属電池電解液解析

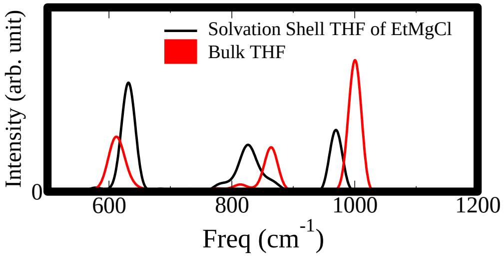
館山・Choudhary・袖山

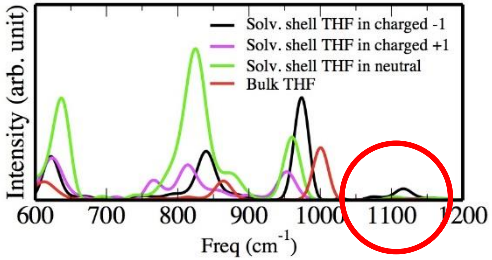
【目的2:電解液のインフォマティクス解析】

成果)第一原理分子動力学法を用いて、Mg金属電池電解液中の様々な溶媒和構造と振動スペクトル情報のセットを求め、実験スペクトルと比較により、その立つ溶媒和プロセスを予測する。　論文　投稿準備中1件

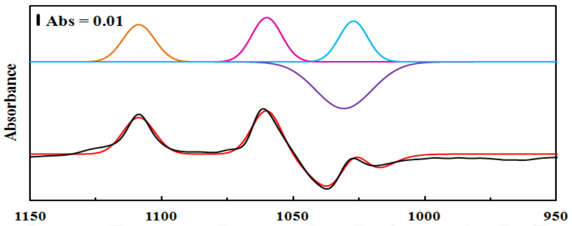
例　第一原理MD -> 速度相関 -> スペクトル







実験・差スペクトル



➔脱溶媒和過程の予測

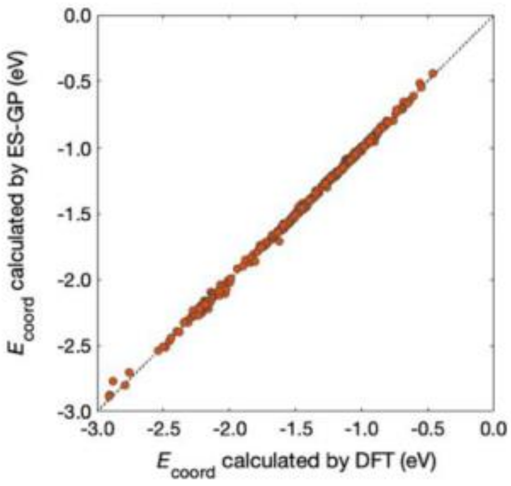
Mg金属電池電解液解析

館山・Choudhary・袖山
（岡田先生）

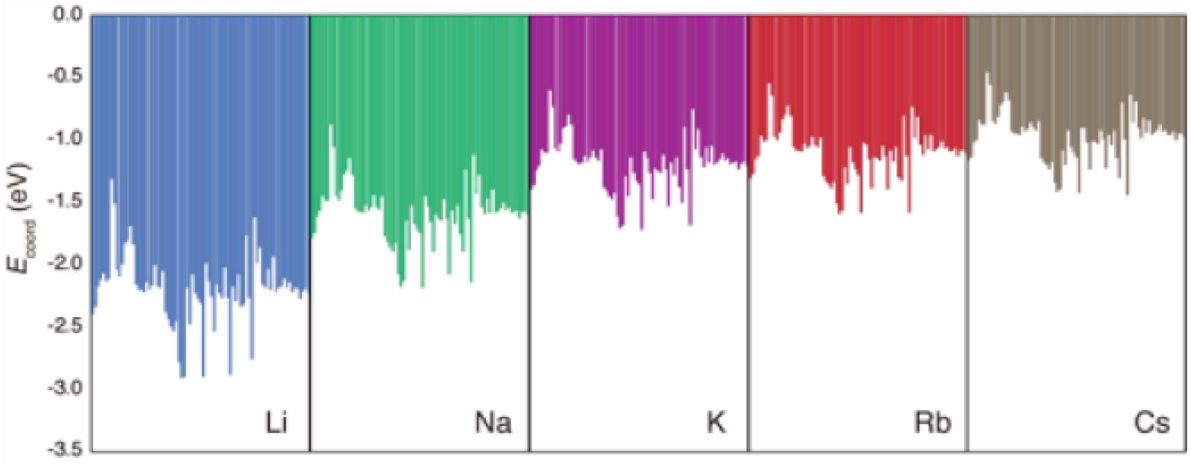
