

令和 2 年 6 月 16 日現在

機関番号：33903

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06034

研究課題名(和文) 金属酸化物ナノ粒子を活性炭のミクロ孔に高分散させた高性能電気化学キャパシタの開発

研究課題名(英文) Development of the electrodes for high-performance electrochemical capacitors via high dispersion of metal oxide nanoparticles into the micropores of activated carbon

研究代表者

糸井 弘行 (Itoi, Hiroyuki)

愛知工業大学・工学部・准教授

研究者番号：40648789

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、活性炭細孔内に酸化ルテニウム水和物ナノ粒子あるいはルテノセンを複合化し、硫酸水溶液を電解液とした電気化学キャパシタ電極特性を検討した。いずれの複合体においても、酸化ルテニウム水和物ナノ粒子あるいはルテノセンが導電性の高い炭素表面と高表面積で接触しているため、接触界面における電荷移動が極めて速やかに行われる。その結果、電極材料として急速充放電特性を有することを明らかにした。同時に、この複合化は活性炭粒子の体積膨張を伴わないため、電極体積当たりの高容量化が可能である。したがって本研究手法により、電極材料として急速充放電特性と体積当たりの高容量化が両立可能であることを示すことができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、活性炭をはじめとする多孔質炭素材料と有機金属錯体あるいは金属酸化物との複合化による高エネルギー電極材料の開発である。有機金属錯体と金属酸化物とは異なる物質ではあるが、複合化の最初の段階は気相吸着を利用した同じ操作であり、その後の操作によって活性炭細孔内に吸着した錯体を金属酸化物に変換することができる。本研究では結果的にいずれの材料も電極材料に応用することができたが、錯体や金属の種類によっては電極以外の応用が期待できる。錯体や金属と多孔質炭素材料の組み合わせは無限であり、したがって本研究手法を利用することで高性能な電子デバイス材料の開発が期待できる。

研究成果の概要(英文)：Ruthenocene or hydrated ruthenium oxide (RuO<sub>2</sub>) nanoparticles was supported inside the pores of activated carbon (AC), and their electrochemical capacitor behaviors were examined using aqueous sulfuric acid. In both cases, the interface between ruthenocene or hydrous RuO<sub>2</sub> nanoparticles and conductive carbon surface was enhanced, and rapid charge transfer at the contact interface was facilitated, thereby realizing high-power-density electrode materials. Moreover, the volumetric expansion of AC particles was not accompanied by the hybridization, and therefore, the volumetric capacitance was enhanced. This hybridization method was revealed to balance the high-power-density and the volumetric capacity enhancement as electrode materials.

研究分野：電極材料

キーワード：電気化学キャパシタ 電池 有機金属錯体 金属ナノ粒子 金属酸化物ナノ粒子 X線吸収スペクトル測定

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

活性炭をはじめとするイオンの物理的な吸脱着を利用した電気二重層キャパシタは、急速充放電が可能(高パワー密度)かつ寿命特性に優れた電気エネルギー貯蔵デバイスである。しかしながら、エネルギー密度がリチウムイオン二次電池の10分の1以下程度であることが電気二重層キャパシタの最大の欠点である。一方、炭素材料にポリアニリンをはじめとする導電性高分子、または酸化マンガンなどの酸化還元反応を示す金属酸化物を複合化し、電気二重層由来の二重層容量に酸化還元反応由来の擬似容量を上乗せさせ、エネルギー密度を増加させた電気化学キャパシタ電極の開発がこれまで数多く報告されている。しかしいずれも主に炭素材料の表面に数ナノから数マイクロメートルオーダーの導電性高分子や金属酸化物粒子を複合化するため、高パワー密度が得られず、充放電過程で炭素材料からの剥離や金属酸化物粒子の凝集が起こるために長寿命特性が得られにくい。

### 2. 研究の目的

本研究では、一般的に用いられる多孔質炭素である活性炭を用いた高性能キャパシタ電極を開発することである。我々は近年、多孔質炭素の細孔内部に酸化還元反応を示す有機化合物を吸着、あるいは導電性高分子前駆体モノマーを吸着後に重合させて得られる電極の作製を検討してきた。この手法では、有機化合物や導電性高分子の導入によって多孔質炭素の粒子体積は変化しないため、電極体積当たりのキャパシタ容量を増加させることができる。しかも導電性の低い有機化合物を用いても、多孔質炭素細孔内では導電性の高い炭素表面との接触面積が増大するため、接触界面における電荷移動が速やかに行われる。その結果、電極材料として急速充放電特性を得ることができる。したがってこの複合化手法は、電極材料の体積あたりの高容量化と急速充放電特性を両立させることができる。そこで本研究では、本研究手法を用いて活性炭に酸化ルテニウム水和物ナノ粒子を複合化することで、急速充放電特性と体積あたりの高エネルギー密度を両立した電極材料の開発を目指す。また、本研究を進めていくうえで、活性炭にルテノセンを吸着させた複合体が急速充放電特性と体積あたりの高容量化を両立した電極材料として機能することが明らかになった。そこで、活性炭/ルテノセン複合体のX線吸収スペクトル測定を行い、活性炭に吸着したルテノセンが酸化されずにルテノセンとして酸化還元反応を行っているかを確認した。

