パルススプレーコーティングシステムを用いた 電気二重層キャパシタの分極性電極作製

籾木 祟^{a)}・田島 大輔^{b)}・林 則行^{c)}

Preparation of Polarized Electrode of an Electric Double Layer Capacitor using a Spray Pyrolysis Technique

Takashi MOMIKI, Daisuke TASHIMA, Noriyuki HAYASHI

Abstract

As the purpose of this research, preparation method of polarized electrode was carried out using a spray pyrolysis technique. The solid phase is precipitated from the liquid phase on the heated substrate, which is one of the chemical methods for preparing, thin films. This method is based on the principle of the atomizer, when the spray towards the substrate or space that is overheating of a material solution, the chemical reaction and thermal decomposition of the solute and evaporation of the solvent occurs, thin film was formed. Polarized electrodes were prepared as substrate collector electrode made of aluminum by varying the conditions spray coating such as the number of times applied with a coating solvent mixed with activated carbon, Ketjenblack, and the Polytetrafluoroethylene. Polarized electrodes prepared by spray pyrolysis method have been able to confirm that the conductive material has been evenly spread extensively. In addition, the charge-discharge test was significantly improved in performance as compared to a rolling process in general.

Keywords: Electric double layer capacitor, Polarized Electrode, Spray Pyrolysis Technique

1. はじめに

人類の文明はエネルギーを消費し発展し続けたが、その 反面それは地球を汚染する歴史でもあった。45 年後には 世界人口が 90 億人に達すると予測されている今日、地球 温暖化による危険信号が世界中で灯っている。北極の氷は この40年間に40%縮小、今後50~70年で北極は消滅し、 水位は 6m 上昇する。この4半世紀の間に発生した鳥イン フルエンザや SARS といった奇病、猛威を振るったハリケ ーン・カトリーナは、偶然起きたものではない⁽¹⁾。このた め、節約や省エネをすることで、エネルギー消費を最小限 にしながら、化石燃料やウランなどの再生不能資源利用か ら太陽光や太陽熱、風力エネルギーなどの再生可能資源利 用型に転換することを急がねばならない。図 1.2 に示すよ うに、世界の各エネルギー資源確認可採埋蔵量に対する可 採年数は、石油 54年、石炭 112年、天然ガス 64年と見込 まれ化石燃料の大量消費に伴うエネルギー資源の枯渇問 題への対策は急務となっている。そこで、エネルギー問題 を解決する手段として、無公害で無尽蔵にある太陽光エネ ルギーの本格的な利用が強く望まれている(2)(3)。日本国内 においては、これに加えて 2011 年 3 月 11 日に発生した

a)電気電子工学専攻 大学院生 b)IR 推進機構 IRO 特任助教 c)工学教育研究部 教授

東北地方太平洋沖地震(東日本大震災)を機に、太陽光発電 と電力貯蔵デバイスを組み合わせて日常的な自家消費を 目的とした住宅用蓄電システムの市場が日本国内におい ても本格的に立ち上がり、需要が拡大している。太陽光発 電に組み合わせる電力貯蔵デバイスとして、現在は化学反 応を伴う鉛蓄電池、リチウムイオン二次電池などの化学電 池が多く利用されているが、コンシューマ向け製品である 住宅用蓄電システムの電力貯蔵デバイスに要求される性 能として、安全性の高さ、交換頻度・メンテンナンスの低 減が挙げられ、これらの化学電池は充放電時の化学変化に より劣化が生じ、サイクル寿命が短いという欠点を有する。 そこで、新たな電力貯蔵デバイスとして、化学変化を伴わ ない物理電池である電気二重層キャパシタの二次電池と しての利用が注目されている。電気二重層キャパシタの特 徴として急速大電流充放電が可能であり、サイクル寿命が 長いなどの、化学反応を伴う二次電池には無い利点を有し ている。また、CdやPbといった環境負荷の大きい有害物 質を含んでおらず、Li のような産出国が限られた希少金 属も含まないといった利点もある⁽⁴⁾。しかし、実際に使 用されている電気二重層キャパシタは使用条件や環境に より劣化が報告され、また、エネルギー密度が主流の化 学電池に比べて 2 桁程低く実用化への問題などがある。 電気二重層キャパシタの性能の大半は分極性電極と呼ば れる活性炭を主成分とした電極により決まり、未だ最適

