

SiO_x負極を用いた全固体リチウム電池の作製

Preparation of All-Solid-State Lithium Batteries with SiO_x Negative Electrodes

近大¹, 同志社大² [○]春田 正和¹, 松田 章正¹, 福山 智也¹, 岡 伸人¹, 土井 貴之², 稲葉 稔²

Kindai Univ.¹, Doshisha Univ.², [○]Masakazu Haruta¹, Akimasa Matsuda¹, Tomoya Fukuyama¹,

Nobuto Oka¹, Takayuki Doi², Minoru Inaba²

E-mail: haruta@fuk.kindai.ac.jp

【はじめに】世界的な環境意識の高まりにより電気自動車の普及が急速に拡大している。車載電源としてリチウムイオン電池が多く採用されているが、従来のリチウムイオン電池は発火の危険性を秘めており安全性の向上が求められている。そのため、すべての部材が不燃性の固体で構成された全固体リチウム電池が次世代の蓄電池として大きな注目を集めている。しかし、全固体電池の実用化のためにはエネルギー密度の向上、電極/固体電解質界面の抵抗低減など課題が残されている。本研究では、従来の黒鉛負極の約 10 倍の容量を有する Si を負極として採用し、酸化物固体電解質 (Li₇La₃Zr₂O₁₂, LLZ) 上に薄膜 Si 負極を作製した。さらに、一部酸化した SiO_x を負極として用い、酸素量が寿命特性に与える影響を調べるとともに、インピーダンス特性を評価した。

【実験】固体電解質 LLZ (φ15mm、豊島製作所) 上に負極活物質として Si 薄膜 (φ7mm、100nm) を RF スパッタにより作製した (Fig.1 参照)。また、成膜時のプロセスガスであるアルゴンと酸素の比率を調整することにより、SiO_x 薄膜 (x = 0.9) も作製した^[1]。その後、集電体として Cu 電極 (200nm) を蒸着した。対極に Li 金属を用いて Si|LLZ|Li、および SiO_{0.9}|LLZ|Li ハーフセルを構成した。作製したセルは、30°Cにて充放電特性およびインピーダンス特性を測定し、酸素量 x による影響を調べた。

【結果および考察】Fig.1 に示すように純 Si を負極として用いた場合には、100 サイクル後の容量維持率は 64%であった。比較として、電解液を用いて Si 薄膜 (銅箔上) の容量維持率を評価すると、100 サイクル後では 30~40%となる^[1]。全固体電池とすることにより、電解液を用いた場合よりも容量維持率が向上しているものの、充放電に伴う Si の体積変化により容量劣化している。一方、SiO_{0.9} を負極として全固体電池を作製した場合には、100 回の充放電を行っても容量劣化しなかった。SiO_x の充電時に形成される Li₂O や Li₄SiO₄ が体積変化の緩衝相として働いたと考えられる。当日は、インピーダンス測定結果も合わせて議論する予定である。

謝辞 本研究の一部は科学研究補助金 (No. 19H02609, 20H05299)、およびマツダ財団研究助成の支援を受けて行われた。

参考文献 [1] M. Haruta *et al.*, J. Electrochem. Soc., **166** (2019) A258.

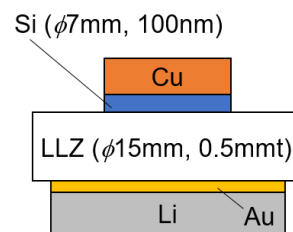


Fig. 1 Schematic image of an all-solid-state lithium battery with a Si negative electrode.

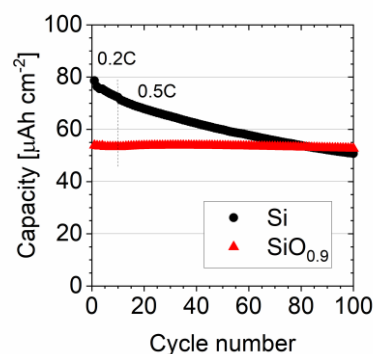


Fig. 2 Cycle performance of all-solid-state lithium batteries with Si and SiO_{0.9} negative electrodes.