

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 7 部門第 1 区分

【発行日】平成30年7月26日 (2018.7.26)

【公開番号】特開2018-92954(P2018-92954A)

【公開日】平成30年6月14日 (2018.6.14)

【年通号数】公開・登録公報2018-022

【出願番号】特願2018-50523(P2018-50523)

【国際特許分類】

H 0 1 M 10/0562 (2010.01)

H 0 1 M 10/052 (2010.01)

H 0 1 B 1/06 (2006.01)

H 0 1 B 13/00 (2006.01)

【F I】

H 0 1 M 10/0562

H 0 1 M 10/052

H 0 1 B 1/06 A

H 0 1 B 13/00 Z

【手続補正書】

【提出日】平成30年5月23日 (2018.5.23)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

構成元素として、Li、P、およびSを含み、  
線源としてCu K 線を用いたX線回折により得られるスペクトルにおいて、  
少なくとも回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$  の位置に回折ピークを有し、  
前記回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$  の位置に存在する前記回折ピークの回折強度を  $I_A$  とし、回折角  $2\theta = 26.9 \pm 0.3^\circ$  の位置に存在する回折ピークの回折強度を  $I_B$  としたとき、

$I_B / I_A$  の値が 0.50 以下である、固体電解質材料であって、  
当該固体電解質材料中の前記Pの含有量に対する前記Liの含有量のモル比 (Li / P)  
が 3.15 以上である、固体電解質材料。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の固体電解質材料において、  
当該固体電解質材料中の前記Pの含有量に対する前記Liの含有量のモル比 (Li / P)  
が 3.45 以下である、固体電解質材料。

【請求項 3】

構成元素として、Li、P、およびSを含み、  
線源としてCu K 線を用いたX線回折により得られるスペクトルにおいて、  
少なくとも回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$  の位置に回折ピークを有し、  
前記回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$  の位置に存在する前記回折ピークの回折強度を  $I_A$  とし、回折角  $2\theta = 26.9 \pm 0.3^\circ$  の位置に存在する回折ピークの回折強度を  $I_B$  としたとき、

$I_B / I_A$  の値が 0.50 以下である、固体電解質材料であって、  
当該固体電解質材料中の前記Pの含有量に対する前記Sの含有量のモル比 (S / P) が

、 3 . 7 9 以上である、固体電解質材料。

【請求項 4】

請求項 3 に記載の固体電解質材料において、  
当該固体電解質材料中の前記 P の含有量に対する前記 S の含有量のモル比 ( S / P ) が  
、 4 . 0 0 未満である、固体電解質材料。

【請求項 5】

請求項 1 乃至 4 いずれか一項に記載の固体電解質材料において、  
線源として C u K 線を用いた X 線回折により得られるスペクトルにおいて、  
回折角  $2\theta = 25.9 \pm 0.3^\circ$ 、 $2\theta = 29.6 \pm 0.3^\circ$ 、および  $2\theta = 38.8 \pm 0.3^\circ$  の位置に回折ピークをさらに有する、固体電解質材料。

【請求項 6】

正極活物質層を含む正極と、電解質層と、負極活物質層を含む負極とを備えた、リチウムイオン電池であって、  
前記正極活物質層、前記電解質層および前記負極活物質層のうち少なくとも一つが、請求項 1 乃至 5 いずれか一項に記載の固体電解質材料を含む、リチウムイオン電池。

【請求項 7】

請求項 1 乃至 5 いずれか一項に記載の固体電解質材料を製造するための製造方法であって、

L i <sub>2</sub> S、P <sub>2</sub> S <sub>5</sub> および L i <sub>3</sub> N を含む混合物 A をガラス化する工程を含み、  
前記混合物 A 中の前記 L i <sub>2</sub> S、前記 P <sub>2</sub> S <sub>5</sub> および前記 L i <sub>3</sub> N の合計を 1 0 0 モル % としたとき、  
前記 L i <sub>2</sub> S の含有量が 6 3 . 0 モル % 以上 7 0 . 0 モル % 以下であり、  
前記 P <sub>2</sub> S <sub>5</sub> の含有量が 2 3 . 0 モル % 以上 2 6 . 0 モル % 以下であり、  
前記 L i <sub>3</sub> N の含有量が 6 . 5 モル % 以上 1 2 . 0 モル % 以下である、固体電解質材料の製造方法。

【請求項 8】

請求項 7 に記載の固体電解質材料の製造方法において、  
前記混合物 A をガラス化する工程により得られた混合物 B を加圧成型する工程と、  
加圧成型した前記混合物 B を加熱することにより、前記混合物 B の少なくとも一部を結晶化する工程と、  
をさらに含む、固体電解質材料の製造方法。

【請求項 9】

請求項 8 に記載の固体電解質材料の製造方法において、  
ガラス状態の前記混合物 B の少なくとも一部を結晶化する前記工程では、  
不活性ガス雰囲気下において、前記混合物 B を 2 8 0 以上 5 0 0 以下で加熱する、  
固体電解質材料の製造方法。

【請求項 1 0】

請求項 7 乃至 9 いずれか一項に記載の固体電解質材料の製造方法において、  
前記混合物 A をガラス化する前記工程では、  
前記混合物 A をメカノケミカル処理することによりガラス化する、固体電解質材料の製造方法。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 0 9

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 0 9】

すなわち、本発明によれば、  
構成元素として、L i、P、および S を含み、  
線源として C u K 線を用いた X 線回折により得られるスペクトルにおいて、

少なくとも回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$  の位置に回折ピークを有し、  
 上記回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$  の位置に存在する上記回折ピークの回折強度を  $I_A$  とし、回折角  $2\theta = 26.9 \pm 0.3^\circ$  の位置に存在する回折ピークの回折強度を  $I_B$  としたとき、

