

## 審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 中山 智文

本論文は5章からなる。第1章ではリチウムイオン二次電池の電解液探索の動機について述べられている。第2章では仮想スクリーニングのために構築したデータベースについて述べられている。第3章、第4章では電解液の性能に関わる値としてそれぞれ配位エネルギー、拡散係数を選択し、それを予測するモデルの検討を行い、その結果に対して物理的な考察を行なっている。第5章ではこれらの研究が総括されている。

本論文で対象としている二次電池、特にリチウムイオン二次電池についての材料探索は現在活発に行われている。特に電極材料については優れた様々な新しい材料が報告されている一方で、商用のリチウムイオン電解液については1991年以降、大きな進展が起きていない。これは、電解液は液体であり、通常固体である電極材料に比べて構造が複雑なため、様々な要求性能を持つ電解液の探索は困難であることが理由の一つになっている。要求性能を備えた新しい電解液を発見する一つの方法として、マテリアルズ・インフォマティクスによる仮想スクリーニングがあげられる。新しいリチウムイオン電池材料を探索するための仮想スクリーニングに関してはいくつかの応用例が報告されているが、それらのほとんどは固体材料の研究に限定されている一方で、液体材料についてはごくわずかな応用例しか報告されていない。

上記の状況を動機として、第2章～4章では二次電池の電解液探索をターゲットとして仮想スクリーニングのためのデータベースの構築と、性能に関わるいくつかの値の予測モデルの構築を行なっている。

本論文の2章では電解液の仮想スクリーニングのためのデータベースの構築について述べられている。データベースはバッテリーグレード材料として市販されている103種類の溶媒分子のいくつかの特徴量によって構築されている。特徴量は実験値としてカタログに記載されている5つの実験値に加え、分子クラスターモデル DFT 計算によって6つの計算値を取得している。また、リチウムイオンだけでなく、近年注目されている他のアルカリ金属イオンを用いて DFT 計算を行い、同様のデータベースを他のアルカリ金属イオン電池に拡張している。さらに、リチウムイオンに関しては DFT-MD 計算を行い、リチウムイオンの電解液中での拡散係数を取得している。

本論文の3章では作成したデータベースの中で、電解液の性能に関わる値として配位エネルギーを選択し、その予測モデルの構築を行なっている。本研究では予測モデルの構築のために、ES法を用いている。まず、線形モデルを仮定したES-LiR法を適用し、予測に重要な変数の選択を行い、可視化することで、物理的な意味を考察している。次に、モデルを非線形回帰手法に拡張したES-GP法を用いて、予測精度を大幅に向上させている。また、加えてアルカリイ

オン電池のデータベースに対しても同様の検証を行い、通常の線形回帰に比べて、ES 法を用いることで予測誤差が大幅に減少している。この予測誤差は実用的に予測値を利用可能な水準であり、リチウム以外のアルカリ金属イオンのデータベースも用いることで相互に予測精度を向上させられるということを示している。リチウムイオンデータベースにおける ES-LiR 法の結果については *Physical Chemistry Chemical Physics* に、ES-GP 法の結果は *Chemical Physics Letters* に採録されている。また、アルカリ金属イオンのデータベースに関する結果は *Physical Chemistry Chemical Physics* に採録されている。

第4章では電解液の性能に関わる値として拡散係数を選択し、予測モデルの検討を行なっている。本論文ではまず、配位エネルギーの予測と同様に、拡散係数の予測に ES-LiR, ES-GP 法を適用し、予測モデルの構築を行なっている。また、その上で複数のスパース線形モデルを用いた混合モデル (SpLMM) による予測を行い、単一モデルで予測する場合に比べて予測精度が向上することを示している。加えてその結果をさらに考察することで、従来考えられていたリチウムイオンの拡散メカニズムとは異なる拡散メカニズムを発見することに成功している。

これらの結果は ES 法、SpLMM が、リチウムイオン電池の電解液探索において、単に機能の予測モデルを構築するということに留まらず、新たな物理的なメカニズムを解明する枠組みとしても有用であることを示している。

なお、本論文は五十嵐康彦氏、袖山慶太郎氏、石川敦之氏、館山佳尚氏および岡田との共同研究であるが、いずれについても論文提出者が主体となって理論解析・実験検証・論文執筆を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

よって本論文は博士（科学）の学位請求論文として合格と認められる。

以上 2012 字