

日本—V4 国際共同研究「先端材料」 平成 29 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
日本側研究代表者氏名	鈴木 久男
所属・役職	静岡大学 電子工学研究所・教授
研究期間	平成 27 年 11 月 1 日～平成 31 年 3 月 31 日

1. 日本側の研究実施体制

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	総括（基本計画立案）に加え、固体電解質複合酸化物ナノ粒子のイオン導電性の改善及び正極材料の開発と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	固体電解質や負極材料複合酸化物ナノ粒子の低温合成とナノ粒子特性の制御及び各国研究機関との調整
坂元 尚紀	静岡大学・電子工学研究所・准教授	固体電解質複合酸化物セラミックス及び厚膜の作製と電池特性評価
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特性制御
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	負極材料用酸化物複合ナノ粒子の焼結

2. 日本側研究チームの研究目標及び計画概要

平成 29 年度は、前年度で開発した固体電解質複合酸化物ナノ粒子の低温合成方法のさらなる改善とイオン導電性の向上を目指すとともに、開発した固体電解質複合酸化物ナノ粒子を用いたイオン導電性の高い固体電解質厚膜の作製方法を検討する。そして、新規な固相法と液相法で固体電解質複合酸化物ナノ粒子を低温合成する方法及び実質的に機能する固体電解質の開発を検討し、それぞれの評価を行う。さらに、それぞれの方法においてさらなるイオン導電性の改善を試み、実際の固体電解質膜として使用可能なイオン導電率で 10^{-4} S/cm 以上を目指す。また、これまでの結果を踏まえてセラミックスや厚膜を作製し、電池特性の基本的な評価を行う。負極用酸化物複合ナノ粒子についても同様な手法で検討し、優れた負極用酸化物複合ナノ粒子の 800°C 以下での低温合成方法を検討する。

3. 日本側研究チームの実施概要

本研究では、地球温暖化抑制に大きな効果が期待される高性能次世代革新型二次電池の創製のために、優れた電気化学特性を示す酸化物ナノ粒子などを工業化可能な手法で開発し、それらを用いて高性能次世代革新型二次電池の開発基盤の構築に繋げることを目的としている。

具体的には、工業的に非常に重要な固相反応プロセスと、分子レベルで前駆体の設計が可能な液相プロセスを組み合わせた固-液反応法と、結晶構造を考慮した前駆体設計から構築される最適反応プロセスを融合した、新規な低温材料プロセスを開発している。この様なプロセス開発を実現するために、工業的に良く用いられているメカノケミカル反応を応用するだけでなく、このプロセスに新規な液相プロセスを加えることで、目的とする高性能次世代革新型二次電池の基礎的な材料となるカソードあるいはアノード材料と固体電解質材料を、 750°C 以下の比較的低温で合成する高度な材料プロセッシングを実現する。低温で材料を合成することでナノ粒子化が可能であることに加え、ナノ粒子を最適なプロセスで処理することで、最終的な目標としての高性能次世代革新型二次電池も低温で作製することができると思われる。これら材料の中で最も重要なものは、使用中の発火などの事故に繋がる液体電解質を固体電解質に変更することだが、固体中のイオンの移動は困難である。しかし、本研究で検討しているガーネット型化合物 ($\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ (LLZO)) は固体電解質として最もイオン導電性が高い上に骨格構造が安定しており、種々の工夫により高イオン伝導性が望めることなどから、次世代全固体型酸化物二次電池用の固体電解質として最も適していると考えられる。本研究では、上述の様な開発計画に沿って複合酸化物ナノ粒子を開発し、平成 29 年度では 650°C という世界で最も低温での LLZO 粉体及び薄膜の合成に成功した。これは、本研究の目的を達成するために非常に大きな進展である。さらに、開発した LLZO 粉体を用いて無焼成で固体電解質コンポジット膜の作製に成功している。

これらのプロセスの最適化には、設計通りのナノ構造が実現されているかどうかを確認する必要がある。すなわち、ナノレベルあるいは分子レベルでの構造解析とイオン伝導性やトータルの電池特性の解析による界面の最適化が不可欠である。研究グループは、この様な電池特性の解析を専門とする研究グループと構造解析を専門とする研究グループ及び材料プロセスと構造解析を専門とする日本側グループで構成され、研究目的の達成のために共同研究を続けている。