

審査の結果の要旨

氏名 宮内 雄平

本論文は「単層カーボンナノチューブのカイラリティ制御合成に向けた蛍光分光」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 nanotubes, SWNTs) の幾何構造 (カイラリティ) を制御した合成に向けて、SWNTs の合成条件とカイラリティ分布の関連を蛍光分光測定を用いて実験的に明らかにするとともに、蛍光分光によるカイラリティ分布測定の障害となっている未知の蛍光発光ピークの起源を解明すること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。また、本研究と関連して、SWNTs の物性・合成法について述べるとともに、SWNTs の構造、電子構造、およびそれらに関連する様々な SWNTs の分光分析の手法について概観している。また、本研究で中心的に用いた蛍光分光法の詳細について述べている。

第 2 章は、「アルコール CCVD 法により合成した単層カーボンナノチューブの蛍光分光」であり、様々な合成温度で生成された SWNT 試料の蛍光分光測定を行い、これまでに報告された発光強度の理論的予測と各カイラリティに対応する発光強度の測定結果とを組み合わせ、SWNTs 試料中のカイラリティ分布を推定している。さらに、合成条件の変化に伴うカイラリティ分布の変化から、合成時のカイラリティ選択性とそのメカニズムについて考察し、SWNTs 生成核であるキャップ構造の安定性によるカイラリティ選択性のモデルを提案している。

第 3 章は、「単層カーボンナノチューブの発光励起スペクトルにおける同位体効果」であり、非常に少量の同位体置換エタノールから同位体置換 SWNTs を合成する手法を開発し、ラマンスペクトルの変化から合成された同位体置換 SWNTs 中のフォノンエネルギーの変化を確認し、励起子・フォノン相互作用に起因する発光励起スペクトルピークの同定を行っている。

第 4 章は、「単層カーボンナノチューブの発光励起スペクトルの光学異方性」であり、SWNTs を孤立状態に保ったままゼラチン薄膜中に配向させる方法を開発し、偏光発光励起分光法により発光励起スペクトルの偏光依存性を調べ、SWNT 軸に垂直な偏光による励起（軸垂直励起）に起因するピークを同定している。さらに、偏光蛍光分光の手法を適用して、様々なカイラリティに対応した軸垂直励起遷移の光励起エネルギーを測定し、軸垂直励起に対する励起子効果と測定結果の関連について考察している。

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、本論文では単層カーボンナノチューブのカイラリティ分布の合成温度依存性を明らかとし、直径を非常に細く制御することができればある程度のカイラリティ制御ができる可能性があることを示している。また、SWNT の未知の発光ピークの起源を同位体実験や偏光蛍光分光の手法により同定しており、本論文で同定された様々な発光ピークの存在を考慮に入れることで、今後のカイラリティ分布制御法の開発に向けた蛍光マップ測定において、測定結果の解釈をより正確に行えることを提案している。本論文は SWNTs のカイラリティ分布の合成温度依存性および蛍光発光に関する新たな知見を与えており、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。