

審査の結果の要旨

氏 名 項 栄

本論文は“Controlled Growth of Vertically Aligned Single-Walled Carbon Nanotubes for Devices (デバイス応用に向けた垂直配向単層 CNT の合成制御)”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) のデバイス応用に向けて、基板と垂直に配向した SWNTs 膜の CVD 合成制御を試みたものである。¹³C 同位体エタノールを用いた CVD 合成実験や理論による垂直配向膜の合成メカニズム解明、エタノールの熱分解生成物であるアセチレンによる合成速度増大の発見、触媒金属による直径分布の制御などの基礎的な知見を元に自己組織化膜(SAM 膜)を用いたパターンニングの提案と実証を行ったものであり、論文は全6章よりなっている。

第1章は, "Introduction(序論)"であり, CNT などの炭素の同位体の幾何学構造, SWNT の幾何学構造と電子物性, 光学物性, CVD 合成技術, アルコールを炭素源とする CVD 法(ACCVD 法), 垂直配向膜の CVD 合成および応用について議論し, 論文全体の流れを述べている。

第2章は, "Root growth mechanism and diffusion limit (根元成長機構と拡散律速)"である。垂直配向単層 CNT 膜の CVD 中のレーザー吸収リアルタイム測定による膜厚のモニタリングおよび CVD の途中から炭素源のエタノールを ¹³C 同位体エタノールに換える同位体実験を行い, 合成された ¹³C 垂直配向 CNT 膜の位置を顕微ラマン分光で特定することで, 触媒金属が合成中つねに基板上にある根元成長機構であることを明らかとした。さらに, 根元成長であると炭素源となるエタノール分子は成長しつつある垂直配向膜中を拡散後に触媒金属に達する必要がある。この拡散抵抗の程度について, 簡単な一次元拡散モデルによって検討し, 垂直配向単層 CNT の場合には膜厚が数 mm になってはじめて拡散抵抗律速となることを明らかとした。

第3章は, "Growth acceleration and ethanol decomposition (合成速度増大とエタノールの熱分解)"である。炭素源であるエタノールの気相における熱分解反応によってエチレン, 水や微量のアセチレンが生成する過程を FT-IR による実測と化学反応モデル計算

によって明らかとした。また、微量のアセチレンをエタノールに加えることで単層 CNT 膜の CVD 合成速度を飛躍的に増大させられることを明らかとした。これらの実験結果をもとに、炭素源のエタノールの一部はアセチレンまで熱分解したのちに単層 CNT 合成に至ることを明らかとした。特に、低流量の CVD においては、この熱分解を経た CNT 合成過程が優勢となり合成速度が増大する一方 CNT の品質は劣化することを明らかとした。

第 4 章は、"Diameter Control of VA-SWNTs (垂直配向単層 CNT の直径制御)"である。光吸収分光やラマン分光によって、垂直配向単層 CNT の直径分布が成長に伴って若干変化し、合成の後半では直径が大きくなる傾向を明らかとした。直径分布に対するエタノール圧力や CVD 温度の影響は比較的小さいが、デップコート法における仕込みの触媒金属濃度を変化させることで、直径分布を大きく変化させることができることを明らかとしている。

第 5 章は、"High-precision patterned growth (高解像度パターン合成)"であり、様々なデバイス応用に向けて、パターン合成法を議論している。最初に、従来から報告のある方法を発展させ、シリコン酸化膜のパターンを MEMS 技術で合成し、単層 CNT の垂直配向膜が酸化膜部分から合成されることを示した。さらに、デップコート法による触媒担持特性が基板の濡れ性に強く影響されることに着目し、疎水性の自己組織化膜(SAM 膜)を基板上に合成し、その一部を UV 照射あるいは電子線照射で除去し、その部分にデップコート法で触媒を担持して、単層 CNT を合成する方法を提案し実証した。SAM 膜を用いることで極めて高解像度のパターン合成が実現し、将来のデバイス応用の可能性を示した。

第 6 章は、"Conclusion and prospect (結論と今後の展開)"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、本論文では垂直配向単層 CNT 膜の合成機構の解明を進め、微量分子添加による合成速度増大や直径分布の制御を実現するとともに、自己組織化膜(SAM 膜)を用いたパターンニングの提案と実証を行ったものである。本論文は SWNTs の合成機構と CVD 合成の制御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。