$I_B / I_A$  の値が 0.50 以下である、固体電解質材料であって、

当該固体電解質材料中の前記 P の含有量に対する上記 Li の含有量のモル比 ( $Li / P$ ) が 3.15 以上である、固体電解質材料が提供される。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0010

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0010】

また、本発明によれば、

構成元素として、Li、P、および S を含み、

線源として Cu K $\alpha$  線を用いた X 線回折により得られるスペクトルにおいて、

少なくとも回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$  の位置に回折ピークを有し、

前記回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$  の位置に存在する前記回折ピークの回折強度を  $I_A$  とし、回折角  $2\theta = 26.9 \pm 0.3^\circ$  の位置に存在する回折ピークの回折強度を  $I_B$  としたとき、

$I_B / I_A$  の値が 0.50 以下である、固体電解質材料であって、

当該固体電解質材料中の上記 P の含有量に対する上記 S の含有量のモル比 ( $S / P$ ) が、3.79 以上である、固体電解質材料が提供される。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0080

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0080】

以上、本発明の各実施形態について述べたが、これらは本発明の例示であり、上記以外の様々な構成を採用することもできる。

なお、本発明は前述の実施形態に限定されるものではなく、本発明の目的を達成できる範囲での变形、改良などは本発明に含まれるものである。

以下、参考形態の例を付記する。

(付記 1)

構成元素として、Li、P、および S を含み、

線源として Cu K $\alpha$  線を用いた X 線回折により得られるスペクトルにおいて、

少なくとも回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$  の位置に回折ピークを有し、

前記回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$  の位置に存在する前記回折ピークの回折強度を  $I_A$  とし、回折角  $2\theta = 26.9 \pm 0.3^\circ$  の位置に存在する回折ピークの回折強度を  $I_B$  としたとき、

$I_B / I_A$  の値が 0.50 以下である、固体電解質材料。

(付記 2)

付記 1 に記載の固体電解質材料において、

当該固体電解質材料中の前記 P の含有量に対する前記 Li の含有量のモル比 ( $Li / P$ ) が 3.15 以上 3.45 以下であり、前記 P の含有量に対する前記 S の含有量のモル比 ( $S / P$ ) が、3.79 以上 4.00 未満である、固体電解質材料。

(付記 3)

付記 1 または 2 に記載の固体電解質材料において、

線源として Cu K $\alpha$  線を用いた X 線回折により得られるスペクトルにおいて、

回折角  $2\theta = 25.9 \pm 0.3^\circ$ 、 $2\theta = 29.6 \pm 0.3^\circ$ 、および  $2\theta = 38.8 \pm 0.3^\circ$  の位置に回折ピークをさらに有する、固体電解質材料。

(付記 4)

構成元素として、Li、P、および S を含み、

当該固体電解質材料中の前記 P の含有量に対する前記 Li の含有量のモル比 (Li / P) が 3.15 以上 3.45 以下であり、前記 P の含有量に対する前記 S の含有量のモル比 (S / P) が、3.79 以上 4.00 未満である、固体電解質材料。

(付記 5)

付記 4 に記載の固体電解質材料において、

線源として Cu K $\alpha$  線を用いた X 線回折により得られるスペクトルにおいて、

少なくとも回折角  $2\theta = 17.7 \pm 0.3^\circ$ 、 $2\theta = 25.9 \pm 0.3^\circ$ 、 $2\theta = 29.6 \pm 0.3^\circ$ 、および  $2\theta = 38.8 \pm 0.3^\circ$  の位置に回折ピークを有する、固体電解質材料。

(付記 6)

正極活物質層を含む正極と、電解質層と、負極活物質層を含む負極とを備えた、リチウムイオン電池であって、

前記正極活物質層、前記電解質層および前記負極活物質層のうち少なくとも一つが、付記 1 乃至 5 いずれか一つに記載の固体電解質材料を含む、リチウムイオン電池。

(付記 7)

Li<sub>2</sub>S、P<sub>2</sub>S<sub>5</sub> および Li<sub>3</sub>N を含む混合物 A をガラス化する工程を含み、

前記混合物 A 中の前記 Li<sub>2</sub>S、前記 P<sub>2</sub>S<sub>5</sub> および前記 Li<sub>3</sub>N の合計を 100 モル % としたとき、

前記 Li<sub>2</sub>S の含有量が 63.0 モル % 以上 70.0 モル % 以下であり、

前記 P<sub>2</sub>S<sub>5</sub> の含有量が 23.0 モル % 以上 26.0 モル % 以下であり、

前記 Li<sub>3</sub>N の含有量が 6.5 モル % 以上 12.0 モル % 以下である、固体電解質材料の製造方法。

(付記 8)

付記 7 に記載の固体電解質材料の製造方法において、

前記混合物 A をガラス化する工程により得られた混合物 B を加圧成型する工程と、

加圧成型した前記混合物 B を加熱することにより、前記混合物 B の少なくとも一部を結晶化する工程と、

をさらに含む、固体電解質材料の製造方法。

(付記 9)

付記 8 に記載の固体電解質材料の製造方法において、

ガラス状態の前記混合物 B の少なくとも一部を結晶化する前記工程では、

不活性ガス雰囲気下において、前記混合物 B を 280℃ 以上 500℃ 以下で加熱する、固体電解質材料の製造方法。

(付記 10)

付記 7 乃至 9 いずれか一つに記載の固体電解質材料の製造方法において、

前記混合物 A をガラス化する前記工程では、

前記混合物 A をメカノケミカル処理することによりガラス化する、固体電解質材料の製造方法。