

日本—V4 国際共同研究「先端材料」 平成 27 年度 年次報告書	
研究課題名（和文）	先進ナノ酸化物の創製と構造・機能性の関係解明による次世代蓄電デバイスの開発
研究課題名（英文）	Structure-Function Relationship of Advanced Nanooxides For Energy Storage Devices
研究代表者氏名	鈴木 久男
研究代表者所属・役職	静岡大学・教授
研究期間	平成 27 年 1 月 1 日～平成 31 年 3 月 31 日

1. 日本側の研究実施体制

ワークパッケージ 1		
氏名	所属機関・部局・役職	役割
鈴木 久男	静岡大学・電子工学研究所・教授	電池構造立案と複合酸化物ナノ粒子合成 総括（基本計画立案）と電池材料用複合酸化物ナノ粒子と厚膜の作製及び電池特性評価に加え、各国研究進行状況の把握と調整
仙名 保	静岡大学・電子工学研究所・客員教授	複合酸化物ナノ粒子の低温合成とナノ粒子特性の制御
藤 正督	名古屋工業大学・先進セラミックス研究センター教授	負極材料用酸化物複合ナノ粒子の低温合成
白井 孝	名古屋工業大学 先進セラミックス研究センター・准教授	負極材料用酸化物複合ナノ粒子の低温合成
高山 定次	核融合科学研究所・ヘリカル研究部装置工学応用物理研究系・准教授	複合酸化物ナノ粒子の焼結

2. 日本側研究チームの実施概要

本研究においては、現在用いられている液体電解質型のリチウム二次電池に代わる革新的な大容量固体電解質型リチウム二次電池の開発を目的としている。この研究で最も重要な技術は、電極間を出入りするリチウムイオンを高速で移動できる固体電解質の開発である。現在注目されている固体電解質としては、ガーネット型の立方晶 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ (LLZO)がある。本年度の研究ではこの LLZO 固体電解質の非常に小さなナノ粒子を低温合成することを主な研究目的とした。方法としては、固体と液体の原料から合成する固液反応法を用いた。この物質はガーネット構造を有しており、少量のアルミニウムの固溶により高いイオン導電性を示す立方晶系を安定化させることができると言われている。具体的には、十分な電池特性が期待できる 10^{-4} S/cm 以上が実現可能と言われている。そこで本研究においては、固液反応法による LLZO ナノ粒子の低温合成を試みた。その結果、以下のことが明らかになった。

(1) LLZO ナノ粒子の低温合成には、遊星ミルを用いた二段階合成法が有効であった。これは、結晶構造を考慮した結果であると思われる。すなわち、結晶の骨格構造を作る La と Zr の原料を室温でメカノケミカル法によりよく混ぜて均一に反応させた後に、溶液状の Li 原料と反応させることで低温合成を実現した。

(2) 上記(1)の方法により LLZO を合成すると、750℃というこれまでの方法と比較してかなり低温での LLZO ナノ粒子の合成が可能だった。

(3) 本研究で合成した LLZO ナノ粒子を用いて、1100℃の常圧下で焼き固めたところ、比較的緻密な（相対密度 91%程度の）セラミックスが作製できた。

(4) 上記の方法で作った LLZO セラミックスのイオン導電率を調べたところ、比較的高いイオン導電性を確認できた。（チェコの研究グループと協力して解析）

(5) この LLZO セラミックスの電池特性を確認したところ、一般的な電気化学測定により電池として機能していることを確認した。（チェコの研究グループと協力して解析）

今後は、同じような方法で電極材料も合成して、優れた次世代学新型二次電池の開発が可能となるような技術を確立する。