

領域略称名：蓄電固体界面科学
領域番号：6107

令和3年度科学研究費助成事業
「新学術領域研究（研究領域提案型）」
に係る中間評価報告書

「蓄電固体デバイスの創成に向けた界面イオンダイナミクスの
科学（蓄電固体界面科学）」

領域設定期間

令和元年度～令和5年度

令和3年6月

領域代表者 名古屋大学・工学研究科・教授・入山 恭寿

目 次

研究組織

1 総括班・総括班以外の計画研究	2
2 公募研究	3

研究領域全体に係る事項

3 研究領域の目的及び概要	5
4 審査結果の所見で指摘を受けた事項への対応状況	7
5 研究の進展状況及び主な成果	9
6 研究発表の状況	14
7 研究組織の連携体制	19
8 若手研究者の育成に関する取組状況	20
9 研究費の使用状況・計画	21
10 今後の研究領域の推進方策	22
11 総括班評価者による評価	24

研究組織

(令和3年6月末現在。ただし完了した研究課題は完了時現在、補助事業廃止の研究課題は廃止時現在。)

1 総括班・総括班以外の計画研究

研究項目[1]	課題番号 研究課題名	研究期間	研究代表者 氏名	所属研究機関・部局・職	人数 [2]
X00 総	19H05812 蓄電固体デバイスの創成に向けた 界面イオンダイナミクスの科学	令和元年度 ～ 令和5年度	入山 恭寿	名古屋大学・工学研究科・教授	12
A01 計	19H05813 蓄電固体材料のモデル界面形成と その界面イオンダイナミクスに関 する基礎研究	令和元年度 ～ 令和5年度	入山 恭寿	名古屋大学・工学研究科・教授	6
A02 計	19H05814 高度計測の統合利用による蓄電固 体界面の物理化学局所状態の解明	令和元年度 ～ 令和5年度	雨澤 浩史	東北大学・多元物質科学研究 所・教授	8
A03 計	19H05815 理論・計算・データ科学による蓄電 固体界面イオンダイナミクスの機 構解明	令和元年度 ～ 令和5年度	館山 佳尚	物質・材料研究機構・エネル ギー・環境材料研究拠点・副 拠点長	5
A04 計	19H05816 蓄電固体界面の機能開拓と界面新 材料開発	令和元年度 ～ 令和5年度	藪内 直明	横浜国立大学・大学院工学 研究院・教授	5
総括班・総括班以外の計画研究 計 5 件 (廃止を含む)					

[1] 総：総括班、計：総括班以外の計画研究、公：公募研究

[2] 研究代表者及び研究分担者の人数（辞退又は削除した者を除く。）

2 公募研究

研究項目[1]	課題番号 研究課題名	研究期間	研究代表者 氏名	所属研究機関・部局・職	人数 [2]
A01 公	20H05282 応力が蓄電固体デバイスの化学ポテンシャルに及ぼす影響の定量的評価	令和2年度 ～ 令和3年度	木村 勇太	東北大学・多元物質科学研究所・助教	1
A01 公	20H05286 薄膜合成法による蓄電固体界面モデルの構築	令和2年度 ～ 令和3年度	鈴木 耕太	東京工業大学・科学技術創成研究院・全固体電池研究センター・准教授	1
A01 公	20H05287 固体電解質／高品質単一方位グラフェンによるリチウム挿入脱離現象の解明	令和2年度 ～ 令和3年度	乗松 航	名古屋大学・工学研究科・准教授	1
A01 公	20H05288 Li／酸化物系無機固体電解質界面の親和性発現機構の解明	令和2年度 ～ 令和3年度	本山 宗主	名古屋大学・工学研究科・講師	1
A01 公	20H05299 Si 薄膜モデル電極を用いる固／固界面イオン移動に関する研究	令和2年度 ～ 令和3年度	土井 貴之	同志社大学・理工学部 機能分子・生命化学科・教授	1
A02 公	20H05292 その場観測固体高分解能NMRの開発	令和2年度 ～ 令和3年度	野田 泰斗	京都大学・理学研究科・助教	1
A02 公	20H05293 TOF-ERDA 法を用いた界面近傍のイオン濃度分布変動のその場観測	令和2年度 ～ 令和3年度	間嶋 拓也	京都大学・工学研究科・准教授	1
A02 公	20H05294 オペランドX線反射率法を用いた蓄電固体界面イオンダイナミクスの解明	令和2年度 ～ 令和3年度	山本 健太郎	京都大学・人間・環境学研究科・特定助教	1
A02 公	20H05295 環境制御した電子顕微鏡法による蓄電固体界面の局所構造解析	令和2年度 ～ 令和3年度	麻生 亮太郎	九州大学・大学院工学研究院・准教授	1
A02 公	20H05300 深さ分解X線光電子分光法による界面異相抵抗発現機構の解明	令和2年度 ～ 令和3年度	増田 卓也	物質・材料研究機構・先端材料解析研究拠点・副拠点長	1
A02 公	20H05302 高速表面X線回折による薄膜全固体電池正極活物質界面のオペランド観察	令和2年度 ～ 令和3年度	白澤 徹郎	産業技術総合研究所・研究戦略企画部・(計量標準総合センター)・主任研究員	1
A03 公	20H05284 統計物理・第一原理計算連携シミュレーションによる蓄電固体界面の熱力学解析	令和2年度 ～ 令和3年度	笠松 秀輔	山形大学・学術研究院・助教	1

A03 公	20H05285 機械学習ポテンシャルによる界面近傍でのイオンダイナミクス計算	令和2年度 ～ 令和3年度	清水 康司	東京大学・工学系研究科・助教	1
A03 公	20H05290 多元系蓄電材料の古典力場開発と焼結界面のイオン伝導解析	令和2年度 ～ 令和3年度	小林 亮	名古屋工業大学・工学研究科・助教	1
A03 公	20H05303 蓄電界面計測データ解析のためのデータ駆動イオン輸送モデリング手法の確立	令和2年度 ～ 令和3年度	安藤 康伸	産業技術総合研究所・機能材料コンピューショナルデザイン研究センター・主任研究員	1
A04 公	20H05281 イオンの自由度を制御する金属ナノ構造複合系の創出	令和2年度 ～ 令和3年度	福島 知宏	北海道大学・理学研究院・助教	1
A04 公	20H05296 界面電場イオン動的制御による可逆結晶構造相転移とイオン-電子関連機能の開拓	令和2年度 ～ 令和3年度	神吉 輝夫	大阪大学・産業科学研究所・産業科学ナノテクノロジーセンター・准教授	1
A04 公	20H05297 電気化学的に生成する電極と固体電解質の間の界面抵抗に関する研究	令和2年度 ～ 令和3年度	猪石 篤	九州大学・先導物質化学研究所・助教	1
A04 公	20H05298 ガラス状高分子イオン伝導体のダイナミクス解明と超イオン伝導化	令和2年度 ～ 令和3年度	畠山 歆	早稲田大学・先進理工学部応用化学科・講師	1
A04 公	20H05301 固体イオニクス現象を利用する物性制御デバイスの開発と動作機構の解明	令和2年度 ～ 令和3年度	土屋 敬志	物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主幹研究員	1
A04 公	20H05304 イオン界面を基盤とした新奇デバイスの創生	令和2年度 ～ 令和3年度	小野 新平	電力中央研究所・材料科学研究研究所・上席研究員	1
公募研究 計 21 件 (廃止を含む)					

[1] 総：総括班、計：総括班以外の計画研究、公：公募研究

[2] 研究代表者及び研究分担者の人数（辞退又は削除した者を除く。）

研究領域全体に係る事項

3 研究領域の目的及び概要

研究領域全体を通じ、本研究領域の研究目的及び全体構想について、応募時の領域計画書を基に、具体的かつ簡潔に2頁以内で記述すること。なお、記述に当たっては、どのような点が「革新的・創造的な学術研究の発展が期待される研究領域」であるか、研究の学術的背景や領域設定期間終了後に期待される成果等を明確にすること。

【研究目的】

固体と固体の界面における電子とイオンの学理を構築

固体と固体が接合すると、その界面近傍で固体本来（バルク）の性質とは異なる全く新しい機能が生じる。電子とホールが電荷キャリアとして存在する半導体では、p型とn型の半導体が接合すると、フェルミ準位 (E_F) が一定となるよう、界面で電荷が僅かに移動してバンド屈曲した空間電荷層が形成される。この界面でのキャリア変調は、スイッチングや非線形抵抗、光電変換、界面容量として電子デバイスに広く応用されている。

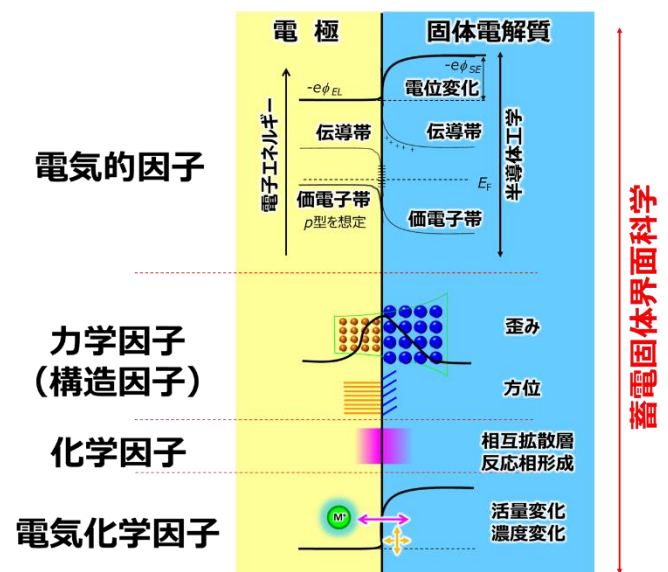
本研究領域で対象とする蓄電固体材料では、電子とホール以外にイオン M^+ ($M=Li, Na$ など) も電荷キャリアとして存在する。ここで蓄電固体材料とは、①電子・ホールが M^+ より高速に伝導し、バルク内の M^+ 濃度を電位で自在且つ顕著に制御できる材料（インサージョン電極材料：電極）② M^+ が電子・ホールより高速に伝導する材料（固体電解質：電解質）の二種類を指す。二種類の蓄電固体材料が接合する（＝蓄電固体界面）と、界面近傍では電子やホールに加えて M^+ の移動も起こることで平衡状態が形成され、全てのキャリアの電気化学ポテンシャル (η) が一定となる。この結果、蓄電固体界面では空間電荷層の形成に加えて、 M^+ の濃度・活量変化と、 M^+ の伝導を担う骨格

構造の力学緩和（歪み分布）がもたらされ、バルクと異なる特異なイオンダイナミクスが発現する。本領域では、蓄電固体材料のヘテロ・ホモ界面におけるこのような変調で発現する特異なイオンダイナミクスの機構を解明し、イオンを自在に“超高速輸送” “高濃度蓄積” する界面構築のための指導原理の確立と、既存の概念に捉われない新機能を発現させるための学理構築を目的とする。この目的達成に向けて、これまで本領域を中心的に牽引してきた電気化学、材料化学、固体イオニクスの学域に、最先端の薄膜工学、高度計測科学、計算・データ科学を融合して、蓄電固体材料の界面科学を格段に発展させる。広く化学・物理の領域にまたがる蓄電固体界面科学の構築は、本領域においてモデルケースで扱われるデバイスのみならず、全く新しい蓄電固体デバイスの創成へと飛躍的に展開し、革新的・創造的な学術研究の発展が期待される研究領域である。

【全体構想】

本領域の研究項目は、(1)蓄電固体界面のモデル構築 (A01)、(2)界面近傍の物性の高度計測 (A02)、(3)蓄電固体界面の計算・データ科学 (A03)、(4) 界面機能開拓 (A04)、の4項目であり、A01-A04の各計画研究で実施する。また、総括班は計画研究・公募研究の連携推進、HP等を活用した成果公開やシンポジウム等の企画、連携戦略の立案や領域内の問題解決などを領域評価委員・オブザーバーの先生方からの意見を参考に進める。これら研究項目の有機的連携により学理構築を目指す。

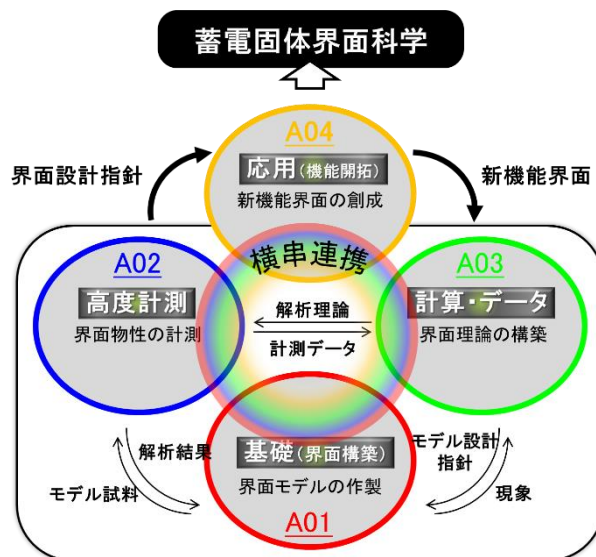
はじめの3年で平衡状態における蓄電固体界面の描像・機能発現の起源を明らかにし、それをもとに複合材料の機能先鋭化を進め、学理構築の土台を形成する。その後の2年で定常状態における蓄電固体界面の描像を明らかにするとともに、先鋭化・新規開拓された機能材料を活用して全固体電池・固体キャ