### 3. 研究の方法

事前に減圧加熱乾燥によって乾燥させたミクロ孔のみを有する活性炭(mAC)あるいはミクロ孔と4nmまでのメソ孔を有する活性炭(mmAC)に、ルテニウムアセチルアセトナート( $\text{Ru}(\text{acac})_3$ )を200℃、24hで気相雰囲気中で吸着させた。このとき、活性炭と $\text{Ru}(\text{acac})_3$ に含まれるRuとの重量比が7:3あるいは8:2となるように $\text{Ru}(\text{acac})_3$ を量り取った。この試料を400℃で3h熱処理することで、活性炭に吸着した錯体を還元して活性炭細孔内にRuナノ粒子として高分散化させた。得られた試料はmAC/Ru(20%)とmmAC/Ru(20%)、mmAC/Ru(30%)の3種類である。

活性炭とルテノセンの複合化においては、減圧加熱乾燥させたmACにルテノセン( $\text{RuCp}_2$ )を100℃、24hで気相雰囲気中で吸着させた。得られた試料をAC/ $\text{RuCp}_2$ (X%)と示し、Xは試料中の $\text{RuCp}_2$ の重量パーセントを示す。

試料から電極を作製するため、試料に含まれるACとバインダーであるポリテトラフルオロエチレン、導電材であるカーボンブラックを18:1:1の重量比で混合してシート化し、ステンレスメッシュで圧着して作用極を作製した。全ての電気化学測定は3極式セルを用いて評価を行い、電解液に1M硫酸水溶液、参照電極には銀/塩化銀電極を用いた。活性炭細孔内に担持されたRuナノ粒子の酸化は、0.8Vにおける2h保持を1サイクルとし、その後のサイクリックボルタメトリーで電流値の増加が確認できなくなるまでこのサイクルを繰り返した。酸化処理を行った試料は、酸化前の試料名に-0xを付けて区別した。

### 4. 研究成果

図1に、mAC/Ru(20%)-0xとmmAC/Ru(20%)-0x、mmAC/Ru(30%)-0xの透過型電子顕微鏡(TEM)観察結果を示す。0.8Vにおける酸化処理前の試料を比べると、酸化処理によってナノ粒子の粒径がほとんど変化しないことを確認した。この理由は、粒子中心部まで酸化が行き渡らなかったことが原因として考えられる。また、いずれの試料においても活性炭の細孔径に関わらず、ナノ粒子の粒径がほぼ同じであることが分かる。

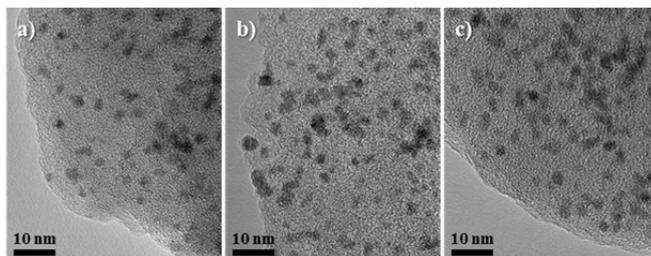


図1 (a) mAC/Ru(20%)-0x, (b) mmAC/Ru(20%)-0x, (c) mmAC/Ru(30%)-0xのTEM写真

図2に、酸化処理後の試料と活性炭のサイクリックボルタモグラムを示す。図に示すように、活性炭は電気二重層の形成に由来する電流のみに基づく長方形型のボルタモグラムを示すことが分かる。一方で活性炭に酸化ルテニウム水和物ナノ粒子を複合化することで、酸化ルテニウ

ム水和物に特徴的な歪んだボルタモグラムを示すことが分かる。尚、縦軸は電極体積あたりの電流値を示しているため、ボルタモグラムの大きさは体積あたりの容量に比例している。したがって試料中の Ru の重量比が大きいほど、複合化前の活性炭と比較して体積あたりの容量が増加していることが分かる。

