

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 28 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K15375

研究課題名(和文) オペランドX線スペクトロタイコグラフィー計測の蓄電池材料の反応可視化への応用

研究課題名(英文) Chemical State Visualization of Battery Materials by Operando X-ray Spectro-Ptychography

研究代表者

石黒 志 (Ishiguro, Nozomu)

東北大学・国際放射光イノベーション・スマート研究センター・助教

研究者番号：20752455

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、充放電過程でのリチウム蓄電池正極活物質粒子および電極界面付近の化学状態分布を可視化するためタイコグラフィXAFS法含む各種イメージングXAFS計測を行い、粒子内・粒子界面でのイオン輸送・拡散現象に関する未知なる構造-機能相関性を抽出することを目指した。スピネル型マンガン-ニッケル酸リチウム(LNMO)粒子内部のタイコグラフィXAFS計測を行い、LNMO粒子内のMn・Ni組成・化学状態の不均一性を示唆する分布を捉える事に成功した。また、Li過剰バナジウム酸化物系正極活物質、薄膜全固体電池系などへの計測実験を行い、内部化学状態の可視化に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果により、「不均一・複雑な機能性材料系中に潜む埋没した構造-機能相関の発掘する」という課題に対し、「多次元顕微分光測定」、「オペランド計測」、「高度情報処理」を高度に融合させた、材料機能可視化の解析プロトコルをしめすことができた。今後このプロセスをあらゆる機能性材料系に適用することにより、試料の背後に潜んでいる材料機能との未知なる相関性を可視化・定量化し、材料設計へフィードバックしていく可能になることが期待できる。

研究成果の概要(英文)：In this study, various imaging XAFS measurements, including tycho-graphic XAFS, were performed to visualize the chemical state distribution of lithium battery cathode active material particles and the electrode interface during the charge-discharge process. The aim of this study was to extract unknown structure-function correlations related to ion transport and diffusion phenomena within and at particle interfaces. Tycho-graphic XAFS measurements inside spinel-type lithium manganese-nickelate (LNMO) particles have been performed, and the distributions suggesting heterogeneity of Mn and Ni compositions and chemical states within LNMO particles have been successfully captured. In addition, we succeeded in visualizing the internal chemical state of the LNMO particles by conducting measurement experiments on Li-rich vanadium oxide cathode active materials and thin-film all-solid-state battery systems.

研究分野：放射光科学

キーワード：X線タイコグラフィ X線吸収微細構造 蓄電材料粒子 オペランド計測

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

現代生活に欠かせない蓄電池、燃料電池、触媒などの実用的な機能性材料は、複数の物質が原子配置(Å オーダー)、粒子・ドメイン構造(nm~µm オーダー)、メンブレン・セル(mm~オーダー)というマイクロ-メゾ-マクロに渡る広大な空間スケールで、不均一でかつ複雑に組み合わさり、互いに相互作用しながら働くことで、特徴的な物質変換・エネルギー変換といった材料機能が発現する。より高効率に材料機能を引き出すためには、不均一・複雑な実機能性材料系での反応・構造変化を、可能な限りありのままの姿で観察した上で、通常の分光計測では平均化される不均一な化学状態パラメータと、その背後に潜んでいる材料機能との未知なる相関性を可視化・定量化し、材料設計へフィードバックしていく必要がある。この「不均一・複雑な機能性材料系中に潜む埋没した構造-機能相関の発掘する」という学術的な問いは、単純・平均化したモデル系では不可能で、実材料系での「多次元顕微分光測定」、「オペランド計測」、「高度情報処理」を高度に融合させた、材料機能可視化の解析プロトコルを確立する必要がある。顕微分光の中でも硬 X 線をプローブとした、X 線スペクトロイメーシングは、最小 10 nm オーダーの空間分解能で材料の局所電子・配位構造を明らかで、高い透過性を有することから TEM-EELS などの電子顕微鏡に比べ厚い試料や、オペランド計測に必要な雰囲気下での計測と相性がよい。また、計測から得られた可視化データはそれ自体が膨大なデータベースとなることから、近年、発達著しい情報処理技術が未知なる相関性発掘の強力なツールとなる。

