T2R2 東京科学大学 リサーチリポジトリ
Science Tokyo Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	カーボンナノウォールの表面改質と電気化学センサーへの応用
Title(English)	Study on surface modification of carbon nanowalls and their application to electrochemical sensors
著者(和文)	BOHLOOLIFatemeh
Author(English)	Fatemeh Bohlooli
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12203号, 授与年月日:2022年9月22日, 学位の種別:課程博士, 審査員:森 伸介,関口 秀俊,伊原 学,多湖 輝興,谷口 泉
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12203号, Conferred date:2022/9/22, 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

Powered by T2R2 (Science Tokyo Research Repository)

（博士課程）

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		BOHLOOLI Fatemeh	
論文審査 審査員		氏　名	職　名		氏　名	職　名
	主査	森 伸介	准教授	審査員	谷口 泉	准教授
	審査員	関口 秀俊	教授			
		伊原　学	教授			
		多湖　輝興	教授			

論文審査の要旨（2000 字程度）

本論文は，「Study on surface modification of carbon nanowalls and their application to electrochemical sensors」と題し，英文で書かれ，以下の 6 章から成っている．

第 1 章「Introduction」では，カーボンナノウォール(CNW)の特徴として，大きな比表面積，活性なグラフェンエッジ，優れた電気的特性を有することを述べ，その合成法について概説し，更に過酸化水素(H_2O_2)の電気化学センシングおよびバイオセンシング分野での潜在的な重要性と課題を述べた上で，CNW を電極材料として H_2O_2 を検出する電気化学センシングシステムの利点を示し，研究の目的と意義を述べている．

第 2 章「Synthesis of CNW and its hybrid composite with manganese oxides and their characterization」では，まず，CO/H_2 マイクロ波放電を用いたプラズマ CVD 法による CNW の合成について検討している．堆積時間を 60s とした場合に，約 4μm の高さの CNW が再現性良く安定的に合成されることが明らかとなり，この CNW を電極材料として用いることで，それ以降の研究を実施している．次に，電気化学的堆積法を用いて，プラズマ CVD 法によって合成された CNW の表面に，酸化マンガン(MnO_x)を堆積させることで，MnO_x/CNW 電極を作製することが検討されている．堆積時間が非常に短い場合には，MnO_x 堆積後の表面は CNW 合成後とほぼ同じ構造を維持しながら部分的にスポット状の堆積物が観察されたが，堆積時間を 30s 程度まで長くすると，CNW 層の表面は MnO_x 堆積物によって完全に覆われた構造となることが示されている．

第 3 章「Evaluating electrochemical sensor performance of MnO_x/CNW nanocomposite electrode towards H_2O_2」では，第 2 章で作製した MnO_x/CNW 電極の電気化学センサーとしての特性評価を行っている．MnO_x/CNW 電極は，+0.7V の印加電位でリン酸緩衝溶液中の H_2O_2 に対して高い電気化学的活性を示し，40μM から 1023μM までの広い H_2O_2 濃度範囲に対しての線形応答性と，高感度 (698.6 μA mM^{-1} cm^{-2}) かつ低い検出限界 (0.55μM) を有することが示されている．

第 4 章「Plasma surface treatment of CNW」では，O_2/Ar プラズマを用いて CNW を表面処理し，活性を高めることで，希少金属や金属酸化物を電極表面に使用しないメタルフリーな電気化学センサーの開発の検討を行っている．低酸素濃度(O_2/Ar=1/100)の条件で処理した CNW において最大の表面酸素濃度が得られ，CNW に固有の疎水性が親水性に変わることが示されている．しかし，プラズマ中の酸素濃度をさらに増加させても CNW 表面の酸素含有量は増加せず，代わりに欠陥が増加するという結果を述べている．この理由として，低濃度の活性な酸素種がプラズマ中に存在する場合，合成後の CNW の表面に存在する非晶質炭素が選択的にエッチングされると同時に，欠陥サイトにおける酸素種の安定化による酸素官能基の生成も多く生じるが，活性な酸素種濃度が高くなると，欠陥位置での酸素の安定化よりもエッチング速度が勝り，酸素官能基の生成量が減少し，アモルファス構造だけでなくグラファイト構造の炭素のエッチング速度も増加するというメカニズムを提案している．

第 5 章「Electrochemical performance of plasma treated CNW samples towards H_2O_2」では，第 4 章で作製した O_2/Ar プラズマ処理を行った CNW 電極の電気化学センサーとしての特性評価を行っている．H_2O_2 に対して最高の電気化学的活性を示すのは，低酸素濃度(O_2/Ar=1/100)でプラズマ表面処理を行った最も表面酸素含有量と親水性の高い CNW ではなく，O_2/Ar=10/100 の条件で処理した，適度な酸素含有量と欠陥構造を有する CNW であることが示されている．これらの結果から，電気化学センシングにおけるグラファイト構造に存在する欠陥と酸素含有官能基の両方の重要性が示唆されている．O_2/Ar=10/100 の条件でプラズマ表面処理された CNW は，50μM から 28000μM の広い H_2O_2 濃度範囲に対しての線形応答性と，高感度(126.6μA mM^{-1} cm^{-2})かつ低い検出限界 (0.91μM)を有することが示されている．

第 6 章「Conclusion and future work」では，本研究で得られた成果を総括するとともに，今後の課題について言及している．以上要するに，本論文は，CNW を用いた H_2O_2 センサーを考案し，酸化マンガンによる CNW 表面のコーティングおよび O_2/Ar プラズマによる CNW 表面処理が電気化学的センシングの性能向上に効果的であることを明らかとし，さらに，プラズマ表面処理条件の最適化によって，CNW を用いたメタルフリーな炭素材料だけからなる電気化学センサー構築の可能性，およびそのメカニズムを示したものであり，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があるものと認められる．

注意：「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。