

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2024年4月4日(04.04.2024)



(10) 国際公開番号
WO 2024/070682 A1

(51) 国際特許分類:
G01N 22/00 (2006.01)

〒9502181 新潟県新潟市西区五十嵐二の町8050番地 Niigata (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2023/033319

(22) 国際出願日: 2023年9月13日(13.09.2023)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2022-157924 2022年9月30日(30.09.2022) JP

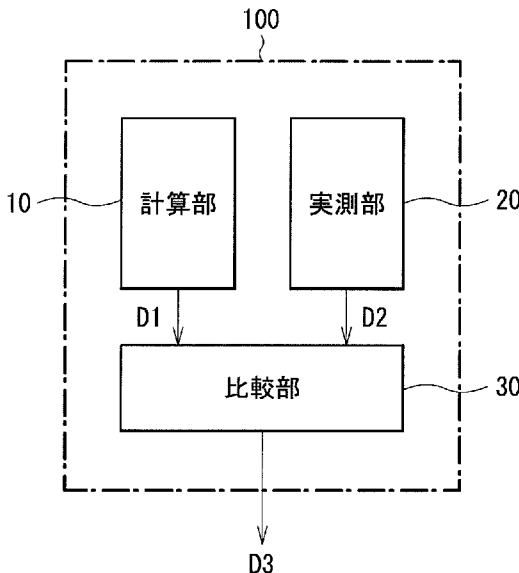
(71) 出願人: 株式会社村田製作所
(MURATA MANUFACTURING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 Kyoto (JP). 国立大学法人新潟大学(NIIGATA UNIVERSITY) [JP/JP];

(72) 発明者: 中本 光則 (NAKAMOTO Mitsunori); 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP). 遠藤 宏太(ENDO Kouta); 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP). 山口 記功(YAMAGUCHI Kikou); 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP). 片山 真一(KATAYAMA Shinichi); 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP). 岡江 功弥(OKAE Izaya); 〒6178555 京都府長岡京市東神足1丁目10番1号 株式会社村田製作所内 Kyoto (JP). 梅林 泰宏(UMEBAYASHI Yasuhiro); 〒9502181

(54) Title: ANALYSIS METHOD AND ANALYSIS DEVICE

(54) 発明の名称: 解析方法および解析装置

図1



10 Calculation unit
20 Measuring unit
30 Comparing unit

(57) Abstract: This analysis method comprises: performing molecular dynamics calculations on an electrolyte to calculate the behavior over time of a series of atoms that make up constituent components of the electrolyte; calculating a first dielectric relaxation spectrum signal of the constituent components on the basis of the behavior of the series of atoms over time; calculating a second dielectric relaxation spectrum signal of the electrolyte on the basis of the first dielectric relaxation spectrum signal; and calculating physical property values specific to the constituent components on the basis of the first dielectric relaxation spectrum signal and the second dielectric relaxation spectrum signal.

新潟県新潟市西区五十嵐二の町 8 0 5 0 番地 国立大学法人新潟大学 理学部内 Niigata (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人酒井国際特許事務所 (SAKAI INTERNATIONAL PATENT OFFICE); 〒1000013 東京都千代田区霞が関 3 丁目 8 番 1 号 虎の門三井ビルディング Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(57) 要約: 解析方法は、電解液に関する分子動力学計算を行うことにより、その電解液の構成成分を構成する一連の原子の経時的な挙動を計算し、その一連の原子の経時的な挙動に基づいて、構成成分の第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算し、その第 1 誘電緩和スペクトル信号に基づいて、電解液の第 2 誘電緩和スペクトル信号を計算し、その第 1 誘電緩和スペクトル信号および第 2 誘電緩和スペクトル信号に基づいて、構成成分に固有の物性値を計算する。

明 細 書

発明の名称： 解析方法および解析装置

技術分野

[0001] 本技術は、解析方法および解析装置

背景技術

[0002] 蓄電デバイスに用いられる電解液の構成を設計するために、その電解液の物性に関するさまざまな解析方法および解析装置が提案されている。

[0003] 具体的には、電解液の予備検討において、特定周波数帯域における複素誘電率の強度と濃度との関係を表す検量モデルを準備しておくことにより、その特定周波数帯域において複素誘電率を測定していると共に、その複素誘電率の測定結果に基づいて電解液の濃度を求めている（例えば、特許文献1参照。）。

[0004] また、核磁気共鳴法（NMR）を用いて、磁場に対して電解液から得られるスペクトル信号に基づいて、分子の回転相関時間、分子量および分子体積を求めている（例えば、特許文献2参照。）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2019-190896号公報

特許文献2：特開2006-317311号公報

発明の概要

[0006] 電解液の物性を解析するために解析方法および解析装置に関する様々な検討がなされているが、その解析レベルは未だ十分でないため、改善の余地がある。

[0007] 電解液の物性を容易かつ高精度に解析することが可能である解析方法および解析装置を提供する。

[0008] 本技術の一実施形態の解析方法は、電解液に関する分子動力学計算を行うことにより、その電解液の構成成分を構成する一連の原子の経時的な挙動を

計算し、その一連の原子の経時的な挙動に基づいて、構成成分の第1誘電緩和スペクトル信号を計算し、その第1誘電緩和スペクトル信号に基づいて、電解液の第2誘電緩和スペクトル信号を計算し、その第1誘電緩和スペクトル信号および第2誘電緩和スペクトル信号に基づいて、構成成分に固有の物性値を計算するものである。

[0009] 本技術の一実施形態の解析装置は、電解液に関する物性値を計算する計算部を備え、その計算部は、電解液に関する分子動力学計算を行うことにより、その電解液の構成成分を構成する一連の原子の経時的な挙動を計算し、その一連の原子の経時的な挙動に基づいて、構成成分の第1誘電緩和スペクトル信号を計算し、その第1誘電緩和スペクトル信号に基づいて、電解液の第2誘電緩和スペクトル信号を計算し、その第1誘電緩和スペクトル信号および第2誘電緩和スペクトル信号に基づいて、構成成分に固有の物性値を計算するものである。

[0010] 本技術の一実施形態の解析方法または解析装置によれば、電解液に関する分子動力学計算を行うことにより、その電解液の構成成分を構成する一連の原子の経時的な挙動を計算し、その構成成分の第1誘電緩和スペクトル信号を計算し、その電解液の第2誘電緩和スペクトル信号を計算し、その構成成分に固有の物性値を計算するので、その電解液の物性を容易かつ高精度に解析することができる。

[0011] なお、本技術の効果は、必ずしもここで説明された効果に限定されるわけではなく、後述する本技術に関連する一連の効果のうちのいずれの効果でもよい。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]本技術の第1実施形態における解析装置の構成を表すブロック図である。

[図2]変形例2における解析装置の構成を表すブロック図である。

[図3]実施例1における時間相関関数の計算結果である。

[図4]実施例1における時間相関関数の近似結果である。

[図5]実施例1における個別計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率実部）および計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率実部）の計算結果である。

[図6]実施例1における個別計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率虚部）および計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率虚部）の計算結果である。

[図7]実施例1における計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率実部および誘電率虚部）の計算結果である。

[図8]実施例1における実測誘電緩和スペクトル信号（誘電率実部および誘電率虚部）の測定結果である。

[図9]実施例2における個別計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率虚部）および計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率虚部）の計算結果である。

[図10]実施例2における計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率実部および誘電率虚部）の計算結果である。

[図11]実施例2における実測誘電緩和スペクトル信号（誘電率実部および誘電率虚部）の測定結果である。

[図12]実施例3（三成分系）における個別計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率虚部）の計算結果である。

[図13]実施例3（二成分系）における個別計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率虚部）の計算結果である。

[図14]実施例3における計算誘電緩和スペクトル信号（誘電率実部および誘電率虚部）の計算結果である。

[図15]実施例3における実測誘電緩和スペクトル信号（誘電率実部および誘電率虚部）の測定結果である。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、本技術の一実施形態に関して、図面を参照しながら詳細に説明する。なお、説明する順序は、下記の通りである。

1. 解析装置および解析方法（第1実施形態）

1-1. 解析装置

1-2. 解析方法

1－3．作用および効果

2．解析装置および解析方法（第2実施形態）

2－1．解析装置

2－2．解析方法

2－3．作用および効果

3．変形例

[0014] ＜1．解析装置および解析方法（第1実施形態）＞

まず、本技術の第1実施形態における解析装置に関して説明する。

[0015] なお、本技術の第1実施形態における解析方法は、ここで説明する解析装置の動作（解析手順）により説明されるため、その解析方法に関しては、以下で併せて説明する。

[0016] この解析装置は、電解液の物性を解析するために用いられる装置であり、その物性の解析結果は、所望の性能を有する電解液の構成を設計するための指針として用いられる。この電解液は、1種類または2種類以上の構成成分を含んでおり、解析装置では、電解液の全体の物性が解析されると共に、その電解液に含まれている各構成成分の物性も解析される。

[0017] ここで説明した1種類または2種類以上の構成成分は、中性分子およびイオン対のうちのいずれか1種類または2種類以上を含んでいる。中性分子の種類は、1種類だけでもよいし、2種類以上でもよい。同様に、イオン対の種類は、1種類だけでもよいし、2種類以上でもよい。なお、中性分子およびイオン対のそれぞれの詳細に関しては、後述する。

[0018] 電解液は、イオン伝導性を有する液状の電解質であり、溶媒および電解質塩を含んでいる。なお、溶媒および電解質塩のそれぞれの詳細に関しては、後述する。電解液の用途は、特に限定されないが、一例を挙げると、電池およびキャパシタなどの蓄電デバイスである。この電池は、一次電池でもよいし、二次電池でもよい。

[0019] これにより、解析装置を用いた電解液の解析結果に基づいて、所望の性能を有する電解液の構成を設計することが可能になるため、その解析装置を用

いた解析方法は、多様な用途に用いられる電解液の研究開発、設計および品質管理などに有用である。

[0020] 詳細には、電解液に含まれている各構成成分の運動性（特に、回転運動）は、その電解液のイオン輸送性に大きな影響を及ぼす重要な因子である。このため、解析装置を用いて電解液を解析することにより、各構成成分の運動性に由来する物性が反映された電解液の全体の物性を把握することが可能になると共に、その運動性に由来する各構成成分の物性も把握することが可能になる。これにより、優れたイオン輸送性を有する電解液の構成を容易かつ高精度に設計することができる。

[0021] 特に、ここで説明する解析装置は、電解液の物性、より具体的には電解液に含まれている各構成成分の物性を解析するために、分子動力学（Molecular dynamics）計算を用いて各構成成分の誘電緩和スペクトル（Dielectric relaxation spectrum）信号を計算する。

[0022] 以下では、分子動力学計算を「MD計算」と呼称すると共に、誘電緩和スペクトル信号を「DRS信号」と呼称する。

[0023] MD計算は、各構成成分を構成している一連の原子の経時的な挙動を計算するシミュレーションである。DRS信号は、物質の誘電挙動を表す信号（いわゆる複素誘電率スペクトル信号）であり、誘電率実部および誘電率虚部を含んでいる。

[0024] <1-1. 解析装置>

図1は、第1実施形態における解析装置の一具体例である解析装置100のブロック構成を表している。この解析装置100は、図1に示したように、計算部10と、実測部20と、比較部30とを備えている。

[0025] [計算部]

計算部10は、構成成分Cを含んでいる電解液に関する物性値Pを計算する。構成成分Cの種類は、上記したように、1種類だけでもよいし、2種類以上でもよい。また、物性値Pの種類は、特に限定されないため、1種類だけでもよいし、2種類以上でもよい。具体的には、物性値Pは、特徴時間、

緩和強度、静的誘電率、濃度および塩解離度のうちのいずれか１種類または２種類以上を含んでいる。なお、特徴時間、緩和強度、静的誘電率、濃度および塩解離度のそれぞれの詳細に関しては、後述する。

[0026] この計算部１０は、ＭＤ計算などの一連の計算処理を行う演算素子を含んでおり、その演算素子の具体例は、マイクロプロセッサなどである。

[0027] 具体的には、計算部１０は、電解液に関するＭＤ計算を行うことにより、構成成分Ｃを構成している一連の原子の経時的な挙動を計算する。このＭＤ計算は、物質を構成している各原子に関して、古典力学におけるニュートンの運動方程式を解くことにより、各原子の挙動（位置およびエネルギー）の時間変化を追跡する。

[0028] ＭＤ計算の方法（力場の種類を含む。）は、そのＭＤ計算を実行することが可能であるソフトウェアであれば、特に限定されない。この場合において、ＭＤ計算の条件は、任意に設定可能である。

[0029] また、計算部１０は、ＭＤ計算を用いた計算結果、すなわち一連の原子の経時的な挙動の計算結果に基づいて、構成成分ＣのＤＲＳ信号を計算する。具体的には、計算部１０は、ＭＤ計算を用いた計算結果に基づいて、構成成分ＣのＤＲＳ信号を計算すると共に、その構成成分ＣのＤＲＳ信号に基づいて、電解液の全体のＤＲＳ信号を計算する。

[0030] 前者のＤＲＳ信号は、計算部１０により計算される構成成分ＣのＤＲＳ信号（第１誘電緩和スペクトル信号）であり、以下では、そのＤＲＳ信号を「個別計算ＤＲＳ信号Ｓ１」と呼称する。また、後者のＤＲＳ信号は、計算部１０により計算される電解液のＤＲＳ信号（第２誘電緩和スペクトル信号）であり、以下では、そのＤＲＳ信号を「計算ＤＲＳ信号Ｓ２」と呼称する。

[0031] 構成成分Ｃの種類が１種類である場合には、計算部１０は、個別計算ＤＲＳ信号Ｓ１を計算したのち、その個別計算ＤＲＳ信号Ｓ１を計算ＤＲＳ信号Ｓ２とする。一方、構成成分Ｃの種類が２種類以上である場合には、計算部１０は、各構成成分Ｃの個別計算ＤＲＳ信号Ｓ１を計算したのち、その各構成成分Ｃの個別計算ＤＲＳ信号Ｓ１を加算することにより、計算ＤＲＳ信号

S 2 を計算する。

[0032] 計算部 10 が電解液の計算 DRS 信号 S 2 だけでなく構成成分 C の個別計算 DRS 信号 S 1 も計算するのは、後述するように、その個別計算 DRS 信号 S 1 を用いて、実測部 20 により測定される DRS 信号（実測 DRS 信号 S 3）を帰属することを可能にするためである。

[0033] さらに、計算部 10 は、個別計算 DRS 信号 S 1 および計算 DRS 信号 S 2 に基づいて、構成成分 C に固有の物性値 P を計算する。

[0034] ここでは、計算部 10 は、個別計算 DRS 信号 S 1 を計算するために、以下で説明する計算処理を順に行う。すなわち、計算部 10 は、MD 計算の計算結果に基づいて、構成成分 C のトータル電気双極子モーメントを計算する。また、計算部 10 は、トータル電気双極子モーメントの計算結果に基づいて、構成成分 C の時間相関関数を計算したのち、その時間相関関数の計算結果を指数関数に近似する。さらに、計算部 10 は、時間相関関数の近似結果をフーリエ変換することにより、構成成分 C の個別計算 DRS 信号 S 1 を計算する。

[0035] 電解液が 2 種類以上の構成成分 C を含んでいる場合には、その構成成分 C ごとに個別計算 DRS 信号 S 1 が計算されるため、複数の個別計算 DRS 信号 S 1 が得られる。よって、上記したように、複数の個別計算 DRS 信号 S 1 が加算されることにより、電解液の計算 DRS 信号 S 2 が計算される。

[0036] 以下では、後述する第 2 実施形態における個別計算 DRS 信号 S 1 の計算手順と区別するために、第 1 実施形態における個別計算 DRS 信号 S 1 の計算手順を「計算手順 1」と呼称する。

[0037] ここで説明した計算部 10 の機能の詳細に関しては、後述する解析装置 100 の動作（解析手順）を説明する際に具体的に説明する。

[0038] この計算部 10 は、個別計算 DRS 信号 S 1 および計算 DRS 信号 S 2 を計算したのち、比較部 30 にデータ D 1 を出力する。このデータ D 1 は、個別計算 DRS 信号 S 1 および計算 DRS 信号 S 2 および物性値 P などの情報を含んでいる。

[0039] [実測部]

実測部20は、誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて電解液を分析することにより、その電解液のDRS信号を測定する。このDRS信号は、実測部20により測定される電解液のDRS信号（第3誘電緩和スペクトル信号）であり、以下では、そのDRS信号を「実測DRS信号S3」と呼称する。誘電緩和スペクトロスコピー法は、電解液のイオン輸送性と共に、そのイオン輸送性に影響を及ぼす各構成成分Cの運動性を把握することが可能である有用な解析手法である。

[0040] なお、実測部20は、実測DRS信号S3を測定したのち、その実測DRS信号S3を補正する。この場合において、実測部20は、電解液のイオン伝導性に起因する誤差を実測DRS信号S3から除去することにより、その実測DRS信号S3を補正することが好ましい。各構成成分Cの運動性以外の物性に起因する誤差が排除されるため、実測DRS信号S3の測定精度が向上するからである。

[0041] ここでは、実測部20は、図示しない誘電分光部および補正部を含んでいる。

[0042] 誘電分光部は、電解液に対して電磁波を照射すると共に、その電解液からの応答波を受光することにより、実測DRS信号S3を測定する。実測DRS信号S3の測定方法は、特に限定されないが、一例を挙げると、反射伝送法（Sパラメータ法）であることが好ましい。液体（ここでは電解液）の実測DRS信号S3を高精度に測定することが可能だからである。この誘電分光部は、実測DRS信号S3を測定したのち、その実測DRS信号S3の測定結果を補正部に出力する。

[0043] より具体的には、誘電分光部は、測定セル、発信器、受信器、誘電分光センサおよび演算素子を含んでいる。

[0044] 測定セルは、電解液が収容される容器である。測定セルの内部に収容された電解液には、気泡が含まれていないことが好ましい。また、測定セルに収容される電解液の収容量は、後述するプローブが接触可能である適正量であ

ることが好ましい。

[0045] 発信器は、測定セルの内部に收容されている電解液にマイクロ波などの電磁波を照射する。マイクロ波の周波数は、特に限定されないが、一例を挙げると、 $100\text{MHz} \sim 100\text{GHz}$ である。

[0046] 受信器は、測定セルから誘電分光センサを介して応答波を受信する。この応答波は、電解液により反射された電磁波と、その電解液を透過した電磁波とを含んでいる。

[0047] 演算素子は、受信器により受信された応答波の振幅および位相などに基づいて、実測DRS信号S3を計算する。演算素子の具体例は、マイクロプロセッサなどである。

