

博士論文審査の結果の要旨

氏名	Kang Cheonsoo
学位名	博士 (工学)
学位番号	甲 第 729 号
論文題目	ハイブリッド構造を有するナノカーボン材料の構造及び物性解析
論文審査委員	主査 林 卓哉 橋本 佳男 村松 寛之 竹内 健司 金 隆岩 (韓国全南大学)

(博士論文審査の結果の要旨)

本博士論文はナノカーボンのハイブリッド化による物性への影響について検討を行っている。

ナノカーボン材料は炭素原子が様々な形の結合を形成できるため、多様な同素体を合成でき、興味深い物理化学特性を実現できる。しかし、一次元炭素鎖(LCCs)のように単体では存在し難いもの、カーボンナノチューブのように構造制御が未だ困難であるものなど、予測される特性を十分に発揮するには超えるべき壁が存在している。

そこで各々のナノ炭素材料をハイブリッド化させることで優れた特性を引出し、その物性を実験、理論計算の両面から解明することを試みた。同じ組み合わせのハイブリッド構造体でも合成法によって構造や特性が大きく変化することから、材料の組み合わせだけでなく、合成方法等によってもハイブリッド構造体の可能性は更に広がる。

LCCs は sp 混成軌道で構成される炭素同素体であり、理想の一次元構造をしていることから、次世代の分子デバイスへの応用が期待されている。しかし LCCs は化学的反応性が非常に高く、**free-standing** な状態で存在することが困難である。LCCs を安定化させる一つの方法として、CNTs の内部に閉じ込める方法があげられるが、LCCs の内包率は低く、また、LCCs を内包する CNTs (LCCs@CNTs) に対する詳細な構造・物性解析もなされていない。従って、当該分野の発展のためには CNTs 内部への LCCs の成長メカニズムやその安定性、更には CNTs と LCCs 間の相互作用等を明らかにする必要があった。本研究では、LCCs@多層 CNTs に対して高温熱処理及びホウ素ドーピングを施すことにより、LCCs の構造安定性が LCCs を内包している CNTs の構造安定性と密接な関係があることを明らかにした。更にそれぞれの試料に対して電気抵抗率の測定を行った結果、CNTs 内部に LCCs が挿入されると、相互作用により LCCs@CNTs 系全体の電気伝導性が向上することを初めて実験的に示した。

これまで、実験的に LCCs を内包するカーボンナノチューブ (CNTs) が合成され、Raman 分光分析及び TEM により構造解析がされてきた。しかしながらその電気伝導特性に関しては理論的にも実験的にもいまだ解明はされていない。本研究では、Density Functional Theory 法と the non-equilibrium Green's function 法を用いて状態密度や量子化コンダクタンスを理論計算した。その結果、チューブ径が小さいと LCCs との相互作用が異なり、電荷移動により金属から半導体、半導体から金属的性質へと電気伝導特性が大きく変化した。一方チューブ径が大きくなると相互作用が弱く、それぞれの電気伝導特性を重ね合わせた結果となることを見出した。

フレキシブルデバイスが注目されるようになり、エネルギーデバイスもフレキシブル化が進められている。そこで本研究では、DWCNTs と活性炭をハイブリッド化させることで高容量かつ高レート特性を有する柔軟な電極の作製を試みた。その結果、活性炭中に DWCNTs が均一に分散しており、DWCNTs はフィラーとして電気伝導性と電極の強度に、活性炭は大きな比表面積を利用して高容量に寄与していることがわかった。CV 測定により電気二重層キャパシタ特性を評価したところ、電圧掃引速度 100 mV/s における重量比容量が 141.5 F/g と高容量を示し、二層 CNTs/活性炭ハイブリッド構造の有用性を示した。

以上より本論文では一次元炭素鎖のカーボンナノチューブへの内包が物性に及ぼす効果や活性炭とカーボンナノチューブの複合による電気化学特性への効果に関する基礎的かつ先導的な知見

を得ており、意義深い。申請学位論文は審査付き原著論文 3 編(うち筆頭著者 2 編)に基づいてまとめられている。本論文の学術的新規性及び当該分野への貢献度は高く、本研究の成果はナノカーボン科学の基礎と応用に貢献するもので、審査委員全員一致で博士の学位に値するものと判断した。

(公表主要論文名)

- Cheon-Soo Kang, Yong-Il Ko, Kazunori Fujisawa, Taiki Yokokawa, Jin Hee Kim, Jong Hun Han, Jae-Hyung Wee, Yoong Ahm Kim, Hiroyuki Muramatsu, Takuya Hayashi, “Hybridized double-walled carbon nanotubes and activated carbon as free-standing electrode for flexible supercapacitor applications” (CARBON LETTERS, in press)
- Tomohiro Tojo, Cheon Soo Kang, Takuya Hayashi, Yoong Ahm Kim, “Electronic Transport Properties of Linear Carbon Chains Encapsulated Inside Single Walled Carbon Nanotubes” CARBON LETTERS, Vol. 28, pp. 60-65 (2018)
- Cheon-Soo Kang, Kazunori Fujisawa, Yong-Il Ko, Hiroyuki Muramatsu, Takuya Hayashi, Morinobu Endo, Hee Jou Kim, Daun Lim, Jin Hee Kim, Mauricio Terrones, Mildred S. Dresselhaus, Yoong Ahm Kim, “Linear Carbon Chains inside Multi-Walled Carbon Nanotubes: Growth Mechanism, Thermal Stability and Electrical Properties” CARBON, Vol. 107, pp. 217-224 (2016)