【目的2：電解液のインフォマティクス解析】

成果）第一原理分子動力学法を用いて、Mg金属電池電解液中の様々な溶媒和構造と振動スペクトル情報のセットを求め、実験スペクトルと比較により、その立つ溶媒和プロセスを予測する。　論文　投稿準備中1件

例　豊富なLi電池材料のデータからMg電池材料のデータに結び付けたい（進行中）



網羅的機械学習回帰式の診断プロット（テストデータ）



約500種の電解液のカチオンとの配位エネルギー計算結果

ヘテロ固固界面構造探索手法開発

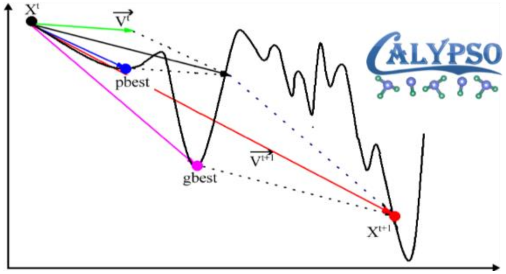
GAO・JALEM・館山

【目的2:界面構造の探索・決定】

成果）粒子群最適化法をベースとするCALYPSO法を、特徴量が膨大なヘテロ固固界面の安定構造探索を向けに改良し、「ヘテロ界面CALYPSO法」を開発した。さらに本手法を全固体電池正極ー固体電解質界面に適用し、界面におけるイオンの微視的振舞いを明らかにした。

