

イオン液体アシスト法を用いた LiBH_4 薄膜合成

Film Growth of LiBH_4 Using Ionic Liquid-Mediated Method

芝浦工大¹, 東北大院工², [○](B)戸澤 拓海¹, 風間 敦夫¹, 丸山 伸伍²,

松本 祐司², 大口 裕之¹

Shibaura Tech.¹, Tohoku Univ.², Takumi Tozawa¹, Atsuo Kazama¹, Shingo Maruyama², Yuji

Matsumoto², and Hiroyuki Oguchi¹

E-mail: ad18073@shibaura-it.ac.jp

【緒言】 LiBH_4 は $10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$ 以上の高速 Li イオン伝導を示す、全固体電池などの固体電解質として期待される材料である。2019 年には、薄膜型全固体電池の固体電解質として応用可能な LiBH_4 エピタキシャル薄膜が、赤外レーザー蒸着法により合成されている[1]。ただし、これまで得られた薄膜の結晶性は比較的低かった (XRD ロッキングカーブの半値幅は 1.1°)。また、直径数百 nm 程度のドーム状の島が高密度に表面を覆っていたり、ターゲットに含まれる赤外吸収剤(C または Si)が膜へ混入したりしていた。そこで本研究では、赤外レーザー蒸着法をベースとするイオン液体(IL)アシスト成膜[2]により LiBH_4 薄膜合成を行い、これらの欠点を改善することを目指した。

【実験】Fig. 1 に IL アシスト成膜により LiBH_4 を成長する様子を示す。真空チャンバー (背圧: 5.0×10^{-8} Torr) 中に設置した基板表面には IL が塗布されている。赤外レーザーにより加熱された LiBH_4 ターゲットから蒸発した LiBH_4 ガスが IL に溶解込み飽和すると、基板の上に LiBH_4 結晶が成長する。本研究では基板として $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ を、IL としては[emim][TFSA]を使用した。成膜温度は 150°C とした。薄膜の評価は X 線回折(XRD)、光学顕微鏡、ラマン分光により行った。

【結果と考察】Fig. 2 は IL アシスト成膜により得られた膜の $2\theta/\theta$ XRD パターンを示す。 LiBH_4 の(200)面および、 Al_2O_3 基板または Cu の表面保護層からの回折ピークのみが観察されたことから、IL アシスト成膜により(100)配向した単相 LiBH_4 薄膜の合成に成功したことが確認された。挿入図に示す光学顕微鏡像に見られた LiBH_4 結晶の粒径は約 $30 \mu\text{m}$ であった。従来膜の粒径は約 $10 \mu\text{m}$ であったので、IL アシスト成膜により結晶性を向上できた可能性が高い。また、ドーム状の島や赤外吸収剤は確認されなかった。以上より、IL アシスト成膜により LiBH_4 膜が成長可能であり、なおかつ従来膜より優れた膜質を得られることが分かった。

[1] H. Oguchi et.al., *ACS Appl. Electron. Mater.***1**, 9, 1792-1796 (2019)

[2] Y. Takeyama et.al., *CrystEngComm*, **14**, 4939-4945 (2012)

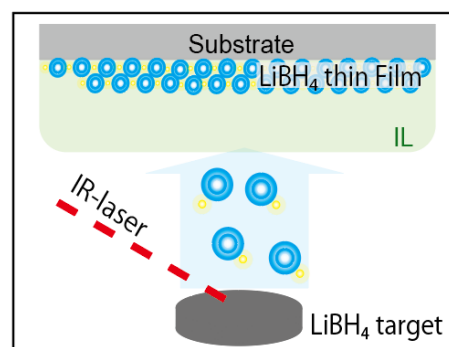


Fig. 1 Schematic of IL-mediated LiBH_4 film growth.

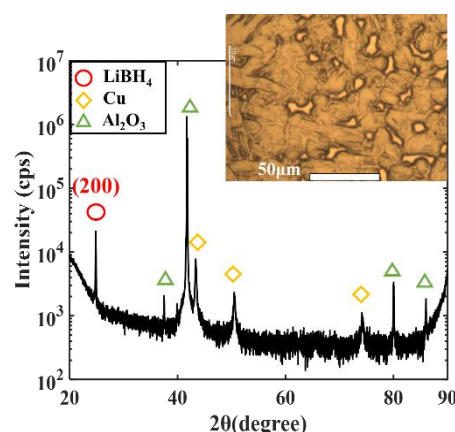


Fig. 2 The $2\theta/\theta$ XRD pattern and optical microscope image.