

未来社会創造事業（探索加速型）

「共通基盤」領域

終了報告書（探索研究）

令和3年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名:雨澤 浩史]

[東北大学 多元物質科学研究所・教授]

[研究開発課題名:3D マルチスケール/モーダルオペランド
化学分析プラットフォームの確立]

実施期間 : 令和3年10月1日～令和6年3月31日

§1. 研究実施体制

(1)「高空間/時間分解 X 線 CT-XAFS 計測技術の開発」グループ(高輝度光科学研究センター)

①研究開発代表者:関澤 央輝 (高輝度光科学研究センター放射光利用研究基盤センター 分光推進室、主幹研究員)

②研究項目

- ・高空間/時間分解 CT および CT-XAFS 計測技術の開発
- ・蓄電池材料評価のための高速オペラント CT-XAFS 計測システムの構築

(2)「高空間/時間分解オペラント X 線 CT-XAFS 計測」グループ(東北大学)

①主たる共同研究者:雨澤 浩史 (東北大学多元物質科学研究所、教授)

②研究項目

- ・蓄電池作動条件下での計測が可能な結像型・投影型 X 線 CT-XAFS 計測セルの開発
- ・蓄電池合剤正極の結像型・投影型オペラント CT-XAFS 計測の実施
- ・蓄電池合剤正極の活物質粒子性状と電気化学特性の相関の検討

(3)「高空間/時間分解オペラント X 線 CT 計測」グループ(京都大学)

①主たる共同研究者:内本 喜晴 (京都大学大学院人間・環境学研究科、教授)

②研究項目

- ・蓄電池作動条件下での計測が可能な結像型・投影型 X 線 CT 計測セルの開発
- ・蓄電池合剤電極のマルチモーダル計測に向けた実験条件, 計測モードの最適化
- ・蓄電池合剤負極のモルフォロジーと電気化学特性の相関の検討

(4)「実構造に基づく輸送－反応連成数値解析」グループ(京都大学)

①主たる共同研究者:岩井 裕 (京都大学大学院工学研究科、教授)

②研究項目

- ・電極の均質化モデルを採用した一次元輸送－反応連成数値解析
- ・電極の実構造に基づく三次元輸送－反応連成数値解析

§2. 研究開発成果の概要

本研究開発では、高空間/高時間分解、マルチスケール/モーダル、三次元で、デバイスや材料内部の微細構造および化学状態分布をオペランド分析できる、X線 CT/CT-XAFS 計測を基盤とした化学分析プラットフォームを確立することを目的とした。この目的に対し、X線 CT/CT-XAFS 計測技術の高空間/高時間分解能化を行うとともに、オペランド計測用セル・システムを構築し、全固体あるいは液系リチウムイオン二次電池をモデルケースに、反応・劣化の解析に適用した。また、計測結果を考慮・再現する蓄電池の輸送-反応連成数値解析手法の開発を行った。

計測技術の開発では、光学系・検出器の高度化、画像解析手法の改良、ノイズ低減処理などにより、時間分解能の向上については探索期間の目標値を大きくクリアした。これにより、これまで困難であった蓄電池のオペランド CT-XAFS 計測を可能とした。空間分解能については、投影型 CT/CT-XAFS では目標達成、結像型 CT/CT-XAFS でもほぼ目標に近い値を達成した。また、開発された X線 CT/CT-XAFS 計測技術を適用し、蓄電池のオペランド計測を実施した。合剤正極・負極における微細構造や反応分布を電池作動下で、三次元かつ高空間/時間分解で可視化することに成功し、これらにより、蓄電池の容量低下やサイクル劣化を引き起こす要因を明らかにした。これらは、探索研究で開発された「高空間/高時間分解、マルチスケール/モーダル、三次元でのオペランド分析が可能な X線 CT/CT-XAFS 計測」によってのみ可能であり、開発された計測技術の有用性、優位性を実証した。さらに、連成数値解析では、実電極微構造をそのまま計算系とする三次元理モデルを構築し、電池の充放電という非定常の現象についても現実的な時間での評価が行えるようになった。

【代表的な原著論文情報】

1. Y. Kimura, S. Huang, T. Nakamura, N. Ishiguro, O. Sekizawa, K. Nitta, T. Uruga, T. Takeuchi, T. Okumura, M. Tada, Y. Uchimoto, K. Amezawa, “Five-Dimensional Analysis of Capacity Degradation in Battery Electrodes Enabled by Operando CT-XANES”, *Small Methods*, 2300310 (2023) 【2023年7月19日プレス発表】.
2. K. Nitta, H. Suga, O. Sekizawa, “Present status of micro-spectroscopy at BL37XU”, *Rad. Phys. Chem.*, **211**, 111028 (2023).
3. S. Huang, Y. Kimura, T. Nakamura, N. Ishiguro, O. Sekizawa, K. Nitta, T. Uruga, T. Takeuchi, T. Okumura, M. Tada, Y. Uchimoto, K. Amezawa, “Protracted Relaxation Dynamics of Lithium Heterogeneity in Solid-State Battery Electrodes”, *J. Phys. Chem. C*, **128**, 6213, (2024).