

氏名	井上 寛隆
授与した学位	博士
専攻分野の名称	工学
学位授与番号	博甲第 6399 号
学位授与の日付	2021年 3月 25日
学位授与の要件	自然科学研究科 産業創成工学専攻 (学位規則第4条第1項該当)
学位論文の題目	産業利用を目指したカーボンナノチューブのマクロスケール技術開発
論文審査委員	教授 林靖彦 教授 小野努 准教授 山下善文 教授 井上翼 (静岡大学)
学位論文内容の要旨	
<p>本論文では、理論上優れた特性を持ち合わせるカーボンナノチューブ (CNT) を産業的に利用するために CNT 合成、紡績手法、応用デバイスに関する一連の研究を行なった成果を示す。</p> <p>第1章では、CNT の基本特性や合成手法、マクロスケール応用を可能とするための CNT 紡績手法およびその応用例について説明する。</p> <p>第2章では、CNT の実利用に最適な構造である少層 CNT (FWCNT) フォレストの紡績性発現条件を特定した。様々な条件で合成した CNT フォレストの高さ、嵩密度、紡績性を評価した結果、高さが 130 μm 以上、嵩密度が 90 mg/cm^3 以上をとともに満たすことで、高い紡績性が発現することを見出した。また、触媒形成条件の精密制御により、CNT を細径に抑えた高紡績性 FWCNT フォレストを合成した。</p> <p>第3章では、高齢化に伴う介護負担の増大や労働人口の減少といった負担を軽減し得るコイル状高分子線材ソフトアクチュエータに対し、CNT 紡績糸を柔軟で軽量のヒータ線として複合化する新規構造を提案した。このマルチフィラメント構造アクチュエータは、系全体を均一に加熱し、優れたパフォーマンスを発揮することを明らかにした。</p> <p>第4章では、実験的測定と理論計算を組み合わせることによって、CNT 紡績糸中の CNT 界面で起こるアモルファスカーボン (<i>a</i>-C) からグラフェンへの構造変化を特定した。また、2000 K、1 分間の条件で通電加熱処理を施すと、生成されたグラフェンに対し <i>n</i> 型ドーパントが効果的に作用し、熱電特性が大幅に向上することを示した。</p> <p>第5章では、大気圧下で連続的に加熱処理を施すことが可能なセットアップを新規に構築した。本セットアップを用い、CNT 紡績糸に高張力を加えた状態で通電加熱することにより、CNT 界面に多くのグラフェンが生成されていることが確認された。CNT 紡績糸の高密度化により <i>a</i>-C の熱振動方向がさらに制限されることで、グラフェンへの相転移が促進されたと示唆される。この多量なグラフェンは、CNT 間あるいは CNT-グラフェン間のファンデルワールス力を強化し、FWCNT 紡績糸の強度を未処理の約 2 倍となる、引張破断応力 3.2 GPa、ヤング率 260 GPa まで高めることに成功した。</p> <p>これらの成果は、ナノ材料開発におけるスケールの違い、構造の違い、要求される特性の違いなどをそれぞれ考慮した多方面からの技術的アプローチが優れた最終製品を実現していく上で重要であることを示したものであり、CNT という次世代の生活を支える素材の実用化を推し進めるための重要な知見となる。</p>	

論文審査結果の要旨

カーボンナノチューブ（CNT）は、軽量・高強度・高導電性などの優れた特性を有することから、幅広い産業で実用化が期待されている。実用化には、ナノスケールのCNT自体の物性を維持しながら、マクロなデバイスにスケールアップする技術開発が不可欠である。これまで、CNTを溶液に分散した後スケールアップする手法が報告されているが、孤立した分散状態を維持することが困難で、長年実用化を阻んできた。本研究では、CNTアレー合成条件の最適化により、溶液プロセスを使うことなく、乾式プロセスでCNT紡績糸を作製するスケールアップ技術を開発した。そして、CNT紡績糸のさらなる高機能化技術や実際の素子応用技術を開発した。主な研究成果は、①から④にまとめられる。

①高い紡績性とCNTの層数（チューブ径）の両方を制御する、CNTアレー合成条件を明らかにした。さらに、CNT合成に不可欠な触媒粒子の形成プロセスで、温度を精密に制御することにより、高い紡績性を維持しつつ数層（2～6層）のCNTアレーを安定して合成することに成功した。これは、これまで困難であった数層CNT紡績糸の連続作製が可能となったことを意味し、実用化加速に大きく資する成果である。②柔軟かつ高強度なCNT紡績糸の特徴を生かし、CNT紡績糸をポリマー糸と複合化しコイル状にした、ソフトアクチュエータ素子を提案した。これは、CNT紡績糸に通電し発生するジュール熱によりポリマー糸が収縮運動するアクチュエータであり、大きな変位、高速応答性、大きな動作力を兼ね備え、加熱冷却と動作効率に優れた複合構造を実現した。③CNT紡績糸を熱電変換材料に応用するため、CNT紡績糸に通電加熱処理を行った後にn型ドーピング処理する手法を提案した。これにより、熱電変換効率を大幅に改善することに成功した。この効果のメカニズムに関して、CNT紡績糸内に残留するアモルファスカーボンが通電加熱処理によりグラフェンへ構造変化することが熱電変換効率向上に寄与していることを、理論計算と実験から明らかにした。④CNT紡績糸に張力を加えながら通電加熱する技術を開発し、これにより従来の2倍以上の引張強度を実現した。さらに、このメカニズムが、張力を伴う通電加熱により、CNT紡績糸を構成するバンドル（強固なCNTの束）密度および配向性が向上することと、CNTバンドルの高密度化によりアモルファスカーボンからグラフェンへの相転移が促進され、分子間力が強固になることであることを明らかにした。

以上、CNTの実用化を促進する研究を実施し、研究室レベルから製造レベルにつながる成果を得た。本論文の成果は、筆頭著者として査読付き学術論文誌2編、国際会議論文5件に発表した。この実績も考慮し、審査員全員が学位論文として十分に価値あると認め、博士（工学）の学位を授与できると判断した。