

# 私立大学研究ブランディング事業 成果報告書

学校法人番号	131067	学校法人名	日本工業大学		
大学名	日本工業大学				
事業名	次世代動力源としての全固体電池技術の開発と応用				
申請タイプ	タイプB	支援期間	3年	収容定員	4000人
参画組織	工学部(2018年度改組後は、基幹工学部、先進工学部)				
事業概要	<p>エネルギー戦略は世界的課題であり、なかでも蓄電池技術は重要テーマのひとつである。現在、液系リチウム電池が主流であるが安全性と寿命に関する課題も含んでいる。本研究は、次世代の蓄電池候補としての全固体電池技術の技術開発を行う。この研究では本学の強みである薄膜合成や金属加工などの基盤技術を活用し、それに新ビジョンとして先進科学を融合する。研究成果は国のエネルギー戦略に貢献し、かつ若者に夢を与え理工系人材を増やす。</p>				
事業目的	<p>将来の人類社会を支える重要な社会基盤の要素である次世代蓄電池を開発し、その応用技術を研究していく。</p> <p>すなわち、蓄電池技術は、今後の分散型社会の発展において、輸送機器、家庭や事業所、情報機器等の動力源として欠かせない基盤技術である。開発すべき技術の要点は、動力源の高出力化、長寿命化、低環境負荷化、安全性向上である。さらに、この技術は、社会基盤技術の整備のみならず、省エネルギーや地球環境維持にも派生する全世界的な重要技術でもある。しかしながら、現在の蓄電池は液系リチウム電池が主流であり、高出力化や安全性確保などの観点で課題が山積している。本研究では、次世代電池として、現在有力視されている全固体電池の開発をテーマとして据える。全固体電池は、前述の液系リチウム電池の問題点を根本的に解決できる素質を備えていると考えられている。本研究により技術的課題が解決され、その実用化が可能となれば、前述の社会基盤整備と地球環境保護に大きく寄与することになる。その技術的課題に対して、本学は、これまで材料技術、薄膜成膜技術および金属塑性加工技術などの全固体電池開発に関連する基盤技術を培ってきた。その基盤技術を活用し、さらに本学の将来ビジョンとして現在進めている、応用化学分野などにおける先進的な科学技術と融合させることにより、事業の目的を達成する。</p>				

