

文部科学省 「富岳」成果創出加速プログラム

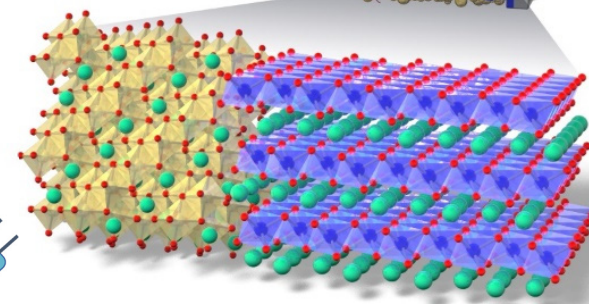
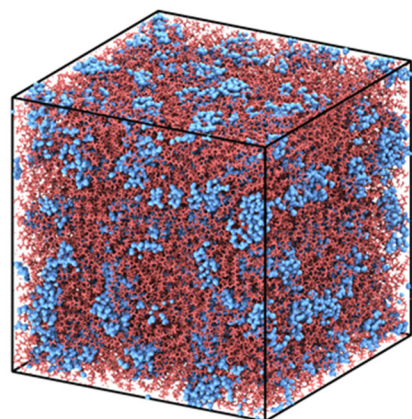
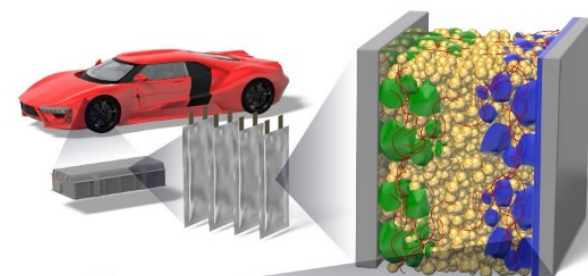
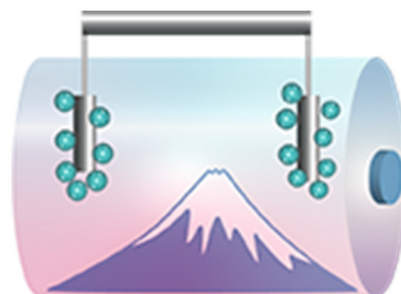
次世代二次電池・燃料電池開発によるET革命に向けた 計算・データ材料科学研究 (富岳電池課題)

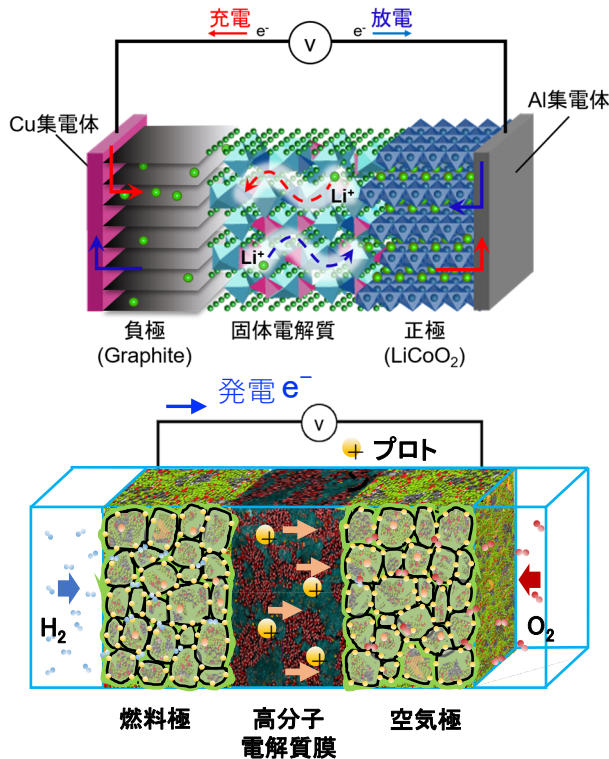
代表機関: NIMS

課題責任者: 館山佳尚 (NIMS グループリーダー)

URL: <https://www.nims.go.jp/fugaku-denchi/>

事務局: fugakubfc-office@ml.nims.go.jp





解決すべき技術的課題

二次電池:

- ・安全性: 全固体電池の開発、燃えない電解液の開発、劣化抑制
- ・高速充放電: 電極界面の低抵抗化、固体電解質の物質輸送高速化
- ・容量(エネルギー密度): 金属負極の利用、新規正極

燃料電池:

- ・高耐久性: 劣化反応抑制、電解質膜の高強度化
- ・高出力化: 反応の高活性化、高性能電解質膜の開発
薄膜化・クロスリーク防止、物質輸送高速化
- ・低コスト: 脱白金、低白金化

計算に求められている課題

二次電池:

- ・電解液・固体電解質の材料設計
- ・界面の微視的機構の解明
- ・界面制御指針の確立

燃料電池:

- ・電極材料設計技術の確立
- ・高分子電解質膜設計技術の確立
- ・電極界面の微視的機構の解明

研究サブテーマ:

