

# 博士論文の内容の要旨

氏名	KANG CHEONSOO
学位名	博士（工学）
学位授与年月日	2020年3月20日
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

(博士論文の内容の要旨)

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、0次元から3次元まで多様な同素体を合成でき、バリエーションに富んだ諸特性を実現できる。例えば、カーボンナノチューブ (CNT)や一次元炭素鎖 (LCC)は半導体から金属までの電子状態制御を、グラフェンのような二次元構造にすることで優れたキャリア移動度を実現できる。このように、多様な構造や優れた諸特性を有するナノカーボン材料は、我々の生活に利益をもたらすことを期待できる。しかし、現状ナノカーボン材料の実現には各々の課題点を有している。例えば、CNTは単一電気特性を持たせた合成が困難であり、グラフェンは単層でかつ大面積合成が困難である。LCCに関しては安定性が欠けているためそもそもの構造・物性解析が進展していない状況である。

各々の材料の課題点を乗り越え、更なる特性を引出すための一つの案としては、二つ以上の構造体を組み合わせ、ハイブリッド構造を形成することが挙げられる。実際、ナノカーボン材料をハイブリッド化させ、単一のナノカーボン材料の有する課題点を解決し、更に良い特性を引出した研究結果は多い。また、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異なることから、材料の組み合わせだけでなく、合成方法等によっても可能性は更に広がる。本論文では、ハイブリッド構造を有するナノカーボン材料に対し構造や物性を解析すると共に、互いに異なる構成要素の相互作用、複合による効果に着目して研究を行った。以下に、本論文の構成と要約を示す。

**第1章** ハイブリッド構造を有するナノカーボン材料に関する研究背景と研究目的を述べた。

**第2章** ナノカーボン材料の概要及び本研究で主に扱う構造解析法を述べた。

**第3章** ナノカーボン材料、特に本論文で扱う CNT と LCC の合成法を述べた。

**第4章** LCC は *sp* 混成軌道で構成される炭素同素体であり、理想の1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 LCC 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。LCC を安定化させる一つの方法として、CNT の内部に閉じ込める方法があげられるが、LCC の内包率は低く、また、LCC を内包する CNT (LCC@CNT)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 CNT 内部への LCC の成長メカニズムやその安定性、更には CNT と LCC 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、LCC@多層 CNT 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、LCC の構造安定性が LCC を内包している CNT 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、CNT 内部に LCC が挿入されると、相互作用により LCC@CNT 系全体の電気伝導性が向上することを初めて実験的なデータで示した。

**第5章** これまで、実験的に一次元炭素鎖 (LCC)を内包するカーボンナノチューブ (CNT)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説明はされていない。本研究では、Density Functional Theory (DFT)と the non-equilibrium Green's function (NEGF) 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。(5,5)、(6,4)、(9,0)のカイラリティを持つ単層 (SW)CNT に内包された LCC は、SWCNT と LCC 間の相互作用及び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(7,4)のカイラリティを持つ SWCNT に内包された LCC は相互作用が弱く、それぞれの電気伝導特性を重ね合わせた結果となった。

**第6章** 活性炭は高い比表面積を有するため、電気二重層キャパシタの電極材料として一般的に

用いられているが、電気伝導性が低く、レート特性が低いといった欠点を有する。一方、二層 (DW)CNT は優れた機械・電気特性を有するが、疎水性の表面を持ちバンドルを組んでいるため、比表面積は理論値通りにはならない。本研究では、DWCNT 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電極の作製を試みた。本研究で作製した電極はバインダーレスで **free-standing** であり、曲げても折れない柔軟さを有する。また、活性炭中に DWCNT が均一に分散しており、DWCNT 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 CNT/活性炭ハイブリッド構造の有用性を示した。

**第7章** 本研究で得られた知見と今後の展望を述べた。