



執筆者

先端技術応用研究所
プロジェクト推進グループ
竹内 章浩
情報技術グループ
追良瀬 利也
EaaSグループ
久保田 潮

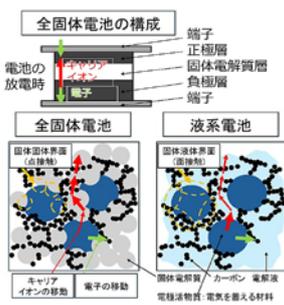
新たな焼結方法と条件最適化による電池材料創製と性能向上の検証

Development for Solid state battery with the New Sintering method and Optimization Calculation of Conditions

酸化物系全固体電池は材料特性として安全性が高いが、焼結しにくく電池性能を高めにくいという課題がある。新たな焼結方法としてプラズマ活性化焼結法を用いて高性能化を図るとともに、従来の実験経験的な焼結条件とデジタル技術を用いた機械学習により最適化した焼結条件を比較し、評価と課題抽出を行った。

1 背景・目的

全固体電池とは陽極と陰極間を固体電解質が担う電池である(第1図)。固体電解質の耐熱性の高さなどから、高容量・高出力・高耐熱・高速充電・長寿命・低コスト化が全て実現出来るとされており、給電困難な遠隔地向け機器用や長距離ドローン用等の電池として大きな期待がされている。



第1図 全固体電池の構成と液系電池との比較

全固体電池には固体電解質により硫化物系と酸化物系に大別される。硫化物系は柔らかく固体-固体の界面を作りやすいため出力が出やすい一方で、空气中で材料的に安定でなく、有毒な硫化水素が発生するため取り扱いが難しいなど課題がある。酸化物系は材料的に安定なため、硫化物系と比べて安全性が大幅に高い。一方で酸化物系は硬いので固体-固体界面を作りにくく、融点も高いので焼成が十分にできにくいことより、高出力化が難しいという課題がある。

今回、酸化物系全固体電池の性能を向上させるために新たな電池作製方法を活用して評価を行った。さらにデジタル技術を用い機械学習による焼結条件の最適化を試みた。

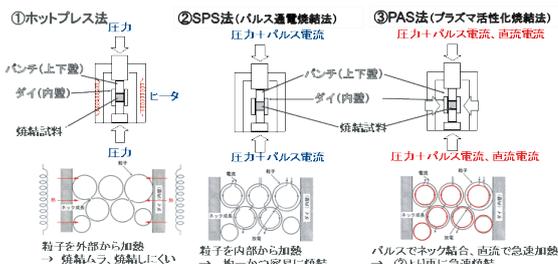
2 開発内容

(1) PAS法を用いた全固体電池の創製

酸化物系全固体電池の性能向上には正極-電解質層-負極をLi⁺などのキャリアイオンが移動しやすくなることがカギである。そのためには異なる高融点の電極材料を十分に焼結して密着性を上げることが重要である。

既往の焼結法には、圧力と外部加熱を用いるホットプレス法(HP法、Hot Press)がある。また圧力とパルス通電を用いHP法よりも焼結性能が良い放電プラズマ焼結法(SPS法、Spark Plasma Sintering)もある。しかし、酸化物系全固体電池の性能を十分出せる電池焼結法とは言えなかった。

今回新しい焼結法として、電極材料を加圧しながらパルス通電および加圧方向に直流通電をハイブリッドに印加するプラズマ活性化焼結法(PAS法、Plasma Activated



第2図 粉体焼結法の比較

Sintering、エレクトロニクス製PAS Multi型) (第2図)を用いて、電極間の密着性向上を図った。また急速焼結により電極材料の副反応が減少することに伴う焼成ムラの抑制による性能向上を図った。

(2) 多軸PAS法を用いた全固体電池の創製

電流印加方向を電池界面に対して垂直方向(横通電)とすることで焼結時の反応性の差異を抑制し、電池性能の向上が期待できる(第3図)。さらに鉛直・垂直同時に電流を印可した多軸PAS法を用いて全固体電池[※]を焼結し、キャリアイオンの偏在の抑制を試みた(第4図)。

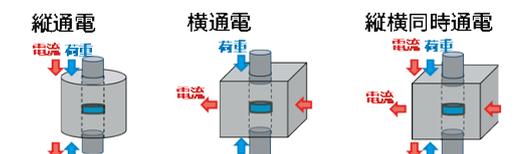
※Na3V2(PO4)3負極/Na3Zr2(SiO4)2(PO4)固体電解質/Na3V2(PO4)3正極

(3) 機械学習による条件最適化の検証

従来電池の焼結条件は実験経験的にパラメータ(焼結温度、焼結速度、加圧力、焼結保持時間など)を決められてきた。この場合、実験時間的な制約からパラメータの変動幅・変動回数には限界があるため、設定した条件が最適かどうかは確かではない。そこで、既存の実験条件と結果の相関を教示データとし、機械学習による遺伝的アルゴリズムによって焼結条件を最適化するプログラムをPythonで作成した。実際に最適化計算を行って実験経験的な焼結条件と比較し、評価と課題抽出を行った。



第3図 横通電で期待される効果



第4図 縦通電、横通電、縦横同時通電焼結のイメージ

