

## ナノ構造の電子状態から機械的性質までのマルチスケールシミュレーション

名工大院,<sup>1</sup> 豊田中研,<sup>2</sup> 東大物性研,<sup>3</sup> デンソー<sup>4</sup> 尾形修司,<sup>1</sup> 大庭伸子,<sup>2</sup> 河野貴久,<sup>3,1</sup> 田中宏一<sup>4,1</sup>

Li イオン電池等の実用デバイスの高性能化に関連して、ナノスケールで複雑な界面の、実際的な設定でのシミュレーションが強く期待されている。本課題では、DFT 計算では直接扱えない大規模な複雑界面について、DFT レベルの計算精度を全イオンに働く力に対してハイブリッド量子古典法を用いて実現しつつ、イオン輸送、化学反応、熱(フォノン)輸送等をシミュレートする。ハイブリッド量子古典法を用いると、QM/MM 法の適用が困難な稠密固体にも、精度を落とさずに適用できる。

本年は以下の項目について進展があった。

1. Li イオン電池のグラファイト負極と電解液との界面における固体電解質皮膜(SEI)に関連して、分割統治型の実空間グリッド DFT である DC-RGDFT コード[1]を用いた第一原理 MD シミュレーションを、SEI-電解液の界面を通じた Li イオン移動に関して 2,300 原子規模で 5.0 ps/run 程度、異なる設定で実行した。計算結果の温度依存性などから、電解液に 1mol/l の濃度で添加した塩(LiPF<sub>6</sub>)により、Li イオンの界面移動レートが 2 倍に上がることを発見した[2]。
2. DC-RGDFT を用いたハイブリッド量子古典コードを用いて、Li イオン電池のグラファイト負極内部の Li イオン群の拡散挙動に関するシミュレーションを実行中である。Li イオン群を囲むように上下の炭素シートが変形して形成された cage の中で個々の Li イオンが良く拡散する一方、Li イオン群の重心位置の拡散は、希薄極限での Li イオンの場合と同程度であること等が観察されている。
3. シリカ結晶およびガラス中での水反応に関するハイブリッド量子古典シミュレーションを実行中である。特にシリカガラス中においては、その"空隙"を個々の水分子が拡散して水分子同士が会合し、系の圧縮や変形により、水分子間でのプロトン移動を経て形成された OH 基が Si-O ボンドを切断すること等が観察されている。
4. パワー素子の電気絶縁性放熱材料中に混入させているセラミックスフィラーと高分子材料との界面を通じた熱伝導に関して、その界面結合剤添加による熱伝導度の増大率を、非平衡 MD シミュレーションを数 ns 行うことで求めた[3]。より実際的な界面をハイブリッド量子古典法で扱う場合は、DFT の計算量が多いため数 ns の時間は実現できない。個々のフォノン波束の界面透過率を同時並列に計算し、その熱統計平均からこれまでよりも格段に短い時間で熱伝導度を得る方法の検討を進めている。

[1] N. Ohba, S. Ogata, T. Kouno et al.: *Comp. Phys. Commun.* 183 (2012) 1664-1673.

[2] S. Ogata, N. Ohba, and T. Kouno: *J. Phys. Chem. C.* 117 (2013) 17960-17968.

[3] K. Tanaka, S. Ogata et al.: *J. Appl. Phys.* 114 (2013) 193512-1-8.