パシタなどの蓄電固体デバイスを作製し、構築した学理がデバイス創成に有用に働く事例を示す。その後は、非平衡状態の描像解明に向けた指針と課題を抽出してその連携を模索すると共に、それを好機として革新的蓄電固体デバイスの創成に向けた新たな学術研究に展開させる。(これら取り組みの線表は項目 10 を参照ください。)

蓄電固体界面の学理構築が難航しているのは、実験系で組みあわされる材料とその構築プロセスが多岐にわたり、情報が発散していることも要因の一つである。本領域は A01 あるいは A04 が提供する標準材料を多角的に計測し、この結果を理論と照らし合わせることで、**実験・計測・理論が整合する研究を進める戦略**である。本領域の計画研究では、室温近傍で作動し材料・計測の基礎構築が出来ている Li および Na に絞る。公募研究と国際共同研究、更には NEDO、JST と実用化に向けて強化した連携研究は、本領域の研究を発展・強化・補強・深化する役割であるとともに、構築されていく学理をテストする場ともなる。

界面近傍の物性変化の探求にはモデル界面が必要であり、A01 が担当する。このモデル界面の物性変化を調べるためには、高度計測の統合による界面物性(イオン物性、電子物性、構造物性、力学物性)の計測が必要であり、A02 が担当する。得られた計測結果をもとに界面イオンダイナミクスの機構を解明するためには理論構築が必要であり、A03 が担当する。蓄電固体界面が備える特性を知り、それを材料とするには複合材料を開発する必要がある、A04 が担当する。こうした連携で蓄電固体界面が機能発現する特性決定因子が抽出され、物性分布と特性決定因子との相関が明らかにされながら学理構築が進む。この際、指摘事項への対応として“学理構築のために因子を整理しながら進める”ために、鍵となる 8 つの界面基礎の横串連携を構築し、その有機的連携により蓄電固体界面科学の学理を深化していく。

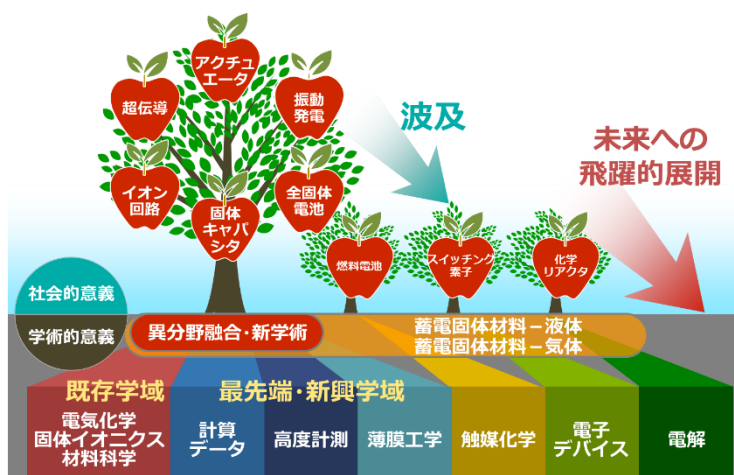


【どのような点が「革新的・創造的な学術研究の発展が期待される研究領域」であるか】

本領域の学術的背景の視点からみると、蓄電固体界面科学は、有限サイズを有するイオンの移動を伴う力学緩和・活量変化を考慮した固体界面の学術に位置づけられ、半導体工学との融合により、電子・ホール・イオン・歪み・活量の統合科学に立脚する創造的な固体界面工学への学術発展が期待できる。また、蓄電固体材料の界面でイオンを自在に超高速輸送・高濃度蓄積し得る界面構築の指導原理が確立すると、蓄電固体材料と液体・気体との界面科学に発展し、それを活用する斬新な蓄電固体デバイスの創成と新たな学域創成への波及効果も期待される。

次に、本領域終了後に期待される成果の観点からみると、本領域がモデルケースの一つで扱う全固体電池の研究領域は世界的にみても国内研究者の活躍がめざましく、我が国に国際的優位性がある。しかし、その研究競争は激化し、優位性が危ぶまれている。この状況を打破するためには、鍵となる蓄電固体材料の界面抵抗低減や高容量電極材料開発が喫緊の課題であるが、本領域で構築する学理により全固体電池の界面設計戦略が格段に明確化し、圧倒的速度で高性能化を実現する上で重要である。高性能全固体電池の開発は脱炭素社会の加速にも有用であり、その社会的意義は極めて大きい。

新学理 → 新デバイス創成の好循環へ



4 審査結果の所見で指摘を受けた事項への対応状況

研究領域全体を通じ、審査結果の所見において指摘を受けた事項があった場合には、当該指摘及びその対応状況等について、具体的かつ簡潔に2頁以内で記述すること。

以下に、**審査結果の所見**、**留意事項**、**参考意見**を記載し、指摘事項①～⑥に対する対応状況を示す。

(審査結果の所見)

本研究領域は、蓄電固体界面に関する学理を構築し、イオンを自在に高速輸送・高濃度蓄積しうる界面構築のための指導原理を確立しようとするものであり、蓄電固体デバイスの創成に向けた飛躍的な展開が期待される。イオニクスに関する過去の類似の研究プロジェクトからは10年経過し、電池に関連した材料を取り巻く状況も大きく変化している中、電池関係の他のファンディングとは異なる基礎的学理の構築を目指しており、社会的ニーズも高く妥当である。また、界面におけるイオンのダイナミクスの制御は、新しい学理の構築のみならず応用面での価値も高く、産業界や他のプロジェクトへの波及効果も含め、我が国の蓄電デバイスの研究開発に関するプレゼンスの向上を期待させる。

研究組織は、界面構築・基礎、計測、理論・計算・データ、応用・機能開拓の四つの研究項目の有機的な連携によって構成されており、領域代表者の運営ビジョンも妥当である。各計画研究も具体的であり、役割や内容も明確である。

一方で、① 理論・計算・データを中心とした研究に関して、イオンのダイナミクスを記述するためのモデルを明確にしながらかを進めることが望まれる。また、② どのような仮説に基づき、どのような学理を構築しようとしているのか、さらには③ 応用展開について、見通しを明らかにすべきである。

(留意事項)

④ 理論・計算・データを中心とした研究に関して、イオンのダイナミクスを記述するモデルや、何を計算しようとしているか、さらにはインフォマティクスの適用方法などを、より明確にしながらか研究を進めることが望まれる。

⑤ 学理の構築に当たり、諸説ある界面のイオンのダイナミクスを支配している因子の整理、仮説の設定を行う必要がある。

⑥ 応用展開（新材料・デバイス）の具体的な方向性を明確にする必要がある。

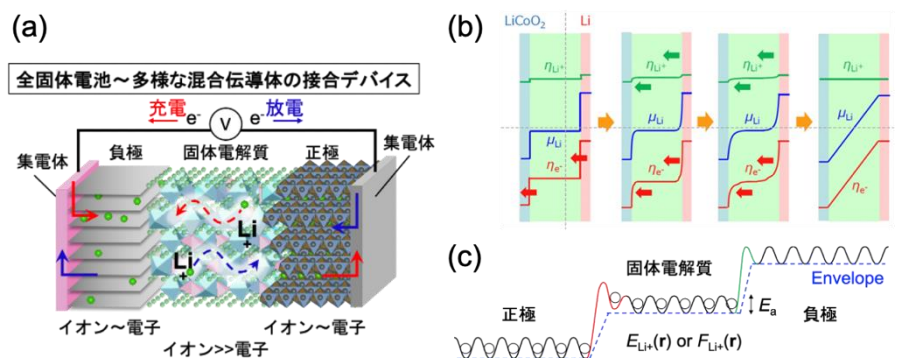
(参考意見)

・特になし

事項 ①、④に対する対応状況（古典理論と計算科学の統一、学理構築のためのライブラリ構築）

本領域の研究目標の一つは、蓄電固体界面におけるイオンダイナミクスに対し古典理論と計算科学の統一的な描像を与えることである。例えば全固体電池を混合伝導体の接合デバイスとして取り扱い（図(a)）、内部のイオンダイナミクスに対し古典的な電気化学理論による記述（図(b)）と近年飛躍的進歩を遂げた密度汎関数理論(DFT)によるイオンのポテンシャル面描像（図(c)）の融合を図る。この際、古典理論では固体電解質内のイオン輸送には Nernst-Planck 式、界面反応速度には Butler-Volmer 式が用いられるが、それを DFT 計算とメソスケール計算理論の立場から再解釈する。これらの描像を実験・計測と比較して再検証し、理論の拡張を進める。また、蓄電固体界面では多様な界面が構築され、それを整理して学理構築を進める必要がある。そのために、高度計測と連携しながら蓄電固体材料の化学ポテンシャルや電気的物性を数値化してライブラリを構築し、界面イオン輸送・蓄積とそれに関わる因子との相関を整理して学理構築につなげる。

インフォマティクス適用に関しては、従来型の計算データを基にした解析に加え、高度計測データに包含される大量の情報を効率的に抽出することを目的とした戦略を当初から実行している。（現在注目されているマテリアル DX の走りとなっている。）具体的には STEM-EELS データのスペクトル分解 AI 技術や X 線タイコグラフィ計測で得られる 2-3 次元の XAFS 情報の AI 分類などにより、



界面付近におけるイオン挙動・化学反応に関する知見を効率的に得ることを進めている。

このように所見を受けて、研究開始当初から具体的な対象を持って研究を進めている。更に、計算資源が必要な場合は、富岳電池課題と連携して「富岳」利用も出来る計算の連携強化を実施している。

事項②、⑤に対する対応状況（因子を整理して学理構築を進めるための横串連携の構築）

全固体電池を例にすると、電池の高性能化のために様々な蓄電固体材料が用いられ、電池内部に構築される界面も多様である。本指摘事項に対し、様々な界面での諸説の因子を整理して学理構築を進めるために、注力すべき界面基礎を8つ設定した。それぞれの界面基礎において実験・計測・計算の連携研究が進められるように計画・公募研究を配置し（メンバー配置は7の項目に詳述する）、仮説を設定しながら研究を進めている。

例えば5頁に示した電極—固体電解質界面の事例は標準電池界面で検討しているが、イオン輸送を妨げる要因の一つとして化学因子（副反応相形成）をとりあげ、実験・計測・計算の多角的検討から、界面を接合する過程の化学因子の問題は化学ポテンシャル差に起因する界面不定比性がトリガーになっているとの仮説を設定し、それを支持する結果が得られてきた（[A3P10] *ACS Appl. Mater. Interfaces* (2020), [A1P1] *Energy Technol.* (2021)）。化学ポテンシャルは電極電位でも変化するが、この際は固体電解質の電気的因子（バンドギャップ・フェルミ準位）と電子伝導率の影響をうけて界面近傍で緩和の異なる電荷蓄積を生じさせ、界面イオン輸送や新規蓄電固体デバイスの性能に関与するという知見が得られつつある。異なる緩和過程の知見は、電荷蓄積界面、ナノ材料界面、コート層界面での研究成果が活かされている。

このように、それぞれの界面基礎で仮説を設定し因子を整理しながら検討を進め、現象の深掘りにはそれぞれの界面基礎で得られた知見を融合する相乗効果を活用して学理構築を進めることで指摘事項に対応している。この横串連携による取り組みは、領域評価委員・オブザーバー先生方からも好評頂いている。

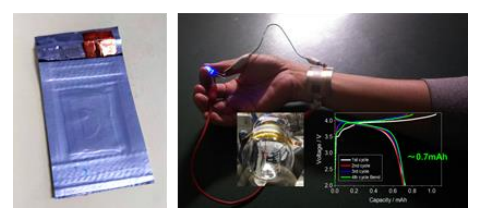


事項③、⑥に対する対応状況（全固体電池の実用化にむけた連携と新たな評価体制の構築）

応用展開の中心となるのは全固体電池である。全固体電池は用いる固体電解質の種類によって硫化物系、酸化物系に大別され、前者は電気自動車やドローンなどの中大型デバイス用電源、後者はスマートウォッチや IOT などの中小型デバイス用電源として期待されている。

硫化物系全固体電池を実用化する取り組みは NEDO の SOLiD-EV が先進的に行っている。また、民間では特にトヨタ自動車が力をいれて開発を進めている。一方、酸化物系全固体電池の実用化に向けた取り組みは JST の ALCA-SPRING が材料・プロセス開発を中心に進めている。そこで、SOLiD-EV 及び ALCA-SPRING と全固体電池の実用化連携を構築した。計画研究代表者はそれぞれのシンポジウムに参加して実用化に向けた課題を界面を基軸として把握し、領域構成員は実用化に関わる基礎事項の意見交換などで連携を個別に進め、最近はこうした連携による成果も得られつつある（論文執筆中（計 A04+SOLiD-EV））。また、上記の連携機関及び民間で先導的な役割をされている3名の先生方に新たにオブザーバーに着任頂き、全固体電池の実用化の観点から領域への助言を頂く体制を構築した。

