

## 審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 鈴木 真也

リチウムイオン二次電池はその高いエネルギー密度により携帯機器電源などに広く用いられているが、自動車用電源をはじめとするさらに幅広い用途への展開に向けて高出力化の達成が求められている。そのためには、リチウムイオンの挿入脱離反応が速やかに起こる電極の微細構造制御が不可欠である。本研究は、高出力リチウムイオン二次電池用電極材料の構造制御指針を得ることを目的に、層状構造化合物の層間剥離により得られるナノシートを用いて電極の微細構造を制御し、その電極特性および構造制御の効果を評価した成果をまとめたものである。本論文は全7章からなる。

第1章は序章であり、研究背景および目的を述べている。リチウムイオン電池の特徴や反応機構、構造制御手法について概説し、研究の目的および方針を説明している。

第2章は、電極微細構造制御が高出力特性発現に有効であることを示すために、電極活物質である酸化バナジウムゲルを導電性カーボン粒子に付着させた複合体電極の構造と特性の評価結果を述べている。酸化バナジウムの薄膜がカーボン粒子表面に形成された電極では、10秒程度で充放電が完了する非常に高い出力特性を示すことを確認している。また、電極中で活物質表面に到達するリチウムイオンの輸送が十分に起こるために、比較的大きな細孔を有する多孔質構造が適していることを明らかにしている。これより、極めて薄い形状を持つナノシートを電極活物質に用いることの有効性を示している。

第3章では、チタン酸ナノシートと種々の炭素材料とを簡便な液相プロセスによって複合化し、得られた各種複合体の微細構造と電極特性について調べた結果を述べている。チタン酸自身の電気化学特性を詳細に確認するとともに、チタン酸ナノシートと炭素微粒子、カーボンファイバーやカーボンナノチューブとの複合化に成功し、その電極特性を明らかにしている。適切なカーボン部材との複合化による電極活物質薄層化、電極多孔質化および電子導電性付与が、優れた出力特性の発現に有効であることを提示している。

第4章では、チタン酸ナノシートとグラフェンの2種のシート物質の再積層複合体の電極特性を調べた結果を述べている。複合体電極では、グラフェン単体電極に見られる特性の不安定な挙動や充放電サイクルに伴う容量の減少が抑えられ、通常の炭素電極の二倍を超える大きな容量を発現することを見出している。これより、異種シートの複合体形成が著しい特性向上に有効であることを明らかにしている。

第5章では、大きな口径をもつ多孔質カーボンを骨格とする電極形成手法とその特性について述べている。カーボン孔径とナノシートサイズの適正化および Layer-by-Layer 積層法を用いることにより、多孔質カーボンの内壁にマンガン酸ナノシートを堆積させた複合電極を得ることに成功している。電極容量と出力特性のシート堆積量依存性を調べ、望まれる電極特性を得るための構造指針を明らかにしている。

第6章では、種々の二次元サイズ、厚さを有するナノシート積層薄膜の電極特性からナノシート自体の異方的イオン拡散特性を調べた結果を述べている。測定された電気化学物性と構造モデルを用いたシミュレーション結果から、チタン酸ナノシートの面内方向および鉛直方向へのリチウムイオンの拡散係数を見積もることに成功している。シート面内方向ではシート鉛直方向の5000倍もの著しく大きなリチウムイオン拡散係数をもつことを初めて明らかにした。これより、ナノシート積層電極の容量と出力をともに維持できる最適厚さの設計を可能としている。

第7章は総括であり、本研究で得られた成果をまとめ、その意義と将来展望を述べている。

以上のように本論文では、リチウムイオン電池の電極に関してナノシートを用いた液相プロセスにより様々な構造制御を行い、高出力特性および大容量が実現できることを示すとともに、その優れた特性の発現に及ぼす多様な構造因子を解明しその制御指針を明らかにしている。これらの成果は、リチウムイオン電池のみにとどまらず多様な蓄電素子に適用できる電極構造設計指針を示すものであり、無機化学、電気化学、材料工学の分野の発展に寄与するところが多い。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。