Osaka University Knowledge Archive

Title	Laser-induced Carbonization of Sumanene Derivatives
Author(s)	稲田, 雄飛
Citation	大阪大学, 2015, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/52128
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（稲田　雄飛）	
論文題名	Laser-induced Carbonization of Sumanene Derivatives (スマネン誘導体のレーザ誘起炭素化)

論文内容の要旨

本論文の目的は、ボウル型骨格を有するスマネン誘導体のレーザ誘起炭素化挙動について明らかにするとともに、このようにして得られた炭素化体の電気伝導度、構造、および導電材料や触媒材料としての応用可能性について明らかにすることである。本論文は、緒言、三つの章から成る本論、および総括で構成されている。以下に、構成単位ごとの要旨を示す。

緒言では、本研究の背景、目的、意義および本論の概要を述べた。すなわち、背景として、１）レーザ誘起炭素化を活用することによって期待できる応用例、２）レーザ誘起炭素化に影響を与える重要な因子、３）ボウル型分子スマネンの特徴、４）これまでに報告されたレーザ誘起炭素化の出発物質、５）触媒材料として注目を集めている含窒素グラファイト様炭素（NGC）の合成法について述べることにより、レーザ誘起炭素化の有する応用可能性と、出発物質としてボウル型分子スマネンを用いる意義を明らかにし、目的および本論の構成について述べた。

第一章では、時間分解マイクロ波伝導度法および直流法を用いた、スマネン誘導体のレーザ誘起炭素化に伴う電気伝導度変化の追跡について述べ、照射に用いるレーザのエネルギーおよび照射時間を最適化すると同時に、レーザ誘起炭素化が起こるのに要する時間および到達伝導度を明らかにした。また、その中で、スマネン誘導体は、類似した化学構造を有する平面分子と比べて、顕著に電気伝導度上昇が起こることを見出した。また、電気伝導度の評価から、レーザ誘起炭素化によって得られた生成物は、導電材料として応用可能な導電率を有することを見出した。

第二章では、レーザ誘起炭素化されたスマネンモノオンイミン誘導体の構造特性および触媒特性について述べた。出発物質として、窒素を含有したスマネンモノオンイミン誘導体を用いてレーザ誘起炭素化させることにより、構造欠陥および乱層構造を有するものの、導電性を有するNGCが合成できたことを明らかにした。また、NGCの典型的な合成法である含窒素化合物の熱分解においては、加熱温度の増大とともに窒素原子の脱離が進行するが、スマネンモノオンイミン誘導体のレーザ誘起炭素化によって合成したNGCは、炭素原子に対する窒素原子の比（N/C比）がほとんど保たれていることを見出した。さらに、本NGCが酸素還元反応に対する触媒活性を示すことを明らかにした。

第三章では、スマネン誘導体のレーザ誘起炭素化に必要なエネルギー閾値について述べ、スマネン骨格を有する化合物が、類似化学構造を有する平面骨格を有する化合物よりも低い閾値を有することを見出した。本知見により、スマネン骨格を有する化合物はレーザ誘起炭素化を受けやすく、脱窒素を抑制したNGC合成を行うための出発物質として有用であることが示された。

総括では、以上の結果をまとめ、本知見が、ボウル型π共役系分子の化学だけでなく、レーザ誘起炭素化を基盤とした化学の発展に貢献できる可能性を示した。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　稲田　雄飛　）			
論文審査担当者		(職)	氏　名
	主 査	教授	平尾　俊一
	副 査	教授	南方　聖司
	副 査	教授	櫻井　英博
	副 査	教授	桑畑　進
	副 査	教授	井上　豪
	副 査	教授	林　高史
	副 査	教授	今中　信人
	副 査	教授	宇山　浩
	副 査	教授	町田　憲一
	副 査	教授	安藤　陽一
	副 査	教授	古澤　孝弘

論文審査の結果の要旨

本論文は、ボウル型骨格を有するスマネン誘導体のレーザ誘起炭素化挙動および、このようにして得られた炭素化体の電気伝導度、構造、および導電材料や触媒材料としての応用可能性に関する知見をまとめたものである。主な成果は以下にまとめられる。

１．時間分解マイクロ波伝導度法および直流法を用いてスマネン誘導体のレーザ誘起炭素化に伴う電気特性変化を追跡することにより、レーザ誘起炭素化が起こるのに要する時間および到達伝導度について知見を得ている。その中で、スマネン誘導体は、類似した化学構造を有する平面分子と比べて顕著に電気伝導度上昇が起こることを見出し、スマネン誘導体の優位性を示している。さらに、電気伝導度の評価から、レーザ誘起炭素化によって得られた生成物は、導電材料として応用可能な導電率を有することを見出している。

２．出発物質として、窒素を含有したスマネンモノオンイミン誘導体を用いてレーザ誘起炭素化させることにより、構造欠陥および乱層構造を有するものの、導電性を有する含窒素グラファイト様炭素（NGC）が合成できることを明らかにしている。また、NGC の典型的な合成法である含窒素化合物の熱分解においては、加熱温度の増大とともに窒素原子の脱離が進行するが、スマネンモノオンイミン誘導体のレーザ誘起炭素化によって合成した NGC は、炭素原子に対する窒素原子の比（N/C 比）がほとんど保たれていることを見出しており、このことは特筆に値する。さらに、本 NGC が酸素還元反応に対する触媒活性を示し、電極触媒として使用可能であることを明らかにしている。

３．スマネン誘導体のレーザ誘起炭素化に必要なエネルギー閾値について、スマネン骨格を有する化合物が、類似化学構造を有する平面骨格を有する化合物よりも低い閾値を有することを見出している。本知見により、スマネン骨格を有する化合物はレーザ誘起炭素化を受けやすく、脱窒素を抑制した NGC 合成を行うための出発物質として有用であることを示している。

以上のように、本研究は、ボウル型骨格を有するスマネン誘導体のレーザ誘起炭素化挙動について明らかにするとともに、得られた炭素化体の電気伝導度、構造、ならびに導電材料や触媒材料としての応用可能性について明らかにしている。また、窒素原子を含有したスマネンモノオンイミン誘導体を出発分子としてレーザ誘起炭素化を行うことにより、従来法では困難であった、N/C 比を保った NGC 合成を達成している。本研究の成果は、ボウル型π共役系分子の化学だけでなく、レーザ誘起炭素化を基盤とした化学の発展にも貢献しており、意義深いと思われる。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。