

Li(Ni_{0.5}Mn_{1.5})O₄全固体リチウム電池における電解質/電極界面イオン伝導

Electrolyte/electrode interface resistance of Li(Ni_{0.5}Mn_{1.5})O₄ solid-state batteries

河底 秀幸¹、白木 将¹、鈴木 竜¹、清水 亮太¹、一杉 太郎^{1,2}

(1. 東北大 WPI-AIMR、2. 東工大理工)

Hideyuki Kawasoko¹, Susumu Shiraki¹, Toru Suzuki¹, Ryota Shimizu¹, Taro Hitosugi^{1,2}

(1. Tohoku Univ., 2. Tokyo Tech.)

E-mail: kawasoko@wpi-aimr.tohoku.ac.jp

【はじめに】 高容量と安全性を兼ね備える全固体リチウム電池において、高いエネルギー密度の実現を目指し、動作電圧が 5 V 級の正極材料、Li(Ni_{0.5}Mn_{1.5})O₄ (LNMO)の活用が注目されている[1]。しかし、この正極材料を採用した全固体リチウム電池では、正極と固体電解質の間の界面抵抗が高く[2]、出力密度の向上が難しい。したがって、界面抵抗の発生メカニズム解明やその低減が強く望まれている。そこで、我々は、LNMO エピタキシャル薄膜を用いた薄膜モデル電池を作製し、電気化学特性評価を通して、電極/電解質界面でのイオン伝導について考察した。

【実験】 Nb ドープ SrTiO₃(100)基板上に、集電体 LaNiO₃、正極 LNMO、固体電解質 Li₃PO₄、負極 Li を積層させた全固体薄膜電池を作製し、その電気化学特性を評価した。なお、これら一連の実験では一度も大気暴露せず、すべてのプロセスを超高真空中で行った。

【結果と考察】 X 線回折から LaNiO₃ (20 nm)/LNMO (60 nm)薄膜のエピタキシャル成長を確認した。薄膜電池のサイクリックボルタンメトリー測定では、LNMO 中の Ni と Mn の酸化還元反応に対応するピークのみを確認した。また、Li の挿入脱離に伴う充放電も観測し(図 1)、良好な電池動作を実現した。インピーダンススペクトルでは、バルク抵抗成分以外に、電極/電解質間の界面抵抗に起因すると考えられる 2 つの円弧成分を低周波側で観測し(図 2)、それぞれ、7.6 Ωcm² と 36 Ωcm² という比較的低い値となった。当日は、インピーダンススペクトルの円弧の帰属や界面抵抗の電位依存性についても議論する。

【謝辞】 本研究は、トヨタ自動車株式会社、JST-ALCA、科研費の支援を受けて行われた。

[1] D. Liu *et al.* RSC Adv. **4**, 154 (2014). [2] J. Li, *et al.*, Adv. Energy Mater. **5**, 1401408 (2015).

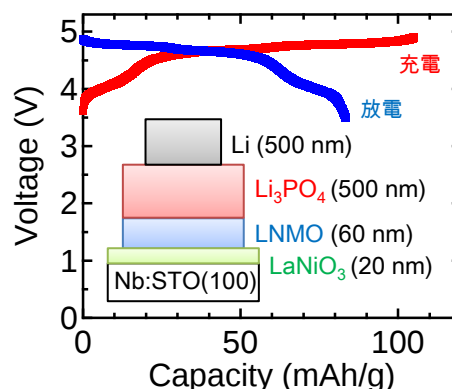


図 1. LNMO 全固体薄膜電池における充放電曲線。模式図は作製した全固体薄膜電池の構造。

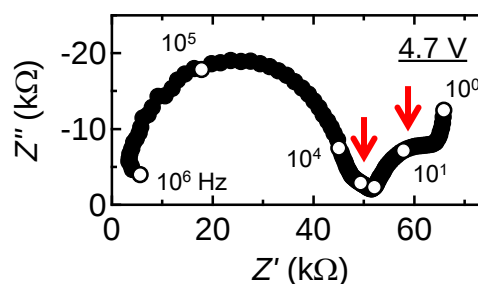


図 2. インピーダンススペクトル(4.7V)。矢印は界面抵抗に起因する成分。