OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	First-principles Study of Interfacial Interactions between Carbon Nanotube and Ceramics Surfaces for Composite Materials
Author(s)	Aditya, Irfan Dwi
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/72166
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

Form 3

Abstract of Thesis

Name （ IRFAN DWI ADITYA ）	
Title	First-principles Study of Interfacial Interactions between Carbon Nanotube and Ceramics Surfaces for Composite Materials (複合材料のためのカーボンナノチューブとセラミックス表面の界面相互作用に関する第一原理計算)

Abstract of Thesis

Ceramics have been widely used in industrial applications at high temperature due to their excellent mechanical strength, intrinsic thermal stability, and low density. However, ceramics are known to exhibit low fracture toughness due to their brittleness. The toughness of ceramics can be enhanced by adding second phase reinforcements such as carbon nanotube (CNT) which has excellent mechanical properties. Until now, however, most results for strengthening and toughening have been disappointing due to the lack of knowledge about the nature of the interface. This dissertation aims to elucidate the nature of the interaction between CNT and the surface of ceramic. The influences by change of CNT diameter and by stoichiometry of three kinds of ceramic surfaces of Al_2O_3 (0001), SiC (0001) and ZrO_2 (111) to the interface interaction were especially examined, which have never been discussed before.

Our results show that the interfacial interaction between CNT and ceramic surfaces depends greatly on the diameter of CNT. As the diameter increases, the interaction between the CNT and the ceramic surface weakens. It is also highly dependent on the stoichiometry of the ceramic surface. The adhesive energies of the interaction between CNTs and nonstoichiometric ceramic surfaces of O-terminated Al_2O_3, Si-terminated SiC, C-terminated SiC, and Zr-terminated ZrO_2 are negatively larger than the case when CNT interacts with stoichiometric surfaces of Al-terminated Al_2O_3 and O-terminated ZrO_2. Therefore, the CNT with a smaller diameter largely contributes the high performance on the mechanical properties of fracture toughness as well as the strength when it interacts with the nonstoichiometric ceramic surface.

Fracture toughness, which is most expected to be improved by the CNT-composite, also depends on the interface property. The strong interface can resist the crack propagation which might be dependent on the adhesive energy and also the covalent/ionic character of the interface bonding. These characteristics are quantitatively measured by integrated crystal orbital Hamilton populations (ICOHPs) and Bader analyses, respectively. If it is assumed that the large covalent character affects the possibility of deflection of crack path, which leads the higher fracture toughness, the present results provides an explanation of the tendency of CNT-composite fracture toughness obtained experimentally.

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名	（　IRFAN DWI ADITYA　）		
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主 査	教　授	澁谷　陽二
	副 査	教　授	森川　良忠
	副 査	准教授	Diño Wilson Agerico Tan
	副 査	准教授	佐藤　和則
	副 査	准教授	松中　大介（信州大学）

論文審査の結果の要旨

本論文は、カーボンナノチューブ（CNT）を複合化処理することにより、セラミックスの破壊靭性を改善させる材料開発指針に関わる内容で、第一原理計算に基づく界面電子状態により界面結合の基礎メカニズムを検討したものである。従来より、セラミックスにCNTを複合化させることにより、熱・電気特性の改善と同様に破壊靭性の改善も積極的に行われてきた。しかし、母相となるセラミックスの種類に応じて、破壊靭性値が著しく向上する場合、ほとんど改善しない場合、そして場合によっては母相のセラミックスよりも劣る場合が報告されている。本論文では、CNTの直径を種々に変えて、CNTとセラミックス表面との相互作用を第一原理計算により詳細に検討し、CNTの直径に依存したモルフォロジーの変化、界面結合エネルギー、界面の結合に関わる共有結合性とイオン結合性の強度といった観点から定量的に評価した。そして、第一原理計算から得られた一連の定量的な評価指数と、実験的に得られている破壊靭性値との関係に着目してまとめたもので、以下の７章から構成されている。

第１章では、従来の実験的成果に基づき、界面におけるCNTの特徴的な破壊特性について論述され、その中で本論文の位置付けと目的が明らかにされている。

第２章では、本研究で用いられた第一原理計算の計算条件と解析モデルについての検討結果が述べられている。

第３章では、CNTとその曲率半径が∞となるグラフィンを取り上げて、第一原理計算による安定配置や電子状態を求め、従来の結果との比較から計算モデルや計算条件の妥当性を示した。

第４章では、一つ目の複合材料として、アルミナAl_2O_3(0001)の表面とCNTの界面特性を検討した。まずはバルク体としてのAl_2O_3の安定配置の確認とともに、表面特性について計算した。Al_2O_3の表面では、Al原子が端末化される場合とO原子が端末化される場合が考えられ、前者は化学量論的表面であり、後者は非化学量論的表面である。CNTの直径依存性とともに、セラミックス表面の化学量論的条件により、両者の反応が大きくことなることを見出した。すなわち、O原子で端末化された非化学量論的表面では、結合エネルギーが大きく、共有結合性もイオン結合性もともに強い結合を示し、それらのことが界面特性の向上につながっている。

第５章と６章では、SiC(0001)とZrO_2(111)のセラミックス表面をそれぞれ取り上げ、それらの中でもO原子で端末化されたZrO_2の表面のみ化学量的表面であり、結合界面特性が極めて低いことがわかった。Si原子で端末化されたSiC、C原子で端末化されたSiC、そしてZr原子で端末化されたZrO_2はほぼ同様の結合エネルギーである一方、共有結合性とイオン結合性の違いが両者の界面特性の違いの原因になっていることがわかった。

これら一連の成果に基づき、第７章では従来のCNT複合材の破壊靭性の傾向と比較し、第４章から６章までの第一原理計算に基づく解釈との関連性を示すとともに、結言としてまとめている。

以上のように、本論文は CNT と Al_2O_3、SiC そして ZrO_2 の３種類のセラミックの界面相互作用において、CNT の直径依存性とともにセラミックスの化学量論的表面特性が重要な要因になることを得ている。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。