以上により、本領域で得られた知見を応用展開する具体的方向性を明確にする連携・強化をおこない、指摘事項に対応した。



5 研究の進展状況及び主な成果

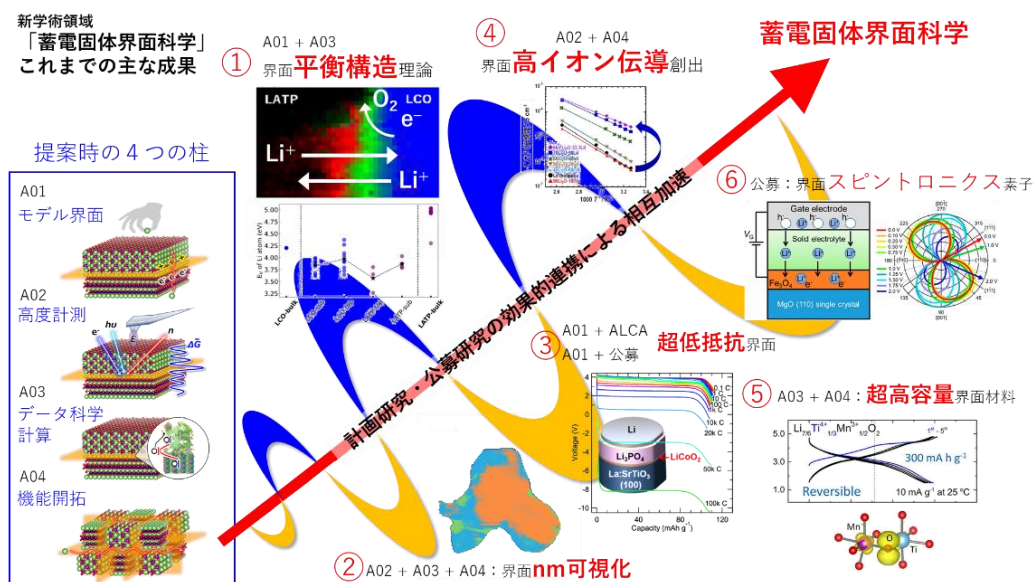
(1) 領域設定期間内及び中間評価実施時までには何をどこまで明らかにしようとし、中間評価実施時までにはどこまで研究が進展しているのか、(2) 本研究領域により得られた成果について、具体的かつ簡潔に5頁以内で記述すること。(1)は研究項目ごと、(2)は研究項目ごとに計画研究・公募研究の順で記載すること。なお、本研究領域内の共同研究等による成果の場合はその旨を明確にすること。

【主な成果のダイジェスト】※ [A1P1]などの番号は項目6に記載の論文番号に対応

本領域は、蓄電材料界面における学理を構築することで、全固体電池などの産業競争力強化に資する次世代固体イオンデバイス設計指針を明確化すると同時に、革新的な駆動原理に基づく固体デバイスの開拓まで狙うものである。この目標を達成するために、提案時に研究の柱として据えた計画研究(モデル界面・高度計測・計算データ科学・機能開拓)と公募研究が有機的連携を行って研究を加速することで、これまでに多くの重要な成果を挙げてきた。本項では、その中で特に顕著な成果群を示す。

- ① **界面の高抵抗化トリガー**：蓄電固体界面における理論構築を目指した **A01 と A03 の連携**により、電極と固体電解質の界面近傍では Li の化学ポテンシャル差に起因して不定比性が生じ、高抵抗副反応相を生成するトリガーとなることを解明した ([A3P10 1] *ACS Appl. Mater. Int.* (2020))。
- ② **タイコグラフィーによる nm 可視化**：構築した界面理論を実証するためには、nm スケールでの界面可視化技術が必要である。そこで、**A02—A03—A04 が連携**し、タイコグラフィー-XAFS を用いてメソスケールでの不均一構造の可視化に成功した。([A2P1] *J. Phys. Chem. Lett.* (2021))。
- ③ **超低抵抗界面イオン輸送**：構築した界面理論を実証するために、モデル界面として多層グラフェン (**A01—公募連携**) やエピタキシャル薄膜 (**A01-ALCA 連携**) を非晶質電解質と組みあわせ、超高速界面イオン輸送が可能な界面制御に成功し、高効率な蓄電固体界面の構築手法を確立した ([A1P7, A1P15] *ACS Appl. Energy Mater.* (2020, 2021))。
- ④ **非晶質界面を利用する新規イオン伝導体**：LiI と Li₂O を機械混合し、その非晶質界面を活用して高速に Li⁺ が伝導するイオン伝導体を **A04 が開発**し、**A02 がそのメカニズム解明をすすめている** ([A4P3] *Electrochemistry* (2021))。
- ⑤ **ナノ界面による高容量電極材料**：蓄電固体界面の理論に基づいた材料設計指針を用いて蓄電固体界面で高い電荷蓄積を実現する材料設計に **A03 と A04 が連携**して取り組み、実際に高容量を発現する酸素レドックス材料の開発に成功した ([A4P10] *Materials Today* (2020))。
- ⑥ **スピントロニクス固体デバイス**：蓄電固体界面の学理を応用し、固体電解質内から強磁性体にリチウムイオンを挿入することで、スピン流注入による磁化回転よりも低い消費電力で磁化を回転できるスピントロニクス素子を開発した ([A4P21] *ACS Nano* (2020))。

以上のように、モデル材料を用いた蓄電固体界面科学の学理構築 (①、②、③)、蓄電固体界面を用いる高速イオン輸送・高濃度イオン蓄積材料創製 (④、⑤)、新規蓄電固体デバイスの開発 (⑥) など、卓越した成果群が計画研究と公募研究の連携により次々と生み出されている状況である。今後、更なる連携を通じた研究加速により、新学術「蓄電固体界面科学」が確立される。



(1) 何をどこまで明らかにしようとしているか？ 中間評価実施時までの進展

前半 3 年は蓄電固体界面でのイオン輸送・蓄積に複雑に関わる因子を抽出するためのモデル界面構築のための材料を合成し、界面イオン輸送・蓄積に影響を及ぼす特性支配因子の抽出に向けた基礎的な検討を行う。後半 2 年は、実験・計測により絞りこんだ特性支配因子と理論との相関を明確にし、理論を活用して界面イオン輸送・蓄積の先鋭化を進めることを目的としている。

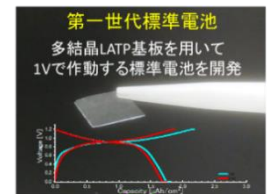
中間評価時まで、エピタキシャル薄膜、原子層薄膜、単結晶電解質などのモデル界面構築のための材料合成が進んだ。また、標準電池の開発、低抵抗な電極-固体電解質のモデル界面構築、化学因子を制御する新規な界面形成・合成手法の開発、電荷蓄積の緩和速度解析等、界面イオン輸送・蓄積の特性支配因子を抽出するモデル系の構築・基礎計測手法が進展し、新規蓄電固体デバイスの原理探索へも展開した。

(2) 得られた成果

【計画研究】

1. 標準電池（第一世代）の開発 (入山・大西・太子)

多結晶の固体電解質 (Li-Al-Ti-P-O: L ATP) 基板に $Fe_2(MoO_4)_3$ 負極膜と $LiCoO_2$ 正極膜を組み合わせ、A02 の多角計測に活用できる標準電池（第一世代）を開発した（投稿準備中：計 A01+計 A02）。単結晶を用いる標準電池（第二世代）の開発に向けて、世界最大の 3 mm 角の単結晶 L ATP の合成にも成功した。

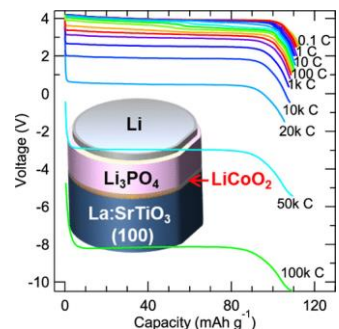


図：標準電池及び単結晶固体電解質の開発状況。

2. 低抵抗な結晶電極-固体電解質のモデル界面構築 (大西・入山・獨古)

2-1 $LiCoO_2$ エピタキシャル薄膜と非晶質固体電解質を組み合わせ、超高速イオン輸送界面を構築し、10000C (0.36 秒) で放電できる薄膜電池を ALCA との連携で作製した ([A1P7] *ACS Appl. Energy Mater.* (2020). (計 A01+ALCA))。

2-2 $LiCoO_2$ 電極と L ATP の準安定相を常温形成し、その後の低温焼結で 100 mA cm^{-2} で放電可能なモデル電池を構築した([A1P1] *Energy Tech.* (2021)(計 A01+計 A03)。更に A03 との連携で界面イオン輸送抵抗に及ぼす化学因子トリガーを解明した[A3P10] *ACS Appl. Mater. Interfaces* (2020) (計 A03+計 A01)。



図：10000 C 放電可能な超低抵抗 $LiCoO_2$ /非晶質電解質界面を構築。

3. 界面イオン輸送抵抗の化学因子を制御する新規界面形成・材料合成手法の開発 (入山・大西・松井)

電極-固体電解質の化学ポテンシャル差がトリガーとなり、これを制御して接合する新規界面形成手法を開発した。また、化学因子の抑制には低温合成も有効であり、従来 700°C 以上で焼結が必要であった $LiCoO_2$ 電極を 400°C 未満で合成する手法を見出した[松井：特願 2021-045633]。

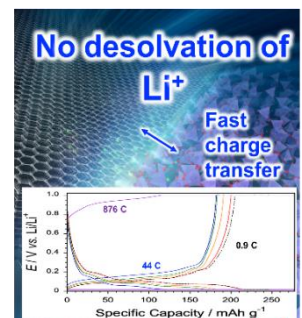
4. 単結晶固体電解質を用いた界面イオン蓄積現象の緩和速度解析 (田中・太子・入山)

単結晶固体電解質の電荷蓄積緩和過程を熱刺激電流法を用いて調べ、2 種類の緩和が存在することを見出した。また、電荷蓄積を用いるエレクトレットの開発も民間との連携で進められ、特許 7 件が申請中である[田中：エレクトレット、US17/116099 等]。

【公募研究】

1. 多層グラフェン-固体電解質の超低抵抗界面構築 (本山 (公 A01)・乗松 (公 A01)・入山 (計 A01))

多層グラフェンと非晶質電解質を組みあわせて超低抵抗界面を構築し、800C 以上(=4.5 秒以内)の超高速放電が可能なモデル薄膜電池を開発した ([A1P15] *ACS Appl. Energy Mater.* (2021). (公 A01+公 A01+計 A01))。この知見を元に、原子層可逆スイッチング素子への展開も進んでいる。



図：800 C 放電可能な超低抵抗 多層グラフェン/非晶質電解質界面を構築。

2. 結晶電極-固体電解質界面反応に及ぼす応力効果 (木村 (公 A01)・桑田 (計 A02)・雨澤 (計 A02))

結晶電極-固体電解質界面に応力が印加されると、特に二相共存で反応が進行する電極では二相の組成が変化し、更に二相の体積分率を変えて応力緩和することを見出した ([A1P16] *Electrochemistry* (2021). (公 A01+計 A02+計 A02))。この知見は、新規圧電素子への活用も期待できる。

研究項目 A02 高度計測の統合利用による蓄電固体界面の物理化学局所状態の解明

(1) 何をどこまで明らかにしようとしているか？ 中間評価実施時までの進展

前半3年は、X線回折・吸収・散乱(雨澤・尾原・山本健・白澤)、中性子回折・散乱(池田)、電子顕微鏡 TEM および電子線回折・元素分析・ホログラフィ(山本和・森・麻生)、電気化学顕微鏡 SECCM(熊谷)、タイコグラフィ(高橋)、ケルビンプローブ顕微鏡 KPFM(雨澤)、固体核磁気共鳴 NMR(桑田・野田)、二次イオン質量分析 SIMS(桑田)、X線光電子分光 XPS(増田)、弾性反跳粒子検出(間嶋)を基盤計測技術とし、これらを蓄電固体界面の物理化学状態評価の手法として高度化・特殊化する。また、これらを統合利用することで、蓄電固体界面を網羅的に検討できる体制を整え、主に平衡状態(擬平衡状態を含む)を対象に、イオン輸送・蓄電特性に影響を及ぼすと考えられる物理化学因子の抽出に向けた基礎的な検討を行う。中間評価実施時まで、各種計測技術の高度化・特殊化を完了した。また、確立された計測技術の統合利用によるモデル蓄電固体界面の多角的計測を開始した。

(2) 得られた成果

【計画研究】

1. モデルヘテロ界面(標準電池)の多角的計測(雨澤・山本和・桑田・熊谷(計A02)・間嶋・麻生・増田・山本健(公A02)・入山(計A01)・館山・武藤(計A03))

蓄電固体界面計測用に TEM、XAFS、SECCM、KPFM、SIMS の高度化を行い([A2P2] *Phys. Chem. Chem. Phys.* (2021). (計A02+計A01), [A2P10] *Chem. Comm.* (2020)等)、これらを、ヘテロモデル界面の共通試料として選定した A01 提供の標準電池: LiCoO₂ 薄膜/Li 伝導性 Li-Al-Ti-P-O 電解質(LCO/LATP) 界面および Pt 薄膜/Li 伝導性 Li-Al-Ti-P-O 電解質(Pt/LATP) の多角的計測に適用した。その結果、界面での高抵抗要因が高電圧印加に誘起されて形成され、それが低電圧印加により部分的に消失すること、等を明らかにした。高抵抗要因の形成起源を、化学ポテンシャルを駆動力と考える固体イオニクスの解釈、空間電荷層による半導体界面工学的解釈の両面から検討し、妥当性検証を行っている。