A: 次世代二次電池

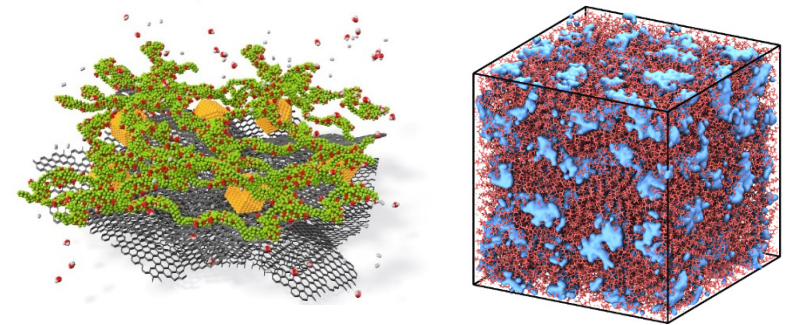
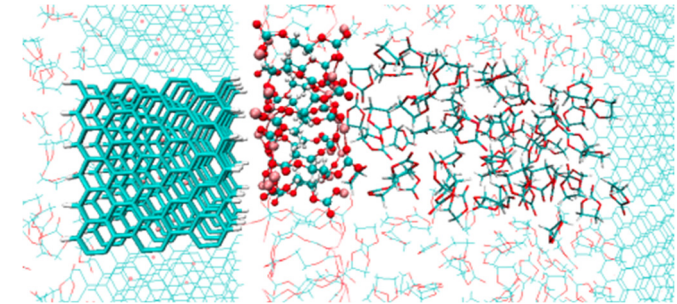
A1: 電解液系次世代二次電池

A2: 全固体(二次)電池

B: 次世代燃料電池

B1: 電極界面反応

B2: 電解質膜・プロトン輸送



課題終了時までの目標:

サブテーマA: 二次電池

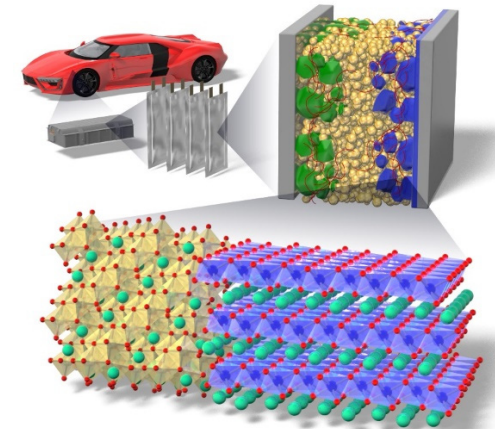
- ・次世代二次電池向けの電解液・固体電解質の提案
- ・次世代二次電池に資する界面制御指針の提案

サブテーマB: 燃料電池

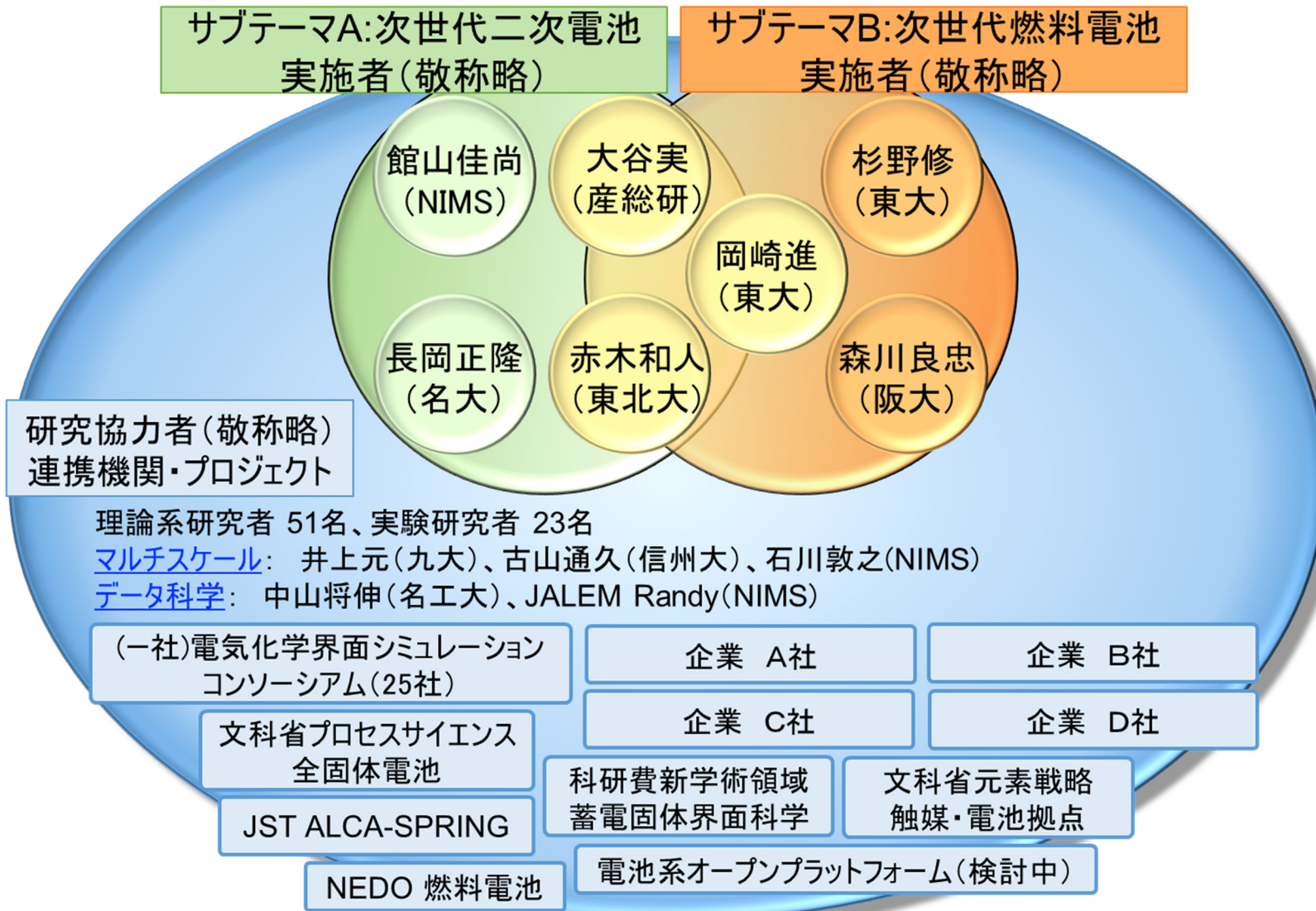
- ・次世代燃料電池に資する電極材料の提案
- ・次世代燃料電池に向けた電解質膜内の微視的機構の解明