図 3 は、定電流充放電測定から得られた体積あたりの容量を、電流密度に対してプロットした結果である。0.2 A/g における容量に対する 10 A/g の容量維持率を比較すると、mAC が 37%であるのに対し、mmAC が 58%ある。同様の比較をすると、mAC/Ru (20%)<sub>0x</sub> と mmAC/Ru (20%)<sub>0x</sub>、mmAC/Ru (30%)<sub>0x</sub> ではそれぞれ 8%と 49%、27%である。活性炭同士を比較すると、ミクロ孔しかない mAC に比べ、mmAC はミクロ孔に加えて 4 nm までのメソ孔を有する。したがってメソ孔によるイオンの拡散抵抗の軽減によって、mmAC は mAC よりも高い容量維持率を示す。一方で mAC と mAC/Ru (20%)<sub>0x</sub> を比較すると、酸化ルテニウム水和物ナノ粒子との複合化によって 2 A/g 以下の電流密度領域では、体積あたりの容量が増加していることが分かる。しかし容量維持率が mAC と比べて低いのは、酸化ルテニウム水和物ナノ粒子が複合化されたミクロ孔内では、急速充放電領域においてイオンの拡散が阻害されるためであると考えられる。mmAC/Ru (20%)<sub>0x</sub> は mmAC と比較して全電流密度領域において体積あたりの容量が増加しており、急速充放電特性と体積あたりの高容量化が両立していることが分かる。これはメソ孔内ではある程度の酸化ルテニウム水和物ナノ粒子が存在しているにもかかわらず、イオンの拡散が阻害されにくいからである。しかし更に酸化ルテニウム水和物を複合化した mmAC/Ru (30%)<sub>0x</sub> では、低電流密度領域では体積あたりに容量が増加するものの、容量維持率が減少していることが分かる。したがって活性炭細孔内部に複合化された酸化ルテニウム水和物ナノ粒子による容量の増加効果と容量維持率は、活性炭の細孔径に依存することが分かった。酸化ルテニウム水和物の複合化による 0.2 A/g での体積あたりの容量増加量と試料中のルテニウムの量、さらに酸化ルテニウム水和物の理論容量 (760 F/g) から、全ての試料において複合化されたルテニウムの約 50%が酸化還元反応に寄与していることが分かった。図 1 の TEM 写真から明らかなように、活性炭の細孔径に関わらず酸化ルテニウム水和物ナノ粒子の粒径がほぼ同じであることから、いずれの試料においてもナノ粒子の表面から同程度の酸化を受けたものと考えられる。

本研究の当初の目的は、活性炭細孔内部への金属酸化物ナノ粒子の複合化による電気化学キャパシタ電極の高容量化であった。しかし酸化ルテニウム前駆体として用いた錯体の一つであるルテノセン (RuCp<sub>2</sub>) が、活性炭と複合化されることによって分解されずに酸化還元反応に寄与することが分かった。そこで活性炭/RuCp<sub>2</sub> 複合体の構造評価と電気化学キャパシタ電極特性評価を行った。図 4 に、mAC/RuCp<sub>2</sub> (20%) を 50 mV/s の掃引速度で -0.1 から 1.0 V の電位範囲で測定したサイクリックボルタモグラムを示す。図が示すように、1 サイクル目の 0.6~1.0 V に不可逆で大きな酸化電流が確認できる。この電流値はサイクル数の増加とともに減少するが、一方で 0.5 と 0 V 付近に可逆的な酸化還元反応に基づく電流値が増加していることが分かる。この処理を行う前後の試料の X 線吸収スペクトル測定から、細孔内部に存在していた複数の RuCp<sub>2</sub> 分子から成るクラスターが、図 4 の操作によって細孔内で RuCp<sub>2</sub> が分子レベルで高分散されたこ

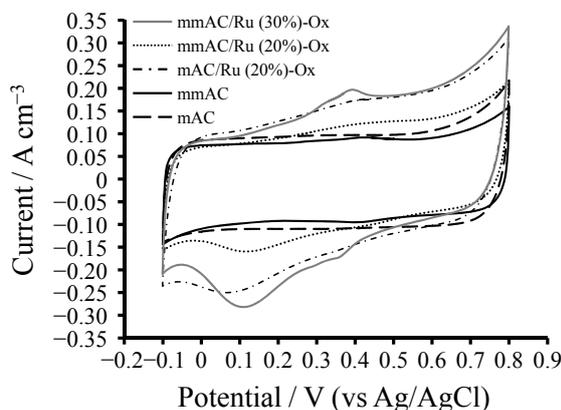


図 2 各試料のサイクリックボルタモグラム (1 mV/s, -0.1~0.8 V, 25 °C で測定)