2. 研究の目的

本研究提案では、全固体電池などで使われる固体イオクス材料をターゲット機能性材料系として、その複雑な系中に潜むイオン輸送・拡散現象に関する構造-機能相関の可視化を一例に、オペランド X 線スペクトロイメーシング計測と高度情報処理との連携した材料機能可視化アプローチの確立を目指した。

3. 研究の方法

(1) タイコグラフィ-XAFS 計測による蓄電池材料粒子内部の化学状態可視化

µm オーダーサイズの蓄電池材料粒子内部の化学状態分布の可視化を行うためにスピネル型 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ (LNMO) など各種電池材料粒子系について適用した。10 nm オーダーの航空界分解能を有するタイコグラフィ XAFS 法を用いた計測・解析を Ni/Mn の不規則配列状態にある 3-5µm 粒子サイズのスピネル型 LNMO 粉体を、 Si_3N_4 薄膜基盤上に分散、担持させたものを計測試料としてタイコグラフィ-XAFS 計測を SPring-8 BL29XUL にて行った。試料を真空度 0.1 Pa 以下に保たれた試料チャンバの中に配置し、Si(111)二結晶分光器により単色化された入射 X 線を、Kirzpartrick - Baez (KB) ミラーによって半値全幅 300 nm 程度に集光し、試料に照射した。試料粒子上を入射 X 線が重複するようなステップサイズ(100 nm)で試料基板をピエゾステージにより走査し、各走査点で、試料のコヒーレント回折パターンを下流の X 線カメラで計測していった。この計測を Mn-K および Ni-K 各吸収端近傍の入射 X 線エネルギーで行い、計 18000 枚ほどの回折強度パターンを約 18 時間かけて取得した。計測した各入射 X 線エネルギー点での回折パターンのデータセットを extended-ptychographic iterative engine (ePIE) というアルゴリズムを用いた位相回復計算による画像再構成を行い、LNMO 粒子の振幅(吸収)像、位相像を得た。再構成した試料吸収・位相像をエネルギー方向にスタックすることにより、空間分解 XAFS スペクトル及び位相スペクトルを取得した。得られたピクセル単位の空間分解 XAFS スペクトルや位相スペクトルをカーブフィッティング解析により、Mn/Ni の元素分布や価数状態、試料全体電子密度投影の化学状態パラメータを抽出し、各パラメータに対する化学状態マッピングイメージを取得した。更に得られた化学状態マップを高次元のデータ空間に展開し、データ空間内でのデータクラスタリングを実施することによって、化学状態パラメータとその空間分布傾向について相関解析を行った。一連のタイコグラフィ-XAFS 解析を LNMO 粒子系だけではなく、Li 過剰バナジウム酸化物系正極活物質粒子(V-K 端)など、多様な蓄電池系にも適用して、計測・解析を行った。

(2) オペランド結像型顕微 XAFS 計測による薄膜型全固体電池正極層の化学状態可視化

この研究項目では、全固体電池の正極・固体電解質界面の 3 次元化学状態イメージングを目指して、電池機能を維持しつつもコンピューター断層撮影計測(CT)に最適化した、薄膜電池試料の微細加工を行い、X 線顕微分光によるオペランド化学状態イメージングの検討を行った。正極に LiCoO_2 (LCO)、固体電解質に $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x(\text{Ti,Ge})_{2-x}\text{Si}_y\text{P}_{3-y}\text{O}_{12}$ (LATGP)、負極に $\text{Fe}_2(\text{MoO}_4)_3$ (FMO) を用い両極を Pt 薄膜で保護した薄膜電池(厚さ~50µm)を計測用試料ホルダに固定し、その一部を集光イオンビーム(FIB)による微細加工を行った。電池の薄膜積層構造を維持したまま、FIB により切り出し、面内幅を X 線結像 CT 計測の投影視野範囲内に収まる 10-50 µm 程度の大きさにした。微細加工した試料を SPring-8 BL37XU に持ち込み充放電前後での Co-K 端近傍で結像顕微 CT-XAFS 計測を行った。1 試料・1 条件当たり 6 時間の計測時間を要した。得られた計測画像を各入射 X エネルギー・各投影角度の吸収像に変換し、CT 再構成を行った。再構成吸収像の工

