

審査の結果の要旨

氏名 林 穎成

本論文は7章からなり、第1章は序論、第2章は過去の研究、第3章は実験、第4章はポリロタキサンに基づく固体高分子電解質 (SPE)、第5章は高分子架橋剤を含むポリロタキサン系 SPE、第6章はポリロタキサンに基づくシングルイオン伝導 SPE、第7章は結論について述べられている。

1章の序論にて、本論文の主題である SPE についての歴史的な流れと概念を紹介し、本論文における狙いを説明した。

2章においては、これまで研究されてきた内容を解説した。高分子電解質のリチウム電池への応用としてゲル電解質と液体電解質の例を解説した。続いて主題である SPE の研究例から、その限界と問題点を議論した。続いて、ポリロタキサンとそれをを用いたスライドラリング材料について説明し、電解質としての可能性を議論した。

3章においては、ポリロタキサンの合成、高分子電解質の作製、電気化学インピーダンススペクトル測定をはじめとする各種実験方法を述べた。

4章においては、ポリエチレングリコール(PEG)とシクロデキストリン(CD)からなるポリロタキサンに基づく SPE の創製と物性を報告した。イオン伝導度は、リチウム塩の濃度および PEG 鎖の移動性を制限する CD 架橋間の強い水素結合の影響を強く受けることを明らかにした。水素結合による影響を排除するために、水素結合をブロックしたものを作製した。中程度のリチウム塩および水素結合量である試料は、200%までの高い伸び率および 60°C で 10^{-7}S/cm のイオン伝導率を示した。高い伸びは、非共有的な「可動架橋」の存在を支持する。そして、この概念は、水素結合および CD の凝集を防止することができる適切な官能化剤の探索により、将来の SPE の開発につながることを示唆する。

5章においては、SPE を作るために 2 種類の高分子架橋反応を使用し、その物性を評価した。分子量の高い PEG 架橋剤を用いた SPE は、低分子量の EG 架橋剤を有する SPE よりも大きな増強を示し、高分子架橋剤が水素結合および CD の凝集を防止することを証明した。また、このような SPE のイオン伝導率は、室温で 10^{-5}S/cm に達した。

6章においては、LiOH および 1,3-プロパンスルトンによる「グラフトポリロタキサン」の合成に成功した。合成されたグラフトポリロタキサンをイオン化し、カチオンだけが輸送されるシングルイオン伝導性ポリマー電解質を創成した。理論的に高いイオン電導度が期待できるものの、イオン同士は物理架橋し、ポリロタキサンの移動性を制限、結晶化を誘発し、イオン伝導度と柔軟性の両方が悪化することが分かった。

7章では、以上の内容を総括した。ポリロタキサンに基づく SPE の低いイオン伝導率

は、水素結合および CD の凝集に起因することを見出した。そこで、CD と水素結合の凝集を防ぐために高分子架橋剤を導入した。ポリロタキサン SPE のイオン導電率は、より高分子の PEG 架橋剤を導入することによって大幅に向上した。ポリロタキサンとグラフトポリロタキサンに基づくシングルイオン導電性 SPE が創製されたが、それは低いイオン伝導度を示した。

本論文の内容において、第 4-6 章は伊藤耕三、横山英明との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験を行い解析したものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断される。したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。

以上 1,333 字