な製法は確立されていない。分極性電極の作製法は電気 二重層キャパシタの性能を左右する不安定要素であり、 盛んに研究が行われている。そこで本研究では、新たな 作製法として高密度であり電解液含浸性に優れる分極性 電極作製に適するとされるスプレー法に着目し分極性電 極の高密度化、低抵抗化を目的とした分極性電極作製の 検討を行った。塗布用溶媒の作成過程において、超音波 ホモジナイザーを用いた活性炭、導電性材料、バインダ ーの破砕・拡散を行いその効果を溶媒粘度や、活性炭の 比表面積等から評価した。その後、パルススプレーコー ティングシステムを用いて作製した分極性電極を使って 電解液に非水系である有機系電解液を用いた電気二重層 キャパシタを組み、その静電容量と内部抵抗を測定した。 また、試料表面の原子の結合性の変化や、結晶性の解析 を行った。これらの結果から、電気二重層キャパシタの 分極性電極作製におけるスプレー法の有用性について評 価を行った。

分極性電極の構成材料 2.

電気二重層キャパシタに用いられる分極性電極は、細孔 構造が発達した活性炭や活性炭繊維と高比表面積で導電 回路の形成に寄与する導電性材料、これらをつなぎ合わせ るバインダーとしての役割を果たす材料から成り立って いる。本実験ではこれらの材料に、800℃にて水蒸気賦活 処理を行った比表面積2000m²/g程度の活性炭(宝泉株式会 社製)を用いた。導電性材料にはケッチェンブラック(KB: Ketjenblack) EC-600JD を用いた。また、バインダーとして ポリテトラフルオロエチレン(PTFE: Polytetrafloroethylene) を用いた。

3. 塗布溶媒の作製検討

3.1 超音波ホモジナイザー

スプレー塗布溶媒の作製過程において、活性炭、KB、 PTFE を均一に混合また、分散させるために超音波ホモジ ナイザーを用いた破砕・拡散処理を施した。超音波ホモジ ナイザーを用いることで溶液中を超音波が伝搬するとき にキャビティと呼ばれる空洞が形成されいずれ圧壊する。



図1. 超音波ホモジナイザー

この時、溶媒中に高温・高圧・高速流動の極限状態が数百 μmの領域にμ秒の寿命で生じる⁽⁵⁾。ホモジナイザーには 図 1 に示す AZ ONE 製ビオラモ超音波ホモジナイザー sonicstar 85 を用いて行った。

3.2 実験方法

本実験では、電気二重層キャパシタの分極性電極の構成 材料として2節で述べた活性炭、KB、PTFEを用いている。 これらの材料内に付着している水分を極力取り除くため、 日陶科学株式会社製の卓上小型電気炉(NHK-170)を用い て 110℃で 24 時間以上加熱した。分極性電極の配合量は PTFEの量を分極性電極の全重量に対して10wt%一定とし、 活性炭を 80wt%、KB を 10wt%とした。溶媒には粘度が比 較的に高く、蒸留水よりも低温で気化する 2-プロパノール を用いた。破砕・拡散処理は2-プロパノールに、活性炭と KBのみを投入した溶媒に対して超音波ホモジナイザーの 出力を 55W 一定とし 5 分間の処理を 3 回に分け間欠処理 を行った (計 15 分間)。処理中は溶媒温度が上昇するのを 防ぐため、AZ ONE 製クールスターラー CSB-900N series-2 を用いて冷却し、溶媒温度を0℃に制御した。バインダー が溶媒中で凝集するのを防ぐために、1回目の破砕・拡散 処理が終わった後に PTFE を投入した。実験パラメータを まとめたものを表1に示す。溶媒作製後、超音波ホモジナ イザーの効果を分析するべく、以下の各種分析を行った。 溶媒の粘度をエー・アンド・ディ製音叉型振動式粘度計 SV-10A を用いて測定した。また、活性炭への影響を観る ため、粒径を日立製作所製走査型電子顕微鏡(SEM: Scanning electron microscope, S-5500)を用いて撮影し、比表 面積及び細孔径分布を島津製作所製自動比表面積/細孔径 分布測定装置トライスター3000 を用いて評価した。分極 電極作製にはこの実験パラメータと同条件下のスプレー 塗布溶媒を用いた。

表1. 実験パラメータ

Solvent	2-propanol
Carbon material (A)	Activated cabon
Conducting material (B)	KB (Ketjenblack)
Binder (C)	PTFE (Polytetrafloroethylene)
Compounding ratio (A:B:C)	8.0:1.0:1.0
Output of homogenizer [w]	55
Processing time [min]	15
Solvent temperrature [°C]	0