課題全体:

- ・産業界コンソーシアム等を通じた計算・データ技術の社会実装



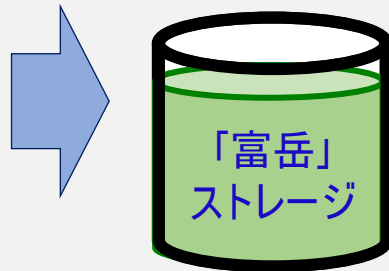
物理・化学分野にまたがる産官学の強力な連携体制により、
技術移転と成果創出を加速



データ創出



第一原理MD:stat-CPMD
古典MD:MODYLAS
億規模のデータ生成



データ格納

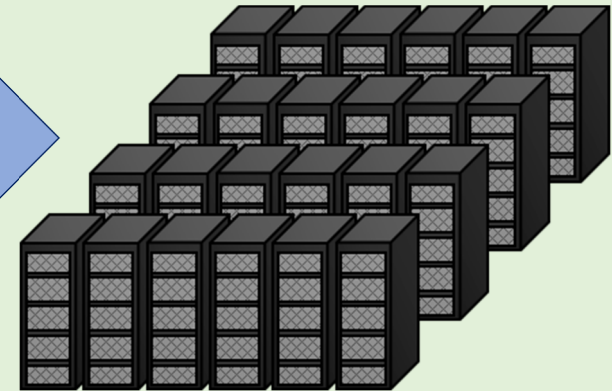
データ蓄積・公開



NIMS 材料データ
プラットフォームセン
ター(DPFC)

MDR-Closed

リポジトリ



+ メタデータ(データアノ
テーション機能)

大規模・長時間計算データ、
再利用可能データの格納・利
活用

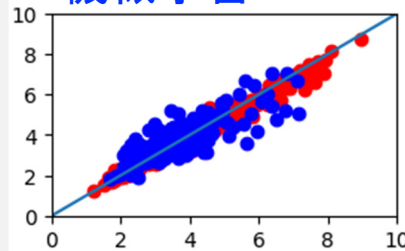
データ活用

指
針
獲
得

記述子抽出・材料探索

超大規模・長時間
MDシミュレーション

機械学習



$$y_i^k = f_a \left(b_i^k + \sum_{j=1}^{n_l} a_{ji}^{lk} y_j^l \right)$$

neural network力場作成

データ活用

データ活用

プロジェクト内へ公開、
将来は、プロジェクト外にも公開

主要アプリケーションの機能・特徴と主な成果

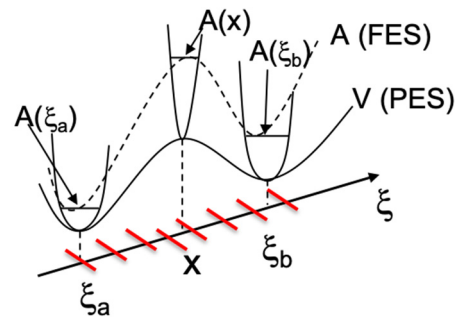
stat-CPMD: 第一原理分子動力学計算 x 高次並列化

● 主な計算手法・機能

- 密度汎関数理論ベースの第一原理分子動力学計算
- 平面波基底: 凝縮系(固体・液体・界面)計算に適性
- 統計力学ベースの自由エネルギー計算手法(Blue-Moonアンサンブル法、meta-dynamics法等)実装
- MPI制御による高次並列化導入

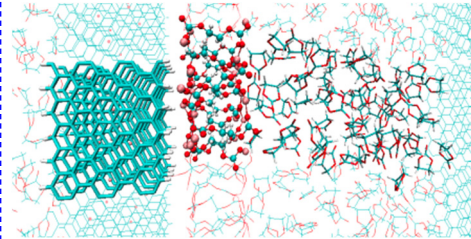
● 特徴

- 数千原子オーダー大規模DFT-MDサンプリングの大量実行が可能
- 自由エネルギー計算(熱力学積分計算)・ハイスループット計算共に多数ノード高効率実行が可能
- 酸化還元電位計算・マルチカノニカル計算の高効率実行が可能

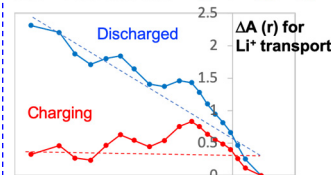
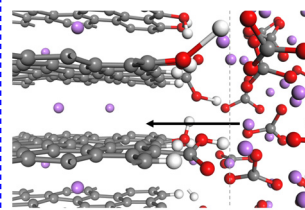


● URL: <https://www.nims.go.jp/group/cs/>

二次電池負極界面被膜の微視的機構研究



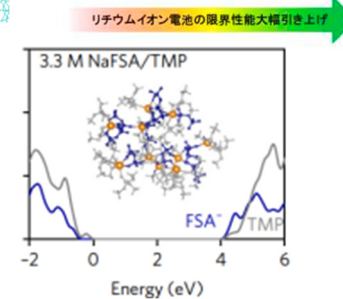
界面被膜形成の“沖合集積”による新メカニズム提案
J. Electrochem. Soc. (2015)



負極-SEI膜界面の Li^+ 輸送メカニズムの理論提案

Phys. Chem. Chem. Phys. (2020)
[Invited article in a special issue]

二次電池高濃度電解液開発支援



・高安全性電解液「消火性電解液」開発に貢献

Nature Energy., **3**, 22 (2018)