[0048] 誘電分光部の具体的な構成は、特に限定されない。一例を挙げると、反射伝送法を用いて実測DRS信号S3を測定する誘電分光部は、マイクロ波用同軸ケーブルを介して終端開放型のプローブが接続されているベクトルネットワークアナライザ(VNA)などである。このプローブは、2つのポート(第1ポートおよび第2ポート)を介して測定セルに接続されていると共に、マイクロ波用同軸ケーブルは、電解液に照射されるマイクロ波の周波数帯域に対応する同軸ケーブルである。

[0049] この反射伝送法を用いた誘電分光部は、反射波／入射波として定義される反射係数 S_{11} 、 S_{22} を用いて、実測DRS信号S3を計算する。反射係数 S_{11} は、第1ポートに対応する反射係数であると共に、反射係数 S_{22} は、第2ポートに対応する反射係数である。

[0050] 補正部は、誘電分光部により測定された実測DRS信号S3の測定結果を補正する。補正部の補正方法は、特に限定されないため、任意に設定可能である。中でも、補正部は、各構成成分Cの分子運動のうちの回転部分に注目するために、上記したように、実測DRS信号S3の測定結果に含まれているイオン伝導性(イオン伝導率)に起因する誤差を除去することが好ましい。

[0051] 具体的には、補正部は、誘電分光部から実測DRS信号S3が入力される

と、その実測DRS信号S3の誘電率虚部のうち、一般的に電解液のイオン伝導性に起因する誤差の影響を受けにくい500MHz以上の周波数帯域における誘電率虚部を対象として、いわゆるDebye型の緩和関数を用いたフィッティングを行う。これにより、補正部は、フィッティングの結果を低周波数側に外挿することにより、500MHz未満の周波数帯域における実測DRS信号S3を補正する。

[0052] なお、補正部により除去された誤差に対応する実測DRS信号S3は、上記したように、イオン伝導現象に起因する各構成成分Cの物性を表しているため、その物性は、回転運動以外の運動性（イオン輸送性）に関する情報である。これにより、補正部により除去された実測DRS信号S3は、各構成成分Cの回転運動以外の運動性に関する情報として、別途、電解液の物性を把握するために利用されてもよい。

[0053] 補正部の具体例は、マイクロプロセッサなどである。

[0054] ここでは、実測部20は、上記したように、実測DRS信号S3の測定結果を補正するために補正部を含んでいる。ただし、実測DRS信号S3の測定結果を補正する必要がある場合には、実測部20は、補正部を含んでいなくてもよい。

[0055] ここで説明した実測部20の機能の詳細に関しては、後述する解析装置100の動作（解析手順）を説明する際に具体的に説明する。

[0056] この実測部20は、実測DRS信号S3を測定したのち、比較部30にデータD2を出力する。このデータD2は、実測DRS信号S3などの情報を含んでいる。

[0057] [比較部]

比較部30は、計算部10から入力されたデータD1と、実測部20から入力されたデータD2とに基づいて、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とを互いに比較する。これにより、比較部30は、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3との比較結果に応じて、その計算DRS信号S2の構成要素である個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属す

る。比較部30の具体例は、マイクロプロセッサなどである。

[0058] すなわち、比較部30は、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とが互いに定性的に一致していることを確認する。この場合において、比較部30は、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とが互いに定性的に一致していることを確認するために、その計算DRS信号S2のスペクトル形状と実測DRS信号S3のスペクトル形状とを互いに比較する。これにより、比較部30は、計算DRS信号S2のスペクトル形状と実測DRS信号S3のスペクトル形状とが互いに定性的に一致していることを確認した場合に、その計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とが互いに定性的に一致していると判定する。

[0059] この比較部30は、画像解析処理を利用して計算DRS信号S2と実測DRS信号S3との比較処理を行う演算素子を含んでおり、その演算素子の具体例は、マイクロプロセッサなどである。比較処理の方法は、その比較処理を実行することが可能であるソフトウェアであれば、特に限定されない。この場合において、比較処理の条件は、任意に設定可能である。

[0060] なお、実測部20が実測DRS信号S3を補正した場合には、比較部30は、実測DRS信号S3に対する計算DRS信号S2の帰属を行うために、その計算DRS信号S2と実測DRS信号S3の補正結果とを互いに比較する。

[0061] ここで、電解液を用いて実測部20により実際に測定される実測DRS信号S3は、その電解液の物性（分子レベルの運動性）を調べる上で重要な情報であるが、その実測DRS信号S3だけでは、詳細な電解液の物性を把握することが困難である。なぜなら、電解液が2種類以上の構成成分Cを含んでいる場合において、その電解液の実測DRS信号S3は、構成成分Cごとに測定されるはずであるDRS信号が加算された信号であるが、実測部20において構成成分CごとにDRS信号を測定することは極めて困難だからである。これにより、実測DRS信号S3を用いると、電解液の全体の物性を把握することは可能であるが、その電解液の全体の物性に影響を及ぼす各構

成分Cの物性を把握することは極めて困難である。

[0062] そこで、電解液の全体の物性を把握するだけでなく、各構成成分Cの物性も把握するために、比較部30は、計算DRS信号S2および実測DRS信号S3を取得したのち、その計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とが互いに定性的に一致していることを確認する。

[0063] 実測部20により測定された実測DRS信号S3は、上記したように、電解液に関して測定された1つのDRS信号である。これに対して、計算部10により計算された計算DRS信号S2は、上記したように、各構成成分Cに関して計算された個別計算DRS信号S1が加算されたDRS信号であるため、電解液に関して計算された1つのDRS信号（計算DRS信号S2）であると共に、各構成成分Cに関して計算されたDRS信号（個別計算DRS信号S1）を含んでいる。

[0064] これにより、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とが互いに定性的に一致していることが比較部30により確認されると、その実測DRS信号S3に対する計算DRS信号S2の信頼性（言い換えれば、MD計算の妥当性）が担保されるため、その計算DRS信号S2を構成している個別計算DRS信号S1の信頼性も担保される。よって、構成成分CごとにDRS信号を測定できなくても、その各構成成分Cの物性を表す情報として個別計算DRS信号S1を採用することが技術的に保証されるため、その個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属することが可能になる。

[0065] ここで説明した比較部30の機能の詳細に関しては、後述する解析装置100の動作（解析手順）を説明する際に具体的に説明する。

[0066] この比較部30は、計算DRS信号S2および実測DRS信号S3に基づく比較および帰属を行ったのち、外部にデータD3を出力する。このデータD3は、個別計算DRS信号S1、計算DRS信号S2、実測DRS信号S3および物性値Pなどの情報を含んでいる。

[0067] [その他]

なお、解析装置100は、さらに、他の構成要素のうちのいずれか1種類

または2種類以上を備えていてもよい。

[0068] 他の構成要素の具体例は、表示部、記憶部および電源などである。表示部は、計算部10による計算結果、実測部20による測定結果および比較部30による比較結果（帰属結果）などを表示する。記憶部は、解析装置100において計算された一連の計算結果などを記憶する。電源は、解析装置100の電力源である。

[0069] [電解液]

解析装置100を用いた解析に用いられる電解液は、上記したように、溶媒および電解質塩を含んでいる。ただし、電解液は、さらに、各種の添加剤のうちのいずれか1種類または2種類以上を含んでいてもよい。

[0070] 溶媒は、電解質塩を分散または溶解させる媒質のうちのいずれか1種類または2種類以上であり、水性溶媒でもよいし、非水溶媒でもよい。

[0071] 非水溶媒の種類は、特に限定されないが、一例を挙げると、環状炭酸エステル、鎖状炭酸エステルおよび鎖状カルボン酸エステルなどのうちのいずれか1種類または2種類以上を含んでいる。

[0072] 環状炭酸エステルの具体例は、炭酸エチレンおよび炭酸プロピレンなどである。鎖状炭酸エステルの具体例は、炭酸ジメチル、炭酸ジエチルおよび炭酸エチルメチルなどである。鎖状カルボン酸エステルの具体例は、プロピオン酸エチルおよびプロピオン酸プロピルなどである。

[0073] 電解質塩は、溶媒中において分散または溶解される溶質であり、金属塩のうちのいずれか1種類または2種類以上を含んでいる。金属塩の種類は、特に限定されないが、一例を挙げると、その金属塩は、六フッ化リン酸リチウム (LiPF_6)、四フッ化ホウ酸リチウム (LiBF_4)、ビス(フルオロスルホニル)イミドリチウム ($\text{LiN}(\text{FSO}_2)_2$) およびビス(トリフルオロメタンスルホニル)イミドリチウム ($\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$) などのうちのリチウム塩のうちのいずれか1種類または2種類以上を含んでいる。

[0074] 構成成分Cは、上記したように、中性分子およびイオン対のうちのいずれか1種類または2種類以上を含んでいる。

[0075] 中性分子は、電氣的に中性の分子であり、化学的かつ経時的に安定な成分である。中性分子の種類は、特に限定されないが、一例を挙げると、溶媒の分子などである。

[0076] イオン対は、カチオンとアニオンとの電氣的結合体である。イオン対の種類は、特に限定されないが、一例を挙げると、接触イオン対（C I P）、溶媒（S I P）および溶媒分離イオン対（S S I P）などであり、それら以外の電氣的結合体でもよい。

[0077] イオン対を形成するイオンの種類は、上記したように、2種類以上であれば、特に限定されない。このため、イオン対を形成するカチオンの種類は、1種類だけでもよいし、2種類以上でもよい。同様に、イオン対を形成するアニオンの種類は、1種類だけでもよいし、2種類以上でもよい。

[0078] これにより、ここで説明するイオン対には、1種類のカチオンと1種類のアニオンとの電氣的結合体だけでなく、2種類以上のカチオンと2種類以上のアニオンとの電氣的結合体（いわゆるイオン結合体）も含まれる。このイオン結合体には、四量体などの多量体も含まれる。

[0079] 特に、イオン対は、電解液中において電氣的に安定な静的成分である中性分子とは異なり、その電解液中において経時的に形成（集合）および消滅（離散）を交互に繰り返す動的成分である。これにより、解析装置100では、計算部10、実測部20および比較部30を用いて電解液を解析することにより、中性分子の物性を調べることができるだけでなく、イオン対の物性を調べることもできる。

[0080] 中性分子の物性は、従来から調べることが可能であったが、イオン対の物性は、従来は調べることが極めて困難であった。よって、解析装置100を用いた電解液の解析は、特に、従来は困難であったイオン対の物性まで調べることが可能になった点において、極めて重要である。

[0081] <1-2. 解析方法>

次に、解析装置100を用いた解析方法に関して説明する。ここで説明する解析方法は、いわゆる解析装置100の動作（解析手順）である。

[0082] 以下では、説明を分かりやすくするために、電解液が2種類以上の構成成分C（複数の中性分子mおよび複数のイオン対x）を含んでいる場合を例に挙げる。

[0083] [計算部の計算手順]

解析装置100が電解液を解析する場合には、最初に、以下で説明する手順により、計算部10において、電解液に関するMD計算を行うことにより、個別計算DRS信号S1、計算DRS信号S2および物性値Pのそれぞれを計算する。

[0084] (MD計算)

具体的には、最初に、電解液に関するMD計算を実施する。

[0085] この場合には、電解液に含まれていることが既知である2種類以上の構成成分Cを設定することにより、MD計算用のソフトウェアを用いてMD計算を実行する。このMD計算により、各構成成分Cを構成する一連の原子の経時的な挙動が計算される。

[0086] なお、電解液に含まれている2種類以上の構成成分Cが不明である場合には、その電解液に含まれていることが想定される2種類以上の構成成分Cを設定してもよい。

[0087] MD計算の方法（力場の種類を含む。）は、上記したように、そのMD計算を実行することが可能であるソフトウェアであれば、特に限定されない。この場合において、MD計算の条件は、任意に設定可能である。

[0088] 続いて、個別計算DRS信号S1を計算するために、MD計算の計算結果に基づいて、以下で説明する計算処理を行う。

[0089] (トータル電気双極子モーメントの計算)

具体的には、各構成成分Cのトータル電気双極子モーメントを計算する。

[0090] この場合には、MD計算の計算結果に含まれているトラジェクトリに基づいて、各時刻における各原子の座標および電荷に関する情報を読み込む。これにより、式(1)で表される計算式を用いて、MD計算の計算セルに含まれている N_m 個の中性分子mのうちの i ($i = 1, 2, 3, \dots, N_m$)番

目の中性分子 m の個別電気双極子モーメントを計算する。

[0091] [数1]

数1

$$d_{m,i} = \sum_j q_j x_{m,ij} \quad \cdots (1)$$

($d_{m,i}$ は、中性分子 m の個別電気双極子モーメントである。 j は、 i 番目の中性分子 m に含まれている原子のインデックスである。 q_j は、原子 j の電荷である。 $x_{m,ij}$ は、原子 j の座標である。これにより、 $x_{m,ij}$ は、 i 番目の分子の重心に対する相対座標である。)

[0092] 続いて、式 (2) で表される計算式を用いて、中性分子 m のトータル電気双極子モーメントを計算する。

[0093] [数2]

数2

$$M_m = \sum_i d_{m,i} \quad \cdots (2)$$

(M_m は、中性分子 m のトータル電気双極子モーメントである。)

[0094] 最後に、式 (3) で表される計算式を用いて、イオン対 x のトータル電気双極子モーメントを計算する。 $d_{x,i}$ の計算手順は、式 (1) を用いた計算手順と同様である。

[0095] [数3]

数3

$$M_x = \sum_i d'_{x,i} \quad \cdots (3)$$

$$d'_{x,i} = \begin{cases} d_{x,i} & \text{if } r_{Li-x} \text{ satisfies specific condition} \\ 0 & \text{others} \end{cases}$$

[0096] ここで、イオン対 x (C I P) のトータル電気双極子モーメントを計算する場合には、カチオンの重心 W とアニオンの重心 X との間の距離 r_{W-X} が所定

の距離以下になる条件を満たした場合のみ、電気双極子モーメントを計算する。一例を挙げると、電解質塩が六フッ化リン酸リチウム (LiPF_6) である場合には、距離 $r_{\text{W-X}}$ が 0.425 nm ($=4.25 \text{ \AA}$) 以下になる条件を満たした場合のみ、電気双極子モーメントを計算する。

[0097] なお、上記した「 0.425 nm 」という閾値 (距離 $r_{\text{W-X}}$) は、電解質塩が六フッ化リン酸リチウム (LiPF_6) である場合において、リチウム原子を中心としたリン原子 (P) の動径分布関数が最初のディップを示す位置であり、カチオンの種類およびアニオンの種類に応じて適正に決定される値である。なお、リチウム原子とアニオンとの最近接位置に着目した場合のイオン対 x を $\text{C} \mid \text{P}$ としているが、動径分布関数に基づいて第二近接位置などを求めることにより、 $\text{C} \mid \text{P}$ 以外の他のイオン対 x に関しても同様の解析を行うことが可能である。

[0098] (時間相関関数の計算)

続いて、トータル双極子モーメントに基づいて、各構成成分 C の時間相関関数を計算する。

[0099] この場合には、式 (4) で表される計算式を用いて、中性分子 m に関するトータル電気双極子モーメントの時間相関関数を計算する。

[0100] [数4]

数4

$$C_{m,\text{total}}(t) = \frac{\langle M_m(t) \cdot M_m(0) \rangle - \langle M_m(0) \rangle^2}{\langle M_m(0) \cdot M_m(0) \rangle - \langle M_m(0) \rangle^2} \quad \dots(4)$$

($C_{m,\text{total}}(t)$ は、中性分子 m に関するトータル電気双極子モーメントの時間相関関数である。)

[0101] また、式 (5) で表される計算式を用いて、イオン対 x に関するトータル電気双極子モーメントの時間相関関数を計算する。

[0102]

[数5]

数5

$$C_{x, \text{total}}(t) = \frac{\langle M_x(t) \cdot M_x(0) \rangle - \langle M_x(0) \rangle^2}{\langle M_x(0) \cdot M_x(0) \rangle - \langle M_x(0) \rangle^2} \quad \dots(5)$$

($C_{x, \text{total}}(t)$ は、イオン対 x に関するトータル電気双極子モーメントの時間相関関数である。)

[0103] (時間相関関数の近似)

続いて、時間相関関数を指数関数に近似する。

[0104] この場合には、最小二乗法を用いて、中性分子 m の時間相関関数をフィッティングする。これにより、時間相関関数からノイズ（変動誤差）が除去されるため、後述するフーリエ変換において計算誤差などの影響が抑制される。

[0105] また、最小二乗法を用いて、イオン対 x の時間相関関数をフィッティングする。これにより、時間相関関数からノイズ（変動誤差）が除去されるため、上記したように、後述するフーリエ変換において計算誤差などの影響が抑制される。

[0106] (時間相関関数のフーリエ変換、個別計算 DRS 信号 S 1 の計算および計算 DRS 信号 S 2 の計算)

続いて、時間相関関数の近似結果をフーリエ変換することにより、個別計算 DRS 信号 S 1 および計算 DRS 信号 S 2 のそれぞれを計算する。

[0107] 具体的には、式 (8) で表される計算式を用いて、中性分子 m の緩和強度 $\Delta \varepsilon_m$ を計算する。また、緩和強度 $\Delta \varepsilon_m$ を用いて、中性分子 m に関する時間相関関数の近似結果をフーリエ変換することにより、式 (6) で表される計算式を用いて誘電率実部を計算すると共に、式 (7) で表される計算式を用いて誘電率虚部を計算する。これにより、中性分子 m に関して、誘電率実部および誘電率虚部を含む個別計算 DRS 信号 S 1 が計算される。

[0108]

[数6]

数6

$$\varepsilon'_m(\omega) = \left(1 - \omega \int_0^{\infty} C_{m,\text{total}}(t) \sin \omega t \, dt \right) \Delta \varepsilon_m \quad \cdots (6)$$

($\varepsilon'_m(\omega)$) は、中性分子 m の誘電率実部である。ただし、 $\omega = 2\pi\nu$ である。)

[0109] [数7]

数7

$$\varepsilon''_m(\omega) = \left(\omega \int_0^{\infty} C_{m,\text{total}}(t) \cos \omega t \, dt \right) \Delta \varepsilon_m \quad \cdots (7)$$

($\varepsilon''_m(\omega)$) は、中性分子 m の誘電率虚部である。ただし、 $\omega = 2\pi\nu$ である。)

[0110] [数8]

数8

$$\Delta \varepsilon_m = \frac{4\pi}{3VK_B T} (\langle M_m^2 \rangle - \langle M_m \rangle^2) \quad \cdots (8)$$

($\Delta \varepsilon_m$ は、中性分子 m の緩和強度である。V は、体積である。K_B は、ボルツマン定数である。T は、温度である。)

[0111] また、式(11)で表される計算式を用いて、イオン対 x の緩和強度 $\Delta \varepsilon_x$ を計算する。また、緩和強度 $\Delta \varepsilon_x$ を用いて、イオン対 x に関する時間相関関数の近似結果をフーリエ変換することにより、式(9)で表される計算式を用いて誘電率実部を計算すると共に、式(10)で表される計算式を用いて誘電率虚部を計算する。これにより、イオン対 x に関して、誘電率実部および誘電率虚部を含む個別計算 DRS 信号 S1 が計算される。