3.3 音叉型振動式粘度計を用いた評価

破砕・拡散処理を施したスプレー塗布溶媒における処理 前後の粘度変化を分析するため、音叉型振動式粘度計を用 いて測定を行った。測定中はクールスターラーを用いて溶 媒温度を 25℃ 一定に制御し行った。超音波ホモジナイザ ーにより破砕・拡散処理を施したスプレー塗布溶媒におけ る処理前後の粘度変化の分析結果を表2に示す。処理前の 粘度は 9.0mPa·s で、処理後の粘度は 46.7mPa·s となり超 音波ホモジナイザーを用いて破砕・拡散処理を施すことで、 約 5 倍程度も溶媒粘度が高くなることを確認した(水温 25℃における純水の粘度は 0.89mPa·s である)。

表2. 破砕・拡散処理前後の粘度測定結果

	Untreated	Treated
Solvent viscosity (mPa • s)	9.0	46.7

また、超音波ホモジナイザーにより破砕・拡散処理を施 す前後のSampleを図2に示す。超音波ホモジナイザーに よる破砕・拡散処理を施していないものは溶媒と溶質が分 離してしまっているのに対して、破砕・拡散処理を施した ものは溶媒表面から中央が盛り上がるほどに状態が変化 しており液体に粒子が混ざり込んだスラリー状になって いることが目視による観察によってわかる。これは破砕・ 拡散処理により溶媒中で発生したキャビテーションによ って、炭素材料が破砕され更に低粒子化し、また PTFE が 溶媒中で細かく分散したことによる影響である考えられ る⁽⁵⁾⁽⁶⁾。



(a) Untreated(b) Treated図 2. 破砕・拡散処理前後のスプレー塗布溶媒

3.4 走査型電子顕微鏡を用いた評価

破砕・拡散処理が活性炭に及ぼす影響を分析するために、 走査型電子顕微鏡(SEM:S-5500)を用いて処理前後の活性 炭粒径の観察を行った。加速電圧に 20.0kV を印加して観 察を行った。超音波ホモジナイザーにより破砕・拡散処理 を施した活性炭の処理前後の SEM による観察像を図3に 示す。まずこれらの観察像より、本実験で使用した宝泉株 式会社製の活性炭の粒径は、1µm 以下の非常に小さいもの から約40um程度の比較的に大きなものまでが含まれてお り、バラつきがあることが分かる。超音波ホモジナイザー による破砕・拡散処理を施す前の活性炭の観察像において 粒径が約40µm程度の粒子が多く存在しているのに対して、 破砕・拡散処理を施した活性炭の観察像では最も大きな粒 子でも約 20µm 程度で、ほとんどの粒子が約 5~10µm 程度 の大きさに粉砕されていることが見て取れる。これは溶液 中を超音波が伝搬するときに発生するキャビティが圧壊 する際に発生した剪断応力によるものであると推察でき る。



(a) Untreated



(b) Treated 図 3. 破砕・拡散処理前後の活性炭 SEM 観察像

3.5 比表面積/細孔径分布測定装置を用いた評価

3.4 節における走査型電子顕微鏡を用いた実験結果より、 活性炭の破砕による低粒子化を確認できたが、活性炭の破 砕によって電気二重層キャパシタの性能向上に大きく関 わる炭素材料の比表面積や細孔構造が変化している可能 性がある。このため、本実験では自動比表面積/細孔径分 布測定装置トライスター3000 を用いて処理前後の活性炭 の比表面積、メソ孔容積、ミクロ孔容積の測定を行った。 77K における窒素吸着等温線を測定し、得られた窒素吸着 等温線から比表面積及びメソ孔容積、ミクロ孔容積を BET(Brunauer, Emmet, Teller) 法、 BJH(Brrett, Joyner, Halenda)法、t-plot 法により求めた。超音波ホモジナイザー により破砕・拡散処理を施した活性炭の処理前後の活性炭 の窒素吸着等温線を図4に示し、表3に比表面積、ミクロ 孔容積、メソ孔容積を示す。また、図5及び図6にミクロ 孔細孔径分布、メソ孔細孔径分布を示す。図4より、本実 験で使用した宝泉株式会社製の活性炭の窒素吸着等温線 は国際純正・応用化学連合(IUPAC: International union of pure and applied chemistry)の定義からIV型のメソ孔発達型 であることが推測される。また、構造は破砕・拡散処理前 後で変化せずしっかりとメソ孔発達型の細孔構造を保っ ている。表3から、超音波ホモジナイザーを用いて破砕・ 拡散処理を施すことで活性炭の比表面積が 381m²/g も増 加する結果が得られた。これにより、キャビテーションに より活性炭の破砕が確実に行われたことが推察できる。ま た、図5、図6からミクロ孔容積、メソ孔容積ともに増加 していることから、キャビテーションによる破砕効果は活 性炭の粒径の大きさに関係なく有効であることが分かっ た。



