HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Development of Sulfide-based Inorganic-Organic Hybrid Solid Electrolytes for All-solid-state Lithium Batteries [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Fang, Tong
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第16385号
Issue Date	2025-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/94877
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	FANG_TONG_review.pdf, 審査の要旨

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

学 位 論 文 審 査 の 要 旨

博士の専攻分野の名称　博士（工学）　氏名　FANG　Tong

	主査	教授	長谷川 靖哉
	副査	教授	忠永 清治
審査担当者	副査	教授	島田 敏宏
	副査	教授	村越 敬
	副査	准教授	三浦 章

学 位 論 文 題 名

Development of Sulfide-based Inorganic-Organic Hybrid Solid Electrolytes for All-solid-state Lithium Batteries
（全固体リチウム電池用硫化物系無機・有機ハイブリッド固体電解質の開発）

全固体リチウム電池は、その高い安全性とエネルギー密度により、特に電気自動車や携帯型電子機器での使用で大きな注目を集めている。しかし、実用化にむけて、電解質のイオン伝導性、界面安定性、製造コストなどの課題に直面している。硫化物固体電解質は、その高いイオン伝導性と優れた機械的特性により全固体電池用固体電解質として広く研究されているが、化学的安定性に問題があり、また、さらなる機械的特性の改善も必要とされている。

本研究では、硫化物固体電解質の機械的特性の向上を目指して、有機カチオンを硫化物固体電解質に導入し、新規な無機-有機ハイブリッド固体電解質を合成した。さらに、高容量であるが体積変化の大きい Si 負極を用いた全固体電池にこの電解質を適用することにより、サイクル安定性の向上を試みている。

有機カチオンとして、ヨウ化テトラアルキルアンモニウムのヨウ化テトラメチルアンモニウム（TMAI)、ヨウ化テトラエチルアンモニウム（TEAI)、ヨウ化テトラプロピルアンモニウム（TPAI)、ヨウ化テトラブチルアンモニウム（TBAI）を用い、硫化物固体電解質としては、$Li_7P_2S_8I$ を選択し、無機―有機ハイブリッド固体電解質を合成した。これら有機分子を添加した場合、全体的には添加量に応じてイオン伝導性は少しずつ低下するが、TMAI 系はわずかにしか変化しないことを見出している。また、これらの無機-有機ハイブリッド電解質は Li 金属に対して安定であることも確認している。さらに、得られた、無機有機ハイブリッド硫化物電解質を使用して全固体リチウム電池を組み立て、そのサイクル性能を評価している。その中で、TMAI をドープした電解質は、電池のサイクル安定性を大幅に向上させることがわかった。

得られた無機-有機ハイブリッド電解質の機械的特性を評価したところ、テトラアルキルアンモニウムヨウ化物を添加することで、硫化物電解質の機械的特性が変化することを確認している。TBAI をドーピングしたサンプルは最低の弾性率を示したが、電池のサイクル特性とは明確な関連性はないことがわかった。

以上、著者は、テトラアルキルアンモニウムヨウ化物を添加した新規な硫化物系無機―有機ハイブリッド固体電解質を合成し、その機械的および電気化学的特性に与える影響を明らかにしており、本研究で得られた知見は今後の全固体電池の開発に大きく貢献すると考えられる。よって著者は北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。