2. モデルホモ界面(標準結晶化ガラスセラミックスカチオン伝導体)の多角的計測(森・尾原・池田・桑田(計A02)・林(計A04))

ホモモデル界面の共通試料として A04 提供の結晶化ガラスカチオン伝導体(LPS: Li₂S-P₂S₅系、NPS: Na₂S-P₂S₅系)を選定し、蓄電固体界面計測用に高度化された電子線、X線、中性子回折・散乱、NMRによる多角的計測を実施した([A2P12] *Phys. Status Solidi B* (2020), [A2P13] *J. Power Sources* (2020). (計A02+計A04), 森・特願 2021-49446 等)。作製条件に依存する非晶質/晶質相の平均的・局所的な存在比を定量評価することに成功した。また、例えば LPS 系結晶化ガラスでは、非晶質相における PS₄ 分子周りの LiS_x 多面体の結合形態(PS₄ 周囲の Li⁺ 分布)とイオン伝導特性に相関性を見出した。

3. 電極活物質の不均一反応状態の可視化(高橋(計A02)・ダム(計A03)・大久保(計A04))

三次元・高空間分解能での界面評価が可能なタイコグラフィ XAFS 法を用い、イオン拡散・反応の可視化技術を開発した。これとデータマイニング解析を融合し、リチウム正極活物質粒子に内在する化学状態の不均一性の可視化に成功した([A2P1] *J. Phys. Chem. Lett.* (2021). (計A02+計A03+計A04))。

【公募研究】

4. 固体-固体界面の構造分布評価(白澤(公A02)・菅(計A04))

高速表面 X 線回折、X 線反射率測定による固体-固体電気化学界面の結晶構造、局所構造を、オペランド評価に成功した。これにより、例えば、Li₃PO₄ 固体電解質上の Li(Ni,Co)O₂ 正極における構造変化の厚み方向分布の評価に成功した(論文準備中)。さらにこれを組成傾斜強磁性薄膜の構造解析に応用している。

5. 高分解能 NMR による電解質内電場分布計測手法の開発(野田(公A02))

核四重極共鳴(NQR)を迅速に測定する手法を開発し([A2P18] *Phys. Chem. Chem. Phys.* (2020))、これにより核スピンをプローブにして電解質内の電場分布を非破壊・非接触に測定する手法を新たに提案した。この手法は、1の標準電池の計測への適用が期待される。

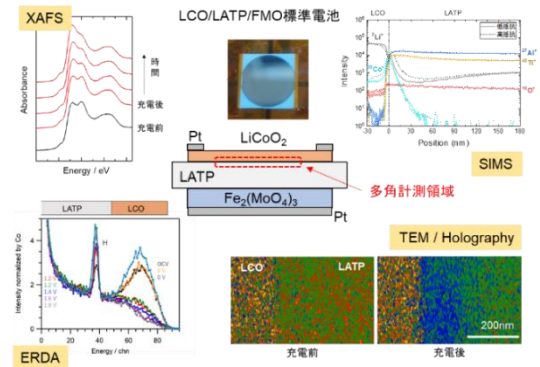


図: A02 で実施している標準電池の多角計測例

(1) 何をどこまで明らかにしようとしているか？中間評価実施時までの進展

本研究項目では、蓄電固体界面におけるイオン輸送・蓄積の特異な振舞いのメカニズムを計算・データ科学研究を用いて明らかにし、蓄電固体の新学理の構築を先導することを目標としている。計画研究ではまず、蓄電固体界面に向けたナノスケール第一原理計算（館山、中山）、高精度メソスケール計算（井上）、実験データに関するデータ駆動型 AI 解析（Dam、武藤、中山）などの各技術の開発・拡張を行い、それをもとに実験グループ（A01, A02, A04）が扱う蓄電固体界面の代表的モデル系の平衡状態・定常状態を明らかにしていく。さらに公募研究者（安藤、笠松、小林、清水）が計画研究と相補的分野の研究を進めることにより、総合的な知見を獲得し、それを集約して普遍的な学理構築に取り組む。

中間評価実施時まで、蓄電固体界面現象解明のための様々な計算・データ科学手法の開発・拡張を終え、モデル系の平衡状態解析に適用して、様々な基礎的知見を抽出する所まで順調に達成している。特に論文数 46 件、そのうち重要課題に対する領域内連携が 12 件あり、本領域内での計算・データ科学分野としての役割を十二分に果たしている。

(2) 得られた成果

【計画研究】

1. ヘテロ固固界面の高効率サンプリング手法の開発（館山・中山）

粒子群最適化手法(CALYPSO 法) や遺伝的アルゴリズムを用いて、低エネルギーで出現確率が高いヘテロ固固界面の高効率サンプリング手法を世界で初めて開発した([A3P22] *Chem. Mater.* (2020) 等]

2. 標準電池モデルヘテロ界面の微視的解析（館山・武藤：A01・A02）

本領域の標準モデル界面である LiCoO_2 正極/ $\text{Li}_{1.3}\text{Al}_{0.3}\text{Ti}_{1.7}(\text{PO}_4)_3$ 固体電解質界面について、界面第一原理計算および STEM-EELS のデータ AI 解析を通して、界面接合時およびアニール時の界面イオン移動・電子移動および高温アニール時の界面還元機構について原子スケールの新規知見を得た。([A3P24] *J. Am. Ceram. Soc.* (2020). (計 A03+計 A01), [A3P8] *ACS Appl. Matter. Int.* (2020). (計 A03+計 A01)等)

3. 応力効果・弾塑性変形を考慮したメソスケール計算手法開発（井上）

固体間接触とその応力効果を考慮した弾塑性変形モデルを組み込んだ離散要素計算手法を新たに構築し、応力効果・塑性変形・体積膨張収縮を考慮したイオン輸送・電気化学反応解析が可能となった ([A3P4] *J. Electrochem. Soc.* (2021))。

4. 実験データに関するデータ駆動型 AI 解析手法開発（武藤・Dam）

STEM-EELS/EDX 分析条件のノイズの取扱いの最適化によるデータ処理技術がほぼ確立し ([A3P23] *Microscopy* (2020). 等)、界面近傍の原子スケール描像がクリアに得られるようになった。また計測 2-3 次元画像に包含されるイオン変調の特徴を自動的に発見できる AI 解析手法の適用も開始した([A2P1])。

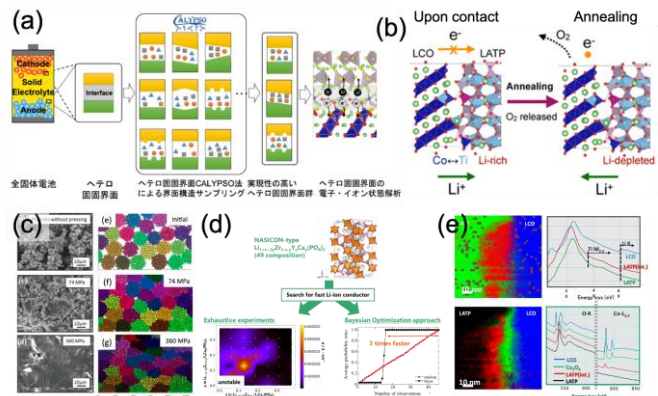
5. 蓄電固体界面学理の構築（全員）

酸化物、硫化物、金属に関する各界面において電子・原子スケールでの振舞いが明らかになってきた。その中で、界面をまたぐイオンの電気化学ポテンシャルに関する理論再構築まで取り組み始めている ([A3P8] *ACS Appl. Mater. Interfaces* (2021))。

【公募研究】

6. 高精度力場の開発による固体電解質界面のイオンダイナミクス解析（小林・清水・安藤）

第一原理計算を基準とした高精度力場ポテンシャルを開発し、より大きなスケールでのダイナミクス計算を行うことで、界面の原子構造・ダイナミクスの特徴を明らかにした。([A3P25] *APL Mater.* (2020). (公 A03+計 A03), [A3P26] *Phys. Rev. B* (2021). (公 A03+公 A03))



図：(a) ヘテロ固固界面高効率サンプリング法（ヘテロ界面 CALYPSO 法）の計算フロー概略図[A3P22]。(b) $\text{LiCoO}_2(\text{LCO})/\text{Li}_{1.3}\text{Al}_{0.3}\text{Ti}_{1.7}(\text{PO}_4)_3$ (LATP)モデル界面の接触時とアニール時の電子・イオン移動第一原理計算予測 [A3P10]。(c) 応力効果を組み込んだ離散要素モデルによる複合電極計算の概略図[A3P7]。(d) 機械学習と合成実験の連動モデル[A3P14]。(e) LCO/LATP モデル界面の接触時とアニール時の STEM-EELS 計測と AI 解析の概略 [A3P23, A3P24]。

研究項目 A04 蓄電固体界面の機能開拓と界面新材料開発

(1) 何をどこまで明らかにしようとしているか？ 中間評価実施時までの進展

前半 3 年は蓄電固体材料中の界面・粒界構造が蓄電固体材料のイオン輸送・イオン蓄積特性に影響する因子についての理解と、学術的な理論の確立を進める。そのために各種のナノ界面構造の違いが蓄電固体界面の機能の発現に及ぼす影響について検討 (藪内・喜多條)、また、同様に非晶質界面材料についても研究に取り組む (林)、さらに、アニオンレドックス現象について詳細に検討し、固体電解質と蓄電材料の界面安定性に影響する因子の解明に繋げる (大久保・藪内)。さらに、これら現象を他のイオンデバイスの応用に展開する (菅)。中間評価時までに、ナノ・非晶質界面濃度の向上により、従来は不活性、もしくは活性が低いと考えられていた材料も活性化させることが可能であることも明らかにしており、これらの成果は蓄電固体界面構造の高度制御手法を確立することで、さらなる高性能材料の創製にも繋げることが可能であることを示唆する結果である。また、蓄電池以外の応用展開も実施しており、その一例として、蓄電材料界面の活用により磁気特性を制御するための方法論の確立も進んでいる。

(2) 得られた成果

1. 高界面濃度・高密度電荷蓄積を可能とする材料開発 (藪内・林・大久保・喜多條)

1-1 アニオンレドックスを利用した高密度電荷蓄積を可能とする材料 (藪内・大久保)

これまで、Ti と Mn から構成された、従来材料と比較して 1.5 倍の高エネルギー密度が得られるアニオンレドックス系材料を開発してきたが、研究初期の段階では可逆性の低さやイオン輸送速度が遅く、高温でのみ高エネルギー密度が得られていた。そこで、界面構造に着目して研究を進め、材料の界面濃度の増加により、反応の可逆性向上が可能であり、室温で高エネルギー密度が得られることを立証した ([A4P10] *Materials Today* (2020). (計 A04+計 A03))。また、アニオンレドックスの制御は固体電解質設計への応用が期待でき、固体電解質と電極材料界面における副反応を考える上で重要な知見になると期待できる。実際にその反応機構について、藪内と大久保がそれぞれ、Li-P-Mn 系材料と Na-Mn 系層状酸化物を対象として、酸素の二量体形成の抑制が鍵であることを発見した ([A4P9] *ACS Central Science* (2020). (計 A04+計 A02), [A4P6] *Nature Communications* (2021))。この知見に基づく現象理解を推し進めることで、電極材料における界面構造、電極材料・固体電解質の複合界面におけるコート相の役割の解明に繋がると期待できる。

1-2 非晶質・低結晶性材料の開発 (林・喜多條)

林はこれまでに硫化物系固体電解質において、様々な組成の材料を検討しており、これまでに、Li イオン系硫化物固体電解質と比較して、超高速で Na イオンが伝導する材料を発見しており ([A4P18] *Nature Communications* (2019))、また、LiI と Li₂O からなる非晶質界面を活用して高速に Li イオンが移動する伝導体を開発し、A02 と協力してメカニズム解明を進めている [A4P3] *Electrochemistry* (2021))。喜多條は Cr-Ti 系高界面濃度材料で界面構造と蓄電特性の相関性を解明することに成功した。(投稿準備中)

2. 新しい蓄電固体デバイスの開発 (菅)

菅は薄膜を利用し、電気二重層の形成や酸素空孔濃度を制御することで材料の磁気異方性を制御可能であることを報告している ([A4P16] *Phys. Rev. B* (2020))。このような現象は新規蓄電固体デバイスへの応用展開なども期待できる研究成果である。

【公募研究】

3. 蓄電固体界面材料を用いた磁性的の制御とスピントロニクス固体デバイスへの応用 (土屋)

強磁性体への Li 挿入により、低消費電力での磁性制御に成功している。([A4P21] *ACS Nano* (2020))

4. 有機結晶材料からなるイオン導電体 (畠山)

結晶性の有機電荷移動錯体から構成された新しい Li イオン導電体の発見に成功しており、蓄電材料として利用可能であることを立証した。([A4P23] *ACS Appl. Electron. Mater.* (2020))

