

1P25 量子化学計算によるリチウムイオン二次電池の炭素材料設計

松本高利¹, 田辺和俊²

¹ 東北大学多元物質科学研究所 (〒305-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1)

² 千葉工業大学社会システム科学部 (千葉県習志野市津田沼 2-17-1, 〒275-0016)

【緒言】

Li イオン二次電池を用いた高性能携帯機器の普及に伴い,より大容量電池が求められている.高性能 Li イオン電池開発を目的とし,様々な炭素負極材料の研究開発が行われている.そこで,我々は計算化学的なアプローチによる Li イオンの吸蔵・放出機構やその構造の解明を最終ゴールとしている.今回は, Li(+)とモデル炭素シート2層の特性について述べる.

【方法】

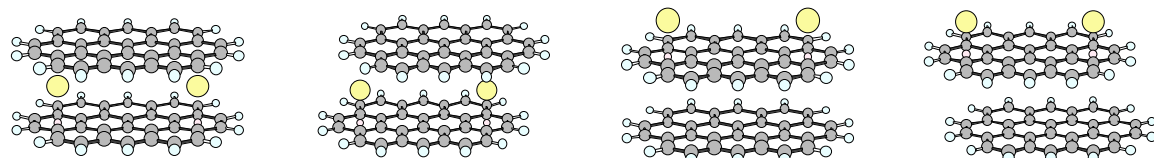
計算は, Q-Chem Ver.2.0 を用いて PC Linux Cluster 上にて全て行なった.基底関数は,可能な限り大きな炭素クラスターモデル分子を計算するために 3-21G を用いた.

計算モデルでは C-C 距離 1.40Å, C-H 距離 1.08Å, 全ての結合角 120° に固定した. Li を加えた系の計算は,閉殻構造になるように総電荷数の調節を行った.

【結果】

山邊等が炭素材料モデルとして Ovalene を用いて Intercalation model と Absorption model について (Li と Ovalene との距離: 2.00Å, Ovalene の層間距離: 4.00Å で固定) 計算を行い, Intercalation model の方が Absorption model よりも 2.07 eV(kcal・mol⁻¹)安定である結果を得ている.2つ以上のOvaleneを用いた場合について,2つが作り出す炭素材料モデル構造がAAAもしくはABAについての各々の安定性が問題になる.そこで Figure 1に示す4つのモデルについて計算を行ったところ, Table 1に示す結果が得られた.通常のグラファイトの層間距離が 3.354Åであることから, Table 1より各モデルのAAA又はABA構造においても層間距離が伸びている.このことから, Li/Li(+)がグラファイト層間に入り行う際,層間が大きく伸縮が生じている.

Figure 1 Ovalene 上においてリチウムの挿入及び吸着機構のための最小モデル



Intercalation Model(AAA) Intercalation Model(ABA) Absorption Model(AAA) Absorption Model(ABA)

Table 1 Intercalation & Absorption モデルの最安定距離

Model Type	2Li : 2.00Å	2Li(+) : 2.00Å	2Li : 1.80Å	2Li(+) : 1.94Å
Intercalation-AAA	3.95	4.10	3.83	4.06
Intercalation-ABA	4.22	4.24	4.08	4.18
Absorption-AAA	none	4.24	none	4.22
Absorption-ABA	4.26	3.94	4.19	3.93