

平成 28 年度 助成

氏名: 東城 友都



研究 経過 ・ 終了 報告書

※ゴシック文字で記入下さい。

研究テーマ	リチウム合金化材料を内包したカーボンナノチューブ電極の リチウム挿入・脱離反応時における電気化学特性評価
研究の結果	カーボンナノチューブ(CNT)内部に導入するリチウム合金化材料には、シリコン含有分子(現行負極の約11倍の理論容量を示す材料)および、黒リン(現行負極の約7倍)を採用した。 シリコン含有分子であるオルトケイ酸テトラエチル(TEOS)溶液中で、CNT粉末を撈拌させることでCNT内部にTEOSの導入を行なった。TEOSは水分を含有することで加水分解を生じるため、今回は、Ar雰囲気中、500 rpm、24 hの条件で撈拌を行なった。その後、脱水エタノールを用いて洗浄を行なった。この試料に対し、透過型電子顕微鏡(TEM)像観察および、TEM内での元素分析を行なったところ、CNT内部にシリコンの存在を確認できた。この粉末とポリテトラフルオロエチレン(PTFE)を90:10 wt.%の割合で混合・成型し、LIB負極としてコイン電池に組み込み、そのLIB性能を評価した。シリコン含有量の同定は困難であったため、電極活物質全体の重量として充放電容量を算出した。TEOS導入前後の充放電曲線において、1サイクル目は充電(リチウムイオン挿入)時にCNT由来の副反応が生じ、不可逆容量が1000-2100 mAh/gと非常に大きくなった。しかし、2サイクル目以降からは、その副反応はほとんど生じず、可逆的な充放電容量が得られた。TEOS導入前の2サイクル目以降の可逆容量は約300 mAh/gであったのに対し、TEOS導入後では約550 mAh/gとなり容量増加が確認された。しかし、この増加がシリコン由来かCNT由来か明確な区別は困難であったため、今後は、示差熱-熱重量分析等から、シリコン導入量の推定を行い、CNT内部のシリコンのリチウム合金化・脱合金化過程を構造的に解析する。 CNT粉末と黒リン粉末を石英管内に真空封入を行い、この石英管を加熱することで目的試料を合成した。黒リンは同素体である赤リンに比べて、熱力学的に安定な材料であるため、示差熱-重量分析から黒リンの昇華が観測された温度で熱処理を行なった。得られた試料に対し、TEM像の観察およびTEM内での元素分析を行なったところ、CNT軸に沿って黒リンの存在が確認され、黒リン導入前後の重量差から、2-4%の黒リンがCNT内部に導入されていることが示唆された。この試料を前条件で電極化し、このLIB性能を評価した。その結果、2サイクル目以降の充放電曲線には、黒リンの酸化・還元反応由来の平坦部が観測され、700 mAh/g以上の高い可逆容量を示した。しかし、黒リンの導入量が少なく、容量のバラツキが多かったため、今後は、黒リンの微粒化条件の決定を行い、黒リン導入量の増加を目指す。
研究発表 (実績)	口頭発表 [1] <u>Tomohiro Tojo</u>, Shinpei Yamaguchi, Yuki Furukawa, Ryoji Inada, Yoji Sakurai, "Electrochemical Characterization of Phosphorus Encapsulated in Drilled Carbon Nanotubes as Anode Material for Lithium Ion Batteries", Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-state Science 2016 (PRiME 2016), Honolulu (Hawaii), 2016/10/7. [2] 山口 慎平、古川 優樹、<u>東城 友都</u>、稲田 亮史、櫻井 庸司、"リチウムイオン電池用リン内包カーボンナノチューブ負極の電気化学特性評価"、第47回 中部化学関係学協会支部連合秋季大会、豊橋市(愛知)、2016/11/5。 [3] <u>東城 友都</u>、山口 慎平、古川 優樹、稲田 亮史、櫻井 庸司、"細孔側面を有するカーボンナノチューブへのリン導入とその電気化学特性評価"、第57回 電池討論会、千葉市(千葉)、2016/11/28。 査読付き国際論文 [4] <u>Tomohiro Tojo</u>, Shinpei Yamaguchi, Yuki Furukawa, Ryoji Inada, Yoji Sakurai, "Electrochemical Characterization of Phosphorus Encapsulated in Drilled Carbon Nanotubes as Anode Material for Lithium Ion Batteries", The Electrochemical Society Transactions (ECST), No. 75, Vol. 20, pp. 39-44, (2017).

提出期限: 研究期間終了後、すみやかに助成金の「必要経費使途明細書」「領収書(原本)」と合わせて提出下さい。
年度をまたぐ場合は毎年3月末日までに、途中経過をご記入の上、報告願います。