

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 : 石川 正司]

[学校法人 関西大学 化学生命工学部・教授]

[研究開発課題名 : 低環境負荷・高特性リチウム硫黄電池の開発]

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

(1) 硫黄正極材料グループ

① グループ参画者:

グループリーダー : 石川 正司 (関西大学 化学生命工学部・教授)
主たる共同研究者 : 向井 紳 (北海道大学大学院 工学研究院・教授)
: 内田 悟史 (産業技術総合研究所 電池技術研究部門・主任研究員)
: 小島 敏勝 (産業技術総合研究所 電池技術研究部門・主任研究員)

② 研究項目

【短期課題②】 正極サイクル安定性の向上
【中期課題②】 正極容量の向上とサイクル特性の維持
【長期課題②】 高容量とサイクル特性の維持と出力特性向上技術の開発

(2) 硫黄対応ソフト電解質グループ

① グループ参画者:

グループリーダー : 獨古 薫 (横浜国立大学 大学院工学研究院・教授)
主たる共同研究者 : 奥野 陽太 (関西大学 化学生命工学部・助教)
: 梅林 泰宏 (新潟大学 自然科学系・教授)
: 藤本 和士 (関西大学 化学生命工学部・准教授)

② 研究項目

【短期課題③】 リチウム硫黄電池の安定作動に向けた電解液の最適化
【中期課題③】 リチウム硫黄電池用新規ソフト電解質の開発
【長期課題③】 高エネルギー密度・長寿命・高出力の両立に向けたソフト電解質の開発

(3) リチウムマネジメントグループ

① グループ参画者:

グループリーダー : 片山 靖 (慶應義塾大学理工学部・教授)
主たる共同研究者 : 篠原 武尚 (日本原子力研究開発機構 J-PARC センター・研究主幹)
: 西 直哉 (京都大学 大学院工学研究科・准教授)
: 門間 聰之 (早稲田大学 理工学術院・教授)
: 石川 正司 (関西大学 化学生命工学部・教授)

② 研究項目

【短期課題④】 SEI 形成過程のその場解析
【短期課題⑤】 中性子イメージングの高分解能化
【中期課題④】 SEI 形成過程の電解液組成依存性の検討
【中期課題⑤】 リチウム析出形態の電流密度、圧力依存性の検討
【長期課題④】 リチウム負極のサイクル特性の向上

(4) 新規材料プロセスグループ

① グループ参画者:

グループリーダー : 栄部 比夏里 (九州大学 先導物質化学研究所 教授)
主たる共同研究者 : 井上 元 (九州大学大学院工学研究院 化学工学部門・教授)
: 中西 康次 (兵庫県立大学 高度産業科学技術研究所・准教授)
: 獨古 薫 (横浜国立大学 大学院工学研究院・教授)

② 研究項目

【短期課題⑥】 正極サイクル安定性の向上(硫黄安定化)
【中期課題⑦】 正極サイクル安定性の向上(反応分布抑制)

(5) 実証フルセル技術グループ

① グループ参画者:

グループリーダー : 門間 聰之 (早稲田大学 理工学術院・教授)
主たる共同研究者 : 井上 元 (九州大学大学院工学研究院 化学工学部門・教授)
: 石川 正司 (関西大学 化学生命工学部・教授)
: 獨古 薫 (横浜国立大学 大学院工学研究院・教授)

② 研究項目

【短期課題⑦】 電池プロセス開発
【短期課題⑧】 全電池作動プロトコル検証
【中期課題⑧】 電池プロセス開発
【中期課題⑨】 全電池作動プロトコル検証
【長期課題⑦】 全電池プロセス・プロトコル開発

§2. 研究開発成果の概要

低環境負荷かつ高エネルギー密度・長寿命・高出力を両立するリチウム硫黄電池の実現を目標に、正極材料、電解質、負極制御、セルプロトコルの四位一体で開発を推進した。本年度は、窒素含有前駆体であるジアミノマレオニトリル(DAMN)から硫黄を担持する多孔性の炭素材料を調製したところ、69.3 wt.%という多量の硫黄が担持できるマイクロメソ多孔性の活性炭を得ることができた。この正極は充放電 100 サイクルで 773 mAh/(g-硫黄)の容量を維持した。また、表面に酸化処理を施したマイクロメソ多孔性の活性炭(MSC-30SS)、金属リチウム負極の充放電寿命を向上させる電解液への添加剤(4CM5M)、正極用の高分子量ポリアクリル酸バインダー、さらに3成分溶媒からなる電解液(FEC:DME:D2)という多様な開発技術の組合せにより、充放電 200 サイクルで 842.4 mAh/g、212.6 Wh/kgを実現した。このフルセル実証に加え、将来技術に向けた要素技術も検討した。すなわち、硫黄正極へのゲル化電解質の導入で電解液漏出を抑制し、充放電サイクル安定性の向上が可能となる技術を開発した。また、イオン液体電解液を構成する有機カチオンの置換基を変更すると、金属リチウム負極の SEI 物性を制御できることを見出した。負極に適用できる技術として、レドックスプローブ法により SEI 形成過程や金属リチウム析出挙動を解明し、拘束圧下

での析出形態制御に成功した。さらに、実証グループによる材料設計と製造プロセスの PDCA サイクルを確立し、フルセルにおけるエネルギー密度の評価ツールを開発した。

【代表的な原著論文情報】

原著論文 1) Luna Yoshida, Takashi Hakari, Yukiko Matsui, Minako Deguchi, Hirofumi Yamamoto, Masahiro Inoue, Masashi Ishikawa: Understanding the Improved Performances of Lithium–sulfur Batteries Containing Oxidized Microporous Carbon with an Affinity-controlled Interphase as a Sulfur Host, *Journal of Power Sources*, 624, 235572 (2024.12.30).
<https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2024.235572>

原著論文 2) Sho Okazaki, Nobuyuki Serizawa, Yasushi Katayama: Formation and Breakdown of the Solid-electrolyte Interphase in a Bis(fluorosulfonyl)amide-based Ionic Liquid in the Presence of Lithium Ion, *Electrochemistry*, 92(4), 043006 (2024.04.01).
<https://doi.org/10.5796/electrochemistry.23-69152>

原著論文 3) Yukako Konishi, Hisashi Kokubo, Seiji Tsuzuki, Ryoichi Tatara and Kaoru Dokko: A Partially Fluorinated Polymer Network Enhances the Li-ion Transference Number of Sulfolane-based Highly Concentrated Electrolytes, *Chem. Commun.*, 60, pp.12896-12899 (2024.10.08).
<https://doi.org/10.1039/D4CC04291C>