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6年度 研究開発年次報告書

令和6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:林 晃敏]

[公立大学法人大阪 大阪公立大学大学院工学研究科·教授]

[研究開発課題名:高エネルギー密度・高安全な硫化物型全固体電池の開発]

実施期間 : 令和6年4月1日~令和7年3月31日

§1. 研究開発実施体制

チームリーダー 林 晃敏 (大阪公立大学)

固体電解質グループ/グループリーダー 鈴木 耕太 (東京工業大学)

正極グループ/グループリーダー 平山 雅章 (東京工業大学)

負極グループ/グループリーダー 林 晃敏 (大阪公立大学)

電池総合プロセスグループ/グループリーダー 北浦 弘和(産業技術総合研究所)

計測・計算グループ/グループリーダー森 茂生(大阪公立大学)

(1)「固体電解質」グループ

(1) グループ参画者:

グループリーダー:鈴木 耕太 (東京工業大学科学技術創成研究院、准教授) 主たる共同研究者:林 晃敏 (大阪公立大学大学院工学研究科、教授) 主たる共同研究者:引間 和浩 (豊橋術科学大学大学院工学研究科、助教) 主たる共同研究者:三浦 章 (北海道大学大学院工学研究院、教授)

- ② 研究項目
 - ・新規固体電解質の開発
 - ・電解質データベース・機械学習モデル構築

(2)「正極」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー:平山 雅章 (東京工業大学物質理工学院、教授)

主たる共同研究者:引間 和浩 (豊橋術科学大学大学院工学研究科、助教)

主たる共同研究者:町田 信也 (甲南大学理工学部、教授)

主たる共同研究者:森本 英行 (群馬大学大学院理工学府、教授)

主たる共同研究者:本間 剛 (長岡技術科学大学大学院工学研究科、教授)

主たる共同研究者:有吉 欽吾 (大阪公立大学大学院工学研究科、准教授)

- ② 研究項目
 - •硫黄系正極開発
 - ·Li 過剰系酸化物正極開発

(3)「負極」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー: 林 晃敏 (大阪公立大学大学院工学研究科、教授)

主たる共同研究者:町田 信也 (甲南大学理工学部、教授)

主たる共同研究者:本山 宗主 (九州大学エネルギー研究教育機構、准教授)

主たる共同研究者: 道見 康弘 (鳥取大学大学院工学研究科、准教授)

主たる共同研究者: 永田 裕 (産業技術総合研究所省エネルギー研究部門、主任研究 員)

- ② 研究項目
 - ·Li 系負極開発
 - ·Si 系負極開発

(4)「電池総合プロセス」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー: 北浦 弘和 (産業技術総合研究所省エネルギー技術研究部門、上級主任研究員)

主たる共同研究者: 乙山 美紗恵 (産業技術総合研究所電池技術研究部門、主任研究員)

主たる共同研究者:山本 真理 (大阪産業技術研究所森/宮センター、研究室長) 主たる共同研究者:林 晃敏 (大阪公立大学大学院工学研究科、教授)

- ② 研究項目
 - ・セル設計
 - ・シート型電池試作
 - •固体電解質薄膜化
 - ・ベンチマーキング

(5)「計測・計算」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー:森 茂生 (大阪公立大学大学院工学研究科、教授) 主たる共同研究者:尾原 幸治 (島根大学材料エネルギー学部、教授) 主たる共同研究者:仲村 英也 (大阪公立大学大学院工学研究科、准教授) 主たる共同研究者:清水 康司 (産業技術総合研究所機能材料コンピュテーショナルデザイン研究センター、研究員)

- ② 研究項目
 - ・全固体電池用高度解析手法の開発

§2. 研究開発成果の概要

硫化物型全固体電池チームでは、全固体 Li-S 電池および革新型全固体 LIB 用の主要材料の開発を進めた。

固体電解質開発では、新たに 6 組成のアルジロダイト型の硫化物系超イオン伝導材料 (>1 x 10^{-2} S cm⁻¹)を見いだした。また、硫化物ガラスへの金属フッ化物添加が Li 金属に対する耐性を高めること見いだし、塩化物系固体電解質が表面未修飾の酸化物正極(\sim 4.1 V vs. Li)との組み合わせで、可逆的な電池動作が可能であることを実証した。正極材料開発では、Li₂S および Li 過剰系酸化物正極複合体が液系と比較して優れた界面安定性を有することを実証した。Li過剰系正極では 60 °C で 250 mAh g^{-1} の充放電を達成し、標準試料を選定した。負極材料開発では、Li 金属負極と硫化物電解質の界面安定化技術の開発に向けて、界面への複数の金属薄膜の挿入が短絡抑制に効果的であることを見出した。また、低拘束圧下においても高容量保持が可能な Si 複合体層を開発した。硫黄系正極材料や固体電解質の結晶化ガラス構造について、TEM 観察、放射光 X 線回折、分子動力学計算、粉体シミュレーションを用いた解析・評価法を確立し、本材料系の良好な充放電サイクル特性の構造的特徴について明らかにした。

デバイス化要素技術開発では、Li-Mg/S-CNovel 錠剤型フルセル (180 Wh kg⁻¹ 級)の試作を行い、 60° C、1C で 200 サイクル 90%容量維持することを確認した。また、250 Wh kg⁻¹ 級および 300 Wh kg⁻¹ 級セルの作動を確認した。さらに、各種電極を用いた $20\times20~\text{mm}^2$ サイズのシート型電池の検討を進めた。

【代表的な原著論文情報】

- Influence of mechanochemical reactions between Si and solid electrolytes in the negative electrode on the performance of all-solid-state lithium-ion batteries Hiroshi Nagata, and Kunimitsu Kataoka *Journal of Power Sources*, 2024, 623, 235443. https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2024.235443
- 2. Structural reversibility and charge-discharge cycle of Li₂S-V₂S₃-LiI positive electrodes for all-solid-state lithium batteries

 Masato Osaki, Hirofumi Tsukasaki, Hiroshi Nakajima, Tatsuki Shigedomi, Atsushi Sakuda, Akitoshi Hayashi, and Shigeo Mori

 Solid State Ionics, 2024, 416, 116683. https://doi.org/10.1016/j.ssi.2024.116683
- 3. Chemical composition-driven machine learning models for predicting ionic conductivity in lithium-containing oxides
 Yudai Iwamizu, Kota Suzuki, Michiyo Kamiya, Naoki Matsui, Kuniharu Nomoto, Satoshi Hori, Masaaki Hirayama, and Ryoji Kanno

 Electrochemistry, in press. https://doi.org/10.5796/electrochemistry.25-71007