

固体電解質/大面積単一方位グラフェンにおけるリチウム挿入脱離挙動

Li intercalation/deintercalation behavior in solid-electrolyte/large-area-graphene

名大院工 [○]乗松 航, 山本 智士, 本山 宗主, 入山 恭寿

Nagoya Univ. [○]Wataru Norimatsu, Satoshi, Yamamoto, Munekazu Motoyama, and Yasutoshi

Iriyama

E-mail: norimatsu.wataru@material.nagoya-u.ac.jp

先行研究から、酸化物系無機固体電解質と多層膜グラフェンの界面における Li^+ の挿入脱離反応の電荷移動抵抗は、 $40 \Omega \text{ cm}^2$ 以下まで小さくなることが明らかになっている[1]。すなわち、従来の有機電解液を用いた系に比べ、より高レートでの充放電を実現できる可能性が示されている。本研究では、固体電解質としてのリン酸リチウムオキシナイトライドガラス (LiPON) 電解質および大面積単一方位グラフェンを理想的なモデル界面として用いることで、電極反応をさらに詳細に明らかにすることを目指して実験を行う。具体的には、層数を精密に制御したグラフェン試料を SiC 熱分解法により作製して電気化学測定を行い、Li 挿入脱離の微視的機構を明らかにする。過去の研究により、SiC 上グラフェンに Li を蒸着すると、図 1(a) のようにグラフェン層間および界面バッファ層/SiC 間の両方への Li インターカレーションが生じることが知られている[2] ものの、電気化学的操作による Li 挿入脱離に関しては報告がない。

CREE 社製 4H-SiC 単結晶基板を $5 \times 5 \text{ mm}^2$ に切り出し、その熱分解により表面にグラフェンを形成した。SiC 熱分解処理は、大気圧 Ar 雰囲気中で $1500 \sim 1650^\circ\text{C}$ の範囲で行い、グラフェン層数および被覆率が系統的に異なる一連の試料を作製した。得られた試料に対して、RF マグネトロンスパッタリング法により LiPON を蒸着してセルを作製し、サイクリックボルタンメトリー (CV) および電気化学インピーダンス (EIS) 測定を行った。

図 1(b) には、グラフェン被覆率 76 % 試料の CV 測定結果を示している。図から、低電位での還元電流に加えて、 $0.05 \sim 0.10 \text{ V}$ 付近に酸化還元波が見られる。これは、 Li^+ の挿入脱離が生じたことを示唆している。興味深いことに、酸化電流には矢印で示す 2 本のピークが観察された。これは、異なる電位で Li^+ が脱離したことを示唆している。すなわち、これら 2 本のピークは、いずれかがグラフェン層間、もう一方が界面バッファ層/SiC 間からの Li 脱離に対応すると考えられる。発表では、グラフェン被覆率の異なる試料を用いた場合の CV 測定結果や、EIS 測定の結果についても議論する。

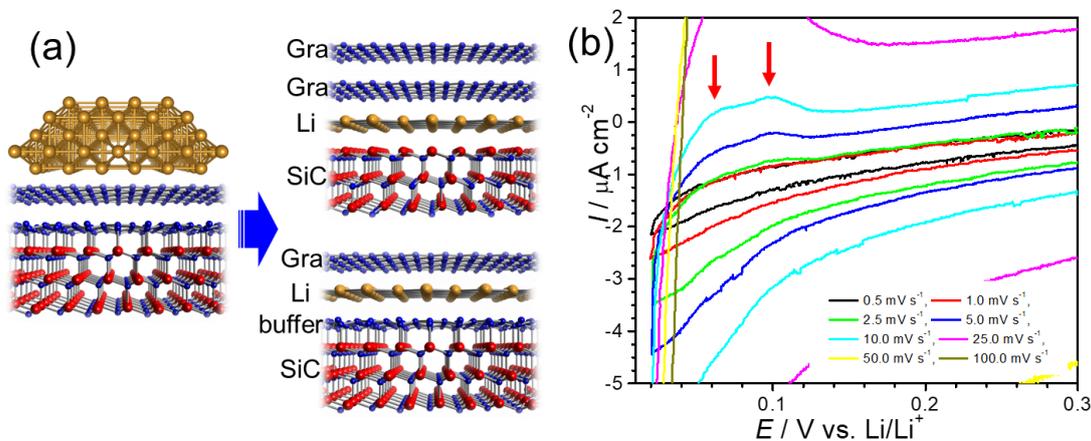


図 1 (a) グラフェン/SiC 界面への 2 種類の Li インターカレーションの模式図。(b) グラフェン被覆率 76 % 試料の CV 測定結果。各線は異なる掃引速度の結果を示している。

[1] M. Motoyama *et al.*, *submitted*.

[2] N. M. Caffrey, *et al.*, *Phys. Rev. B* 93, 195421 (2016), S. Fiori, *et al.*, *Phys. Rev. B* 96, 125429 (2017).