# 私立大学研究ブランディング事業 成果報告書

学校法人番号	131067	学校法人名	日本工業大学
大学名	日本工業大学		
事業名	次世代動力源としての全固体電池技術の開発と応用		
事業成果	<p>本事業は学長のリーダーシップの下、小規模ながらもその規模に合ったスケールでの工学研究に邁進し、全固体電池という特定分野で世界をけん引する実力を備えた大学をめざして実施した。</p> <p>まず初めに大学公式ホームページ内に本事業に関するページを開設し、事業概要等を公開した。続いて、次世代蓄電池開発における電池材料薄膜の作製に必要な装置の導入を完了させ、導入した装置を利用して正負極ならびに固体電解質の薄膜作製に取り組み、全固体電池作製のための準備を進めた。さらには薄膜型全固体電池を作製してその電池評価を行った。</p> <p>上述の一連の取組は、定期的に自己点検評価及び外部評価を実施し、進捗状況等に関する評価を受けつつ行うとともに、成果については論文、学会発表セミナー等で広く社会に発信した。</p> <p>また、私立大学研究ブランディング事業の経費は次世代蓄電池の研究環境整備費用（電池材料の薄膜合成ならびに薄膜型全固体電池の作製に必要な消耗品購入費用含む）ならびに、研究の意義、研究計画、研究に必要な装置、事業成果等に関して情報発信を行うための広報普及費用として使用した。</p> <p>具体的な事業成果は以下のとおりである。</p> <p>(1) 薄膜型全固体電池作製・評価システムの構築</p> <p>電気自動車の車載用途や定置型蓄電池として、大型リチウム電池の利用が期待されている。しかしながら、現在実用化されているリチウム電池は、可燃性の有機電解液を使用しているため、発火の危険性を秘めており、安全性の点から大型化に問題がある。そこで注目を集めているのが全固体電池である。全固体電池は、電池を構成する正極、負極、電解質の3つすべての部材が不燃性固体で構成されているため、高い安全性を有する。</p> <p>電池は、正極、負極、電解質の3つで構成される。そして、全固体電池と既に実用化されている液体電池の大きな違いは、(1) 固体電解質を利用していること、(2) リチウムイオンが固体電解質と正極の固体と固体の界面を移動していること、の2点である。すなわち、全固体電池の実用化への課題は、(1) リチウムイオン伝導性の高い固体電解質の開発、(2) 固体電解質と正極における低抵抗界面の形成、の2点に集約される。本事業では、固体電解質として酸化物系に着目した。酸化物固体電解質は、その他の硫化物系や樹脂固体電解質と比較して、耐熱性や耐水性に優れており、電池形成プロセスに適用したときのハードルが低いとされている。</p> <p>全固体電池はバルク型と薄膜型に大きく分けることができる。全固体電池研究の多くは粒状の電池材料から構成されたバルク型電極を用いて展開されているが、薄膜型はすべての部材が固体で構成される全固体電池だからこそ作製できる電池である。本事業では、正極、固体電解質、負極の薄膜を積層した薄膜型モデル電池を作製し、界面抵抗に関する研究に取り組んだ。電池反応を微視的視点から明らかにして高性能全固体電池の実用化へ貢献することが本事業の大きな目標である。</p> <p>本事業では、まず、全真空プロセスによる薄膜型全固体電池作製・評価システムの構築を行った。本システムは、電動型の試料搬送室を中心に、パルスレーザー堆積法(PLD)、スパッタリング法、真空蒸着法による成膜室、マルチナノプローバーを備えた電気化学評価室およびグローブボックスが取り囲むクラスター型の構成となっている。本システムの特徴として以下の5点が挙げられる。</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ 電池材料の薄膜作製 PLDではNd:YAG固体レーザーを使用し、第4高調波(266 nm)と第5高調波(213 nm)の切り替え、さらにはスパッタリング、真空蒸着装置を装備することにより、ほぼすべての電池材料の薄膜作製を可能にする。</li> <li>・ 全真空プロセス グローブボックスを除くすべてのチャンパーが超高真空環境で接続されており、試料の作製から評価まで一度も大気に触れずに行うことが可能である。界面形成時に不純物の混入がないため、理想的な清浄界面を形成できる。</li> </ul>		

事業成果

・液系電池の作製と評価

グローブボックス内では、全固体電池の電気化学評価だけでなく、電解液を用いた液系電池を作製し評価・比較を行うことが可能である。

・クラスターシステム

クラスター型システムは、インライン型の生産・評価システムに比べて省スペースで稼働できる。また、合成・評価プロセスの可変性と自由度が高いシステムである。

・電動型試料搬送システム

全固体電池の作製から評価までを全自動で高速に行うことができる。また、高い再現性と信頼性を維持した実験が可能である。将来的には、パソコン制御による全自動化に留まらず、機械学習を利用した実験ロボットへの展開が可能である。

上記の薄膜型全固体電池作製・評価システムを用いて、以下の実験研究を行った。

(2) 電池材料の薄膜合成

全固体電池の特徴の一つとして、高電圧が挙げられる。そこで、5V級正極材料ニッケルマンガ酸リチウムの薄膜合成を行った。RFスパッタを用いて、111配向したエピタキシャル薄膜の合成に成功した。エピタキシャル薄膜は結晶性の薄膜であり、単結晶基板に材料を堆積させて作製する。その成長は基板の材料、格子定数、面方位等に強く依存し、基板の選択と薄膜作製時の実験条件の調整によって様々な結晶配向を持つエピタキシャル薄膜を作製することができる。その他、大気中で化学的に安定なナシコン型固体電解質の薄膜作製を行った。スパッタリング法を用いて薄膜を作製し、大気中での加熱処理によりナシコン型固体電解質のエピタキシャル薄膜を合成できることを明らかにした。また、アモルファス薄膜がバルクと同程度の高いイオン伝導度を示すことを確認した。