[0112]

[数9]

数9

$$\varepsilon'_x(\omega) = \left(1 - \omega \int_0^{\infty} C_{x,\text{total}}(t) \sin \omega t \, dt \right) \Delta \varepsilon_x \quad \cdots (9)$$

($\varepsilon'_x(\omega)$) は、イオン対 x の誘電率実部である。ただし、 $\omega = 2\pi\nu$ である。)

[0113] [数10]

数10

$$\varepsilon''_x(\omega) = \left(\omega \int_0^{\infty} C_{x,\text{total}}(t) \cos \omega t \, dt \right) \Delta \varepsilon_x \quad \cdots (10)$$

($\varepsilon''_x(\omega)$) は、イオン対 x の誘電率虚部である。ただし、 $\omega = 2\pi\nu$ である。)

[0114] [数11]

数11

$$\Delta \varepsilon_x = A \frac{4\pi}{3VK_B T} (\langle M_x^2 \rangle - \langle M_x \rangle^2) \quad \cdots (11)$$

($\Delta \varepsilon_x$ は、イオン対 x の緩和強度である。V は、体積である。K_B は、ボルツマン定数である。T は、温度である。A は、スケーリングファクターである。)

[0115] 式(11)に示したように、イオン対 x の緩和強度 $\Delta \varepsilon_x$ を計算する場合には、スケーリングファクター A を用いる。イオン対 x の周辺に存在する溶媒の影響を考慮せずに、そのイオン対 x のトータル電気双極子モーメントを計算すると、最終的に計算される個別計算 DRS 信号 S1 の精度は、誤差に起因して低下する可能性がある。そこで、イオン対 x の周辺の溶媒に対する遮蔽効果を有効的に導入するために、適切なスケーリングファクター A を用いる。スケーリングファクター A の値は、特に限定されないが、一例を挙げると、0.25 である。

[0116] よって、中性分子 m の個別計算 DRS 信号 S_1 と、イオン対 x の個別計算 DRS 信号 S_1 とを加算することにより、電解液の計算 DRS 信号 S_2 を計算する。

[0117] (物性値の計算)

続いて、個別計算 DRS 信号 S_1 および計算 DRS 信号 S_2 に基づいて、各構成成分 C に固有の物性値 P を計算する。

[0118] ここでは、物性値 P として、緩和強度 $\Delta \varepsilon_m$, $\Delta \varepsilon_x$ 、特徴時間 τ_m , τ_x 、濃度 n_m , n_x 、静的誘電率 $\varepsilon_m^{\text{sta}}$, $\varepsilon_x^{\text{sta}}$ および塩解離度 α を計算する場合を例に挙げる。

[0119] 中性分子 m の緩和強度 $\Delta \varepsilon_m$ を計算する場合には、上記したように、式 (8) に示した計算式を用いて緩和強度 $\Delta \varepsilon_m$ を計算する。また、イオン対 x の緩和強度 $\Delta \varepsilon_x$ を計算する場合には、上記したように、式 (11) に示した計算式を用いて緩和強度 $\Delta \varepsilon_x$ を計算する。

[0120] 中性分子 m の特徴時間 τ_m を計算する場合には、その中性分子 m に関する個別計算 DRS 信号 S_1 (誘電率虚部) のピーク位置の周波数を特定周波数 ν_m とすることにより、式 (12) で表される計算式を用いて特徴時間 τ_m を計算する。この特徴時間 τ_m は、特定周波数 ν_m の逆数である。

[0121] [数12]

数12

$$\tau_m = 1 / 2 \pi \nu_m \quad \cdots (12)$$

[0122] また、イオン対 x の特徴時間 τ_x を計算する場合には、そのイオン対 x に関する個別計算 DRS 信号 S_1 (誘電率虚部) のピーク位置の周波数を特定周波数 ν_x とすることにより、式 (13) で表される計算式を用いて特徴時間 τ_x を計算する。この特徴時間 τ_x は、特定周波数 ν_x の逆数である。

[0123]

[数13]

数13

$$\tau_x = 1/2 \pi \nu_x \cdots (13)$$

[0124] 中性分子 m の濃度 n_m を計算する場合には、MD 計算の計算セルに含まれている中性分子 m の個数 N_m と、そのMD 計算の計算セルの体積 V とに基づいて、 $n_m = N_m / V$ という計算式を用いて濃度 n_m を算出する。

[0125] また、イオン対 x の濃度 n_x を計算する場合には、MD 計算の計算セルに含まれているイオン対 x の平均個数 $\langle N_x \rangle$ と、そのMD 計算の計算セルの体積 V とに基づいて、 $n_x = \langle N_x \rangle / V$ という計算式を用いて濃度 n_x を算出する。

[0126] 塩解離度 α を計算する場合には、MD 計算の計算セルに含まれているカチオンの総数 N_{cat} と、そのカチオンうちのアニオンに接近していないカチオンの平均個数 $\langle N_{\text{cat, free}} \rangle$ とに基づいて、 $\alpha = \langle N_{\text{cat, free}} \rangle / N_{\text{cat}}$ という計算式を用いて塩解離度 α を算出する。

[0127] 中性分子 m の静的誘電率 ϵ_m^{sta} を計算する場合には、その中性分子 m に関する個別計算DRS信号S1（誘電率実部）に基づいて、 $\omega \rightarrow 0$ （または $\nu \rightarrow 0$ ）として誘電率を計算することにより、その誘電率の計算値を静的誘電率 ϵ_m^{sta} とする。

[0128] また、イオン対 x の静的誘電率 ϵ_x^{sta} を計算する場合には、そのイオン対 x に関する個別計算DRS信号S1（誘電率実部）に基づいて、 $\omega \rightarrow 0$ （または $\nu \rightarrow 0$ ）として誘電率を計算することにより、その誘電率の計算値を静的誘電率 ϵ_x^{sta} とする。

[0129] （データD1の出力）

最後に、比較部30にデータD1を出力する。データD1に関する詳細は、上記した通りである。

[0130] [実測部の測定手順]

次に、以下で説明する手順により、実測部20において、誘電緩和スペク

トロスコピー法を用いて電解液を分析することにより、その電解液の実測 D R S 信号 S 3 を測定する。

[0131] (実測 D R S 信号 S 3 の測定)

具体的には、最初に、誘電緩和スペクトロスコピー法を用いた電解液の分析結果に基づいて、その電解液に関する実測 D R S 信号 S 3 を測定する。

[0132] (実測 D R S 信号 S 3 の補正)

続いて、実測 D R S 信号 S 3 を補正する。この場合には、上記したように、D e b y e 型の緩和関数を用いて実測 D R S 信号 S 3 のフィッティングを行うことにより、その実測 D R S 信号 S 3 から電解液のイオン伝導性に起因する誤差を除去する。

[0133] (データ S 2 の出力)

最後に、比較部 3 0 にデータ D 2 を出力する。データ D 2 に関する詳細は、上記した通りである。

[0134] [比較部の比較手順]

最後に、以下で説明する手順により、比較部 3 0 において、計算 D R S 信号 S 2 と実測 D R S 信号 S 3 とを互いに比較すると共に、その計算 D R S 信号 S 2 と実測 D R S 信号 S 3 とが互いに定性的に一致していることを確認することにより、その計算 D R S 信号 S 2 の構成要素である個別計算 D R S 信号 S 1 を用いて実測 D R S 信号 S 3 を帰属する。

[0135] (計算 D R S 信号 S 2 と実測 D R S 信号 S 3 との比較)

具体的には、最初に、計算 D R S 信号 S 2 と実測 D R S 信号 S 3 とを互いに比較することにより、その計算 D R S 信号 S 2 と実測 D R S 信号 S 3 とが互いに定性的に一致しているかどうかを確認する。

[0136] この場合には、計算 D R S 信号 S 2 のスペクトル形状と、実測 D R S 信号 S 3 のスペクトル形状とが互いに定性的に一致しているかどうかの観点において、両者のスペクトル形状を互いに比較する。

[0137] 両者のスペクトル形状を互いに比較する際における比較項目の一例は、以下で説明する通りである。

(1) 誘電率虚部のピーク位置における周波数の値

(2) 誘電率虚部のピーク位置における強度の値

(3) 静的誘電率の値

(4) 電解液の濃度を変化させた場合において、(1)～(3)のそれぞれに示した一連の値が変化する傾向

[0138] (個別計算DRS信号S1を用いた実測DRS信号S3の帰属)

続いて、個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属する。

[0139] この場合には、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とが互いに定性的に一致していることを確認した場合において、その計算DRS信号S2の信頼性が担保されたため、個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属することができたと判定する。

[0140] この場合には、計算DRS信号S2の信頼性が担保されるため、その計算DRS信号S2を構成している複数の個別計算DRS信号S1の信頼性も併せて担保される。よって、仮に実測DRS信号S3を構成成分Cごとに分解できたとすると、複数の個別計算DRS信号S1が取得されるはずであると考えても技術的かつ論理的（精度的）に問題がないことになる。

[0141] (データD3の出力)

最後に、外部にデータD3を出力する。データD3に関する詳細は、上記した通りである。

[0142] なお、解析装置100は、外部にデータD3を出力せずに、内部にデータD3を記憶してもよい。もちろん、解析装置100は、内部にデータD3を記憶すると共に、外部にデータD3を出力してもよい。

[0143] <1-3. 作用および効果>

第1実施形態の解析装置100によれば、その解析装置100が計算部10、実測部20および比較部30を備えている。この計算部10は、電解液に関するMD計算を用いて個別計算DRS信号S1および計算DRS信号S2のそれぞれを計算すると共に、物性値Pを計算する。実測部20は、誘電

緩和スペクトロスコピー法を用いて電解液を分析することにより、その電解液に関する実測DRS信号S3を測定する。比較部30は、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とを互いに比較することにより、その計算DRS信号S2の構成要素である個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属する。

[0144] 特に、計算部10は、計算手順1を用いて個別計算DRS信号S1を計算する。具体的には、計算部10は、構成成分Cのトータル電気双極子モーメントを計算し、その構成成分Cの時間相関関数を計算し、その時間相関関数を指数関数に近似し、その時間相関関数の近似結果をフーリエ変換することにより、構成成分Cの個別計算DRS信号S1を計算する。

[0145] この場合には、比較部30において、MD計算を用いて計算部10により計算された電解液の計算DRS信号S2と、誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて実測部20により測定された電解液の実測DRS信号S3とが互いに比較される。これにより、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とが互いに定性的に一致していることが確認されると、その実測DRS信号S3に対する計算DRS信号S2の信頼性が担保されるため、その計算DRS信号S2を構成している複数の個別計算DRS信号S1の信頼性も担保される。よって、計算DRS信号S2の構成要素である個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属することが可能になる。

[0146] これにより、中性分子mに関する個別計算DRS信号S1に基づいて、その中性分子mに関する物性が把握されるだけでなく、イオン対xに関する個別計算DRS信号S1に基づいて、そのイオン対xに関する物性も把握される。よって、中性分子mに関する物性だけでなく、イオン対xに関する物性も加味することにより、イオン輸送性などに関して所望の性能を有する電解液の構成を自由に設計することが可能になる。

[0147] これらのことから、新規な電解液の構成を設計する際に、実際に中性分子mの物性およびイオン対xの物性を測定しなくても、上記したように、所望の性能を有する電解液の構成が設計されるため、その電解液の物性を容易か

つ高精度に解析することができる。

[0148] この場合には、特に、上記したように、従来は困難であったイオン対の物性も把握することができる。しかも、計算DRS信号S2（個別計算DRS信号S1）だけを用いて構成成分Cの物性を把握することができるため、あらかじめ検量線などの検量モデルを準備する必要がないと共に、DRS信号の強度を規格化する必要もない。よって、電解液の詳細な物性がより容易に解析されるため、所望の性能を有する電解液の構成をより高精度に設計することができる。

[0149] 特に、電解液が溶媒および電解質塩を含んでおり、構成成分Cが中性分子およびイオン対のうちのいずれか1種類または2種類以上を含んでいれば、その中性分子の物性だけに限られず、そのイオン対の物性も解析される。よって、電解液の物性がより高精度に解析されるため、より高い効果を得ることができる。

[0150] また、物性値Pが緩和強度、特徴時間、静的誘電率、濃度および塩解離度のうちのいずれか1種類または2種類以上を含んでいれば、電解液に関する多様な物性がより高精度に解析されるため、より高い効果を得ることができる。

[0151] また、計算部10が個別計算DRS信号S1を計算するために、構成成分Cのトータル電気双極子モーメントを計算し、その構成成分Cの時間相関関数を計算し、その時間相関関数を指数関数に近似し、その時間相関関数をフーリエ変換することにより、個別計算DRS信号S1を計算すれば、計算処理を用いて構成成分Cの個別計算DRS信号S1が高精度に計算されるため、より高い効果を得ることができる。

[0152] また、構成成分Cが中性分子およびイオン対のうちの2種類以上を含んでおり、計算部10が2種類以上の構成成分Cのそれぞれの個別計算DRS信号S1を計算したのち、それらの個別計算DRS信号S1を加算することにより計算DRS信号S2を計算すれば、その構成成分Cの種類が2種類以上である場合においても計算DRS信号S2が計算されるため、より高い効果

を得ることができる。

[0153] また、実測部20が実測DRS信号S3から電解液のイオン伝導性に起因する誤差を除去することにより、その実測DRS信号S3を補正すると共に、比較部30が計算DRS信号S2と実測DRS信号S3の補正結果とを互いに比較すれば、その比較の精度が向上するため、帰属の精度も向上する。よって、電解液の物性がより高精度に解析されるため、より高い効果を得ることができる。

[0154] この他、第1実施形態の解析方法によれば、電解液に関するMD計算を用いて個別計算DRS信号S1および計算DRS信号S2のそれぞれを計算し、誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて電解液に関する実測DRS信号S3を測定し、その計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とを互いに比較し、その計算DRS信号S2の構成要素である個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属し、その電解液に関する物性値Pを計算している。よって、上記した理由により、電解液の物性を容易かつ高精度に解析することができる。

[0155] この解析方法に関する他の作用および効果は、解析装置100に関する他の作用および効果と同様である。

[0156] <2. 解析装置および解析方法（第2実施形態）>

次に、本技術の第2実施形態における解析装置および解析方法に関して説明する。

[0157] 第2実施形態の解析装置100は、以下で説明するように、計算部10による個別計算DRS信号S1の計算手順が異なることを除いて、第1実施形態における解析装置100の構成と同様の構成を有している。なお、電解液、構成成分Cおよび物性値Pのそれぞれに関する詳細は、上記した通りである。

[0158] <2-1. 解析装置>

ここでは、既に説明した図1を参照しながら、第2実施形態の解析装置100の構成に関して説明する。

[0159] 第2実施形態における解析装置100の構成は、以下で説明することを除いて、第1実施形態における解析装置100の構成と同様である。

[0160] ここでは、計算部10は、個別計算DRS信号S1を計算するために、以下で説明する計算処理を順に行う。すなわち、計算部10は、MD計算の計算結果に基づいて、構成成分Cの個別電気双極子モーメントを計算する。また、計算部10は、個別電気双極子モーメントに基づいて、構成成分Cの時間相関関数を計算したのち、その時間相関関数を指数関数に近似することにより、構成成分Cの回転相関時間を計算する。さらに、計算部10は、回転相関時間に基づいて、構成成分Cの個別計算DRS信号S1を計算する。

[0161] 以下では、第2実施形態における個別計算DRS信号S1の計算手順を「計算手順2」と呼称する。これにより、第2実施形態の解析装置100の構成は、計算部10が個別計算DRS信号S1を計算するために計算手順1の代わりに計算手順2を用いることを除いて、第1実施形態の解析装置100の構成と同様である。

[0162] ここで説明した計算部10の機能の詳細に関しては、後述する解析装置100の動作（解析手順）を説明する際に具体的に説明する。

[0163] <2-2. 解析方法>

第2実施形態の解析装置100を用いた解析方法に関して説明する。ここで説明する解析方法は、上記したように、解析装置100の動作（解析手順）である。

[0164] 第2実施形態における解析方法の手順は、以下で説明することを除いて、第1実施形態における解析方法の手順と同様である。

[0165] 個別計算DRS信号S1を計算するためには、計算部10において、MD計算の計算結果に基づいて、以下で説明する計算処理を行う。

[0166] （個別電気双極子モーメントの計算）

具体的には、最初に、各構成成分Cの個別電気双極子モーメントを計算する。

[0167] この場合には、MD計算の計算結果に含まれているトラジェクトリに基づ

いて、各時刻における各原子の座標および電荷を読み込む。これにより、 N_m 個の中性分子 m のうちの i 番目の中性分子 m の個別電気双極子モーメントを時刻ごとに計算すると共に、 N_x 個のイオン対 x のうちの i 番目のイオン対 x の個別電気双極子モーメントを時刻ごとに計算する。

[0168] (回転相関関数の計算)

続いて、個別電気双極子モーメントに基づいて、各構成成分 C の回転相関関数を計算する。この回転相関関数は、時間に対して指数関数的に減衰する。

[0169] この場合には、中性分子 m の個別双極子モーメントを規格化することにより、長さを 1 とした単位ベクトルに対して、式 (14) で表される計算式を用いて、その中性分子 m の回転相関関数を計算する

[0170] [数14]

数14

$$C_{m,rot}(t) = \frac{1}{2} \langle 3 \frac{1}{N_m} \sum_i^{N_m} \{u_{m,i}(t) \cdot u_{m,i}(0)\}^2 - 1 \rangle \quad \dots (14)$$

(N_m は、中性分子 m の数である。)

[0171] また、イオン対 x の個別双極子モーメントを規格化することにより、長さを 1 とした単位ベクトルに対して、式 (15) で表される計算式を用いて、そのイオン対 x の回転相関関数を計算する

[0172] [数15]

数15

$$C_{x,rot}(t) = \frac{1}{2} \langle 3 \frac{1}{N_{pair}} \sum_i^{N_{pair}} \{u_{x,i}(t) \cdot u_{x,i}(0)\}^2 - 1 \rangle \quad \dots (15)$$

(N_{pair} は、MD 計算のトラジェクトリ中において個別双極子モーメントが一度でも有限値となるイオン対の数である。)

[0173] (回転相関関数の近似および回転相関時間の計算)

続いて、回転相関関数を指数関数に近似することにより、各構成成分 C の

回転相関時間を計算する。

[0174] この場合には、最小二乗法を用いて中性分子 m の回転相関関数をフィッティングすることにより、その中性分子 m の回転相関時間を計算する。また、最小二乗法を用いてイオン対 x の回転相関関数をフィッティングすることにより、そのイオン対 x の回転相関時間を計算する。

