はたけ やま けい すけ

氏 名 畠 山 恵 介

学 位 の 種 類 博士(工学)

学 位 記 番 号 甲第172号

学位授与年月日 平成17年 3月18日

学位授与の要件 学位規則第4条第1項該当

学 位 論 文 題 目 金属水素化物電池の全固体化に関する研究

学位論文審査委員 (主査) 江坂亨男

(副查) 坂口裕樹 丹羽幹

学位論文の内容の要旨

近年、携帯電話やモバイル用のノート型パソコン、デジタルカメラなどが急速に普及していることは周知の通りである。これら多機能・高性能化が進む携帯用機器の開発における最も重要で困難な部品は「電源」であるといわれている。現在は液体電解質を用いた二次電池(リチウムイオン二次電池、Ni-MH 電池)が使用されているが、安全性や容量の点で解決すべき課題がいまだ多く残されている。漏液、安全性等に対する心配の無さを考えると、将来的には電池の「全固体化」が必須である。また石油資源や環境の問題から、電気自動車やハイブリットカーに対する期待が高まっており、これらに搭載されるバッテリーに対しても全固体化の実現が望ましいものであろう。本研究では金属水素化物二次電池の全固体化を目指すうえで、電解質材料として、プロトン伝導性を示す無機系固体電解質に着目した。

本論文は金属水素化物電池の電解質として現在使用されているアルカリ性水溶液を固体電解質に置き換えることで全固体電池を開発することを目的として行った一連の研究をまとめたものである。

第 I 部ではヘテロポリ酸水和物を固体電解質に用いた全固体金属水素化物二次電池の構築および充放電特性について述べる。

当研究室ではこれまでに、常温付近におけるイオン伝導率が比較的高い上、負極の水素吸蔵合金を分解させないことが期待される酸化ジルコニウム水和物(OH 伝導)およびこれに固体状の水酸化カリウムを添加した電解質について検討したが、その充放電性能は極めて乏しいものであった。そこで本研究では、酸化ジルコニウム水和物より高い導電率を示すヘテロポリ酸水和物(12-モリブドリン酸水和物、H30+伝導)を選択した。この材料は強い酸性を示す材料であるので、用いる電極活物質についても腐食等を考慮し選択した。その結果、この材料が金属水素化物電池の固体電解質として機能することがわかった。正・負極を構成する材料(活物質、導電材、結着剤、固体電解質)の混合比、測定セル作製時の条件を最適化することで電池の高性能化を図った。そ

の結果、電極内へ適度に固体電解質を添加することで高い放電効率を示し、電池特性が著しく改善されることがわかった。これは電極/電解質界面の面積が増加、すなわち反応場が増加し、電極上での反応がスムーズに進行するようになったために電池特性が向上したものと推察される。

第Ⅱ部では第Ⅰ部でえられた知見から含水酸化物 ZrO2・nH2O を固体電解質とする全固体金属水素化物二次電池の充放電特性の改善について述べる。上述第Ⅰ部で電池特性の向上には、電極/電解質界面が鍵となることが示された。そこで電極/電解質界面量を増大させるための電極構成、セル作製方式を適用した。その結果、これまでと比較し著しい電池特性の向上が見られた。

以上、本研究ではこれまで報告のある全固体金属水素化物電池の性能を超える新しい電池を開発することに成功した。

論文審査の結果の要旨

本研究は、水素化物二次電池の全固体化を目的として行われたもので、現在アルカリ性水溶液電解質を固体電解質に置き換えた場合、どの程度の電池特性が得られるかを解析したものである。まず固体電解質として、室温で高いプロトン導電率を示すヘテロポリ酸水和物(12-モリブドリン酸水和物)に注目した。この場合、材料の強い酸性度を考慮した上で正一負極の材料を選定し、これらで構成した電池の特性を検討した。その結果、この材料が金属水素化物電池の固体電解質として機能することを明らかにした。更に、正一負極内での材料構成(活物質、導電材、結着剤、固体電解質の混合比)と電池作製条件を最適化することで性能が向上することも示した。これらの結果から、全固体電池反応の促進には、電極一電解質界面の面積が増加、すなわち反応場が増加し電極上での反応がスムーズに進行するようになる必要があるものと結論づけた。また上記で得られた界面反応の知見を、含水酸化物 ZrO2-nH2O を固体電解質とした全固体金属水素化物二次電池に応用した場合、その充放電においてもこれまで報告されている結果を遙かにしのぐ特性の改善が得られることを示した。

以上の内容は、研究論文にまとめられ既に報告されている。これらの内容から、当該論文は博士学位論文として十分な内容を持っていると判定する。