(3) 固体電解質/電極界面の構造解析

PLDを用いて正極活物質コバルト酸リチウムのエピタキシャル薄膜を作製し、さらには固体電解質リン酸リチウムならびに負極リチウムの薄膜を積層して薄膜型の全固体電池を作製し、その電気化学評価を行った。固体電解質の成膜では、PLDレーザーの成膜条件を調整し、薄膜型全固体電池で安定な充放電反応が観測されるとともに、交流インピーダンス測定により、極めて低い電解質・電極界面抵抗を得ることに成功した。

次に、X線結晶トランシェーションロッド散乱測定により、低抵抗界面と高抵抗界面の界面構造の違いを調べた。その結果、界面近傍の電子密度プロファイルと比較すると、低抵抗試料では、コバルト原子層の鋭いピークの両側に酸素原子層に相当するピークが観測されるのに対して、高抵抗試料における界面近傍のピークはブロードであり、低抵抗試料と高抵抗試料の界面で大きな違いがみられた。以上の結果は、低抵抗界面では、界面での原子配列がより規則的であることを示しており、電解質・電極界面形成時の原子配列の乱れをいかに抑制するかが重要であることが明らかとなった。

(4) 高電位正極材料用いた薄膜型全固体電池の作製と評価

PLDを用いて5V級正極活物質ニッケルマンガ酸リチウムのエピタキシャル薄膜を作製し、さらには固体電解質リン酸リチウムならびに負極リチウムの薄膜を積層して薄膜型の全固体電池を作製して、その電気化学評価を行った。その結果、サイクリックボルタメトリー、充放電測定により、Niの2価⇌3価、3価⇌4価の酸化還元反応ピークを観測し、100サイクルまで容量劣化することなく充放電反応が正しく行われることを確認した。薄膜電池の良好な電池動作を確認した後、交流インピーダンス測定を行い、リン酸リチウム/ニッケルマンガ酸リチウム界面抵抗の定量評価を行った。その結果、反応電位における電解質/電極界面抵抗はおよそ5 Ω cm<sup>2</sup>であり、これまでに報告されている液体電解液を用いたときの電解質/電極界面抵抗を下回ることが分かった。

つづいて、低抵抗界面を有する薄膜電池を用いて高速充放電試験を行った。1C、10C、100Cでの放電容量に大きな変化は見られず、また100Cで1Cのときの70%、3600Cで50%の放電容量を得ることができた。さらに3600Cで100サイクルの充放電を繰り返しても、充電および放電の容量変化はまったく観測されなかった。電極/電解質界面の界面抵抗を低減することにより、全固体電池の高速充放電が実現可能であることを実証することができた。

(5) 成果発表および情報発信

事業成果等に関する発表実績件数は、平成29年度が学会・セミナー等での発表7件、電池に関する出前授業1件、論文・著書出版7件、平成30年度が学会・セミナー等での発表12件、電池に関する出前授業1件、企業向け講演会4件、論文・著書出版8件、プレスリリース2件、新聞掲載5件、学術誌での本学ブランディング事業紹介1件、令和元年度が学会・セミナー等での発表9件、その他、電池に関する公開授業1件、論文・著書出版5件、学術誌や企業ホームページでの全固体電池研究紹介2件である。尚、事業期間中の学会・研究会招待講演は8件、企業向け招待講演会は7件であった。