[0175] これにより、式 (16) で表される計算式を用いて、中性分子 m の特徴時間を計算すると共に、式 (17) で表される計算式を用いて、その中性分子 m の特徴周波数を算出する。また、式 (18) で表される計算式を用いて、イオン対 x の特徴時間を計算すると共に、式 (19) で表される計算式を用いて、そのイオン対 x の特徴周波数を計算する。

[0176] [数16]

数16

$$\tau_m = 2 \tau_{m, \text{rot}} \cdots (16)$$

(τ_m は、中性分子 m の特徴時間である。)

[0177] [数17]

数17

$$\nu_m = 1/2 \pi \tau_m \cdots (17)$$

(ν_m は、中性分子 m の特徴周波数である。)

[0178] [数18]

数18

$$\tau_x = 2 \tau_{x, \text{rot}} \cdots (18)$$

(τ_x は、イオン対 x の特徴時間である。)

[0179]

[数19]

数19

$$\nu_x = 1/2 \pi \tau_x \quad \dots(19)$$

(ν_x は、イオン対 x の特徴周波数である。)

[0180] (個別計算 D R S 信号 S 1 の計算および計算 D R S 信号 S 2 の計算)

続いて、回転相関時間に基づいて、個別計算 D R S 信号 S 1 および計算 D R S 信号 S 2 のそれぞれを計算する。

[0181] 具体的には、中性分子 m の個別計算 D R S 信号 S 1 を計算する場合には、D R S 信号を復元するための緩和形態として、式 (20) で表される D e b y e 緩和を仮定することにより、誘電率実部を計算すると共に、同様に D R S 信号を復元するための緩和形態として、式 (21) で表される D e b y e 緩和を仮定することにより、誘電率虚部を計算する。緩和強度 $\Delta \epsilon_m$ の計算方法は、上記した通りである。これにより、中性分子 m に関して、誘電率実部および誘電率虚部を含む個別計算 D R S 信号 S 1 が計算される。

[0182] [数20]

数20

$$\epsilon'_m(\omega) = \Delta \epsilon_m \frac{1}{1 + (\omega \tau_m)^2} \quad \dots(20)$$

($\epsilon'_m(\omega)$ は、誘電率実部である。ただし、 $\omega = 2 \pi \nu$ である。)

[0183] [数21]

数21

$$\epsilon''_m(\omega) = \Delta \epsilon_m \frac{\omega \tau_m}{1 + (\omega \tau_m)^2} \quad \dots(21)$$

($\epsilon''_m(\omega)$ は、誘電率虚部である。ただし、 $\omega = 2 \pi \nu$ である。)

[0184] また、イオン対 x の個別計算 D R S 信号 S 1 を計算する場合には、緩和形態として、式 (22) で表される D e b y e 緩和を仮定することにより、誘電率実部を計算すると共に、同様に緩和形態として、式 (23) で表される

Debye緩和を仮定することにより、誘電率虚部を計算する。緩和強度 $\Delta \epsilon_x$ の計算方法は、上記した通りである。これにより、イオン対 x に関して、誘電率実部および誘電率虚部を含む個別計算DRS信号S1が計算される。

[0185] [数22]

数22

$$\epsilon'_x(\omega) = \Delta \epsilon_x \frac{1}{1 + (\omega \tau_x)^2} \quad \dots (22)$$

($\epsilon'_x(\omega)$) は、誘電率の実部である。ただし、 $\omega = 2\pi\nu$ である。)

[0186] [数23]

数23

$$\epsilon''_x(\omega) = \Delta \epsilon_x \frac{\omega \tau_x}{1 + (\omega \tau_x)^2} \quad \dots (23)$$

($\epsilon''_x(\omega)$) は、誘電率の実部である。ただし、 $\omega = 2\pi\nu$ である。)

[0187] よって、中性分子 m の個別計算DRS信号S1と、イオン対 x の個別計算DRS信号S1とを加算することにより、電解液の計算DRS信号S2を計算する。

[0188] <2-3. 作用および効果>

第2実施形態の解析装置100によれば、その解析装置100が上記した計算部10、実測部20および比較部30を備えている。

[0189] 特に、計算部10は、計算手順1の代わりに計算手順2を用いて個別計算DRS信号S1を計算する。具体的には、計算部10は、構成成分Cの個別電気双極子モーメントを計算し、その構成成分Cの回転相関関数を計算し、その回転相関関数を指数関数に近似し、その構成成分Cの回転相関時間を計算し、その構成成分Cの個別計算DRS信号S1を計算する。

[0190] この場合には、第1実施形態に関して説明した場合と同様の理由により、実測DRS信号S3に対する計算DRS信号S2（個別計算DRS信号S1）の信頼性が担保されるため、中性分子 m の物性だけでなくイオン対 x の物

性も把握される。これにより、中性分子 m の物性だけでなくイオン対 x の物性も加味することにより、イオン輸送性などに関して所望の性能を有する電解液の構成を自由に設計することが可能になる。

[0191] これらのことから、新規な電解液の構成を設計する際に、実際に中性分子 m の物性およびイオン対 x の物性を測定しなくても、所望の性能を有する電解液の構成が設計されるため、第1実施形態と同様に、その電解液の物性を容易かつ高精度に解析することができる。

[0192] この他、第2実施形態の解析方法によれば、電解液に関するMD計算を用いて個別計算DRS信号 S_1 および計算DRS信号 S_2 のそれぞれを計算し、誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて電解液に関する実測DRS信号 S_3 を測定し、その計算DRS信号 S_2 と実測DRS信号 S_3 とを互いに比較することにより、その計算DRS信号 S_2 の構成要素である個別計算DRS信号 S_1 を用いて実測DRS信号 S_3 を帰属し、その電解液に関する物性値 P を計算している。よって、上記した理由により、電解液の物性を容易かつ高精度に解析することができる。

[0193] なお、第2実施形態における解析装置100および解析方法のそれぞれに関する他の作用および効果は、第1実施形態における解析装置100の解析方法のそれぞれに関する他の作用および効果と同様である。

[0194] <3. 変形例>

上記した解析装置100の構成は、適宜、変更可能であると共に、上記した解析方法の手順は、適宜、変更可能である。なお、以下で説明する一連の変形例のうちの任意の2種類以上は、互いに組み合わせられてもよい。

[0195] [変形例1]

第1実施形態および第2実施形態のそれぞれでは、計算部10を用いた計算処理を行ったのち、実測部20を用いた測定処理を行っている。しかしながら、実測部20を用いた測定処理を行ったのち、計算部10を用いた計算処理を行ってもよい。この場合においても、比較部30において比較処理を行うことが可能であるため、同様の効果を得ることができる。

[0196] [変形例 2]

図 2 は、変形例 2 における解析装置 200 のブロック構成を表しており、図 1 に対応している。

[0197] 解析装置 100 は、図 1 に示したように、計算部 10、実測部 20 および比較部 30 を備えている。しかしながら、解析装置 200 は、図 2 に示したように、実測部 20 および比較部 30 を備えておらずに計算部 10 だけを備えていてもよい。

[0198] 解析装置 200 の構成は、実測部 20 および比較部 30 を備えていないと共に、データ D1 を外部に出力することを除いて、解析装置 100 の構成と同様である。

[0199] 具体的には、解析装置 100 を用いて、任意の構成を有する電解液を未だ解析したことがない場合には、計算 DRS 信号 S2 と実測 DRS 信号 S3 との比較が未だ行われていないと共に、個別計算 DRS 信号 S1 を用いた実測 DRS 信号 S3 の帰属も未だ行われていないため、その個別計算 DRS 信号 S1 および計算 DRS 信号 S2 のそれぞれの信頼性が未だ担保されていない。この場合には、計算 DRS 信号 S2 の信頼性を担保するために、計算部 10 による計算 DRS 信号 S2 の計算処理だけでなく、実測部 20 による実測 DRS 信号 S3 の測定処理と、比較部 30 による計算 DRS 信号 S2 と実測 DRS 信号 S3 との比較処理とを行うことが必要になる。よって、解析装置 100 は、図 1 に示したように、計算部 10 だけでなく実測部 20 および比較部 30 も備えていなければならない。

[0200] これに対して、解析装置 100 を用いて、任意の構成を有する電解液を既に解析したことがある場合には、計算 DRS 信号 S2 と実測 DRS 信号 S3 との比較が既に行われていると共に、個別計算 DRS 信号 S1 を用いた実測 DRS 信号 S3 の帰属も既に行われているため、その個別計算 DRS 信号 S1 および計算 DRS 信号 S2 のそれぞれの信頼性が既に担保されている。この場合には、あらためて計算 DRS 信号 S2 の信頼性を担保する必要がないため、計算部 10 による計算 DRS 信号 S2 の計算処理だけが必要であるの

に対して、実測部 20 による実測 DRS 信号 S3 の測定処理と、比較部 30 による計算 DRS 信号 S2 と実測 DRS 信号 S3 との比較処理とが不要になる。よって、既に信頼性が担保されている計算 DRS 信号 S2（個別計算 DRS 信号 S1）をそのまま流用すればよい。ため、解析装置 200 は、図 2 に示したように、実測部 20 および比較部 30 を備えておらずに、計算部 10 だけを備えていてもよい。

[0201] すなわち、計算 DRS 信号 S2 の信頼性が既に担保されている場合には、計算部 10、実測部 20 および比較部 30 を備えている解析装置 100 の代わりに、その実測部 20 および比較部 30 を備えておらずに計算部 10 だけを備えている解析装置 200 を用いてもよい。

[0202] この解析装置 200 では、第 1 実施形態において説明した計算手順 1 を用いて計算部 10 が個別計算 DRS 信号 S1 を計算してもよいし、第 2 実施形態において説明した計算手順 2 を用いて計算部 10 が個別計算 DRS 信号 S1 を計算してもよい。

[0203] 具体的には、計算手順 1 を用いる場合には、計算部 10 は、MD 計算を実施し、トータル電気双極子モーメントを計算し、時間相関関数を計算し、その時間相関関数を指数関数に近似し、その時間相関関数の近似結果をフーリエ変換し、個別計算 DRS 信号 S1 および計算 DRS 信号 S2 のそれぞれを計算し、物性値 P を計算し、外部にデータ D1 を出力してもよい。

[0204] また、計算手順 2 を用いる場合には、計算部 10 は、MD 計算を実施し、個別電気双極子モーメントを計算し、回転相関関数を計算し、その回転相関関数を指数関数に近似し、回転相関時間を計算し、個別計算 DRS 信号 S1 および計算 DRS 信号 S2 のそれぞれを計算し、物性値 P を計算し、データ D1 を出力してもよい。

[0205] この場合においても、計算 DRS 信号 S2（個別計算 DRS 信号 S1）の信頼性が担保されるため、第 1 実施形態および第 2 実施形態のそれぞれにおいて説明した理由により、電解液の物性を容易かつ高精度に解析することができる。

[0206] [変形例 3]

第 1 実施形態では、計算部 10 が個別計算 DRS 信号 S 1 を計算するために計算手順 1 を用いたと共に、第 2 実施形態では、計算部 10 が個別計算 DRS 信号 S 1 を計算するために計算手順 2 を用いた。

[0207] しかしながら、計算部 10 は、個別計算 DRS 信号 S 1 を計算するために、計算手順 1、2 の双方を用いてもよい。この場合には、計算手順 1 により計算された個別計算 DRS 信号 S 1 と、計算手順 2 により計算された個別計算 DRS 信号 S 1 とを互いに比較することにより、最終的に個別計算 DRS 信号 S 1 を決定すれば、その個別計算 DRS 信号 S 1 の計算精度がより向上するため、より高い効果を得ることができる。

[0208] なお、計算手順 1、2 のうちのどちらか一方だけを用いる場合には、計算手順 1 を用いることが好ましい。

[0209] ただし、計算手順 1 だけを用いる場合には、セルサイズおよび計算時間などの要因によっては、統計量不足に起因して個別計算 DRS 信号 S 1 の再現性が不十分になる可能性がある。そこで、個別計算 DRS 信号 S 1 の計算精度を十分に高くすることにより、その個別計算 DRS 信号 S 1 の信頼性を十分に高くするためには、変形例 2 において説明したように、計算手順 1、2 を併用することが好ましい。

[0210] [変形例 4]

第 2 実施形態では、計算部 10 が個別計算 DRS 信号 S 1 を計算するために緩和形態として D e b y e 型緩和を仮定した。しかしながら、緩和形態は、特に限定されないため、任意に変更可能である。

[0211] 具体的には、緩和形態は、D e b y e 型緩和の他、C o l e - D a v i d s o n 型緩和などでもよい。緩和形態として C o l e - D a v i d s o n 型緩和を仮定する場合には、上記した特徴時間 τ_m 、 τ_x および緩和強度 $\Delta \varepsilon_m$ 、 $\Delta \varepsilon_x$ などをそのまま流用してもよいが、追加のパラメータが必要になることに留意すべきである。ただし、計算 DRS 信号 S 2（個別計算 DRS 信号 S 1）および実測 DRS 信号 S 3 のそれぞれに関して最小二乗法を適用するこ

とにより、上記した追加のパラメータが同定される。緩和形態としてC o l l e - D a v i d s o n型緩和を用いても、その緩和形態としてD e b y e型緩和を仮定した場合と同様に、個別計算D R S信号S 1を用いて実測D R S信号S 3を帰属することが可能になる。

[0212] この場合においても、計算D R S信号S 2（個別計算D R S信号S 1）の信頼性が担保されると共に、その個別計算D R S信号S 1を用いて実測D R S信号S 3が帰属されるため、電解液の物性を容易かつ高精度に解析することができる。

[0213] なお、ここで説明した変形例2は、第2実施形態に限られず、変形例2，3のそれぞれに適用されてもよい。この場合においても、同様の効果を得ることができる。

[0214] [変形例5]

第1実施形態では、図1に示したように、解析装置100が比較部30を備えており、上記したように、その比較部30が画像解析処理を利用して計算D R S信号S 2と実測D R S信号S 3との比較処理を行う。

[0215] しかしながら、ここでは具体的に図示しないが、解析装置100が比較部30を備えていなくてもよい。この場合には、比較部30の代わりに、計算D R S信号S 2および実測D R S信号S 3などを表示する表示装置を用いることにより、解析装置100の使用が目視で人為的に計算D R S信号S 2と実測D R S信号S 3との比較処理を行ってもよい。この場合においても、計算D R S信号S 2を用いて実測D R S信号S 3を帰属することが可能になるため、同様の効果を得ることができる。

実施例

[0216] 本技術の実施例に関して説明する。

[0217] <実施例1>

以下で説明するように、第1実施形態において説明した解析装置100（解析方法）を用いて電解液を解析することにより、その電解液の物性を調べた。ここで用いた電解液は、溶媒として炭酸プロピレン（P C）を含んでい

ると共に、電解質塩として六フッ化リン酸リチウム (LiPF_6) を含んでいる。

[0218] [解析装置の構成]

解析装置 100 の構成は、以下で説明する通りである。

[0219] (計算部の構成)

計算部 10 としては、MD 計算を実行可能であるソフトウェアとして WM I-MD を用いた。このソフトウェアは、力場として $\text{APPLE \& P}$ を用いている。

[0220] (実測部の構成)

実測部 20 の誘電分光部としては、ベクトルネットワークアナライザ (Key sight 社製の VNA N5234A) と、マイクロ波用同軸ケーブル (JUNFLON 社製の MWX221) と、終端開放型のプローブ (Key sight 社製の 85070E-020) とを用いた。この終端開放型のプローブは、上記したように、マイクロ波用同軸ケーブルを介してベクトルネットワークアナライザに接続されている。

[0221] 実測部 20 の測定方法としては、反射係数 S_{11} , S_{22} を用いる反射伝送法 (S パラメータ法) を採用した。反射係数 S_{11} は、ベクトルネットワークアナライザの第 1 ポートの反射係数であると共に、反射係数 S_{22} は、ベクトルネットワークアナライザの第 2 ポートの反射係数である。

[0222] 反射係数に基づいて複素誘電率 (実測 DRS 信号 S_3) を計算するためのソフトウェアとしては、上記したベクトルネットワークアナライザに付属されているソフトウェアを用いた。

[0223] 実測 DRS 信号 S_3 を測定する前には、開放状態である測定セルの内部に、誘電率が既知である純溶媒を収容することにより、その純溶媒を用いて校正した。この純溶媒としては、水、ベンゾニトリルおよび N, N -ジメチルアセトアミドを用いた。

[0224] 実測 DRS 信号 S_3 を測定する際には、シリンジを用いて測定セルの内部に電解液を導入することにより、終端開放型のプローブの先端を電解液に接

触させた。この場合には、電解液中に空気が含まれないように注意したと共に、測定時において電解液の収容量（体積）を一定に維持した。

[0225] 実測部20の補正部としては、マイクロソフト社製の表計算ソフト（エクセル）を用いた。

[0226] （比較部の構成）

比較部30としては、画像解析処理を利用した比較処理を実行可能であるソフトウェアとして、上記した一連の比較項目に基づいて計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とを定性的に比較可能であるプログラムを用いた。このプログラムは、Pythonを用いて作成されたオリジナルのプログラムである。

[0227] [解析装置を用いた電解液の解析]

以下で説明する手順により、解析装置100を用いて電解液を解析した。図3～図8のそれぞれは、解析装置100を用いた電解液の解析結果を表している。

[0228] 具体的には、図3は、時間相関関数の計算結果（横軸は時間（ns）、縦軸は時間相関関数）を表していると共に、図4は、時間相関関数の近似結果（横軸は時間（ns）、縦軸は時間相関関数）を表している。

[0229] 図5は、個別計算DRS信号S1（誘電率実部）および計算DRS信号S2（誘電率実部）の計算結果（横軸は周波数 ν （GHz）、縦軸は誘電率実部）を表している。図6は、個別計算DRS信号S1（誘電率虚部）および実測DRS信号S3（誘電率虚部）の計算結果（横軸は周波数 ν （GHz）、縦軸は誘電率虚部）を表している。図7は、計算DRS信号S2（誘電率実部および誘電率虚部）の計算結果（横軸は周波数 ν （GHz）、縦軸は誘電率実部および誘電率虚部）を表している。

[0230] 図8は、実測DRS信号S3（誘電率実部および誘電率虚部）の測定結果（横軸は周波数 ν （GHz）、縦軸は誘電率実部および誘電率虚部）を表している。

[0231] （個別計算DRS信号S1の計算および計算DRS信号S2の計算）

解析装置 100 を用いて電解液を解析する場合には、最初に、以下で説明するように、計算部 10 において、計算手順 1 を用いて個別計算 DRS 信号 S1 を計算したのち、計算 DRS 信号 S2 を計算した。