・新タイプ電解液「高濃度電解液」の安全性向上やイオン拡散の微視的メカニズム解明

J. Am. Chem. Soc. **136** (2014),
Nature Commun., **7**, 12032 (2016)

・低コスト・高安全性電解液「ハイドレートメルト」開発に貢献
Nature Energy., **1**, 16129 (2016)

京大触媒・電池元素戦略拠点、東大、企業との連携により実施 7

MODYLAS: 高並列汎用分子動力学シミュレーションソフト

● 主な計算手法・機能

- (1) 汎用分子動力学計算
 - ・アンサンブル NVE、NVT、NPT(full flexible)、引張り試験
 - ・拘束 原子、分子集団、反応座標 SHAKE, RATTLE, ROLL
 - ・力場 各種力場、テーブル関数
- (2) 自由エネルギー 各種方法
- (3) 不均一系の位置依存の拡散係数、大域的な浸透係数
- (4) プロトン移動 vehicle機構、Grottuss機構、EVBモデル
- (5) FMM法によるクーロン相互作用、圧力テンソル計算
- (6) 新規通信アルゴリズムMTD法、RDMA通信

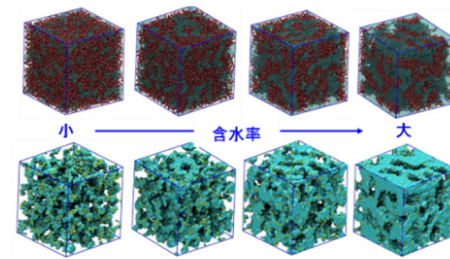
● 特徴

- ・100万原子を超える大規模系計算に最適
- ・高効率の超並列計算
- ・不均一系、界面系、プロトン移動等
- ・GROMACS互換



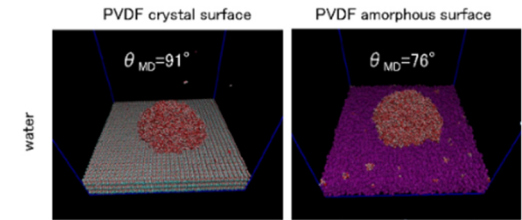
● URL: <http://www.modylas.org/>

高分子電解質膜 IMPACT連携 分離膜設計 NEDO 超々連携



高分子電解質膜のマイクロ相分離構造

J. Phys. Chem., C **120**, 25832(2016)



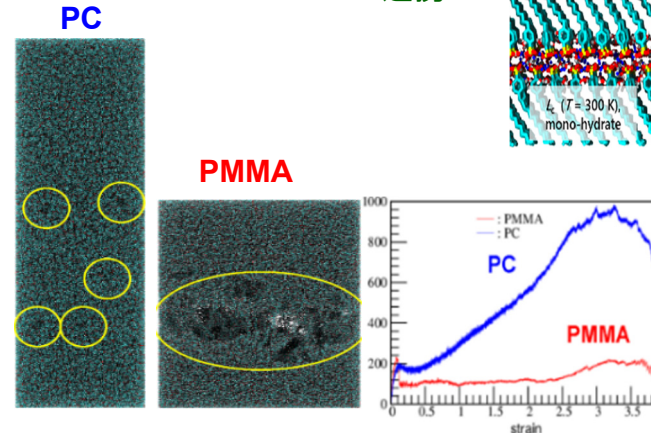
高分子界面の過剰自由エネルギー

Langmuir, **34**, 12214(2018)

界面活性剤

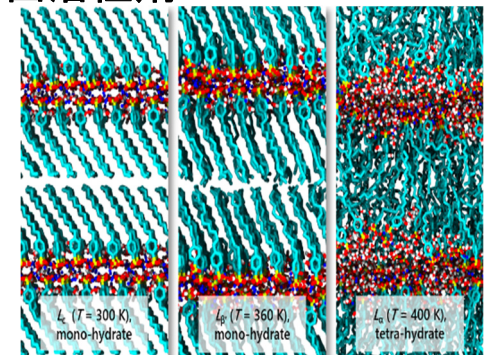
MODYLASが適用可能な材料系

高分子樹脂 IMPACT連携



高分子樹脂の脆性・延性破壊

Polymer, **178**, 121570(2019)



界面活性剤の相安定性

Langmuir, **35**, 10877(2019)

STATE: 第一原理分子動力学プログラム

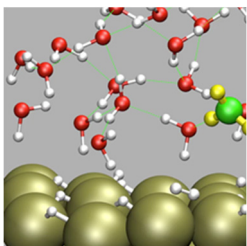
森川(阪大)

● 主な計算手法・機能

- (1) 平面波基底・ウルトラソフト擬ポテンシャル
- (2) LDA, GGA, GGA+U, vdW-DF
- (3) ESM法による界面での電場、電極電位制御

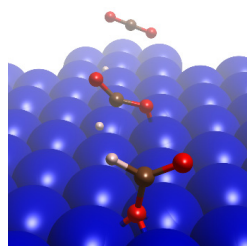
● 特徴

固体表面・界面での電場・電位制御、レプリカ、k点、バンド、G点のMPI四重並列+ OpenMP並列化による高並列計算



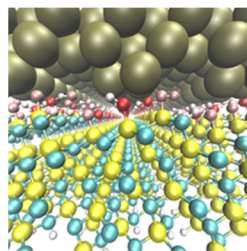
水/Pt界面での水素発生反応

J. Phys. Soc. Jpn., **77**, 024802 (2008).



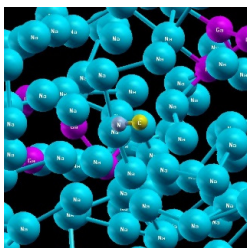
振動励起によるCO₂水素化促進

Nature Chem., **11**, 722 (2019).



Pt/HF/SiC界面でのエッチング反応

Appl. Phys. Lett., **107**, 201601 (2015).



