

エキシマレーザーを用いた全固体リチウムイオン電池の作製

SATテクノロジー・ショーケース2026

■はじめに

酸化物系全固体リチウムイオン電池は、電解液を用いた現在のリチウムイオン電池に比べて、高い安全性を見込めるが、実現するための課題の一つに、固体電解質と活物質との界面における抵抗の高さがある。活物質と固体電解質は共に硬いセラミックス粒子であるため、混合・加圧するのみでは点接触するのみで良好に接合できない。そのため、熱を用いた緻密化・接合プロセスが一般的に利用されている。しかしながら、この過程で活物質/固体電解質界面で高抵抗な相互拡散層が形成され、界面で起るリチウムイオン移動を阻害し、容量やサイクル効率の低下を引き起こす因子となる^{1,2)}。

塗布光照射法(光MOD)は、基材に各種方法で金属有機化合物を塗布し、レーザー照射によって多結晶、エピタキシャル膜を作製する方法である。本方法の特徴は、従来の溶液法の多成分が均一に混合できる点や大気中で製膜が可能である点に加えて、セラミックス材料の特性制御に重要な多結晶成長、配向制御、エピタキシャル成長が可能である点が挙げられる³⁾。

本研究では、焼結過程で起る活物質 / 固体電解質界面の相互拡散による高抵抗層の形成を抑制するために、焼結過程を必要としない光MODで正極活物質薄膜 $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ (NCM111) を成膜し、充放電試験を行った。

■活動内容

本研究では固体電解質基板(株式会社オハラ: LICGCTM焼結体 - 01)を用いた。前駆体溶液を固体電解質基板上に3000 rpm で10 秒間スピンドルコートした後、400 °Cで10 分間電気炉で加熱し、乾燥薄膜を得た。その乾燥薄膜試料をホットプレートによる400°Cで加熱を維持しながらKrFエキシマレーザー($\lambda = 248 \text{ nm}$)を照射することでNCM薄膜(ELセル)を作製した。レーザー照射条件は、照射エネルギー85 mJ/cm²、照射回数200回、照射周波数1 Hzとした。得られたNCM薄膜の結晶構造をX線回折法(XRD)により評価した。また、作製したELセルの負極にはIn-Li合金を用い、100°Cに加熱した状態で充放電試験を行った。

図1に、光MODによりLICGC基板上にNCM薄膜を成膜して作製したELセルのXRDプロファイルを示す。レーザー照射によってNCMの結晶化が確認され、明確な回折ピークが得られた。また、NCMおよびLICGCのピークが一部重なった形状を示していることから、不純物層の生成は観測

されず、単相のNCM薄膜が形成されたと考えられる。

図2に、作製したELセルを用いた充放電曲線を示す。充電および放電の両過程において容量を得られていることから光MODにより作製した全固体電池セルが充放電反応を示すことが確認できた。

本発表では熱処理プロセスおよび光MODで作製した試料の電気化学的特性を比較し、その結果について報告する。

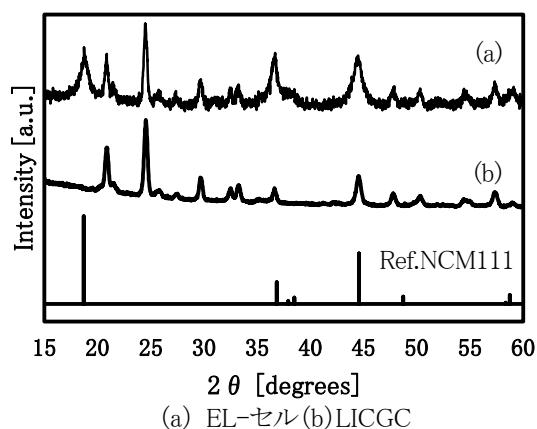


図1 EL-セル、LICGC および NCM の X 線回折プロファイル

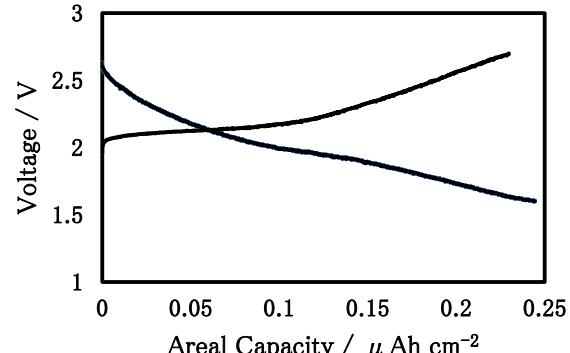


図2 NCM/LICGC/In-Li の充放電曲線

■参考文献

- 1) Younggyu Kim et al, Chem. Mater. 32, 22 (2020).
- 2) Kyusung Park et al, Chem. Mater. 28, 21 (2016).
- 3) 土屋哲男, 表面技術, 63, 345 (2012).

■キーワード: (1)全固体リチウムイオン電池
(2)光 MOD
(3)酸化物薄膜

■共同研究者: 高橋 伊久磨(千葉工業大学)
土屋 哲男(産業技術総合研究所)
鵜澤 裕子(産業技術総合研究所)