

マテリアル先端リサーチインフラ利用報告書

ARIM User's Report

[Release : 2025.06.10] [Update : 2025.05.16]

課題データ / Project Data

課題番号 Project Issue Number	24HK0125
利用課題名 Title	ハイドロフラックス法による遷移金属複合酸化物の低温合成
利用した実施機関 Support Institute	北海道大学 / Hokkaido Univ.
機関外・機関内の利用 External or Internal Use	内部利用 (ARIM事業参画者以外) / Internal Use (by non ARIM members)
ARIM半導体基盤PF 関連課題 Related to ARIM-SETI	指定なし / No Designation
横断技術領域 Cross-Technology Area	計測・分析/Advanced Characterization
重要技術領域 Important Technology Area	革新的なエネルギー変換を可能とするマテリアル/Materials enabling innovative energy conversion 量子・電子制御により革新的な機能を発現するマテリアル/Materials using quantum and electronic control to perform innovative functions
キーワード Keywords	表面・界面・粒界制御/ Surface/interface/grain boundary control,電子顕微鏡/ Electronic microscope,全固体電池/ All-solid battery,集束イオンビーム/ Focused ion beam

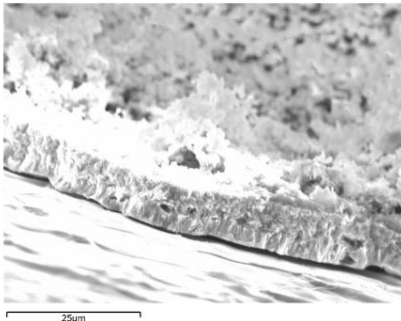
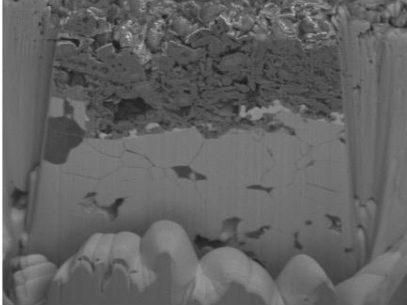
利用者と利用形態 / User and Support Type

利用者名 (課題申請者) User Name (Project Applicant)	松井 雅樹
所属名 Affiliation	北海道大学 理学研究院化学部門
共同利用者氏名 Names of Collaborators Excluding Supporters in the Hub and Spoke Institutes	
ARIM実施機関支援担当者 Names of Supporters in the Hub and Spoke Institutes	澤 厚貴,平岩 健聖
利用形態 Support Type	機器利用/Equipment Utilization,技術補助/Technical Assistance

利用した主な設備 / Equipment Used in This Project

利用した主な設備 Equipment ID & Name	HK-304 : 集束イオンビーム加工・観察装置
---------------------------------	--------------------------

報告書データ / Report

概要 (目的・用途・実施内容) Abstract (Aim, Use Applications and Contents)	<p>リチウムイオン電池に代わる次世代蓄電池として、全固体電池が期待されている。全固体電池は、電解質に酸化物や硫化物等の超イオン伝導体を使用することから、電池の安全性、信頼性および出力の向上が期待される。酸化物を固体電解質に用いた全固体電池の場合、電極・電解質界面の形成に高温での共焼結プロセスが必要になると考えられているが、この際に遷移金属イオンの相互拡散等による高抵抗層が容易に形成されることが一つの課題となっており、低温での界面形成プロセスの開発等による、高抵抗層生成の抑制が必要であると考えられる。当研究グループでは、LiCoO_2 (LCO) 等の層状正極活物質を 300°C 程度の低温で合成する手法として、ハイドロフラックス法を提案しているが、このハイドロフラックス法では、低温で固固界面の形成が可能であり、高抵抗層の生成が抑制できるものと考えられる。本研究では、ハイドロフラックス法を用いた固固ヘテロ界面形成プロセスについて検討を実施した。</p>
実験 Experimental	<p>本検討では、フラックスや水との反応性の低い固体電解質として $\text{Li}_{0.33}\text{La}_{0.55}\text{TiO}_3$ (LLTO) 焼結体を使用し、LLTO上へのLCO層の形成について検討を実施した。LLTO焼結体と $\text{LiOH}\cdot\text{H}_2\text{O}$, NaOH, $\text{Co}(\text{OH})_2$ を混合して作製したペレットを静水加圧により 10MPa で加圧して積層体を作製した。得られた積層体をハイドロフラックス条件で焼成し、過剰のフラックスと活物質はエタノールによって除去を行った。また、LCO/LLTO界面の密着性向上のため、LLTO表面に Mg/Al 合金層を形成して検討を実施した。</p>
結果と考察 Results and Discussion	<p>Figure 1(a) にLLTO上に直接ペレットを積層して作製した資料の断面SEM像を示す。得られたLCOとLLTOとの界面に空隙が確認され、密着性に乏しい界面が形成されたことが確認された。これは、LCOとLLTOとの構成元素間での化学的な親和性の低さが要因であると推定される。一方で、LLTO表面に Mg/Al 合金層を形成して得られた、LCO-LLTO界面の断面SEM像では、比較的緻密な界面が形成されていることが確認された。(Fig. 1(b)) また、EDS分析よりAlはLCOに一部固溶していることが示唆された。以上のことから、化学的に親和性の高い界面層を形成することで、</p>
図・表・数式 1 Figures, Tables and Equations 1	<div style="display: flex; justify-content: space-around; align-items: center;"> <div style="text-align: center;"> <p>(a)</p>  </div> <div style="text-align: center;"> <p>(b)</p>  </div> </div> <p style="text-align: center;">Figure 1. SEM images of LCO-LLTO interface without Mg/Al interlayer (a) and with Mg/Al interlayer (b)</p>
その他・特記事項 (参考文献・謝辞等) Remarks(References and Acknowledgements)	(This cell is currently empty in the provided image.)

成果発表・成果利用 / Publication and Patents

DOI (論文・プロシーディング) DOI (Publication and Proceedings)	
口頭発表、ポスター発表 および、その他の論文 Oral Presentations etc.	
特許出願件数 Number of Patent Applications	0件
特許登録件数 Number of Registered Patents	0件