エネルギースタックは 3 次元空間分解 XAFS となり、ピクセル単位のスペクトル解析から正極層内の面内・断面方向での化学状態分布傾向を検討した。

4. 研究成果

(1) タイコグラフィ-XAFS 計測による蓄電池材料粒子内部の化学状態可視化

a. スピネル型 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ (LNMO) 粒子系

スピネル型 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ (LNMO) は高いエネルギー密度 ($\sim 650 \text{ Wh kg}^{-1}$), 5 V 級の高い作動電圧といった特性から次世代のリチウムイオン電池正極材料と期待されている。その一方で充放電に伴う充放電容量の著しい低下など耐久性が課題となっている。LNMO 粒子の諸特性に寄与する因子として粒子レベル及び内部での局所的な結晶構造が挙げられるが、それが粒子内でのどのように分布しているかはわかっていない。例えば、スピネル型 LNMO は $P4_332$ 空間群に属す Mn と Ni が超格子配列を有する規則型と、 $Fd3m$ 空間群に属す Mn と Ni が無秩序に占有する不規則型の 2 種の結晶構造が知られている。ただ、特に後者の構造において、粒子内局所的に短距離秩序などの存在が潜在的に考えられるが、それを可視化できる手段がこれまでなかった。そこで、LNMO 粒子の劣化と微細構造・化学状態の関係性を検討するため Mn-K 及び Ni-K 吸収端でのタイコグラフィ-XAFS 計測を行った。

用意ターゲットとなるスピネル型 LNMO 材料はマクロレベルでは XRD により $Fd3m$ 不規則型 LNMO にある事が示されている。規則型 LNMO が Mn^{4+} , Ni^{2+} なのに対し、不規則型 LNMO は Mn が部分的に還元 ($\text{Mn}^{(4-x)+}$)、Ni が部分的に酸化 ($\text{Ni}^{(2+3x)+}$) した価数を取ることが知られている。今回の試料のサイクリックボルタンメトリ実験では充放電過程において $\sim 4.2 \text{ V vs. Li/Li}^+$ の $\text{Mn}^{3+}/\text{Mn}^{4+}$ と $\sim 4.7 \text{ (V vs. Li/Li}^+)$ の $\text{Ni}^{2+}/\text{Ni}^{3+}$ および $\text{Ni}^{3+}/\text{Ni}^{4+}$ の料金属の酸化還元反応が観測されている。この LNMO 粉体から Si_3N_4 薄膜基板上へ粒子を粒子分散担持したものを計測試料としてタイコグラフィ-XAFS 計測を Mn-K 及び Ni-K 吸収端近傍で実施した。

