

スパッタ法による Li イオン伝導性固体電解質薄膜の作製と評価 Fabrication and Characterization of Li-ion Conductive Solid Electrolyte Thin Films by Sputtering Method

鶴岡工業高等専門学校 [○](B)成澤 謙真, 内山 潔*

National Institute of Technology, Tsuruoka College, [○]Kenshin Narisawa, Kiyoshi Uchiyama*

*E-mail: uchiyama@tsuruoka-nct.ac.jp

1. はじめに

近年, 固体電解質を用いた Li イオン電池 (LIB) は全固体電池と呼ばれ, 従来型 LIB に比べ高い電力密度や作動温度範囲の広さ, 非常に長いサイクル寿命等を有することから, 安全性と信頼性を改善した次世代の LIB として注目を集めている^[1]. LIB の電解質の固体化には, 従来の溶液系電解質と同等またはそれ以上の高いイオン伝導度が固体電解質に求められる^[2]. 現在, 全固体電池の開発は主に硫化物系電解質で行われているが, 私たちは硫化物系に比べ大気中での安定性に優れるペロブスカイト型酸化物^[3]に着目し, 研究を行っている.

一方, 最近, ペロブスカイト型酸化物である SrTiO₃ (STO) 基板を用いた Li 系酸化物薄膜作製において, 成膜中に STO 中に Li が拡散するという報告があった. この報告を受け私たちは, Li は STO 中を容易に伝導する可能性があるのではないかと考え, 本研究では実際に Li を添加した STO を作製し, Li 添加の伝導性に与える効果について評価を行った. 具体的には, Li₂O を添加した Li₂O-SrTiO₃ (LO-STO) 薄膜, および, STO への Li 添加で生じる B サイト空孔を Ti で補填した Li₂TiO₃-SrTiO₃ (LTO-STO) 薄膜を RF マグネトロンスパッタ法で作製し, Li を添加しない STO および代表的な酸化物系 Li イオン伝導体である Li_{0.5}La_{0.5}TiO_x (LLTO) の伝導性と比較し Li 添加効果について検証した.

2. 実験方法

本研究では, RF マグネトロンスパッタ法を用いて, STO 粉末, Li₂O:SrTiO₃ (mol 比 Li:STO = 0.2:1) 粉末, Li₂TiO₃:SrTiO₃ (mol 比 0.2:1) 粉末, Li_{0.5}La_{0.5}TiO_x (LLTO) セラミックをターゲットとして用い, それぞれ SiO₂/Si 基板上に成膜した. 作製した薄膜の結晶性は CuK α 線を用いた X 線回折 (XRD) 法によって評価した. 一方, 薄膜の伝導度は薄膜表面上にくし形電極 (Au) を作製し, その端子間インピーダンスを交流インピーダンス法で室温から 470°C の間で測定して算出した.

STO と比較し LO-STO の伝導度向上の可能性, および LO-STO に不足する B サイトを LTO-STO とすることで伝導度の向上が見られるかを検証する.

3. 実験結果

Fig.1 に SiO₂/Si 基板上に作製した STO, LO-STO, LTO-STO 及び LLTO 薄膜の X 線回折結果を示す. 出現した Au のピークは薄膜上に作製した Au 電極である. STO 薄膜は 110, 111, 211 とランダムなピークが出現したことから多結晶で成膜されたことがわかる. LO-STO 薄膜は STO で出現したピークに加え 200 も出現し, STO 同様に多結晶で成膜された. LTO-STO 薄膜は LTO 及び STO 由来のピークは出現せず, SiO₂/Si 基板のピークのみ出現したためアモルファスである. LLTO 薄膜も LLTO 由来のピークが出現せずアモルファスであることがわかった.

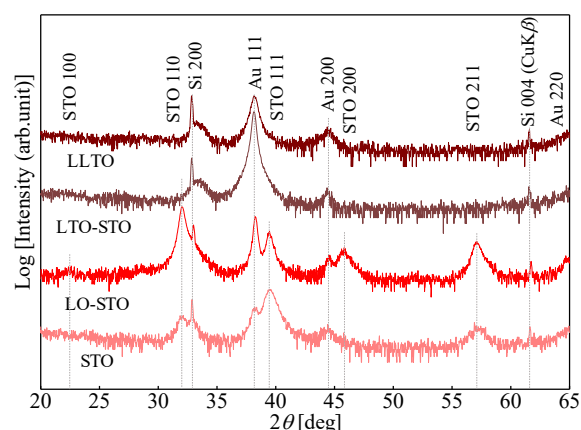


Fig.1 XRD patterns of SrTiO₃ (STO), Li₂O-SrTiO₃ (LO-STO), Li₂TiO₃-SrTiO₃ (LTO-STO) and LLTO thin films on SiO₂/Si substrates.

4. まとめ

薄膜中を Li イオンが容易に移動できるか結晶性と伝導度の面から検証した.

【謝辞】

本研究は, 鶴岡高専技術振興会の助成のもと行われました. ここに感謝いたします.

【参考文献】

- [1]. Z. Zheng et al., J. Electrochem. Soc., **162**, (2015) A244.
- [2]. F. Aguesse et al., Solid State Ion., **272**, (2015) 1.
- [3]. Y. Inaguma, 日本結晶学会誌, **58**, (2016) 62.