[0232] 具体的には、最初に、電解液に関する MD 計算を行うために、その電解液の構成を設定した。この場合には、上記したように、溶媒として PC を設定したと共に、電解質塩として LiPF_6 を設定した。これにより、構成成分 C として、中性分子 m である PC ($\text{C}_4\text{H}_6\text{O}_3$) と、イオン対 x である CIP (Li^+PF_6^-) とを設定した。

[0233] MD 計算の条件は、系のサイズ（原子数）＝約 5000 個～10000 個、時間刻み＝0.5 fs とした。この場合には、希薄状態を出発状態として、粒子数、圧力および温度のそれぞれが一定である NPT アンサンブルにおいて常温常圧における平衡体積を取得したと共に、約 10 ns の時間において平衡化計算を行ったのち、本計算を実行した。また、NPT アンサンブルにおいて、18 ns 以上の時間に対して計算を実行することにより、各構成成分 C を構成している一連の原子の挙動（位置、すなわち座標）の履歴を取得した。

[0234] 電解液中における電解質塩の含有量 ($M = \text{mol} / \text{dm}^3$) は、5 種類 (0 M、0.5 M、1 M、1.5 M および 2 M) となるように設定した。ここで説明した電解質塩の含有量は、溶媒に対する電解質塩の含有量である。

[0235] 続いて、MD 計算の計算結果に基づいて、各構成成分 C（中性分子 m およびイオン対 x (CIP)) のトータル電気双極子モーメントを計算したのち、そのトータル電気双極子モーメントに基づいて、各構成成分 C の時間相関関数を計算した。なお、トータル電気双極子モーメントの計算手順および時間相関関数の計算手順のそれぞれに関する詳細は、上記した通りである。

[0236] これにより、一連の構成成分 C のうちの中性分子 m (PC) に関する時間相関関数の計算結果だけを具体的に挙げると、図 3 に示した時間相関関数の計算結果が得られた。図 3 では、上記したように、横軸が時間 (ns) を示していると共に、縦軸が中性分子 m である PC の時間相関関数を表している

。上記したように、電解液中における電解質塩の含有量を5種類となるように設定したため、図3では、5種類の時間相関関数の計算結果が示されている。

[0237] 図3において、3A～3Eと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、3A=0M、3B=0.5M、3C=1M、3D=1.5M、3E=2Mである。

[0238] 続いて、時間相関関数を指数関数に近似した。この場合には、最小二乗法を用いて、時間相関関数をフィッティングした。これにより、時間相関関数の計算誤差（時間相関関数の変動誤差）が除去されたため、その時間相関関数が近似された。なお、時間相関関数の近似手順に関する詳細は、上記した通りである。

[0239] これにより、一連の構成成分Cのうちの中性分子m（PC）に関する時間相関関数の近似結果だけを具体的に挙げると、図4に示した時間相関関数の近似結果が得られた。すなわち、図4に示した時間相関関数の近似結果は、図3に示した時間相関関数の計算結果に対応している。

[0240] 図4において、4A～4Eと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、4A=0M、4B=0.5M、4C=1M、4D=1.5M、4E=2Mである。

[0241] 続いて、時間相関関数の近似結果をフーリエ変換することにより、各構成成分Cの個別計算DRS信号S1（誘電率実部および誘電率虚部）を計算したのち、それらの個別計算DRS信号S1を加算することにより、電解液の計算DRS信号S2（誘電率実部および誘電率虚部）を計算した。この場合には、スケーリングファクターAの値を0.25とした。

[0242] なお、時間相関関数のフーリエ変換手順、個別計算DRS信号S1の計算手順および計算DRS信号S2の計算手順のそれぞれに関する詳細は、上記した通りである。

[0243] これにより、図5に示したように、各構成成分C（中性分子m（PC）およびイオン対x（CIP））に関する個別計算DRS信号S1（誘電率実部

）が得られた。また、図6に示したように、各構成成分C（中性分子m（PC）およびイオン対x（CIP））に関する個別計算DRS信号S1（誘電率虚部）が得られた。図5では、上記したように、横軸が周波数 ν （GHz）を示していると共に、縦軸が誘電率実部を示している。図6では、上記したように、横軸が周波数 ν （GHz）を示していると共に、縦軸が誘電率虚部を示している。

[0244] また、図7に示したように、電解液の計算DRS信号S2が得られた。図7では、上記したように、横軸が周波数 ν （GHz）を示していると共に、縦軸が誘電率実部および誘電率虚部を示している。

[0245] なお、図5では、上記したように、互いに比較しやすくするために個別計算DRS信号S1（誘電率実部）だけでなく計算DRS信号S2（誘電率実部）も併せて示している。

[0246] 図5において、5A～5Gと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、5A＝0M、5B～5D＝1M、5E～5G＝2Mである。また、図5では、5C、5F＝中性分子m（PC）の個別計算DRS信号S1、5B、5E＝イオン対x（CIP）の個別計算DRS信号S1、5A、5D、5G＝計算DRS信号S2を示している。

[0247] また、図6では、上記したように、互いに比較しやすくするために個別計算DRS信号S1（誘電率虚部）だけでなく計算DRS信号S2（誘電率虚部）も併せて示している。）

[0248] 図6において、6A～6Gと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、6A＝0M、6B～6D＝1M、6E～6G＝2Mである。また、図6では、6C、6F＝中性分子m（PC）の個別計算DRS信号S1、6B、6E＝イオン対x（CIP）の個別計算DRS信号S1、6A、6D、6G＝計算DRS信号S2を示している。

[0249] また、図7では、誘電率実部と誘電率虚部とを互いに比較しやすくするために、その誘電率実部と誘電率虚部とを1つの図面（図7）中にまとめて示している。この場合には、適宜、誘電率実部と誘電率虚部との位置関係を調

整している。

[0250] 図7において、7A～7Fと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、7A、7D=0M、7B、7E=1M、7C、7F=2Mである。また、図7では、7A～7C=計算DRS信号S2（誘電率実部）、7D～7F=計算DRS信号S2（誘電率虚部）を示している。

[0251]（物性値Pの計算）

次に、計算部10において、個別計算DRS信号S1および計算DRS信号S2に基づいて、各構成成分Cに固有の物性値Pを計算した。

[0252] ここでは、中性分子m（PC）の物性値Pとして、緩和強度 $\Delta \epsilon_m$ 、特徴時間 τ_m 、濃度 n_m および静的誘電率 ϵ_m^{sta} のそれぞれを計算した。また、イオン対x（CIP）の物性値Pとして、緩和強度 $\Delta \epsilon_x$ 、特徴時間 τ_x 、濃度 n_x および静的誘電率 ϵ_x^{sta} のそれぞれを計算した。この他、電解液の塩解離度 α を計算した。なお、各物性値Pの計算手順は、上記した通りである。

[0253] この結果、電解液中における電解質塩の含有量が1Mである場合の物性値Pは、以下の通りであった。中性分子m（PC）に関して、緩和強度 $\Delta \epsilon_m = 41.5$ 、特徴時間 $\tau_m = 66.5 \text{ ps}$ 、濃度 $n_m = 11.4 \text{ M}$ 、静的誘電率 $\epsilon_m^{sta} = 41.5$ であった。イオン対x（CIP）に関して、緩和強度 $\Delta \epsilon_x = 1.0$ 、特徴時間 $\tau_x = 76.0 \text{ ps}$ 、濃度 $n_x = 0.1 \text{ M}$ 、静的誘電率 $\epsilon_x^{sta} = 1.0$ であった。電解液の塩解離度 $\alpha = 0.76$ であった。

[0254] これにより、計算部10から比較部30にデータD1を出力した。データD1に関する詳細は、上記した通りである。

[0255]（実測DRS信号S3の測定）

次に、以下で説明するように、実測部20において実測DRS信号S3を測定した。

[0256] 具体的には、最初に、電解液を準備した。この場合には、上記したように、溶媒（PC）に電解質塩（LiPF₆）を添加したのち、その溶媒を攪拌することにより、電解液を調製した。

[0257] 電解液中における電解質塩の含有量（M）は、11種類（0M、0.2M

、0.4 M、0.6 M、0.8 M、1 M、1.2 M、1.4 M、1.6 M、1.8 Mおよび2 M）となるように設定した。ここで説明した電解質塩の含有量は、溶媒に対する電解質塩の含有量である。

[0258] 続いて、誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて電解液を分析することにより、その電解液の実測DRS信号S3を測定した。この場合には、電解液（温度＝25℃）にマイクロ波（周波数＝200 MHz～43.5 GHz）を照射したのち、応答波（マイクロ波の反射成分および透過成分）を受信することにより、その応答波に基づいて実測DRS信号S3（誘電率実部および誘電率虚部）を計算した。

[0259] 続いて、電解液のイオン伝導性に起因する測定誤差を除去するために、実測DRS信号S3を補正した。この場合には、上記したように、Debye型の緩和関数を用いて実測DRS信号S3のフィッティングを行う。これにより、回転運動以外の運動に起因する測定誤差が実測DRS信号S3から除去されたため、その実測DRS信号S3が補正された。

[0260] これにより、図8に示した実測DRS信号S3の測定結果が得られた。図8では、上記したように、横軸が周波数 ν （GHz）を示していると共に、縦軸が誘電率実部および誘電率虚部を示している。

[0261] なお、図8では、誘電率実部と誘電率虚部とを互いに比較しやすくするために、その誘電率実部および誘電率虚部を1つの図面（図8）中にまとめて示している。上記したように、電解液中における電解質塩の含有量を11種類となるように設定したため、図8では、11種類の誘電率実部および11種類の誘電率虚部が示されている。

[0262] 図8において、8A～8Kと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、8A、8L＝0 M、8B、8M＝0.2 M、8C、8N＝0.4 M、8D、8O＝0.6 M、8E、8P＝0.8 M、8F、8Q＝1 M、8G、8R＝1.2 M、8H、8S＝1.4 M、8I、8T＝1.6 M、8J、8U＝1.8 M、8K、8V＝2 Mである。また、図8では、8A～8K＝実測DRS信号S3（誘電率実部）、8L～8V＝実測DRS信号S3（誘電率

虚部)を示している。

[0263] 最後に、実測部20から比較部30にデータD2出力した。データD2に関する詳細は、上記した通りである。

[0264] (計算DRS信号S2と実測DRS信号S3との比較および個別計算DRS信号S1を用いた実測DRS信号S3の帰属)

最後に、以下で説明するように、比較部30において、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とを互いに比較した。

[0265] 具体的には、図7に示した計算DRS信号S2と、図8に示した実測DRS信号S3との間において、両者のスペクトル形状が互いに定性的に一致しているかどうかを確認した。この結果、以下で説明する傾向が見出された。

[0266] 具体的には、第1に、計算DRS信号S2および実測DRS信号S3のそれぞれでは、電解液中における電解質塩の含有量が0Mから2Mに増加すると、誘電率虚部の強度が最大となる時の周波数 ν （いわゆるピーク位置）が減少し、より具体的には周波数 ν が約5GHzから約0.5GHzに減少した。

[0267] 第2に、計算DRS信号S2および実測DRS信号S3のそれぞれでは、電解液中における電解質塩の含有量が0Mから2Mに増加すると、誘電率虚部の強度の最大値（いわゆるピーク強度）が減少し、より具体的には誘電率虚部の強度が約30から約12に減少した。

[0268] 第3に、計算DRS信号S2および実測DRS信号S3のそれぞれでは、電解液中における電解質塩の含有量が0Mから2Mに増加すると、静的誘電率 ϵ^{sta} が減少し、より具体的には静的誘電率 ϵ^{sta} が約60から約35に減少した。

[0269] これらの傾向から、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とが互いに定性的に一致した。これにより、実測DRS信号S3に対する計算DRS信号S2の信頼性が担保されたため、その計算DRS信号S2の構成要素である個別計算DRS信号S1の信頼性も担保された。よって、個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属することができた。

[0270] 最後に、解析装置 100 は、外部にデータ D3 を出力した。データ D3 に関する詳細は、上記した通りである。これにより、解析装置 100 を用いた電解液の解析が完了した。

[0271] [考察]

電解液に関する計算 DRS 信号 S2 の信頼性が担保されたため、各構成成分 C（中性分子 m（PC）およびイオン対 x（CIP））に関する個別計算 DRS 信号 S1 の信頼性も担保された。これにより、図 3～図 8 に示した結果から、以下で説明する物性が導き出された。

[0272] 第 1 に、図 5～図 8 から明らかなように、電解液中における電解質塩の含有量が 0 M～2 M である範囲において、実測 DRS 信号 S3 のスペクトル形状は、主に、中性分子 m（PC）のスペクトル形状に応じて決定されている。

[0273] 第 2 に、図 7 から明らかなように、中性分子 m（PC）に関する個別計算 DRS 信号 S1（誘電率虚部）が最大になる時の周波数 ν は、電解液中における電解質塩の含有量が増加するに応じて減少している。これにより、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、中性分子 m（PC）の運動性が低下すると考えられる。

[0274] 同様に、イオン対 x（CIP）に関する個別計算 DRS 信号 S1（誘電率虚部）の強度が最大になる時の周波数 ν は、電解液中における電解質塩の含有量が増加するに応じて減少している。これにより、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、イオン対 x（CIP）の運動性も低下すると考えられる。

[0275] 第 3 に、図 5 および図 6 から明らかなように、イオン対 x（CIP）に関する個別計算 DRS 信号 S1（誘電率虚部）の強度は、電解液中における電解質塩の含有量が増加するに応じて増加している。これにより、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、イオン対 x（CIP）の濃度が増加する。

[0276] この場合には、実際に、MD 計算のトラジェクトリに基づいて、カチオン

(Li^+) とアニオン (PF_6^-) とが互いに接触する頻度 (平均配位数) を算出したところ、電解液中における電解質塩の含有量が増加するに応じて平均配位数が増加していることが確認された。

[0277] 第4に、図6から明らかなように、同一の系内 (電解液) において、イオン対 x (CIP) の特徴周波数 ν_x は、中性分子 m (PC) の特徴周波数 ν_m よりも減少した。これにより、外部電場に対するイオン対 x (CIP) の応答は、外部電場に対する中性分子 m (PC) の応答よりも遅くなるため、そのイオン対 x (CIP) の運動性は、中性分子 m (PC) の運動性よりも低いと考えられる。

[0278] 第5に、図5から明らかなように、中性分子 m (PC) の静的誘電率 ϵ_m^{sta} およびイオン対 x (CIP) の静的誘電率 ϵ_x^{sta} のそれぞれは、電解液中における電解質塩の含有量が増加するに応じて減少した。

[0279] これらのことから、電解液が溶媒 (PC) および電解質塩 (LiPF_6) を含んでいるため、構成成分 C が中性分子 m (PC) およびイオン対 x (CIP) を含んでいる電解液の物性に関して、新規かつ有用な情報が得られた。

[0280] 詳細には、個別計算DRS信号 $S1$ および計算DRS信号 $S2$ に基づいて、各構成成分 C に関する物性値 P (緩和強度 $\Delta\epsilon_m$, $\Delta\epsilon_x$ 、特徴時間 τ_m , τ_x 、濃度 n_m , n_x 、静的誘電率 ϵ_m^{sta} , ϵ_x^{sta} および塩解離度 α) を取得することができた。この場合には、物性値 P に基づいて、各構成成分 C の運動性を把握することができたと共に、各構成成分 C の運動性に関する電解液の濃度依存性も把握することができた。

[0281] また、化学的に静的である中性分子 m の物性だけでなく、化学的に動的であるイオン対 x (CIP) の物性も把握することができた。この場合には、イオン対 x の濃度に基づいて、電解液中における電解質塩のイオン解離性を見積もることもできる。

[0282] さらに、実測DRS信号 $S3$ の測定過程において計算されるイオン伝導性に起因する測定誤差を利用すれば、電解液のイオン伝導性を見積もることもできる。

[0283] <実験例 2>

以下で説明するように、第 2 実施形態において説明した解析装置 100（解析方法）を用いて電解液を解析することにより、その電解液の物性を調べた。ここで用いた電解液は、混合溶媒として炭酸プロピレン（PC）および炭酸ジエチル（DEC）を含んでいると共に、電解質塩として六フッ化リン酸リチウム（LiPF₆）を含んでいる。この場合には、混合溶媒の混合比（重量比）を PC : DEC = 30 : 70 とした。

[0284] [解析装置の構成]

実施例 2 における解析装置 100 の構成は、計算部 10 が個別計算 DRS 信号 S1 を計算するために計算手順 1 の代わりに計算手順 2 を用いたことを除いて、実施例 1 における解析装置 100 の構成と同様にした。

[0285] [解析装置を用いた電解液の解析]

以下で説明する手順により、解析装置 100 を用いて電解液を解析した。図 9～図 11 のそれぞれは、解析装置 100 を用いた電解液の解析結果を表している。

[0286] 具体的には、図 9 は、個別計算 DRS 信号 S1（誘電率虚部）および計算 DRS 信号 S2（誘電率虚部）の計算結果（横軸は周波数 ν （GHz）、縦軸は誘電率虚部）を表している。図 10 は、計算 DRS 信号 S2（誘電率実部および誘電率虚部）の計算結果（横軸は周波数 ν （GHz）、縦軸は誘電率実部および誘電率虚部）を表している。

[0287] 図 11 は、実測 DRS 信号 S3（誘電率実部および誘電率虚部）の測定結果（横軸は周波数 ν （GHz）、縦軸は誘電率実部および誘電率虚部）を表している。

[0288] （個別計算 DRS 信号 S1 の計算および計算 DRS 信号 S2 の計算）

解析装置 100 を用いて電解液を解析する場合には、最初に、以下で説明するように、計算部 10 において、計算手順 2 を用いて各構成成分 C の計算 DRS 信号 S1 を計算した共に、電解液の計算 DRS 信号 S2 を計算した。

[0289] 具体的には、最初に、電解液に関する MD 計算を行うために、電解液の構

成を設定した。この場合には、上記したように、溶媒としてPCおよびDECを設定したと共に、電解質塩として LiPF_6 を設定した。これにより、構成成分Cとして、中性分子mである炭酸プロピレン ($\text{C}_4\text{H}_6\text{O}_3$) および炭酸ジエチル ($\text{C}_5\text{H}_{10}\text{O}_3$) と、イオン対xであるCIP ($\text{Li}^+ \text{PF}_6^-$) とを設定した。

[0290] 続いて、電解液に関するMD計算を実施した。MD計算の計算手順は、実施例1と同様にした。電解液中における電解質塩の含有量は、2種類(0Mおよび1M)となるように設定した。ここで説明した電解質塩の含有量は、上記したように、溶媒に対する電解質塩の含有量である。

[0291] 続いて、MD計算の計算結果に基づいて、各構成成分C(中性分子mおよびイオン対x(CIP))の個別電気双極子モーメントを計算したのち、その個別電気双極子モーメントに基づいて、各構成成分Cの回転相関関数を計算した。また、回転相関関数を指数関数に近似することにより、各構成成分Cの回転相関時間を計算した。さらに、回転相関時間に基づいて、各構成成分Cの個別計算DRS信号S1(誘電率実部および誘電率虚部)を計算したのち、電解液の計算DRS信号S2(誘電率実部および誘電率虚部)を計算した。