その結果 Mn-K 端近傍では約 80 nm, Ni-K 端近傍では、60 nm よりも優れた空間分解能で再構成吸収・位相像を取得し、空間分解 XAFS スペクトル・位相スペクトルの取得に成功した。空間分解 XAFS スペクトル・位相スペクトルのカーブフィッティング解析から元素・電子分布や化学状態を反映するパラメータのマップ画像を取得した。特に、Mn と Ni の元素組成比を反映する $N_{\text{Mn}}/(N_{\text{Mn}} + N_{\text{Ni}})$ 、(Mn+Ni) に対する全電子数のモル比を示す $N_e^{\text{eff}}/(N_{\text{Mn}} + N_{\text{Ni}})$ 、Mn 価数を反映するホワイトライン強度 WL_{Mn} に注目すると、各パラメータに空間的不均一性があり、LNMO 粒子内に組成、Mn 価数そして Ni 価数の不均一な分布を可視化することに成功した。化学状態パラメータに不均一な分布があることが明らかになったが、依然どのような因果関係でこのような分布が観測されているのかは不明であるので、更なる解析を行った。ここで、組成および価数との間には、その相構造ごとに固有な相関・集合性を持つと仮定し、 $N_{\text{Mn}}/(N_{\text{Mn}} + N_{\text{Ni}})$ 、 $N_e^{\text{eff}}/(N_{\text{Mn}} + N_{\text{Ni}})$ 、 WL_{Mn} の 3 パラメータを次元とするデータ空間へ化学状態イメージを展開し、データ空間内で相関性・集合性を検討した。ガウス混合モデルを使用したデータクラスタリングから化学状態パラメータ間の異なる相関関係を抽出した結果、統計的に 3 つの独立した相関係 (G_1, G_2, G_3) がある事がわかった。統計的に分離した、相関グループであるが、各パラメータ値の傾向から、各グループに化学的解釈を与えることができ、3 グループに仕分けした各サンプル点を実空間上のピクセルへ再変換させると、各相関グループ(構造相)の LNMO 粒子内での分布傾向を明らかにする事に成功した。まず一番占有率の高い G_1 は他グループよりも Ni-rich な傾向を示し、 $N_e^{\text{eff}}/(N_{\text{Mn}} + N_{\text{Ni}})$ が、 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ の理論値一致していたことからマクロスコピックには不規則型であるが、局所的に規則型 LNMO の特徴に近い、ある種の短距離秩序のような構造を捉える事に成功した。次に G_2 は G_1 よりも Mn-rich な傾向を示し Mn^{3+} をより多く含む領域にあることから、相対的により不規則な LNMO 構造であることが推察される。そして、最も少ないグループである G_3 はさらにグループで Li_2MnO_4 や、 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_2$ などの岩塩型不純物相といったマイナー相の可能性が高い。最後に各グループの統計的傾向による化学的解釈と空間分布より、粒子のバルク部は短範囲周期構造をとる G_1 が占めており、粒子外縁部に Mn^{3+} を含む不規則型 LNMO の G_2 およびマイナー相を多く含む G_3 が存在しており、合成段階で不均一な相構造を有していると考えられる。この粒子外縁部に存在する Mn^{3+} やマイナー相の存在は LNMO の電池充放電性能や、Mn の溶出など耐久性との関連が示唆される。そのため、LNMO の性能向上には、 G_2 および G_3 グループの形成を抑えるような合成方法が望まれるといえる。

以上の結果より、タイコグラフィ-XAFS 法を用いて LNMO 粒子を計測し、データクラスタリングを活用することで、XRD 等では得られなかったようなナノスケールでの相構造の不均一性を明らかにし、LNMO 粒子の劣化と関連する相構造の分布を可視化することに成功した。

b. Li 過剰バナジウム酸化物系正極活物質粒子

Li 過剰岩塩型酸化物 ($\text{Li}_x\text{Tm}_{2-x}\text{O}_2$; $x > 1.1$, Tm: Co, Ni, Mn, V, Ti, Mo etc.) は、高い充放電容量と優れた充放電レート特性もつ材料として注目されているが、メカニカルミリング法による固相での複合化、粒子のナノサイズ化により合成されることが多いことから潜在的な不均一性を

