

Title	気相堆積法による平坦化酸化物表面を利用したLiイオン電池固体電解質界面のナノ解析
Author(s)	笹原, 亮
Citation	科学研究費助成事業研究成果報告書: 1-6
Issue Date	2013-05-31
Type	Research Paper
Text version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/10119/11383
Rights	
Description	研究種目: 挑戦的萌芽研究, 研究期間: 2011~2012, 課題番号: 23656030, 研究者番号: 40321905, 研究分野: 表面科学, 科研費の分科・細目: 応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月31日現在

機関番号：13302

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656030

研究課題名（和文）気相堆積法による平坦化酸化物表面を利用したLiイオン電池固体電解質界面のナノ解析

研究課題名（英文）Adsorption of Li atoms and propylene carbonate molecules on the oxide surface

研究代表者

笹原 亮 (SASAHARA AKIRA)

北陸先端科学技術大学院大学・マテリアルサイエンス研究科・助教

研究者番号：40321905

研究成果の概要（和文）：

酸化物電極表面における電解質分子と溶媒分子の反応サイトを特定することを目的とし、二酸化チタン単結晶表面におけるLi原子と炭酸プロピレン分子の吸着状態を解析した。Li原子は単原子ステップに濃縮され、炭酸プロピレン分子はO原子欠陥で安定化されることを明らかにした。得られた結果は、電極表面ナノ構造の制御が固体電解質界面の最適化の鍵になることを示している。

研究成果の概要（英文）：

Adsorption behaviors of Li atoms and propylene carbonate (PC) molecules were examined on a rutile titanium dioxide (110)-(1×1) surface. Lithium atoms were concentrated at the steps, while PC molecules were stabilized at the bridging O vacancies. The results indicated the controlling of the nanometer-sized structures on the oxide electrode surfaces is the key to optimize the surface-electrolyte interface composed of electrolyte and solvent molecules.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,100,000	930,000	4,030,000

研究分野：表面科学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎、薄膜・表面界面物性

キーワード：固体電解質界面 リチウム 炭酸プロピレン 二酸化チタン 走査トンネル顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

リチウムイオン電池の性能向上には、陽極表面に形成される固体電解質界面 (SEI) の制御が鍵になる。SEI は、電解質分子 (六フッ化リン酸リチウム等) と溶媒分子 (炭酸プロピレン等) の分解生成物で構成される、厚さ数 nm の層である。SEI により、電極表面での溶媒分子の分解は抑制され、また、電極を崩壊させる溶媒和 Li イオンの電極表面への接近が制限される。一方、SEI の形成に消費された Li イオンは充電容量に寄与しないため、過度の SEI の形成は電池容量の低下を招く。正負の効果を持つ SEI の最適化が、リチウムイオン電池の長寿命化、高容量化を実現する。SEI の濃度・厚さの最適化は、電極材

料や電解質のバルク物性の探索により試みられてきた。

電極に用いられるイオン性酸化物の表面電荷分布は、原子の配置を敏感に反映する。Li イオンや極性電解質分子の吸着は、電極表面の電荷分布に依存する。従って、SEI の形成サイトは電極表面のナノサイズの局所構造と考えられる。SEI の形成サイトを特定し、その密度や分布を制御して構築できれば、SEI の最適化が実現するかもしれない。

2. 研究の目的

本研究は、イオン性酸化物表面のナノ構造が SEI の形成に与える影響を解明することを目的とした。構造がよくわかっている二酸化

チタン (TiO_2) (110)表面を用いて、Li 原子及び炭酸プロピレン (PC) 分子の吸着を解析した。研究期間内に、Li 原子は表面の段状構造 (ステップ) に、PC 分子は O 原子欠陥に特異的に吸着することを明らかにした。SEI の材料分子の吸着が酸化物表面のナノ構造に敏感であることは、SEI が電極表面のナノ構造で形成される可能性を示す。従って、電極表面構造の制御が SEI の最適化に繋がることを強く支持する。発展研究として気相堆積法によるマンガン酸化物単結晶薄膜表面の作製を試みたが成功していない。現在、結晶成長に適した基板を探索中である。

