交流インピーダンス法を用いた Li₃PS₄ ガラス電解質成形体の評価

(阪府大院工)作田 敦・○鳥居 真人・遠地 智大・辰巳砂 昌弘・林 晃敏 The evaluation of the compressed Li₃PS₄ glass electrolyte using the AC impedance method (*Graduate School of Engineering, Osaka Prefecture University*) Atsushi Sakuda, ○Masato Torii, Tomohiro Onji, Masahiro Tatsumisago, Akitoshi Hayashi

In this study, we prepared some compressed pellets of Li₃PS₄ glass electrolytes (LPS) with different molding conditions and morphology, and investigated the changes in their conductivities and characteristic frequencies by using the AC impedance method.

It is known that a typical capacitance for the bulk resistance of solid electrolytes, which is calculated with the characteristic frequency and bulk resistance, is 10^{-12} to 10^{-11} F. However, this value should change depending on the pellet shape. In this study, we also examined how the capacitances for the bulk resistance of the LPS pellets change depending on their shape.

When the compressed LPS pellets with different thicknesses were prepared and evaluated, their conductivities and characteristic frequencies were almost constant regardless of their thicknesses. Their capacitances decreased with increasing their thicknesses, which is consistent with theoretical assumption. With increasing the diameters of the pellets, the conductivities of the pellets were almost constant, while the characteristic frequencies increased significantly. This result is considered to be due to the fact that the increase in capacitance is smaller than expected from the increase in surface area.

Keywords: All-solid-state battery; Solid electrolyte; Impedance; Conductivity; Characteristic frequency

全固体リチウム二次電池は難燃性の固体電解質を利用しており、その安全性と高いエネルギー密度から次世代電池として期待されている。全固体電池の劣化解析には交流インピーダンス法が用いられる。インピーダンスプロファイルにおいて固体電解質や電極反応に対する抵抗成分は、特性周波数やキャパシタンスの異なる並列RC等価回路を適用することで評価できる。本研究では、代表的な固体電解質であるLi₃PS₄ガラス電解質粉末について、形状係数の異なる複数のペレット成形体を作製した。ペレットの相対密度は約90%となるようにプレス圧を調整した。交流インピーダンス法を用いて、ペレットの形状に対する導電率および特性周波数の変化を調べた。

特性周波数と抵抗から求められる固体電解質のキャパシタンスは経験的に 10⁻¹² ~ 10⁻¹¹F となることが知られているが、これは形状係数によって変化する値である。本実験ではこのキャパシタンスの値に注目し、形状依存性について検証した。

異なる厚さのペレット成形体を作製して評価した場合、導電率と特性周波数は厚さによらずほぼ一定の値となった。キャパシタンスは厚さの増加に伴い減少し、理論的な推測と一致した。異なる直径のペレット成形体では導電率は直径に依らずほぼ一定の値となったが、一方で特性周波数は直径の増加に伴い大きく増加した。この結果は面積の増加から予想されるよりもキャパシタンスの増加が小さいことが要因であると考えられる。