Naフラックス中でのGaN結晶成長促進機構

APEX, **9**, 015601 (2016).

● URL: STATE-Wiki: http://www-cp.prec.eng.osaka-u.ac.jp/puki_state/index.php

RedMoon: 混合モンテカルロ(MC)/分子動力学(MD)反応法化学反応シミュレーション

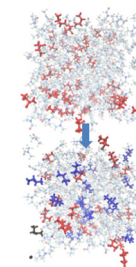
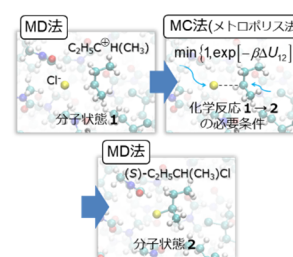
長岡(名大)

● 主な計算手法・機能

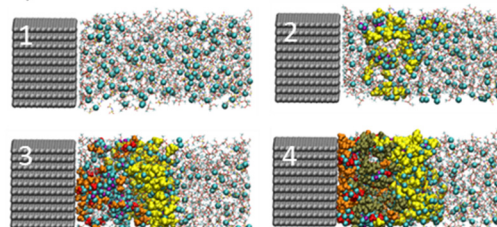
- (1) 混合MC/MD反応法による化学反応シミュレーション
- (2) MM法、QM/MM法による反応エネルギー評価

● 特徴

- (1) メトロポリス法による非平衡系の確率的分子シミュレーションが可能(MDソルバー: AMBER、LAMMPS等)
- (2) 化学反応に伴う分子種変化のミクロな取扱い可能
- (3) 拡張系の方法に基づいた定電位差印加が可能
- (4) 100万原子スケールのバルク系、界面系に対応可能



Red Moon法 - 混合MC/MD反応法に基づいた大規模複合反応系のアトミックシミュレーション
Chem. Phys. Lett., **583**, 80 (2013)



Red Moon法で明らかになったリチウムイオン電池負極被膜のボトムアップ生成機構
J. Phys. Chem. Lett., **10**, 5949 (2019)

● URL: <http://www.ncube.human.nagoya-u.ac.jp/jp/project/macro.html>

ESM-RISM

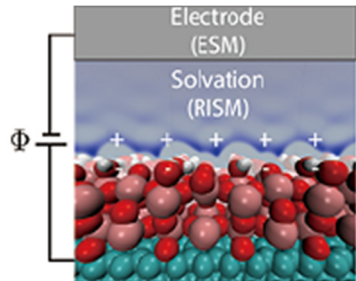
大谷(産総研)、杉野(東大)

● 主な計算手法・機能

- (1) 電極触媒・電解質界面(固液界面)での電子状態及び構造に関する第一原理計算を行う計算手法
- (2) 界面付近から離れた溶媒分子をあらわに計算することなく、その密度分布を決定することができる

● 特徴

- ・ 界面から離れた領域での密度分布の決定が可能
- ・ 電池のシミュレーションに有効な電位の決定が可能



金属に担持された酸化物電極触媒のシミュレーションのイメージ図

Application for Electrode/Electrolyte interface

電極(+ion)をDFT+ESM (QM), 溶液を古典溶液理論(RISM)で扱うHybrid理論.



Grand canonical system

$$\Omega = A - \Delta N_e \mu_e \quad : \text{Grand potential}$$

$$A = E_{\text{DFT}} + \Delta \mu_{\text{solv}} \quad : \text{Helmholtz free energy}$$

電子の化学ポテンシャル(μ_e)

→電極電位

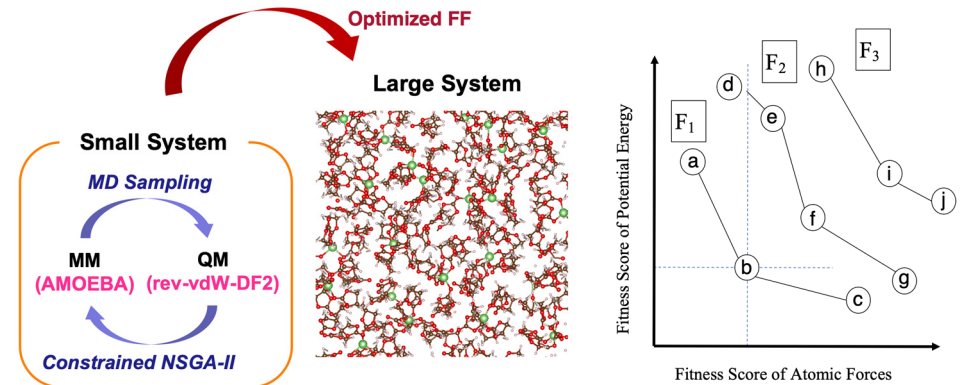
溶媒和機構→RISM方程式

カ場最適化フレームワーク

赤木(東北大)