3. 研究の方法

実験は超高真空型走査トンネル顕微鏡 (STM) 装置 (JSPM-4500S、日本電子) を用いて実施した。本装置は、STM を備えた顕微鏡室と試料を作製するための試料準備室の、2 つの真空槽から成る。各真空槽の圧力は 2×10^{-8} Pa である。試料準備室はイオンスパッタ銃 (EX03、Thermo)、低速電子線回折 (LEED) 装置、四重極質量分析器 (e-Vision+、MKS instruments)、Li 蒸着源 (SAES Getters)、炭酸プロピレン導入装置を備えている。STM 測定では、バイアス電圧を試料側を正とし、電流一定モードで非占有状態像を取得した。探針には、電解研磨で先鋭化した W 線を用いた。

TiO_2 (110) 表面は、Ar イオンスパッタと 1170 K での加熱を繰り返して (1×1) 構造とした。図 1(a) は (1×1) 表面のモデルである [1]。 (1×1) 表面は原子レベルで平坦なテラスで構成され、テラス間の段差 (ステップ) の高さは 0.32 nm である。テラスでは 2 つの Ti 原子に配位した O 原子 (ブリッジ O 原子) が突出し、[001] 方向に列 (O 原子列) を形成している。ブリッジ O 原子の数%は、加熱により欠損する (O 原子欠陥)。一部の O 原子欠陥では真空槽内の残留 H_2O が解離し、OH 基が形成される [2]。O 原子列間には 5 つの O 原子に配位した Ti 原子 (5 配位 Ti 原子) が露出し、[001] 方向に並んでいる (Ti 原子列)。5 配位 Ti 原子に配位した面内の 4 つの O 原子は in-plane O 原子と呼ばれる。単位格子のサイズは $0.30 \text{ nm} \times 0.65 \text{ nm}$ である。

図 1(b) は (1×1) 表面の STM 像である。[001] 方向に延びた明るい列は Ti 原子列である。非占有状態は Ti 原子の 3d 軌道から成り、Ti 原子の周囲に局在するため、5 配位 Ti 原子上でトンネル電流は大きくなる。探針は試料表面から離れてトンネル電流を一定に保持するため、Ti 原子列が明るく観察される。Ti 原子列の間の点像は、OH 基または O 原子欠陥である。探針の状態を調整すると、OH 基を Ti 原子列より明るく丸みを帯びた点像として、O 原子欠陥を Ti 原子列とほぼ同じ高さの

線状の点像として、両者を識別できる。挿入図中の矢印は O 原子欠陥に帰属される点像である。本研究で作製した (1×1) 表面における OH 基、O 原子欠陥の密度はそれぞれ、 0.3 nm^{-2} 、 0.03 nm^{-2} である。円で囲んだ粒子は還元種 TiO_x ($x < 2$) である。

Li 原子は市販の蒸着源を用いて蒸着した。PC ガスはリークバルブを通して真空槽内に導入した。PC 分子はカーボネート基 (-O-(CO)-O-) を含む、5 員環の環状炭酸エステル化合物である (図 1(c))。

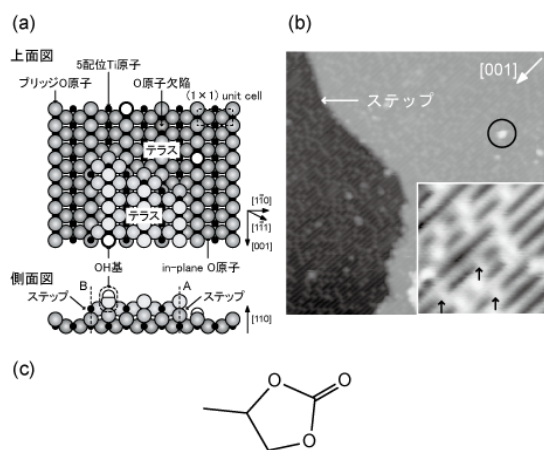


図 1 (a) TiO_2 (110)-(1×1) 表面のモデル図。灰色の大円、黒色の小円、白色の大円は、それぞれ O 原子、Ti 原子、H 原子を表す。(b) TiO_2 (110)-(1×1) 表面の STM 像 ($40 \times 40 \text{ nm}^2$)。試料バイアス (V_s): +1.6 V、トンネル電流 (I_t): 0.2 nA。挿入図はテラスの狭域走査像 ($5 \times 5 \text{ nm}^2$)。 V_s : +1.0 V、 I_t : 1.0 nA。(c) 炭酸プロピレン分子のモデル。