表 3. 破砕・拡散処理前後の比表面積、細孔孔容積

G 1	BET surface	Micropore	Mesopore
Sample	area [m ² /g]	volume [cm ³ /g]	volume [cm ³ /g]
Untreated	1766	0.531	1.761
Treated	2147	0.623	2.129



4. スプレー法を用いた分極性電極の作製検討

4.1 スプレー塗布法

スプレー法は原料溶液を加熱した基板に向けて霧吹き 状に噴霧し、溶媒の蒸発により液相から固相を析出させる ことで薄膜層を形成する手法である。スプレー法は古くか ら行われている作製法であり、他の積層法に比べて簡便で 設備コストも安いことから多分野で応用されている。作製 には、ノードソン製パルススプレー式溶媒塗布装置 (1B-1363)を用いて行った。パルススプレー式の特徴と して、基板に対してパルス状に溶媒を噴霧するため凹凸面 への均一コーティングや細かな膜厚の制御が可能なこと が挙げられる。この概要を図7に示す。



図7. パルススプレー式の概要

4.2 実験方法

本実験では、分極性電極の作製に高密度であり、電解液 含浸性に優れる電極作製に適するとされるスプレー法を 用いて行った。塗布溶媒には、3節にて PTFE の量を分極 性電極の全重量に対して 10wt%一定とし活性炭を 80wt%、 KBを 10wt%として配合し、溶媒に 2-プロパノールを用い て作製したものを用いた。厚さ 30µm のアルミニウム集電 極を基板に温度を約 50℃まで加熱し直径 15mm の金属製 マスクを介してスプレー塗布し、塗布回数を変化させて実 験を行った。スプレー条件をまとめたものを表4に示す。

表 4. スプレー条件

Nitrogen secondary pressure [MPa]	0.6
Ink pressure [KPa]	4
Atomization air pressure [MPa]	0.15
Swirl pressure [MPa]	0.15
Substrate	Aluminum
Substrate temperature [°C]	50

分極性電極の作製後、各種測定及び、分析を行った。表面及び、断面の観察にはSEM (S-4100及びS-5500)を用いた。試料の結晶性を観るべくX線回折装置(XRD:X-Ray Diffraction)にて平行法による測定を行った。試料表面の化学結合状態の測定には、X線光電子分光装置(XPS:X-ray Photoelectron Spectroscopy)を用いて行った。また、北斗電工株式会社製の充放電試験装置HJ1001SD8を用いた充放電試験により、静電容量及び、内部抵抗を求めた。静電容

73

量及び内部抵抗の算出はエネルギー換算法及び直流抵抗 法を用いた。

4.3 分極性電極の表面及び、断面の評価

スプレー法を用いて作製した電気二重層キャパシタの 分極性電極の表面及び、断面の観察を行った。試料表面の 観察を、3.4節で用いた走査型電子顕微鏡(S-5500)により行 い、試料断面の観察を日立製作所製走査型電子顕微鏡 (S-4100)を用いて行った。どちらも、加速電圧に20.0kVを 印加して観察を行った。分極性電極の表面観察像を図8に 示す。また、一般的な製法に一つである圧粉成形法にて作 製した分極性電極の表面観察像を図9に示す。粒径が約 5~15 µ m程度の粒子が活性炭であり、その表面にスポンジ 状に粒子が凝集しているのが導電性材料のKBである。圧 粉成形法にて作製した分極性電極の表面観察像では、活性 炭の表面にほとんどKBが観られず疎らにしか存在しない ことが分かる。これに対して、スプレー法にて作製した分 極性電極の表面ではKBが一部に偏ることなく、表面全体 に均一に分散していることが分かる。



図8. Spray (Surface)



図9. Hot Press (Surface)

