

令和 5 年 6 月 8 日現在

機関番号：12301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K05519

研究課題名（和文）ナトリウム二次電池に対する新たなオペランド量子状態センシング技術の確立

研究課題名（英文）Operando quantum-state sensing for sodium-ion rechargeable battery

研究代表者

鈴木 宏輔（Suzuki, Kosuke）

群馬大学・大学院理工学府・准教授

研究者番号：90580506

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究の目的は、電極材料を対象とした高エネルギー放射光X線コンプトン散乱法による電子状態解析法の高度化と本手法のナトリウム二次電池電極材料Na3Biへの適用である。電子状態解析法の高度化として、リチウム過剰系正極材料Li<sub>x</sub>Ti<sub>0.4</sub>Mn<sub>0.4</sub>O<sub>2</sub> (x=0.4, 0.8)にコンプトン散乱法を適用し、本物質に特徴的な非結合の酸素2p軌道の運動量密度分布の可視化に成功した。さらに18650型リチウムイオン電池においてオペランドでリチウム反応分布の可視化に成功した。その後、本手法を金属間化合物Na3Biに適用し、Na量の増加に伴い電子状態が変化することを示唆するコンプトンプロファイルの変化を測定した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の学術的意義や社会的意義は、高容量な電極材料の設計指針が得られることと、最適な実電池の設計指針が得られることである。本研究により明らかになったリチウム過剰系正極材料の電子状態から、遷移金属の3d軌道の変化、ならびに、酸化還元軌道の分布をディスクリプタとする電極材料設計指針になり得ると考えている。さらに本研究で得られたリチウム反応パターンの最適化により高性能なリチウムイオン実電池の開発が可能になると考えている。

研究成果の概要（英文）：This study aims to develop electronic structure analysis for electrode materials using the high-energy Compton scattering technique and to apply it to Na<sub>3</sub>Bi of sodium-ion battery material. With the development of analysis techniques, we visualized the non-bonding O 2p orbital of lithium-rich cathode material. Moreover, by applying the Compton scattering technique to the practical 18650-type lithium-ion battery, we non-destructively observe inhomogeneous lithium reactions. Then the Compton scattering technique observes the change in the electronic structure of Na<sub>3</sub>Bi with increasing Na ions.

研究分野：放射光計測

キーワード：コンプトン散乱 高エネルギーX線 電極材料 電子状態

## 1. 研究開始当初の背景

脱炭素化社会の実現に向けた取組みが加速する中で、太陽光や風力などから生み出される再生可能エネルギーを蓄えるための蓄電池に注目が集まっている。加えて、世界中の自動車メーカーにおけるガソリン車から電気自動車へのシフトに伴い、バッテリーとしての電池の需要は、ますます高まっている。現在のところ、エネルギー密度の観点からリチウム二次電池が広く利用されている。しかし、蓄電池または車載用の電源としてリチウム二次電池を使用する場合、電池の大型化は避けられず、製造コスト、および元素戦略の観点からリチウム二次電池に変わる電池の開発が望まれている。これは、リチウム自体の埋蔵量が少なく(クラーク数で 0.006)、特定の地域に偏在していること、さらに、正極材料にコバルトやニッケルなどの希少金属を使用することに起因する。

リチウム二次電池に変わる電池として、ナトリウム二次電池が提案されている[N. Yabuuchi *et al.*, *Chem. Rev.*, 114, 11636 (2014).]。ナトリウムは、リチウムに比べ埋蔵量が3桁ほど高い(クラーク数 2.63 である)こと、鉄系の正極材料を使用することなどから、大型蓄電池としての応用が期待されている。しかし、リチウムに比べ、ナトリウムは原子量が3倍、イオン体積が2倍あるため、新たな指針に基づいて電極材料を探索することが不可欠であり、その遂行のためには、材料の特性を評価し、新たな設計指針を提示し得る分析手法の開発が重要となる。申請者らのグループは、高エネルギー放射光 X 線コンプトン散乱法に着目し、電極材料の電子状態解析法、ならびに、酸化還元軌道の可視化手法として開発を進めてきた。さらに、高エネルギー X 線が高い物質透過能を持つことを利用し、実電池の非破壊内部反応分布解析法として開発を進めてきた。これまでは、主にリチウム二次電池用の正極材料やリチウム実電池を測定対象としていたため、本研究では、測定手法、ならびに、解析手法の高度化を行うとともに、初めて、ナトリウムイオン電池負極材料にコンプトン散乱法を適用し、ナトリウム二次電池材料の評価法としても確立することを着想した。