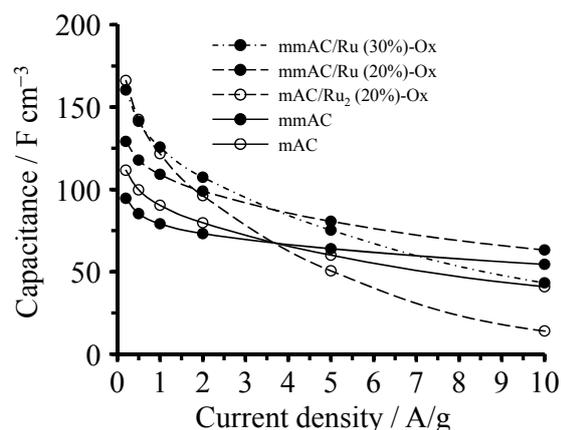


図 3 各試料の定電流充放電測定結果 (-0.1~0.8 V, 25 °C で測定)

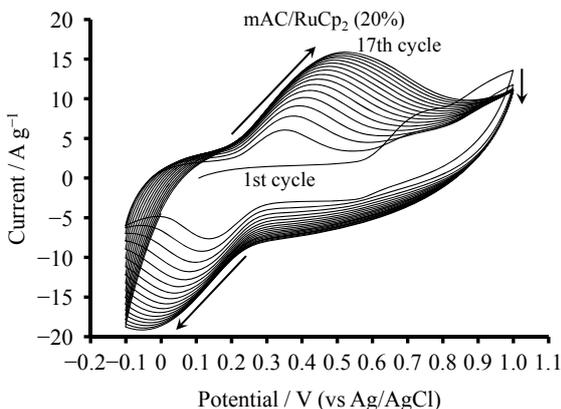


図 4 mAC/RuCp<sub>2</sub> (20%) のサイクリックボルタモグラム (50 mV/s, -0.1~1.0 V, 25 °C で測定)

とが明らかになった。つまり初めはクラスター内の  $\text{RuCp}_2$  分子は隣接しているが、酸化されて生成した不安的なルテノセニウムイオン ( $\text{RuCp}_2^+$ ) 同士が反発し、活性炭の細孔表面に高分散して担持されたことが分かった。この挙動は他の試料において同様の傾向を示し、この操作によって電極特性が向上されるため、全ての試料で同じ操作を施した。この操作を加えた試料は、試料名に-Cを加えて示した。この過程で75~80%のルテノセンが細孔外へ脱着されてしまうことを、処理前後の試料の誘導結合プラズマ発光分光分析から確認した。

図5aに、50 mV/sで行ったmAC/RuCp<sub>2</sub> (20%)サイクリックボルタンメトリー後に行った、-0.1~0.8 Vの範囲で1 mV/sで測定したサイクリックボルタンメトリー (CV) の結果を示す。図4はRuCp<sub>2</sub>の高分散化のために最適化したCVであるのに対し、図5aは比較的遅い掃引速度で測定することにより、活性炭のマイクロ孔内に高分散化したRuCp<sub>2</sub>の酸化還元挙動を確認するための測定である。図5aのボルタモグラムでは、RuCp<sub>2</sub>が複合化された試料はシャープな酸化還元ピークを示し、酸化ルテニウム水和物に典型的なボルタモグラムとは明らかに異なる挙動であることが分かる。これらの試料の定電流充放電測定から、体積当たりの容量を電流密度に対してプロットした結果を図5bに示す。図5bが示すように、RuCp<sub>2</sub>の複合化によって全電流密度領域で体積当たりの容量が増加していることが分かる。0.2 A/gの容量に対する10 A/gにおける容量維持率は、AC/RuCp<sub>2</sub> (50%)-Cを除いてmACの37%よりも高い値を示した(46~52%)。活性炭の充放電機構は電気二重層の形成に基づき、化学反応を伴わない物理過程であるために急速充放電が可能であると一般的に認識されている。一方でRuCp<sub>2</sub>を複合化した試料では、電気二重層の形成に基づく電気二重層容量に加えて、RuCp<sub>2</sub>の酸化還元反応に基づく容量が上乘せされる。マイクロ孔内に高分散したRuCp<sub>2</sub>は少なからず電気二重層の形成を阻害するため、いわばRuCp<sub>2</sub>の複合化によって一部の電気二重層容量が、RuCp<sub>2</sub>の酸化還元反応に基づく容量に置換されたことになる。その結果、体積当たりの容量と容量維持率が増加するという事実は、電気二重層容量よりも酸化還元反応に基づく容量のほうが単位体積当たりの容量が高いことを示している。同時に、物理過程に基づく電気二重層容量よりも、電子の授受を伴う酸化還元反応由来の容量の方が急速充放電特性に優れていることも示している。この理由は、RuCp<sub>2</sub>が導電性の高い炭素表面に高分散したため、極めて大きな接触界面において急速な電子の授受が可能になったためである。この結論は試料のインピーダンス測定の結果からも支持されており、RuCp<sub>2</sub>との複合化によってむしろ電荷移動抵抗が減少していることから裏付けられている。mACには1.5%ほどの酸素が存在し、含酸素官能基による酸化還元反応が起こる。この電荷移動抵抗はインピーダンス測定によって明瞭に検知できるほど大きいにもかかわらず、酸化還元反応由来の容量は小さい。しかしRuCp<sub>2</sub>の複合化によって電荷移動抵抗が小さくなるという事実は、炭素表面とRuCp<sub>2</sub>との電荷移動抵抗が極めて小さいために、含酸素官能基での酸化還元反応が、より抵抗の小さい炭素表面とRuCp<sub>2</sub>との間における酸化還元反応に置き換わったと考えることができる。AC/RuCp<sub>2</sub> (50%)-Cの低い容量維持率は、複合化したRuCp<sub>2</sub>の量が多いためにマイクロ孔内でのイオンの拡散抵抗が増大し、RuCp<sub>2</sub>との電荷移動が遅れを取るためである。この拡散抵抗の増大も、インピーダンスの結果から確認されている。

