

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Plasma-in-Liquid Synthesis of Sulfur-Doped Nano-Sized Carbon Materials for Secondary Batteries and Electrocatalysts
著者(和文)	KIMHanvin
Author(English)	Hanvin Kim
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12082号, 授与年月日:2021年9月24日, 学位の種別:課程博士, 審査員:竹内 希,千葉 明,藤田 英明,野崎 智洋,赤塚 洋,Oi Lun Li
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12082号, Conferred date:2021/9/24, 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

(博士課程)

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		Hanvin Kim	
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	竹内 希	准教授	審査員	赤塚 洋	准教授
	審査員	千葉 明	教授		Oi Lun Li (学外審査員)	釜山大学 准教授
		藤田 英明	教授			
		野崎 智洋	教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は“Plasma-in-Liquid Synthesis of Sulfur-Doped Nano-Sized Carbon Materials for Secondary Batteries and Electrocatalysts”と題し、英文7章で構成されている。

第1章“Introduction”では、炭素循環と環境との関係が述べられ、エネルギー材料としての炭素材料利用の重要性が論じられている。炭素材料の合成には様々な手法が用いられているが、その中でも環境に優しく効率的な手法として、液中プラズマ法を用いた炭素合成を紹介している。また、代表的な応用として、ナトリウムイオン電池および酸素還元反応について理論的背景を述べている。これらを踏まえて、液中プラズマ法を用いた炭素材料合成と、そのナトリウムイオン電池および酸素還元反応への応用を本論文の目的として挙げ、特に硫黄を含有した炭素材料の合成に着目して、材料特性と電気化学的特性との関係解明を目指すことを述べている。

第2章“Research Trends and Literature Reviews”では、液中プラズマ法による炭素材料合成メカニズムや、二次電池の負極材料や酸素還元反応触媒としての応用について、これまでに報告された文献が精査されている。また、関連する科学論文の統計により、関連分野の研究動向が示されている。さらに、炭素材料の合成手法や電気化学的性能について、それぞれの応用に対して簡潔にまとめられている。その上で、液中プラズマ法により合成された炭素材料の電気化学的特性に関する知見が十分ではないことが述べられている。

第3章“Sulfur-Doped Carbon of SIBs Anode Material”では、液中プラズマ法による硫黄含有炭素の合成と、そのナトリウムイオン電池負極材料への応用の詳細が述べられている。ナトリウムイオン電池は、原料が豊富にあることや、リチウムイオン電池と同様の電気化学的挙動を示すことから、近年大きな関心を集めている一方で、ナトリウムイオンの半径はリチウムイオンの半径よりも相対的に大きく、リチウムイオン電池の負極として広く使用されている黒鉛の利用は適さないことが述べられている。この問題を解決するために、チオフェンを原料とした液中プラズマ法によって、3次元の材料構造と硫黄成分を有する、新しい炭素材料を開発した。ナトリウムイオン電池の負極材料として用いることで、100 A/g という極めて高い比電流において、146 mAh/g という大きな可逆容量と長期の安定性を示し、優れた電気化学性能を発揮したことが述べられている。

第4章“Sulfur-Doped Carbon for Two-Electron-Transfer Dominant ORR”では、硫黄含有炭素を2電子反応経路を介した酸素還元反応触媒として用いた場合の特性が示されている。チオフェンを原料として液中プラズマ法により炭素材料を合成し、その後、熱処理を行うことで、比表面積や触媒性能の変化を観測している。合成された全ての触媒は、75%の優れた HO_2^- 選択性を示し、最も高い1000°Cで熱処理したサンプルが、最も優れた触媒性能を示したことが述べられている。

第5章“Investigation of Carbon Nanoparticles Structure for ORR”では、キシレンを原料として液中プラズマ法により合成した炭素材料の、酸素還元反応触媒への応用について述べられている。始めに、窒素やホウ素などのヘテロ原子を含有した炭素材料に比べて、ヘテロ原子を含有しない炭素材料に関する知見が不足していることが論じられ、熱処理に対する材料特性と触媒性能の解析を行うことが述べられている。熱処理によって、様々な孔径分布を持つ、部分的に結晶化した炭素材料が得られた。電気化学的な活性は熱処理によって増加し、可逆水素電極電位を基準として0.5 Vにおいて、18.3 mA/cm²の高い電流密度が得られたことが述べられている。

第6章“Optimized Preparation of Sulfur-Doped Carbon for SIBs and Two-Electron-Transfer Dominant ORR”では、硫黄を溶解させたキシレンを原料とした、液中プラズマ法による硫黄含有炭素材料の合成と、そのナトリウムイオン電池負極材料および酸素還元反応触媒への応用について述べられている。C-S共有結合に由来する優れた電気化学的特性が示され、ナトリウムイオン電池負極材料への応用では、5000 サイクル以上にわたり約150 mAh/gの大きな可逆容量が達成され、他手法で合成された硫黄含有炭素材料よりも優れた性能を達成している。さらに、酸素還元反応触媒への応用では、可逆水素電極電位に対して0.890 Vという低い過電圧において、25.66 mA/cm²という高い電流密度が得られた。以上の成果をまとめて、炭素原子と硫黄原子の結合が電気化学的性能の向上に重要な役割を果たすことが論じられている。

第7章“Conclusions”では、本論文で得られた成果および知見をまとめ、硫黄を含有した炭素材料の有用性および他の炭素材料合成への展開について述べられている。

以上を要するに、本論文は液中プラズマ法による簡易的な炭素材料合成手法と、硫黄含有による電気化学的特性の大幅向上を論じたもので、工学上貢献するところが大きい。よって我々は、本論文が博士(工学)の学位論文として、十分に価値のあるものと認める。

注意:「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチリポジトリ(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。