

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 13111 号
------	---------------

氏 名 石川 晃平

論 文 題 目

Cu集電体の結晶方位が金属Li負極のサイクル特性に及ぼす影響
(Effect of the crystal orientation of Cu current collector on
cycling stability of Li metal anodes)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	教授	宇治原 徹
委員	名古屋大学	教授	入山 恭寿
委員	名古屋大学	教授	興戸 正純
委員	名古屋大学	教授	鳥本 司
委員	名古屋大学	准教授	伊藤 靖仁

論文審査の結果の要旨

石川晃平君提出の論文「Cu集電体の結晶方位が金属Li負極のサイクル特性に及ぼす影響」は、Li系2次電池の高エネルギー密度化に有効である金属Li負極に焦点を当て、充放電に伴う不均一析出を結晶成長の観点から研究し、負極集電体の結晶方位が析出形状とサイクル特性に及ぼす影響を明らかにしている。各章の概要は以下のとおりである。

第1章は序論であり、金属Li負極の実現における析出状態の均質性の意義について述べ、本論文では、金属Li負極の集電体として広く用いられているCuに着目し、その結晶方位が金属Li負極の析出形状とサイクル特性に及ぼす影響を明らかにすることを研究目的としたことを述べている。

第2章では、多結晶Cu集電体の結晶方位が金属Li負極の析出形状に及ぼす影響について調べ、金属Li負極の析出形状はCuの結晶粒の方位によって大きく変化し、Cu(111)、Cu(101)、Cu(001)のような低指数では均一、高指数面では不均一となることを明らかにしている。これは、金属Li負極の析出形状と負極集電体の結晶方位の関係を示した初めての結果である。

第3章では、結晶成長理論に基づき、定電流条件における過電圧の時間変化を表す微分方程式を構築し、過電圧の関数である核形成頻度と核の成長速度と同時に解くことにより、形成したLiの結晶核のサイズ分布は吸着Li原子の平衡濃度によって異なり、平衡濃度が小さいほど均一で小さい結晶核が生じることを明らかにした。これは、第2章で得られた結果を証明するものである。

第4章では、サイクリックボルタンメトリーを用いた充放電により実験を行い、Cu(111)、(001)はCu(101)、多結晶Cuと比較して充放電効率が高いことが明らかにし、さらに、充放電サイクルに伴う界面抵抗の変化を電気化学インピーダンス測定で計測したところ、その値はCu(111)<Cu(001)<多結晶Cu<Cu(101)となることが明らかにした。また、X線光電子分光法(XPS)およびオーージェ電子分光法(AES)により、SEIの形成の方位依存性を調べた。その結果、負極集電体の結晶方位がSEIの生成に影響を及ぼすことを初めて明らかにした。

第5章では、定電流充放電を用いた充放電により、金属Liのサイクル特性とCu集電体の結晶方位の関係を調べ、Cu(101)で最も過電圧が高く、Cu(111)で最も低くなることを明らかにし、第4章で示された界面抵抗の方位依存性は、定電流充放電時にも影響することを示した。

第6章では、本研究の結論を与えている。

以上のように本論文では、金属Li負極の性能向上に向けた様々な研究で対象とされてきた負極集電体に対して、結晶方位の制御が極めて重要であることを明らかにしている。結晶方位制御という視点は、これまでのLi電池負極の研究ではほとんど考慮されたことがなく、まったく新しい視点を提供している。本論文は、今後ますます重要性を増すLi電池の発展を通じて、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石川晃平君は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格があると判断した。