

## 硫化物系ガラス電解質を用いた全固体電池の固体界面形成

### Formation of solid-solid interface using sulfide-based glassy electrolytes

#### for all-solid-state batteries

大阪公立大<sup>1</sup> ◦作田 敦<sup>1</sup>, 本橋 宏大<sup>1</sup>, 辰巳砂 昌弘<sup>1</sup>, 林 晃敏<sup>1</sup>

Osaka Metropolitan Univ.<sup>1</sup>, ◦Atsushi Sakuda<sup>1</sup>, Kota Motohashi<sup>1</sup>, Masahiro Tatsumisago<sup>1</sup>,

Akitoshi Hayashi<sup>1</sup>

E-mail: saku@omu.ac.jp

無機固体電解質を用いた全固体電池は、安全・高出力・長寿命を兼ね備えた次世代電池として注目されている。全固体電池製造において、良好な固体-固体界面形成のためには、高温焼結プロセスを必要としない高成形性の固体電解質が有用である。硫化物系電解質は酸化物系電解質と比べ、一般に高い成形性とイオン伝導度を有することが知られている。

本講演では、硫化物系ガラス電解質の機械的特性と、電極-電解質界面の構築に関して、過去から最近にわたる研究成果を概説する。

多くの硫化物系電解質は、常温の加圧によって焼結し、緻密な成形体を得ることができる<sup>[1]</sup>。我々はこれを常温加圧焼結と呼んでおり、高い成形性の指標としている。ガラス電解質においては同一組成の結晶よりも高い成形性が確認される<sup>[2]</sup>。従来は、室温(25°C)におけるプレス成形によって得られた粉末成形体の充填率によって固体電解質の成形性を評価してきた。最近我々は、一軸プレス成形における動的な圧密挙動や、成形性と成形体の強度の関係性に注目し、研究を進めている<sup>[3]</sup>。図1に代表的な硫化物系固体電解質である  $\text{Li}_3\text{PS}_4$  ガラスとアルジロダイト型  $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$  結晶粉末の室温での一軸加圧成形における相対密度変化を示す。相対密度はガスピクノメーターを用いて測定した粉末密度を100%として算出した。いずれの試料も室温成形において90%を超える高い相対密度を有する成形体を得られることが分かった。一方で緻密化挙動は異なり、 $\text{Li}_3\text{PS}_4$  ガラスは低圧成形では相対密度が低いが、高圧成形では100%に迫る高い相対密度の成形体を得ることが分かった。

得られた結果と、緻密成形体に対する圧縮試験や断面SEM観察を比較検討することで、緻密化メカニズムと機械的強度が関連していることを見出した。

硫化物系固体電解質の高い成形性によって、室温プロセスによっても良好な電極-電解質界面を有する全固体電池が構築可能であり、室温プロセスで構築した全固体電池においても、高出力の充放電が可能である。講演では試作した全固体電池の充放電挙動も報告する。

[1] A. Sakuda *et al.*, *Sci. Rep.*, **3** (2013) 2261. [2] A. Kato *et al.*, *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **126** (2018) 719.

[3] 山口 穂多瑠 他, 第15回日本セラミックス協会関西支部学術講演会講演予稿集 (2021) PA-51.

謝辞: 本研究の一部は、JSPS 科研費 JP 18H05255 および JST-ALCA SPRING JPMJAL1301 の成果である。関係各位に深く感謝いたします。

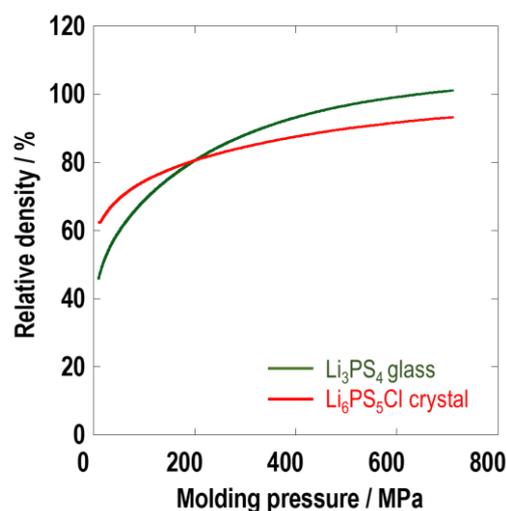


Fig. 1 Compression behavior of  $\text{Li}_3\text{PS}_4$  glass and  $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$  crystal powders in uniaxial press molding.