

審査の結果の要旨

氏 名 千 足 昇 平

本論文は「環境 AFM 装置内での単層カーボンナノチューブ生成とその場ラマン測定」と題し、ナノテクノロジーの中心的素材として注目を集めている単層カーボンナノチューブ (single-walled carbon nanotube, SWNT) の生成メカニズムに関して、原子間力顕微鏡 (atomic force microscope, AFM) 測定及び CVD 合成中のその場ラマン散乱分光測定を用いて実験的に解明を試みたものであり、論文は全 5 章よりなっている。

第 1 章は、「序論」であり本研究と関連して、SWNT の物性・合成法について述べるとともに、SWNTs の構造及び電子構造について概観している。また、本研究で中心的に用いたラマン散乱分光法及び AFM 測定についての詳細について述べ、更に従来研究の未解決問題について検討して、本論文の研究目的を述べている。

第 2 章は、「環境制御型 AFM・ラマン散乱測定装置」であり、本研究で設計・開発した本実験装置の機能及びその測定結果について述べている。この環境制御型 AFM・ラマン散乱測定装置は、AFM 試料台上のサンプルの温度 (300~1000 K) や、サンプル雰囲気ガスの種類、圧力、流速などの制御が可能となし、AFM とラマン散乱スペクトルの同時計測も可能であり、SWNTs 研究に限らず非常に応用範囲の広い実験システムであることを示している。また、加熱法や温度測定法について比較・検討している。

第 3 章は、「ラマン散乱スペクトルの温度依存性」であり、第 2 章にて開発した環境制御型 AFM・ラマン散乱測定装置内を用いて、SWNTs サンプルを真空中で温度を変化させてラマン散乱スペクトルを測定している。その結果、SWNTs のラマン散乱スペクトルに現れる G-band, D-band 及び RBM ピークについてのラマンシフト、ピーク幅、ピーク強度などの温度依存性について明らかにし、更にそれらを SWNTs の電子構造や共鳴ラマン効果の温度変化に基づいて考察している。また、シリコン及び SWNTs のラマン散乱スペクトルの温度依存性を用いた非接触非破壊温度計測法を提案している。

第4章は、「SWNTs 生成プロセスにおける AFM・ラマン観察」であり、第2章で述べられた環境制御型 AFM・ラマン散乱測定装置内においてアルコール CCVD 法 (ACCVD 法) を用いて SWNTs を合成し、更に CVD プロセス全体を通じた AFM 及びラマン散乱分光法によるサンプルの測定・観察を行うことに成功している。SWNTs 生成に必要な不可欠な触媒金属微粒子を詳細に AFM 観察し、更にその場ラマン散乱測定を行うことによってこれまで明らかにされることのなかった SWNTs 成長の様子を測定することに成功している。この時、第3章で得られた SWNTs のラマン散乱スペクトルの温度依存性を用い、その場ラマン散乱スペクトルの分析を行うことで、SWNTs の成長開始前に待機時間が存在することを見出し、更に触媒の活性寿命の測定に成功すると共に、待機時間・触媒活性寿命の CVD 条件 (CVD 温度、エタノールガス圧力及びガス流速など) 依存性などについて検討している。

第5章は「結論」であり、上記の研究結果をまとめたものである。

以上を要するに、本論文は SWNTs の生成メカニズム解明に向け、環境制御型 AFM・ラマン散乱測定装置を設計・開発し、これを利用することで SWNTs の CVD 生成プロセス全体を通じた AFM 及びその場ラマン散乱スペクトル観察に成功している。また SWNTs のラマン散乱スペクトルの温度依存性を明らかにし、ラマン散乱スペクトル測定による SWNTs の温度計測を可能にしている。これらの結果から SWNTs の生成に関する知見を与えており分子熱工学の発展に寄与するものであると考えられる。

よって本論文は博士 (工学) の学位請求論文として合格と認められる。