4. 研究成果

(1) Li 原子の吸着状態の解析

図 2(a) は Li を蒸着した TiO_2 (110)-(1×1) 表面の STM 像とそのモデルである。STM 像中で矢印で示した点像が Li 原子であり、蒸着時間と共に増加した。モデル中の円と [001] 方向に沿った実線は、それぞれ Li 原子と Ti 原子列を表す。STM 像中で水平方向に延びた点像は探針走査中に移動した Li 原子であり、モデル中では楕円で表されている。[110] 方向の点線は、5 配位 Ti 原子 (ブリッジ O 原子) の中心を通過する。STM 像中の矢頭は、Ti 原子列中で解像された 5 配位 Ti 原子の一部を示す。

STM 像から、吸着位置が異なる 3 つの Li 原子を特定した。1 つは 5 配位 Ti 原子の真上に吸着した Li 原子であり、これを原子 A とする。他の 2 種は、Ti 原子列からわずかに [110] 方向に逸れた位置、2 つの Ti 原子列の中間位置に吸着した Li 原子である。これらをそれぞれ原子 B、C とする。モデル中の白色、灰色、黒色の円はそれぞれ原子 A、B、C を表す。図 2(b) は、原子 A、B、C の吸着位置を表す。原子 A は 4 つの in-plane O 原子の hollow site に、B 原子は 2 つの in-plane O 原子と 1 つの

ブリッジ O 原子から成る hollow site に、C 原子は O 原子欠陥に吸着している。図 2(c) の断面図に示すように、Li 原子 A、B、C の高さはいずれも約 0.03 nm だった

図 2(d) は図 2(a) に連続して取得した像である。図 2(a) 中の原子 A の 27%、原子 B の 80%、原子 C の 60% の位置が、図 2(d) で変化した。図 2(d) 中の 45% の A 原子、100% の B 原子、67% の C 原子は、続いて取得した画像で異なる位置に観察された。このように、Li 原子 A、B、C のいずれも室温で表面を移動することがわかった。

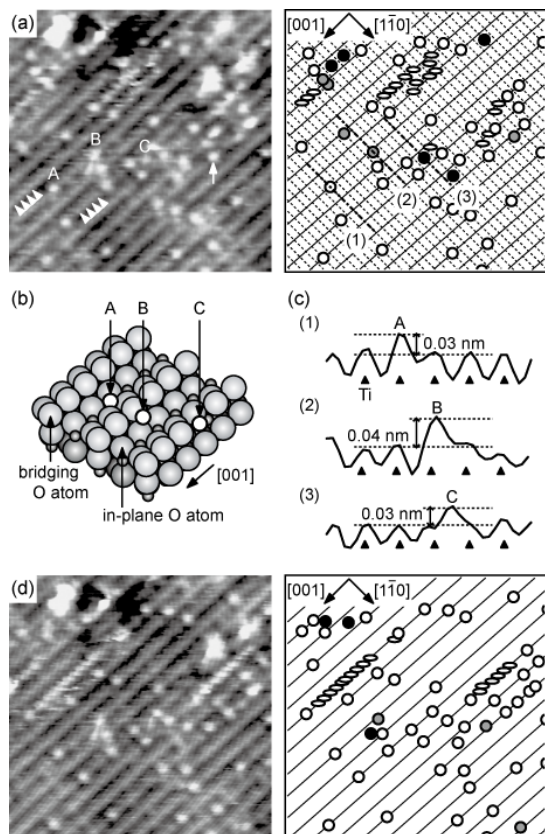


図 2 (a) Li 蒸着表面の STM 像 ($10 \times 10 \text{ nm}^2$) とそのモデル。(b) Li 原子の吸着モデル。(c) (a) のモデル中の破線に沿った、STM 像の断面。三角形は Ti 原子列の位置を表す。(d) (a) に続いて取得した STM 像。 $V_s: +1.0 \text{ V}$, $I_t: 1.0 \text{ nA}$ 。

図 3(a) は、Li 吸着表面 (平均密度 1.5 nm^{-2}) のステップ付近の STM 像とそのモデルである。モデル中の円と破線は Li 原子及びステップを表す。図 3(b) は、 $[001]$ 方向に沿ったステップからの距離 d に対する Li 原子の密度を表す。密度は、ステップに平行な辺と $[001]$ 方向の辺で構成した平行四辺形の領域について計算された。モデル中には、平行四辺形の 1 つを示した。計算に用いたステップの総長さは 68 nm 、Li 原子は 382 個だった。上側のテラスではステップから 3 nm 以内の領域で、下側のテラスではステップから 1 nm 以内の領域で、Li 原子の密度が 1 nm^{-2} に低下す