また、図10にスプレー法にて作製した分極性電極の断面 観察像を示す。図10において点線から下が基板のアルミニ ウム集電極であり、その上に堆積している黒い薄膜状のも のが分極性電極である。この観察像よりアルミニウム集電 極と分極性電極の界面に空洞はなく、集電極表面の凹凸に 合わせてしっかりと分極性電極が形成されていることが 分かる。また、分極性電極の断面にも大きな孔やクラック は観られず、非常に高密度に形成されていることが分かっ た。



図10. Spray (Cross Section)

4.4 X線回折装置を用いた評価

スプレー法にて作製した電気二重層キャパシタの分極 性電極において積層回数を変化させ、結晶構造分析を行っ た。実験にはスペクトリス製X'Part PRO MRDを使用し、 平行法を用いた薄膜におけるθ-2θの測定を行った。X線出 力条件は、電源電圧45kV、電流40mA、測定開始角度5.0deg、 測定終了角度90.0deg、サンプリングステップ角度 0.0251degとした。水分を除去するため、電気炉にて110℃ で24時間乾燥を行った。図11にスプレー法にて作製した電 気二重層キャパシタの分極性電極のXRDプロファイルを 示す。図11より、作製過程で積層回数を変化させてもXRD プロファイルは変化していないことが分かる。低角側のブ ロードなピークが炭素材料のピークであり、そのほかの鋭 いピークが基板であるアルミニウム集電極によるもので あると考えられる。各ピーク強度に差異があるが、ピーク 位置に変化はないことが分かる。これは、試料に照射する X線の角度などにより、大きくずれが生じるためである。 このことから、作製過程で積層回数を変化させることによ り生じる基板温度の変化は結晶性に影響を与えないこと が分かった。



4.5 X線光電子分光分析装置を用いた評価

スプレー法にて作製した電気二重層キャパシタの分極 性電極において積層回数を変化させ、試料表面の元素及び、 化学結合状態の測定を行った。測定には島津製作所製X線 光電子分光分析装置KRATOS AXIS-HSを用いた。励起用X 線銃の設定は、電圧15kV、電流10mA、アノード源をMgK *α*とした。水分を除去するため、電気炉にて150℃で24時 間乾燥を行った後に測定を行った。図12にスプレー法にて 作製した電気二重層キャパシタの分極性電極のワイドス ペクトルを示す。図12より、分極性電極の炭素に由来する C1s、CKLLのピークが観測された。また、バインダーで あるPTFEの主成分であるフッ素由来のF1sが存在してい る。導電性材料であるKBは結晶の末端が活性であるため、 酸素と結合しやすい状態にあるが、酸素由来のピークは検 出されなかった。また、積層回数を変えてもスペクトルの 強度及び、ピーク位置に変化がないことが分かる。これよ り、作製過程で積層回数を変化させることにより生じる基 板温度の変化は試料表面の化学結合状態に影響を与えな いことが分かった。



4.6 静電容量、内部抵抗の評価

スプレー法にて作製した分極性電極を用いて電気二重 層キャパシタセルを組んで充放電試験を行い静電容量及 び、内部抵抗の評価を行った。図13に本実験で用いた試験 セル内部の構造を示す。



図13. 試験セルの内部構造 スプレー法にて作製した分極性電極を用い、集電極とリ

ード線にはアルミニウム、セパレータにはセルロースを用 いた。電解液には有機系電解液である、テトラエチルアン モニウムテトラフルオロボレート(TEA-BF4)を使用した。 TEA-BF4はカチオンにテトラエチルアンモニウムイオン (TEA⁺)を、アニオンにテトラフルオロボレート(BF4⁻)から 成っている。これら電気二重層キャパシタセル構成材料の 写真を図14にまとめる。



(a). スプレー法により作製した分極性電極



(b). セパレータ
(c). 有機系電解液
図14. 電気二重層キャパシタセル構成材料

充放電試験には、北斗電工株式会社製の充放電試験装置 HJ1001SD8を使用した。試験中は、福島工業株式会社製低 温インキュベータ(FMU-0531)を用いて、20℃に温度を保 持した。充放電試験の測定条件として、電極1g当たりの電 流値が0.125A、0.25A、0.5A、0.75A、1.0A、1.5A、3.0Aと なるように充放電電流の値を変化させ、充放電時間180s、 休止時間30sとし、充電電圧を2.5Vに設定した。表5及び、 図15にスプレー法にて作製した分極性電極を用いた電気 二重層キャパシタセルの静電容量及び、内部抵抗の評価結 果を示す。