ナトリウム二次電池の正極材料については、いくつかの代表的な材料が提案[J. Zhao *et al.*, *Electrochem. Soc.*, 160, A3077 (2013)., N. Yabuuchi *et al.*, *Nat. Mater.*, 11, 512 (2012)., P. Barpanda *et al.*, *Nat. Commun.*, 5, 4358 (2014).] されているものの、負極材料については、ハードカーボンが提案されているものの、その候補は正極材料に比べて少ない。そこで、本研究ではナトリウム二次電池負極材料、特に金属間化合物  $\text{Na}_3\text{Bi}$  に着目する。

## 2. 研究の目的

研究背景を踏まえ、本研究の目的は以下の二点である。

- ・ これまでに開発を行ってきたリチウム二次電池の評価法としての高エネルギー放射光 X 線コンプトン散乱法の高度化、ならびに、解析手法の高度化を行う。
- ・ コンプトン散乱法を金属間化合物  $\text{Na}_3\text{Bi}$  に適用し、ナトリウム二次電池電極材料の評価法として確立する

## 3. 研究の方法

コンプトン散乱法は、SPring-8 の高エネルギー非弾性散乱ビームライン BL08W で行った。試料は、リチウム組成の異なる  $\text{Li}_x\text{Ti}_{0.4}\text{Ma}_{0.4}\text{O}_2$  (リチウム量  $x = 0, 0.4, 0.8, 1.2$ ) 粉末、 $\text{Li}_x\text{NiO}_2$  ( $x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1$ ) 粉末、および、 $\text{Na}_{3-x}\text{Bi}$  (ナトリウム量  $x = 1, 2, 3$ ) 粉末と、市販の 18650 型リチウムイオン電池である。粉末試料のリチウム組成とナトリウム組成は化学的に変化させた。

粉末試料の測定は、115 keV に単色化された X 線を使用し、後方散乱した X 線を計測した。実験から得られたコンプトンプロファイル(コンプトン散乱 X 線エネルギースペクトル)を第一原理計算から得られるコンプトンプロファイルと比較することで、電極材料の電子状態や酸化還元軌道の可視化を行った。

18650 型リチウムイオン電池の測定は、115 keV に単色化された X 線を使用した。散乱角を 90 度に固定し、散乱 X 線のエネルギースペクトルを Ge 半導体検出器で計測した。電池内部の観測領域は、入射スリットと試料と検出器の間に配置したコリメータによって決めた。そのサイズは入射スリットの縦幅 5  $\mu\text{m}$ 、横幅 20 mm であり、コリメータの開口径 1 mm とした。リチウムイオン電池を充放電装置に接続し、電池の充放電状態を変えながらコンプトン散乱 X 線エネルギースペクトルの測定を行った。

## 4. 研究成果

### (1) リチウム過剰系 $\text{Li}_{1.2}\text{Ti}_{0.4}\text{Mn}_{0.4}\text{O}_2$ の酸化還元軌道の可視化

Fig. 1(a)に  $\text{Li}_x\text{Ti}_{0.4}\text{Ma}_{0.4}\text{O}_2$  (リチウム量  $x = 0.4, 0.8$ ) 粉末から得られたコンプトンプロファイルの差分を示す。Fig. 1 の挿絵は、原子モデル計算によって計算された酸素 2p 軌道と Mn 3d 軌道のコンプトンプロファイルである。Fig.1(a)の横軸 ( $p_z$ ) は電子の運動量である。酸素 2p 軌道のコンプトンプロファイルは半値幅の狭い分布をもち、一方、Mn 3d 軌道のコンプトンプロ