以上の結果から、活性炭細孔内に酸化ルテニウム水和物ナノ粒子あるいはRuCp<sub>2</sub>を高分散して複合化することで、活性炭粒子の膨張を伴わないために体積当たりの容量を増大させることができる。しかも活性炭細孔内での高分散化は導電性の高い炭素表面との接触面積を極めて高く維持できるため、急速な酸化還元反応が可能になり、電極材料として急速充放電が可能となる。しかし酸化ルテニウム水和物やRuCp<sub>2</sub>の細孔内への過剰な導入は、イオンの拡散抵抗を増大させ、結果的に細孔内での酸化還元反応が遅れをとることになる。したがって酸化還元反応を行う物質の最適な細孔内への導入量を見極めなければならない。最適な導入量は活性炭の細孔径や細孔容積によるものと予想できるが、本研究手法を用いることで、導入量の最適化を容易に行うことができる。

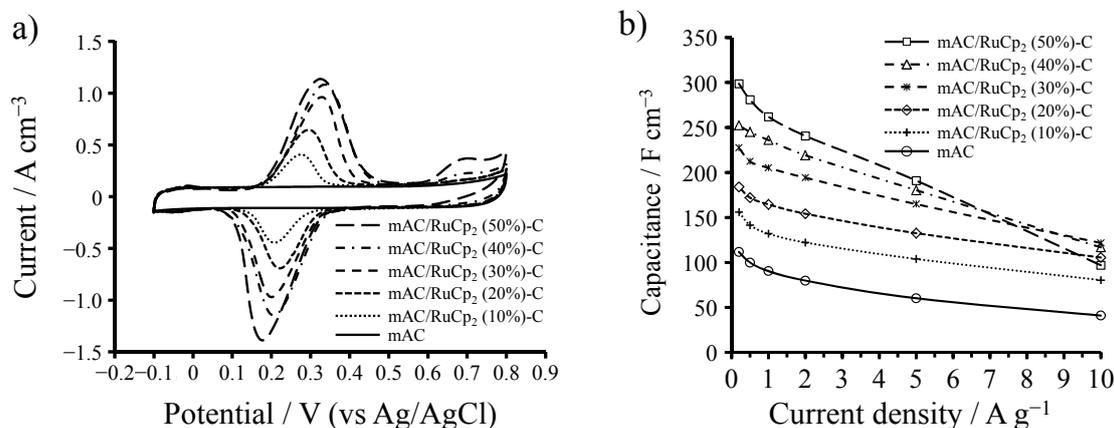


図5 各試料の電気化学測定結果：(a) サイクリックボルタモグラム (1 mV/s, -0.1~0.8V) , (b) 定電流充放電測定結果. いずれも 25 °C で測定.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 3件）

|   |                        |
|---|------------------------|
| 1. 著者名<br>Hiroyuki Itoi, Takeru Ninomiya, Hideyuki Hasegawa, Shintaro Maki, Akihiro Sakakibara, Ryutaro Suzuki, Yuto Kasai, Hiroyuki Iwata, Daiju Matsumura, Mao Ohwada, Hirotomo Nishihara, Yoshimi Ohzawa | 4. 巻<br>124            |
| 2. 論文標題<br>Unusual Redox Behavior of Ruthenocene Confined in the Micropores of Activated Carbon   | 5. 発行年<br>2020年        |
| 3. 雑誌名<br>The Journal of Physical Chemistry C   | 6. 最初と最後の頁<br>In press |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1021/acs.jpcc.0c02965  | 査読の有無<br>有             |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-              |