論文２件（Chem. Mater. 2020, Curr. Opin. Electrochem. 2019)、プレスリリース、新聞掲載

例　ヘテロ界面CAYPSO法



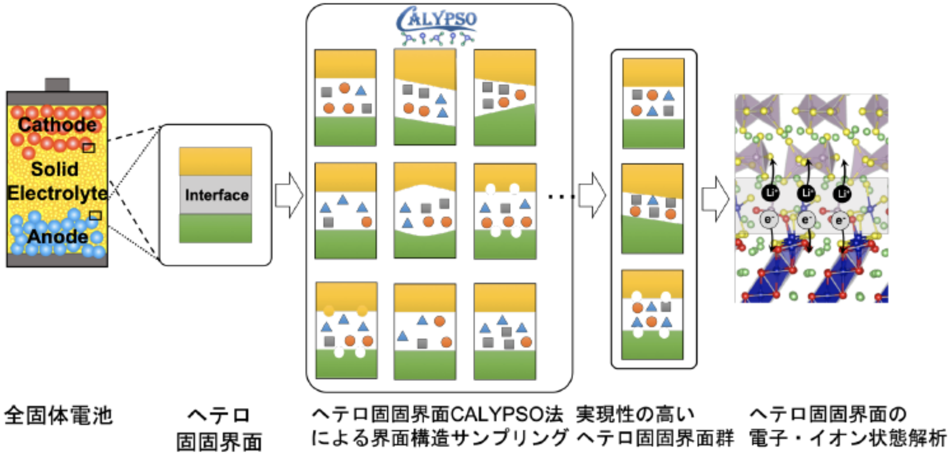
CALYPSO法

同時発表：
筑波研究学園都市記者会（資料配布）
文部科学記者会（資料配布）
科学記者会（資料配布）

複雑な固体材料界面の電子・イオン状態の高精度シミュレーション手法を開発

～全固体電池の電極―固体電解質ヘテロ固固界面の最適設計が加速～

配布日時：2019 年 11 月 21 日午後 2 時



20,000構造以上の高効率サンプリング

物材機構
固体材料の電子・イオン状態
高精度な計算方法開発
蓄電デバイス適用期待

日刊産業新聞

ヘテロ固固界面構造探索手法開発

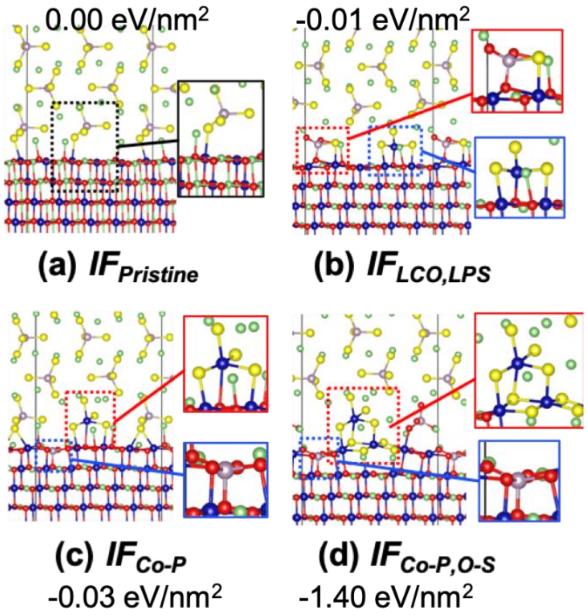
GAO・JALEM・館山

【目的2:界面構造の決定】

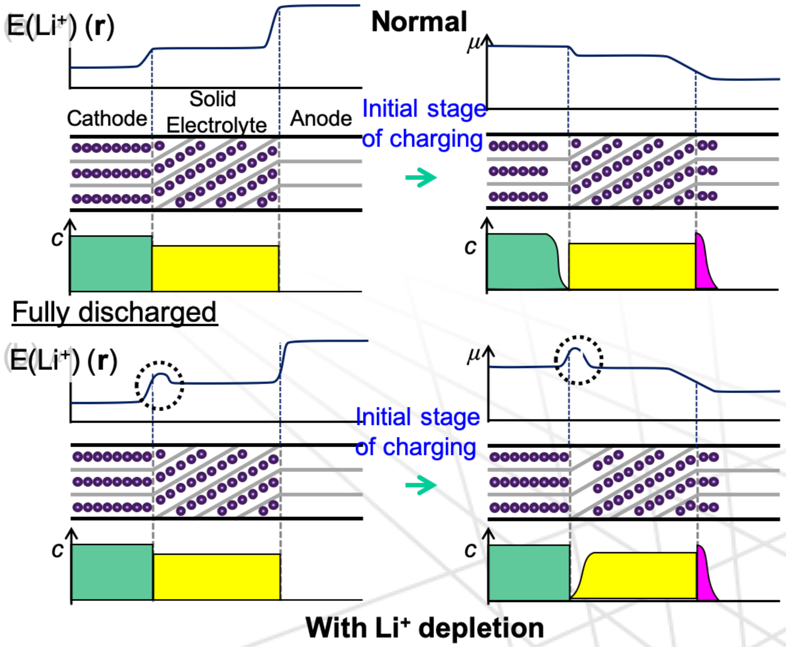
成果）粒子群最適化法をベースとするCALYPSO法を、特徴量が膨大なヘテロ固固界面の安定構造探索を向けに改良し、「ヘテロ界面CALYPSO法」を開発した。さらに本手法を全固体電池正極ー固体電解質界面に適用し、界面におけるイオンの微視的振舞いを明らかにした。