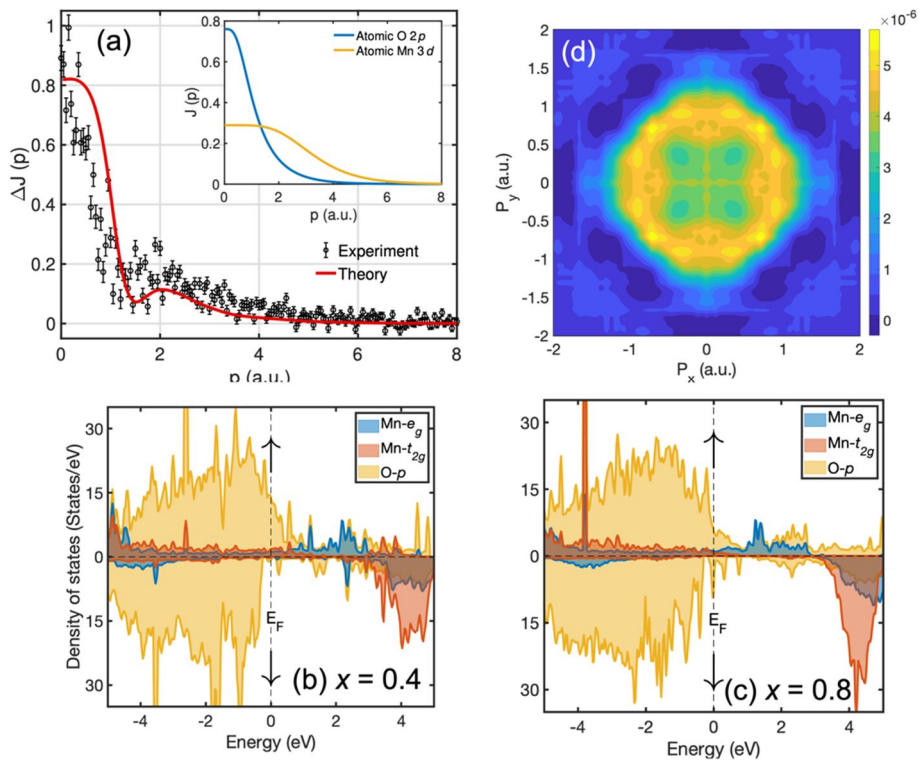


Fig. 1. (a)  $\text{Li}_{0.8}\text{Ti}_{0.4}\text{Mn}_{0.4}\text{O}_2$  と  $\text{Li}_{0.4}\text{Ti}_{0.4}\text{Mn}_{0.4}\text{O}_2$  とのコンプトンプロファイルの差分。挿絵は原子モデル計算から得られた酸素  $2p$  軌道と Mn  $3d$  軌道のコンプトンプロファイル。(b)は、第一原理計算から得られた  $\text{Li}_{0.4}\text{Ti}_{0.4}\text{Mn}_{0.4}\text{O}_2$  の部分状態密度。(c)は、第一原理計算から得られた  $\text{Li}_{0.8}\text{Ti}_{0.4}\text{Mn}_{0.4}\text{O}_2$  の部分状態密度。(d)は非結合の酸素  $2p$  軌道の電子運動量。

ファイルは半値幅の広い分布をもつことが特徴である。実験より得られたコンプトンプロファイルの差分は、電子運動量  $p_z < 2$  atomic units (a.u.)の領域で酸素  $2p$  電子の寄与が現れており、 $p_z = 2$  a.u.近辺で Mn  $3d$  電子の寄与が現れている。SCAN meta-GGA による第一原理計算から、コンプトンプロファイルの差分は実験のコンプトンプロファイルの差分との間で良い一致を示した。そこで、第一原理計算から  $\text{Li}_x\text{Ti}_{0.4}\text{Mn}_{0.4}\text{O}_2$  ( $x = 0.4, 0.8$ )の部分状態密度を計算した結果 (Fig.1(b)と(c))、 $\text{Li}_{0.4}\text{Ti}_{0.4}\text{Mn}_{0.4}\text{O}_2$  においてフェルミレベルの直上に非結合の酸素  $2p$  バンドが存在し、リチウムの挿入に伴い格子内にもたらされる電子が非結合の酸素  $2p$  バンドを占有することがわかった。このことから、コンプトン散乱法においてもリチウム量が  $0.4$  以上の領域で酸素アニオンによる酸化還元が起こることが確かめられ、非結合の酸素  $2p$  軌道が酸化還元軌道であることがわかった。一方、Mn  $3d$  軌道の変化を明らかにするため、有効核電荷  $Z_{\text{eff}} = 4.3$  と  $Z_{\text{eff}} = 3$  としたときの Mn  $3d$  軌道のコンプトンプロファイルを計算し、それぞれの差分をとった結果、Fig. 1における  $p_z = 2$  a.u.付近の変化を再現することができた。このことから、リチウム量が  $0.4$  から  $0.8$  に変化することで Mn  $3d$  軌道が実空間で局在化することがわかった。局在化に寄与する  $3d$  電子は約  $0.19$  であった。さらに、第一原理計算によって複数の結晶方位におけるコンプトンプロファイルを計算し、再構成することで運動量空間における酸素  $2p$  軌道の電子運動量密度分布を得た (Fig.1(d))。得られた酸素  $2p$  軌道の電子運動量密度分布は運動量空間で非局在化した分布を示した。以上より、コンプトン散乱法によりリチウム過剰系電極材料の酸化還元軌道の可視化に成功した。これらの成果は、遷移金属の  $3d$  軌道の変化、ならびに、酸化還元軌道の分布をディスクリプタとする電極材料設計指針になると考えている。

