

研究成果展開事業 研究成果最適展開支援プログラム
ハイリスク挑戦タイプ 事後評価報告書

研究開発課題名	: 新規電極材料を適用した全固体電池実用化に向けた開発研究
プロジェクトリーダー	: 太陽誘電株式会社
所属機関	: 太陽誘電株式会社
研究責任者	: 森本英行(群馬大学)

1. 研究開発の目的

リン酸塩系固体電解質とオリビン型正極材料からなる一括焼成して得られる全固体電池の開発を行っている。本委託研究開発の前段階として、一括焼成しても相互拡散反応を抑制して良好な界面を形成させる技術は構築しており、高温で充放電可能な電池が得られていた。この全固体電池のさらなる実用性向上を目的として、低電位で動作する負極材の合成検討と全固体電池への適用による動作電圧向上、サイクル劣化メカニズム解明とサイクル特性改善、積層化による容量向上検討、アプリケーション探索など、現状課題に対して解決する取り組みを実施した。

2. 研究開発の概要

①成果

開発中の全固体電池の実用性向上のために、研究期間初期においては、動作電圧向上を目的とした取り組みを行った。低電位で動作する負極の適用検討を行った。主に大学側主導で、2V以下で動作する酸化物系負極材の合成検討を実施し、Li-Ti-O系化合物、LiTiOPO₄など安定動作する負極材料の作製条件を確立した。企業側ではLiTiOPO₄を中心に適用検討を実施。研究期間後期では実動作電圧よりもサイクル安定性向上が重要課題であることが判明したため、サイクル特性改善を目的とした取り組みにシフト。サイクル劣化メカニズムを明らかにし、組成条件検討により、安定サイクルを実現した。さらにより実用的な動作を目指し、積層化による容量向上の検討を実施し、100層までの多積層化を達成した。同時にコストダウンの検討も進め、Pdを安価材料に置き換える検討にも着手した。

研究開発目標	達成度
①-1 固体電解質の合成検討(大学側)	①-1 MM法を用いた原料混合・非晶質化とLAGP結晶化を検討。LAGP組成、成型体作製方法などの条件検討を実施し、室温導電率のレベル引き上げに成功。簡便な手法を企業側が応用展開し、開発が進捗。(100%)
①-2 固体電解質焼結体の作製検討(企業側)	①-2 焼成条件や雰囲気、固体電解質組成条件の違いで焼結挙動に与える影響を精査した。従来850-900℃で焼成していたが800℃以下で焼結可能になった。Co添加で焼結促進されることが確認できた(100%)
②異種元素を添加した固体電解質の合成検討(大学側)	② MM法を用いたLAGP結晶化ペレット作製検討において異種元素添加が簡単に行えることを見出し、結晶化温度の低温化、室温導電率向上に成功。固体電解質への特性付与の知見を企業側へ提供。(100%)
③-1 負極材合成・評価および全固体電	③-1 Li-Ti-O系化合物およびより全固体電池に適合しやす

池への適用検討(大学・企業)	い LiTiOPO ₄ リン酸塩を簡便な手法で合成できるようになった。良好に動作する結晶系を明らかにし、知財創出から新たなシーズとして本開発研究へ結びつけた。負極材 LiTiOPO ₄ (LTOP)と固体電解質 LAGP を共焼成した際の消失反応抑制を検討。LTOP を残存させて焼成する条件の傾向を把握した。固体電解質層を Co-LAGP とし、負極層を Co-LATP とすることで長期サイクル安定性に優れた負極が形成可能であることを見出した。(100%)
③-2 固体電解質の電位窓評価(大学・企業)	③-2 電位窓評価技術を模索。大学側から企業側へ測定方法提案。企業側は固体電解質に DC 印加した際の電流挙動から、安定な固体電解質を把握。正極側固体電解質からの Li 脱離という劣化メカニズムが判明。(100%)
③-3 サイクル劣化しない電位窓の広い固体電解質組成設計と全固体電池への適用検討(企業側)	③-3 サイクル劣化要因が正極側固体電解質からの Li 脱離であるという証拠をつかみ、Li 脱離しにくい固体電解質を開発し、全固体電池に適用。長期サイクル安定性に優れた全固体電池が得られた。(100%)
④全固体電池の実用性向上検討(企業側)	④実用性向上の取り組みを実施。積層電池の最小ユニット、単セルを作製し、電池評価。続いて最大 100 層積層(99 セル並列接続)の積層電池を作製。単セルから積層数に応じた容量向上することを確認した。(100%)
⑤市場ニーズ調査とベンチマーク・優位性具体化(企業側)	⑤顧客ニーズを調査。液系 LIB で使用しにくい用途で優位性確認。全固体電池や液系 LIB を含めた超小型品(1cm ³ 程度までのサイズ)での容量密度を比較。現状レベルで同程度。(70%)

②今後の展開

開発方針として小型・薄型化を目標とし、主な用途はウェアラブル機器や IoT 関連小型機器向けの電池、とりわけ既存電解液系 LIB では使用困難な用途を目指す。具体的な課題としてコストダウン、容量向上、量産試作検討等に着手し、早期実用化を目指す。本委託研究期間では公的資金援助を受けて開発を大きく進捗させ、開発段階～事業化のリスクを大幅に低減できた。本開発は軌道に乗ったものと考え、今後は自社負担により A-STEP で目標とした製品化に向けた研究開発を継続する予定。

3. 総合所見

目標を達成し、次の研究開発フェーズに進むための成果が得られた。イノベーション創出が期待できる。

安定動作組成を見いだす等、学のシーズ技術と企業の得意な製造技術や知見をうまく連携させることで実用化に向けて大きく前進したことは高く評価できる。