

論文の内容の要旨

論文題目 Development of Nanostructured Liquid-Crystalline Electrolytes
for Battery Applications
(電池への応用のためのナノ構造液晶電解質の開発)

氏 名 佐久田 淳司

有機分子の自己組織化は、高機能材料を省エネルギーなプロセスで開発するための有用なアプローチである。液晶は、結晶の秩序性と液体の流動性を併せ持つ自己組織性材料であり、液晶が形成する動的な秩序構造を利用した新規機能材料の開発が盛んに行われている。特に、イオン伝導性部分構造を有する分子を用いて一次元、二次元、三次元のイオン伝導パスを形成する様々なイオン伝導性液晶材料が見出されてきている。しかし、リチウムイオン電池の電解質として応用した例はこれまでにない。本論文では、リチウムイオン電池へ応用するイオン伝導性液晶材料について述べている。

第一章では、リチウム塩を含有する液晶性電解質材料に関して、その液晶性および電解質としての特性について述べている。カーボネート基をイオン伝導部位として有する棒状分子とリチウム塩の複合体が室温を含む広い温度範囲においてスメクチック液晶相を発現することを報告している。この液晶電解質がリチウムイオン電池に応用できることを見出している。赤外分光測定により、リチウムイオンとカーボネート部位の間にイオン-双極子相互作用が働いていることを示している。交流インピーダンス法を用いたイオン伝導度測定により、この液晶電解質が、過去に報告されたカーボネート部位を有するカラムナー液晶に比べて高いイオン伝導度を示すことを明らかにしている。さらに、サイクリックボルタンメトリー測定により、この液晶電解質がリチウムイオン電池へと応用できる電気化学的安定性を有していることを明らかにしている。加えて、リチウムイオン電池の電極材料と液晶電解質からなる電気化学セルの充放電の結果を示しており、この液晶電解質がリチウムイオン電池の電解質として応用が可能であるという結論を導いている。

第二章では、電気化学的安定性の向上と、それによる電池のサイクル安定性の改善を目的とした液晶電解質の設計および開発について述べている。 π 電子を持たないステロイド骨格をメソゲンとして導入すれば安定性は改善されるという仮定を HOMO および LUMO の軌道計算を用いて導いている。イオン伝導部位としてカーボネートを、メソゲンとしてステロイド骨格を導入した分子設計について述べている。この分子と、リチウム塩の複合体に関して液晶性と電解質としての特性を報告している。

第三章では、棒状のイオン性液晶分子とイオン液体の複合化による、高イオン伝導性の液晶電解質の開発について報告している。単独のイオン性液晶においてはイオン性部位が共有結合によりメソゲンと連結されているため、イオンの運動性が低いという傾向が考察されている。そこでイオン性液晶とイオン液体を複合化することで、イオン液体が組織化された高い運動性を有するイオン伝導パスの形成が可能になるという材料設計について述べている。これによるイミダゾリウム塩部位を有する棒状分子の設計および合成を報告している。棒状イオン性液晶分子とイミダゾリウムイオン液体は均一に混合して、スメクチック液晶相を示すことを報告している。交流インピーダンス法による複合体のイオン伝導度測定により、イオン液体の割合が高くなるほど伝導度が高くなることを明らかにしている。イオン伝導の活性化エネルギーが複合化により低くなっていくこと、イオン液体が取り込まれることで伝導パスの運動性が高くなっていることを伝導度上昇の理由として挙げている。イオン性液晶、イオン液体、リチウム塩の三成分の複合体の作製についても述べており、液晶性およびイオン伝導性を報告している。

第四章では、イオン性部位の体積比率が高い液晶ナノ構造を利用した、高イオン伝導性液晶電解質の設計、開発について述べている。まず、周縁部に複数のイミダゾリウム塩部位を有する扇形分子の設計および合成について報告している。これらの分子がカラムナー液晶相およびミセルキュービック液晶相を示しており、分子がアルキル部位を内部に、イオン性部位を外部に向けて集合することでカラム及びミセル構造を形成していると結論付けている。せん断による配向処理を行ったカラムナー液晶に関してイオン伝導度測定を行い、異方的イオン伝導性を評価した結果について述べている。また、液晶分子とイミダゾリウムイオン液体の複合体の作製についても報告している。

第五章では本論文の結言を述べている。第四章までの研究結果を総括し、今後の展望について述べている。

以上のように本論文では、リチウムイオン電池への応用を目指した新規液晶電解質の開発について述べている。これらの結果はエネルギーデバイスのための高性能電解質の開発へ向けての知見をもたらすものであり、材料化学の分野の進展に貢献するものである。