表5. 電気二重層キャパシタセルの性能評価

Current density [mA/g]	Capacitance [F/g]	Internal resistance $[\Omega]$
125	47.02	16.56
250	47.15	15.25
500	47.19	14.21
750	47.59	13.73
1000	48.05	11.31
1500	48.89	11.31
3000	51.73	11.22

スプレー法にて作製した分極性電極を用いることで、内 部抵抗が約10~15Ωであり約50F/gと高い静電容量を得る ことができた。同条件下において圧粉成形法で作製した分 極性電極を用いた電気二重層キャパシタセルの静電容量 は20~30F/g程度で、内部抵抗は約25Ω前後である。これよ り、電気二重層キャパシタの分極性電極作製法にスプレー 法を用いることで性能を向上を確認した。



5. まとめ

本研究では、新たな作製法として高密度であり電解液含 浸性に優れる分極性電極作製に適するとされるスプレー 法に着目し分極性電極の高密度化、低抵抗化を目的とした 分極性電極作製の検討を行った。活性炭、KB、PTFEを均 ーに混合また、分散させるためにスプレー塗布溶媒作製過 程に超音波ホモジナイザーを用いた破砕・拡散処理を施す ことで、キャビテーションにより活性炭の低粒子化及び、 バインダーの拡散性を促進させることで、液体に粒子が混 ざりこんだスラリー状に変質することが確認できた。また、 スプレー法により電気二重層キャパシタの分極性電極を 作製することで、高密度であり導電性材料の拡散性に優れ た電極を得ることができ、これを用いた電気二重層キャパ シタセルにおいて、高い静電容量を得ることができ性能向 上を確認した。

- (1) 超音波ホモジナイザーを用いて破砕・拡散処理を施す ことで、約5倍程度も溶媒粘度が高く上昇することを 確認した(水温25℃における純水の粘度は0.89 mPa・s である)。破砕・拡散処理により溶媒中で発生したキ ャビテーションによって、炭素材料が破砕され更に低 粒子化し、またPTFEが溶媒中で細かく分散したこと によって、液体に粒子が混ざり込んだスラリー状に変 質することを確認した。
- (2) 溶液中を超音波が伝搬するときに発生するキャビティ(空洞)が圧壊する際に発生した剪断応力による活性炭の破砕を確認した。構造は処理前後で変化せずしっかりとメソ孔発達型の細孔構造を保っており、比表面積が増加する結果が得られた。ミクロ孔容積、メソ孔容積ともに増加していることから、キャビテーションによる破砕効果は活性炭の粒径の大きさに関係なく有効であることが分かった。
- (3) スプレー法にて作製した分極性電極の表面ではKBが

一部に偏ることなく、表面全体に均一に分散している ことを確認。また、分極性電極断面にも大きな空孔や クラックは観られず、非常に高密度に形成されている ことが分かった。作製過程で積層回数を変化させるこ とにより生じる基板温度の変化は結晶性及び、試料表 面の化学結合状態に影響を与えないことが分かった。

(4) スプレー法にて作製した分極性電極を用いることで、 内部抵抗が約10~15Ωであり約50F/gと高い静電容量 を持った電気二重層キャパシタセルを得ることがで きた。電気二重層キャパシタの分極性電極作製法にス プレー法を用いることで性能を向上させることがで きることを確認した。

謝辞

本研究は文部科学省からのテニュア・トラック普及定着 事業及び、宮崎大学からの戦略重点経費(題目:エネルギー 高度利用を目指した燃料電池及び蓄電デバイスとしての 電気二重層キャパシタの開発、代表者:田島 大輔)により 行われたことを記し、関係者に謝意を表します。

参考文献

- 1) アル ゴア: 不都合な真実, ランダムハウス講談社, p.1, 2007.
- 2) BP public limited company: Statistical review of world energy 2012, p.6, p.20, p.30, 2012.
- OECD, International atomic energy agency: Uranium 2011, p.18, p.60, 2012.
- 松田好睛、逢坂哲彌、佐藤祐一: キャパシタ便覧, 丸善株式会社,p.222, 2009.
- Naoki Omura, Yuji Hotta, Kimiyasu Sato, Yoshiaki Kinemushi, Shoichi Kume, and Koji Watari: "Planetary homogenizing of Al₂O₃ slurries", Journal of the Ceramic Society of Japan, Vol.113, pp.753-757, 2005.
- Keiji Yasuda: "Decomposition of chemical compounds by ultrasound and development of sonochemical reactor", The Chemical Times, Vol.212, pp.2-7, 2009.