● 特徴

・VASPと拡張型遺伝アルゴリズムによる最適化



VASP

● 主な計算手法・機能

・密度汎関数理論ベースの第一原理計算の標準的プログラム。Wien大学のKresseらが開発・管理。

● 特徴

- ・ 多彩な機能を有する。どの計算機とも親和性が高い。
- ・ 富岳については、計算条件次第で良いパフォーマンスが出る。

背景：高イオン伝導度固体電解質探索の新しい・有望な方向性が待たれる。

→ 目標：高イオン伝導度を持つ固体電解質物質群から支配因子を探る

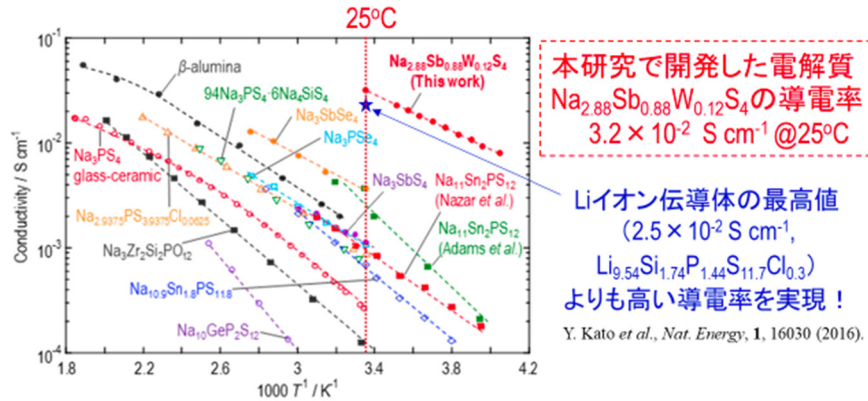
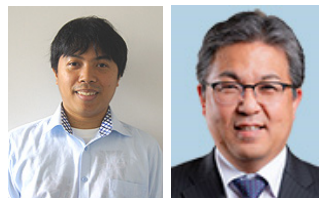


図2 ナトリウムイオン伝導性固体電解質の導電率の温度依存性

A. Hayashi *et al.*, Nat. Commun. 10, 5266 (2019).

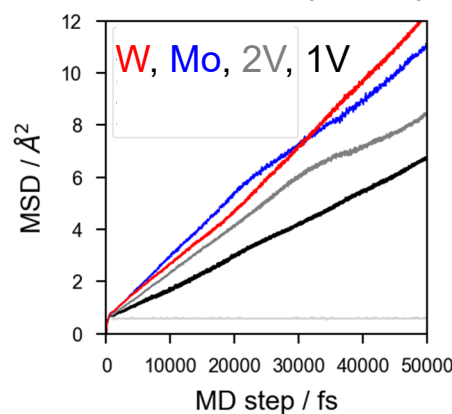
成果：イオン拡散時の(遷移状態)ボトルネック体積よりもWykoff site cage(準安定サイト)の体積が重要な記述子であることを示唆。



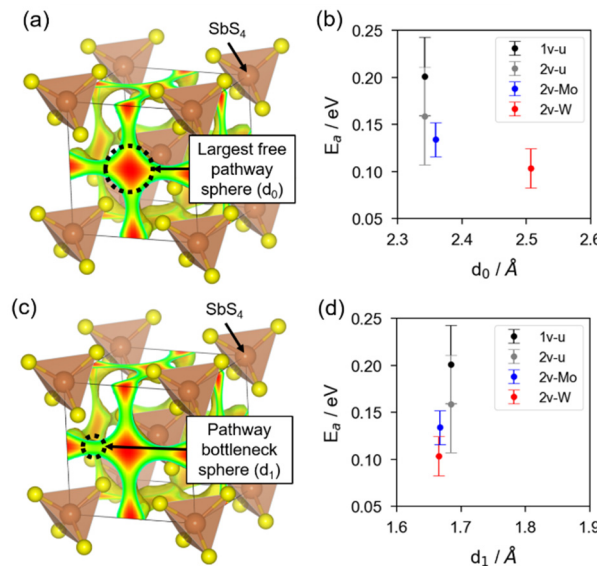
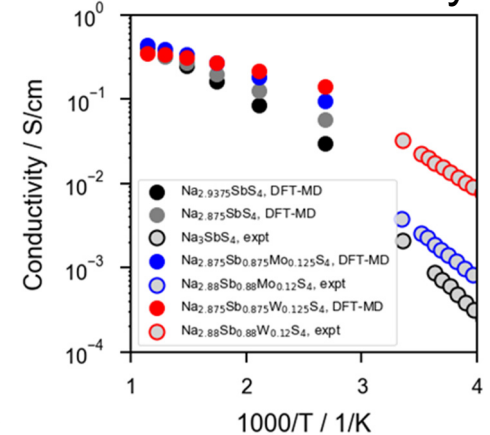
DFT-MDサンプリング: VASP

R. Jalem*, A. Hayashi, Y. Tateyama* *et al.*, Chem. Mater. **32**, 8373-8381 (2020). [IF=9.57]

DFT-MD (473K)