|  |                           |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名<br>Hiroyuki Itoi, Takashi Tachikawa, Ryutaro Suzuki, Hideyuki Hasegawa, Hiroyuki Iwata, Yoshimi Ohzawa, Atsushi Beniya, Shougo Higashi      | 4. 巻<br>43                |
| 2. 論文標題<br>A dry chemical method for dispersing Ir nanoparticles in the pores of activated carbon and their X ray absorption spectroscopy analysis | 5. 発行年<br>2019年           |
| 3. 雑誌名<br>New Journal of Chemistry   | 6. 最初と最後の頁<br>17927-17931 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1039/c9nj04659c   | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている（また、その予定である）  | 国際共著<br>-                 |

|  |                           |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名<br>Hiroyuki Itoi, Shuka Tazawa, Hideyuki Hasegawa, Yuichiro Tanabe, Hiroyuki Iwata, Yoshimi Ohzawa                                      | 4. 巻<br>9                 |
| 2. 論文標題<br>Study of the pore structure and size effects on the electrochemical capacitor behaviors of porous carbon/quinone derivative hybrids | 5. 発行年<br>2019年           |
| 3. 雑誌名<br>RSC Advances   | 6. 最初と最後の頁<br>27602-27614 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1039/C9RA05225A   | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている（また、その予定である）  | 国際共著<br>-                 |

|   |                           |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名<br>Hiroyuki Itoi, Hiroyuki Muramatsu, Michio Inagaki | 4. 巻<br>9                 |
| 2. 論文標題<br>Constraint spaces in carbon materials            | 5. 発行年<br>2019年           |
| 3. 雑誌名<br>RSC Advances                                      | 6. 最初と最後の頁<br>22823-22840 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1039/C9RA03890F              | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている（また、その予定である）                       | 国際共著<br>-                 |

|  |                       |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名<br>Hiroyuki Itoi  | 4. 巻<br>288           |
| 2. 論文標題<br>Enhancing the performance of electrochemical capacitor electrodes by modifying their carbon nanopores with redox-active materials | 5. 発行年<br>2019年       |
| 3. 雑誌名<br>Tanso  | 6. 最初と最後の頁<br>103-113 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.7209/tanso.2019.103   | 査読の有無<br>有            |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-             |

|   |                       |
|---|-----------------------|
| 1. 著者名<br>Hiroyuki Itoi, Kento Shimomura, Hideyuki Hasegawa, Naoya Nomura, Yuina Ohta, Hiroyuki Iwata, Yasuto Hoshikawa, Yoshimi Ohzawa | 4. 巻<br>6             |
| 2. 論文標題<br>Templated Synthesis of Ultrafine Polyaniline Fibers and their Transfer to Carbon Substrates for Highly Rapid Redox Reactions | 5. 発行年<br>2019年       |
| 3. 雑誌名<br>Advanced Materials Interfaces   | 6. 最初と最後の頁<br>1801799 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1002/admi.201801799  | 査読の有無<br>有            |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-             |

|   |                         |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名<br>Takeharu Yoshii, Kazuki Nakatsuka, Tatsuya Mizobuchi, Yasutaka Kuwahara, Hiroyuki Itoi, Kohsuke Mori, Takashi Kyotani, Hiromi Yamashita | 4. 巻<br>22              |
| 2. 論文標題<br>Effects of Carbon Support Nanostructures on the Reactivity of Ru Nanoparticle Catalyst in Hydrogen Transfer Reaction                   | 5. 発行年<br>2018年         |
| 3. 雑誌名<br>Organic Process Research & Development  | 6. 最初と最後の頁<br>1580-1585 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1021/acs.oprd.8b00207  | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-               |

|  |                           |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名<br>Hirotomo Nishihara, Fumihide Ohtake, Alberto Castro-Muniz, Hiroyuki Itoi, Masashi Ito, Yuichiro Hayasaka, Jun Maruyama, Junko N. Kondo, Ryota Osuga, Takashi Kyotani | 4. 巻<br>6                 |
| 2. 論文標題<br>Enhanced hydrogen chemisorption and spillover on non-metallic nickel subnanoclusters  | 5. 発行年<br>2018年           |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Materials Chemistry A   | 6. 最初と最後の頁<br>12523-12531 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1039/C8TA02561D   | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-                 |

|   |                 |
|---|-----------------|
| 1. 著者名<br>Itoi Hiroyuki, Maki Shintaro, Ninomiya Takeru, Hasegawa Hideyuki, Matsufusa Hidenori, Hayashi Shinya, iwata hiroyuki, Ohzawa Yoshimi                              | 4. 巻<br>-       |
| 2. 論文標題<br>Electrochemical Polymerization of Pyrene and Aniline Exclusively inside the Pores of Activated Carbon for High-Performance Asymmetric Electrochemical Capacitors | 5. 発行年<br>2018年 |
| 3. 雑誌名<br>Nanoscale   | 6. 最初と最後の頁<br>- |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1039/C8NR01529E  | 査読の有無<br>有      |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-       |

