

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 乙 第 7156 号
------	--------------

氏 名 熊井(中居) 葉子

論文題目

新規Si系ナノ材料の合成と電池への応用に関する研究
(Study on composition of novel Si based nanomaterials and its applications to the battery)

論文審査担当者

主査	名古屋大学	未来社会創造機構	教授	齋藤 永宏
委員	名古屋大学	グリーンモビリティ 連携研究センター	教授	元廣 友美
委員	名古屋大学	工学研究科	講師	LI Oi Lun Helena
委員	名古屋大学	工学研究科	教授	関 隆広
委員	早稲田大学	先進理工学研究科	教授	逢坂 哲彌

論文審査の結果の要旨

熊井(中居)葉子君提出の論文「新規Si系ナノ材料の合成と電池への応用に関する研究」は、電池性能を向上する上で必要な要素技術の確立を目指し、新規構造規則性Si系ナノ材料であるメソポーラスシリカ (MPS : mesoporous silica) および層状ポリシラン (LPS : layered polysilane) に各種化学的修飾を行った材料を作製し、各々燃料電池 (FC) 用電解質膜およびLi二次電池用負極として応用検討したものである。

本博士論文の構成は、以下の通りである。

第1章では、MPSおよびLPSの材料としての特徴と応用例が述べられており、本研究の目的、意義、手法が示されている。MPSをFC電解質膜に適用する上での優位性を、MPSの連続性と細孔および有機修飾が可能な細孔壁である点に着目して述べられている。また、LPSのSiナノシート間の空隙が0.265 nmで、リチウムイオン (Li⁺) の直径0.12nmよりも大きいことに着目し、Li二次電池負極へ応用した背景が述べられている。

第2章ではMPS薄膜の合成とFC電解質膜への応用について述べられている。プロトン伝導のためにアルキルフェニルスルホン基を細孔内に修飾したMPS 薄膜とイオン液体を細孔内に充填したMPS 薄膜、およびイオン液体を上述のアルキルフェニルスルホン基修飾MPSの細孔内に充填した材料の作製方法および材料評価方法について述べられている。テトラメトキシシラン (TMOS) を加水分解・脱水縮合する際の触媒となるHClの添加量、および成膜時の湿度雰囲気を制御することで、細孔周期性の高いMPSを再現性高く得ることに成功しており重要な知見を得ている。また、アルキルフェニルスルホン基のアルキル鎖を長くすることで、伝導性が向上することを確認しており、プロトン伝導度を向上するためには細孔中心部のスルホン基を高密度化することが重要であることを述べており、意義のある考察を行っている。また、MPS細孔にイオン液体を充填した材料のプロトン伝導性を測定し、湿度0 %RHの環境下において最大で180 °Cまで温度を高くするにつれてプロトン伝導性が上昇することがわかり、150 °Cまでの温度であれば初期値を維持できるという重要な知見が得られている。

第3章では、LPSおよびその改質材料のLi二次電池負極への応用について述べられている。LPSの特性として、初回放電時のみ0.3V付近にプラトーが検出され、Si-H結合が切断され不対電子が発生することに起因すること、その際にLPSは非晶質体となりそれ以降全ての充放電状況において非晶質体を維持することを解明している。これを防ぐために、1つ目はLPS とスクロースを混合焼成することによって得られる複合材料 (以降、Si-C 複合材料)、2つ目はLPS 全体に熱履歴を与えない方法として物理蒸着法であるpulsed laser deposition (PLD) によってLPS をカーボンで被覆した材料 (以降、カーボンコートLPS) を作製した。Si-C複合材料は、LPSの層構造は崩壊したが球状カーボン上に板状Siが被覆した形状を持つユニークな形状となり、電池容量、サイクル特性がLPSと比べて高いことを明らかにした。カーボンコートLPSは、LPSの構造を維持しており、電池容量および容量維持率がLPSと比べて高いことを示した。材料デザインによって種々の特性が変化することを明らかにしており、意義のある結果を得ている。

第4章では結言が示されている。

以上のように本論文では、電池性能を向上する上で必要な要素技術の確立を目指し、新規構造規則性Si系ナノ材料であるメソポーラスシリカ (MPS : mesoporous silica) および層状ポリシラン (LPS : layered polysilane) を各々燃料電池 (FC) 用電解質膜およびLi二次電池用負極を対象として、各種修飾を施しそれぞれの課題に対する検討が行われており重要な知見が得られている。両電池は共に自動車の駆動エネルギーとなりうる重要なエネルギーシステムであり、工学の発展に寄与するところが大きいと判断できる。よって、本論文の提出者である熊井(中居)葉子君は博士 (工学) の学位を受けるに十分な資格があると判断した。