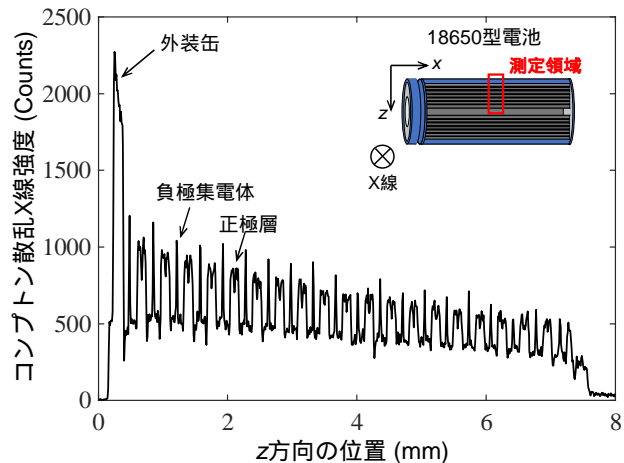


Fig. 2. コンプトン散乱 X 線強度でみた 18650 型リチウムイオン電池の内部構造

(2) 18650 型リチウムイオン電池におけるオペランドリチウム反応分布解析

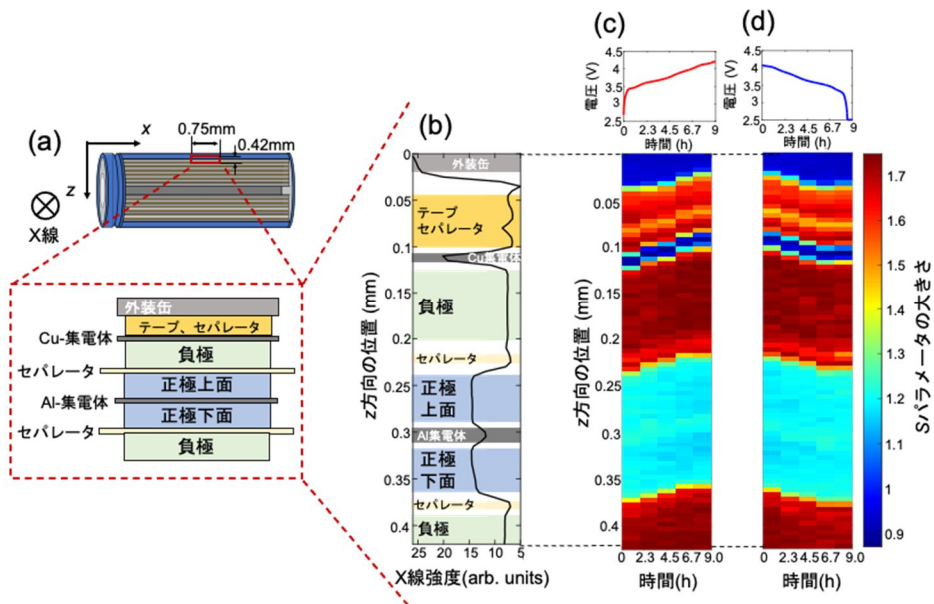


Fig. 3. (a) 測定場所の模式図。(b) コンプトン散乱 X 線強度でみた測定場所の内部構造。(c) 充電中の  $S$  パラメータ分布。(d) 放電中の  $S$  パラメータ分布。

Fig. 2 に 18650 型電池の外装缶から中心部まで入射 X 線を走査しながら測定したコンプトン散乱 X 線強度プロファイルを示す。コンプトン散乱 X 線強度は、物質の電子密度に概ね比例するため、コンプトン散乱 X 線強度の大小から非破壊でおおよそその物質を特定できる。Fig. 2 において、 $z = 0.2$  mm 付近の最も大きなピークが電池の外装缶であるステンレスからの散乱 X 線であり、 $z = 0.5$  mm 付近にある鋭いピークが負極集電体である Cu からのピークである。本電池は、集電体箔の両面に電極が塗工されているため、Cu の鋭いピークの両脇に負極が存在する。また、Cu からの鋭いピークの間にある二つ山に見えるピークは正極層に対応する。以上より、非破壊で負極層 20 層、正極層 19 層あることが確認できる。

次に、18650 型電池を充放電させながら、入射 X 線を走査し、コンプトン散乱 X 線のエネルギースペクトルを測定した。測定領域は電池の外装缶から中心部に向かって深さ 0.42 mm の領域であり、この領域に最外層の負極、対極となる正極層、2 層目の負極層がある。得られたコンプトン散乱 X 線のエネルギースペクトルに対し、その形状を数値化することで ( $S$  パラメータ解析と呼ぶ) [K. Suzuki et al., J. Appl. Phys., 119, 025103 (2016)]、Fig. 3(c)と(d)に示す充放電中の  $S$  パラメータ分布を得た。以前の研究から、 $S$  パラメータと電極内のリチウム量との間に線形関係が成り立つことを確認している。Fig. 3(a)は電池の概略図と測定範囲を示す。Fig. 3 (b) は測定領域におけるコンプトン散乱 X 線強度プロファイルである。電池の充電と放電は、それぞれ  $\pm 350$  mA の定電流を 9 時間流すことで行った。Fig. 3(c)と(d)において、 $0.125$  mm  $< z < 2$  mm 付近が最外層の負極であり、 $0.22$  mm  $< z < 0.23$  mm 付近がセパレータ、 $0.24$  mm  $< z < 0.285$  mm 付近が対極の正極層に対応する。まず着目すべき点として、充電深度の増加とともに 18650 型電池内部の位置が全体的に外側に向かって移動し、一方、放電が進むにつれて充電