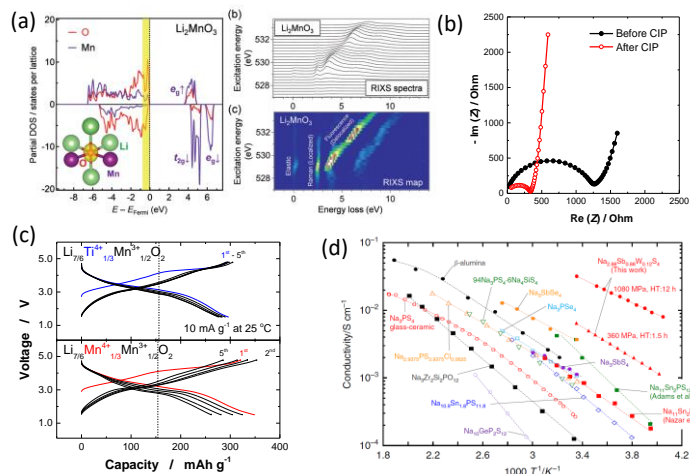


図: A04 班研究成果ハイライト (a) アニオンレドックスに関連する孤立軌道の実測 (b) CIP による固体電解質膜伝導度向上 (c) アニオンレドックスを用いるの高容量材料の発見 (d) 超高速 Na 伝導材料の発見

6 研究発表の状況

研究項目ごとに計画研究・公募研究の順で、本研究領域により得られた研究成果の発表の状況（主な雑誌論文、学会発表、書籍、産業財産権、ホームページ、主催シンポジウム、一般向けのアウトリーチ活動等の状況。令和3年6月末までに掲載等が確定しているものに限る。）について、具体的かつ簡潔に5頁以内で記述すること。なお、雑誌論文の記述に当たっては、新しいものから順に発表年次をさかのぼり、研究代表者（発表当時、以下同様。）には二重下線、研究分担者には一重下線、corresponding author には左に*印を付すこと。

研究項目 A01 蓄電固体材料のモデル界面形成とその界面イオンダイナミクスに関する基礎研究

【計画研究】

〔雑誌論文〕（計 26 件：連携成果 8 件）

[A1P1] M. Sakakura, Y. Yamamoto, *Y. Iriyama et al., *Energy Technol.* 9 (2021) 2001059. (計 A01+計 A03)

[A1P2] Y. Ugata, *K. Dokko et al., *ACS Appl. Energy Mater.* 4 (2021) 1851.

[A1P3] *M. Matsui et al., *J. Power Sources* 485 (2021) 229346.

[A1P4] Y. Yasuno, *Y. Tanaka et al., *IEEE Trans. Dielectrics and Electrical Insulation* 27 (2020) 1415.

[A1P5] H. Hasegawa, *M. Matsui et al., *J. Electrochem. Soc.* 168 (2020) 010509.

[A1P6] M. K. Sugumar, Y. Iriyama et al., *Chem. Lett.* 50 (2020) 448.

[A1P7] K. Kawashima, *T. Ohnishi et al., *ACS Appl. Energy Mater.* 3 (2020) 11803.

[A1P8] T. Yamamoto, Y. Iriyama et al., *Inorg. Chem.* 59 (2020) 11901.

[A1P9] Y. Okamoto, *K. Dokko, *J. Phys. Chem. C* 124 (2020) 4459.

[A1P10] R. Tatara, *K. Dokko et al., *J. Phys. Chem. C* 124 (2020) 15800.

[A1P11] Y. Ishado, *M. Matsui et al., *Chem. Commun.* 56 (2020) 8107.

[A1P12] M. K. Sugumar, Y. Iriyama et al., *Solid State Ionics* 349 (2020) 115298.

[A1P13] R. Tamate, K. Dokko et al., *Electrochem. Commun.*, 109 (2020) 106598.

[A1P14] *M. Motoyama et al., Y. Iriyama, *ACS Appl. Energy Mater.* 2 (2019) 6720. (公 A01+計 A01+企業)

〔学会発表〕（計 63 件：招待講演 24 件）

Y. Iriyama, *Virtual International Workshop on Energy Storage Technology for E-mobility*, Online, 2021/3/25–3/27
(国際・基調)

Y. Iriyama, *45th International Conference and Expo on Advanced Ceramics and Composites*, Online, 2021/2/8–2/12
(国際・招待)

太子敏則, 応物学会北信越支部, オンライン, 2020/11/27 (国内・招待)

入山 恭寿, 第61回電池討論会, オンライン, 2020/11/19 (国内・招待)

K. Dokko et al. *The 10th Asian Conference on Electrochemical Power Sources 2019*, Taiwan, 2019/11/24–11/27 (国際・招待)

Y. Tanaka, *Research Center for Hydrogen Energy-based Society International Symposium*, Japan, 2019/08/22 (国際・招待)

T. Ohnishi, *19th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy/19th US Biennial Workshop on Organometallic Vapor Phase Epitaxy*, USA, 2019/7/28–8/2 (国際・招待)

〔一般向けアウトリーチ〕（計 3 件）

太子敏則, 夢ナビ, オンライン, 2020/10/25

入山恭寿, あいちサイエンスフェスティバル, オンライン, 2020/10/15

〔産業財産権〕（計 8 件）

松井雅樹 他 1 名, 層状複合金属酸化物結晶材料の製造方法, 特願 2021-045633

田中優美 他 3 名, エレクトレット, US17/116099 等 5 カ国 (計 A01+企業)

【公募研究】

〔雑誌論文〕（計 4 件：連携成果 3 件）

[A1P15] *M. Motoyama, W. Notimatsu, Y. Iriyama *et al.*, *ACS Appl. Energy Mater.* (2021) accepted. (公 A01+公 A01+計 A01)

[A1P16] *Y. Kimura, N. Kuwata, K. Amezawa *et al.*, *Electrochemistry* (2021) in press. (公 A01+計 A02)

〔学会発表〕 (計 8 件 : 招待講演 1 件)

鈴木耕太, 電気化学会第 88 回大会, 2021/3/23

M. Motoyama, *Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid State Science 2020*, Online, 2020/10/4–10/9 (国際・招待)

〔一般向けアウトリーチ〕 (計 2 件)

研究項目 A02 高度計測の統合利用による蓄電固体界面の物理化学局所状態の解明

【計画研究】

〔雑誌論文〕 (計 18 件 : 連携成果 8 件)

[A2P1] H. Uematsu, *N. Ishiguro, H. Dam, M. Okubo, Y. Takahashi *et al.*, *J. Phys. Chem. Lett.* 12 (2021)5781. (計 A02+計 A03+計 A04)

[A2P2] G. Hasegawa, *N. Kuwata, N. Ishigaki *et al.*, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 23 (2021) 2438. (計 A02+計 A01)

[A2P3] *K. Ohara, K. Yamamoto *et al.*, *Encyclopedia of Materials: Technical Ceramics and Glasses* 3 (2020) 38. (計 A02+公 A02)

[A2P4] *M. Oishi, *K. Ohara *et al.*, *J. Phys. Chem. C* 124 (2020) 24081.

[A2P5] *N. Kuwata, N. Ishigaki *et al.*, *J. Phys. Chem. C* 124 (2020) 22981. (計 A02+計 A01)

[A2P6] *T. Nakamura, Y. Kimura, R. Aso, K. Amezawa *et al.*, *ACS Appl. Energy Mater.* 3 (2020) 9703. (計 A02+公 A01+公 A02)

[A2P7] N. Ishiguro, *Y. Takahashi *et al.*, *Microsc. Microanal.* 26 (2020) 878.

[A2P8] *A. Kumatani *et al.*, *Curr. Opin. Electrochem.* 22 (2020) 228.

[A2P9] *M. Saito, K. Ohara *et al.*, *Phys. Status Solidi B* 257 (2020) 2000133.

[A2P10] *Y. Takahashi, A. Kumatani *et al.*, *Chem. Commun.* 56 (2020) 9324.

[A2P11] *H. Tsukasaki, S. Mori *et al.*, *Solid State Ionics* 347 (2020) 115267.

[A2P12] *K. Ohara, *F. Utsuno *et al.*, *Phys. Status Solidi B* 257 (2020) 2000106.

[A2P13] *H. Tsukasaki, S. Mori, A. Hayashi *et al.*, *J. Power Sources* 479 (2020) 228827. (計 A02+計 A04)

[A2P14] M. Hirose, *Y. Takahashi *et al.*, *J. Synchrotron Radiat.* 27 (2020) 455.

[A2P15] M. Hirose, *Y. Takahashi *et al.*, *Optics Express* 28 (2020) 1216.

〔学会発表〕 (計 102 件 : 招待講演 43 件)

雨澤 浩史, 日本化学会 第 101 春季年会, オンライン, 2021/3/19–22 (国内・基調)

K. Yamamoto, *45th International Conference & Expo Advanced Ceramics & Composites*, Online, 2021/02/8–12 (国際・招待)

Y. Kimura, K. Amezawa, *44th International Conference & Expo Advanced Ceramics & Composites*, USA, 2020/1/27–31 (国際・招待)

Y. Takahashi, *Materials Research Meeting 2019*, Japan, 2019/12/10–14 (国際・招待)

A. Kumatani, *2nd International Conference Clean Energy Material and Technology*, China, 2019/11/29–12/01 (国際・招待)

K. Ohara, *Workshop on Neutron and X-ray Characterizations on Caloric Materials*, China, 2019/8/15–16.

〔一般向けアウトリーチ〕 (計 8 件)

雨澤浩史, サイエンス&テクノロジーセミナー, 2019/7/29

森茂生, 大阪府立大学工学域公開講座「高校生のためのマテリアルサイエンス入門」, 2019/11

〔産業財産権〕 (計 2 件)

森茂生, 他 2 名, 「3 次元観察装置、および方法」, 特願 2021-49446

【公募研究】

〔雑誌論文〕 (計 4 件)

[A2P16] R. Endo, T. Ohnishi, *T. Masuda et al., *J. Phys. Commun.* 5 (2021) 015001. (公 A02+計 A01)

[A2P17] *T. Nakamura, Y. Kimura, R. Aso, K. Amezawa et al., *J. Mater. Chem. A* 9 (2021) 3657. (計 A02+公 A01+公 A02)

[A2P18] Y. Hibe, Y. Noda, *K. Takeda et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.* 22 (2020) 25584.

〔学会発表〕 (計 4 件 : 招待講演 2 件)

T. Masuda, *Material Research Society Spring 2021*, Online, 2021/04/23 (国際・招待)

研究項目 A03 理論・計算・データ科学による蓄電固体界面イオンダイナミクスの機構解明

【計画研究】

〔雑誌論文〕 (計 46 件 : 連携成果 12 件)

[A3P1] R. Sasaki, *Y. Tateyama et al., *J. Mater. Chem. A* (2021) on-line published.

[A3P2] Z. Yang, *M. Nakayama, *R. Kobayashi et al., *Solid State Ion.* 366-367 (2021) 115662. (計 A03+公 A03)

[A3P3] M. Nakayama, *J. Ceram. Soc. Jpn.* 129 (2021) 286.

[A3P4] *R. Jalem, Y. Tateyama, M. Nakayama et al., *Chem. Mater.* (2021) on-line published. (計 A03+計 A03)

[A3P5] H.-K. Tian, M. Matsui, *Y. Tateyama et al., *J. Mater. Chem. A* (2021) on-line published. (計 A03+計 A01)

[A3P6] Y. Youn, *Y. Tateyama et al., *npj Comput. Mater.* 7 (2021) 48.

[A3P7] M. So, *G. Inoue et al., *J. Electrochem. Soc.* 168 (2021) 030538.

[A3P8] B. Gao, *Y. Tateyama et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* 13 (2021) 11765.

[A3P9] Z. Yang, *M. Nakayama et al., *J. Phys. Chem. C* 125 (2021) 152.

[A3P10] H.-K. Tian, S. Muto, Y. Iriyama, *Y. Tateyama et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* 12 (2020) 54752. (計 A03+計 A01)

[A3P11] N. N. T. Ton, *H.-C. Dam et al., *2D Mater.* 8 (2020) 015019.

[A3P12] R. Jalem, A. Hayashi, *Y. Tateyama et al., *Chem. Mater.* 32 (2020) 8373. (計 A03+計 A04)

[A3P13] *R. Kobayashi, M. Nakayama et al., *APL Mater.* 8 (2020) 081111. (計 A03+公 A03)

[A3P14] M. Harada, *M. Nakayama et al., *J. Mater. Chem. A* 8 (2020) 15103.

[A3P15] K. Nakano, *M. Nakayama, R. Kobayashi et al., *APL Mater.* 8 (2020) 041112. (計 A03+公 A03)

[A3P16] Z. Yang, *M. Nakayama et al., *J. Phys. Chem. C* 124 (2020) 9746.

[A3P17] B. Gao, *Y. Tateyama et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* 12 (2020) 16350.

[A3P18] Y. Noda, *M. Nakayama et al., *Sci. Technol. Adv. Mater.* 21 (2020) 92.

[A3P19] *M. Nakayama et al., *ACS Omega* 5 (2020) 4083.

[A3P20] T. Yamada, *S. Muto et al., *Materialia* 9 (2020) 100578.

[A3P21] M. H. N. Assadi, M. Okubo, *Y. Tateyama et al., *Phys. Rev. Mater.* 4 (2020) 015401. (計 A03+計 A04)

[A3P22] B. Gao, *Y. Tateyama et al., *Chem. Mater.* 32 (2020) 85.

[A3P23] *S. Muto et al., *Microscopy* 69 (2020) 110.

