



## 固体電解質材料の結晶構造解析

片岡 邦光, 石垣 範和, 秋本 順二  
産業技術総合研究所

キーワード：固体電解質, 結晶構造, 酸化物, 全固体電池, リチウムイオン伝導体

### 1. 背景と研究目的

近年、全固体電池はエネルギー密度と安全性が高いため注目が集まっており、バッテリーの性能を大きく左右する固体電解質の研究が盛んに行われている。これまでに、ガーネット型  $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$  をはじめとして、NASICON 型、LISICON 型、ペロブスカイト型およびガラス状固体電解質材料など、良好なリチウムイオン伝導性を示す様々な無機固体電解質の材料開発が行われている。最近、 $\text{LiTa}_2\text{PO}_8$  は  $25^\circ\text{C}$  で  $2.5 \times 10^{-4} \text{ S cm}^{-1}$  の高いイオン全導電率を有する新しいイオン伝導性酸化物として報告された<sup>[1]</sup>。我々は、本材料の良好な導電特性の起源と結晶構造の相関解明を目指して研究を進めている。最近、結晶構造モデルの妥当性を収束電子回折データで確認すると共に、リチウムイオン伝導性について、電気化学測定と  $^7\text{Li}$  PGSE - NMR 測定を併用することによって明らかにしている<sup>[2]</sup>。今回、不純物が少ない多結晶試料を合成し、放射光 X 線回折データを取得することで、結晶構造の精密化を行ったので報告する。

### 2. 実験内容

$\text{LiTa}_2\text{PO}_8$  は固相反応法を用いて合成した。出発原料としては  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ 、 $\text{Ta}_2\text{O}_5$ 、 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$  を用い、 $\text{Li} : \text{Ta} : \text{P} = 1 : 2 : 1$  となるように秤量・混合し、焼成温度は文献を参考にした<sup>[1,2]</sup>。合成したサンプルの同定は、粉末 X 線回折装置(Rigaku 製 RINT2550V)を用いて行った。化学組成は ICP-OES 分析(Agilent720 - ES)にて調べた。以上のサンプルについて、今回、放射光 X 線回折データ (波長： $0.78 \text{ \AA}$ )を測定し、結晶構造の詳細の解明を行った。

### 3. 結果および考察

測定した放射光 X 線回折データを用いて、既報の構造モデルを初期構造とし、結晶構造の精密化を行った。Fig.1 に、リートベルト解析結果を示す。その結晶構造は、 $\text{TaO}_6$  八面体と  $\text{PO}_4$  四面体によって骨格構造が形成され、ガーネット型構造と類似した 3 次元的なリチウム伝導経路が構築されていること今回確認することができた。

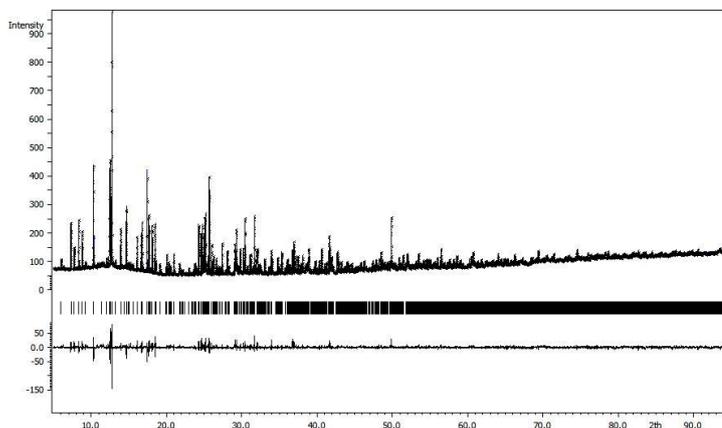


Fig. 1 Rietveld fitting pattern for  $\text{LiTa}_2\text{PO}_8$  using synchrotron X-ray diffraction data.

### 4. 参考文献

1. J. Kim, J. Kim, M. Avdeev, H. Yun, S.-J. Kim, *J. Mater. Chem. A*, **6**, 2248-22482 (2018).
2. N. Ishigaki, K. Kataoka, D. Morikawa, M. Terauchi, K. Hayamizu, J. Akimoto, *Solid State Ionics*, **351**, 115314 (2020).

### 謝辞

本研究は、JST ALCA-SPRING (Grant Number JPMJAL1301)の一環として行われた。関係各位に深く感謝致します。