論文2件（Chem. Mater. 2020, Curr. Opin. Electrochem. 2019)、プレスリリース、新聞掲載

例　　得られた準安定構造群



全固体電池電極ー電解質界面におけるイオン挙動予測



転移学習による粒界構造探索の効率化

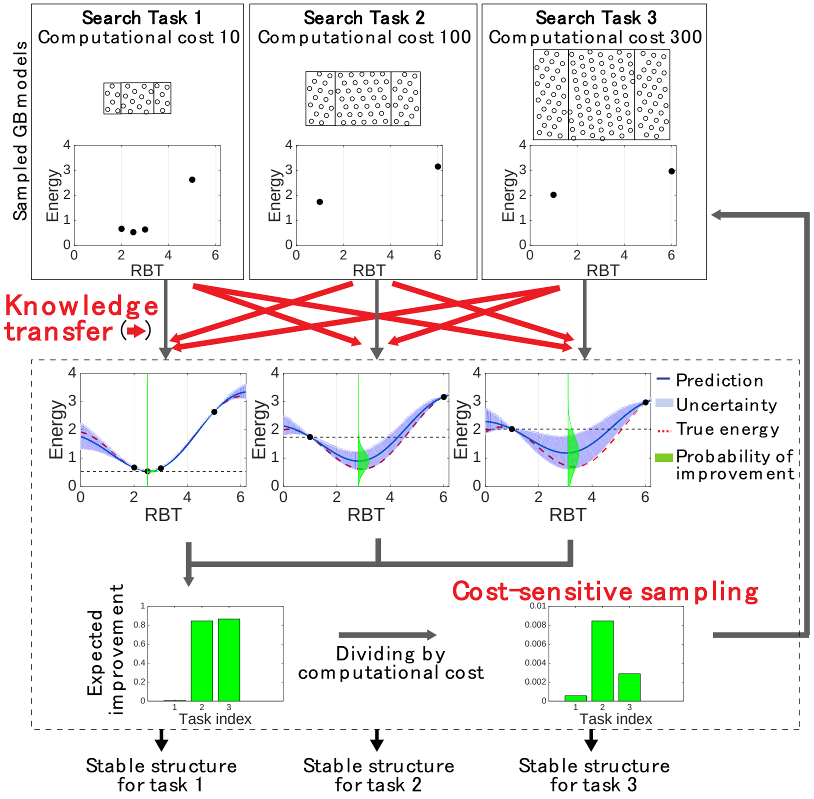
烏山, 田村

【目的2：界面構造の決定】

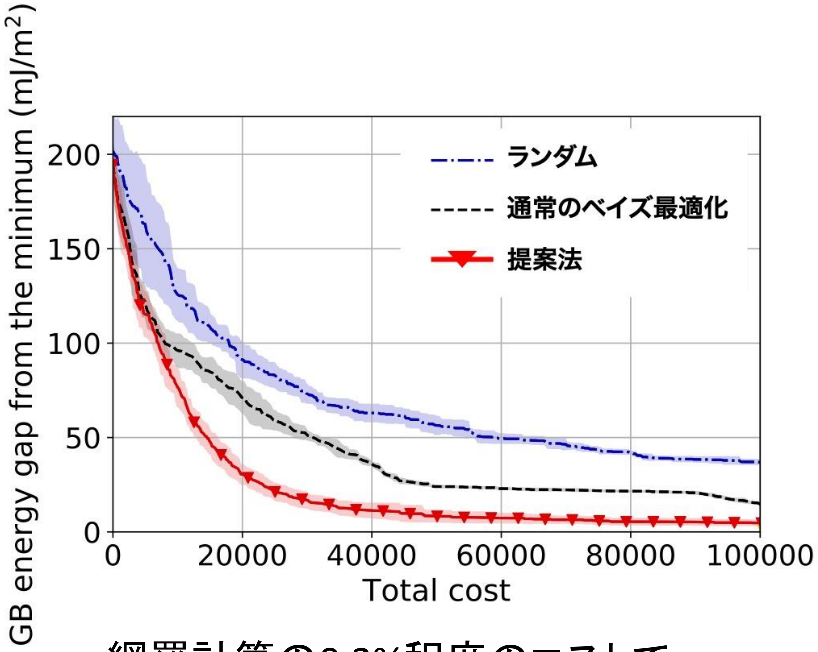
転移学習+コスト考慮戦略による結晶粒界の構造探索．計算の軽い小さな粒界構造計算データを，計算の重い粒界に転移することで探索の劇的な効率化が可能なことを示した