有していることが考えられる。この不均一な微細構造・化学状態の中で、組成、価数、軌道対称性がどのように充放電容量および充放電レート特性に寄与しているかを明らかにする為メカニカルミリング法によって合成された $0.25\text{Li}_2\text{O}-0.75\text{LiVO}_2$ 酸化物 ($\text{Li}_{1.07}\text{V}_{0.67}\text{O}_2$) 粒子の合成直後および化学的 Li^+ 脱離処理により半充電後を模擬した状態の微細構造・化学状態イメージングを行った。タイコグラフィ-XAFS法を $\text{Li}_{1.07}\text{V}_{0.67}\text{O}_2$ 粒子の V-K 吸収端空間分解 XAFS スペクトルの取得に成功した。各ピクセルの XAFS スペクトルのカーブフィッティング解析により V 価数や、 $(\text{Li}+\text{O})/\text{V}$ 元素組成比、V 原子軌道対称性を反映する pre-edge ピーク強度について、そして、メカニカルミリング合成直後および Li^+ 脱離後の粒子内・粒子間で不均一な化学状態を確認することができた。この結果は合成直後においても表面から酸化されたと考えられる粒子が存在していた一方で、 Li^+ 脱離処理後も V 価数が低く Li^+ 脱離/挿入反応性の悪い粒子も存在しており、 Li^+ 脱離反応を阻害し、正極活物質としての充放電容量に影響する構造因子がある事が示された。

(2)オペランド結像型顕微 XAFS 計測による薄膜型全固体電池正極層の化学状態可視化

リチウムイオン全固体電池は固体の電解質を用いるために、通常のリチウムイオン電池よりも安全性が高く、広い作動領域・高いエネルギー密度があり次世代の蓄電池として期待されている。一方で、正極活物質と固体電解質界面などでのリチウムイオン移動抵抗が大出力化や耐久性への課題となっている。本研究では、全固体電池の正極・固体電解質界面の 3 次元化学状態イメージングを目指して、電池機能を維持しつつもコンピューター断層撮影計測に最適化した、薄膜電池試料の微細加工を行い、X 線顕微分光によるオペランド化学状態イメージングを行い、全固体電池正極層の劣化による化学状態の変化の可視化を検討した。

ターゲット固体電池試料に正極に LCO、固体電解質に LATGP、負極に FMO が積層された構造のものを用意した。板状形状の CT 計測においては、切り出したままの状態では、特に 90° に近い斜入射方向で、試料内を通過する X 線の光路が長くなり X 線吸収量が大きくなってしまい CT 再構成が難しくなる事から、集束イオンビーム(FIB)を用いて、薄膜電池の X 線吸収量を XAFS 解析最適になるように幅、高さを共に $25\ \mu\text{m}$ になるように加工した。加工前後での電気化学測定によりこの FIB 加工による電池性能への影響は殆ど無いことを確かめた。オペランド結像顕微 CT-XAFS 計測は、最外郭輪幅は $50\ \text{nm}$ のフレネルゾーンプレートを結像レンズとして使用し試料像の空間分解能は $50\sim 100\ \text{nm}$ 程度に設定した。加工した薄膜電池をステンレス製の計測用ホルダに接着し、その電池上面には金ワイヤーを接続することにより、ポテンショスタットとの接続、充放電操作ができるようにした。充放電各状態に対応する電圧に薄膜電池を保持しながら、試料を -90° から 90° まで投影角度で回転させながら Co-K 吸収端近傍の複数のエネルギーの入射 X 線を照射し、下流で結像された投影(吸収像)を X 線カメラで撮影した。まず断面方向における 2 次元吸収像に注目した。薄膜電池断面方向の吸収像は明確に正極・固体電解質・負極の 3 層を見分けることができ、薄膜の深さ方向の分析が可能なイメージの取得に成功した。この断面方向の試料吸収像の X 線エネルギースタックは断面方向への空間分解(深さ分解)XAFS に対応し、充放電の条件、サイクル試験劣化状態によって、正極 LCO 層内部の Co 化学状態に分布傾向の違いを捉える事に成功した。また、試料回転により得られた各 X 線エネルギーにおける吸収像に対して CT 再構成を行い、3 次元空間分解 XAFS を得ることに成功し、断面方向の化学状態変化に加え、面内方向の分布を可視化する事に成功した。