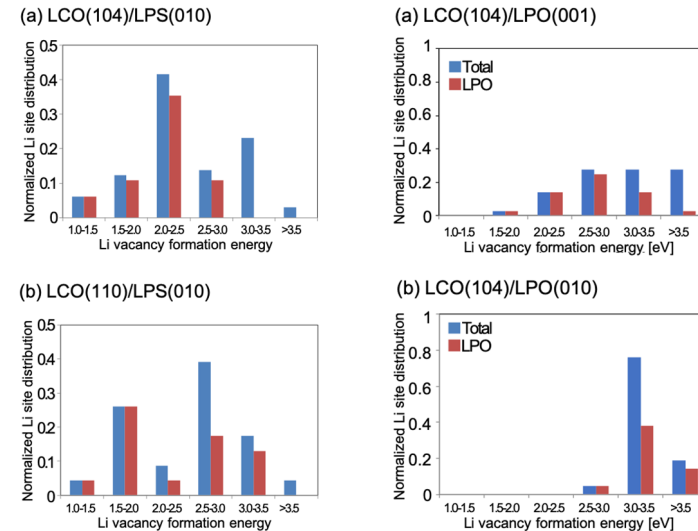
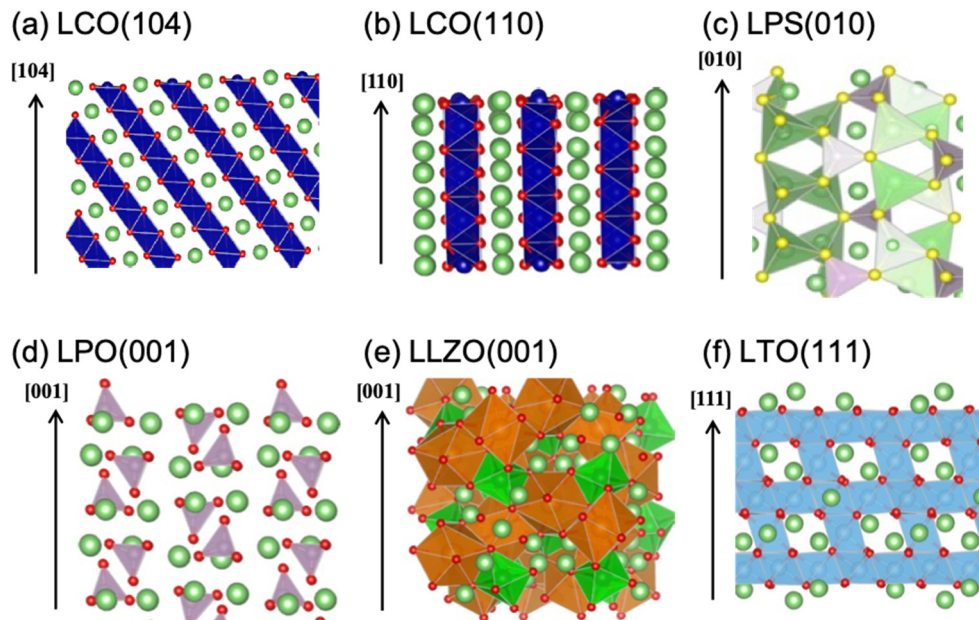


Ion conductivity

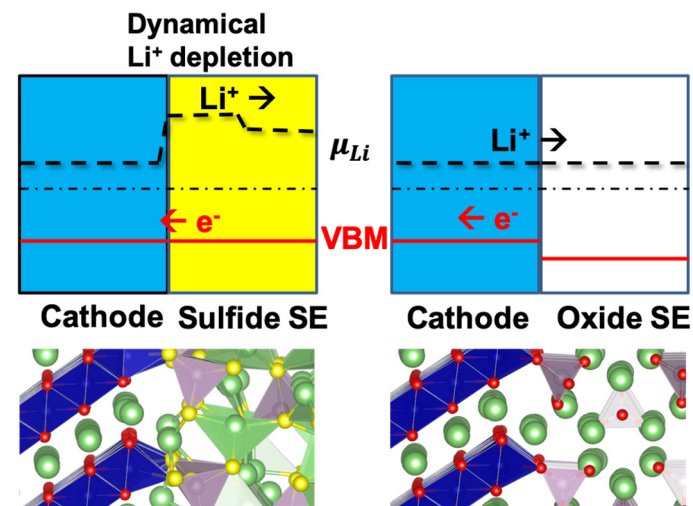


$E_{A,DFT-MD}$	$= 0.201 \pm 0.042$ eV
$E_{A,DFT-MD}$	$= 0.159 \pm 0.052$ eV
$E_{A,DFT-MD}$	$= 0.134 \pm 0.018$ eV
$E_{A,DFT-MD}$	$= 0.104 \pm 0.021$ eV
$E_{A,expt}$	$= 0.27$ eV
$E_{A,expt}$	$= 0.23$ eV
$E_{A,expt}$	$= 0.22$ eV

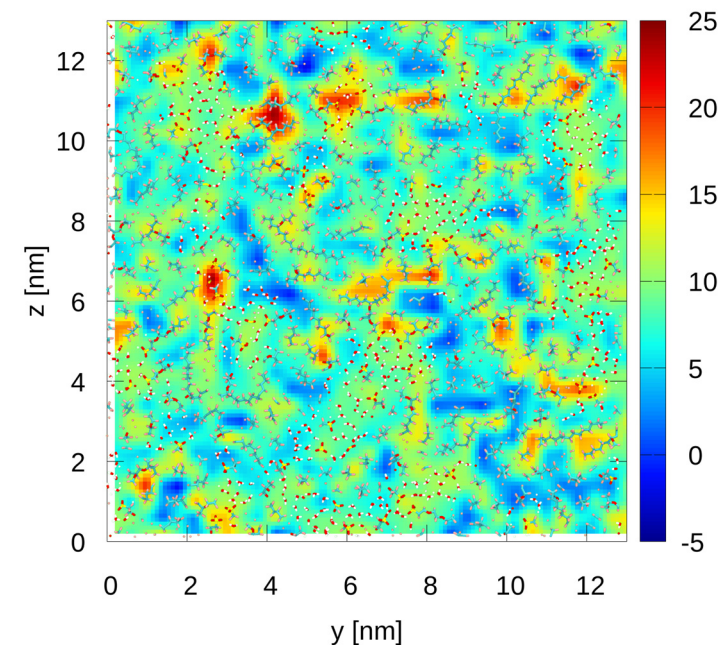
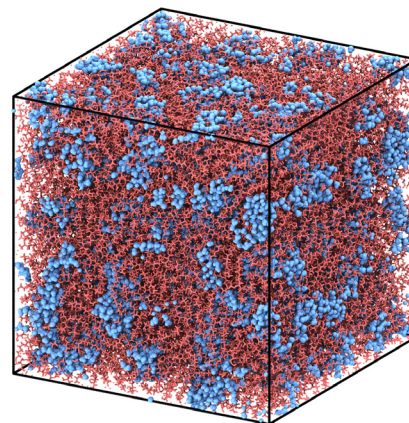
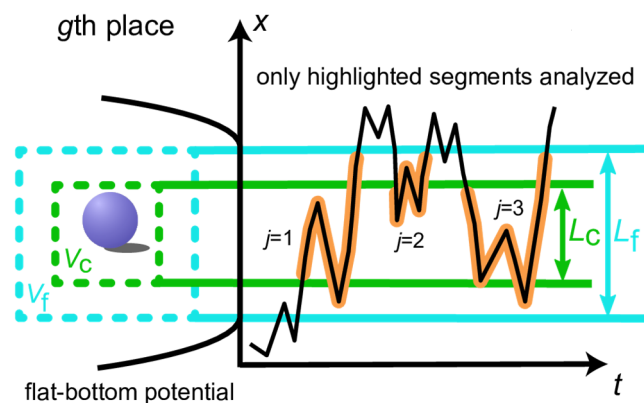
産学官連携研究 (富士フイルム-NIMS)