PRM 2018，プレスリリース（名工大2018.10.24），日刊工業新聞（2018.12.12）

コスト考慮型マルチタスク粒界構造探索



Fcc-Al傾角粒界モデルによる収束評価



網羅計算の0.2%程度のコストで
誤差約5mJ/m^2を達成

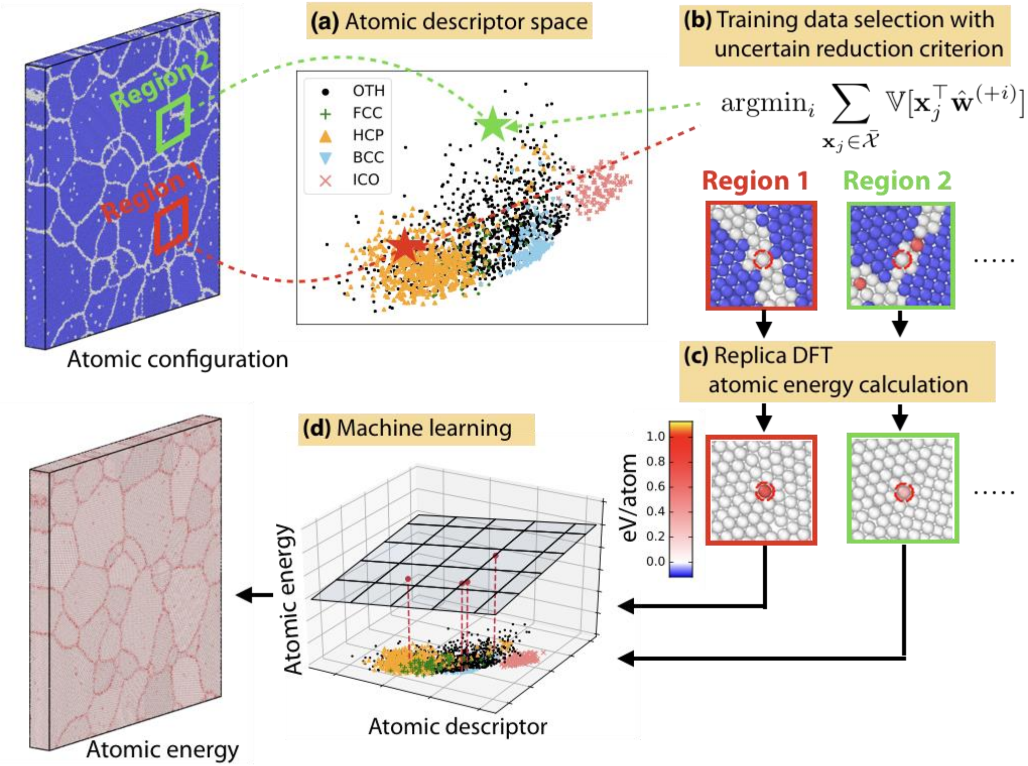
能動学習を活用した巨大粒界モデルへの挑戦 田村, 烏山

【目的2:界面構造の決定】

[https://arxiv.org/abs/1912.04596]

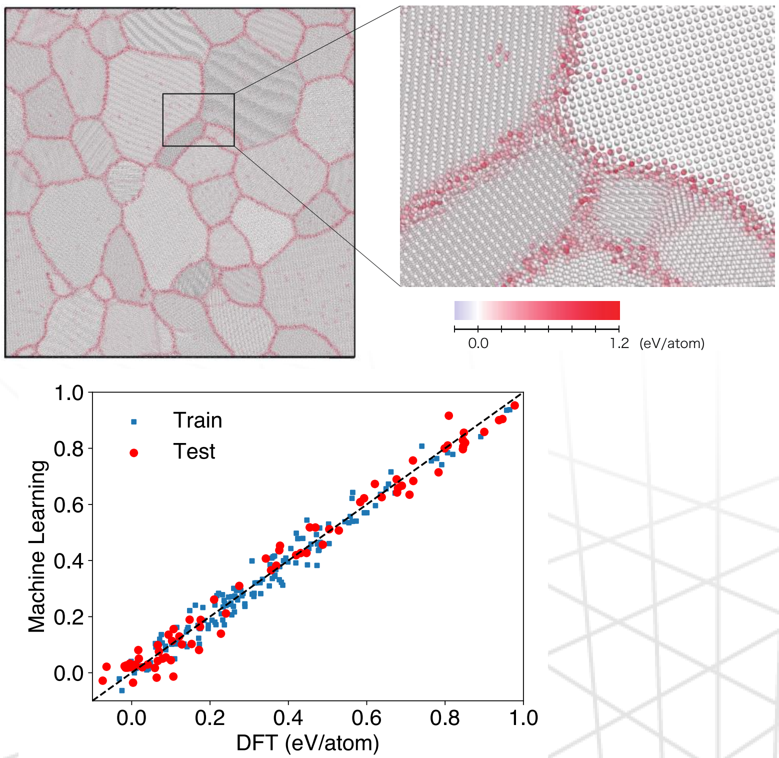
能動学習を活用することで，比較的小規模なDFT計算を150回程度実行して得られる訓練データから，**100万個以上の原子**が含まれる巨大粒界モデルの高精度なエネルギー分布の可視化に成功した．しかも，DFT計算は超並列で実行が可能である．