ることがわかった。

ステップ近傍での Li 原子の密度の低下は、ステップ近傍での表面電子状態の変動を示す。Li 原子は、吸着位置から 1 nm 程度の領域で、真空側への表面電子の広がりを緩やかにする[3]。これは、 TiO_2 への電子の供与を伴う Li 原子の吸着を阻害する。低被覆率では Li 原子は表面を拡散し、ステップに濃縮され、その結果として、ステップ近傍での Li 原子の密度が低下すると考えられる。

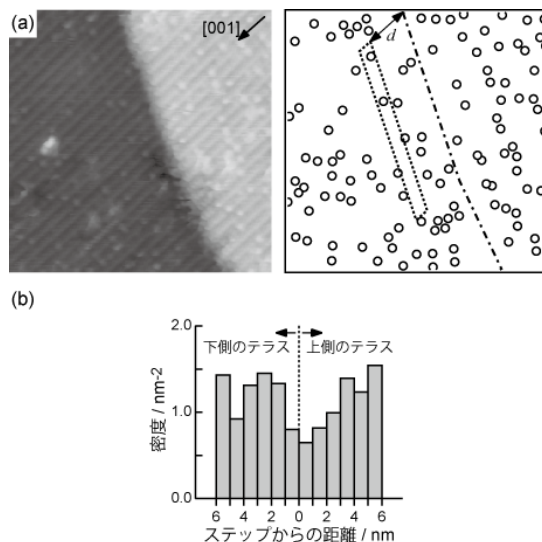


図 3 (a) Li 蒸着表面の STM 像 ($16 \times 16 \text{ nm}^2$) とそのモデル。 $V_s: +1.0 \text{ V}$, $I_t: 1.0 \text{ nA}$ 。(b) ステップからの距離に対する Li 原子の密度。

(2) 炭酸プロピレン分子の吸着状態の解析

図 4(a) は、 1 L ($1 \text{ L} = 10^{-6} \text{ Torr s}$) の PC ガスに暴露した $\text{TiO}_2(110)-(1 \times 1)$ 表面の STM 像である。像中には、直径 0.8 nm 、高さ 0.15 nm の点像が観察された。挿入図は、実線で示した領域の拡大図である。矢印は点像を示し、矢頭はノイズ様の不完全な点像を示す。 (1×1) 表面を 2 L の PC ガスに暴露すると、図 4(b) に示すようにテラス内はノイズで覆われた。点線で示した領域は、図 4(b) の取得前に $+2.0 \text{ V}$ の試料バイアスで走査された。この領域には周囲に比較して暗い部分が多く、PC 分子の密度が低下していることを示す。拡大図に示すように、分子サイズの点像が観察された。

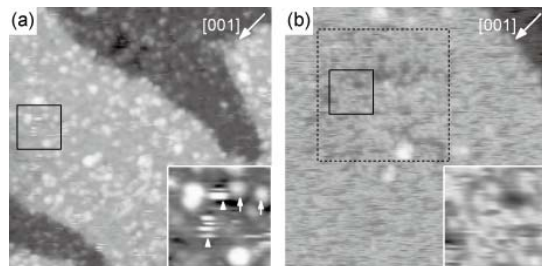


図 4 (a) 1 L 及び (b) 2 L の PC ガスを導入した (1×1) 表面の STM 像 ($30 \times 30 \text{ nm}^2$)。挿入図は実線で囲んだ領域の拡大図 ($5 \times 5 \text{ nm}^2$)。 $V_s: +1.0 \text{ V}$, $I_t: 1.0 \text{ nA}$ 。

以上から、PC 分子は低被覆率で点像として観察され、高被覆率では表面を移動するためノイズ様の像として観察されることがわかった。極性を持つ PC 分子間には反発力が働き、その力が運動を促進すると考えられる。

図 5(a)は、1170 K で加熱して作製した(1×1)表面の STM 像 (ステップ密度: 0.16 nm⁻¹) と、PC ガスへの暴露に伴う表面の仕事関数の変化を示す。この表面を低ステップ密度表面とする。1 L の PC ガスに暴露すると仕事関数は 0.50 eV 減少し、2 L の PC ガスに暴露すると減少量は 0.78 eV に達した。暴露量を 2 L 以上にしても仕事関数の減少量は 0.78 eV で変化しなかった。図 5(b)は、加熱温度を 1020 K に下げて作製した高ステップ密度(1×1)表面 (ステップ密度: 0.29 nm⁻¹) の STM 像と、PC ガスへの暴露に伴う仕事関数の変化である。仕事関数の減少量は、1 L の PC ガスに暴露すると 0.54 eV、2 L 以上のガスに暴露すると 0.81 eV だった。

