

論文審査の結果の要旨

氏名 小幡 誠司

本論文は 6 章から成る。

第 1 章は序論であり、本論文の研究対象であるグラフェンの特徴および解決すべき問題を述べている。作製方法やドーピングによる物性への影響など多くの具体例を挙げて説明し、本論文の主題である化学的に修飾・合成されたグラフェンの有用性、意義が示されている。

第 2 章では本研究で用いた装置に関して述べている。in situ 伝導度測定の目的で論文提出者が作製した真空装置、および光電子分光 (XPS)、走査トンネル顕微鏡 (STM) 測定装置等の構成、特徴を説明している。

第 3 章では巨大な酸化グラフェン (GO) の大量合成、伝導度と GO の組成の関連性、還元法による GO の構造・伝導度への影響、に関して述べている。成膜プロセスを工夫することで $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$ を超える巨大な GO を大量に合成する方法を確立し、さらに in situ 伝導度測定と XPS による組成解析から、hydroxyl 基や epoxide の還元により伝導パスが生成し、伝導度の急峻な立ち上がりが起きていることを明らかにした。また STM での局所構造解析と in situ での伝導度測定から、ヒドラジン還元と真空中での加熱による還元では還元中の反応過程が異なり、ヒドラジン還元後では部分的にハニカム構造が回復しているが、真空還元の場合は乱れた構造をとっていることを原子レベルでの解析によって解明した。

第 4 章では GO の新規還元方法に関して述べている。既存の還元剤を用いた還元方法では欠陥のない高品質なグラフェンを得ることは困難であったが、論文提出者は Pt(111)の触媒作用に注目し、GO を Pt(111)基板上で加熱することで GO から欠陥の非常に少ないグラフェンの作製に成功した。STM により 50 nm 以上の長周期に渡るシングルドメインのグラフェンが観察され、XPS によっても酸素の完全消失が確認されている。この方法はグラフェンの新規大量合成法につながるものと期待される。

第 5 章では窒素ドーピンググラフェンの作製・局所構造解析・酸素吸着特性に関して述べている。1150 K, 1300 K の Pt(111)基板上へのピリジン曝露により、一様なグラフェンの生成に成功した。さらに窒素がグラフェンネットワーク内にドーピングされている事を強く示唆する STM 像からも、ピリジンからの窒素ドーピンググラフェンの作製に初めて成功したといえる。XPS 測定の結果を併用することで窒素のドーピング位置に関しても考察し、さらに、窒素原子の酸素吸着特性への影響に関する実験から、窒素ドーピンググラフェンの触媒への応用について検討している。このように窒素ドーピンググラフェンに関し、作製条件による局所構造の差異やドーピング位置に関して研究された例はなく、本成果は当該分野の今後の研究指針を与え

るものである。

第 6 章では本論文についての総括がなされている。

なお、本論文は佐藤裕樹氏（第 3 章）、田中弘成氏（第 3-4 章）、斉木幸一朗氏（第 3-5 章）の共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験、解析、考察を行なったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

以上のように本論文では、STM による局所構造解析や伝導度の *in situ* 測定などを用いて、化学的に合成・修飾されたグラフェンの合成法・物性を詳細に調べた。これらの成果はグラフェンの大量合成法の確立や窒素ドーピングによる新規物性の発現などに多大な寄与を与え、グラフェン分野の基礎・応用両面に大きな貢献が期待される。これら研究成果のオリジナリティを審査委員会一同で高く評価した。

したがって博士（理学）の学位を受けるのに十分な資格を有すると認める。