

氏名	程奕愷 (CHENG YIKAI)		
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 5 6	号
学位授与の日付	2024年 3月 25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	Fabrication of two-dimensional materials/polyimide composites by covalent bonding strategies (共有結合による2次元材料/ポリイミド複合材料の創出)		
論文審査委員	准教授 仁科勇太	教授 小野 努	教授 坂倉 彰
<b>学位論文内容の要旨</b>			
<p>With the rapid advancement of current technology, the demand for materials possessing exceptional chemical and physical properties such as mechanical strength, thermal conductivity, electrical conductivity, and a low dielectric constant has significantly increased. Polyimide (PI) can be a candidate to meet the above requirements, making it an indispensable material in electronic products. However, mechanical strength, electrical conductivity, and other characteristics are still not enough. To enhance the performance and applicability of PI, filler materials with superior chemical and physical properties to form a composite material emerge as a promising choice. There are several requirements for the filler materials of PI, such as the dispersibility in PI, the size, and the crystallinity of the material. To meet these requirements, this study focuses on two-dimensional (2D) materials with excellent chemical modifiability, mass production, and structural controllability.</p> <p>This thesis is divided into three parts. The first part provides a comprehensive overview of the properties, synthesis routes, and applications of 2D materials, such as graphene and boron nitride, along with the fabrication and application of filler materials for PI. The second part details the experimental studies conducted, including:</p> <ol style="list-style-type: none"> <li>1) Examining the integration of graphene oxide (GO) and amine-functionalized boron nitride (<math>\text{BN}_{\text{NH}_2}</math>) into PI film to improve the mechanical characteristics of PI composite films. The study reveals that combining GO with <math>\text{BN}_{\text{NH}_2}</math> in PI films and adjusting their proportions can significantly improve the films' strength.</li> <li>2) Covalent functionalization of hexagonal boron nitride (h-BN) with phenylenediamine (PDA) influences the mechanical properties of PI composite films. By controlling the ball milling parameters, different variants of <math>\text{BN}_{\text{PDA}}</math> were produced and then bonded with PI. This resulted in PI composites with significantly improved tensile strength and modulus. Notably, adding a small quantity of GO to the <math>\text{BN}_{\text{PDA}}</math>-PI mixture further increased these mechanical properties, leading to the creation of high-performance BN-PI composite films.</li> <li>3) Developing three-dimensional (3D) carbon materials by heating covalently prepared PI nanostructures on GO. These 3D structures were used in conductive materials, particularly as anodes in lithium-ion batteries (LIBs). By carbonizing the PI-GO composite at temperatures above 500 °C, carbon materials retaining a nanostructure were produced. The performance of these LIB electrodes, superior to conventional graphite, was found to depend on the specific conditions under which the PI nanostructures were synthesized, particularly in terms of time and temperature. The 3D carbon structures developed in this study showed enhanced capacity and rate performance, demonstrating the effectiveness of this synthesis and annealing approach.</li> </ol> <p>The third part presents the conclusion and future prospects.</p>			

## 論文審査結果の要旨

現代技術の急速な進歩に伴い、機械的強度、熱伝導率、電気伝導率、低誘電率などの優れた化学的および物理的特性を備えた材料の需要が拡大している。本研究では、ポリイミドを基材として用い、化学修飾したグラフェンや六方晶窒化ホウ素などの2次元材料を、共有結合を介して複合化することにより、高強度フィルムや3次元カーボン構造体を作製した。

学位論文は3部構成となっている。第1部（1、2章）では、ポリイミドや2次元材料の特性・合成方法・用途について、開発の経緯や近年の研究動向を調査している。第2部（3～5章）では、実験結果について詳細に説明している。3章では、グアニジンを用いてアミノ基を導入した窒化ホウ素をポリイミドと複合化することにより、機械的特性を改善する方法を開発した。酸化グラフェンを同時に添加することで、相乗効果によりさらに性能が向上した。4章では、アミノ化窒化ホウ素の修飾量を向上するためのボールミル処理パラメータを最適化した。p-フェニレンジアミンで修飾した窒化ホウ素をポリイミドと複合化し、機械的強度を評価することにより、添加量の最適条件を明らかにした。5章では、酸化グラフェン上にポリイミドの3次元構造体を構築し、熱処理することにより3次元構造を有するカーボンを合成した。ポリイミド合成条件を変えることにより、様々な形状の構造体を構築した。得られた3次元カーボンは、優れたリチウムイオンの貯蔵特性を有していた。第3部（6章）では、本研究の結論と今後の展望について述べている。

以上、本研究は共有結合性の化学修飾による2次元材料とポリイミドの複合材料を開発したものであり、博士（工学）の学位に値する。