[A3P24] *Y. Yamamoto, Y. Iriyama, S. Muto, *J. Am. Ceram. Soc.* 103 (2020) 1454. (計 A03+計 A01)

〔学会発表〕 (計 92 件 : 招待講演 30 件)

Y. Tateyama, *Centre Européen de Calcul Atomique et Moléculaire/Psi-k Flagship Workshop*, Online, Switzerland, 2021/3/2–3/5 (国際・招待)

Y. Tateyama, *Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid State Science 2020*, Online, USA, 2020/10/4–10/9 (国際・招待)

Y. Tateyama, *The 10th Asian Conference on Electrochemical Power Sources 2019*, Taiwan, 2019/11/24–11/27 (国際・招待)

Y. Tateyama, *Car-Parrinello Molecular Dynamics Meeting 2019*, Switzerland, 2019/7/22–7/24 (国際・招待)

中山 将伸, 日本セラミックス協会 2021 年会, Online, 2021/3/23–3/25 (国内・招待)

M. Nakayama, 45th International Conference and Expo on Advanced Ceramics and Composites, Online, USA, 2021/2/8–2/12 (国際・招待)

S. Muto, 12th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '19, Japan, 2019/10/20–10/25 (国際・招待)

S. Muto, Frontiers of Electron Microscopy on Materials Science 2019, USA 2019/9/1–9/6 (国際・招待)

【公募研究】

〔雑誌論文〕 (計 5 件 : 連携成果 2 件)

[A3P25] *R. Kobayashi, M. Nakayama *et al.*, *APL Mater.* 8 (2020) 081111. (公 A03+計 A03)

[A3P26] *K. Shimizu, Y. Ando, *S. Watanabe *et al.*, *Phys. Rev. B* 103 (2021) 094112. (公 A03+公 A03)

〔学会発表〕 (計 6 件 : 招待講演 1 件)

笠松秀輔, 物性研究所スパコン共同利用・CCMS 合同研究会「計算物質科学の新展開 2020」2020/12/22

研究項目 A04 蓄電固体界面の機能開拓と界面新材料開発

【計画研究】

〔雑誌論文〕 (計 27 件 : 連携成果 4 件)

[A4P1] H. Hafiz *et al.*, N. Yabuuchi *et al.*, *V. Viswanathan, *Nature* 594 (2021) 213. (アニオンレドックス材料における国際連携構築への取り組み)

[A4P2] T. Sato *et al.*, *N. Yabuuchi, *Ener. Mater. Advances* (2021) 9857563.

[A4P3] Y. Fujita *et al.*, *A. Hayashi, *Electrochemistry* (2021) accepted.

[A4P4] F. Tsuji *et al.*, *A. Hayashi, *J. Ceram. Soc. Jpn.* (2021) accepted.

[A4P5] D. Sun, M. Okubo, *A. Yamada, *Chem. Sci.* 12 (2021) 4450.

[A4P6] A. Tsuchimoto *et al.*, M. Okubo, *A. Yamada, *Nature Commun.* 12 (2021) 631.

[A4P7] F. Tsuji, S. Yabuuchi, A. Sakuda, M. Tatsumisago, *A. Hayashi, *Mater. Advances* 2 (2021) 1676.

[A4P8] R. Umezawa *et al.*, *N. Yabuuchi, *Chem. Commun.* 57 (2021) 2756.

[A4P9] M. Sawamura *et al.*, K. Ohara *et al.*, *N. Yabuuchi, *ACS Cent. Sci.* 6 (2020) 2326. (計 A04+計 A02)

[A4P10] Y. Kobayashi *et al.*, M. Nakayama *et al.*, *N. Yabuuchi, *Materials Today* 37 (2020) 43. (計 A04+計 03)

[A4P11] T. Kobayashi *et al.*, *N. Yabuuchi, *Small* 16 (2020) 1902462.

[A4P12] T. Sudayama, *et al.*, M. Okubo, *A. Yamada, *Ener. Environ. Sci.* 13 (2020) 1492. (計 A04+計 A03)

[A4P13] *D. Kan *et al.*, *Phys. Rev. B* 101 (2020) 224434.

[A4P14] T. Ando *et al.*, *A. Hayashi, *Electrochem. Commun.*, 116 (2020) 106741.

[A4P15] I. Suzuki, *D. Kan, *et al.*, *J. Appl. Phys.* 127 (2020) 203903.

[A4P16] Y. Shen, *D. Kan, *et al.*, *Phys. Rev. B* 101 (2020) 094412.

[A4P17] M. Hamaguchi, *H. Momida, A. Kitajou *et al.*, *Electrochim. Acta* 354 (2020) 136630.

[A4P18] *A. Hayashi *et al.*, *Nature Commun.*, 10 (2019) 5266.

〔学会発表〕 (計 168 件 : 招待講演 26 件)

A. Sakuda and A. Hayashi, 45th International Conference and Exposition on Advanced Ceramics and Composites, Online, 2021/2/8–2/12 (国際・招待)

N. Yabuuchi, Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid State Science 2020, Online, 2020/10/4–10/09 (国際・招待)

〔産業財産権〕 (計 11 件)

藪内直明 他 特願 2021-08191, 特願 2021-048017, 特願 2020-167590, 特願 2020-167454, 特願 2020-142875 など (計 A04+企業 4 社)

〔一般向けアウトリーチ〕 (計 5 件)

【公募研究】

〔雑誌論文〕 (計 5 件)

[A4P19] H. Sato *et al.*, *A. Inoishi, S. Okada, *Chem. Commun.* 57 (2021) 2605.

[A4P20] A. Nishio *et al.*, *A. Inoishi, S. Okada, *Electrochemistry* 89 (2021) 244.

[A4P21] W. Namiki, *T. Tsuchiya, M. Takayanagi, T. Higuchi, K. Terabe, *ACS Nano* 14 (2020) 16065.

[A4P22] K. Hatakeyama-Sato, *K. Oyaizu, *Commun. Mater.* 1 (2020) 49.

[A4P23] K. Hatakeyama-Sato et al., *K. Oyaizu, *ACS Appl. Electron. Mater.* 2 (2020) 2211.

〔学会発表〕 (計 18 件)

島山 歆 他 3 名, 日本化学会第 101 春季年会(2021), 2021/3/19-3/22

〔産業財産権〕 (計 1 件)

猪石篤 他 5 名, 全固体電池, 特願 2020-071103 (公 A04+企業)

研究項目 X00 (総括班) 蓄電固体デバイスの創成に向けた界面イオンダイナミクスの科学

領域ホームページ : <https://interface-ionics.jp/>

※領域研究者の論文出版・講演、領域ニュース・イベント情報などをタイムラグなしに発信。

領域全体会議 : 計 4 回実施

※半年に 1 回実施。計画研究内及び横串連携の会議も多数実施。

国際ニュースレター : 計 3 件発行

※半年に 1 回発行。領域成果の国際的アピール、国際連携、若手研究者のキャリアパス支援等に活用。

公開シンポジウム : 計 2 回実施

※1 年に 1 回実施。第 2 回はオンラインで実施し、吉野彰先生 (2019 ノーベル化学賞) にご講演頂いた。400 名以上に参加登録頂き、領域成果を効果的に配信した。

国際会議・シンポジウム : 計 2 回実施

※第 1 回国際会議で 11 カ国 157 名 (44 名が海外) が参加し、国際ネットワークを効果的に構築。

学会シンポジウム : 計 3 回実施

※セラミックス協会、電池討論会、日本化学会、応用物理学会 (9 月予定) など広範に実施。

若手勉強会 : 計 2 回実施

※基礎的背景の理解向上に加え、若手研究者の発表賞も設置し若手をエンカレッジしている。共通装置等を紹介し連携促進の機会も創出。



図：統括班活動成果 (a) 領域 HP、(b) 国際ニュースレター、(c) 国際会議、(d) 学会シンポジウム、(e) 領域全体会議、(f) 公開シンポジウム、(g) 若手勉強会。

以上のように、トップジャーナル誌への掲載や国内外での招待講演を多数実施し、ホームページでの迅速な成果公開や多数のアウトリーチ活動、国際ニュースレターの発行や国際会議・シンポジウムの実施による国際的な成果の公表、学会シンポジウムや公開シンポジウム主催など積極的に成果の公表・普及に努めた。

7 研究組織の連携体制

研究領域全体を通じ、本研究領域内の研究項目間、計画研究及び公募研究間の連携体制について、図表などを用いて具体的かつ簡潔に1頁以内で記述すること。

本領域は下記4つの計画項目で構築され、公募研究はこれら計画研究に紐付けされて各計画研究内での研究を推進するとともに、領域内連携に携わる。

A01：蓄電固体材料のモデル界面形成とその界面イオンダイナミクスに関する基礎研究

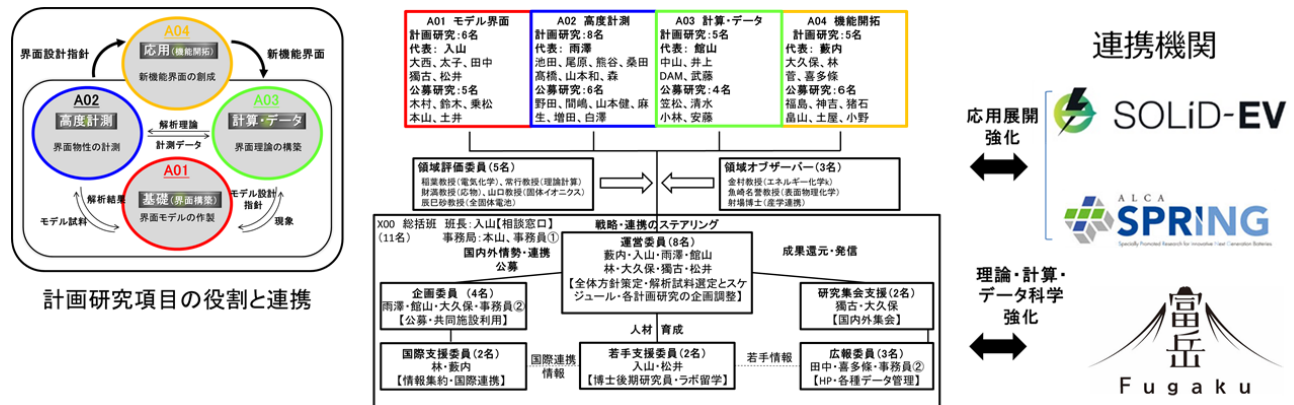
A02：高度計測の統合利用による蓄電固体界面の物理化学局所状態の解明

A03：理論・計算・データ科学による蓄電固体界面イオンダイナミクスの機構解明

A04：蓄電固体界面の機能開拓と界面新材料開発

界面近傍の物性変化の探求にはモデル界面が必要であり、A01が担当する。このモデル界面の物性変化を調べるためには、高度計測の統合による界面物性（イオン物性、電子物性、構造物性、力学物性）の計測が必要であり、A02が担当する。得られた計測結果をもとに界面イオンダイナミクスの機構を解明するためには理論構築が必要であり、A03が担当する。蓄電固体界面が備える特性を知り、それを材料とするには複合材料を開発する必要があり、A04が担当する。応用展開、理論・計算・データ科学を強化する他機関との連携を含め、計画/公募のメンバーが一体となり各研究項目の先鋭化を進めている。

研究項目間の戦略的な連携の推進、及び領域が目指す学理構築のベクトルを明確化する観点から、下記8つの界面基礎に基づく横串連携を進めている。例えば標準電池界面ではA01が界面イオン輸送抵抗の異なる標準電池を作製し、A02の7つの機関で多角解析が進められている。同時に、A03はこの標準電池の界面の理論計算を実施し、実験・計測・計算の連携が深化している。同様な連携が他の界面系でも進められている。



図：研究項目の役割とその連携 及び 他機関との連携強化の模式図（縦串連携）



図：8つの界面基礎による計画・公募連携体制の模式図（横串連携）赤字が公募研究。

8 若手研究者の育成に係る取組状況

研究領域全体を通じ、本研究領域の研究遂行に携わった若手研究者（令和3年3月末現在で39歳以下。研究協力者やポスドク、途中で追加・削除した者を含む。）の育成に係る取組状況について、具体的かつ簡潔に1頁以内で記述すること。

本領域では、若手研究者の育成に係る活動として、「若手勉強会」、「国内ラボ留学」、「海外武者修行」、「若手RA」および「国際ニュースレターでの若手研究者紹介」の5つの取組みを行ってきた。それぞれの具体的な活動内容について下記に示す。

1. 若手勉強会（基礎学力の育成）

若手研究者が領域の学術的背景を学ぶ場として、若手勉強会を2回開催した。領域内外の講師による講演のほか、大学院生を含む若手研究者の発表セッションを設け、優れた発表には優秀発表賞を出すなどの機会を設けた。また、第2回の勉強会では、国内ラボ留学の促進のために、各研究機関で利用可能な設備や技術紹介の場を設けることで、連携研究の活性化も図った。

2. 国内ラボ留学（連携する力の育成）

若手研究者が領域内の他の研究グループを訪問し、新たな技術習得や共同研究を促進する機会を設け、旅費の補助を行ってきた。2021年の6月末までに7研究グループの延べ19名が国内ラボ留学し、領域内での共同研究促進にも貢献している。