|   |                         |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名<br>Itoi Hiroyuki, Hasegawa Hideyuki, Iwata Hiroyuki, Ohzawa Yoshimi  | 4. 巻<br>2               |
| 2. 論文標題<br>Non-polymeric hybridization of a TEMPO derivative with activated carbon for high-energy-density aqueous electrochemical capacitor electrodes | 5. 発行年<br>2018年         |
| 3. 雑誌名<br>Sustainable Energy & Fuels  | 6. 最初と最後の頁<br>558 ~ 565 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1039/C7SE00541E  | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-               |

|  |                         |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名<br>Nishihara Hirotomo, Fujimoto Hiroyuki, Itoi Hiroyuki, Nomura Keita, Tanaka Hideki, Miyahara Minoru T., Bonnaud Patrick A., Miura Ryuji, Suzuki Ai, Miyamoto Naoto, Hatakeyama Nozomu, Miyamoto Akira, Ikeda Kazutaka, Otomo Toshiya, Kyotani Takashi | 4. 巻<br>129             |
| 2. 論文標題<br>Graphene-based ordered framework with a diverse range of carbon polygons formed in zeolite nanochannels   | 5. 発行年<br>2018年         |
| 3. 雑誌名<br>Carbon   | 6. 最初と最後の頁<br>854 ~ 862 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1016/j.carbon.2017.12.055   | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-               |

|  |                         |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名<br>Hirotomo Nishihara, Katsumi Imai, Hiroyuki Itoi, Keita Nomura, Kazuyuki Takai, Takashi Kyotani | 4. 巻<br>280             |
| 2. 論文標題<br>Formation mechanism of zeolite-templated carbons  | 5. 発行年<br>2017年         |
| 3. 雑誌名<br>Tanso  | 6. 最初と最後の頁<br>169 ~ 174 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.7209/tanso.2017.169   | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-               |

