

審査の結果の要旨

氏名 佐久田 淳司

有機分子の自己組織化は、高機能材料を開発するための有用なアプローチである。液晶は代表的な自己組織性材料の一つであり、動的な秩序構造を形成するという液晶の特性を利用した新規機能材料の開発が盛んに行われている。液晶ナノ構造が形成する伝導パスはイオンの効率的な輸送を可能にすると期待され、イオン伝導性の部分構造を有する液晶分子を設計、合成することで、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ナノ構造材料が開発されてきている。このようなイオン伝導性液晶材料はリチウムイオン電池をはじめとするエネルギーデバイスの新たな機能性電解質として期待されている。しかし、イオン伝導性液晶を実際にリチウムイオン電池の電解質として用いた例はこれまでにない。本論文は、リチウムイオン電池への応用に向けた液晶電解質の開発について報告しており、五章で構成されている。

序論では、リチウムイオン電池への応用に向けた液晶電解質に関する研究の背景および、本論文における研究の目的と意義が述べられている。

第一章では、イオン伝導部位として環状カーボネート基を有する棒状分子とリチウム塩からなる液晶電解質に関して、その液晶性および電解質としての特性が述べられている。液晶電解質が、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が報告されている。またこの材料が、既報の環状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が述べられており、スメクチック液晶において、よりイオンの運動性が高い伝導パスが形成されていることが理由として推察されている。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することが明らかにされており、さらに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が可能であることが示されている。これらの結果から、この液晶電解質はリチウムイオン電池の電解質として応用できるという結論が導かれている。

第二章では、分子の電気化学的安定化と、それによる電池のサイクル安定性の向上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られている。 π 電子を持たない脂肪族系のメソゲン骨格は、芳香族系のものよりも電気化学的に安定であるという仮定が示されている。それに基づき、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用いた液晶分子の設計が提案されている。この分子とリチウム塩の複合体に関して、液晶性と電解質特性が報告されている。

第三章では、棒状のイオン性液晶分子とイオン液体から形成される高イオン伝導性の液晶電解質の開発について述べられている。単独のイオン性液晶においては、共有結合によりメソゲンと連結されているイオンの運動性が低いため、高い伝導度が得られにくいという傾向が考察されている。そこでイオン性液晶と、運動性の高いイオン液体を複合化することで、イオン伝導性を増加できるという材料設計が提案されている。この設計に基づき、イミダゾリウム部位を有する棒状分子とイミダゾリウム部位を有するイオン液体の複合化が報告されている。両成分は均一に混ざり合い、複合体がスメクチック液晶相を示すことが述べられている。また、複合化されるイオン液体の量が多いほど伝導度が高くなることが示されている。イオン伝導の活性化エネルギーが複合化により低くなることが言及されており、イオン液体が取り込まれて自由に運動することで、伝導パスのイオンの運動性が高くなっていることが伝導度上昇の理由として挙げられている。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も検討されており、その液晶性およびイオン伝導性が報告されている。

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液晶電解質の設計および開発について述べられている。周縁部に複数のイミダゾリウム部位を有する扇形分子の設計および合成が報告されている。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、分子が非イオン性部位を内部に、イオン性部位を外部に向けて集合することでこれらの液晶構造を形成していると結論付けられている。カラムナー液晶のイオン伝導性がカラムの配向にほとんど影響されないことが示されており、イオンが伝導する領域がポリドメイン状態においても三次元的に接続されていると考察されている。また液晶分子とイミダゾリウム部位を有するイオン液体の複合化も検討されている。複合化により液晶ナノ構造を制御することができ、またイオン伝導度は高くなることが明らかにされている。

第五章は本論文の結言であり、第四章までの研究結果を総括し、今後の展望が述べられている。

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られている。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、超分子化学の分野の進展に貢献するものである。

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。