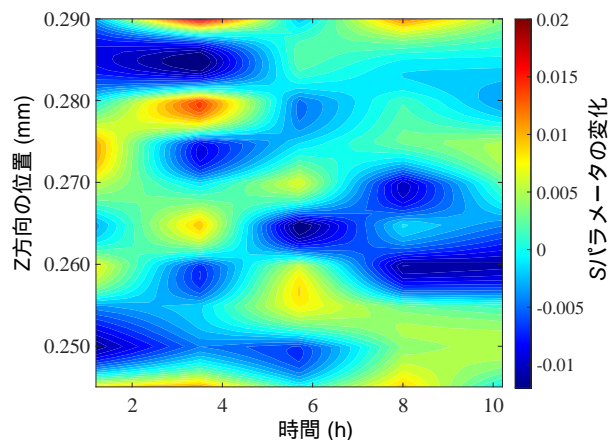


Fig. 4.  $S$  パラメータの時空間パターン

前の位置に戻るように全体的に中心部に向かって移動する様子が見て取れる。これは、充放電により 18650 型電池内部の膨張・収縮に対応すると考えている。充放電に伴う  $S$  パラメータの変化を調べるために、正極層全体と負極層全体の  $S$  パラメータを平均化し、充電時間に対する変化を調べた結果、負極層から得られた  $S$  パラメータは充電によって増加し、放電によって減少する変化を示した。これは充電によって負極内でリチウム量が増加し、放電によって負極内のリチウム量が減少することに対応すると考えている。また、充放電によって流れる電気量からリチウム量を換算すると、充電により負極内のリチウム量が 0.07 から 0.77 に変化することがわかった。一方、正極層全体から得られた平均の  $S$  パラメータの変化を調べた結果、負極か



ら得られた  $S$  パラメータと逆の変化を示し、充電によって減少し、放電によって増加する変化を示した。このことからコンプトン散乱法によって、巻回体電池の電極層 1 層のリチウム反応を測定できることが可能となった。

最後に、正極層の厚さ方向のリチウム反応の解析を行った。正極層の厚さ方向の  $S$  パラメータを調べたところ、5 時間ほどの周期で振動を示すような変化が見られた。そこで、充電時における正極深さ方向の  $S$  パラメータに対して振動成分を抽出することで Fig. 4 に示す  $S$  パラメータの時空間パターンが得られた。 $S$  パラメータの時空間パターンをフーリエ解析した結果、空間的な振動周期は 0.02 mm であり、時間的な振動周期は 6 時間程度であることがわかった。この  $S$  パラメータの時間的な振動周期は、充電曲線の振動の時間周期に対応しており、充電曲線の振動周期とリチウム反応パターンの周期に相関があることがわかった。このような反応パターンの生成要因として、リチウムイオンの伝導速度と電子の伝導速度が異なることに起因すると考えている。そのため、充放電速度によってパターンが変化する可能性があり、リチウムイオンと電子の伝導速度が最適化されるような充放電速度でリチウムイオン電池を設計することで高性能化できることが期待される。

### (3) ナトリウム二次電池用金属間化合物 $\text{Na}_{3-x}\text{Bi}$ ( $x = 1, 2, 3$ ) の電子状態解析

$\text{Na}_{3-x}\text{Bi}$  ( $x = 1, 2, 3$ ) 粉末をコンプトン散乱法に適用した。試料のナトリウム組成は化学的に変化させ、構造は X 線回折によって確認した。X 線回折パターンから、いずれのナトリウム組成の試料も単層であることを確認した。Fig. 5 に  $\text{Na}_{3-x}\text{Bi}$  ( $x = 1, 2, 3$ ) 粉末から得られた価電子のコンプトンプロファイルを示す。価電子のコンプトンプロファイルは、全電子によるコンプトンプロファイルから、内殻電子によるコンプトンプロファイルを差し引くことで求めた。価電子の寄与として、 $\text{Na } 3s$  電子、 $\text{Bi } 6s$  電子と  $6p$  電子を仮定した。得られた価電子のコンプトンプロファイルは  $\text{Na}$  量の違いにより、その形状が異なることを確認した。これは  $\text{Na}$  が挿入・脱離することで電子状態が変化することを示唆している。現在、詳細な電子状態を明らかにするため、第一原理計算結果との比較を行っている。

