

傾斜組成 $\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z\text{O}_2$ 薄膜作製に向けた $\text{LiNi}_{0.67}\text{Mn}_{0.33}\text{O}_2$ エピタキシャル薄膜の予備検討 Preliminary synthesis of $\text{LiNi}_{0.67}\text{Mn}_{0.33}\text{O}_2$ epitaxial thin films for designing compositionally graded thin film $\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z\text{O}_2$

○鈴木 貴太¹, 神永 健一¹, 丸山 伸伍¹, 松本 祐司¹ (1. 東北大院工)

○Kanta Suzuki¹, Kenichi Kaminaga¹, Shingo Maruyama¹, Yuji Matsumoto¹

(1. Tohoku Univ.)

E-mail: kanta.suzuki.p8@dc.tohoku.ac.jp

【研究背景】リチウムイオン電池の正極材である層状岩塩構造の $\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z\text{O}_2$ (NMC, $x+y+z=1$) は、従来材料に比べ高容量、低コスト、高安全性の点で優れており電気自動車への応用が期待されている。特に、近年 NMC 系では、材料内部から最表面にかけて組成を連続的に変化させた傾斜組成材料へと展開することで、さらなる電池性能の向上が報告されている^[1]。しかし、既報はいずれも結晶粒界や多形の影響を含んだバルク多結晶であり、理想的にはエピタキシャル薄膜のほうが傾斜組成と電池特性の真の相関を解明する上で適している。また、傾斜組成薄膜は当研究室で開発したガルバノミラー走査型パルスレーザー堆積(PLD)装置^[2]を用いることで容易に作製可能である。本研究では、傾斜組成 NMC 薄膜作製の前段階として、先行報告のない $\text{LiNi}_{0.67}\text{Mn}_{0.33}\text{O}_2$ エピタキシャル薄膜(NM 膜)を初めて作製したので報告する。

【実験結果】温度傾斜法を用いて、製膜温度 523 - 674°C の範囲で STO(100)基板上に NM 薄膜を PLD により一括で作製した。ターゲットには $\text{Li}_{1.4}\text{Ni}_{0.67}\text{Mn}_{0.33}\text{O}_2$ 多結晶を用いた。Fig.(a), (b), (c) の結果から、568 - 674°C の温度域で不純物のない NM (104) エピタキシャル薄膜が得られることがわかった。Fig. (c)に示すように Fig.(a), (b)のピーク位置から算出した格子定数と温度をプロットすると、 a 軸長は温度に対してほとんど変化しないが、 c 軸長は温度増加につれて伸長し 610°C 付近を境に減少に転じた。NM (104)ピークのロッギングカーブの半値幅から、630°C 付近がもっとも結晶性が良く、最適製膜温度であると考えられる(Fig. (d))。当日の講演では、最適条件で作製した NM 膜についての電池特性評価、および傾斜組成 $\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z\text{O}_2$ 薄膜についても議論する。

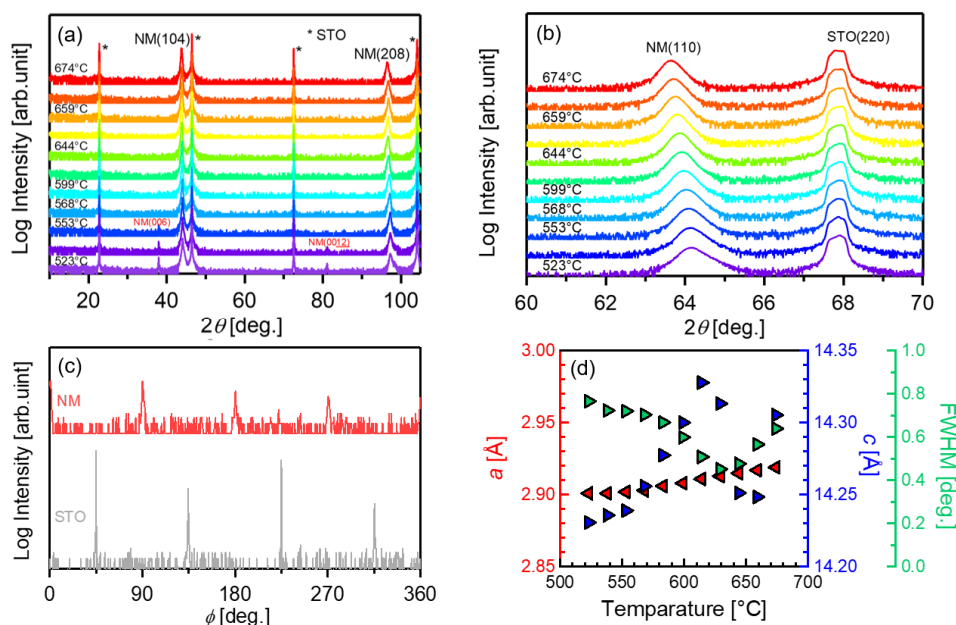


Fig. (a) Out of plane and (b) In-plane XRD patterns, (c) ϕ -scan, (d) Growth temperature vs. lattice constants (a , c), and FWHM plot

※ (c) $[104]_{\text{NM}}/[100]_{\text{STO}}$, $[110]_{\text{NM}}/[110]_{\text{STO}}$, (d) FWHM of ω scan for NM (104) peak.

[1] *Chem. Mater.* 2017, **29**, 5048–5052. [2] *Rev. Sci. Instrum.* 2019, **90**, 093901.

【謝辞】本研究は、JSPS 科研費 20H02610 の助成を受けたものです。