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 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ishiguro Nozomu, Higashino Takaya, Hirose Makoto, Takahashi Yukio	4. 巻 26
2. 論文標題 Nanoscale Visualization of Phase Transition in Melting of Sn-Bi Particles by In situ Hard X-ray Ptychographic Coherent Diffraction Imaging	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Microscopy and Microanalysis	6. 最初と最後の頁 878 ~ 885
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1017/S1431927620024332	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -
1. 著者名 Kang Jungmin, Takazawa Shuntaro, Ishiguro Nozomu, Takahashi Yukio	4. 巻 29
2. 論文標題 Single-frame coherent diffraction imaging of extended objects using triangular aperture	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 1441 ~ 1453
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.414341	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -
1. 著者名 Uematsu Hideshi, Ishiguro Nozomu, Abe Masaki, Takazawa Shuntaro, Kang Jungmin, Hosono Eiji, Nguyen Nguyen Duong, Dam Hieu Chi, Okubo Masashi, Takahashi Yukio	4. 巻 12
2. 論文標題 Visualization of Structural Heterogeneities in Particles of Lithium Nickel Manganese Oxide Cathode Materials by Ptychographic X-ray Absorption Fine Structure	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 5781 ~ 5788
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.1c01445	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -
1. 著者名 Takazawa Shuntaro, Kang Jungmin, Abe Masaki, Uematsu Hideshi, Ishiguro Nozomu, Takahashi Yukio	4. 巻 29
2. 論文標題 Demonstration of single-frame coherent X-ray diffraction imaging using triangular aperture: Towards dynamic nanoimaging of extended objects	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 14394 ~ 14394
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.419998	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -

1. 著者名 Kang Jungmin, Takazawa Shuntaro, Ishiguro Nozomu, Takahashi Yukio	4. 巻 29
2. 論文標題 Single-frame coherent diffraction imaging of extended objects using triangular aperture	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 1441 ~ 1441
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.414341	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -

1. 著者名 Abe Masaki, Kaneko Fusae, Ishiguro Nozomu, Kudo Togo, Matsumoto Takahiro, Hatsui Takaki, Tamenori Yusuke, Kishimoto Hiroyuki, Takahashi Yukio	4. 巻 28
2. 論文標題 Development and application of a tender X-ray ptychographic coherent diffraction imaging system on BL27SU at SPring-8	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 1610 ~ 1615
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600577521006263	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -

1. 著者名 Ishiguro Nozomu, Takahashi Yukio	4. 巻 55
2. 論文標題 Method for Restoring of X-ray Absorption Fine Structure in Sparse Spectroscopic Ptychography	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Crystallography	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス 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 -

〔学会発表〕 計29件 (うち招待講演 8件 / うち国際学会 9件)

1. 発表者名 石黒志, 高橋幸生, 細野英司, 大久保将史
2. 発表標題 タイコグラフィXAFS法による充放電過程におけるチタン酸リチウム粒子の化学状態可視化
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第33回秋季シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 石黒志
2. 発表標題 X線イメージングと分光の組み合わせによる機能性材料系の化学状態解析
3. 学会等名 第12回日本放射光学会 放射光基礎講習会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 石黒志
2. 発表標題 タイコグラフィXAFS計測による物質構造-機能関連の空間可視化
3. 学会等名 第3回日本表面真空学会若手部会研究会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 上松英司, 石黒志, 阿部真樹, 高澤駿太郎, 姜正敏, 細野英司, 大久保将史, 高橋幸生
2. 発表標題 硬X線タイコグラフィXAFS法によるLiNi0.5Mn1.5O4正極活物質粒子の化学状態可視化
3. 学会等名 第20回東北大学多元物質科学研究所発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 阿部真樹, 金子房恵, 石黒志, 為則 雄祐, 岸本浩通, 高橋幸生
2. 発表標題 テンダーX線タイコグラフィの基盤技術開発とその応用展開タイコグラフィXAFS計測による物質構造-機能関連の空間可視化
3. 学会等名 SPring-8シンポジウム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Nozomu Ishiguro, Yukio Takahashi
2. 発表標題 Nano/Meso-scale Chemical State Visualization of Functional Materials Using Ptychography-XAFS
3. 学会等名 The 4th Symposium for The Core Research Cluster for Materials Science and the 3rd Symposium on International Joint Graduate Program in Materials Science (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Nozomu Ishiguro
2. 発表標題 Nano-scale Chemical State Visualization using Ptychography-XAFS
3. 学会等名 Next Generation Spectro-Microscopy and Micro-Spectroscopy Workshop (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 上松英司, 石黒志, 阿部真樹, 高澤駿太郎, 姜正敏, 細野英司, 大久保将史, 高橋幸生
2. 発表標題 硬X線タイコグラフィ XAFS 法による LiNi _{0.5} Mn _{1.5} O ₄ 正極活物質粒子の化学状態可視化
3. 学会等名 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 2021年

