

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 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 : 市坪 哲]

[東北大学金属材料研究所・教授]

[研究開発課題名 : 資源制約フリーを目指したマグネシウム蓄電池の研究開発]

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

本チームは 7 つのグループ(Gr)から構成されており(図 1), 各 Gr はそれぞれ, 1. セル評価 Gr, 2. 正極活物質 Gr, 3. 正極界面コーティング Gr, 4. 負極活物質 Gr, 5. 電解液 Gr, 6. 計算科学 Gr, 7. 解析分析 Gr となっている. Gr 番号順に記載する.

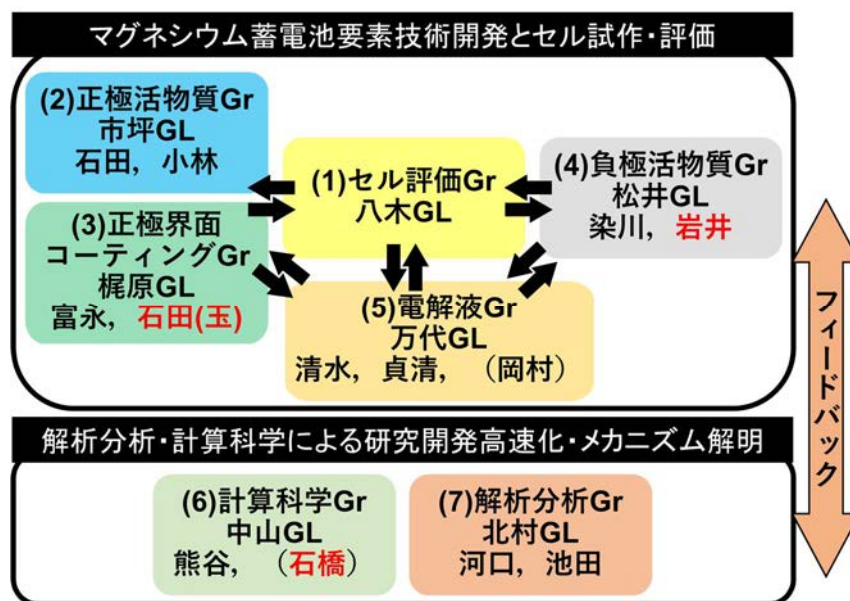


図 1 各 Gr の構成と GL および Gr メンバー. 赤文字は女性研究員.

(1)「セル評価」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー: 八木 俊介 (東京大学生産技術研究所, 教授)

② 研究項目

- ・Mg 電池用に最適化されたラミネート型セル構築プロセスの確立
- ・ラミネート型セルの構造最適化
- ・活物質と電解液のコンパティビリティ評価と改良
- ・集電体等の耐食性の評価と改良

(2)「正極活物質」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー: 市坪 哲 (東北大学金属材料研究所, 教授)

主たる共同研究者: 小林 弘明 (北海道大学大学院理学研究院, 准教授)

主たる共同研究者: 石田 直哉 (産業技術総合研究所, 主任研究員)

② 研究項目

- ・新規正極活物質の探索・室温・中温度稼働化に向けた設計
- ・正極活物質の特性評価

- ・正極活物質の合成プロセス開発
- ・正極活物質の表面保護効果検討

(3)「正極界面コーティング」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー:梶原 浩一 (東京都立大学大学院都市環境科学研究科, 教授)

主たる共同研究者:富永 洋一(東京農工大学 大学院工学研究院, 教授)

主たる共同研究者:石田 玉青(東京都立大学大学院都市環境科学研究科, 准教授)

② 研究項目

- ・自己組織化反応を利用した正極界面コーティングの開発
- ・ポリマー正極界面コーティングの開発
- ・正極界面コーティング処理した正極のセル評価と改良

(4)「負極活物質」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー:松井 雅樹(北海道大学大学院理学研究院, 教授)

主たる共同研究者:岩井 愛(北海道大学大学院工学研究院, 助教)

主たる共同研究者:染川 英俊(物質・材料研究機構構造材料研究拠点, グループリーダー)

② 研究項目

- ・Mg 金属負極の組織制御技術開発
- ・Mg 金属表面の不動態化を抑制する材料設計
- ・多孔体内での結晶成長制御技術の開発

(5)「電解液」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー:万代 俊彦(物質・材料研究機構 エネルギー・環境材料研究センター, 主任研究員)

主たる共同研究者:貞清 正彰(東京理科大学理学部第一部応用化学科, 准教授)

主たる共同研究者:清水 雅裕(信州大学工学部物質化学科, 准教授)

② 研究項目

- ・中温領域をカバーする電解液の開発
- ・脱エーテル溶媒を志向した界面設計
- ・機能協奏に基づく電解質設計

(6)「計算科学」グループ

① グループ参画者:

