

## コンプトン散乱イメージングによる

## 実電池の劣化現象解析

P36

Nondestructive identification of aging in 18650-type cells  
with Compton scattering imaging

鈴木 宏輔 kosuzuki@gunma-u.ac.jp

群馬大学 大学院理工学府 電子情報部門

## 1.背景

世界的に脱炭素化に向けた取り組みが加速する中で、高性能な大型リチウムイオン実電池への需要は高まっている。高性能な大型リチウムイオン電池を開発するためには電極内の局所領域におけるリチウム反応を、その反応下(オペランド)で明らかにする手法の開発は重要である。我々は、これまで、高エネルギー放射光 X 線を用いて、実電池のリチウム反応を非破壊で可視化するコンプトン散乱イメージングシステムの構築、ならびに、解析手法の開発を行ってきた[1,2]。コンプトン散乱イメージングの最大の特徴は、入射 X 線に 100keV 以上の高エネルギー X 線を使用することである。高エネルギー X 線は高い物質透過能をもつため、動作下の実電池を非破壊で測定できる。さらに、高エネルギー X 線の使用により、非弾性散乱強度(コンプトン効果)を相対的に増大させることが可能となり、リチウムのような軽元素の反応を直接測定することができる。本研究では、コンプトン散乱イメージングシステムを使用し、非破壊で市販の円筒型(18650 型)リチウムイオン電池の劣化場所の特定、および、その原因について考察した[3]。

## 2.実験方法

コンプトン散乱実験は、SPring-8 の BL08W にて行った。115keV の入射 X 線を、円筒型セルの長手方向と垂直に照射し、試料から 90 度真上にコンプトン散乱される X 線のエネルギースペクトルを 9 素子の Ge 半導体検出器で測定した。セル内の観測領域は、試料前にスリット、および、試料と検出器の間にコリメータスリットを配置することで制限した。本研究では観測領域を縦 0.015mm、横 0.75mm、奥行き 0.5mm とした。これが本測定の空間分解能である。試料は、LG Chem.製の 18650 型リチウムイオン電池(MH1)であり、円筒セルの劣化現象を明らかにするため、未劣化セルと劣化セルの二種類を用いた。劣化セルは、1400 回定電流充放電を繰り返し、放電容量を 30%程度減少させた。コンプトン散乱 X 線エネルギースペクトルの測定は、セルの外缶付近(電池外部)と円筒の中心付近(電池内部)で行った。

## 3.実験結果

円筒電池の内部構造を把握するため、入射 X 線をセルの外缶から円筒の中心に向かって走査し、コンプトン散乱 X 線強度の測定を行った。得られた結果は、部材の電子密度を反映した強度変化を示し、正極、および、負極が交互に

積層された構造であることを非破壊で確認した。

次に、未劣化電池の満充電状態と完全放電状態にて、正極、および、負極に相当する部分からコンプトン散乱 X 線エネルギースペクトルを測定した。得られたエネルギースペクトルは、充放電に応じてそのラインシェイプが変化した。エネルギースペクトルのラインシェイプを数値化するパラメータ(S パラメータ[2])を用いて解析した結果、変化量は、円筒電池外部で 2%程度、電池内部で 5%程度であった。一方、劣化電池では、充放電によってコンプトン散乱 X 線エネルギースペクトルのラインシェイプが変化するものの、S パラメータの変化量は未劣化電池に比べ小さく、1%程度であった。さらに、未劣化電池と劣化電池とから得られた結果を比較したところ、電池外部では両セルにおいて大きな違いは観測されなかったが、電池内部では、両セルの結果に明らかな違いが観測された。これより、円筒型リチウムイオン電池の劣化は電池内部から促進することがわかった。これは充放電によって熱が滞留するためであることが示唆される。加えて、電池の劣化により、S パラメータの変化量が低下することから、充放電の繰り返しにより電極と電解液界面における電解質膜が成長し、リチウムイオンの移動量が低下したことが示唆される。これらの結果は、リチウムイオン電池の開発に有益であり、コンプトン散乱イメージングが大型実電池も含めたリチウムイオン実電池のリチウム反応を非破壊で測定できる有効な手法であることが示される。

## [共著者(所属)]

Ari-Pekka Honkanen(Univ. of Helsinki)・辻 成希(JASRI)・Kirsi Jalkanen(Akkurate Oy)・Jari Koskinen(Akkurate Oy)・森本英之(群馬大学)・Hasnain Hafiz(Carnegie Mellon Univ.)・櫻井 吉晴(JASRI)・Mika Kanninen(Akkurate Oy)・Simo Huotari(Univ. of Helsinki)・Arun Bansil(Northeastern Univ.)・櫻井 浩(群馬大学)・Bernardo Barbiellini(LUT Univ.)

## [参考文献](最大3本)

- [1] M. Itou et al., J. Synchrotron Rad., 22, 161-164 (2015).
- [2] K. Suzuki et al., J. Appl. Phys., 119, 025103 (2016).
- [3] K. Suzuki et al., Condens. Matter., 4, 66 (2019).