

## 学位論文の要旨

専攻	機能創成科学 専攻	ふりがな 氏名	しんむら きよと 新村 潔人
学位論文題目	電気透析法によるリチウム資源回収技術 Lithium resource recovery technology by electro dialysis		
<p>新たなエネルギーシステムの為に、リチウムイオン電池 (LIBs) の市場は増大し、更に将来は熱核融合炉用としてもリチウム (Li) 資源は必要となる。エネルギー安全保障の観点からも、あるいは LIBs を搭載する自動車に関する我が国の産業の健全性の為に Li 資源を自国内で生産するあるいは循環使用するシステムの確立が必要である。また、Li 資源を自国で生産することが可能となれば、我が国に大きな新規産業が創成され、雇用を生み、経済成長に多大な貢献をする。</p> <p>電気透析は、適切な電解質材料を選択すれば高純度な Li 資源採取を可能にし、環境負荷が小さく、生産ラインの構築も容易であり、有望な候補技術である。しかし、現状では、Li 回収速度が小さいため実用化が困難と考えられている。更に、回収の為にエネルギー効率についても解明されていなかった。</p> <p>そこで、本研究では、リチウムイオン伝導性固体電解質 <math>\text{La}_{0.57}\text{Li}_{0.29}\text{TiO}_3</math> (LLTO) の緻密焼結体の板を電解質膜とする電気透析法を検討し、生じる現象とその現象発現の原理などの解明を行い、課題を明確化した後に対策を検討した。</p> <p>第二章では、本研究を通じて電解質隔膜として使用するリチウムイオン伝導性固体電解質 LLTO および LLTO の多結晶焼結体板について記述した。更に、電気透析の為に使用する電極やセルについて記述する。その後、電気化学評価や Li 濃度測定などの、本研究で用いる基本的な評価方法について記述した。</p> <p>第三章では、従来から使用されている電気透析セルである、電解質隔膜の両側表面にひとつずつの電極を形成し、それらの電極間に一つの電源を配置して電解質隔膜に電気ポテンシャル差を与える、従来から用いられている電気透析セル（いわゆる、一電源二電極式電気透析）を用いてリチウムを回収方法について議論した。その結果、LLTO に印加する電圧とともに Li 回収速度は増大するが、LLTO の二次側溶液に接する表面電位が LLTO の構成元素であるチタン (Ti) の還元電位に達すると電子伝導を発現することを解明した。一方で、電子伝導の発現はエネルギー効率の急激な低下をと回収速度の増大の鈍化を引き起こすことを解明した。アノードでの <math>\text{H}_2</math> ガス発生反応がリチウム回収の律速過程であることも解明した。</p> <p>第四章では、第三章で議論した一電源二電極式電気透析技術の課題を解決する為、二次側の溶液中の電解質隔膜から離間した位置に副電極を配置し、電解質隔膜の二次側表面上の電極と副電極との間に第二の電源を配置してこれらの電極間に電気ポテンシャル差を与える新たな方式（二電源三電極式電気透析）を考案し、議論した。その結果、副電源による電圧印加により、LLTO の両表面間に <math>\text{Li}^+</math> 移動の駆動力の一つで</p>			

あるケミカルポテンシャル差を増大させて Li 回収速度を増大させることを解明した。また、第三の電極として面積の大きな Ni メッシュを用いることで、律速過程の反応場を増やすことができ、Li 回収速度を向上させることが可能であることを解明した。

第五章では、第四章で議論した二電源三電極式電気透析の特長をより大きく発現させる方法を議論した。具体的には、第三章で明らかとした課題を発現させずに第四章で議論した二電源三電極式電気透析による Li 回収速度が大きいという特長を更に顕著にするための運転条件を検討し、それが実現する機構を議論した。その結果、LLTO が Ti の還元電位以下に低下しないように主電源と副電源の電圧のバランスを制御してあれば、主電源電圧を大きくしても LLTO には電子伝導が発現しないことが判明した。この様な条件下での主電源と副電源の電圧の増大が Li 回収速度を急激に増大させ得ることを解明した。さらには、LLTO 表面に形成されて二次側溶液に浸漬される反応電極で O<sub>2</sub> や H<sub>2</sub> のガスがともに発生しない条件は、エネルギー効率が最大となることが解明された。

第六章では、熱核融合炉の一次燃料として使用される質量数が 6 のリチウム同位体 (<sup>6</sup>Li) を濃縮分離回収する方法について議論した。その結果、一次側溶液 (Li 源溶液) 側の LLTO 電解質隔膜へ吸着する Li<sup>+</sup> の同位体比を制御すると、より高くより安定な <sup>6</sup>Li 同位体濃縮率を実現できることを解明した。

本研究により、Li 回収の為の新たな電気透析セル構造及び運転方法・条件により構成される革新的な Li 回収技術を提案、その有効性を実験データにより実証した。