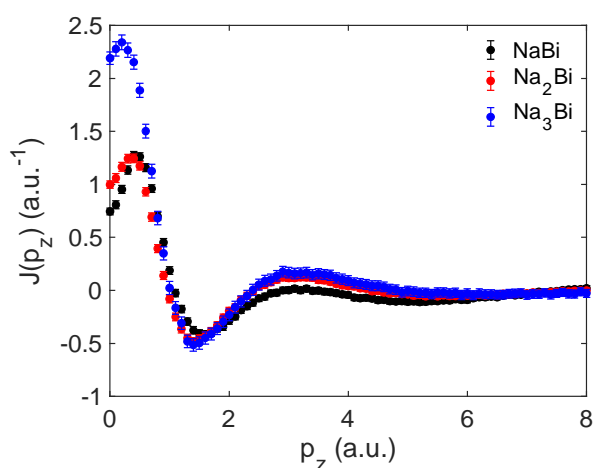


Fig. 5.  $\text{Na}_{3-x}\text{Bi}$  ( $x = 1, 2, 3$ ) のコンプトンプロファイル

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 3件）

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Suzuki Kosuke, Suzuki Shunta, Otsuka Yuji, Tsuji Naruki, Jalkanen Kirsi, Koskinen Jari, Hoshi Kazushi, Honkanen Ari-Pekka, Hafiz Hasnain, Sakurai Yoshiharu, Kanninen Mika, Huotari Simo, Bansil Arun, Sakurai Hiroshi, Barbiellini Bernardo       | 4. 巻<br>118                   |
| 2. 論文標題<br>Redox oscillations in 18650-type lithium-ion cell revealed by <i>in operando</i> Compton scattering imaging   | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>Applied Physics Letters  | 6. 最初と最後の頁<br>161902 ~ 161902 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1063/5.0048310  | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する                  |
| 1. 著者名<br>Hafiz Hasnain, Suzuki Kosuke, Barbiellini Bernardo, Tsuji Naruki, Yabuuchi Naoaki, Yamamoto Kentaro, Oriyasa Yuki, Uchimoto Yoshiharu, Sakurai Yoshiharu, Sakurai Hiroshi, Bansil Arun, Viswanathan Venkatasubramanian                             | 4. 巻<br>594                   |
| 2. 論文標題<br>Tomographic reconstruction of oxygen orbitals in lithium-rich battery materials   | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>Nature   | 6. 最初と最後の頁<br>213 ~ 216       |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1038/s41586-021-03509-z   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する                  |
| 1. 著者名<br>Suzuki Kosuke, Otsuka Yuji, Hoshi Kazushi, Sakurai Hiroshi, Tsuji Naruki, Yamamoto Kentaro, Yabuuchi Naoaki, Hafiz Hasnain, Oriyasa Yuki, Uchimoto Yoshiharu, Sakurai Yoshiharu, Viswanathan Venkatasubramanian, Bansil Arun, Barbiellini Bernardo | 4. 巻<br>7                     |
| 2. 論文標題<br>Magnetic Compton Scattering Study of Li-Rich Battery Materials  | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>Condensed Matter   | 6. 最初と最後の頁<br>4 ~ 4           |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.3390/condmat7010004   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する                  |
| 1. 著者名<br>Suzuki Kosuke, Otsuka Yuji, Tsuji Naruki, Hoshi Kazushi, Sakurai Yoshiharu, Sakurai Hiroshi  | 4. 巻<br>10                    |
| 2. 論文標題<br>Identifying the Degradation Mechanism in Commercial Lithium Rechargeable Batteries via High-Energy X-ray Compton Scattering Imaging   | 5. 発行年<br>2020年               |
| 3. 雑誌名<br>Applied Sciences   | 6. 最初と最後の頁<br>5855 ~ 5855     |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.3390/app10175855  | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている（また、その予定である）  | 国際共著<br>-                     |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Suzuki Kosuke, Suzuki Shunta, Otsuka Yuji, Tsuji Naruki, Jalcanen Kirsi, Koskinen Jari, Hoshi Kazushi, Honkanen Ari-Pekka, Hafiz Hasnain, Sakurai Yoshiharu, Kanninen Mika, Huotari Simo, Bansil Arun, Sakurai Hiroshi, Barbiellini Bernardo | 4. 巻<br>118                   |
| 2. 論文標題<br>Redox oscillations in 18650-type lithium-ion cell revealed by in operando Compton scattering imaging  | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>Applied Physics Letters  | 6. 最初と最後の頁<br>161902 ~ 161902 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1063/5.0048310  | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている (また、その予定である)   | 国際共著<br>-                     |