<p style="text-align: center;"><b>事業成果</b></p>	<p>また、事業成果については学術論文や学会での発表、企業向けセミナーでの講演だけでなく、プレスリリースを行い、新聞紙に研究成果を紹介される等目に見える結果を得ることで、本学の認知度向上に貢献した。さらに直接プロモーションとして、一般人向けには東武線車両内での研究紹介ポスター掲示や全国放送でのラジオインタビュー、高校生向けには高校への出前授業や東京ビックサイトでの公開授業イベント、企業向けの研修セミナーなどにおいて全固体電池研究の魅力等を講演することにより、広く社会からの共感を得た。</p> <p>以上、これらの継続した一連の研究ブランディング活動は、本学への志願者の増加等、ステークホルダーからの評価にも着実に結びついており、ステークホルダーに対する本学のブランドイメージ形成にも大きく貢献した。</p> <p>(6) 私立大学研究ブランディング事業に関する経費</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・実験装置       <ul style="list-style-type: none"> <li>薄膜型全固体電池作製・評価装置、3元スパッタ装置</li> <li>リチウム蒸着装置、UHV用ナノプローバー</li> <li>自動コインセルかしめ機、不活性ガス循環精製装置</li> <li>ジルコニア式酸素濃度計、静電容量式露点計</li> <li>ドライポンプ、レーザーパワーメーター</li> </ul> </li> <li>・消耗品       <ul style="list-style-type: none"> <li>酸化物単結晶基板、コインセル部品、真空部品</li> <li>PLDターゲット、スパッタターゲット、溶接機</li> <li>ガス、その他</li> </ul> </li> <li>・旅費       <ul style="list-style-type: none"> <li>電池討論会、応用物理学会、日本表面真空学会ほか</li> </ul> </li> <li>・実験装置修理       <ul style="list-style-type: none"> <li>試料搬送機構修繕費</li> </ul> </li> <li>・広報普及費       <ul style="list-style-type: none"> <li>本事業に関するホームページ開設・更新ほか</li> </ul> </li> </ul>
<p style="text-align: center;"><b>今後の事業成果の活用・展開</b></p>	<p>本学が取り組む全固体電池は、長距離走行を可能にする電気自動車や災害などの緊急時に使用する大型バッテリー、宇宙ステーションなどの宇宙空間での利用のほか、折り曲げ可能な薄膜電池として使用することが期待されており、将来の新基盤技術をけん引する大学として、本事業が終了する次年度以降も、本研究を発展的に更に推進し、ホームページ等での発信と直接プロモーションを通じて、ステークホルダーとの双方向のコミュニケーションを取り共感を高めるとともに、電池関連企業と協力しながら全固体電池の実用化に向けた研究を加速させる予定である。</p> <p>本事業では、次世代蓄電池として期待される新しいタイプの全固体電池の実用化に向けて、従来の液系電池で行われてきた手法、内容とは大きく異なる研究アプローチで成果を挙げてきた。一方、この全固体電池を実用化するにあたっては、電池の筐体が必要不可欠である。現段階では、電池材料に関する研究が中心であり、その実用型筐体の形はまだ見えてこないもので、その直接的な研究までには至っていないが、本学は応用研究として、機械工学科を中心に筐体を製造する技術である、深絞りや打抜き加工、あるいはプラスチック射出成形、精密切削加工に関する先進的研究が精力的に進められ拠点の1つとなっている。以上の事業を推進させていくことにより、本学ならではのユニークなアイデアと実験技術により、全固体電池の実用化に貢献するとともに、新たな研究領域を切り拓いていく。</p> <p>また、これら全固体電池に関する基礎研究ならびに実用化に向けた応用研究により、今後の我が国の科学技術を支え、その発展に貢献する実践的技術創造人材の育成をする。</p> <p>これらの一連の活動を通して、「将来にわたって実直に基盤技術の開発を实践する姿勢を堅持しつつ、今後の人類社会の変化に応じて、技術で新しい価値を創造する大学」へと引き続き深化していくことをめざす。</p>