

## 論文内容の要旨

### 博士論文題目

High-power solid-state lithium batteries with silica-gel solid nanocomposite electrolytes

ナノコンポジット固体電解質を用いた高出力全固体電池

氏名 相良 暁彦

### (論文内容の要旨)

全固体電池開発のカギを握る固体電解質材料には、安定かつ無害で、Li イオン伝導度が高く、電極活物質と良好な界面接合を形成することが求められる。有力な候補材料として、ポーラス SiO<sub>2</sub> の細孔内に、イオン液体(IL)と Li 塩を担持させた新規ナノコンポジット固体電解質(nano-SCE)を提案し、開発を進めてきた。nano-SCE の最大の特徴は、SiO<sub>2</sub> 細孔表面に形成された固体吸着水層内の分極により、Li イオンの乖離度が向上し、伝導度が向上する点にある。この「表面伝導促進効果」を最大化し、さらなる高伝導化及び高出力電池動作を実現するためには、細孔内における Li イオン伝導挙動の定量的理解が必須である。そこで本研究では、①nano-SCE の細孔構造評価技術の確立、②細孔内のイオン伝導挙動の解明、③nano-SCE を用いた高出力全固体電池の実証、を行った。

まず初めに、陽電子消滅寿命測定法を用いて、従来法では測定困難なナノ孔や閉気孔を含む nano-SCE の細孔構造評価を行った。その結果、3 種のナノ孔を識別し、IL/SiO<sub>2</sub> 比に対応した構造変化の同定に成功した。

次に、各細孔の細孔径や比表面積から、SiO<sub>2</sub> 表面に吸着した固体水層の厚みを算出し、表面伝導促進率との相関を定量化した。また、30nm 以下の細孔内では、IL 分子の粘度が向上し、イオン伝導が抑制されることを明らかにし、高伝導化に向けた構造設計指針を得た。

最後に、Li 負極界面での抵抗を低減できる IL 材料として、EMI-FSI を抽出し、新規 nano-SCE の合成に成功した。本材料を用いた Li-LFP 電池セルを作製し、評価した結果、安定かつ既存リチウムイオン電池と同等の充放電レート特性を示すことを実証し、nano-SCE を用いた高出力電池動作を実現した。

(論文審査結果の要旨)

本論文提出者は、新規ナノコンポジット固体電解質(nano-SCE)を用いた高出力全固体電池に関する研究を行った。全固体電池開発のカギを握る固体電解質材料には、安定かつ無害で、Li イオン伝導度が高く、電極活物質と良好な界面接合を形成することが求められる。有力な候補材料として、ポーラス SiO<sub>2</sub> の細孔内に、イオン液体(IL)と Li 塩を担持させた新規ナノコンポジット固体電解質を提案し、開発を進めてきた。nano-SCE の最大の特徴は、SiO<sub>2</sub> 細孔表面に形成された固体吸着水層内の分極により、Li イオンの乖離度が向上し、伝導度が向上する点にある。この「表面伝導促進効果」を最大化し、さらなる高伝導化及び高出力電池動作を実現するためには、細孔内における Li イオン伝導挙動の定量的理解が必須である。そこで本研究では、①nano-SCE の細孔構造評価技術の確立、②細孔内のイオン伝導挙動の解明、③nano-SCE を用いた高出力全固体電池の実証、を行った。

本論文は、上記の背景と目的を述べた第1章から、総括を述べた第5章までの全5章で構成されている。

第2章では、陽電子消滅寿命測定法を用いて、従来法では測定困難なナノ孔や閉気孔を含む nano-SCE の細孔構造評価を行った。その結果、3種のナノ孔を識別し、IL/SiO<sub>2</sub> 比に対応した構造変化の同定に成功した。

第3章では、各細孔の細孔径や比表面積から、SiO<sub>2</sub> 表面に吸着した固体水層の厚みを算出し、表面伝導促進率との相関を定量化した。また、30nm 以下の細孔内では、IL 分子の粘度が向上し、イオン伝導が抑制されることを明らかにし、高伝導化に向けた構造設計指針を得た。

第4章では、Li 負極界面での抵抗を低減できる IL 材料として、EMI-FSI を抽出し、新規 nano-SCE の合成に成功した。本材料を用いた Li-LFP 電池セルを製作し、評価した結果、安定かつ既存リチウムイオン電池と同等の充放電レート特性を示すことを実証し、nano-SCE を用いた高出力電池動作を実現した。

以上のように、本論文は、新規固体電解質の Li イオン伝導メカニズムを解明し、有用性を実証した点で、工学的に高い価値を有すると考えられる。よって審査員一同は、本論文が博士(工学)の学位論文として価値あるものと認めた。