|   |                  |
|---|------------------|
| 1. 著者名<br>K. Suzuki, A.-P. Honkanen, N. Tsuji, K. Jalcanen, J. Koskinen, H. Morimoto, D. Hiramoto, A. Terasaka, H. Hafiz, Y. Sakurai, M. Kanninen, S. Huotari, A. Bansil, H. Sakurai and B. Barbiellini | 4. 巻<br>4        |
| 2. 論文標題<br>High-Energy X-Ray Compton Scattering Imaging of 18650-type Lithium-ion Battery Cell  | 5. 発行年<br>2019年  |
| 3. 雑誌名<br>Condensed Matter  | 6. 最初と最後の頁<br>66 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.3390/condmat4030066  | 査読の有無<br>有       |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている (また、その予定である)  | 国際共著<br>該当する     |

|  |                      |
|--|----------------------|
| 1. 著者名<br>H. Hafiz, K. Suzuki, B. Barbiellini, Y. Orikasa, S. Kaprzyk, N. Tsuji, K. Yamamoto, A. Terasaka, K. Hoshi, Y. Uchimoto, Y. Sakurai, H. Sakurai and A. Bansil | 4. 巻<br>100          |
| 2. 論文標題<br>Identification of ferrimagnetic orbitals preventing spinel degradation by charge ordering in Li <sub>x</sub> Mn <sub>2</sub> O <sub>4</sub>                 | 5. 発行年<br>2019年      |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review B  | 6. 最初と最後の頁<br>205104 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/PhysRevB.100.205104  | 査読の有無<br>有           |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する         |

〔学会発表〕 計13件 (うち招待講演 5件 / うち国際学会 8件)

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>K. Suzuki, H. Sakurai, N. Tsuji, Y. Sakurai, Y. Orikasa, Y. Uchimoto, A.-P. Honkanen, K. Jalcanen, J. Koskinen, H. Hafiz, M. Kanninen, S. Huotari, A. Bansil and B. Barbiellini |
| 2. 発表標題<br>Non-destructive imaging of the light elements in the functional materials using high-energy X-ray Compton scattering  |
| 3. 学会等名<br>International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials 2021 (招待講演) (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2021年 ~ 2022年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>K. Suzuki, S. Suzuki, Y. Otsuka, N. Tsuji, K. Jalkanen, J. Koskinen, K. Hoshi, A.-P. Honkanen, H. Hafiz, Y. Sakurai, M. Kanninen, S. Huotari, A. Bansil, H. Sakurai, and B. Barbiellini |
| 2. 発表標題<br>Redox oscillations in 18650-type lithium-ion cell revealed by in-operando Compton scattering imaging  |
| 3. 学会等名<br>25th Congress and General Assembly of the International Union of Crystallography (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2021年～2022年  |

|                                       |
|---------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>鈴木宏輔                       |
| 2. 発表標題<br>高エネルギーX線コンプトン散乱によるリチウム電池研究 |
| 3. 学会等名<br>SPRING-8シンポジウム2021 (招待講演)  |
| 4. 発表年<br>2021年～2022年                 |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>K. Suzuki, S. Suzuki, Y. Otsuka, N. Tsuji, K. Jalkanen, J. Koskinen, K. Hoshi, A.-P. Honkanen, H. Hafiz, Y. Sakurai, M. Kanninen, S. Huotari, A. Bansil, H. Sakurai, and B. Barbiellini |
| 2. 発表標題<br>Visualization of spatio-temporal oscillation of electrode reaction in a large electrochemical cell using operando Compton scattering imaging  |
| 3. 学会等名<br>Materials Research Meeting 2021 (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2021年～2022年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>鈴木 宏輔, H. Hafiz, B. Barbiellini, 辻 成希, 藪内 直明, 山本 健太郎, 折笠 有基, 内本 喜晴, 櫻井 吉晴, 櫻井 浩, A. Bansil, V. Viswanathan |
| 2. 発表標題<br>高分解能コンプトン散乱法によるリチウム過剰系正極材料の“孤立した”酸素2p軌道の可視化  |
| 3. 学会等名<br>第35回日本放射光学会年会 放射光科学合同シンポジウム  |
| 4. 発表年<br>2021年～2022年   |