仕事関数の減少は、PC 分子が負に帯電したカーボネート基で TiO₂ 表面に結合し、真空側に向けた表面双極子を形成したことを示す。大きさ μ の双極子モーメントを持つ PC 分子の単分子層が平行平板コンデンサを形成すると考えると、仕事関数の減少量 $\Delta\Phi$ は次式で表される。

$$\mu \cos \theta = \frac{\varepsilon}{\sigma} \Delta\Phi \quad (1)$$

θ 、 σ 、 ε は、表面に対する μ の傾斜角、 μ の密度、分子膜の誘電率である。1 L の PC ガスに暴露した表面で、 $\Delta\Phi$ 、 θ 、 σ 、 ε をそれぞれ 0.50 eV、0°、0.4 nm⁻²、 $8.9 \times 10^{-12} \text{ m}^{-3} \text{ kg}^{-1} \text{ s}^4 \text{ A}^2$ (真空の誘電率) とすると、 μ は 3.3 D と計算される。この値は、PC 分子の分子双極子 3.3 D と一致する。

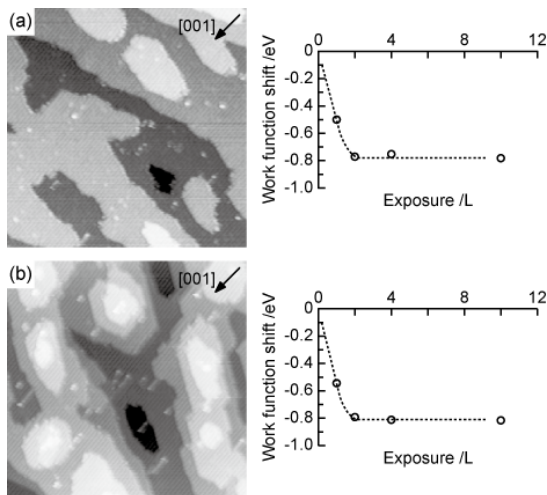


図 5 (1×1) 表面の STM 像 (50×50 nm²) と PC ガスへの暴露に伴う表面の仕事関数の変化。(a) 1170 K で加熱した表面。(b) 1020 K で加熱した表面。V_s: +1.0 V、I_t: 1.0 nA。

図 5 の結果は、PC 分子がステップに吸着しないことを示す。1 L の PC ガスに暴露すると、高ステップ密度表面の $\Delta\Phi$ は低ステップ密度表面の $\Delta\Phi$ より 0.04 eV 大きい。式(1)より、 $\mu=3.3 \text{ D}$ のとき 0.04 eV の $\Delta\Phi$ は 0.03 nm⁻² の σ の増加に対応する。0.03 nm⁻² の σ の増加は、図 5(a) の PC 分子の密度 0.4 nm⁻² の 10% 以下である。STM 像では、ステップにおける PC 分子の密度の増加は観察されなかった。

図 6 は、1 L の PC ガスに暴露した(1×1)表面の STM 像とそのモデルである。STM 像には、PC 分子、暗い点像、Ti 原子列が観察された。モデル中の大円、小円、実線はそれぞれ PC 分子、暗い点像、Ti 原子列を示す。白色、灰色の大円は、それぞれ Ti 原子列上、Ti 原子列の間に位置する PC 分子である。PC 分子の 90% は Ti 原子列上に位置した。灰色、黒色の小円は、Ti 原子列間、Ti 原子列上の暗い点像を示す。図 6(b) に示すように PC 分子の高さは 0.1-0.2 nm だった。図 6(c)、(d) は図 6(a) に続いて取得した STM 像である。図 6(a) から図 6(c)、図 6(c) から図 6(d) で移動した PC 分子を矢印で示した。移動した PC 分子は Ti 原子列上に観察されたものであり、Ti 原子列間の PC 分子は移動しなかった。

Ti 原子列上に観察された PC 分子は、0 原子の sp² 非共有電子対の 1 つで 5 配位 Ti 原子に配位すると考えられる。この結合は静電的に弱く [4]、PC 分子は Ti 原子列上を移動する。Ti 原子列間の PC 分子は 0 原子欠陥に吸着していると考えられる。この PC 分子の密