3. 海外武者修行（国際感覚の育成）

若手研究者の国際感覚を育成する目的で、若手研究者が海外の研究者を訪問し、現地での講演や共同研究に向けたディスカッションを目的とした出張をサポートしている。これまでに、東北大学の中村准教授の欧州出張と名古屋大学の本山講師の北米出張の2件が採択されている。中村准教授は、ドイツのJustus Liebig University Giessenを訪問し、固体電解質ヘテロ界面におけるイオン伝導現象に関する議論を行った。本山講師は、University MarylandとNISTを訪問し、固体電解質を介したLiの析出溶解反応の電子顕微鏡観察に関する共同研究の打ち合わせをした。

4. 若手RA（経済的支援による育成）

博士後期課程および博士後期課程に進学予定の修士学生を経済的支援により育成する目的で若手RA制度を設けた。これまでにのべ13名の研究員を採用し、そのうち3名が学振特別研究員に採用された。若手研究者の育成とキャリア形成にもつながっている。

5. 国際ニュースレターでの若手研究者の紹介（キャリアパス支援による育成）

キャリアパス支援による育成として、年2回発行の国際ニュースレターを通じて、領域内で雇用されているポスドクおよびRA学生の紹介を行っている。これまでに、ポスドク4名とRAの学生3名を紹介している。本領域で経験を積んだ若手研究者がた世界に羽ばたくためのアピールの場を作っている。

領域の研究遂行に携わった若手研究者の活躍状況

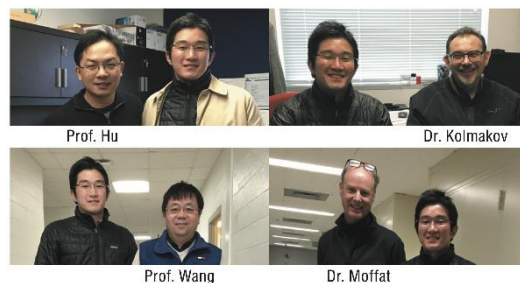
公募・鈴木耕太助教（東工大）が准教授へ昇進、A03 館山グループ・H-K. Tian博士が国立成功大学(台湾)にassistant professorで栄転した。また、1名の女性研究者が博士号取得後に産総研の研究職に就職、3名が常勤研究職（すべて2020年度）、7名が非常勤研究職（2019年度2名、2020年度5名）、2名が一般企業（すべて2020年度）に就職した。受賞関係では、作田敦准教授（A04 林グループ）が令和2年度の「科学技術分野の文部科学大臣表彰、若手科学者賞」、乙山美沙恵博士（A04 林グループ）が「電池技術委員会賞」及び「日本学術振興会育志賞」を受賞した。他の若手研究者も国際学会でポスター賞3件、国内学会で優秀発表賞、ポスター賞等10件を受賞し活躍している。



図：第二回若手勉強会の様子と優秀発表賞を受賞された学生さん写真。



図：国内ラボ留学の様子



図：海外武者修行の様子

9 研究費の使用状況・計画

研究領域全体を通じ、研究費の使用状況や今後の使用計画、研究費の効果的使用の工夫、設備等（本研究領域内で共用する設備・装置の購入・開発・運用、実験資料・資材の提供など）の活用状況について、総括班研究課題の活動状況と併せて具体的かつ簡潔に1頁以内で記述すること。

【研究費の使用状況】

総括班及び研究項目 A01-A04 の各項目への研究費使用割合 (%) の申請時 (上段) と R2 年度までの実績と今後の予定を含めた値 (下段) を右表に示す。表からわかるように、概ね申請書と同じ割合で予算を使用しており、研究進捗も順調であるため、今後も申請時の計画に従って予算を使用する方針である。

表 各項目の研究費使用割合 (%)

	物品費	旅費	人件費	その他
申請時	48.9	9.7	26.9	14.5
現状実績と予定	49.9	6.9	33.6	9.6

【設備等】

初年度に大型・共通装置を導入し、標準電池や単結晶固体電解質等の共通試料を提供する体制を早期に構築した (図(a), (b))。また、標準試料を多角解析するために必要な計測装置 (図(c)等) や計算・解析システム、更に界面基礎のナノ材料界面と応力界面で共通使用する高圧電気化学装置 (図(d)) も導入した。総括班による国内ラボ留学の旅費支給は、若手研究者間での研究連携の促進、蓄電固体材料の計測試料ホルダー設計や PDF 解析手法の共有、購入した大型装置の共通利用等、を推進した。このように、領域の設備と知を共有して領域活動を推進する目的に予算を有効使用し、その結果、連携成果が着実に増えてきた。

【効果的使用の工夫】

総括班では、初年度の設備費を用いてオンライン会議システムを構築した。これにより、月一回のペースで運営会議を開催することが可能となった (2021年6月末で20回実施)。このシステムの導入は、コロナ影響で様々な活動が制約される中での運営委員会の開催も可能とし、領動活動を迅速に軌道修正して進めるうえで効果的であった。研究集会費用については、領域会議や若手勉強会などの領域内イベントに対し初年度は会場費として使用したが、2年目はオンライン開催経費に使用した。特に2年目の公開シンポジウムでは専門業者に委託してオンライン配信し、400名以上の方に参加登録いただき、領域成果を効果的に発信できた。その他予算は、領域HPの立ち上げと更新、国際ニュースレターや領域パンフレット等の成果公開・領域アピールの費用に使用した。また、「若手 RA」、「国内外ラボ留学」、「海外武者修行」などの若手育成のための制度には、旅費や人件費として初年度は総括班予算の約5割、コロナ禍の2年目は約3割を使用した。未使用分はR3年度に繰り越して同目的に活用する。

【今後の使用計画】

申請時に記載した線表にそって研究を行うが、領域の目標に沿った連携研究を重視し、その進捗とコロナ感染状況に応じて弾力的に予算を使用する。オンライン化は、研究者間の議論の頻度を向上できる、効果的に成果配信できる等の発見もあった。更に、地域とトピックを限定した小規模の国際シンポジウムも簡便に実施でき、従来の国際会議に比べてじっくり議論の上では有効であることもわかってきた。一方、アイデアの交換・創発的研究の創出にはオンサイトでの議論が望ましい。今後のコロナ感染状況は不透明であるが、オンサイト・オンラインを効果的に使い分け、領域の連携研究を推進する目的で予算を有効に活用する。

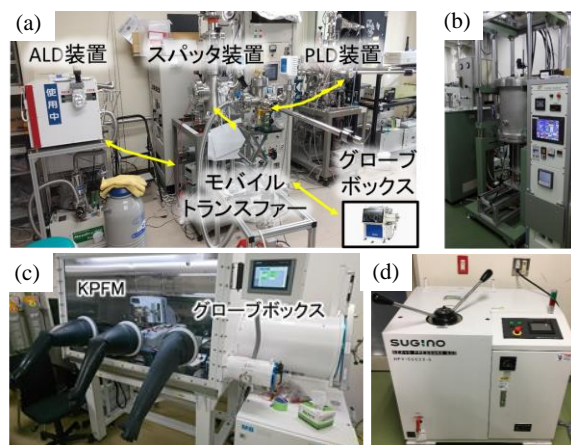


図: (a) 標準電池を作製する“マルチスケール界面制御薄膜作製装置群”, (b) 単結晶電解質を作製する高圧ブリッジマン単結晶育成装置, (c) 標準電池の多角解析の一つである KPFM 装置, (d) ナノ材料界面・応力界面で使用する高圧電気化学測定装置

2021年3月9日 Interface IONICS
online symposium 2021 Spring
参加総数63名、海外23名



図: ユーラシア大陸の8時間の時差を考慮してオンライン開催した国際シンポジウム。

10 今後の研究領域の推進方策

研究領域全体を通じ、今後の本研究領域の推進方策について、「革新的・創造的な学術研究の発展」の観点から、具体的かつ簡潔に2頁以内で記述すること。なお、記述に当たっては、今後公募する公募研究の役割を明確にすること。また、研究推進上の問題点がある場合や、国際的なネットワークの構築等の取組を行う場合は、その対応策や計画についても記述すること。

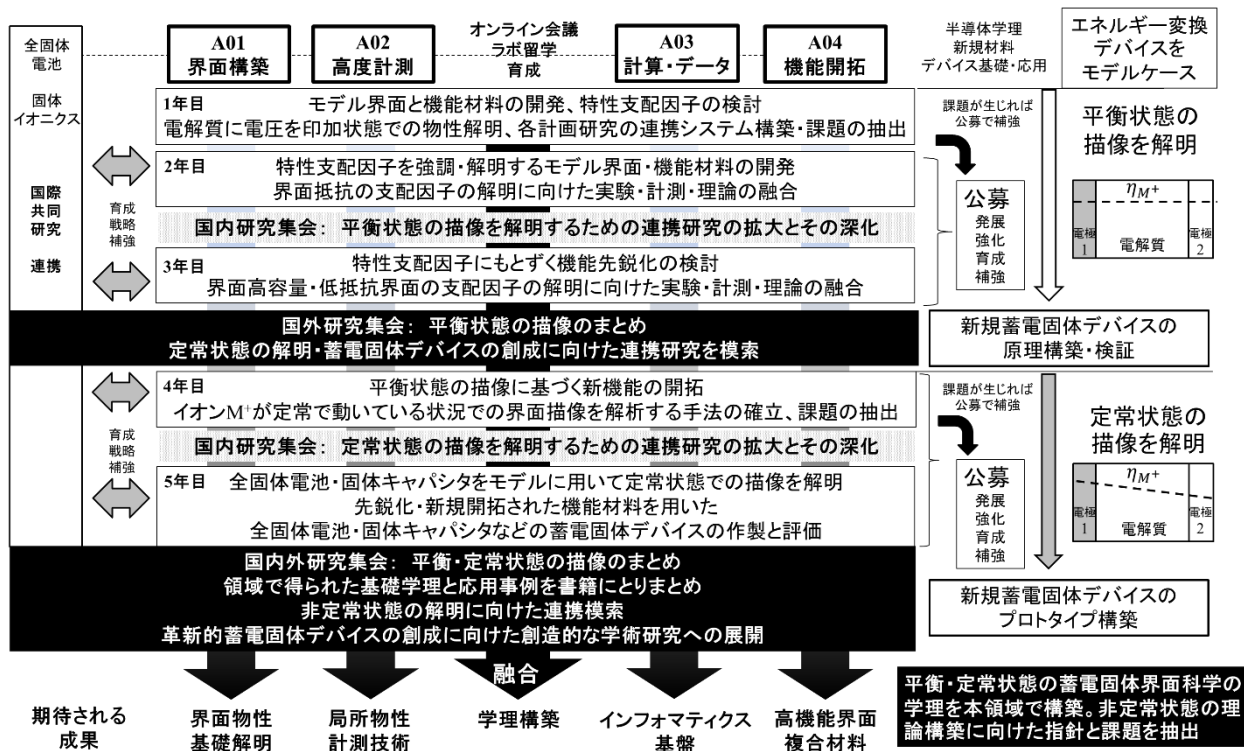
【今後の推進方策】

全体の研究計画の時間的流れと連携の概念図を下記に示す。はじめの3年で平衡状態における蓄電固体界面の描像・機能発現の起源を明らかにし、それをもとに複合材料の機能先鋭化を進め、学理構築の土台を形成する。その後の2年で定常状態における蓄電固体界面の描像を明らかにするとともに、先鋭化・新規開拓された機能材料を活用して全固体電池・固体キャパシタなどの蓄電固体デバイスを作製し、構築した学理が新規蓄電固体デバイスの創成や、連携先のNEDOのSOLID-EVやJSTのALCA-SPRINGが進める実用的な全固体電池の開発とその高性能化に向けた研究にも有用に働く事例を示す。領域研究で構築した基礎学理及びその応用事例は5年度目に書籍にまとめる。

本領域は、蓄電固体材料のヘテロ・ホモ接合界面で発現する特異なイオンダイナミクスの機構を解明しイオンを自在に“超高速輸送”“高濃度蓄積”しうる界面構築のための指導原理の確立を目標としている。領域の設定期間においては平衡・定常状態の描像を明らかにすることを目標とするが、更にその先には、平衡状態から定常状態に至るまでの“非定常状態”の描像解明に向けた“革新的・創造的な学術研究の発展”が期待される。本研究で取り組む成果が非定常状態の理解まで拡張すると、例えば車載用の全固体電池の出入力特性、耐久性、安全性などは界面の複雑な反応や物質輸送現象に影響をうけているが、詳細な反応分析と計算科学を元にマルチスケールで電池特性を“高精度に予測”することに活用できる。この予測が可能となれば開発期間が大幅に短縮し、諸外国に比べて圧倒的スピードで全固体電池を高性能化することが可能となる。即ち、我が国の蓄電固体デバイス開発の優位性が飛躍的に向上する。これは、全固体電池に限らず、他の革新的蓄電固体デバイスの創成と高性能化にもあてはまる。

今後の学術研究を発展し、蓄電固体デバイス開発の優位性を維持するためには、若手研究者の育成も重要な課題である。8で記載したように、若手勉強会、国内ラボ留学、若手RA等がいずれも領域内の若手研究者の育成に有用に機能しており、今後も総括班がこの支援を継続する。