1. 発表者名 高澤駿太郎, 姜正敏, 阿部真樹, 上松英司, 石黒志, 高橋幸生
2. 発表標題 三角形開口を用いたシングルフレームコヒーレント X 線回折イメージングの提案
3. 学会等名 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 2021年

1. 発表者名 阿部真樹, 金子房恵, 石黒志, 為則雄祐, 岸本浩通, 高橋幸生
2. 発表標題 テンダーX線領域におけるタイコグラフィ法の開発
3. 学会等名 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 2021年

1. 発表者名 石黒 志
2. 発表標題 コヒーレントX線の最先端利用～タイコグラフィーXAFSの機能性材料解析への応用～
3. 学会等名 第61回SPring-8先端利用技術ワークショップ(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石黒 志
2. 発表標題 X線スペクトロタイコグラフィ法による機能性材料粒子のナノ化学状態イメージング
3. 学会等名 2022年顕微鏡学会第78回学術講演会(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 阿部真樹, 金子房恵, 石黒志, 工藤統吾, 松本崇博, 初井 宇記, 為則雄祐, 岸本浩通, 高橋幸生
2. 発表標題 テンダーX線スペクトロタイコグラフィの開発と含硫黄高分子粒子の化学状態イメージング
3. 学会等名 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 2022年

1. 発表者名 戸塚務、石黒志、姜正敏、山本和生、入山恭寿、高橋幸生
2. 発表標題 全固体電池観察のための薄膜試料微細加工とX線顕微分光によるオペランド化学状態イメージングの検討
3. 学会等名 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 2022年

1. 発表者名 高澤駿太郎、姜正敏、阿部真樹、上松英司、石黒志、高橋幸生
2. 発表標題 三角形開口を用いたシングルフレームコヒーレントX線回折イメージングのための光学系開発
3. 学会等名 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 2022年

1. 発表者名 上松英司、石黒志、戸塚務、阿部真樹、高澤駿太郎、姜正敏、小沼樹、藪内 直明、高橋幸生
2. 発表標題 タイコグラフィ - XAFS法によるLi過剰岩塩型バナジウム酸化物粒子の微細組織・化学状態イメージング
3. 学会等名 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、オンライン
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 阿部真樹、金子房恵、石黒志、為則雄祐、岸本浩通、高橋幸生
2. 発表標題 テンドーX線領域におけるタイコグラフィ-XAFS法の開発と含硫黄高分子粒子の化学状態イメージング
3. 学会等名 第21回東北大学多元物質科学研究所発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高澤駿太郎、姜正敏、阿部真樹、上松英司、石黒志、高橋幸生
2. 発表標題 三角形開口を用いたシングルフレームコヒーレントX線回折イメージング法の開発
3. 学会等名 Optics & Photonics Japan 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 阿部真樹、金子房恵、石黒志、工藤統吾、松本崇博、初井宇記、為則雄祐、岸本浩通、高橋幸生
2. 発表標題 テンドーX線タイコグラフィの基盤技術開発と硫黄高分子材料観察への応用
3. 学会等名 SPring-8シンポジウム2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 阿部真樹、金子房恵、石黒志、工藤統吾、松本崇博、初井宇記、為則雄祐、岸本浩通、高橋幸生
2. 発表標題 テンドーX線タイコグラフィXAFS法の開発と硫黄化学状態のナノスケール分析への応用
3. 学会等名 第24回XAFS討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 上松英司、石黒志、阿部真樹、高澤駿太郎、姜正敏、細野英司、大久保将史、高橋幸生
2. 発表標題 タイコグラフィXAFS法により可視化した蓄電固体材料の化学状態不均一性
3. 学会等名 第24回XAFS討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名	Shuntaro Takazawa, Jungmin Kang, Masaki Abe, Hideshi Uematsu, Nozomu Ishiguro, Yukio Takahashi
2. 発表標題	Development of single-frame coherent X-ray diffraction imaging using triangular aperture
3. 学会等名	International Conference on X-ray Optics and Applications 2022 (XOPT2022) (国際学会)
4. 発表年	2022年

