in situ ラマン分光法によるNドープグラフェン負極上における Li イオンの充放電反応挙動の解析

In situ Raman Analysis of Charge-Discharge Reaction Mechanism of Li-Ion on N-doped Graphene as a Li-Ion Battery Anode

豊田工大 Rohit Yadav, ^O原 正則, Prerna Joshi, 吉村 雅満

Toyota Technological Institute, Rohit Yadav, °Masanori Hara, Prerna Joshi, Masamichi Yoshimura E-mail: haram@toyota-ti.ac.jp

【緒言】近年、電気自動車やモバイル機器の利用拡大に伴い、高容量かつ高速充電が可能な Li イ オン二次電池(LIB)の開発が進められている.現在,LIBの負極には、グラファイトなどの炭素 材料が広く用いられており¹⁾,その充放電反応における Li イオンのインターカレーションのメ カニズムの解明が行われてきた²⁾.現在,さらに高い容量を持つ電極材の開発が行われており, Liイオンのインターカレーションの反応挙動に影響を与える炭素材料の欠陥や官能基,ドープ元 素の効果について明らかにすることが求められている. 本研究では, モデル電極として N ドー プ還元型酸化グラフェン(N-rGO)を LIB の負極として用い, in situ Raman 分光法による充放電反 応過程における反応挙動の解明を行った 3).

【実験】電極に用いる N-rGO は, Hummers 法によりグラファイ トから作製した酸化グラフェン(GO)と尿素を混合し,800℃で加 熱処理を行うことで合成した. 合成した N-rGO を SUS メッシュ 上に塗布することで試験極とした. In situ Raman 分光測定には, N-rGO 電極, セパレータ, Li 金属対極を組み込んだ片面に測定 窓を開けたコイン電池(Fig. 1)を用い, 電解液には1MLiPF6を含 むエチレンカーボネート(EC),ジエチルカーボネート DEC 混合溶液(1:1)を用いた.

【結果】Fig. 2 に、作製した N-rGO を試験極として組み込んだコインセルを用い、試験極の充電 過程における各電位で計測した N-rGO のラマンスペクトルを示す. 1593 cm⁻¹付近にグラファイト 構造に由来する G ピーク, 1350 cm⁻¹付近に欠陥構造に由来する D ピークが観察される. 電池の充

電反応に伴い, G ピークは低波数側にシフトし, これは Li イオ ンのインターカレーションによる電荷移動によるものと考えら れる. また、0.05 V 以下の電位において 1850 cm⁻¹付近に新たな ピークが観察された. これはNとLiイオンの結合によるものと 考えられる.この結合より、低電位において N-rGO 中の N 原子 がLiイオンの充放電反応に影響を与えることが示された.

【参考文献】1) S. Liu, et al., J. Mater. Chem. A 2 (2014) 18125.

2) K. Share, et al., Nanoscale 8 (2016) 16435.

3) R. Yadav, et al., Phys. Chem. Chem. Phys. 23 (2021) 11789.



Fig. 1 (a) Schematic of the customized coin cell setup for in situ Raman.



Fig. 2 In situ Raman spectra of Li ion intercalation on N-rGO electrode between OCP (2.7 V) and 0.02 V.