

(様式7)

学位論文審査結果の要旨

氏名	ひろのともき 廣野 友紀
審査委員	委員長 _____ 坂口 裕樹 _____ 印 委員 _____ 薄井 洋行 _____ 印 委員 _____ 道見 康弘 _____ 印 委員 _____ 増井 敏行 _____ 印
論文題目	Invention of Silicon Oxide-Based Anode Materials for Rechargeable Batteries (蓄電池用酸化ケイ素系負極材料の創製)
審査結果の要旨	<p>2050年カーボンニュートラルの実現に向けて、二酸化炭素の排出量を減らす取り組みが盛んに進められている。その中でも蓄電池、特に電気自動車用のリチウムイオン電池が担う役割は極めて重要になってきており、その高性能化が求められている。本論文は、蓄電池用酸化ケイ素 (SiO_x) 系負極材料の創製、ならびにその優れた負極特性のメカニズムの解明を目的として行った研究をまとめたもので、三章から構成されている。</p> <p>第一章では、メカニカルミリング法を用いて SiO_x に第三元素を添加した活物質を作製し、それらのリチウムイオン電池負極特性を評価した結果を述べている。SiO_x は Si と SiO_2 との混合相からなり、クラスター状の Si が網目状の四面体 SiO_4 中に微分散した構造を有する。本研究では、Li^+ の Si 相への供給を容易にするために、第三元素 (Al, B, Sn) を SiO_2 マトリックス中に分散させることで活物質の電子伝導性の改善を図り、それにより Li^+ との反応性を高めることを検討した。その結果、Sn が SiO_2 マトリックスに添加されることで電子伝導性が向上し、Li^+ との反応性が向上することを確認し、Sn 添加 SiO_x 負極の充放電サイクル性能が向上することを明らかにした。これらの結果から、SiO_x 中の SiO_2 マトリックスがより均一に Li^+ を吸蔵・放出でき、微結晶 Si 相への Li^+ 供給が均一化され局所的な体積変化が生じにくい構造となったために電極の崩壊を軽減できる知見を得た。</p> <p>第二章では、前章で良好な負極特性を示した Sn 添加 SiO_x 負極に着目し、その Sn 添加量が充放電特性に与える影響を調べた結果を詳述している。添加量を 1-5 wt.% の範囲で変えたところ、3 もしくは 4 wt.% の場合に最も優れたサイクル寿命を示すことを確認した。Sn 添加量がこれよりも少ない場合は充電時に SiO_x 中において体積変化の大きい $\text{Li}_{3.75}\text{Si}$ 相が形成されてしまうが、適切な添加量 (3, 4 wt.%) の場合は体積変化の小さい $\text{Li}_{2.00}\text{Si}$ 相のみの形成にとどまることで電極の崩壊が抑制されるメカニズムを解明した。</p> <p>第三章では、ナトリウムイオン電池負極に Sn 添加 SiO_x を適用した結果を述べている。充放電試験評価において、Sn を 3 wt.% 添加したものが現行の炭素系負極を上回る放電容量を長いサイクルにわたって維持することを明らかにした。これにより、第三元素を添加した SiO_x がリチウムイオン電池のみならずナトリウムイオン電池にも適用可能な有望な負極材料となることを初めて見出した。</p> <p>以上のように、本論文は次世代蓄電池材料の開発に重要な学術的知見を与えるものであり、当該分野において注目すべき成果であると判断される。よって本審査委員会は本論文が博士 (工学) の学位を与えるに十分に値するものと判定する。</p>