〔学会発表〕 計20件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 1件）

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>野村尚也、糸井弘行、長谷川英之、太田結菜、干川康人、大澤善美                  |
| 2. 発表標題<br>活性炭細孔空間内で合成した超微細ポリアニリンナノファイバーの炭素電極への転写とその電気化学特性 |
| 3. 学会等名<br>第46回炭素材料学会年会                                    |
| 4. 発表年<br>2019年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>笠井湧斗、糸井弘行、大澤善美                                 |
| 2. 発表標題<br>活性炭 / メタロセン複合体電極とイオン液体を組み合わせた電気化学キャパシタ電極の充放電特性 |
| 3. 学会等名<br>第46回炭素材料学会年会                                   |
| 4. 発表年<br>2019年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>田辺湧一郎、糸井弘行、田澤秀華、長谷川英之、大澤善美                         |
| 2. 発表標題<br>キノン誘導体を吸着させた多孔質炭素の電気化学キャパシタ電極特性に及ぼす多孔質炭素細孔構造の影響の考察 |
| 3. 学会等名<br>第46回炭素材料学会年会                                       |
| 4. 発表年<br>2019年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>宮地将大、糸井弘行、鈴木隆太郎、紅谷篤史、東相吾、大澤善美              |
| 2. 発表標題<br>活性炭細孔空間に担持したRhナノ粒子による水素スピルオーバーを利用した水素化反応特性 |
| 3. 学会等名<br>第46回炭素材料学会年会                               |
| 4. 発表年<br>2019年                                       |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>鈴木隆太郎、糸井弘行、岩田博之、紅谷篤史、東相吾、大澤善美             |
| 2. 発表標題<br>気相法を用いた活性炭細孔内部への金属ナノ粒子の高分散化とそのX線吸収スペクトル解析 |
| 3. 学会等名<br>第46回炭素材料学会年会                              |
| 4. 発表年<br>2019年                                      |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>糸井 弘行                                |
| 2. 発表標題<br>有機・無機レドックス化合物と炭素材料との複合化による高出力電極材料の開発 |
| 3. 学会等名<br>第128回黒鉛化合物研究会（招待講演）                  |
| 4. 発表年<br>2019年                                 |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>糸井 弘行  |
| 2. 発表標題<br>多孔質炭素のナノ細孔空間を利用したレドックス化合物の高分散化によるエネルギー貯蔵・変換デバイスの高性能化 |
| 3. 学会等名<br>東海化学工業会受賞記念講演会（招待講演）                                 |
| 4. 発表年<br>2019年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>長谷川 英之、糸井 弘行、大澤 善美                          |
| 2. 発表標題<br>有機金属錯体を前駆体として金属酸化物微粒子を高分散させた活性炭の電気化学キャパシタ特性 |
| 3. 学会等名<br>第45回炭素材料学会年会                                |
| 4. 発表年<br>2018年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>増山 貴裕, 田邊 香, 畔柳 修平, 糸井 弘行, 野崎 功一, 干川 康人, 京谷 隆 |
| 2. 発表標題<br>ポーラスガラスのナノ細孔構造と形状を複写したカーボンモノリス電極の作製           |
| 3. 学会等名<br>第45回炭素材料学会年会                                  |
| 4. 発表年<br>2018年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>澤野 晃輝, 糸井 弘行, 大澤 善美                                |
| 2. 発表標題<br>スギ炭素化物への化学気相含浸法を用いた熱分解炭素コーティングと構造評価及びリチウムイオン電池負極特性 |
| 3. 学会等名<br>第45回炭素材料学会年会                                       |
| 4. 発表年<br>2018年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>野村尚也, 長谷川英之, 糸井弘行, 大澤善美        |
| 2. 発表標題<br>有機チタン錯体を利用した活性炭への酸化チタン微粒子の高分散化 |
| 3. 学会等名<br>第45回炭素材料学会年会                   |
| 4. 発表年<br>2018年                           |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>長谷川 達郎, 糸井 弘行, 大澤 善美                      |
| 2. 発表標題<br>パルスCVI法によるリチウムイオン二次電池の電極部材用炭素へのカーボンコーティング |
| 3. 学会等名<br>第45回炭素材料学会年会                              |
| 4. 発表年<br>2018年                                      |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>糸井弘行  |
| 2. 発表標題<br>レドックス化合物と多孔質炭素とのナノレベルでの複合化による電気化学キャパシタ電極の高性能化 |
| 3. 学会等名<br>2018年電気化学会秋季大会・キャパシタ技術委員会第4回研究会（招待講演）         |
| 4. 発表年<br>2018年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>西原洋知、藤本宏之、糸井弘行、野村啓太、田中秀樹、宮原稔、池田一貴、大友季哉、京谷隆 |
| 2. 発表標題<br>計算科学と中性子回折を援用したゼオライト鑄型炭素の構造解析              |
| 3. 学会等名<br>日本学術振興会 産学協力研究委員会 第117委員会                  |
| 4. 発表年<br>2018年                                       |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>糸井 弘行                                |
| 2. 発表標題<br>多孔質炭素細孔内部へのレドックス化合物の高分散化による急速電荷移動の実現 |
| 3. 学会等名<br>炭素素材壁面空間シンポジウム（招待講演）                 |
| 4. 発表年<br>2018年                                 |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Hiroyuki Itoi, Hideyuki Hasegawa, Yoshimi Ohzawa  |
| 2. 発表標題<br>Fine Dispersion of Redox-active Materials inside the Pores of Porous Carbons for High-performance Electrochemical Capacitors through a Solvent-free Preparation |
| 3. 学会等名<br>44th Annual Meeting of The Carbon Society of Japan（招待講演）（国際学会）  |
| 4. 発表年<br>2017年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>恩徳 拓哉, 糸井 弘行, 大澤 善美                           |
| 2. 発表標題<br>化学蒸着法によるリチウムイオン電池用負極炭素材料へのシリコンコーティングと電気化学特性評価 |
| 3. 学会等名<br>第44回炭素材料学会年会                                  |
| 4. 発表年<br>2017年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>澤野 晃輝, 糸井 弘行, 大澤 善美                           |
| 2. 発表標題<br>パルスCVI法を用いた木質炭素材料への熱分解炭素コーティングと構造評価及び電気化学特性評価 |
| 3. 学会等名<br>第44回炭素材料学会年会                                  |
| 4. 発表年<br>2017年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>長谷川 英之, 糸井 弘行, 大澤 善美                       |
| 2. 発表標題<br>TEMPO誘導体を細孔内部に高分散させた活性炭の高性能電気化学キャパシタ電極への応用 |
| 3. 学会等名<br>第44回炭素材料学会年会                               |
| 4. 発表年<br>2017年                                       |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>佐藤 耀介, 糸井 弘行, Mohammed Ouzzine, Alberto Castro Muniz, 西原 洋知, 京谷 隆 |
| 2. 発表標題<br>有機金属錯体からの金属担持多孔質炭素の合成と水素貯蔵への応用                                    |
| 3. 学会等名<br>第44回炭素材料学会年会  |
| 4. 発表年<br>2017年  |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

|  | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
|--|---------------------------|-----------------------|----|