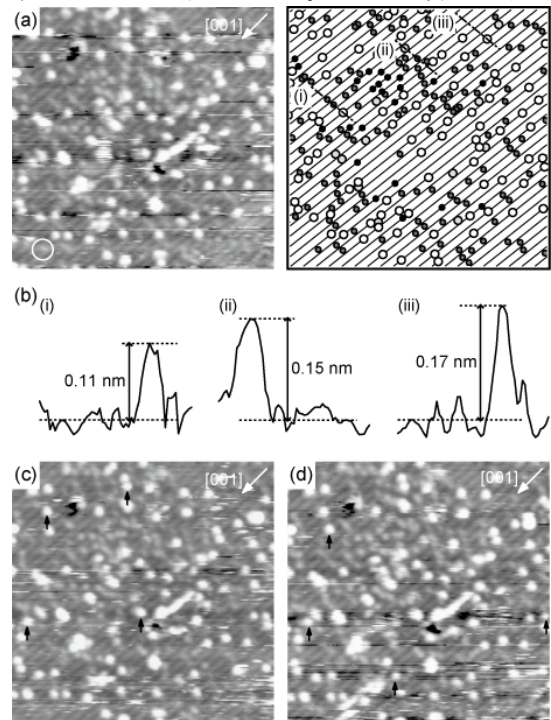


図 6 (a) PC 吸着表面の STM 像 (20×20 nm²) とそのモデル。(b) (a) のモデル中の破線に沿った断面図。(c)、(d) に続いて連続して取得した STM 像 (20×20 nm²)。V_s: +1.0 V、I_t: 1.0 nA。

度 0.03 nm^{-2} は 0 原子欠陥の密度に等しく、全ての 0 原子欠陥が PC 分子で占められている。PC 分子は、2 つの非共有電子対で 0 原子欠陥に露出した 2 つの Ti 原子に配位する。従って PC 分子は 0 原子欠陥で安定化し、移動しないと考えられる。

Ti 原子列の間の暗い点像は OH 基である。Ti 原子列上の暗い点像は、PC の分解生成物であるアセトンや酸化プロピレンと考えられる。

PC 分子が 2 つの非共有電子対で配位して安定に吸着すると考えると、ステップに安定に吸着しないことが理解できる。 (1×1) 表面に高い頻度で現れるステップの 1 つは $\langle 001 \rangle$ 方向のステップで、図 1(a) に示した A、B の 2 つのタイプが考えられる [1]。ステップ A では、5 配位 Ti 原子がステップ面に露出される。Ti 原子間の距離は 0.3 nm で、0 原子欠陥内の Ti 原子間の距離と等しい。しかし、PC 分子が 2 つの非共有電子対で配位するためには五員環が下側のテラスに接近しなければならず、立体的に不利である。ステップ B では、3 配位の Ti 原子が 1.2 nm 間隔で露出する。この Ti 原子から下側のテラスの最も近い 5 配位 Ti 原子までの距離は 0.46 nm であり、0 原子欠陥中の Ti 原子間距離より大きい。従って、2 つの Ti 原子への配位は難しい。

(1×1) 表面で高い頻度で現れるもう 1 つのステップは、 $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ ステップである。Diebold らが提案したモデル [1] では、4 配位および 5 配位の Ti 原子が 0.36 nm の間隔で交互に露出する。Ti 原子間の距離は、0 原子欠陥中の Ti 原子間距離より大きい。そのため、吸着する PC 分子は 0 原子欠陥に吸着する PC 分子より不安定であろう。Martinez らが提案した $\langle 1\bar{1}1 \rangle$ ステップの構造 [5] では、Ti 原子に 6 つの 0 原子が配位しており、PC 分子の吸着は立体的に不利である。

PC 分子が 0 原子欠陥に安定に吸着することを確認するため、0 原子欠陥が多い $\text{TiO}_2(110)$ 表面を作製して PC 分子の吸着状態を解析した。図 7(a) は 500 eV の電子線で 20 分間暴露した (1×1) 表面の STM 像とそのモデルである。点欠陥の密度は 1.0 nm^{-2} に増加し、その高さは断面図に示すように $0\text{--}0.1 \text{ nm}$ の範囲で広く分布した。 0.01 nm 以下の高さの点欠陥が 0 原子欠陥と仮定すると、0 原子欠陥及び OH 基の密度はそれぞれ 0.08 および 0.9 nm^{-2} と算出された。モデル中の黒丸、灰色丸は、0 原子欠陥、OH 基に割り当てられた点像を示す。STM 像中で矢印で示した TiO_x 種も点欠陥と共に増加した。図 7(a) の結果は、電子線照射により 0 原子欠陥が生成されたことを示す。画像から推定した 0 原子欠陥及び OH 基の密度は識別可能な点像を数えたものであり、実際の密度はさらに高いと考えられる。隣接する 2 つの OH 基は、1 つの高い点像として観察さ