巨大粒界モデルの回帰予測の流れ



原子エネルギー予測

Fe: 1,037,880



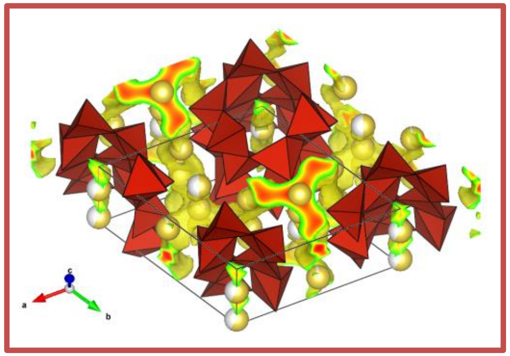
DB由来の新材料抽出と実験的検証

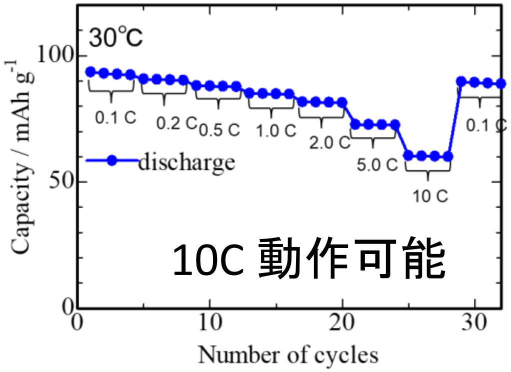
中山、高田、山本

【目的3：実験的検証】

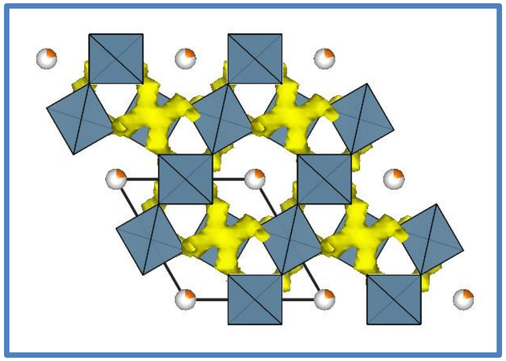
既存の結晶構造DBを網羅的にハイスループット計算を実施し、新規イオン導電性材料を探索。2つの新規な構造を有するイオン導電性セラミックス母材料を発見。

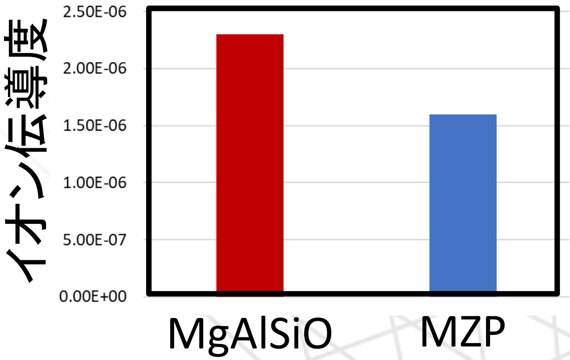
１次元ナノチューブ構造
電極材料$Na_2V_3O_7$





μコージェライト型
$Mg_{0.6}Al_{1.2}Si_{1.8}O_6$





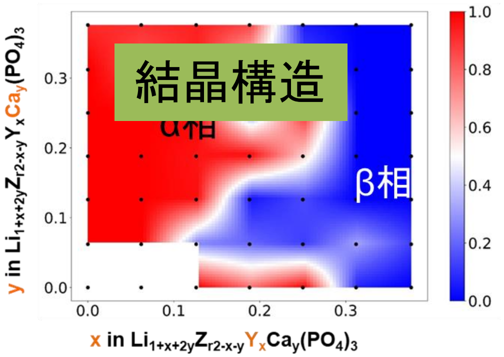
Tanibata, Nakayama et al. *Sci. Rep.* 8, 17199 (2018)
Takeda, Nakayama et al. *STAM, in press* (2020)

