

3D-RISM-SCF 法による全固体電池用固体電解質における イオン拡散経路の高速探索手法

Accelerated search method of ionic diffusion paths in solid electrolytes
for all-solid-state batteries using 3D-RISM-SCF approach

パナソニック株式会社¹, 東京工業大学² ◯横山 智康^{1,2}, 大内 暁¹, 市川 和秀¹, 四橋 聡史¹,
金子 幸広¹, 笹川 崇男²

Panasonic Corporation¹, Tokyo Institute of Technology²

◯Tomoyasu Yokoyama^{1,2}, Satoru Ohuchi¹, Kazuhide Ichikawa¹, Satoshi Yotsuhashi¹,

Yukihiro Kaneko¹, Takao Sasagawa²

E-mail: yokoyama.tomoyasu@jp.panasonic.com

背景:近年, 次世代蓄電池として電解質に固体材料を用いた全固体電池が盛んに研究されている。全固体電池の実現のためには, 高イオン伝導性を示す固体電解質の開発が必要である。そのような材料創出を目指し, 第一原理計算を用いた材料探索に期待が高まっているが, イオン伝導の評価には計算コストの高い第一原理分子動力学 (MD) を用いる必要があり, ハイスループットな材料探索が困難であった。本研究では, 溶媒分子の分布を統計力学に基づいて算出する 3D-RISM 理論と第一原理計算を組み合わせた 3D-RISM-SCF 法^{1,2}を固体電解質材料に適用し, 固体中の拡散イオンを溶液として扱うことで, 固体電解質材料のイオン伝導を高速評価する手法を構築した。

計算方法:実験および計算の報告例が多いリチウムイオン固体電解質材料 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ を例とし, 実験的に報告される結晶構造から Li イオンを削除し, 削除した Li イオンと同数の負電荷と溶媒 Li イオンを加えて計算を行った。3D-RISM-SCF 法の計算には Quantum Espresso を用いた。

計算結果:図 1 に 3D-RISM-SCF 法と第一原理 MD 計算により得られた $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ 内の Li 分布を示す。3D-RISM-SCF 法により得られた Li イオン分布は, 第一原理 MD の結果を再現できている。また, 電子状態計算においても, $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ のような Li 原子が部分占有した構造では, 従来は Li 原子の配置パターンの異なる複数の構造を計算する必要があったが, 3D-RISM-SCF 法では部分占有構造でも一度の計算で十分であり, 計算コストを削減できる。以上から, 3D-RISM-SCF 法を用いることで,

固体電解質材料のイオン伝導, 電子状態を高速に評価することが可能となり, ハイスループットな固体電解質材料の探索を実現できる。

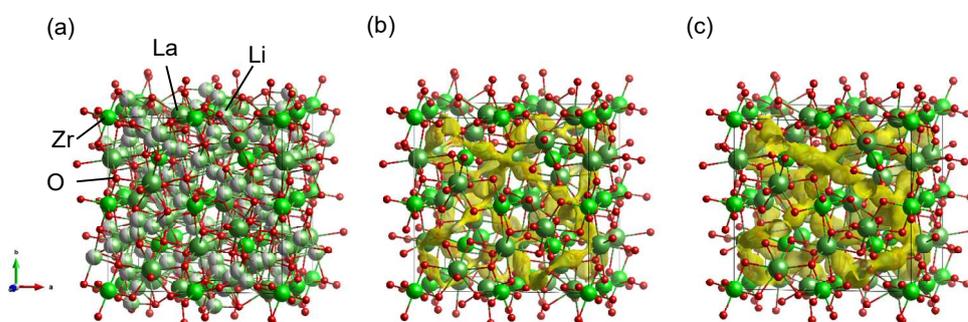


図 1. (a) $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ の結晶構造. (b) 3D-RISM-SCF による Li 分布. (c) 第一原理 MD による Li 分布.

[1] A. Kovalenko and F. Hirata, *J. Chem. Phys.* **110**, 10095 (1999).

[2] S. Nishihara and M. Otani, *Phys. Rev. B* **96**, 115429 (2017).