

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Study on novel synthesis of porous carbon microspheres dispersed with iron compound nanoparticles and their application to rechargeable batteries
著者(和文)	ADIAkylbek
Author(English)	Akylbek Adi
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12552号, 授与年月日:2023年9月22日, 学位の種別:課程博士, 審査員:谷口 泉,久保内 昌敏,山中 一郎,平山 雅章,森 伸介
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12552号, Conferred date:2023/9/22, 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	Adi Akylbek		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	谷口 泉	准教授	審査員	森 伸介	准教授
	審査員	久保内 昌敏	教授			
		山中 一郎	教授			
平山 雅章		教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は“**Study on novel synthesis of porous carbon microspheres dispersed with iron compound nanoparticles and their application to rechargeable batteries**”と題し、英文で書かれており、以下の6章より構成されている。

第1章“**Introduction**”では、本研究の背景および蓄電池の重要性を述べ、その電極材料および合成法を概観し、本研究の目的と意義を述べている。

第2章“**Synthesis of porous C/Fe₃O₄ microspheres by spray pyrolysis with NaNO₃ additive for lithium-ion battery applications**”では、NaNO₃を含む原料溶液から噴霧熱分解による多孔質 C/Fe₃O₄ マイクロ粒子の合成と、それを用いたリチウム二次電池特性について検討を行っている。合成には、炭素源としてスクロース、Fe 源として Fe(NO₃)₃ を用い、これらを所定の濃度で蒸留水に溶解させ、更に NaNO₃ を添加した溶液を原料溶液として用いている。1.0 mol L⁻¹ の NaNO₃ を含む原料溶液を N₂ 雰囲気、700°C で噴霧熱分解し、得られた試料を蒸留水およびエタノールで洗浄して Na 由来の不純物を除去することで、数十 nm からなる結晶性 Fe₃O₄ ナノ粒子が非晶質炭素の多孔質マイクロ粒子内に分散した C/Fe₃O₄ 複合体が合成できることを明らかにしている。また、これを電極活物質として用いたリチウム二次電池が、電流密度 500 mA g⁻¹ の条件で約 400 mAh g⁻¹ の放電容量と 200 サイクルまでの良好なサイクル特性を示すことを明らかにしている。更に C/Fe₃O₄ 複合体の電気化学特性において、炭素の細孔構造と結晶性、更に Fe₃O₄ の結晶性が重要であることを見出している。

第3章“**Synthesis and characterization of porous-crystalline C/Fe₃O₄ microspheres by spray pyrolysis with steam oxidation as anode materials for Li-ion batteries**”では、NH₄NO₃ を含む原料溶液から噴霧熱分解とその後の水蒸気酸化を含む熱処理による結晶性 C/Fe₃O₄ 多孔質マイクロ粒子の合成と、それを用いたリチウム二次電池特性について検討を行っている。0.5 mol L⁻¹ の NH₄NO₃ を含む原料溶液を第3章と同一の条件で噴霧熱分解し、得られた試料を、3% H₂ を含む N₂ 雰囲気、700°C で4時間熱処理し、更に水蒸気を含む N₂ 雰囲気、500°C で2時間、熱処理を行うことで、数十 nm からなる結晶性 Fe₃O₄ ナノ粒子が黒鉛の多孔質マイクロ粒子内に分散した結晶性 C/Fe₃O₄ 複合体が合成できることを明らかにしている。また、これを電極活物質として用いたリチウム二次電池が、電流密度 1000 mA g⁻¹ の条件で 200 サイクル後に 400 mAh g⁻¹ を越える放電容量と良好なサイクル特性を示すことを明らかにしている。この優れた電池特性は、黒鉛マイクロ粒子内の多孔質構造とそのマイクロ粒子内に分散した数十 nm からなる結晶性 Fe₃O₄ 微粒子によるものであると報告している。

第4章“**Porous-crystalline C/Fe₃O₄ microspheres with highly accessible conductive and adsorptive/catalytic interfaces to manipulate polysulfide shuttling in Li-S batteries**”では、第3章で合成に成功した結晶性 C/Fe₃O₄ 多孔質マイクロ粒子を用いて、リチウム硫黄電池におけるリチウム多硫化物の電解液への溶出によるサイクル劣化の問題を解決することを試みている。まず、結晶性 C/Fe₃O₄ 多孔質マイクロ粒子へのリチウム多硫化物の吸着試験と吸着試験後の試料の X 線光電子分光法 (XPS) による表面分析により、この材料がリチウム多硫化物を物理および化学吸着することを明らかにしている。また、この材料を用いて作製した対称セルのサイクリックボルタンメトリー (CV) 測定により、結晶性 C/Fe₃O₄ 多孔質マイクロ粒子が、吸着されたリチウム多硫化物の電極上での酸化還元反応を促進させることを見出している。それらの結果を踏まえて、結晶性 C/Fe₃O₄ 多孔質マイクロ粒子を塗布したセパレータをリチウム硫黄電池のセパレータとして用いることで、電池のサイクル特性およびレート特性が大幅に改善することを報告している。

第5章“**Synthesis of advanced sulfur cathode with porous-crystalline C/Fe₃C electrocatalyst and three-dimensional (3D) current collector for Li-S batteries**”では、第3章の噴霧熱分解後の N₂ 雰囲気での熱処理で得られた結晶性 C/Fe₃C 多孔質マイクロ粒子と炭素ファイバーからなる三次元集電体を用いて新規硫黄正極を作製し、リチウム硫黄二次電池のさらなるサイクル特性の改善を試みている。まず、リチウム多硫化物の吸着試験、対称セルを用いた CV 測定により、結晶性 C/Fe₃C 多孔質マイクロ粒子がリチウム多硫化物を物理および化学吸着し、リチウム多硫化物の電極上での酸化還元反応を促進させる触媒作用があることを明らかにしている。また、この材料を従来の硫黄正極と混合し、吸引濾過により炭素ファイバーからなる三次元集電体表面およびその内部に含浸させることで、新しいタイプの三次元構造を有する新規硫黄正極の作製に成功している。更に、その新規硫黄正極を用いたリチウム硫黄電池が、優れたレート特性とサイクル特性を示すことを報告している。

第6章“**Summary**”では、以上の結果を総括している。

これを要するに、本論文は、鉄化合物ナノ粒子 (Fe₃O₄、Fe₃C) 分散型多孔質炭素マイクロ粒子の新規合成法を提案し、それらの材料の蓄電池への応用を明らかにすることで、新たな蓄電池の開発にとって有益な知見を与えるものであり、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。

注意: 「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ (T2R2) にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。