

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Synthesis of novel Li-Co-Mn-O epitaxial thin-film electrode using layer-by-layer deposition process : its structure and electrochemical properties
著者(和文)	LimJaemin
Author(English)	Jaemin Lim
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9735号, 授与年月日:2015年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:菅野 了次,大坂 武男,川路 均,中村 二郎,平山 雅章
Citation(English)	Degree:., Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9735号, Conferred date:2015/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	Lim Jaemin	
論文審査 審査員		氏名	職名		
	主査	菅野 了次	教授	平山 雅章	講師
	審査員	大坂 武男	教授		
		川路 均	教授		
		中村 二郎	連携教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Synthesis of novel Li-Co-Mn-O epitaxial thin-film electrode using layer-by-layer deposition process: its structure and electrochemical properties」と題し、薄膜積層法を用いてリチウム電池電極に用いる新規材料の創出を行い、その構造と反応機構を調べた成果をまとめたものであり、英語で記述され五章から構成されている。

第一章「Introduction」では、リチウム電池に用いられている電極材料の組成や構造について説明し、新規リチウム電池電極材料探索の重要性、既存の合成手法の限界について述べている。パルスレーザー堆積法を用いたモデル電極薄膜の合成例、エピタキシャル薄膜積層法により得られる構造や物性について述べたうえで、その利点およびその特徴について概説し、本研究の意義、目的について記述している。

第二章「Experimental」では、エピタキシャル積層薄膜電極の合成法、評価法について説明している。放射光や透過型電子顕微鏡を用いた積層薄膜の電子構造、局所構造解析法について述べ、薄膜電極を用いた電気化学セルの作製法およびその電気化学特性の評価方法について記述している。

第三章「Analysis for low voltage reactions of multi-layer epitaxial thin film electrode」では、薄膜電極の低電位領域における電気化学特性を調べ、その特性に寄与する電極構成材料を明らかにした。SrTiO₃(100)単結晶基板上に LiCoO₂/SrRuO₃ 薄膜電極を合成し、定電流充放電試験、サイクリックボルタンメトリーを用いた評価を行った。LiCoO₂/SrRuO₃ 薄膜電極は電圧範囲 3.0 – 4.3 V において、理論容量に相当する 130 mAh g⁻¹を示すことを確認した。電圧範囲を 2.0 – 4.3 V へと低電位領域に広げることで電気化学容量が増大し、LiCoO₂ 正極以外の電気化学反応への寄与があることを見出した。SrRuO₃ 薄膜を電極として電気化学特性を評価し、2.0 – 3.0 V 領域でファラデー電流が観測された。低電位領域では正極薄膜の下に集電体として存在する SrRuO₃ が電気化学反応に関与することを見出し、低電位領域でのリチウム電池電極特性評価に際してその寄与を考慮する必要があることを明らかにした。

第四章「Novel Li-Co-Mn-O epitaxial thin-film electrode using layer-by-layer deposition process」では、層状岩塩型 LiCoO₂ とスピネル型 LiMn₂O₄ エピタキシャル薄膜を連続的に積層することで、新規スピネル型 Li-Co-Mn-O エピタキシャル薄膜が形成することを見出し、その詳細な結晶構造と電気化学反応およびその相関を明らかにした。積層薄膜は化学組成が均一なスピネル型薄膜であり、その組成は Li_{0.92}Co_{0.65}Mn_{1.35}O₄ であることが分かった。積層薄膜は結晶構造内に陽イオン不規則配列を有し、スピネル構造(Fd-3m)におけるリチウム位置(8a)に遷移金属位置(16d)から移動した遷移金属が存在することが明らかになった。積層薄膜は、一段階で合成した類似組成のスピネル型 Li-Co-Mn-O 薄膜に比べ優れた出力特性およびサイクル特性を示した。薄膜積層法により形成した不規則配列、格子定数変化が電極特性の向上に寄与する可能性を見出した。

第五章「Summary」では本論文を総括している。これを要するに、本論文は新規リチウム電池電極材料の合成法として薄膜積層法の有意性を明らかにし、既存の合成法では得られない構造および電気化学特性の発現に寄与することを見出した。薄膜積層法が電極材料の結晶構造、組成、電気化学特性に多様性をもたらす可能性を提案しており、理学的に貢献するところが大きい。よって本論文は博士(理学)の学位論文として十分な価値があると認められる。