|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>鈴木 宏輔, 鈴木 駿太, 大塚 祐司, 辻 成希, K. Jalkanen, J. Koskinen, 星 和志, A.-P. Honkanen, H. Hafiz, 櫻井 吉晴, M. Kanninen, S. Huotari, A. Bansil, 櫻井 浩, B. Barbiellini |
| 2. 発表標題<br>コンプトン散乱イメージングによる18650型 リチウムイオン電池の電極反応パターンのおペランド観測  |
| 3. 学会等名<br>第35回日本放射光学会年会 放射光科学合同シンポジウム  |
| 4. 発表年<br>2021年～2022年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>K. Suzuki, N. Tsuji, Y. Orikasa, Y. Uchimoto, Y. Sakurai and H. Sakurai                                     |
| 2. 発表標題<br>Compton Scattering Imaging for Operando Observation of Lithiation State on Commercial Lithium Battery Cells |
| 3. 学会等名<br>Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science (PRIME) 2020 (国際学会)                          |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>K. Suzuki, D. Hiramoto, N. Tsuji, K. Jalkanen, J. Koskinen, A.-P. Honkanen, H. Hafiz, Y. Sakurai, M. Kanninen, S. Huotari, A. Bansil, H. Sakurai and B. Barbiellini |
| 2. 発表標題<br>High-Energy X-ray Compton Scattering Imaging for In-Situ Observation of Large-Size Lithium Cells  |
| 3. 学会等名<br>International Conference on Technology and Social Science 2020 (ICTSS 2020) (招待講演) (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>大塚祐司, 鈴木宏輔, 辻成希, 星和志, 櫻井吉晴, 櫻井浩               |
| 2. 発表標題<br>コンプトン散乱X線強度及びS-parameterを用いたLiイオン2次電池の評価手法の開発 |
| 3. 学会等名<br>第34回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム                   |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>K. Suzuki   |
| 2. 発表標題<br>Non-destructive Visualizing of Lithium State in the Real Batteries using Compton Scattering Imaging |
| 3. 学会等名<br>Materials Research Meeting 2019 (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>K. Suzuki  |
| 2. 発表標題<br>Quantum Characterization for Functional Materials using High-Energy X-ray Compton Scattering     |
| 3. 学会等名<br>The 10th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2019年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>K. Suzuki, H. Sakurai, N. Tsuji, Y. Sakurai, Y. Orikasa, Y. Uchimoto, H. Hafiz, B. Barbiellini and A. Bansil |
| 2. 発表標題<br>High-Energy X-ray Compton Scattering for Non-destructive and Quantum Characterization in Batteries           |
| 3. 学会等名<br>The 11th International Conference on Inelastic X-ray Scattering (招待講演) (国際学会)                                |
| 4. 発表年<br>2019年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>鈴木宏輔, H. Hafiz, B. Barbiellini, 折笠有基, K. Stanislas, 辻成希, 山本健太郎, 星和志, 内本喜晴, 櫻井吉晴, A. Bansil, 櫻井浩 |
| 2. 発表標題<br>磁気コンプトンプロファイルによるLi <sub>x</sub> Mn <sub>2</sub> O <sub>4</sub> の磁気構造                            |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会2019年秋季大会   |
| 4. 発表年<br>2019年  |

〔図書〕 計1件

|  |                 |
|--|-----------------|
| 1. 著者名<br>(分担執筆) 鈴木宏輔, 櫻井浩   | 4. 発行年<br>2019年 |
| 2. 出版社<br>株式会社科学技術協会   | 5. 総ページ数<br>400 |
| 3. 書名<br>リチウムイオン電池の分析 解析と評価技術 (高エネルギーX線コンプトン散乱法を用いたリチウム二次電池電極内部の非破壊分析) |                 |

〔産業財産権〕

〔その他〕

|   |
|---|
| <p>充電中の円筒型リチウムイオン実電池内で電極反応の自己組織化パターンを観測<br/> <a href="https://www.st.gunma-u.ac.jp/20210420-eisuzuki/">https://www.st.gunma-u.ac.jp/20210420-eisuzuki/</a><br/>                 高エネルギーX線散乱によりリチウム過剰系正極材料に特徴的なアニオンの酸化還元軌道を可視化<br/> <a href="https://www.st.gunma-u.ac.jp/20210610-eisuzuki/">https://www.st.gunma-u.ac.jp/20210610-eisuzuki/</a></p> |
|---|

6. 研究組織

| 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関                 |                            |                        |  |
|---------|-------------------------|----------------------------|------------------------|--|
| フィンランド  | LUT University          | University of Helsinki     | Akkurate Oy            |  |
| 米国      | Northeastern University | Carnegie Mellon University |                        |  |
| フィンランド  | LUT University          | Akkurate Oy                | University of Helsinki |  |
| 米国      | Northeastern University | Carnegie Mellon University |                        |  |
| 米国      | Northeastern University | Carnegie Mellon University |                        |  |
| フィンランド  | LUT University          | Akkurate Oy                | University of Helsinki |  |

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関                                  |  |  |  |
|---------|--|--|--|--|
| ポーランド   | AGH University of Science and Technology |  |  |  |