

主 論 文 要 旨

報告番号	甲 第 号	氏 名	内山 弘章
主 論 文 題 目 : 水溶液プロセスによる機能性酸化物の合成およびそのデバイスへの応用			
(内容の要旨) 近年、物質のナノサイズ化により発現する新たな機能への関心が高まり、より微細な領域での材料合成技術として水溶液中の結晶成長を利用したプロセスが注目されている。しかし、これまでは制御しやすいシンプルな反応系に関する研究が多く、得られる機能性材料の組成や形状は限定されていた。本研究では、過飽和溶液中の結晶成長における金属酸化物の組成、酸化数、形態の精密な制御を試みるとともに、合成された酸化物について光触媒やリチウム二次電池電極などのデバイスへの応用を検討し、機能性酸化物合成法としての水溶液プロセスの確立を目指した。 第1章では、水溶液プロセスによる金属酸化物の合成に関する背景および先行研究について概説し、本研究の目的について述べた。 第2章では、水溶液プロセスによるルチル型 $Ti_xSn_{1-x}O_2$ 固溶体の合成およびその組成制御について述べた。 Ti^{4+} および Sn^{4+} を含む前駆溶液の過飽和度の調整により、熱力学的に不安定な相を含む全組成領域での $Ti_xSn_{1-x}O_2$ 固溶体の合成に成功するとともに、これらが高い光触媒活性を発現することが示され、組成制御の有効性が示唆された。 第3章では、水溶液プロセスによる酸化スズの価数選択的な合成について述べた。溶存酸素による Sn^{2+} から Sn^{4+} への酸化が進行する水溶液中において、反応の進行に合わせて結晶の析出速度を調整することで、 SnO と SnO_2 の選択的合成とナノ構造のコントロールが可能であることを見出した。 第4章では、水溶液プロセスの新たな手法として、中間体を利用する多段階プロセスによる SnO ナノ構造体の作製について述べた。高過飽和水溶液中において生成する中間体 $Sn_6O_4(OH)_4$ の溶解速度を制御することで、特異的なナノ構造を有する SnO 結晶を成長させることに成功し、既存の結晶成長とは異なるナノ構造制御の可能性が示唆された。 第5章では、第4章で確立した多段階プロセスによる SnO ナノ構造体のリチウム二次電池負極への応用について述べた。中間体 $Sn_6O_4(OH)_4$ を経由したメッシュ状の SnO 結晶は結晶性および多孔性に優れており、リチウム二次電池負極特性の評価において平滑なプレート状の SnO 電極に比べて高い耐久性を示した。 第6章では、水溶液プロセスを利用した多孔質 $LiMn_2O_4$ の合成およびそのリチウム二次電池正極への応用について述べた。本章では、有機ゲルマトリクス中での結晶成長により階層構造をもつ $MnCO_3$ を合成し、これを Li_2CO_3 と反応させることで多孔質スピネル型 $LiMn_2O_4$ の合成に成功し、これらがリチウム二次電池正極として高い特性をもつことを示した。 第7章では、各章で得られた知見を総括し、結晶成長を利用した水溶液プロセスによって機能性酸化物を合成するための指針および今後の課題と展望について述べた。			