

機械学習を用いた多元 III-V 族化合物半導体の リチウムイオン二次電池負極特性実証

SATテクノロジー・ショーケース2023

■ はじめに

リチウムイオン電池の性能向上に向け、炭素に代わる高容量負極材料の研究が活発化しているが、充電時の体積膨張による容量劣化が課題となってきた^[1]。そのような中、合金系負極はLiイオンと反応しない物質がバッファとして機能し、体積膨張が緩和されるため、負極材料として期待が高まっている^[2]。しかし、パラメータの多い多元合金材料では最適組成の探索が難しい。そこで本研究では、半導体工学の分野で長く研究されてきた多元系III-V族化合物半導体に着眼するとともに、複数パラメータの最適値の効率的探索が可能なベイズ最適化を用いることで、当該材料のリチウムイオン電池負極への応用可能性を調査した。

■ 活動内容

【実験手法】

Mo箔上に $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}_{1-y}\text{Sb}_y$ (膜厚500 nm, 堆積温度400 °C)を分子線堆積法で堆積し、負極構造を作製した。堆積した $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}_{1-y}\text{Sb}_y$ を金属Liと対向させ、電解液1M LiPF_6 in EC/DEC (1:1 v/v)を用いた二極式セルを作製し、充放電試験を行った。そして、容量維持率が90%まで下がるサイクル数を目的パラメータとし、In, Ga, As, Sbのセル温度に対してベイズ最適化を行い、最適条件を探索した。

【結果・考察】

1. 二元材料の負極特性実証

初めに二元材料の負極特性評価を行った。Fig. 1にGaSb, InAsの充放電特性を示す。GaSbは50サイクルまで安定な傾向を示した一方、InAsは10サイクル以降に容量の大きな減少が起きた。これは負極の体積膨張によるクラッキングに由来すると推察される。

2. ベイズ最適化を用いた四元材料の特性向上

続いてセル温度を変数として四元材料のベイズ最適化をおこなった。Sbのセル温度に対して実験条件範囲内で獲得関数をシミュレーションした時の分布および実際に得られた実験値を示す(Fig. 2)。箱ひげ図は次の実験条件および予測値を表す。これより、ベイズ最適化を用いた実験条件の探索に成功したことが判る。ベイズ最適化を用いて得られた $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}_{1-y}\text{Sb}_y$ の負極特性をヒートマップとしてFig. 3に整理した。ヒートマップより、三元系では最大70サイクルまで、四元系では最大110サイクルまで安定な負極が合成されたことが判り、構成元素種が多いほどバッファ

効果が強く影響することが示唆される。

以上の結果から、機械学習を活用することにより、III-V族化合物半導体の負極としての有用性を初実証した。AI時代を迎える電気化学の新たな姿を提示する成果である。

■ 参考文献

- [1] J. Yang *et al.*, J. of the Electrochemical Society, **146**, 4009-4013 (1999).
[2] W.-J. Zhang *et al.*, J. of Power Sources, **196**, 13-24 (2011).

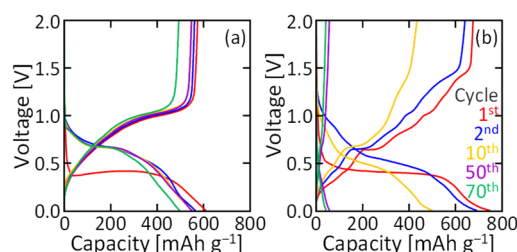


Fig. 1. Galvano static charge/discharge cycles for (a) GaSb and (b) InAs at a current rate of 1 A g⁻¹.

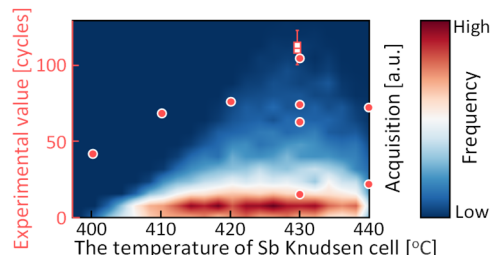


Fig. 2. Experimental values and acquisition function on Knudsen cell temperature of Sb. The box plot indicates the next experimental condition. The red points are actual experimental data.

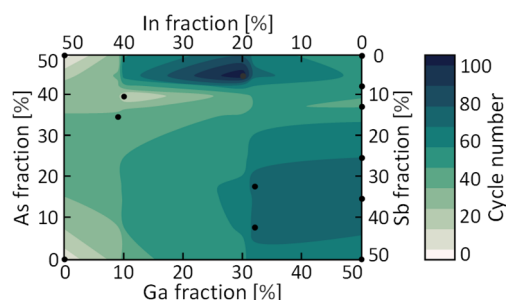


Fig. 3. The heat map of cycle number where capacity retention drops to 90% as a function of Ga and As fractions. The black dots are actual experimental data.

代表発表者 野沢 公暉(のざわ こうき)
所 属 筑波大学大学院 数理物質科学研究群
応用理工学学位プログラム
問合せ先 〒305-0005 茨城県つくば市天王台 1-1-1
TEL:029-853-5472

■キーワード: (1)リチウムイオン二次電池
(2)機械学習
(3)III-V族化合物半導体
■共同研究者: (1)加登 裕也 産業技術総合研究所
(2)石山 隆光 筑波大学
(3)末益 崇 筑波大学
(4)都甲 薫 筑波大学