

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	A Li ₂ S-based composite cathode with robust ion/electron-conducting structure for all-solid-state lithium-sulfur batteries
著者(和文)	ジャンペイル
Author(English)	Peilu Jiang
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京科学大学, 報告番号:甲第249号, 授与年月日:2025年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:平山 雅章,鈴木 耕太,荒井 創,稲木 信介,和田 裕之
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Institute of Science Tokyo, Report number:甲第249号, Conferred date:2025/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第		号	学位申請者氏名	JIANG PEILU	
論文審査 審査員		氏名		職名	氏名	職名
	主査	平山 雅章		教授	和田 裕之	准教授
	審査員	鈴木 耕太		准教授		
		荒井 創		教授		
		稲木 信介		教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、“A Li₂S-based composite cathode with robust ion/electron-conducting structure for all-solid-state lithium-sulfur batteries”と題し、英語で記述され六章より構成されている。

第一章「General introduction」では、全固体リチウム硫黄電池 (ASSLSBs) の高エネルギー密度と長寿命化を実現するうえでの課題として、低イオン・電子伝導性、大きな体積変化、界面の不安定性などが概説されたのち、本研究のアプローチである Li₂S 系正極の混合伝導性向上、三次元導電経路を備えた安定な正極フレームワークの構築、界面接触の改善、および ASSLSBs におけるアノードフリー構造の最適化が説明されたうえで、研究の意義と目的が記述されている。

第二章「Experimental」では、複合体の液相合成プロセス、密度汎関数理論計算、および構造と物性の評価・解析手法について詳細が説明されている。

第三章「Synthesis and characterization of the ACSV cathode composite」では、液相法を用いた ACSV (Active material–Carbon replica 10–Solid electrolyte–Vapor-grown carbon fiber) 正極複合体の作成と最適化について記述している。Li₂S-LiI 活物質、メソポーラスカーボン(CR10)、液相合成した固体電解質 Li₆PS₅Br、および導電性気相成長炭素繊維 (VGCF) の複合化プロセスが調べられている。LiI による活物質の活性化、CR10 細孔内への活物質導入、固体電解質の微粒化、三次元伝導経路の形成が、可逆的な充放電反応の発現に寄与することを明らかにしている。さらに、理論計算により、LiI による活性化には電子伝導性の向上と Li-S 間結合力の変化が寄与することを見いだしている。

第四章「Electrochemical performance of all-solid-state Li-S battery with ACSV cathode」では、ACSV 正極が示す優れた充放電特性の起源が解析されている。CR10 の有無による比較実験から、細孔内への活物質導入で充放電中の活物質体積変化に起因する正極複合体に生じる応力が緩和されることを見いだしている。正極複合体やセパレーター電解質への亀裂発生を抑制することで、電池内部の抵抗増大が緩和され、サイクル特性が大幅に向上することを明らかにしている。

第五章「Anode-free all-solid-state Li-S battery with ACSV cathode」では、ASSLSBs のエネルギー密度向上の鍵である Li 溶解析出反応を利用するため、アノードフリー全固体リチウム硫黄電池 (AFASSLSBs) 向けの金属コーティング Cu-X (X = Al, Ag, Au) 集電体の特性が調べられている。理論計算で材料スクリーニングを行い、Li の表面吸着エネルギーと Li 拡散障壁の観点から、Ag が理想的なコーティング材であることを提案している。Cu 集電体では局所的にリチウム金属が溶解析出し、固体電解質との接合が失われるが、Ag コーティングによって均なりチウム析出が促進され、デンドライト形成が抑制されることを確認している。デンドライト抑制により Cu-X/固体電解質界面の密着性が保持されることで、充放電サイクルの可逆性が大幅に改善することに成功している。Cu-Ag 集電体と ACSV 正極を組み合わせることで、負極に Li-In 合金電極を採用した電池(20 Wh kg⁻¹)と比べて 9 倍以上のエネルギー密度(210 Wh kg⁻¹)を維持しながら、50 サイクルの可逆的な充放電が可能であることを実証している。

第六章「Summary」では、本論文を総括している。

これを要するに、本論文は ASSLSBs の正極複合体の、材料選定、材料合成法、複合化手法と得られる正極複合体の電極特性との相関について記述している。細孔内への活物質導入、炭素繊維による三次元的な電子伝導経路の構築、固体電解質の微細化により、複合体内の電子・イオン導電経路を担保し、さらに活物質の膨張収縮を抑制することで、充放電反応の可逆性向上を達成している。さらに、理論計算の手法を駆使しながら AFASSLSBs の設計に取り組み、電池全体としてのエネルギー密度向上の可能性について検証し、エネルギー密度およびサイクル特性向上につながる正極および負極設計の指針を提案しており、理学上貢献するところが大きい。よって本論文は博士 (理学) の学位論文として十分な価値があると認められる。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東京科学大学リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。