[0292] なお、個別電気双極子モーメントの計算手順、回転相関関数の計算手順、回転相関関数の近似手順、回転相関時間の計算手順、個別計算DRS信号S1の計算手順および計算DRS信号S2の計算手順のそれぞれに関する詳細は、上記した通りである。

[0293] これにより、図9に示したように、各構成成分C(中性分子m(PC, DEC)およびイオン対(CIP))に関する個別計算DRS信号S1(誘電率虚部)が得られた。図9では、上記したように、横軸が周波数 ν (GHz)を示していると共に、縦軸が誘電率虚部を示している。

[0294] また、図10に示したように、電解液の計算DRS信号S2が得られた。図10では、上記したように、横軸が周波数 ν (GHz)を示していると共に、縦軸が誘電率実部および誘電率虚部を示している。

[0295] なお、図9では、個別計算DRS信号S1（誘電率虚部）だけでなく、計算DRS信号S2（誘電率虚部）も併せて示している。また、図10では、誘電率実部と誘電率虚部との位置関係を調整している。

[0296] 図9において、9A～9Gと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、9A～9C=0M、9D～9G=1Mである。また、図9では、9A、9D=中性分子m（DEC）の個別計算DRS信号S1、9B、9E=中性分子m（PC）の個別計算DRS信号S1、9F=イオン対x（CIP）の個別計算DRS信号S1、9C、9G=計算DRS信号S2を示している。

[0297] 図10において、10A～10Dと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、10A、10C=0M、10B、10D=1Mである。また、図10では、10A、10B=計算DRS信号S2（誘電率実部）、10C、10D=計算DRS信号S2（誘電率虚部）を示している。

[0298] （物性値Pの計算）

次に、計算部10において、個別計算DRS信号S1および計算DRS信号S2に基づいて、各構成成分Cに固有の物性値Pを計算した。

[0299] ここでは、中性分子m（PC、DEC）の物性値Pとして、緩和強度 $\Delta \epsilon_m$ 、特徴時間 τ_m 、濃度 n_m および静的誘電率 ϵ_m^{sta} のそれぞれを計算した。また、イオン対x（CIP）の物性値Pとして、緩和強度 $\Delta \epsilon_x$ 、特徴時間 τ_x 、濃度 n_x および静的誘電率 ϵ_x^{sta} のそれぞれを計算した。この他、電解液の塩解離度 α を計算した。

[0300] この結果、電解液中における電解質塩の含有量が1Mである場合の物性値Pは、以下の通りであった。中性分子m（PC）に関して、緩和強度 $\Delta \epsilon_m = 9.2$ 、特徴時間 $\tau_m = 31.5 \text{ ps}$ 、濃度 $n_m = 2.9 \text{ M}$ 、静的誘電率 $\epsilon_m^{sta} = 9.2$ であった。中性分子m（DEC）に関して、緩和強度 $\Delta \epsilon_m = 0.6$ 、特徴時間 $\tau_m = 13.5 \text{ ps}$ 、濃度 $n_m = 5.9 \text{ M}$ 、静的誘電率 $\epsilon_m^{sta} = 0.6$ であった。イオン対x（CIP）に関して、緩和強度 $\Delta \epsilon_x = 4.1$ 、特徴時間 $\tau_x = 180.0 \text{ ps}$ 、濃度 $n_x = 0.4 \text{ M}$ 、静的誘電率 $\epsilon_x^{sta} = 4.1$ であった。電解液の塩解離度 $\alpha = 0.51$ であった。

[0301] (実測DRS信号S3の測定)

次に、以下で説明するように、実測部20において実測DRS信号S3を測定した。

[0302] 具体的には、最初に、電解液を準備した。この場合には、上記したように、混合溶媒(PCおよびDEC)に電解質塩(LiPF₆)を添加したのち、その混合溶媒を攪拌することにより、電解液を調製した。

[0303] 電解液中における電解質塩の含有量(M)は、2種類(0Mおよび1M)となるように設定した。ここで説明した電解質塩の含有量は、溶媒に対する電解質塩の含有量である。

[0304] 続いて、誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて電解液を分析することにより、その電解液の実測DRS信号S3を測定した。実測DRS信号S3の測定手順に関する詳細は、実施例1と同様にした。

[0305] これにより、図11に示した実測DRS信号S3が得られた。図11では、上記したように、横軸が周波数 ν (GHz)を表していると共に、縦軸が誘電率実部および誘電率虚部を表している。なお、図11では、誘電率実部と誘電率虚部とをまとめて示している。上記したように、電解液中における電解質塩の含有量を2種類となるように設定したため、図11では、2種類の誘電率実部および2種類の誘電率虚部が示されている。

[0306] 図11において、11A~11Dと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、11A, 11C=0M、11B, 11D=1Mである。また、図11では、11A, 11B=実測DRS信号S3(誘電率実部)、11C, 11D=実測DRS信号S3(誘電率虚部)を示している。

[0307] (計算DRS信号S2と実測DRS信号S3との比較および個別計算DRS信号S1を用いた実測DRS信号S3の帰属)

最後に、以下で説明するように、比較部30において計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とを互いに比較した。

[0308] 具体的には、図10に示した計算DRS信号S2と、図11に示した実測DRS信号S3との間において、両者のスペクトル形状が互いに定性的に一

致しているかどうかを確認した。この結果、以下で説明する傾向が見出された。

[0309] 具体的には、実測DRS信号S3では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、誘電率虚部の強度が最大になる時の周波数 ν が減少し、より具体的には周波数 ν が約7GHzから約2GHzに減少した。

[0310] また、実測DRS信号S3では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、誘電率虚部の強度の最大値が減少し、より具体的には誘電率虚部の強度の最大値が約6から約3に減少した。

[0311] さらに、実測DRS信号S3では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、周波数 ν が最小（＝約0.2GHz）になる時における誘電率実部の強度が減少し、より具体的には誘電率実部の強度が約16から約12に減少した。

[0312] これに対して、計算DRS信号S2では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、誘電率虚部の強度が最大になる時の周波数 ν が減少し、より具体的には周波数 ν が約10GHzから約2GHzに減少した。

[0313] また、計算DRS信号S2では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、誘電率虚部の強度の最大値が減少し、より具体的には誘電率虚部の強度の最大値が約8から約5に減少した。

[0314] さらに、計算DRS信号S2では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、周波数 ν が最小（＝約0.2GHz）になる時における誘電率実部の強度が減少し、より具体的には誘電率実部の強度が約16から約13に減少した。

[0315] これらの傾向から、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とが互いに定性的に一致した。これにより、実測DRS信号S3に対する計算DRS信号S2の信頼性が担保されたため、その計算DRS信号S2の構成要素である個別計算DRS信号S1の信頼性も担保された。よって、個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属することができた。

[0316] [考察]

電解液に関する計算DRS信号S2の信頼性が担保されたため、各構成成分C（中性分子m（PCおよびDEC）およびイオン対x（CIP））に関する個別計算DRS信号S1の信頼性も担保された。これにより、図9～図11に示した結果から、以下で説明する物性が導き出された。

[0317] 第1に、図9～図11から明らかなように、電解液中における電解質塩の含有量が0M～2Mである範囲において、実測DRS信号S3のスペクトル形状は、主に、中性分子m（PC）のスペクトル形状に応じて決定されている。これにより、中性分子m（DEC）のスペクトル形状は、実測DRS信号S3のスペクトル形状にほとんど影響を及ぼしていない。

[0318] ただし、中性分子m（DEC）に関する個別計算DRS信号S1（誘電率虚部）の強度が最大になる時の周波数 ν は、中性分子m（PC）に関する個別計算DRS信号S1（誘電率虚部）の強度が最大になる時の周波数 ν よりも増加している。これにより、中性分子m（DEC）の運動性は、中性分子m（PC）の運動性よりも高いと考えられる。

[0319] なお、電解液中における電解質塩の含有量が大きい場合（＝1M）における計算DRS信号S3のスペクトル形状は、電解液中における電解質塩の含有量が小さい場合（＝0M）における計算DRS信号S3のスペクトル形状よりもブロードである。この場合において、前者において誘電率虚部の強度が最大になる時の周波数 ν は、後者において誘電率虚部の強度が最大になる時の周波数 ν よりも減少している。

[0320] これにより、上記したように、実測DRS信号S3のスペクトル形状を決定しているのは、主に、中性分子m（PC）である。ただし、周波数 ν が小さい領域では、中性分子m（DEC）も実測DRS信号S3のスペクトル形状に小さくない影響を及ぼしている。

[0321] 第2に、図7および図11から明らかなように、実施例2における緩和強度 $\Delta\epsilon_x$ は、実施例1における緩和強度 $\Delta\epsilon_x$ よりも増加している。この緩和強度 $\Delta\epsilon_x$ は、上記したように、電解液の物性に対するイオン対x（CIP）の影響を表している。これにより、電解液中における電解質塩の含有量

が一定であっても、混合溶媒中におけるDECの割合（混合比）を増加させることにより、その電解液中ではイオン対 x （CIP）が形成されやすくなると考えられる。

[0322] これらのことから、混合溶媒（PCおよびDEC）および電解質塩（LiPF₆）を含んでいるため、構成成分Cとして中性分子 m （PCおよびDEC）およびイオン対 x （CIP）を含んでいる電解液の物性に関して、新規かつ有用な情報が得られた。

[0323] 詳細には、実施例1と同様の利点を得ることができた。この場合には、特に、混合溶媒を用いても同様の利点を得ることができた。

[0324] <実験例3>

以下で説明するように、第1実施形態において説明した解析装置100（解析方法）を用いて電解液を解析することにより、その電解液の物性を調べた。ここで用いた電解液は、溶媒として炭酸ジエチル（DEC）を含んでいると共に、電解質塩として六フッ化リン酸リチウム（LiPF₆）を含んでいる。

[0325] [解析装置の構成]

実施例3における解析装置100の構成は、実施例1における解析装置100の構成と同様にした。

[0326] [電解液の解析]

以下で説明する手順により、解析装置100を用いて電解液を解析した。図12～図15のそれぞれは、解析装置100を用いた電解液の解析結果を表している。

[0327] 具体的には、図12および図13のそれぞれは、電解質塩の含有量が1Mである電解液に関する個別計算DRS信号S1（誘電率虚部）の計算結果（横軸は周波数 ν （GHz）、縦軸は誘電率虚部）を表している。ただし、図12では、構成成分Cを三成分系とした場合の計算結果を示していると共に、図13では、構成成分Cを二成分系とした場合の計算結果を示している。ここで説明した「三成分系」および「二成分系」のそれぞれの詳細に関して

は、後述する。

[0328] 図14は、計算DRS信号S2（誘電率実部および誘電率虚部）の計算結果（横軸は周波数 ν （GHz）、縦軸は誘電率実部および誘電率虚部）を表している。図14では、電解質塩の含有量が1Mである電解液において構成成分Cが三成分系である場合の計算結果を示している。図15は、実測DRS信号S3（誘電率実部および誘電率虚部）の測定結果（横軸は周波数 ν （GHz）、縦軸は誘電率実部および誘電率虚部）を表している。

[0329] （個別計算DRS信号S1の計算および計算DRS信号S2の計算）

解析装置100を用いて電解液を解析する場合には、最初に、以下で説明するように、計算部10において、計算手順1を用いて各構成成分Cの個別計算DRS信号S1を計算したと共に、電解液の計算DRS信号S2を計算した。

[0330] 具体的には、最初に、電解液に関するMD計算を行うために、その電解液の構成を設定した。この場合には、上記したように、溶媒としてDECを設定したと共に、電解質塩として LiPF_6 を設定した。

[0331] この場合には、3種類の構成成分Cを含んでいる系（三成分系）として、中性分子mであるDEC（ $\text{C}_5\text{H}_{10}\text{O}_3$ ）と、イオン対xであるCIP（ Li^+PF_6^- ）と、イオン対xであるイオン会合体（ $\text{Li}_2(\text{PF}_6)_2$ ）とを設定した。この場合には、イオン対xとして $\text{Li}_2(\text{PF}_6)_2$ だけでなく Li_2PF_6 および $\text{Li}(\text{PF}_6)_2$ などを含む複数種類のイオン会合体を設定した。

[0332] また、比較のために、2種類の構成成分Cを含んでいる系（二成分系）として、中性分子mであるDEC（ $\text{C}_5\text{H}_{10}\text{O}_3$ ）と、イオン対xであるCIP（ Li^+PF_6^- ）とを設定した。

[0333] 続いて、電解液に関するMD計算を実施した。MD計算の計算手順は、実施例1と同様にした。電解液中における電解質塩の含有量は、2種類（0Mおよび1M）とした。

[0334] 続いて、MD起算の計算結果に基づいて、実施例1と同様の手順により、三成分系における各構成成分C（中性分子m（DEC）およびイオン対x（

C I P およびイオン会合体)) の個別計算 D R S 信号 S 1 (誘電率実部および誘電率虚部) を計算したのち、電解液の計算 D R S 信号 S 2 (誘電率実部および誘電率虚部) を計算した。

[0335] また、比較のために、M D 起算の計算結果に基づいて、実施例 1 と同様の手順により、二成分系における各構成成分 C (中性分子 m (D E C) およびイオン対 x (C I P)) の個別計算 D R S 信号 S 1 (誘電率実部および誘電率虚部) を計算したのち、電解液の計算 D R S 信号 S 2 (誘電率実部および誘電率虚部) を計算した。

[0336] これにより、図 1 2 に示したように、三成分系 (構成成分 C は中性分子 m (D E C) およびイオン対 x (C I P およびイオン会合体)) に関する個別計算 D R S 信号 S 1 (誘電率虚部) が得られた。図 1 2 では、上記したように、横軸が周波数 ν (G H z) を示していると共に、縦軸が誘電率虚部を示している。

[0337] また、図 1 3 に示したように、二成分系 (構成成分 C は中性分子 m (D E C) およびイオン対 x (C I P)) に関する個別計算 D R S 信号 S 1 (誘電率虚部) が得られた。図 1 3 では、上記したように、横軸が周波数 ν (G H z) を示していると共に、縦軸が誘電率虚部を示している。

[0338] さらに、図 1 4 に示したように、電解液の計算 D R S 信号 S 2 が得られた。図 1 4 では、上記したように、横軸が周波数 ν (G H z) を示していると共に、縦軸が誘電率実部および誘電率虚部を示している。

[0339] なお、図 1 2 および図 1 3 のそれぞれでは、上記したように、個別計算 D R S 信号 S 1 だけでなく計算 D R S 信号 S 2 も併せて示している。また、図 1 4 では、誘電率実部と誘電率虚部との位置関係を調整している。

[0340] 図 1 2 において、1 2 A ~ 1 2 D と電解液中における電解質塩の含有量との関係は、1 2 A ~ 1 2 D = 1 M である。また、図 1 2 では、1 2 A = 中性分子 m (D E C) の個別計算 D R S 信号 S 1 (誘電率虚部)、1 2 B = イオン対 x (C I P) の個別計算 D R S 信号 S 1 (誘電率虚部)、1 2 C = イオン対 x (イオン会合体) の個別計算 D R S 信号 S 1 (誘電率虚部)、1 2 D

=電解液の計算DRS信号S2（誘電率虚部）を示している。

[0341] 図13において、13A～13Cと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、13A～13C=1Mである。また、図13では、13A=中性分子m（DEC）の個別計算DRS信号S1（誘電率虚部）、13B=イオン対x（CIP）の個別計算DRS信号S1（誘電率虚部）、13C=電解液の計算DRS信号S2（誘電率虚部）を示している。

[0342] 図14において、14A～14Dと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、14A, 14C=0M、14B, 14D=1Mである。また、図14では、14A, 14B=計算DRS信号S2（誘電率実部）、14C, 14D=計算DRS信号S2（誘電率虚部）を示している。

[0343] （物性値Pの計算）

次に、計算部10において、個別計算DRS信号S1および計算DRS信号S2に基づいて、各構成成分Cに固有の物性値Pを計算した。

[0344] ここでは、中性分子m（DEC）の物性値Pとして、緩和強度 $\Delta \epsilon_m$ 、特徴時間 τ_m 、濃度 n_m および静的誘電率 ϵ_m^{sta} のそれぞれを計算した。また、イオン対x（CIPおよびイオン会合体）の物性値Pとして、緩和強度 $\Delta \epsilon_x$ 、特徴時間 τ_x 、濃度 n_x および静的誘電率 ϵ_x^{sta} のそれぞれを計算した。この他、電解液の塩解離度 α を計算した。

[0345] この結果、電解液中における電解質塩の含有量が1Mである場合の物性値Pは、以下の通りであった。中性分子m（DEC）に関して、緩和強度 $\Delta \epsilon_m = 0.9$ 、特徴時間 $\tau_m = 9.3 \text{ ps}$ 、濃度 $n_m = 7.8 \text{ M}$ 、静的誘電率 $\epsilon_m^{sta} = 0.9$ であった。イオン対x（CIP）に関して、緩和強度 $\Delta \epsilon_x = 6.5$ 、特徴時間 $\tau_x = 453.0 \text{ ps}$ 、濃度 $n_x = 0.5 \text{ M}$ 、静的誘電率 $\epsilon_x^{sta} = 6.5$ であった。イオン対x（イオン会合体）に関して、緩和強度 $\Delta \epsilon_x = 2.7$ 、特徴時間 $\tau_x = 76.0 \text{ ps}$ 、濃度 $n_x = 0.1 \text{ M}$ 、静的誘電率 $\epsilon_x^{sta} = 2.7$ であった。電解液の塩解離度 $\alpha = 0.28$ であった。

[0346] （実測DRS信号S3の測定）

次に、以下で説明するように、実測部20において実測DRS信号S3を

測定した。

[0347] 具体的には、最初に、電解液を準備した。この場合には、上記したように、溶媒（DEC）に電解質塩（LiPF₆）を添加したのち、その溶媒を攪拌することにより、電解液を調製した。

[0348] 電解液中における電解質塩の含有量（M）は、2種類（0Mおよび1M）となるように設定した。ここで説明した電解質塩の含有量は、溶媒に対する電解質塩の含有量である。

[0349] 続いて、誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて電解液を分析することにより、その電解液の実測DRS信号S3を測定した。実測DRS信号S3の測定手順は、実施例1と同様にした。

[0350] これにより、図15に示した実測DRS信号S3（誘電率実部および誘電率虚部）が得られた。図15では、上記したように、横軸が周波数 ν （GHz）を表していると共に、縦軸が誘電率実部および誘電率虚部を表している。なお、図15では、誘電率実部と誘電率虚部とまとめて示している。上記したように、電解液中における電解質塩の含有量を2種類となるように設定したため、図15では、2種類の誘電率実部および2種類の誘電率虚部が示されている。