れる [2]。0 原子欠陥についても同様の効果が予想される。

図 7(c) は、 2 L の PC ガスに暴露した電子線照射表面の STM 像とそのモデルである。表面は、分子サイズの点像により被覆された。点像は、高い点像と低い点像の 2 種に分類された。モデル中の白色および灰色の円はそれぞれ高い点像と低い点像を表す。両点像の密度は 0.7 nm^{-2} だった。図 7(d) に示すように、高い点像は低い点像より $0.08\text{--}0.1 \text{ nm}$ 高く、低い点像は点像のない間隙より $0.08\text{--}0.09 \text{ nm}$ 高かった。

高い点像、低い点像は、画像高さからそれぞれ PC 分子、OH 基に帰属される。間隙は PC 分子や OH 基が吸着していない (1×1) 表面である。モデル中の点線は Ti 原子列を表し、OH 基が 0.65 nm の間隔の線の間中に位置するように定めた。PC 分子の 57% は Ti 原子列の間で位置し、0 原子欠陥に安定に吸着していると考えられる。PC 分子の密度は 0.4 nm^{-2} であり、図 7(a) で 0 原子欠陥に割り当てられた点像の密度 0.08 nm^{-2} の 5 倍である。0 原子欠陥と PC 分子の密度の不一致は、電子線照射表面の 0 原子欠陥の数の違いに起因する。0 原子欠陥の一部は、高さの増加により誤って OH 基に分類されたのだろう。隣接した 0

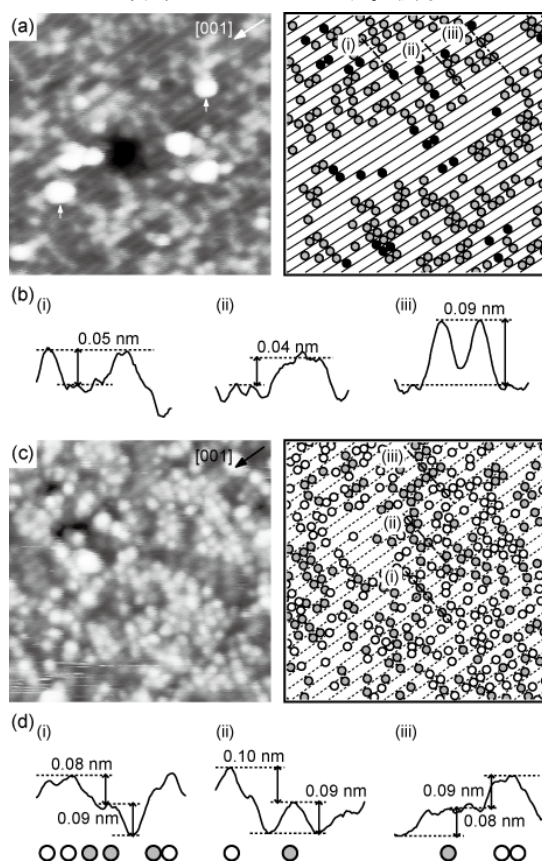


図 7 (a) 電子線を放射した (1×1) 表面の STM 像 ($15 \times 15 \text{ nm}^2$) とそのモデル。(b) (a) のモデル中の破線に沿った断面図。(c) 2 L の PC ガスに暴露した電子線照射表面の STM 像 ($15 \times 15 \text{ nm}^2$)。(d) (c) のモデル中の破線に沿った断面図。 V_s : $+1.0 \text{ V}$ 、 I_t : 1.0 nA 。

原子欠陥は、孤立した 0 原子欠陥より高い 1 つの点像として観察されると考えられる。0.3 nm² の隣接 0 原子欠陥が、0.15 nm² の高い点像として画像化されたとする。孤立した 0 原子欠陥、隣接した 0 原子欠陥の総密度は 0.38 nm⁻² となり、図 7(c) の Ti 原の PC 分子の密度と等しくなる。OH 基の密度は、0.75 nm⁻² であると判明し、PC 分子吸着表面の密度と一致する。

