

審査の結果の要旨

氏名 キンテロー レストレポ リカルド

「Development of lightweight electrochemical capacitor electrodes based on a three dimensional carbon nanotube network capturing capacitive particles (カーボンナノチューブ 3次元ネットワークで活物質を包含した軽量な電気化学キャパシタ電極の開発)」と題した本論文は、クリーンエネルギー技術として重要性の増している電気化学キャパシタ(EC)を対象に、軽量で柔軟で良導性のカーボンナノチューブ(CNT)マトリックスを活用した新たな電極を提案し開発した研究であり、全5章から構成されている。

第1章は序論であり、研究の背景および目的を述べている。冒頭で蓄電デバイス全般を紹介し、ECの位置づけを明確にしている。続いて、ECの現状と、活性炭(AC)を用いたEC電極の現状、およびCNTの製造法の現状とCNTを用いたEC電極の先行研究を説明している。その上で、日々報告されている新材料の性能をサブマイクロメートルの薄膜ではなく百マイクロメートル以上の十分な厚さの電極にて引き出すことが実用上欠かせず、また、容量に寄与しない導電性フィラーやバインダー、更には金属集電体を削減することでもECの性能を向上できることを述べている。これらの課題解決を、CNTのマトリックスの中に活物質を包含することで目指すとしている。更に、活物質としては高比表面積材料が重要で、多孔質材料と層状材料があることに触れ、前者としてACを、後者として酸化グラフェン(GO)を選定して、研究に取り組むとしている。

第2章では、金属集電体上でのAC-CNT複合電極の開発について述べている。まず、溶液中へのACとCNTの超音波分散と吸引ろ過による薄膜化と自立膜作製、および自立膜をEC電極とした各種電気化学測定を説明している。次に、CNTのみの電極を検討し、単層および数層CNTの何れも低抵抗なため高い充放電速度でも良好な容量が得られること、比表面積の大きい単層CNTの方が高い容量が得られ、分散能が高いドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム(SDBS)水溶液が分散に適していることを示している。続いて、AC-CNT複合電極を検討し、ACの分散には細孔内に吸着してしまうSDBSよりも容易に除去可能なエタノールが優れており、マトリックスとしてはエタノールでも分散可能な数層

CNT が優れていることを示している。続いて、CNT マトリックスは AC 粒子内での電気伝導やイオン拡散を促進できないため小さい AC 粒子ほど高容量・高出力が得られることを示し、また比表面積の大きい AC を用いることで容量を増大できることを示している。更に、CNT 5 wt% 添加でも AC-CNT 自立膜を作製でき、導電性フィラー・バインダーを用いた従来電極よりも優れたレート特性が得られることを示している。最後に、活物質 AC の比率増大、CNT による導電性向上、および高価な CNT 量の削減の観点から、性能面でもコスト面でも CNT 10 wt% 添加が最もバランスが取れて適切であるとしている。

第 3 章では、金属集電体フリーの、AC-CNT 全カーボン自立電極の開発について述べている。第 2 章で開発した AC-CNT 電極は優れた導電性を有するため、重い金属集電体に代わり CNT マトリックスを軽量な 3 次元集電体として利用することを提案している。AC-CNT 自立膜に、全面(2 次元)、線状(1 次元)、ないし点状(0 次元)でコンタクトを取って充放電評価を行い、線状のコンタクトにおいても 100 mV/s という比較的高い走査速度で動作することを示している。実 EC デバイス内で金属箔の集電体は総重量の 20~30% を占めるが、線状コンタクトではそれをほとんど 0 にすることができ、高い実効性の期待できるオリジナルな成果である。更に、AC-CNT 電極の線状コンタクトでは、導電性フィラー・バインダーを用いた従来電極の全面コンタクトよりも高い容量・出力特性を得られることを示している。

第 4 章では、GO-CNT 複合電極の開発について述べている。GO は黒鉛の液相酸化で安価に得られる材料であり、親水性のため水中に容易に分散しただけでなく、粒子状物質の分散剤としても作用すること、また高い比表面積と官能基密度を持つ層状物質であることを説明している。次に GO を分散剤として数層 CNT を水中に分散後に吸引ろ過して薄膜を作製すると、複合膜の内部では親水性の GO と疎水性の数層 CNT が相分離し、GO は絶縁性であるため、EC 電極としては上手く動作しないことを示している。そこで、GO をヒドラジンないし臭化水素を用いて化学的に還元して rGO としたところ、複合膜中にて rGO は数層 CNT を均一に覆い、かつ rGO が一定の導電性を持つため、EC 電極として動作することを示している。5 mV/s という低い走査速度では AC-CNT 複合電極と同様の高容量を示すものの、100 mV/s という高い走査速度では容量が低下してしまい、rGO-CNT 複合電極の抵抗低減が課題としている。

第 7 章は終章であり、本研究を通じて得られた成果をまとめ、今後の課題と展望について述べている。

以上要するに、本論文は材料プロセス工学の考えに基づき、軽量で柔軟で良導性の CNT をマトリックスとして用い、多孔性ないし層状の高比表面積活物質を包含するという、新しい EC 電極の構成を提案するとともに、電気化学評価を

進め、数百マイクロメートルと実用的な厚さで従来電極よりも優れた特性を実現したものであり、化学システム工学への貢献が大きいと考えられる。更に、日々発見の続く材料ナノテクノロジーと、性能向上要求の高いエネルギー技術を実用的に繋げる点で、工学への貢献も大きい。

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。