

氏名（本籍）	江口 卓弥（佐賀県）
専攻分野の名称	博士（工学）
学位記番号	理博甲 第 263 号
学位授与の日付	令和4年3月22日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科・専攻	理工学研究科 総合理工学専攻
学位論文題目 (英文)	多孔質炭素を用いた電気化学キャパシタの高エネルギー密度化 (Enhancement of energy density of electrochemical capacitors using porous carbon)
論文審査委員	(主査) 教授 熊谷 誠治 (副査) 教授 田島 克文 (副査) 教授 齊藤 準 (副査) 准教授 カビール ムハムドゥル

## 論文内容の要旨

電気二重層キャパシタ(EDLC)は、他の蓄電デバイスよりも出力密度や寿命の点で優れている。また、Liイオン電池(LIB)の負極とEDLCの正極を組み合わせたりチウムイオンキャパシタ(LIC)は、有望なエネルギー貯蔵デバイスとして期待されている。LICは、EDLCよりも高いエネルギー密度を実現できるが、サイクル性能はEDLCよりも低い。これら電気化学キャパシタのエネルギー密度は、LIBに比べて一桁低いため、より高いエネルギー密度が求められている。多孔質炭素は、EDLCの電極やLICの正極として用いられており、様々な有機材料から作製することが可能である。本論文では、多孔質炭素を用いた電気化学キャパシタのエネルギー密度の向上と、LICの新しいアノード活物質を対象としている。多孔質炭素である活性炭はバイオマス資源から製造可能な活物質であり、バイオマス資源由来の活性炭の製造は様々な試みがなされている。しかし、まだ利用されていないバイオマス資源が多く存在する。第2章では、高エネルギー密度EDLCのための電極活物質としての未利用バイオマス資源由来活性炭の製造について述べる。次に第3章では、高性能活性炭のEDLCの電極活物質としての可能性について述べる。最後に第4章では、LICの高エネルギー密度化について述べる。結論として、有機廃棄物由来の多孔質炭素は、電極活物質として有用であることが示された。また、高比表面積活性炭の粒子径がEDLC

の性能に影響を与える重要な因子であることが示され、高エネルギー密度 EDLC に最適な粒子径の高比表面積活性炭が得られた。その高比表面積活性炭正極と Si 負極を組み合わせた LIC の動作容量を一致させることで、高エネルギー密度 LIC を実現した。本研究により、電気化学キャパシタは、エネルギー密度が低いという欠点を克服できるため、様々な分野でのエネルギー貯蔵デバイスとしての利用が期待でき、持続可能な社会の発展に寄与する。

## 論文審査結果の要旨

持続可能な社会の実現のため、世界的規模で環境とエネルギーについての関心が高まっている。日本においても、再生可能エネルギーのさらなる導入や走行時に二酸化炭素を排出しない電気自動車の普及など、脱炭素社会に向けた取り組みが進められている。脱炭素社会の実現には、さらなる科学技術の発展が不可欠である。特に、出力変動が大きい再生可能エネルギーの一時貯蔵のため、また、電気自動車の航続距離および寿命を延ばすためには、高性能な蓄電デバイスが必須である。それゆえ、電気を蓄える蓄電技術は、環境とエネルギーに関連する諸課題を解決するキー技術ノロジーとなっている。

本論文では、蓄電デバイスの中でも多孔質炭素を用いた電気化学キャパシタに着目している。電気化学キャパシタは出力特性および耐久性（寿命）に優れた蓄電デバイスとして広く利用されてきた。そこで、電気化学キャパシタにより優れた性能を付与するため、その高エネルギー密度化が試みられている。また、バイオマスから電気化学キャパシタ用の高性能電極材料を製造する試みもなされている。そして、性能面だけでなく環境面においても、今後の蓄電デバイスの技術発展に貢献できる研究結果が得られている。本論文の内容は以下の通りである。

第 1 章では、高性能蓄電デバイスの必要性が述べられており、電気二重層キャパシタ (EDLC) とリチウムイオンキャパシタ (LIC) の技術現状が、現在主流の二次電池であるリチウムイオン電池と比較して述べられている。また、EDLC と LIC の蓄電機能の特徴がそれぞれの充放電機構から説明されている。

第 2 章では、バイオマスを EDLC の電極材料である活性炭に変換する技術について述べられている。未利用バイオマスとして、焼酎粕が選択され、活性炭製造過程における予備炭化温度が着目されている。異なる予備炭化温度からなる焼酎粕活性炭を作製し、材料物性と電気化学特性が調査されている。焼酎粕活性炭の EDLC 電極としての潜在的な可能性が市販活性炭と比較して検証され、予備炭化温度を変えることで、優れた EDLC 用活性炭を作製できることが証明されている。また、その要因についても言及されている。

第 3 章では、超高比表面積活性炭の EDLC 電極材料としての可能性について述べられている。特に、超高比表面積活性炭の粒径が、その充放電特性に及ぼす影響について調査されている。遊星型ボールミルを使用して、超高比表面積活性炭の粉碎時間を変化させ、異なる粒径を有する EDLC 電極が作製されている。最良の充放電特性を実現できる適切な粉

碎時間と粒径分布が存在することが示され、質量基準で最大 39.3 Wh/kg、容積基準で最大 13.0 Wh/L と、非常に高いエネルギー密度の EDLC が実現されている。

第 4 章では、LIC の高エネルギー密度化について述べられている。高比表面積活性炭を用いた正極と Si 負極を組み合わせ、さらに正極と負極の動作容量を一致させることで、超高エネルギー密度の LIC が作製されている。そして、最大エネルギー密度が 400 Wh/kg、エネルギー密度 317 Wh/kg で出力密度 1359 W/kg を有する世界最高レベルの LIC が実現されている。その LIC はリチウムイオン電池に匹敵するエネルギー密度と、それより優れた出力密度を有しており、蓄電デバイスとして大きな可能性が示唆されている。さらに、Si の性能低下メカニズムが明らかにされ、LIC のさらなる高性能化のための技術開発の方向性が示されている。

第 5 章ではこれまでの研究の総括が述べられている。  
本論文は、従来の高出力密度を保ちつつ、高エネルギー密度での充放電を可能にする蓄電デバイスの開発のために重要な知見を提供するものである。それゆえ、脱炭素社会の実現に向けて舵を切った現代社会に、技術的な面から大きな貢献を果たすものである。

以上により、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。