Li₃PO₄/Li(Ni_{0.5}Mn_{1.5})O₄界面における空間電荷層の形成

Formation of a space-charge layer at $Li_3PO_4/Li(Ni_{0.5}Mn_{1.5})O_4$ interface 東北大 AIMR¹,產総研 ²,東工大物質理工 ³

[○]河底 秀幸 ¹, 白木 将 ¹, 白澤 徹郎 ², 鈴木 竜 ¹,一杉 太郎 ^{1, 3}

Tohoku Univ. 1, AIST2, Tokyo Tech.3,

°Hideyuki Kawasoko¹, Susumu Shiraki¹, Tetsuro Shirasawa², Toru Suzuki¹, Taro Hitosugi¹, ³ E-mail: hideyuki.kawasoko.b7@tohoku.ac.jp

[はじめに] 酸化物界面におけるイオン分布は、界面物性の起源を考える上で重要な役割を担う。特に、酸化物イオン伝導体で構成される界面における可動イオンの分布の解明は、全固体リチウム電池の高性能化に直結するため、基礎学理のみならず、応用の観点でも重要な課題である。実際、全固体リチウム電池で問題となっている高い界面抵抗は、固体電解質/正極界面での自発的なイオンの移動により形成される空間電荷層に起因するとされている。しかし、これまで固体電解質/正極界面におけるイオン分布に関する実験的な観測はなく、その空間電荷層の有無やその厚みは定かではない。そこで本研究では、固体電解質 Li_3PO_4 (LPO)/正極 $\text{Li}(\text{Ni}_{0.5}\text{Mn}_{1.5})\text{O}_4$ (LNMO)界面における Li 分布を考察した。

[実験] SrTiO₃(100)基板上に MgO (100 nm)/LPO (500 nm)/LNMO (60 nm)薄膜、LNMO (60 nm)薄膜、MgO (100 nm)/LPO (500 nm)薄膜を作製し、X 線回折により結晶構造を調べた。さらに、LPO/LNMO 界面を有する全固体薄膜電池を作製し、界面形成初期状態における電気化学特性を評価した。なお、LPO は、LNMO の成膜後、室温にて成膜した。

[結果と考察] X 線回折から、MgO/LPO/LNMO 薄膜では、LNMO に加え、 $Li_2(Ni_{0.5}Mn_{1.5})O_4$ (L_2NMO)に由来するピークを確認した (図 1)。LNMO 薄膜、MgO/LPO 薄膜では、 L_2NMO のピークは観察されなかった。また、 L_2NMO の形成は、LPO/LNMO 界面を有する全固体薄膜電池における電気化学特性評価からも確認

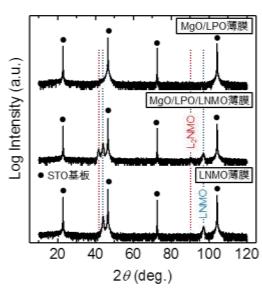


図 1. MgO/LPO/LNMO 薄膜、LNMO 薄膜、MgO/LPO 薄膜の X 線回折。

した。これらの結果から、LPO/LNMO 界面近傍で自発的な Li 移動が起き、LPO 側に Li 空乏層、LNMO 側に Li 蓄積層(L_2 MNO)が形成したと考えられる。これは、LPO/LNMO 界面における空間電荷層の存在を意味する。現在、界面で移動した Li の定量化を行っている。当日はその結果も含め議論する予定である。

[謝辞] 本研究は、トヨタ自動車、NEDO、JST-ALCA、JST-CREST、科研費の支援を受けた。