

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 岩田 晋弥

本論文は「極低温における単層カーボンナノチューブへの分子吸着に関する研究」と題し、カーボンナノチューブにおける分子吸着状態に関して論文提出者が行った研究の成果をまとめたものである。

論文は8章から成っている。

第1章は序論である。カーボン材料と分子吸着に関する研究背景を要約し、続いて本研究に着手する動機となった先行研究の紹介を行い、これを踏まえて研究の具体的な課題設定を行っている。

第2章では、カーボンナノチューブに関する基本的事項を述べている。カーボンナノチューブの種類や特性について述べた後、試料作製方法とナノチューブの酸化処理効果について述べている。

第3章は、「吸着」と題し、分子と表面の相互作用について、ファンデルワールス力や軌道混成など基本的概念について述べている。

第4章では、本研究で用いた実験手法の原理と装置について詳述している。振動モードを観測することで作製したカーボンナノチューブを評価するラマン散乱分光法、試料に吸着した分子の吸着状態を調べる昇温脱離分光と赤外吸収分光の基本原理を述べ、本研究において開発した実験装置に関して述べている。超高真空環境で不純物の影響を取り除き、極低温で物理吸着分子の熱脱離スペクトルと赤外吸収スペクトルが測定できることを示している。

第5章では試料の作製法について述べている。試料作製に用いたアーク放電法、さらに高純度試料を得るために行った化学処理、酸化処理、加熱処理について述べている。

第6章は、実験結果である。はじめに、合成した試料を種々の評価法で評価した結果をまとめている。ラマン散乱の測定結果から合成した試料の直径を解析し、透過電子顕微鏡による測定結果からカーボンナノチューブの長さを評価している。また透過電子顕微鏡像を詳しく解析することで、酸化処理によりナノチューブの壁面に乱れが生じることを述べている。続いて、昇温脱離スペクトルと赤外吸収スペクトルの測定結果を詳述している。酸化処理を行っていない試料に、水素分子を吸着させ昇温脱離スペクトルを測定したところ、約20Kに単一の脱離ピークを示すことを見いだした。これに対して酸化処理を施した試料で同様の測定をすると、20Kの脱離ピークが拡幅化し27Kに新たな脱離ピークが出現することを見いだした。また、水素分子と重水素分子を順番をかえて試料に共吸着させた実験を行い、昇温脱離スペクトルは吸着順序によらず同じ形状を示すことを見いだしている。同様の実験を窒素分子について行い、水素分子の20Kと27Kに対応して、46Kと58Kに脱離ピークが現れることを見いだした。さらに、窒素分子吸着後に水素分子を吸着させる共吸

着実験を行っている。水素分子を吸着させる前の試料処理温度を変化させると、窒素分子の脱離温度は変化しないのに対して、水素分子の脱離温度は低温側にシフトすることを見いだした。最後に一酸化炭素分子吸着について、昇温脱離スペクトルと赤外吸収スペクトルの同時測定の結果を示している。赤外吸収スペクトルには、分子内伸縮振動に由来する吸収ピークに加えて、伸縮振動と分子重心振動との結合モードが現れることを見いだしている。

第7章では、実験結果に基づき、分子の吸着状態について考察を行っている。酸化処理によって、カーボンナノチューブ壁面に欠陥が導入されていると議論し、これに基づき熱脱離スペクトルの解釈を行っている。酸化処理を施していない試料で観測された脱離ピークはカーボンナノチューブバンドルのグループサイトへの吸着に対応し、酸化処理によって現れた高温側の脱離ピークはナノチューブ内部またはバンドル間への吸着に対応すると結論している。脱離スペクトルの解析によりこれらのサイトでの分子吸着エネルギーを見積もり、過去に行われている理論研究の結果と比較し議論している。また、水素分子の昇温脱離スペクトルにおける同位体効果を、質量差に起因する零点振動の違いで解析し、吸着ポテンシャル中での振動エネルギーを評価している。一方、水素分子と窒素分子の共吸着実験の結果を考察し、吸着エネルギーの大きな窒素分子が水素分子の吸着を阻害するサイトブロッキングが生じると議論している。特に処理温度の違いに見られた実験結果を、窒素分子のチューブ内部への拡散により解釈した。一酸化炭素分子について、赤外吸収スペクトルに観測された伸縮振動の振動数を振動シュタルク効果に基づき解析し、ナノチューブにおける分子の配列構造を議論し、グループサイトでの1次元的な分子配列構造の提案を行っている。

第8章は、本研究の結論であり、結果の要約とそこから得られた知見が述べられている。

以上を要約すると、論文提出者は、高純度の単層カーボンナノチューブを合成し、極低温昇温脱離法と赤外吸収分光法によりカーボンナノチューブへの分子吸着を実験的に調べることで、分子の吸着位置と脱離温度を明らかにし、分子配列に関する新たな知見を得た。これらの成果は物理工学として顕著な寄与があったと評価できる。よって、本論文は博士(工学)の学位申請論文として合格と認められる。