

氏 名	CAMPEON BENOIT DENIS LOUIS		
授与した学位	博 士		
専攻分野の名称	工 学		
学位授与番号	博乙第	4 5 2 2	号
学位授与の日付	2 0 2 0 年 9 月 2 5 日		
学位授与の要件	博士の論文提出者 (学位規則第 4 条第 2 項該当)		
学位論文の題目	Electrochemical synthesis and functionalization of graphene materials for energy storage devices (電気化学的手法によるグラフェンの作製と機能化および蓄電デバイスへの適用)		
論文審査委員	准教授 仁科 勇太	教授 菅 誠治	准教授 狩野 旬
<b>学位論文内容の要旨</b>			
<p>This thesis consists of 7 chapters, and specific objectives and outlines of each chapter are given below.</p> <p>Chapter 1 presents a comprehensive literature review on graphene and its application to Lithium-ion batteries (LIBs). The various graphene synthesis methods are introduced, such as mechanical exfoliation of graphite, chemical vapor deposition, thermal decomposition of SiC, liquid exfoliation of graphite, combined oxidation-exfoliation-reduction of graphite, and electrochemical exfoliation of graphite. Then, functionalization of graphite, graphene, and graphene oxide (GO) are explained, and they are classified into covalent and non-covalent manners. Before introducing the applications of graphene for LIBs, a working principle and historical research background is given to understand why graphene is an attractive solution for next-generation LIBs. Then, a presentation of graphene application of graphene to LIBs is explained and discussed.</p> <p>In Chapter 2, the non-destructive, uniform, and scalable electrochemical functionalization and exfoliation of graphite is studied. This research investigates an original way to produce high-quality GO. This electrochemical production revealed to be easy, fast, eco-friendly, cheap, and scalable. The application of synthesized GO for water filtration, LIBs, and the evaluation of its oxidative properties displayed similar to better results as compared with conventional chemically produced GO.</p> <p>In Chapter 3, preparation of graphene analogs from GO by combining chemical and thermal reduction methods is presented. A series of their properties, such as oxygen content, size, specific surface area, defect, and conductivity, are evaluated. Then, the application of these graphene analogs for high rate performances LIBs is conducted and confronted with their properties. This research enables to draw an efficient graphene synthesis route for graphene-based LIBs half-cells and full-cells.</p> <p>Chapter 4 presents the application of iron nanoparticle (NPs) templates for constructing 3D graphene framework with enhanced performance in sodium-ion batteries (SIBs). In this research, iron NPs on the surface of GO are synthesized in order to avoid the restacking of their layers. After the removal of iron NP by acid treatment, as prepared 3D graphene was applied to LIBs and SIBs and demonstrated superior performances.</p> <p>Chapter 5 presents the main conclusions.</p> <p>Chapters 6 present the list of publications.</p> <p>Chapter 7 present the acknowledgment.</p>			

## 論文審査結果の要旨

炭素材料は、電極材料、触媒、吸着材など広範な用途に用いられ、高機能化のための化学修飾法が検討されている。特に、グラフェンに代表される二次元炭素材料は、高い電気伝導性や強度などの特異的な物性を有しており、次世代材料として期待されているが、その作製法が煩雑であり、量産化や用途開拓の妨げとなっていた。

本学位論文の研究では、入手容易な黒鉛を電気化学的に酸化することにより、安全かつ大量に酸化グラフェンを作製する手法を開発した。従来の電気化学酸化では、電解液として硫酸や過塩素酸が用いられるが、本研究では $\text{HBF}_4$ を電解質とすることで、黒鉛のインターカレーションおよび酸化がスムーズに進行し、非破壊で連続的に酸化グラフェンが得られることを見出した。ボルタンメトリーにより、電気化学反応のメカニズムを解明するとともに、従来法で得られる酸化グラフェンと構造および物性を比較した。また、酸化グラフェンを様々な方法で還元し、グラフェンに類する物質を複数作製し、それらのリチウムイオン電池およびナトリウムイオン電池の負極としての特性を評価した。その結果、マイクロ波を照射する還元法や、鉄微粒子を層間に導入して還元した後に酸処理により鉄を除去する方法を開発し、電極として優れた性能を発揮することを明らかにした。電極としての評価は、半電池のみならず全電池を組み上げて実施している。

以上、本研究は酸化グラフェンを作製するための新規電解質の開発や、酸化グラフェンを還元する新手法を開発したものであり、博士（工学）の学位に値する。