1. 発表者名	Hideshi Uematsu, Nozomu Ishiguro, Masaki Abe, Shuntaro Takazawa, Jungmin Kang, Eiji Hosono, Masashi Okubo, Yukio Takahashi
2. 発表標題	Visualization of Chemical State in Spinel Lithium Nickel Manganese Oxide Particle by X-ray Spectro-Ptychography
3. 学会等名	14 th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation(SRI2021) (国際学会)
4. 発表年	2022年

1. 発表者名	Shuntaro Takazawa, Jungmin Kang, Masaki Abe, Hideshi Uematsu, Nozomu Ishiguro, Yukio Takahashi
2. 発表標題	Single-frame coherent X-ray diffraction imaging using triangular aperture
3. 学会等名	14 th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation(SRI2021) (国際学会)
4. 発表年	2022年

1. 発表者名	Masaki Abe, Fusae Kaneko, Nozomu Ishiguro, Yusuke Tamenori, Hiroyuki Kishimoto, Yukio Takahashi
2. 発表標題	Development of Tender X-ray Ptychography Measurement System
3. 学会等名	14 th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation(SRI2021) (国際学会)
4. 発表年	2022年

1. 発表者名 Nozomu Ishiguro, Yukio Takahashi
2. 発表標題 In Situ Visualization of Chemical States in Functional Materials Using X-ray Ptychography Imaging
3. 学会等名 Pacifichem 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Jungmin Kang, Shuntaro Takazawa, Masaki Abe, Hideshi Uematsu, Nozomu Ishiguro, Yukio Takahashi
2. 発表標題 Proposal and experimental demonstration of single-frame coherent X-ray diffraction imaging using triangular aperture
3. 学会等名 The Korean Physical Society 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hideshi Uematsu, Nozomu Ishiguro, Eiji Hosono, Masaki Abe, Shuntaro Takazawa, Jungmin Kang, Masashi Okubo, Yukio Takahashi
2. 発表標題 Visualization of Structural Heterogeneities in Spinel Lithium Nickel Manganese Oxide Particle by Ptychography-XAFS
3. 学会等名 XAFS 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Nozomu Ishiguro
2. 発表標題 Nano-scale Chemical State Visualization of Functional Materials Using Ptychography-XAFS
3. 学会等名 International Conference on X-ray Optics and Applications 2021 (XOPT2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

電池材料粒子内部の高精細な可視化に成功 -多次元イメージング計測とデータ科学の連携 <https://www.tohoku.ac.jp/japanese/2021/06/press20210630-01-li.html>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	上松 英司 (Uematsu Hideshi)	東北大学・工学系研究科・大学院生 (11301)	
研究協力者	阿部 真樹 (Abe Masaki)	東北大学・工学系研究科・大学院生 (11301)	
研究協力者	高澤 駿太郎 (Takazawa Shuntaro)	東北大学・工学系研究科・大学院生 (11301)	
研究協力者	戸塚 務 (Totsuka Tsutomu)	東北大学・工学系研究科・大学院生 (11301)	
連携研究者	高橋 幸生 (Takahashi Yukio) (00415217)	東北大学・国際放射光イノベーション・スマート研究センター・教授 (11301)	

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
---------	---------