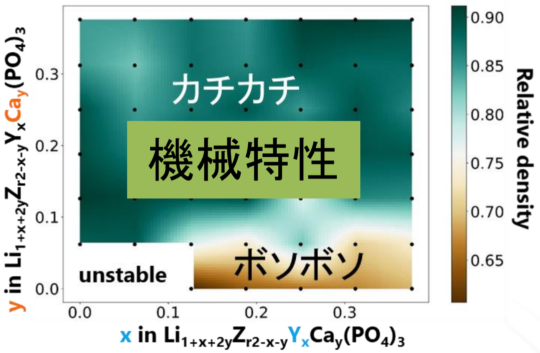
優れた母材料から組成を実験で最適化

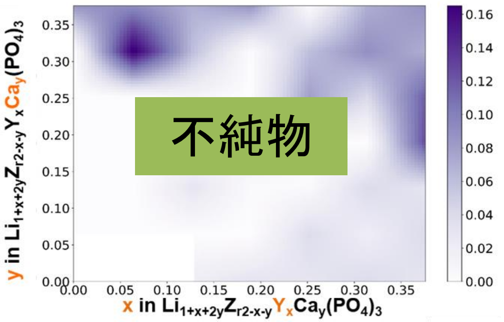
中山、竹内、烏山

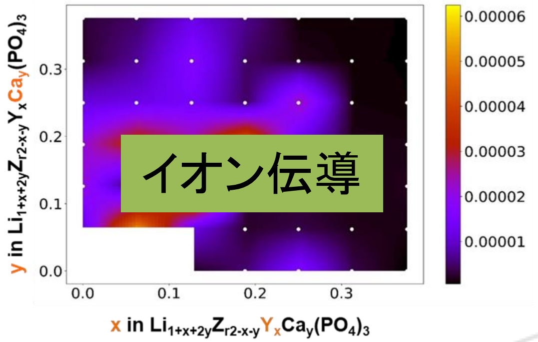
【目的3：実験的検証】

母材料に金属元素ドーピングをし物性制御・最適化する作業は日常的に行われている。本研究では、2元素ドープの複雑組成系でもベイズ最適化により効率的に最適組成を決定できることを確認した。また、複数の物性を最適化する多目的最適化についても検討している。（論文投稿準備中）

