

革新的 GX 技術創出事業 (GteX) チーム型研究
「蓄電池」領域
年次報告書

令和5年度
研究開発年次報告書

令和5年度採択研究開発代表者(チームリーダー)

[研究開発代表者(チームリーダー)名:入山恭寿]

[国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学 大学院工学研究科・教授]

[研究開発課題名:高安全・長寿命な酸化物型固体電池の開発]

実施期間 : 令和5年10月1日～令和6年3月31日

§ 1. 研究開発実施体制

(1)「固体電池基礎」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー : 雨澤 浩史 (東北大学多元物質科学研究所、教授)

主たる共同研究者 : 土井 貴之 (同志社大学理工学部、教授)

主たる共同研究者 : 大西 剛 (物質・材料研究機構

エネルギー・環境材料研究センター電池界面制御グループ、グループリーダー)

主たる共同研究者 : 入山 恭寿 (名古屋大学工学研究科、教授)

主たる共同研究者 : 田中 優実 (東京理科大学工学部、准教授)

主たる共同研究者 : 土屋 敬志 (物質・材料研究機構

ナノアーキテクトニクス材料研究センター、主幹研究員)

主たる共同研究者 : 山本 和生 (ファインセラミックスセンターナノ構造研究所、

主席研究員)

主たる共同研究者 : 桑田 直明 (物質・材料研究機構

エネルギー・環境材料研究センター固体電池イオニクスグループ、グループリーダー)

主たる共同研究者 : 塚田 祐貴 (名古屋大学工学研究科、准教授)

主たる共同研究者 : 佐藤 一永 (東北大学工学研究科、准教授)

② 研究項目

- ・全固体電池の基礎反応・劣化機構解明手法の開発
- ・電池構成材料の基礎物性取得
- ・高容量負極(Li・Si等)の反応安定化
- ・厚膜正極利用の基礎技術開発

(2)「複合電解質」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー : 入山 恭寿 (名古屋大学工学研究科、教授)

主たる共同研究者 : 大野 真之 (東北大学多元物質研究所、准教授)

主たる共同研究者 : 手嶋 勝弥 (信州大学先鋭領域融合研究群、所長・教授)

主たる共同研究者 : Jalem Randy (物質・材料研究機構

エネルギー・環境材料研究センター界面電気化学グループ、主任研究員)

主たる共同研究者 : 吉井 一記 (産業技術総合研究所電池技術研究部門

次世代蓄電池研究グループ、主任研究員)

主たる共同研究者 : 福塚 友和 (名古屋大学工学研究科、教授)

主たる共同研究者 : 森 大輔 (三重大学工学研究科、准教授)

② 研究項目

- ・高イオン伝導複合電解質の開発
- ・超高イオン伝導電解質の開発($\sim 10^{-1} \text{ S cm}^{-1}$)とそのイオンダイナミクス解析

(3)「デバイス化」グループ

①グループ参画者:

- グループリーダー : 奥村 豊旗(産業技術総合研究所電池技術研究部門
蓄電デバイス研究グループ、研究グループ長)
- 主たる共同研究者 : 渡邊 賢(九州大学大学院総合理工学研究院、准教授)
- 主たる共同研究者 : 柿部 剛史(兵庫県立大学大学院工学研究科、准教授)
- 主たる共同研究者 : 木村 禎一(ファインセラミックスセンター材料技術研究所、
主席研究員)
- 主たる共同研究者 : 片岡 邦光(産業技術総合研究所省エネルギー研究部門
エネルギー応用材料グループ、研究グループ長)
- 主たる共同研究者 : 稲熊 宜之(学習院大学理学部、教授)
- 主たる共同研究者 : 小林 剛(電力中央研究所
エネルギートランスフォーメーション研究本部、上席研究員)

②研究項目

- ・中型焼結型電池の開発
- ・非焼結型電池の開発
- ・高エネルギー密度電池の開発

§ 2. 研究開発成果の概要

固体電池基礎 Gr では、CT-XAFS、STEM-EELS、SIMS を用いて、固体電池のオペランド・マルチスケール観察に成功し、電池の特性低下要因を解明した。また、ダイヤモンドトランジスタを用いた手法、熱刺激脱分極電流法により、電気二重層容量の評価を行った。さらに、音響波による機械的損傷の検知、不均質材料のマクロ・マイクロ機械物性評価、電荷保存/イオン輸送/電極反応を考慮した反応シミュレーションなどの手法開発に着手した。一方、固体電池の高性能化では、多孔性 Si 負極や合金膜の作製を検討し、特に前者では優れた充放電性能を実証した。また、成膜条件の最適化により正極の高速成膜を可能とすると共に、その有効性を確認した。

複合電解質 Gr では、無機複合化・有機複合化の研究を進めた。無機複合化では室温で $1.1 \times 10^{-5} \text{ S cm}^{-1}$ のイオン伝導率をもつ新規複合アニオン材料を開発した。有機複合化では、ポリマー電解質と固体電解質の界面抵抗に向けたモデル界面構築を進めた。材料探索の基盤として、結晶材料-伝導度相関マップ、新規固体電解質の計算材料設計と材料スクリーニングに関する計算ワークフローとプログラミングスクリプトを開発した。固体内超高速イオン伝導の基礎原理解明に向けた精密イオン伝導評価システムの開発にも着手した。

デバイス化 Gr では、1C・50 サイクル (100°C) において初期 70% の容量維持率を示す小型焼結電池を作製した。更なる性能向上においては、正極層の内部組織や層厚みの制御・低温焼結固体電解質のイオン伝導率改善・負極層側の性能改善などが重点テーマであると考え、それぞれの要素技術開発を開始した。また長期的視点において焼結電池サイズの拡大が社会実装において重要と考えており、低温焼結固体電解質の生産プロセス開発やグリーンシート工法の開発、大型化焼結技術の開発といった先行的な取り組みも開始した。

【代表的な原著論文情報】

- 1) “Blocking ion diffusion and minimizing electron charging in solid electrolytes under electron-beam irradiation for transmission electron microscopy analysis”
Kazuo Yamamoto, Ryotaro Aso, Taisuke Nakamura, Yasuyuki Fujiwara, Yasutoshi Iriyama, Takeshi Kobayashi, Yuki Nomura, Takeharu Kato,
J. Solid State Electrochem., accepted (2024)
DOI: <https://doi.org/10.1007/s10008-024-05869-8>
- 2) “Protracted Relaxation Dynamics of Lithium Heterogeneity in Solid-State Battery Electrodes”
Su Huang, Yuta Kimura, Takashi Nakamura, Nozomu Ishiguro, Oki Sekizawa, Kiyofumi Nitta, Tomoya Uruga, Tomonari Takeuchi, Toyoki Okumura, Mizuki Tada, Yoshiharu Uchimoto, Koji Amezawa,
J. Phys. Chem. C, 128, 6213-6221 (2024)
DOI: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.4c00318>
- 3) “Li Concentration Change around Cu/LiPON Interface Measured by TOF-ERDA”
Kyosh Kurihara, Shuri Nakamizo, Satoshi Yamamoto, Keisuke Yasuda, Takuya Majima, Takeshi Yajima, Yasutoshi Iriyama
J. Solid State Electrochem., accepted (2024).
DOI: <https://doi.org/10.1007/s10008-024-05865-y>