T2R2 東京工業大学リサーチリポジトリ
Tokyo Tech Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	リチウムイオン導電体Li10GeP2S12の開発と 全固体電池への応用
Title(English)	Development of lithium ion conductor, Li10GeP2S12, and its application to all-solid-state batteries
著者(和文)	加藤祐樹
Author(English)	Yuki Kato
出典(和文)	学位:博士（工学）, 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9688号, 授与年月日:2014年12月31日, 学位の種別:課程博士, 審査員:菅野　了次,大坂　武男,川路　均,中村　二朗,松下　伸広,平山　雅章
Citation(English)	Degree:, Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9688号, Conferred date:2014/12/31, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

Powered by T2R2 (Tokyo Institute Research Repository)

本論文は「Development of lithium ion conductor, $Li_{10}GeP_2S_{12}$, and its application to all-solid-state batteries」と題し、全固体電池に用いるリチウム導電体の合成・構造・特性及びそれを用いた全固体電池の特性をまとめたものであり、英語で記述され 2 部 6 章から構成されている。

第 A 部(第二章、第三章)はリチウム導電体の材料研究について述べ、第 B 部(第四章、第五章)は開発した新規イオン導電体の全固体電池への応用について述べている。

第一章「General introduction」では、全固体電池の次世代電池における位置づけを述べ、その実現におけるリチウム導電体の重要性について述べている。またリチウム導電体開発における結晶構造の重要性について述べ、材料研究の現状と課題について概説し、本研究の意義、目的について記述している。

第二章「Novel super ionic conductor $Li_{10}GeP_2S_{12}$」では、新しく見出したリチウムイオン導電体 $Li_{10}GeP_2S_{12}$(LGPS)について述べている。Thio-LISICON 組成（Li_3PS_4-Li_4GeS_4）の相関係を再考し合成方法を最適化することで LGPS を得た。また放射光と中性子を用いた未知の結晶構造解析を行い LGPS の結晶構造を同定した。さらに LGPS は室温で 12 $mScm^{-1}$ と高いイオン導電率を示すことを明らかにした。

第三章「Solid solution system of $Li_{10}M_xM'_{1-x}P_2S_{12}$ (M, M' = Si, Ge, Sn) with the $Li_{10}GeP_2S_{12}$-type crystal structure」では、LGPS 構造において固溶体を合成し、その導電率変化と結晶構造変化を紐付けした。これにより LGPS 構造におけるリチウム導電機構を考察し、骨格を形成する多面体の体積分布がリチウムの分布に影響し、さらには導電率に影響することを見出した。

第四章「Electrochemical stability of $Li_{10}GeP_2S_{12}$」では、第二章で見出したリチウム導電体 LGPS の電気化学安定性について述べている。LGPS は 0.8 V(*vs.* Li/Li^+)で還元分解することを明らかにした。また、その分解の過程を XRD、TEM、XAFS および電気化学的手法により同定した。さらに電気化学的に安定な Li_3PS_4 についても調査することで、LGPS と Li_3PS_4 の電気化学安定性における違いを明らかにした。

第五章「An all-solid-state battery employing $Li_{10}GeP_2S_{12}$ as solid electrolyte」では、第一章で見出したイオン導電体 LGPS を全固体電池に応用した結果について述べている。また同じ電極体構成で電解液系のリチウムイオン電池を作製し、その特性を比較した。その結果、全固体電池は -30°C-100°C の温度範囲で液系電池よりも優れた特性を示し、固体と液体のイオン導電体におけるイオン導電メカニズムの違いが電気化学反応に大きく影響することを見出した。

第六章「General conclusion」では、本論文を総括している。

これを要するに，本論文は全固体電池の実現に必要な材料であるリチウムイオン導電体について、新しい材料 LGPS を開発し、その構造と特性について研究を行い、全固体電池に応用することで従来の電解液を用いたリチウムイオン電池に対する優位性を明らかにした。本成果はリチウムイオン導電体開発の新しい方向性を与え、次世代電池としての全固体電池の可能性を示すものである。