

メカノケミカル法による  $\text{ZrO}_2$  を添加した  $\text{NaTaCl}_6$  塩化物電解質の作製

(大阪公立大学) ○馬籠 拓士・仲尾 健宏・本橋 宏大・作田 敦・林 晃敏

Mechanochemical synthesis of  $\text{ZrO}_2$ -added  $\text{NaTaCl}_6$  chloride electrolytes

(Graduate School of Engineering, Osaka Metropolitan University) ○Takuto Magome, Takehiro Nakao, Kota Motohashi, Atsushi Sakuda, Akitoshi Hayashi

Solid electrolytes with high Na-ion conductivity are essential for all-solid-state sodium batteries. Chloride electrolytes have attracted attention due to their high ionic conductivity, excellent formability, and oxidation resistance. In this study,  $\text{NaTaCl}_6 \cdot x\text{ZrO}_2$  ( $0 \leq x \leq 2$ ) solid electrolytes were prepared by the mechanochemical method to increase ionic conductivity of  $\text{NaTaCl}_6$  chloride electrolytes. In the XRD patterns, the intensity of  $\text{ZrO}_2$  peaks increased with increasing the  $\text{ZrO}_2$  ratio, while that of the  $\text{NaTaCl}_6$  peak decreased. As the amount of  $\text{ZrO}_2$  increased, the ratios of the amorphous phases increased. The ionic conductivity was enhanced with an increase in the molar ratio of  $\text{ZrO}_2$  to  $\text{NaTaCl}_6$ . The maximum ionic conductivity of  $1.3 \times 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$  was observed at the composition  $\text{NaTaCl}_6 \cdot 1.1\text{ZrO}_2$ .

**Keywords:** Solid electrolyte; Sodium ion conductor; Chloride; Mechanochemical synthesis ; All-solid-state battery;

全固体ナトリウム電池の実用化に向けて、高いイオン伝導性、優れた成形性、酸化耐性を併せ持つ塩化物電解質が注目されている。当研究グループは、酸化耐性に優れ、室温イオン伝導度が  $6.2 \times 10^{-5} \text{ S cm}^{-1}$  である  $\text{NaTaCl}_6$  塩化物電解質を報告している<sup>1)</sup>。本研究ではイオン伝導度増大を目的として  $\text{NaTaCl}_6$  塩化物電解質に対して、 $\text{ZrO}_2$  を添加した  $\text{NaTaCl}_6 \cdot x\text{ZrO}_2$  ( $0 \leq x \leq 2$ ) 固体電解質をメカノケミカル法によって作製し、構造とイオン伝導度を評価した。

$\text{NaTaCl}_6$  に  $\text{ZrO}_2$  を添加すると XRD パターンにおける  $\text{NaTaCl}_6$  のピーク強度比は減少し、 $\text{ZrO}_2$  のピーク強度比は増大した。また、参照強度比法によって求められた非晶質相の重量比の割合は  $\text{ZrO}_2$  添加に伴って増大し、 $x=1.1$  で8割以上を占めていた。Fig. 1 には  $\text{NaTaCl}_6 \cdot x\text{ZrO}_2$  ( $0 \leq x \leq 2$ ) 電解質の  $25^\circ\text{C}$  におけるイオン伝導度を示す。 $\text{NaTaCl}_6$  に対する  $\text{ZrO}_2$  添加量の増加に伴い、イオン伝導度は増大し、 $\text{NaTaCl}_6 \cdot 1.1\text{ZrO}_2$  では最大の室温イオン伝導度  $1.3 \times 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$  を示した。 $\text{ZrO}_2$  添加により、イオン伝導度が増加することが分かった。

- 1) K. Motohashi *et al.*, *ACS Mater. Lett.*, **6** (2024) 1178-1183.

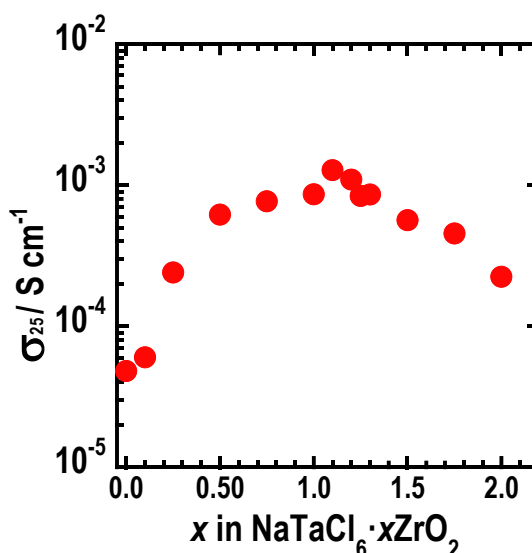


Fig. 1 Ionic conductivities at  $25^\circ\text{C}$  of  $\text{NaTaCl}_6 \cdot x\text{ZrO}_2$  ( $0 \leq x \leq 2$ ) electrolytes.