[0351] 図15において、15A～15Dと電解液中における電解質塩の含有量との関係は、15A、15C=0M、15B、15D=1Mである。また、図15では、15A、15B=実測DRS信号S3（誘電率実部）、15C、15D=実測DRS信号S3（誘電率虚部）を示している。

[0352] （計算DRS信号S2と実測DRS信号S3との比較および個別計算DRS信号S1を用いた実測DRS信号S3の帰属）

最後に、以下で説明するように、比較部30において計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とを互いに比較した。

[0353] 具体的には、図14に示した計算DRS信号S2と、図15に示した実測DRS信号S3との間において、両者のスペクトル形状が互いに定性的に一致しているかどうかを確認した。この結果、以下で説明する傾向が見出され

た。

[0354] 具体的には、実測DRS信号S3では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、誘電率虚部の強度が最大となる時の周波数 ν が減少し、より具体的には周波数 ν が約20GHzから約0.5GHzに減少した。

[0355] また、実測DRS信号S3では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、誘電率虚部の強度の最大値が増加し、より具体的には誘電率虚部の最大値が約0.5から約3に増加した。

[0356] さらに、実測DRS信号S3では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、周波数 ν が最小（＝約0.2GHz）になる時における誘電率実部の強度が増加し、より具体的には誘電率実部の強度が約3から約10に増加した。

[0357] これに対して、計算DRS信号S2では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、誘電率虚部の強度が最大となる時の周波数 ν が減少し、より具体的には周波数 ν が約30GHzから約0.5GHzに減少した。

[0358] また、計算DRS信号S2では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、誘電率虚部の強度の最大値が増加し、より具体的には誘電率虚部の強度の最大値が約0.5から約4に増加した。

[0359] さらに、計算DRS信号S2では、電解液中における電解質塩の含有量が増加すると、周波数 ν が最小（＝約0.2GHz）になる時における誘電率実部の強度が増加し、より具体的には誘電率実部の強度が約1から約10に増加した。

[0360] これらの傾向から、計算DRS信号S2と実測DRS信号S3とが互いに定性的に一致した。これにより、実測DRS信号S3に対する計算DRS信号S2の信頼性が担保されたため、その計算DRS信号S2の構成要素である個別計算DRS信号S1の信頼性も担保された。よって、個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属することができた。

[0361] [考察]

電解液に関する計算DRS信号S2の信頼性が担保されたため、各構成成

分C（中性分子m（DEC）およびイオン対x（CIPおよびイオン会合体））に関する個別計算DRS信号S1の信頼性も担保された。これにより、図12～図15に示した結果から、実測DRS信号S3のスペクトル形状、中性分子mの運動性、イオン対xがスペクトル形状に及ぼす影響、イオン対x（CIP）の形成容易性などに関して、実施例1において導き出された傾向と同様の傾向が得られた。

[0362] 特に、図12に示した三成分系（構成成分Cは中性分子m（DEC）およびイオン対x（CIPおよびイオン会合体））に関する個別計算DRS信号S1と、図13に示した二成分系（構成成分Cは中性分子m（DEC）およびイオン対x（CIP））に関する個別計算DRS信号S1とを互いに比較した結果、以下で説明する傾向も得られた。

[0363] 図13から明らかなように、イオン対xとしてイオン会合体まで考慮しなかった二成分系の計算DRS信号S2では、周波数 ν が約5GHzである帯域において誘電率虚部の強度が局所的に減少したため、いわゆる窪みが発生した。

[0364] これに対して、図12から明らかなように、イオン対xとしてイオン会合体まで考慮した三成分系の計算DRS信号S2では、上記した窪みが発生しなかった。これにより、図12に示した周波数 ν が約1GHz～10GHzである帯域における誘電率虚部の挙動は、図15に示した実測DRS信号S3のうちの同帯域における誘電率虚部の挙動と同様の傾向を示し、より具体的には、誘電率虚部がほぼ直線的に変化した。

[0365] これにより、溶媒（DEC）および電解質塩（LiPF₆）を含んでいる電解液（電解液中における電解質塩の含有量＝1M）の内部では、1種類のカチオン（Li⁺）と1種類のアニオン（PF₆⁻）とが互いに接近することに応じてCIP（LiPF₆）が形成されているわけではない。この電解液の内部では、2種類のカチオン（Li⁺）と2種類のアニオン（PF₆⁻）とが互いに会合することに応じて特殊なイオン会合体（Li₂（PF₆）₂）が形成されていると考えられる。

[0366] これらのことから、溶媒（DEC）および電解質塩（LiPF₆）を含んでいるため、構成成分Cとして中性分子m（DEC）およびイオン対x（CIPおよびイオン会合体）を含んでいる電解液の物性に関して、新規かつ有用な情報が得られた。この場合には、特に、電解液の物性にCIPが影響を及ぼしていることに限らず、その電解液の物性にイオン会合体が影響を及ぼしていることも確認されたため、そのイオン会合体の影響も把握することができた。

[0367] 詳細には、実施例1と同様の利点を得ることができた。この場合には、特に、イオン対xとしてCIPだけでなくイオン会合体に着目した場合においても同様の利点を得ることができた。

[0368] [まとめ]

図3～図15に示した結果から、解析装置100（解析方法）を用いて電解液を解析することにより、実測DRS信号S3に対する計算DRS信号S2の信頼性が担保されたと共に、その計算DRS信号S2の構成要素である個別計算DRS信号S1の信頼性も担保されたため、その個別計算DRS信号S1を用いて実測DRS信号S3を帰属することができた。これにより、各構成成分Cに固有の物性値Pを取得することができたと共に、中性分子mの物性だけでなくイオン対x（CIPおよびイオン会合体）の物性も把握することができた。よって、電解液の物性を容易かつ高精度に解析することができる。

[0369] 以上、いくつかの実施形態および実施例を挙げながら本技術に関して説明したが、その本技術の構成は、各実施形態および実施例において説明された構成に限定されないため、種々に変形可能である。

[0370] 本明細書中に記載された効果は、あくまで例示であるため、本技術の効果は、本明細書中に記載された効果に限定されない。よって、本技術に関して、他の効果が得られてもよい。

[0371] なお、本技術は、以下のような構成を取ることもできる。

<1>

電解液に関する分子動力学計算を行うことにより、前記電解液の構成成分を構成する一連の原子の経時的な挙動を計算し、

前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分の第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算し、

前記第 1 誘電緩和スペクトル信号に基づいて、前記電解液の第 2 誘電緩和スペクトル信号を計算し、

前記第 1 誘電緩和スペクトル信号および前記第 2 誘電緩和スペクトル信号に基づいて、前記構成成分に固有の物性値を計算する、

解析方法。

< 2 >

前記電解液は、溶媒および電解質塩を含み、

前記構成成分は、中性分子およびイオン対のうちの少なくとも 1 種類を含む、

< 1 >に記載の解析方法。

< 3 >

前記物性値は、特徴時間、緩和強度、静的誘電率、濃度および塩解離度のうちの少なくとも 1 種類を含む、

< 1 >または< 2 >に記載の解析方法。

< 4 >

前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算するために、

前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分のトータル電気双極子モーメントを計算し、

前記トータル電気双極子モーメントに基づいて、前記構成成分の時間相関関数を計算し、

前記時間相関関数を指数関数に近似し、

前記時間相関関数の近似結果をフーリエ変換することにより、前記構成成分の前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算する、

< 1 >ないし< 3 >のいずれか 1 つに記載の解析方法。

<5>

前記第1誘電緩和スペクトル信号を計算するために、

前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分の個別電気双極子モーメントを計算し、

前記個別電気双極子モーメントに基づいて、前記構成成分の回転相関関数を計算し、

前記回転相関関数を指数関数に近似することにより、前記構成成分の回転相関時間を計算し、

前記回転相関時間に基づいて、前記構成成分の前記第1誘電緩和スペクトル信号を計算する、

<1>ないし<3>のいずれか1つに記載の解析方法。

<6>

前記構成成分は、中性分子およびイオン対のうちの2種類以上を含み、

2種類以上の前記構成成分のそれぞれの前記第1誘電緩和スペクトル信号を計算し、

2種類以上の前記構成成分に関する前記第1誘電緩和スペクトル信号を加算することにより、前記第2誘電緩和スペクトル信号を計算する、

<1>ないし<5>のいずれか1つに記載の解析方法。

<7>

さらに、

誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて前記電解液を分析することにより、前記電解液の第3誘電緩和スペクトル信号を測定し、

前記第2誘電緩和スペクトル信号と前記第3誘電緩和スペクトル信号とを互いに比較することにより、前記第1誘電緩和スペクトル信号を用いて前記第3誘電緩和スペクトル信号を帰属する、

<1>ないし<6>のいずれか1つに記載の解析方法。

<8>

前記第3誘電緩和スペクトル信号を測定したのち、前記電解液のイオン伝

導性に起因する信号成分を前記第 3 誘電緩和スペクトル信号から除去することにより、前記第 3 誘電緩和スペクトル信号を補正し、

前記第 2 誘電緩和スペクトル信号と前記第 3 誘電緩和スペクトル信号の補正結果とを互いに比較する、

＜ 7 ＞に記載の解析方法。

＜ 9 ＞

電解液に関する物性値を計算する計算部を備え、

前記計算部は、

前記電解液に関する分子動力学計算を行うことにより、前記電解液の構成成分を構成する一連の原子の経時的な挙動を計算し、

前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分の第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算し、

前記第 1 誘電緩和スペクトル信号に基づいて、前記電解液の第 2 誘電緩和スペクトル信号を計算し、

前記第 1 誘電緩和スペクトル信号および前記第 2 誘電緩和スペクトル信号に基づいて、前記構成成分に固有の前記物性値を計算する、

解析装置。

＜ 1 0 ＞

前記電解液は、溶媒および電解質塩を含み、

前記構成成分は、中性分子およびイオン対のうちの少なくとも 1 種類を含む、

＜ 9 ＞に記載の解析装置。

＜ 1 1 ＞

前記物性値は、特徴時間、緩和強度、静的誘電率、濃度および塩解離度のうちの少なくとも 1 種類を含む、

＜ 9 ＞または＜ 1 0 ＞に記載の解析装置。

＜ 1 2 ＞

前記計算部は、前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算するために、

前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分のトータル電気双極子モーメントを計算し、

前記トータル電気双極子モーメントに基づいて、前記構成成分の時間相関関数を計算し、

前記時間相関関数を指数関数に近似し、

前記時間相関関数の近似結果をフーリエ変換することにより、前記構成成分の前記第1誘電緩和スペクトル信号を計算する、

<9>ないし<11>のいずれか1つに記載の解析装置。

<13>

前記計算部は、前記第1誘電緩和スペクトル信号を計算するために、

前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分の個別電気双極子モーメントを計算し、

前記個別電気双極子モーメントに基づいて、前記構成成分の回転相関関数を計算し、

前記回転相関関数を指数関数に近似することにより、前記構成成分の回転相関時間を計算し、

前記回転相関時間に基づいて、前記構成成分の前記第1誘電緩和スペクトル信号を計算する、

<9>ないし<11>のいずれか1つに記載の解析装置。

<14>

前記構成成分は、中性分子およびイオン対のうちの2種類以上を含み、

前記計算部は、

2種類以上の前記構成成分のそれぞれの前記第1誘電緩和スペクトル信号を計算し、

2種類以上の前記構成成分に関する前記第1誘電緩和スペクトル信号を加算することにより、前記第2誘電緩和スペクトル信号を計算する、

<9>ないし<13>のいずれか1つに記載の解析装置。

<15>

さらに、

誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて前記電解液を分析することにより、前記電解液の第3誘電緩和スペクトル信号を測定する実測部と、

前記第2誘電緩和スペクトル信号と前記第3誘電緩和スペクトル信号とを互いに比較することにより、前記第1誘電緩和スペクトル信号を用いて前記第3誘電緩和スペクトル信号を帰属する比較部と

を備えた、＜9＞ないし＜14＞のいずれか1つに記載の解析装置。

＜16＞

前記実測部は、前記第3誘電緩和スペクトル信号を測定したのち、前記電解液のイオン伝導性に起因する信号成分を前記第3誘電緩和スペクトル信号から除去することにより、前記第3誘電緩和スペクトル信号を補正し、

前記比較部は、前記第2誘電緩和スペクトル信号と前記第3誘電緩和スペクトル信号の補正結果とを互いに比較する、

＜15＞に記載の解析装置。

請求の範囲

- [請求項1] 電解液に関する分子動力学計算を行うことにより、前記電解液の構成成分を構成する一連の原子の経時的な挙動を計算し、
前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分の第1誘電緩和スペクトル信号を計算し、
前記第1誘電緩和スペクトル信号に基づいて、前記電解液の第2誘電緩和スペクトル信号を計算し、
前記第1誘電緩和スペクトル信号および前記第2誘電緩和スペクトル信号に基づいて、前記構成成分に固有の物性値を計算する、
解析方法。
- [請求項2] 前記電解液は、溶媒および電解質塩を含み、
前記構成成分は、中性分子およびイオン対のうちの少なくとも1種類を含む、
請求項1に記載の解析方法。
- [請求項3] 前記物性値は、特徴時間、緩和強度、静的誘電率、濃度および塩解離度のうちの少なくとも1種類を含む、
請求項1または請求項2に記載の解析方法。
- [請求項4] 前記第1誘電緩和スペクトル信号を計算するために、
前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分のトータル電気双極子モーメントを計算し、
前記トータル電気双極子モーメントに基づいて、前記構成成分の時間相関関数を計算し、
前記時間相関関数を指数関数に近似し、
前記時間相関関数の近似結果をフーリエ変換することにより、前記構成成分の前記第1誘電緩和スペクトル信号を計算する、
請求項1ないし請求項3のいずれか1項に記載の解析方法。
- [請求項5] 前記第1誘電緩和スペクトル信号を計算するために、
前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分の個別電

気双極子モーメントを計算し、

前記個別電気双極子モーメントに基づいて、前記構成成分の回転相関関数を計算し、

前記回転相関関数を指数関数に近似することにより、前記構成成分の回転相関時間を計算し、

前記回転相関時間に基づいて、前記構成成分の前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算する、

請求項 1 ないし請求項 3 のいずれか 1 項に記載の解析方法。

[請求項6]

前記構成成分は、中性分子およびイオン対のうちの 2 種類以上を含み、

2 種類以上の前記構成成分のそれぞれの前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算し、

2 種類以上の前記構成成分に関する前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を加算することにより、前記第 2 誘電緩和スペクトル信号を計算する、

請求項 1 ないし請求項 5 のいずれか 1 項に記載の解析方法。

[請求項7]

さらに、

誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて前記電解液を分析することにより、前記電解液の第 3 誘電緩和スペクトル信号を測定し、

前記第 2 誘電緩和スペクトル信号と前記第 3 誘電緩和スペクトル信号とを互いに比較することにより、前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を用いて前記第 3 誘電緩和スペクトル信号を帰属する、

請求項 1 ないし請求項 6 のいずれか 1 項に記載の解析方法。

[請求項8]

前記第 3 誘電緩和スペクトル信号を測定したのち、前記電解液のイオン伝導性に起因する信号成分を前記第 3 誘電緩和スペクトル信号から除去することにより、前記第 3 誘電緩和スペクトル信号を補正し、

前記第 2 誘電緩和スペクトル信号と前記第 3 誘電緩和スペクトル信号の補正結果とを互いに比較する、

請求項 7 に記載の解析方法。

[請求項9]

電解液に関する物性値を計算する計算部を備え、

前記計算部は、

前記電解液に関する分子動力学計算を行うことにより、前記電解液の構成成分を構成する一連の原子の経時的な挙動を計算し、

前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分の第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算し、

前記第 1 誘電緩和スペクトル信号に基づいて、前記電解液の第 2 誘電緩和スペクトル信号を計算し、

前記第 1 誘電緩和スペクトル信号および前記第 2 誘電緩和スペクトル信号に基づいて、前記構成成分に固有の前記物性値を計算する、
解析装置。

[請求項10]

前記電解液は、溶媒および電解質塩を含み、

前記構成成分は、中性分子およびイオン対のうちの少なくとも 1 種類を含む、

請求項 9 に記載の解析装置。

[請求項11]

前記物性値は、特徴時間、緩和強度、静的誘電率、濃度および塩解離度のうちの少なくとも 1 種類を含む、

請求項 9 または請求項 10 に記載の解析装置。

[請求項12]

前記計算部は、前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算するために、

前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分のトータル電気双極子モーメントを計算し、

前記トータル電気双極子モーメントに基づいて、前記構成成分の時間相関関数を計算し、

前記時間相関関数を指数関数に近似し、

前記時間相関関数の近似結果をフーリエ変換することにより、前記構成成分の前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算する、

請求項 9 ないし請求項 1 1 のいずれか 1 項に記載の解析装置。

[請求項13] 前記計算部は、前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算するために、
前記一連の原子の経時的な挙動に基づいて、前記構成成分の個別電気双極子モーメントを計算し、
前記個別電気双極子モーメントに基づいて、前記構成成分の回転相関関数を計算し、
前記回転相関関数を指数関数に近似することにより、前記構成成分の回転相関時間を計算し、
前記回転相関時間に基づいて、前記構成成分の前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算する、
請求項 9 ないし請求項 1 1 のいずれか 1 項に記載の解析装置。

[請求項14] 前記構成成分は、中性分子およびイオン対のうちの 2 種類以上を含み、
前記計算部は、
2 種類以上の前記構成成分のそれぞれの前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を計算し、
2 種類以上の前記構成成分に関する前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を加算することにより、前記第 2 誘電緩和スペクトル信号を計算する、
請求項 9 ないし請求項 1 3 のいずれか 1 項に記載の解析装置。

[請求項15] さらに、
誘電緩和スペクトロスコピー法を用いて前記電解液を分析することにより、前記電解液の第 3 誘電緩和スペクトル信号を測定する実測部と、
前記第 2 誘電緩和スペクトル信号と前記第 3 誘電緩和スペクトル信号とを互いに比較することにより、前記第 1 誘電緩和スペクトル信号を用いて前記第 3 誘電緩和スペクトル信号を帰属する比較部と

を備えた、請求項 9 ないし請求項 1 4 のいずれか 1 項に記載の解析装置。

[請求項16]