硫化物固体電解質、酸化物固体電解質、
コート層の包括的第一原理計算解析



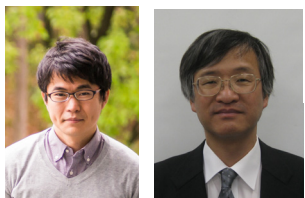
Y. Okuno*, Y. Tateyama* *et al.*, ACS Appl. Energy Mater. **3**, 11061-11072 (2020). [IF=4.47]
DOI: 10.1021/acsaem.0c02033



電解質膜バルクや電極界面におけるプロトン、酸素、水素の大域的な浸透係数を、位置に依存する自由エネルギーと拡散係数から評価する新規方法論を確立した。この手法は、ガス分離膜やイオン伝導体などにも応用できる。

電解質膜バルクのモデリングと、電解質膜バルクの内部に於ける水素の位置に依存した自由エネルギー計算を行った。

水素の自由エネルギーの断面図と、その断面に対応する分子構造を重ねたものを示す。自由エネルギーと分子構造との関係を明らかにし、輸送のメカニズムを明らかにしつつある。



T. Nagai, S. Okazaki* *et al.*, J. Chem. Theory Comput. **16**, 7239–7254 (2020). [IF=5.01]
DOI:10.1021/acs.jctc.0c00448

富岳電池課題 第1回公開シンポジウム(成果報告会)



次世代二次電池・燃料電池開発によるET革命に向けた計算・データ材料科学研究

日時：2021年3月21日(日) 13:00~15:40

形式：日本化学会第101春季年会(2021)併催シンポジウム オンライン開催
(配信方法は参加登録者に連絡)

参加費：無料

参加登録：「富岳電池課題」サイト内にある第1回公開シンポジウム(成果報告会)のページから、「参加登録」よりフォームに必要事項をご記入の上お申し込みください。

<https://www.nims.go.jp/fugaku-denchi/events/2020/20210320.html>

日本化学会第101春季年会(2021)の参加有無に関わらず、どなたでもご参加いただけます。



「富岳電池課題」第1回公開シンポジウム

(成果報告会)

文部科学省「富岳」成果創出加速プログラム「次世代二次電池・燃料電池開発によるET革命に向けた計算・データ材料科学研究」(富岳電池課題)は2020年4月の発足から約1年が経過しました。本第1回公開シンポジウム(成果報告会)では、富岳電池課題の概要を課題責任者から、2020年度の成果を富岳電池課題実施者の中から4名の研究者がご報告いたします。併せて、魚崎浩平フェロー(物材機構)に特別講演をしていただきます。成果の公開・展開の機会といたしたく、皆様のご参加、宜しくお願いいたします。

プログラム

13:00-13:05 開会挨拶：館山 佳尚(物材機構)

13:05-13:10 来賓挨拶

13:10-13:25 富岳電池課題全体概要：館山 佳尚(物材機構)

13:25-13:55 招待講演

「持続可能な社会における電気化学エネルギー変換の重要性と計算科学への期待」
：魚崎 浩平(物材機構)

13:55-14:15 電気化学界面シミュレーション技術の社会実装と電池材料への適用
(サブ課題A-1)：大谷 実(産総研)

14:15-14:35 休憩

14:35-14:55 大規模第一原理計算による全固体電池電解質界面のイオン・電子状態解明
(サブ課題A-2)：館山 佳尚(物材機構)

14:55-15:15 燃料電池反応の計算科学と次世代型電極の実現に向けた計算予測
(サブ課題B-1)：杉野 修(東大物性研)

15:15-15:35 燃料電池高分子電解質膜バルク中における物質輸送の分子動力学計算による研究
(サブ課題B-2)：岡崎 進(東大院新領域)

15:35-15:40 閉会挨拶：杉野 修(東大物性研)



主催：物質・材料研究機構 富岳電池課題
後援：スーパーコンピューティング技術産業応用協議会
公益財団法人 計算科学振興財団
一般財団法人 高度情報科学技術研究機構
問い合わせ先：物質・材料研究機構「富岳電池課題」事務局
fugakubfc-office@ml.nims.go.jp



開催概要

日時：2021年3月21日(日) 13:00~15:40

形式：日本化学会第101春季年会(2021)の併催シンポジウム オンライン開催(配信方法は参加登録者に連絡)

参加費：無料

参加登録：日本化学会第101春季年会(2021)の併催シンポジウムのページ、または富岳電池課題ホームページの第1回公開シンポジウム(成果報告会)のページから、「参加登録」より登録フォームに必要事項をご記入の上お申し込みください。

日本化学会第101春季年会(2021)の参加有無に関わらず、どなたでもご参加いただけます。

・日本化学会第101春季年会(2021)の併催シンポジウム

<https://confit.atlas.jp/guide/event/csj101st/static/CoSymp#Csympo5>

・富岳電池課題の第1回公開シンポジウム(成果報告会)

<https://www.nims.go.jp/fugaku-denchi/events/2020/20210320.html>