

Si 赤外吸収材を使用して赤外レーザー蒸着法により合成した LiBH₄ エピタキシャル薄膜の膜質評価

Evaluation of LiBH₄ Epitaxial Films Synthesized using Silicon as an IR absorber for Infrared Laser Evaporation

芝浦工大工¹ ○(B)岩崎 慧¹, (M1)磯 啓一朗¹, (B)風間 敦夫¹, 大口 裕之¹

Shibaura Tech.¹ ○Kei Iwasaki¹, Keiichiro Iso¹, Atsuo Kazama¹, and Hiroyuki Oguchi¹

E-mail: ad18011@shibaura-it.ac.jp

【緒言】 錯体水素化物 LiBH₄ は伝導率が $10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$ を超える優れた Li イオン伝導特性を示すために、全固体 Li 電池の固体電解質としての応用が期待されている[1]。そして最近では、薄膜型全固体 Li 電池の開発に向けて、赤外レーザー蒸着法を用いた LiBH₄ 薄膜合成が報告されている[2]。これまでの LiBH₄ 薄膜合成では、原料である LiBH₄ ターゲットに赤外吸収剤として炭素 C を混ぜていたが、この炭素が薄膜へ混入しやすいだけでなく、膜表面を高密度に覆う直径 10 μm 程度のドーム状の島が生じる原因となっていた。そこで本研究では、赤外吸収剤を C からシリコン Si に変更し、不純物混入度合いが少なく平坦な薄膜を合成することを目指した。

【実験】 成膜は赤外レーザー蒸着法により、150 $^{\circ}\text{C}$ に加熱した $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3(0001)$ 基板上行った。ターゲットには LiBH₄ と Si の粉末を混合し圧粉成形したペレットを使用し、このターゲットを赤外レーザーによって照射し蒸発させて膜を得た。薄膜の外観は光学顕微鏡および走査型電子顕微鏡(SEM)、平坦性は原子間力顕微鏡(AFM)、結晶性および配向性は X 線回折(XRD)、Li イオン伝導性は交流インピーダンス測定によりそれぞれ評価した。薄膜の成長過程を理解するために AFM 観察は膜厚の異なる複数の膜に対して行った。

【結果】 光学顕微鏡観察の結果(図 1)、C を使用した場合に多く見られた黒い塊が、Si へ変更した場合にはほとんど見られなかったことから、Si を使用することで薄膜への吸収剤混入を減少させられることが確認された。膜厚 100 nm と 1 μm の薄膜の AFM 観察結果(Fig.2)からは、膜ははじめ長方形の島状に成長し、膜厚を増すと島が繋がって平坦な部分が生じる様子が確認された。また、交流インピーダンス測定の結果(Fig.3)からは、本研究で合成した膜の Li イオン伝導性は従来報告されている粉体試料とはやや異なるものの、468 K で $3.2 \times 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$ と高い値を示しており、本研究で合成した膜が固体電解質としての応用に適したものであることが分かった。

[1] Motoaki Matsuo et al., Appl. Phys. Lett. 91, 224103, 2007.

[2] Hiroyuki Oguchi et. al., ACS Appl. Electron. Mater. 1, 9, 1792–1796, 2019.

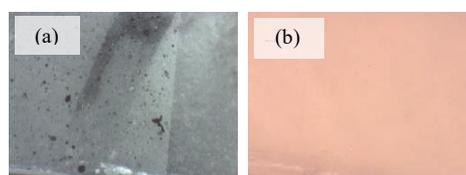


Fig. 1 Optical microscopic images of LiBH₄ films grown using (a) C and (b) Si as IR absorbers.

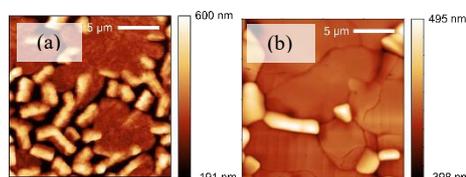


Fig. 2 AFM images of (a) 100 nm-thick and (b) 1 μm -thick LiBH₄ films.

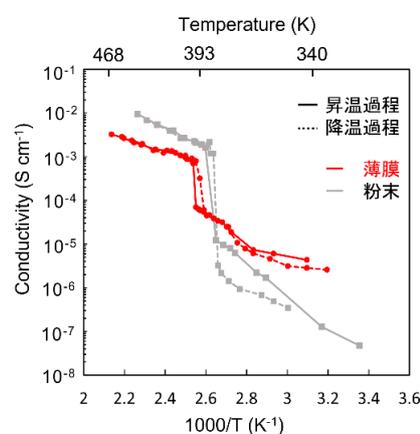


Fig. 3 Li-ion conductivity of a LiBH₄ film.