また、総括班は年1回実施する公開シンポジウムや様々な学会でのシンポジウム（学域の他流試合）を企画して領域活動を広く周知させるとともに、本領域との連携で新たな学域の創成や産学連携などの応用展開の機会を提供する。海外武者修行と国外ラボ留学はコロナ感染症の様子をみて再開する。



図：研究領域全体の推進の目標と時系列

【今後の公募研究の役割】

前半3年の研究は、蓄電固体界面の学理構築に向けた平衡状態の描像を解明するために、7の項目で図示した領域の横串連携を重視した研究を行っている。公募研究は計画研究内で不足する研究項目を補強するとともに、横串連携のいずれかのグループにも属して、その連携を強化・補強・発展する役割をもつ。こうした連携研究の結果、計画・公募の連携研成果が着実に増え、新規蓄電固体デバイスの原理構築・検証に関する成果も得られてきた ([A4P17、A1P15])。また、これら公募研究は本領域に関わる若手研究者育成の役割もあり、実際、現在の公募研究代表者の平均年齢は38才である。このように、前半2年の公募研究はその役割が明確であり、順調な連携成果を若手研究者の育成とともに進めてきた。

後半2年の研究は、蓄電固体界面の定常状態の描像の解明と学理構築をすすめることに焦点をあて、計画研究内及び整理・増強した横串連携において公募研究はそれを強化・補強・発展する役割をもつ。また、育成の観点から引き続き若手研究者からの公募を積極的に採択する予定である。更に、新規蓄電固体デバイスのプロトタイプ構築に向けたチャレンジングな研究も採択し、計画研究との連携でその先鋭化を進めるが、そのためには異分野からの公募研究の役割が大きいと考える。即ち、異分野研究者の視点から生まれる素朴な疑問や提案を参考に蓄電固体界面科学の学理を深化する役割と共に、新規蓄電固体デバイス創成へとつなげる役割を期待する。

【研究推進上の問題点】

コロナ感染による各機関での活動制限と今後の不透明性は、本領域においても大きな問題点である。この状況下で連携研究を推進するために、領域標準材料を活用し焦点を絞った研究を推進して対応する。この際、具体的に連携推進するためには宅配システムやオンラインの活用が不可欠である。例えば、当日配送が可能な高速運搬サービスを活用すると、A01のNIMSで作製した試料をA02のファインセラミックセンター(名古屋)でFIB加工し、その3時間後には大阪府立大学のTEM装置で観察することが可能となる。その際の具体的な観察ポイントや基礎事項はWEB上で情報集約し共有している。総括班がこうした連携構築を率先することで連携活動を維持し、問題の緩和につなげている。

【国際的ネットワークの構築】

初年度に実施した国際シンポジウムで本領域の取り組みを諸外国の関連する研究者に広く認知頂き、その後は国際ニュースレターのpdfを電子メールで配信することで領域活動のアピールをするとともに、連携を深めている。2年目に実施した小規模のオンライン国際シンポジウムは、この際に構築した国際ネットワークを活用した。具体的には、地域(ドイツ-インド-日本)とトピック(Li/固体電解質界面、固体電気科学基礎)を限定した小規模



図：初年度に実施した国際シンポジウム。11カ国から157名が参加し、その後の国際ネットワーク構築の土台となった。

の国際シンポジウムを実施し、無理のない時間帯(ドイツ:AM9:00-12:00、日本17:00-20:00)でオンラインのシンポジウムを開催した。短い時間でトピックを限定したオンライン国際シンポジウムは、特定の内容を深く議論する上では従来の国際シンポジウムより有益という感触も得られた。また、この国際ネットワークは、若手研究者の海外武者修行や国際ラボ留学にも有効に活用した。

今後の国際的ネットワークの構築は世界のコロナ感染状況をふまえて実施する。現状を考えると、R3年度はオンラインを中心とした小規模な国際シンポジウムのみを実施して構築した国際ネットワークを深掘りし、コロナ終息が見込めるR4年度以降に、深掘りした国際ネットワークを活用してオンサイトでの国際シンポジウムを開催し、ネットワークを拡大する戦略である。R4年度以降は、若手研究者の国際的な活動(海外武者修行、国外ラボ留学)も再開する予定であり、それを活用して更に強固なネットワーク構築へと展開する予定である。

11 総括班評価者による評価

研究領域全体を通じ、総括班評価者による評価体制（総括班評価者の氏名や所属等）や本研究領域に対する評価コメントについて、具体的かつ簡潔に2頁以内で記述すること。

本領域は申請時に各分野を先導する5名の先生方に総括班評価者を了承いただいた。また、審査結果所見の指摘事項（③及び⑥）応用展開の具体例方向性の明確化を受け、全固体電池の実用化という具体的方向性に向けてJST-ALCA、NEDO、産業会との連携を強化する観点から3名の先生方にオブザーバーを了承頂いた。下記に各先生方からの評価コメントを示す。

【領域評価委員（御所属・役職・御専門）】

稲葉 稔 先生（同志社大学・教授・電気化学、無機工業化学）※前 電池技術委員会委員長

3年目を迎えた本プロジェクトでは、蓄電界面反応の理解が進み、有用な新しい材料や新しい解析法も数多く出てくるなど計画通り順調に研究が進んでいる。特筆すべきはコロナ禍という共同研究が進めにくい環境にも関わらず、各グループの横串連携が順調に進んでおり、メンバー全員で一丸となって研究が進められている点である。これには研究代表者およびサブリーダーの強い指導力に加えて、A01モデル界面グループからの供給されている標準電池の役割が大きいように思われる。中間評価後はさらに連携が進むことにより、蓄電界面反応の理論的解明や蓄電デバイスに応用可能な革新的技術の開発につながる事が大いに期待できる。

財満 鎮明 先生（名城大学・教授（名古屋大学名誉教授）・半導体工学）※前 応用物理学会会長

固体蓄電デバイスの界面でのイオンダイナミクスに関する学理構築を目指した新学術領域研究であり、新型コロナ禍ではあるものの、2年間で90件を超える論文を公表し、また、オンラインを活用した研究会、シンポジウム、若手勉強会などを上手く活用してメンバー間の意見交換、議論などを活性化すると共に数多くの共同研究を実施するなど、順調に成果を上げていると判断できる。特に、モデル界面となる標準電池試料を供給して多角的な観点から調べる試みや、横串連携のフレームワークは、本新学術領域研究の特徴的な点として評価したい。一方、全固体電池をはじめとした固体蓄電デバイスの研究開発は急速に進展していることもあり、中間評価の機会に、最終年度までに何をどこまで明らかにするのか、ということの確認や見直しをすると良いと考える。また、特許出願につながる成果も領域として期待したい。

辰巳砂 昌弘 先生（大阪府立大学・学長・無機材料化学）

計画班については、班内メンバー個々のパフォーマンスが素晴らしく、それぞれが領域内での役割を十分に認識している。公募班については、この学術領域の裾野を広げていく上で重要な研究が多い。領域代表のリーダーシップの下、各班はそれぞれの役割を強く意識しながら、計画通りに研究を進め、班を跨いだ連携研究も順調に進展している。特に界面基礎に関する横串連携がよく機能している。

常行 真司 先生（東京大学・教授・物性理論、計算物質科学）

社会的に極めて重要であるが故に短期間で成果を要求されがちな蓄電固体デバイスの基礎研究に、研究者の自由な発想に基づくボトムアップ的な研究グループで取り組んでおり、非常に舵取りの難しい領域であろうということを予想していた。実際、初年度の研究内容は研究グループの独立色が強く感じられたが、領域2年目からはグループ間の連携が目に見えるようになったと感じる。たとえば、標準電池界面の作成、評価、解析における領域一丸となったの取り組み、新材料提案に対するグループを超えた即応、領域会議でのそれぞれのグループからの発表に対する他グループからの反応の良さなどは、ボトムアップ研究の自由闊達さを残しつつもこの領域が実質的な大きな研究グループになったことを示す事例である。まだ連携の取れていないテーマも多いが、それらも今後の研究のシーズとなる可能性を秘めており、大事にすべきである。新学術領域の成果としては、新材料・デバイス開発などの応用に直結した成果もさることながら、今後も様々な形で研究者を悩ますことになるであろう固体界面の問題に新しいものの見方を提供するような、わかりやすい学理や研究手法が、本領域の最終成果として得られることを期待したい。

山口 周 先生（大学改革支援学位授与機構・特任教授・固体イオニクス）※ナノイオニクス領域代表

本新学術領域は、電子構造的特徴が大きく異なるイオン移動が可能な固体のヘテロ接触界面の固体電気化学的特性に注目してその学術の確立を目指したものである。その工学的応用は、近年注目が集まっている全固体電池の電極/電解質界面を対象としたものであり、基礎から応用までを内包する優れた着眼

によるグループ研究である。従来の固体電気化学が対象としていた高温で作動する燃料電池などとは異なり、ヘテロ接触界面を構成する電子構造の違いを反映した特徴が強く表れて性能を大きく左右する。従来の液体電解質(ionics)と金属電極(electrodics)という古典的な電気化学を超えて、ionics と electrodics が融合した新しい「固体電気化学」の学理の確立を目指しており、大変意欲的なプロジェクトと評価される。

本領域の運営では、若手の交流や研究のコラボレーションを活性化するための様々な取り組みが行われており、分野横断的な共同研究が多数見られ、新奇な研究者の組み合わせが新しいアイデアの萌芽になっている。理論と先端計測、電気化学や半導体工学といった多彩な分野の若手研究者がのびのびと、しかも熱心に議論している姿が大変印象的である。「固体電気化学」という新しい分野を切り開くためには、古典論に基づく半導体工学的思考を基本として、イオン移動による緩和を繰り入れた静的状態と、外部電流が流れている動的(定常)状態に関する統一的な理解が重要であり、固体界面特性の本質が何かについて、これからも基本から追求して欲しい。また対象とする界面は、通常の不純物半導体とは比較にならないほど高い欠陥濃度における界面緩和を取り扱うことが新奇性の一つであり、従来の半導体分野でも難しく重要な領域の新しい視点からの革新に貢献する。現在も新しい界面像とその学理を創り上げるという意気込みが参画研究者から感じられるが、今後も情熱を持って研究に取り組み、多くの成果を挙げていただきたい。

【オブザーバー（御所属・役職・御専門）】

魚崎 浩平 先生（物質材料研究機構・フェロー（北海道大学名誉教授）・表面物理化学）

新学術領域『蓄電固体界面』では、「蓄電固体デバイスの創製に向けた界面イオンダイナミクスのモデル界面形成とその界面イオンダイナミクスの科学に関する基礎研究」を掲げ、構造規定モデル界面、高度計測、理論・計算、新機能という4班のメンバーが、コロナ禍にもかかわらず、密接に連携しながら学理構築を目指した研究を進めている。実電池を意識しながら研究を進めているALCA-SPRINGやSOLiD-EVといった大型プロジェクトとの連携も図られており、学理に基づくデバイス展開も期待出来る。位置づけが必ずしも明確でない公募班員が見受けられるが今後の方向付けに期待したい。

金村 聖志 先生（東京都立大学・教授・電気化学、電池、エネルギー化学）

A01[蓄電固体材料のモデル界面形成とその界面イオンダイナミクスに関する基礎研究]、A02[高度計測の統合利用による蓄電固体界面の物理化学局所状態の解明]、A03[理論・計算・データ科学による蓄電固体界面イオンダイナミクスの機構解明]、A04[蓄電固体界面の機能開拓と界面新材料開発]からなる計画研究に加えて、結晶化ガラス界面、応力界面、標準電池界面、コート層界面、ナノ材料界面、電荷蓄積界面、有機固体界面、界面インフォマティクスからなる連携研究を設定し、機能的に研究全体を進めている。標準セルの作製と配布は特に有益に作用している。その結果、蓄電固体界面科学の基礎学理の構築に向けて研究が進捗している。特に、各研究者間での情報共有を積極的に行い、合理的な研究を進めている。一方で、材料も多岐にわたっており、界面も渡る。今後の界面の多様性とどのように基礎学理に収束させていくのかを考えながら本新学術領域での研究を加速的に進めることが重要と思う。

射場 英紀 先生（トヨタ自動車・電池材料技術、研究部、CPE・革新電池、産学連携）

領域の研究者同士の議論が活発で、多くの連携研究が自律的に進められている。特に、これまで、全固体電池や電気化学の分野でない研究者の素朴な疑問や提案が重要な手がかりになるケースも多いので、丁寧に取り上げ領域としてサポートしてほしい。

種々の新しい解析技術や計算手法を取り入れ、いくつかの新しい材料系や電池系で多くのデータが取得できている。これらを最初に立案した抵抗要因の図に基づき、層別してみると要因ごとに取り組みや成果の濃淡があるように感じる。抵抗要因は、電池の設計や使用条件でその重みが変わるので、どの要因も重要で、これらの層別の結果をもとに議論して次の取り組みにつなげてほしい。

研究成果には、種々の全固体電池に共通する課題を解決につながるものと、その材料や電池系に特有の課題解決のものがあるので、それらを区別して、次の取り組みの議論をしてほしい。

新しい電池系では、固体電解質のイオン伝導度がそれほど大きくなく、十分な電池性能が得られないことも多いが、学理基盤を構築することにより、もし新しい材料が見つかった場合の研究開発も加速できるので、しっかりとエンカレッジして進めてほしい。