

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Study on the defective multiwalled carbon nanotubes and their application for Li secondary battery
著者(和文)	オクタビアノハリヨ
Author(English)	Haryo Oktaviano
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9312号, 授与年月日:2013年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:脇 慶子,堀田 栄喜,赤塚 洋,原 亨和,平山 雅章
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9312号, Conferred date:2013/9/25, 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	Haryo Satriya Oktaviano		
論文審査 審査員		氏 名	職 名		氏 名	職 名
	主査	脇 慶子	准教授	審査員	平山 雅章	講師
	審査員	堀田 栄喜	教授			
		赤塚 洋	准教授			
		原 亨和	教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Study on the defective multiwalled carbon nanotubes and their application for Li secondary battery」(構造欠陥を有する多層カーボンナノチューブとそのリチウム二次電池への応用)と題し、英文で書かれ、全5章から構成されている。

第1章「Introduction」では、多層カーボンナノチューブの基本的特性とリチウム二次電池への応用を概観し、二次電池分野へ応用する際の利点と課題について説明するとともに、実用化に際しては表面処理が不可欠であることを述べている。本論文で用いる酸化物と炭素の表面反応を利用した欠陥形成法は、反応が局所的に進行するため多層カーボンナノチューブの表面にリチウムイオンの出入りに必要な細孔を形成する手法として特に優れていることが予想され、その処理をしたカーボンナノチューブとリチウムイオンの電気化学反応の機構を明らかにし、リチウム二次電池の負極材料及び正極材料としての性能を評価することが本研究の目的であると述べている。

第2章「Defects fabrication on multiwalled carbon nanotubes: characterizations and application for LIB anode materials」では、炭素の表面におけるコバルト酸化物を触媒として用いた欠陥形成法の詳細について述べ、このように処理した多層カーボンナノチューブの構造的特性を、熱天秤 (TG)、窒素ガス吸着 (BET)、熱ガス脱着 (TDS)、ラマン分光などの測定法を用いて評価した結果をまとめている。欠陥形成後の容量は、625 mAh/g となり、グラファイトとリチウムの層間化合物 (GIC) や酸素官能基とリチウムとの反応だけでは説明できないことを明らかにしている。また、リチウム二次電池の負極材料の充放電特性と構造評価で得られた特性との関連を考察し、大容量のリチウム貯蔵は欠陥形成に伴い新たなトラップが形成されたことによるものである可能性を述べている。

第3章「What is actually extracted at high potential? Revealing the relationship between functional group and Li storage sites for CNT based anode materials」では、高電位で放電するリチウムイオンのメカニズムを理解するために、欠陥構造に形成された酸素官能基の電気容量への影響を検証している。電極のネットワーク構造の違いを最小限にし、メカニズムの詳細な検討を可能にするために、従来のバインダーを含むスラリーを塗布した電極ではなく、カーボンナノチューブのみを濾過した紙状電極 (BP: bucky paper) を用いた。BP の厚さを最適化し、未処理、酸処理、本研究の細孔形成処理を施した BP の酸素官能基を TDS で定量し、更にそれぞれを Ar 雰囲気中で熱処理 (900°C) して官能基を除去している。これらの試料の充放電実験を行い、リチウム貯蔵容量の変化を測定した結果、従来の酸素官能基とリチウムのレドックス反応だけでは説明できない容量変化であることを明らかにしている。これらのリチウム貯蔵について、カーボンナノチューブの壁に形成された細孔 (hole defects) または、充放電により壁面に形成した SEI 層 (solid-electrolyte-interface) 中にトラップサイトが形成されている可能性を提案している。

第4章「Defective multiwalled carbon nanotubes: a study for cathode application」では、高電位にある酸素官能基のレドックス反応をリチウム二次電池の正極反応として利用し、欠陥構造を持つカーボンナノチューブの反応機構解明及び性能評価を行っている。従来ではキノン基がレドックス反応に大きく寄与すると考えられていたが、Ar 雰囲気、500°C で加熱処理することによって、カルボキシル基の大幅な減少に伴い、CV 測定で電極のレドックス反応のピークが殆どなくなることから、正極の反応においてカルボキシル基の寄与が大きいと結論づけている。正極の実用化を進める際に、カルボキシル基の濃度を上げる処理が特に重要な課題であることを説明している。

第5章「Conclusions and prospective studies」では、本研究で得られた成果をまとめ、今後の展望を述べている。

以上を要するに、本論文は多層カーボンナノチューブの欠陥構造を新規な手法を用いて制御し、リチウム二次電池への応用の可能性を実証したものであり、工学上ならびに工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士 (工学) の学位論文として十分な価値があるものと認められる。