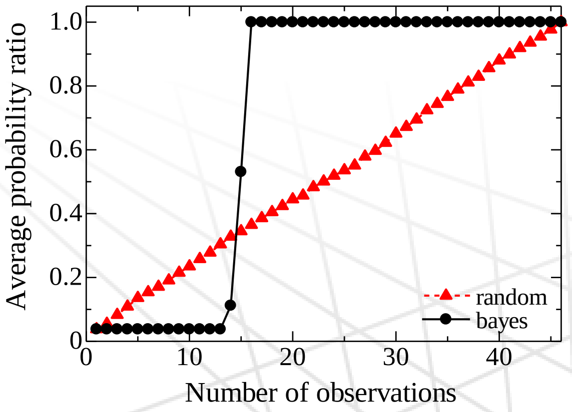








ベイズ最適化による
最適組成の決定



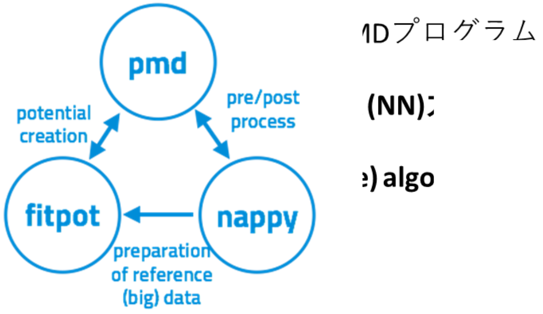
目次

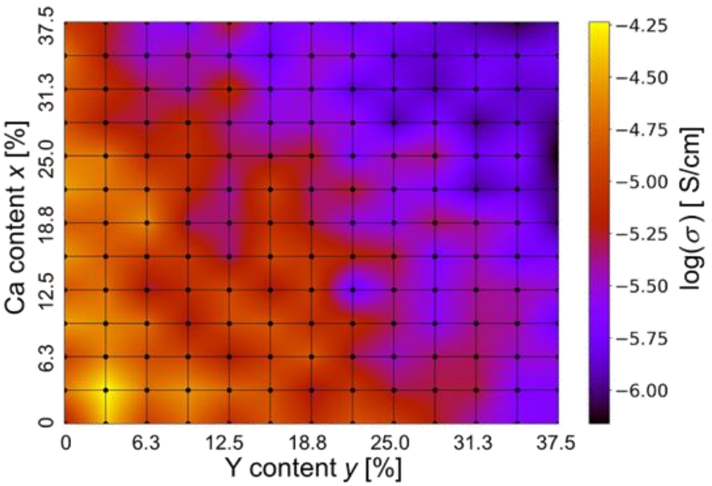
1. MI^{2}I蓄電池材料グループ紹介
2. 研究の成果紹介
3. 人財・知識のアウトプット
4. まとめ

DFTと連携した古典力場計算のプログラム開発 小林

古典力場計算のプログラム公開　（小林）
　１：メタヒューリスティクス(GA, DE, PSO)によるDFT→FFパラメーターの抽出
　２：ニューラルネットワークポテンシャル

NAP (Nagoya Atomistic-simulation Package)





https://mi2i.nims.go.jp/tools/tool02/

ハンズオンセミナーを実施＠名工大
合計8社参加

蓄電池G：ハンズオンセミナーの開催

中山・小林

H30年度までの成果

名古屋工業大学サテライト拠点にて、コンソーシアム会員を対象にハンズオンセミナーを開催（H30,R1年度　それぞれ2回ずつ）　1グループに対して学生TAを1名以上配置して、徹底解説した。

材料記述子の作成と機械学習

古典力場ソフト NAPの使用法

研究人材育成

若手研究者の「さきがけ」採択	袖山、鳥山、Jalem、石川
パーマネント/テニュアトラックポジションの獲得	NIMS職員×３名 国立大学×１名 私立大学×１名
昇進など	研究員→主任研究員　１名 助教→准教授　２名 主任研究員→GL　１名 准教授→教授　１名 T大先生→肩書たくさん

目次

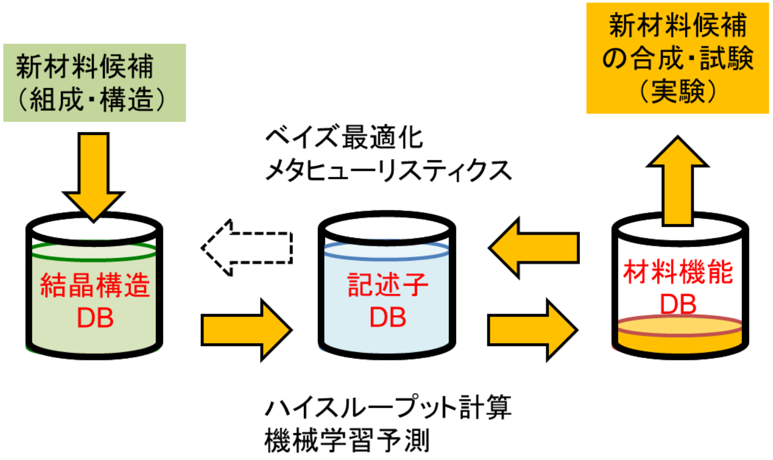
1. MI^{2}I蓄電池材料グループ紹介
2. バルク物性の研究
3. 界面物性の研究
4. まとめ

まとめ

【研究】 3つの目標を設定して具体的ソリューションを探った

課題1：DBにない新しい材料の探索

課題3：実験につなげる



課題2：電解液や界面の記述子
効率的物性推測法

【人財育成】

- ソフト開発とハンズオン講習
- 若手研究者の育成

ご清聴ありがとうございました