グループリーダー:中山 将伸(名古屋工業大学大学院工学研究科, 教授)

主たる共同研究者:熊谷 悠(東北大学金属材料研究所, 教授)

② 研究項目

- ・【短期課題①】主要な正極・負極材料の材料シミュレーションによる性能限界の理論計算評価を、研究開始後 2 年を目途に実施する。
- ・【中期課題①】解析実験データの解釈を促進するための技術開発と適用。研究開始後 2 年で開発フェーズ、その後利活用フェーズとする。
- ・【中期課題②】材料インフォマティクスなどを用いて新規電極材・コーティング材の提案を行う。研究開始後 2 年で手法開発を完了し、その後利活用フェーズに移行する。
- ・【長期課題①】ニューラルネットワーク力場などを用いて Mg イオン電池固液界面反応のシミュレーションを行う。研究開始後 5 年で手法開発を完了し、その後利活用フェーズに移行する。

(7)「解析分析」グループ

① グループ参画者：

グループリーダー：北村 尚斗（東京理科大学創域理工学部先端化学科，准教授）

主たる共同研究者：池田 篤史（日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター，研究主幹）

主たる共同研究者：河口 智也（東北大学金属材料研究所，助教）

② 研究項目

- ・各構成部材（正極・電解液・負極）の静的構造評価
 - ・非晶質・極小ナノ材料の構造評価法の確立
 - ・因子分析による化学種の精密同定法の確立
- ・反応機構・界面構造の評価
- ・ハーフセル・フルセルの劣化解析

§2. 研究開発成果の概要

マグネシウム蓄電池は、これまでに実用化・上市されたことはなく、今後の市場開拓に向けて非常に期待されている蓄電デバイスの一つである。本研究プロジェクトでは、将来オール電化に向けて必須となる蓄電システムの安全化・量産化に向けて、希少資源にとらわれない蓄電池として、本蓄電池のプロトタイプの開発を行うものである。マグネシウム蓄電池の開発には、各コンポーネントの開発は必須であることは言うまでもないが、主に正極と電解液の相性および負極と電解液の相性の二つの相性をマッチングさせること、すなわちコンパティビリティの向上がデバイス作製という意味で非常に重要になる。

これまでの研究から高い見込みのある酸化物活物質を中心に、セル Gr をはじめ他 Gr と連携して正極特性の最適化を進め、活物質表面コーティングを検討した結果、充放電時の副反応を抑制できることが判明し、Mg 金属負極と相性の良い（不働態化を引き起こさない）HFIP 系電解液を用いても Mg 脱挿入による充放電が可能になる結果を得るに至った。これは、コンパティビリティを上げることにより、マグネシウム蓄電池のプロトタイプ化が可能であ

ることを示したものであり、今後の開発目標に向けて重要である。

この結果を受け、各 Gr は、正極活物質として用いられる結晶・非晶質材料の原子配列・粒子形態の最適化、新規物質探索等を行い、正極コーティング技術の開発、Mg 負極電析溶解過程の精査、親和性の高い基板を利用した Mg 電析形態組織制御の検討、電解液中温化(Mg 移動をよりスムーズにさせるための策)および正極に適した TFSA 系電解液の使用に向けた Mg 負極/電解液界面での人工 SEI の作製、HFIP 系電解液を利用するための正極側 SEI コーティング技術の開発などに取り組んでいる。特に解析 Gr および計算 Gr は、他の実験 Gr の開発指針を与えるのに大きく貢献しており、構造設計指針や拡散挙動向上に向けた元素選択指針等を与えている。

【代表的な原著論文情報】

- [1] K. Makino et al., M. Nakayama, “Computational studies on Mg ion conductivity in $\text{Mg}_{2x}\text{Hf}_{1-x}\text{Nb}(\text{PO}_4)_3$ using neural network potential”, J. Solid State Electrochem., accepted on March, 2024.
- [2] Utilization of Delithiation-Induced Amorphous Oxide as a Cathode for Rechargeable Magnesium Batteries, Tomoya Kawaguchi, Natsumi Nemoto, Hikari Sakurai, Norihiko L. Okamoto, and Tetsu Ichitsubo, Chem. Mater. 2024, 36, 9, 4877-4887 (<https://doi.org/10.1021/acs.chemmater.4c01056>).
- [3] O. Falyouna, M. F. Idham, O. Eljamal, T. Mandai, “Compatibility of Molybdenum Disulfide and Magnesium Fluorinated Alkoxyaluminate Electrolytes in Rechargeable Mg Batteries”, *Batteries & Supercaps*, 2024, 7, e202400231. (Front cover)