

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	メカノケミカル反応による炭素?金属および炭素?有機ヘテロ界面の接合に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	本塚智
Author(English)	Satoshi Motozuka
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9273号, 授与年月日:2013年9月25日, 学位の種別:課程博士, 審査員:田中 順三,坂井 悦郎,篠崎 和夫,武田 博明,生駒 俊之
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9273号, Conferred date:2013/9/25, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

## 論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第		号	学位申請者氏名	本塚 智	
		氏名	職名		氏名	職名
論文審査 審査員	主査	田中 順三	教授	審査員	生駒 俊之	准教授
	審査員	坂井 悦郎	教授			
		篠崎 和夫	教授			
		武田 博明	准教授			

## 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「メカノケミカル反応による炭素-金属および炭素-有機ヘテロ界面の接合に関する研究」と題し、6章からなっている。

第1章「序論」では、本研究の背景と目的について述べている。すなわち、異種材料の界面形成技術の現状と課題を述べるとともに、黒鉛/鉄複合粒子系において鉄酸化層を介して両粒子間に化学結合を形成する新しい接合技術を提案している。鉄表面の酸化層形成法として粒子間に働くせん断力によって誘起されるメカノケミカル反応に着目し、その原理・手法・特長を明らかにすることにより、異種材料界面の接合技術の開発および化学結合状態の解明を目指す本論文の意義について記述している。

第2章「鉄粒子の粉碎挙動と表面酸化層の形成」では、最初に、遠心ボールミルを用いて還元雰囲気中で鉄粒子を粉碎して得られた粉碎平衡状態において鉄マイクロ粒子が平均粒径約 5  $\mu\text{m}$  をもち、格子ひずみを内在することを示している。次いで鉄マイクロ粒子を酸化雰囲気中で粉碎してメカノケミカル反応を誘起する合成実験を行い、せん断力の大きさ・印加時間に依存して酸素の拡散が促進され表面に  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  から  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  に至るさまざまな酸化状態および膜厚をもつ酸化層が形成されることを見いだしている。さらに反応初期における酸化層の電子スピン共鳴の測定解析から、膜厚 2 nm の表面では不対電子 13  $\text{nmol}/\text{m}^2$  が存在すること、その量が膜厚の増加とともに減少することを明らかにしている。

第3章「酸化層表面とメタンの界面反応の解明」においては、第2章で作製した鉄粒子表面の酸化層に炭素化合物を付与する反応機構について検討している。すなわち、メタンガス雰囲気中でメカノケミカル反応を誘起する一連の実験および Discrete Variational  $X\alpha$  (DV- $X\alpha$ ) 分子軌道計算法による解析結果から、 $\text{CH}_4$  の C-H 結合が鉄酸化物表面の作用により切断され水素分子とメチルラジカル ( $\cdot\text{CH}_3$ ) を生成すること、さらに  $\cdot\text{CH}_3$  が酸化物表面に結合して  $\text{Fe-O-CH}_3$  結合を形成する反応が生じることを明らかにしている。

第4章「酸化層表面と黒鉛の界面接合の制御」においては、第3章で明らかにした  $\text{Fe-O-CH}_3$  結合を形成する反応機構に基づき、鉄粒子と黒鉛粒子をアルゴン雰囲気中で粉碎して両粒子を接合させる反応制御法について検討している。その結果、鉄粒子表面に薄い酸化層が存在すると黒鉛六員環のエッジ面に存在する C-H 結合が切断して水素分子が生成されるとともに、鉄-黒鉛粒子間に  $\text{Fe-O-C}$  結合が形成されることを明らかにしている。本化学結合の形成過程は、X線光電子分光および DV- $X\alpha$  分子軌道計算法による解析とも一致している。本接合法で作製した鉄/黒鉛複合粒子は組成分布が均一であり、従来の有機バインダ法を用いて混合した複合粒子に比べて振動試験による黒鉛脱落量が 1/8 に低減することを実証し、メカノケミカル反応による接合技術の有効性を示している。

第5章「炭素化合物のヘテロ界面の接合」では、メカノケミカル反応によるヘテロ界面接合技術を各種材料系に応用している。最初に、炭素繊維と熱可塑性樹脂 (ナイロン 6) の界面において、せん断力により炭素繊維では六員環構造に欠陥が形成され、ナイロン 6 表面では主鎖 N-C 結合が切断されて炭素繊維-ナイロン 6 間に C-N-C 結合が形成される反応機構を見出した。本複合系については熱可塑性の炭素繊維強化樹脂に応用できる可能性を示唆している。さらに、水酸アパタイト表面に  $\text{Ca-O-C}$  結合を介してヒドロキシキノリンが付加できることを示し、ガン診断用バイオセンサへの応用を提案している。

第6章「総括」においては、各章の結果をまとめ今後の研究課題を提言している。

これを要するに、本論文は、メカノケミカル反応によって材料表面層の構造と化学反応を制御して異種粒子間に化学結合を形成することにより、炭素化合物と金属・有機材料・無機材料の接合および均一粉体混合プロセスを確立したものであり、工学上ならびに工業上貢献するところが大きい。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として、十分価値あるものと認められる。