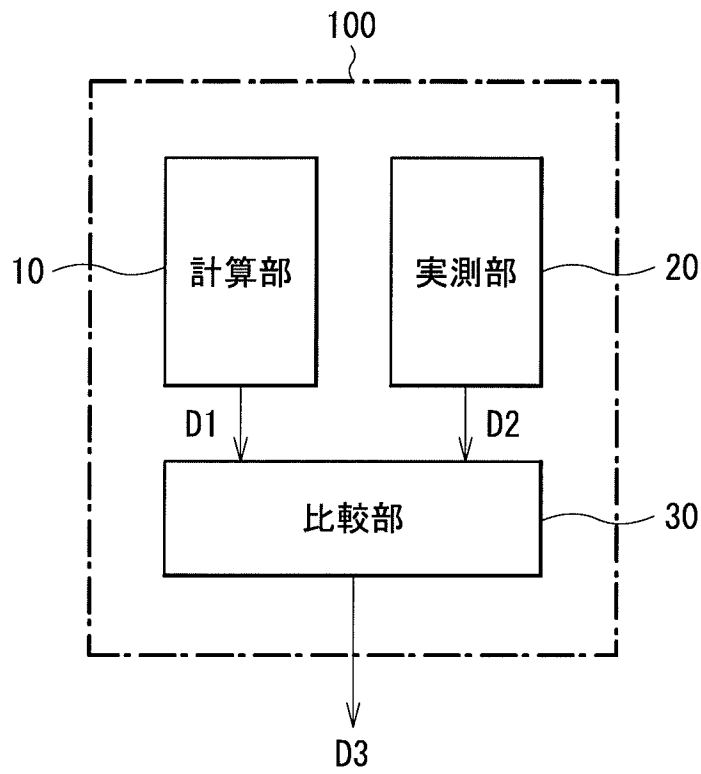
前記実測部は、前記第 3 誘電緩和スペクトル信号を測定したのち、前記電解液のイオン伝導性に起因する信号成分を前記第 3 誘電緩和スペクトル信号から除去することにより、前記第 3 誘電緩和スペクトル信号を補正し、

前記比較部は、前記第 2 誘電緩和スペクトル信号と前記第 3 誘電緩和スペクトル信号の補正結果とを互いに比較する、

請求項 1 5 に記載の解析装置。

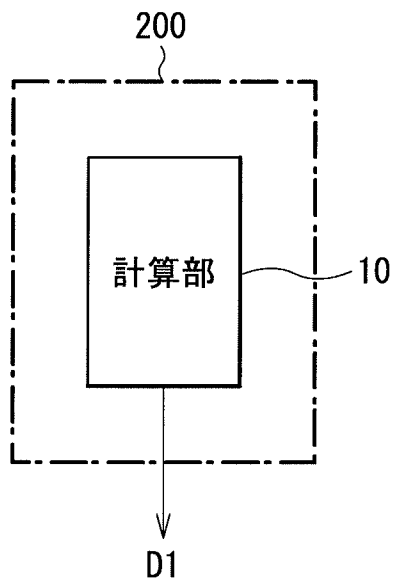
[図1]

図1



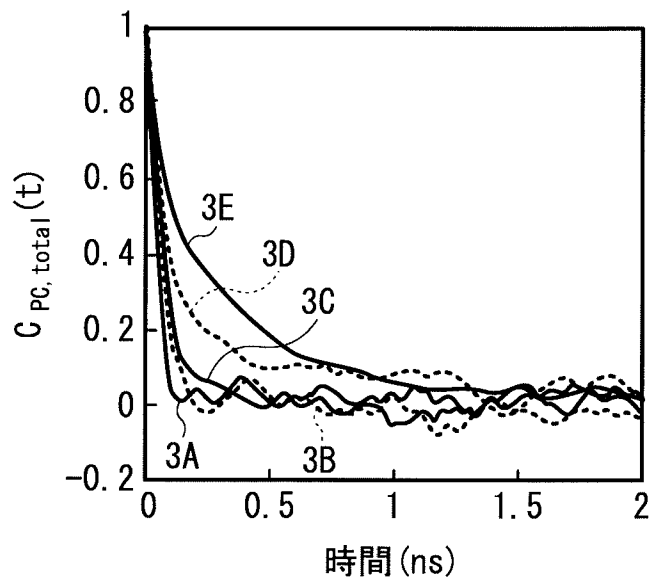
[図2]

図2



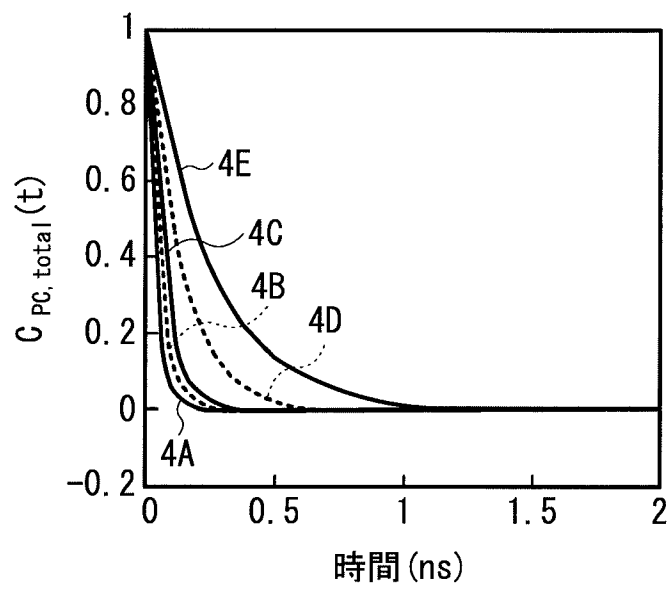
[図3]

図3



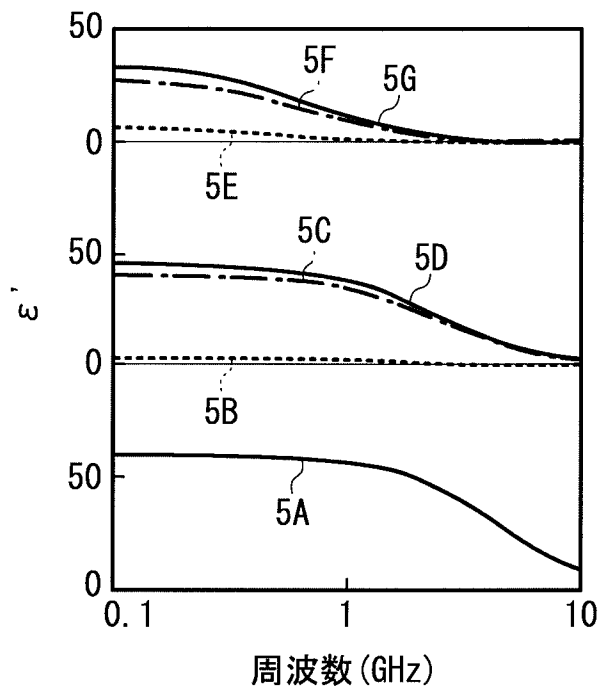
[図4]

図4



[図5]

図5



[図6]

図6

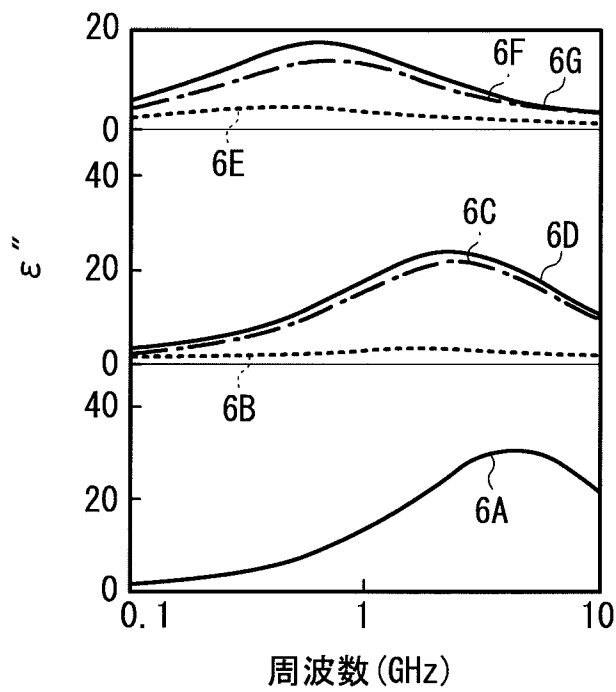
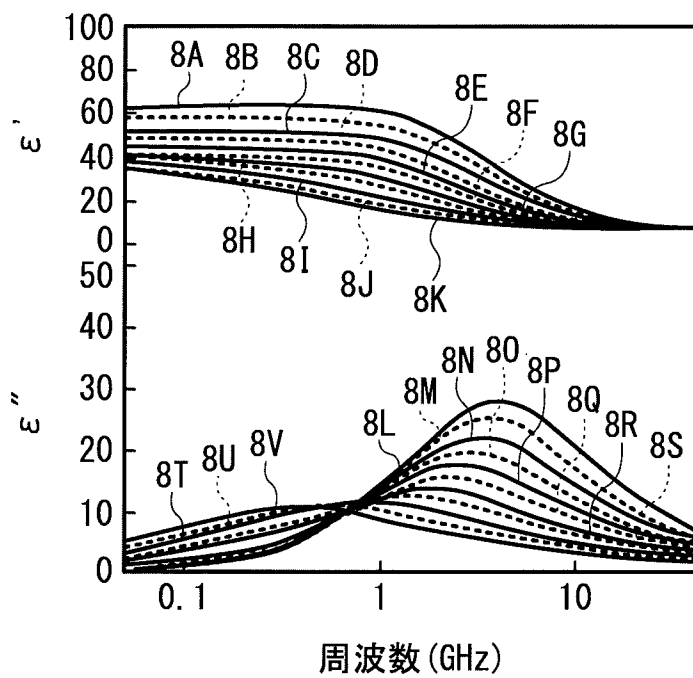
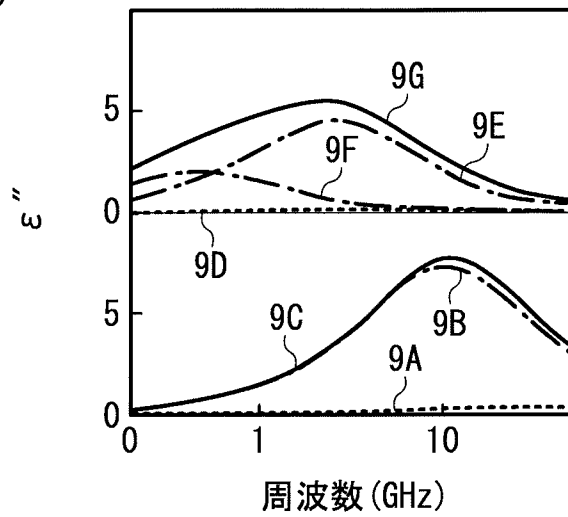


图7



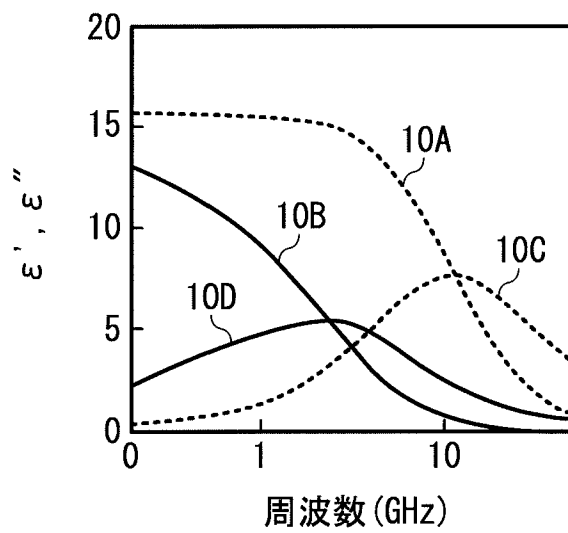
[図9]

図9



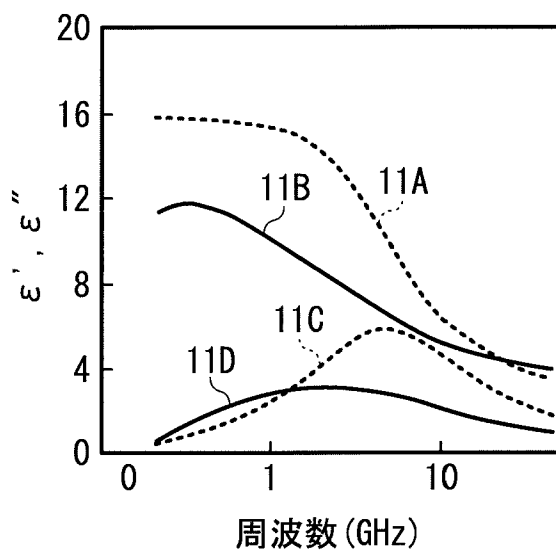
[図10]

図10



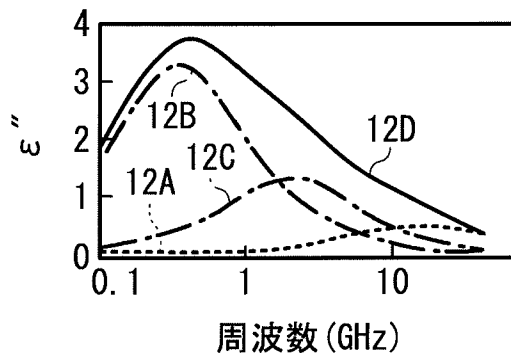
[図11]

図11



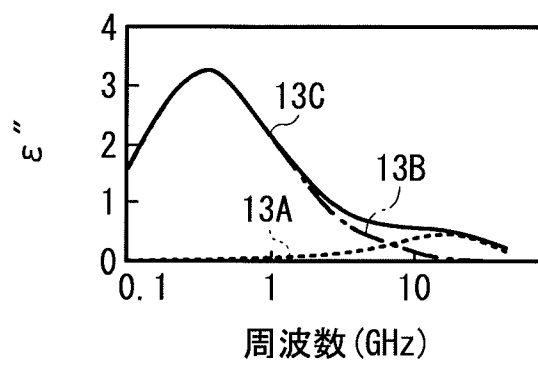
[図12]

図12



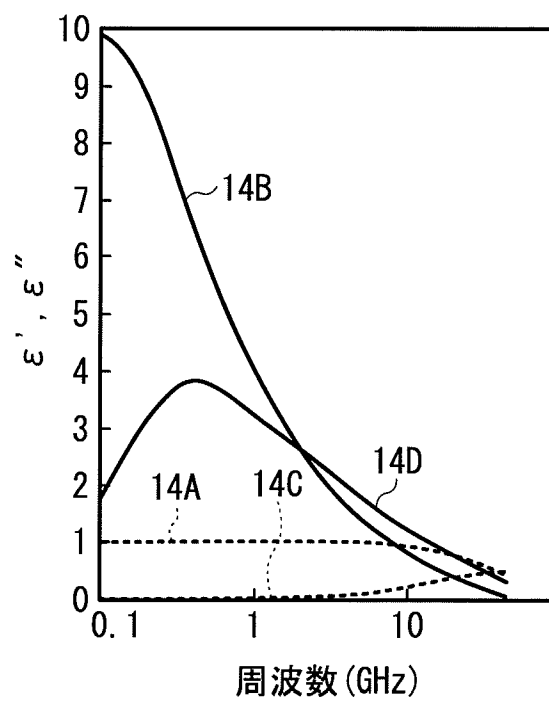
[図13]

図13



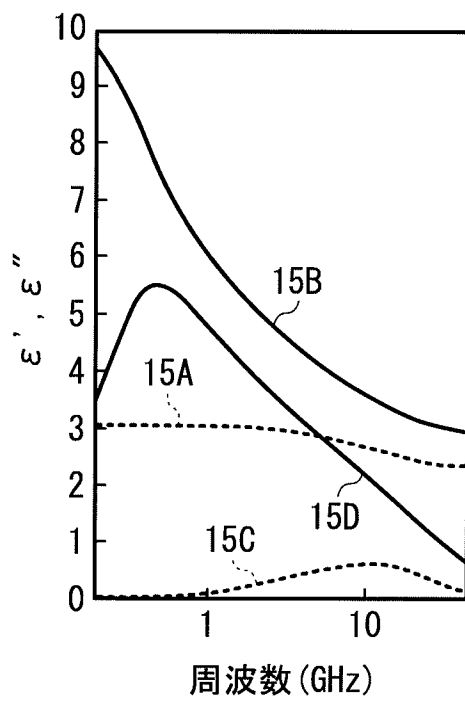
[図14]

図14



[図15]

図15



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/033319

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**G01N 22/00**(2006.01)i

FI: G01N22/00 Y; G01N22/00 V; G01N22/00 U

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

G01N22/00-G01N22/04,G06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023

Registered utility model specifications of Japan 1996-2023

Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2019-190896 A (NIPPON TELEGRAPH AND TELEPHONE CORP.) 31 October 2019 (2019-10-31)	1-16
A	JP 2006-317311 A (HITACHI, LTD.) 24 November 2006 (2006-11-24)	1-16
A	梅林泰宏, 外, 誘電緩和と分光による超濃厚電解質溶液に関する研究, 電気化学学会大会講演要旨集, vol. 89, 15 March 2022, P.ROMBUNNO.3J14 non-official translation (UMEBAYASHI, Yasuhiro et al. Research on ultra-concentrated electrolytic solutions using dielectric relaxation spectroscopy. Proceedings of the Meeting of the ECSJ.) entire text	1-16

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

03 October 2023

Date of mailing of the international search report

24 October 2023

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)**3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915****Japan**

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2023/033319

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
JP	2019-190896	A	31 October 2019	US	2021/0161419	A1	
				WO	2019/203153	A1	
JP	2006-317311	A	24 November 2006	(Family: none)			

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） G01N 22/00(2006.01)i FI: G01N22/00 Y; G01N22/00 V; G01N22/00 U										
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） G01N22/00-G01N22/04, G06										
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2023年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2023年	日本国実用新案登録公報	1996-2023年	日本国登録実用新案公報	1994-2023年
日本国実用新案公報	1922-1996年									
日本国公開実用新案公報	1971-2023年									
日本国実用新案登録公報	1996-2023年									
日本国登録実用新案公報	1994-2023年									
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語） JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)										
C. 関連すると認められる文献										
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号								
A	JP 2019-190896 A（日本電信電話株式会社）31.10.2019（2019-10-31）	1-16								
A	JP 2006-317311 A（株式会社日立製作所）24.11.2006（2006-11-24）	1-16								
A	梅林泰宏，外，誘電緩和分光による超濃厚電解質溶液に関する研究，電気化学会大会講演要旨集，Vol.89th，2022.03.15，P.ROMBUNNO.3J14 全文	1-16								
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。										
<table border="0"> <tr> <td> * 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 </td> <td> “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献 </td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献						
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献	“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献									
国際調査を完了した日 03.10.2023	国際調査報告の発送日 24.10.2023									
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 比嘉 翔一 2W 4005 電話番号 03-3581-1101 内線 3258									

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2023/033319

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2019-190896	A	31.10.2019	US	2021/0161419	A1	
				WO	2019/203153	A1	
JP	2006-317311	A	24.11.2006	(ファミリーなし)			