

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 14918 号
------	---------------

氏 名 吉川 慶佑

論文題目

可塑性無機固体電解質を用いた高エネルギー全固体電池の界面設計
(Interface Design of High Energy All-Solid-State Batteries with Ductile Inorganic Solid Electrolytes)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	工学研究科	教授	入山 恭寿
委員	名古屋大学	工学研究科	教授	福塚 友和
委員	名古屋大学	未来社会創造機構	教授	旭 良司
委員	名古屋大学	工学研究科	准教授	矢島 健

論文審査の結果の要旨

吉川 慶佑君提出の論文「可塑性無機固体電解質を用いた高エネルギー全固体電池の界面設計」は、可塑性固体電解質を用いた全固体電池の高エネルギー密度化に着目し、特に全固体電池の高電位充電における正極表面の反応を安定化するための被覆層の役割と劣化機構を明らかにし、高エネルギー全固体電池を実現するための被覆層材料の開発指針について述べている。本論文は4部で構成され、各部及び各章の概要は以下の通りである。

第1部は序論であり、はじめに固体電解質の可塑性とヤング率、構成するアニオンのイオン半径、イオン伝導率、電位窓との相関に関する一般論を述べている。次に、可塑性固体電解質を用いた全固体電池を高電位で充電する際に電極上へ被覆層を備える必要性と、全固体電池を高電位で充電した際に生じる劣化現象の既報について述べている。これらをもとに、最後に本論文の目的について述べている。

第2部は2章で構成され、可塑性固体電解質として酸臭化物を用いた研究成果を述べている。第1章は、可塑性固体電解質と薄膜電極を組み合わせた電池の作製方法について述べている。第2章は前章で確立した手法をもちいて厚みの異なる被覆層（非晶質Li-P-O）を薄膜電極上に作製し、充電する際に生じる可塑性固体電解質の分解が被覆層の厚みの増加に応じて減少すること、被覆層が電極へのプロトン挿入を抑制することで充放電サイクルの安定化に寄与することなどを実験的に明らかにしている。

第3部は2章で構成され、可塑性固体電解質として硫化物を用いた研究成果を述べている。第1章は被覆層として非晶質のLi-Nb-Oに着目し、高電位で充電すると被覆層がLi脱離と酸素放出を伴って変質することを電気化学XPS測定及びガス分析を用いて明らかにしている。本成果は高電位で生じる被覆層の劣化機構を直接的に示すものであり、硫化物型全固体電池の高エネルギー密度化に有用な被覆層の材料設計指針を示すものである。第2章は前章の結果をうけて非晶質のLi-Nb-P-Oに着目し、非晶質Li-Nb-Oと対比した結果について述べている。非晶質Li-Nb-P-Oを用いた場合も高電位で充電するとLi脱離が起こるが、酸素が発生しにくくなることを明らかにし、更にこの被覆層が充電時に生じる電極からの酸素放出も抑制することを見出している。これは、硫化物型全固体電池を高電位で充電して高エネルギー密度化を目指すための被覆層材料の具体的な提案に繋がる有用な成果である。

第4部では本研究の総括を与えている。

以上のように本論文では可塑性固体電解質を用いた全固体電池の界面反応の安定化に必要な被覆層の機能とその劣化機構を明らかにしている。本研究で得られた成果は、特に高エネルギー全固体電池の寿命を向上する被覆層材料開発に重要な知見であり、工学の発展に寄与するところが大きいと判断できる。よって、本論文の提出者である吉川 慶佑君は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格があると判断した。