

## 審査の結果の要旨

氏名 西井 俊明

本論文は「一酸化炭素を炭素源とする単層カーボンナノチューブの CVD 合成機構解明とその制御」と題し、一酸化炭素と水素の混合ガスを扱う工業プラントでの単層カーボンナノチューブ (single-walled carbon nanotube, SWNT) 併産を念頭において、一酸化炭素を炭素源とする常圧下での SWNT 生成機構を解明し、さらにその成長制御を試みたものであり、論文は全 7 章よりなっている。

第 1 章は、「序論」である。従来の SWNT 合成技術ならびに生成機構および成長制御に関する研究成果を外観し、未解決問題について検討した上で、本論文の研究目的を述べている。

第 2 章は、「合成装置と触媒調製方法」であり、本研究で用いた SWNT 合成装置と合成用触媒の調製方法の詳細を示している。

第 3 章は、「COCCVD 法による SWNT の合成」である。Co/Mo 二元触媒を用い、一酸化炭素と水素の混合ガスを原料とする常圧下での触媒 CVD (carbon monoxide catalytic chemical vapor deposition, COCCVD) 法による SWNT 合成を試み、その特徴を明らかにしている。さらに、水素を一酸化炭素と等モル量添加することによって、無添加時に比べ SWNT の生成収率が向上することを見出し、水素を含めた反応機構について考察している。

第 4 章は、「SWNT 生成に与える触媒活性化の影響」である。Co/Mo 二元触媒を用いた SWNT の COCCVD 合成を行い、触媒の組成および酸化状態ならびに活性化プロセスの条件と、SWNT 生成状態の関係を明らかにしている。

第 5 章は、「SWNT 生成における触媒反応機構」である。二元触媒として遷移金属から貴金属に亘る広範な元素より選択し、これらを触媒とする COCCVD 法およびアルコールを原料とする触媒 CVD (alcohol catalytic chemical vapor deposition, ACCVD) 法による SWNT 合成

を比較し、炭素源、触媒の組成および酸化状態ならびに活性化プロセスの条件と、SWNT 生成状態の関係を明らかにしている。さらに、実験結果を基に、SWNT 生成に関わる触媒表面における反応機構について考察している。

第6章は、「SWNT の成長制御」である。Co/Mo 二元触媒を用い、COCCVD 法による SWNT 合成を試み、触媒調製条件および合成初期の水素添加割合と、基板に対する SWNT の成長方向の関係を明らかにしている。さらに、これらの実験結果を基に、SWNT の成長制御に関わる因子について考察している。

第7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、一酸化炭素を炭素源とする常圧下での SWNT の触媒 CVD 合成における水素添加割合、触媒の組成、酸化状態および調製方法、ならびに活性化プロセスの条件の影響を明らかにし、従来の一酸化炭素のみを原料とする合成のように反応場の高温・高圧化や未反応成分を含む排気ガスの再循環を図ることなく、水素を添加してその割合を調整することにより、常圧下で SWNT の収率を向上できることと垂直配向合成など基板上での成長制御の可能性を示している。本論文による知見は、石炭ガス化や天然ガス改質などの現存する大規模な工業プラントで扱われる合成ガスを原料とする SWNT の低コスト量産に寄与するものであると考えられる。さらに、単層カーボンナノチューブの CVD 合成反応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。