(3) まとめ

Li 原子が TiO₂(110) 表面のステップに、PC 分子が 0 原子欠陥に特異的に吸着することを明らかにした。これは、電極表面のナノ構造の制御により、Li 原子と PC 分子の反応で形成される SEI の濃度・厚さを制御できる可能性を示している。電極は酸化物の微粒子薄膜である。微粒子を構成するファセット面の面指数の制御や酸化還元処理により、ステップや 0 原子欠陥の濃度は制御できる。本研究の成果は、電極表面のナノ構造設計の端緒となる。

(4) 参考文献

- [1] U. Diebold *Surf. Sci. Rep.* **2003**, *48*, 53-229.
- [2] S. Wendt et al. *Surf. Sci.* **2005**, *598*, 226-245.
- [3] P. J. Feibelman et al. *Surf. Sci.* **1985**, *149*, 48-66
- [4] J. Haubrich et al. *Chem. Eur. J.* **2011**, *17*, 4496-4506.
- [5] U. Martinez et al. *Phys. Rev. B* **2011**, *84*, (205434) 1-6.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 5 件)

- ① H. Tatsumi, A. Sasahara, and M. Tomitori “Adsorption of Propylene Carbonate Molecules on a TiO₂(110) Surface” *J. Phys. Chem. C* **2013**, *117*(25), 10410-10416. 査読有
- ② E. Pavel, S. Jinga, E. Andronescu, B. S. Vasile, G. Kada, A. Sasahara, N. Tosa, A. Matei, M. Dinescu, A. Dinescu, O. R. Vasile “2 nm Quantum Optical Lithography” *Opt. Commun.* **2013**, *291* (15), 259-263. 査読有
- ③ H. Tatsumi, A. Sasahara, and M. Tomitori “Lateral Distribution of Li Atoms at the Initial Stage of Adsorption on TiO₂(110) Surface” *J. Phys. Chem. C* **2012**, *116* (25), 13688-13692. 査読有
- ④ R. Kokawa, M. Ohta, A. Sasahara, and H. Onishi, “Kelvin Probe Force Microscopy Study of a Pt/TiO₂ Catalyst Model Placed in an Atmospheric Pressure of N₂ Environment” *Chemistry - An Asian Journal* **2012**, *7* (6), 1251-1255. 査読有
- ⑤ Y. Jeong, M. Hirade, R. Kokawa, H. Yamada,

K. Kobayashi, N. Oyabu, T. Arai, A. Sasahara, and M. Tomitori, “Local interaction imaging by SiGe quantum dot probe” *Curr. Appl. Phys.* **2012**, *12* (2), 581-584. 査読有

〔学会発表〕 (計 5 件)

- ① 笹原 亮 「金属酸化物表面の表面電位測定」 2013 年度顕微鏡学会 SPM 分科会オープン研究会 2013 年 1 月 23 日、大阪
- ② 笹原 亮 「金属酸化物表面の液中ナノスケール構造解析」 2012 年度日本地球化学会年会 2012 年 9 月 12 日、福岡
- ③ 辰巳 仁美、笹原 亮、富取 正彦 「TiO₂(110) 表面上のリチウム-炭酸プロピレン共吸着の走査型トンネル顕微鏡による研究」 2012 年春季第 59 回応用物理学関係連合講演会 2012 年 3 月 15 日、東京
- ④ H. Tatsumi, A. Sasahara, and M. Tomitori “Initial adsorption of lithium and propylene carbonate on a metal oxide surface for lithium ion battery observed by scanning tunneling microscopy” 19th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM19) Dec. 19, 2011, Toyako-cho, Japan.
- ⑤ 辰巳 仁美、笹原 亮、富取 正彦 「金属酸化物表面上のリチウムイオン-炭酸プロピレン共吸着層の走査型トンネル顕微鏡による研究」 平成 23 年度 応用物理学会北陸・信越支部 学術講演会 2011 年 11 月 18 日、金沢

〔図書〕 (計 1 件)

- ① 笹原 亮、富取 正彦、株式会社エヌ・ティー・エス ポストシリコン半導体 - ナノ成膜ダイナミクスと基板・界面効果- 第 4 編 評価：解析「半導体表面構造・電荷分布の原子スケール解析を実現する走査プローブ顕微鏡」 *in press.*

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

6. 研究組織

(1) 研究代表者

笹原 亮 (SASAHARA AKIRA)

北陸先端科学技術大学院大学・マテリアルサイエンス研究科・助教

研究者番号：40321905

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし