

LiTi₂O₄ 負極材料のエピタキシャル薄膜を利用した 全固体 Li 電池の作製

Fabrication of all-solid-state Li batteries with LiTi₂O₄ epitaxial thin films

¹東工大物質理工, ²JST さきがけ °(B)小林 安貴¹, 西尾 和記¹, 清水 亮太^{1,2}, 一杉 太郎¹

¹Tokyo Tech., ²JST-PRESTO °Yasutaka Kobayashi¹, Kazunori Nishio¹, Ryota Shimizu^{1,2}, and
Taro Hitosugi¹

E-mail: kobayashi.y.bs@m.titech.ac.jp

【序】 世界各国で電気自動車の普及が急速に進んでおり、全固体 Li 電池の実用化が強く望まれている。しかしその実用化に向け、いくつかの課題が指摘されている。その課題の一つが固体電解質と電極間の界面抵抗を低減することである。我々は結晶方位や表面構造を規定することが可能なエピタキシャル薄膜技術を活用し、界面抵抗の起源を解明するためのモデル電極作製に取り組んできた。これまでに一度も大気曝露することなく全固体 Li 薄膜電池を作製し、固体電解質と LiCoO₂ 正極界面において超低抵抗(8.6 Ω·cm²)を実現している[1]。しかし、負極材料と固体電解質が形成する界面に着目した定量的な研究は皆無であった。そこで本研究では、サイクル特性や電子伝導性に優れるスピネル型 LiTi₂O₄ 負極材料に着目し、界面抵抗の定量評価を目指してエピタキシャル薄膜を利用した全固体 Li 薄膜モデル電池作製を行ったので報告する。

【実験】 パルスレーザー堆積法(PLD 法、KrF エキシマレーザー)により LiTi₂O₄ エピタキシャル薄膜を 0.5wt%Nb:SrTiO₃(111)単結晶基板上に作製した。その LiTi₂O₄ 薄膜上に固体電解質アモルファス Li₃PO₄ を PLD 法(ArF エキシマレーザー)により堆積した。さらに、対極として Li 金属を抵抗加熱により蒸着した。単結晶基板は集電体の役割も担っており、オーミック接触を実現するために Ti/Au 薄膜を RF マグネトロンスパッタリング法により成膜を行った。LiTi₂O₄ エピタキシャル薄膜は X 線回折法により構造評価した。

【結果】Fig. 1 に基板温度 600°C、酸素分圧 1×10⁻⁶ Torr の条件で作製した薄膜試料(膜厚 70 nm)の Out-of-plane X 線回折測定結果を示す。LiTi₂O₄ 薄膜は(111)配向しており過去の報告と一致する[2]。作製した電池素子(Fig. 2 挿図)のサイクリックボルタンメトリーの結果を Fig. 2 に示す。LiTi₂O₄ 相に由来する酸化、還元反応を 1.39 V、1.31 V で観測し 30 サイクル後においても安定して動作する電池作製に成功した。当日は電池素子作製、および、電池動作評価に関して詳細を報告する。

[1] Haruta, Hitosugi *et al.*, Nano Lett. **15**, (2015) 1498.

[2] Okada, Hitosugi *et al.*, Nat. Commun. **8**, (2017) 15975.

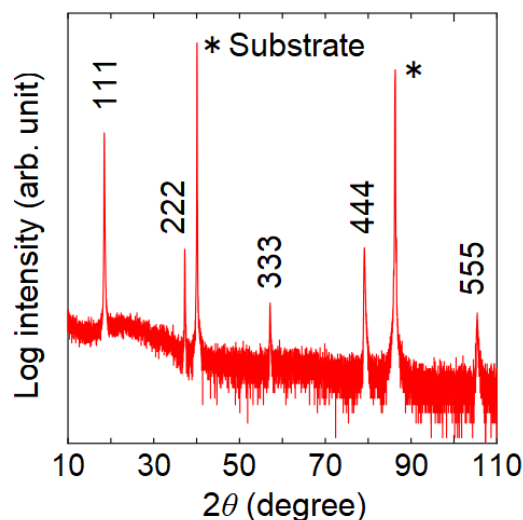


Fig. 1 Out-of-plane XRD pattern

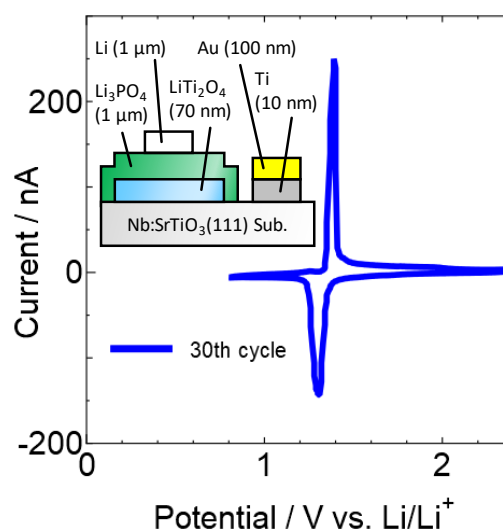


Fig. 2 Cyclic voltammogram