

論文審査の結果の要旨

氏名 野口 卓也

酸素原子が導入されたカーボン系薄膜の構造についてはこれまで諸説あり、現在も議論が続いている。本論文では、カーボン薄膜の表面・界面における酸素原子との反応、および反応の結果得られる薄膜の構造について議論している。これまで主に用いられてきた溶液プロセスによる合成法とは異なり、固体平坦表面上で酸素原子を導入する手法について検討している。

本論文は以下の5章より構成されている。

第1章は序論であり、本論文の背景および目的が述べられている。本研究で用いられた気相・固相酸化手法の優位性を、既存の手法との対比を通じて論じている。既存の手法で得られた酸化グラフェンでは、酸素含有官能基が多様であるため、カーボンのハニカム構造が乱れ、キャリア移動度が相対的に低く留まっていると述べている。このキャリア移動度の低さが、電子デバイス・光エレクトロニクスへの応用上の障害であると指摘している。以上のような背景のもとで、グラフェンシート構造を保ったまま酸素を導入することを目的の一つとした上で、新たなグラファイト状カーボン薄膜の酸化法を探究するとしている。

第2章は、類似物質の研究事例の比較と分析手法の説明である。カーボンナノチューブ、グラフェン、酸化グラフェンなどの関連物質について、これまで明らかになっている基本的な性質をまとめるとともに、これらの物質に酸素を導入する研究について例示している。また、本研究で用いた分析手法について、ラマン分光法、X線光電子分光法(XPS)、走査型プローブ顕微鏡の原理とそれらから得られる情報について説明している。

第3章では、グラファイト状カーボン薄膜の固相酸化について報告している。冒頭で、本手法の新規性について、過去の研究事例と比較しながら述べている。実験手順として、高融点金属酸化物単結晶基板上に厚さ 10 nm のカーボン薄膜を真空蒸着し、1500–2700 °C の高温領域での加熱を行なっている。加熱処理により、カーボンのナノスケールでの結晶化が進むと同時に、1 μm を超える巨大な凹凸構造が生じることを見出している。電子線衝撃および近赤外レーザー照射の2種類の加熱法により固有の影響がないことを確認し、上記結果が高温加熱によるものであると述べている。凹凸構造が生成するメカニズムについて、幾つかのモデルを比較検討した上で、高温加熱顕微鏡での観察結果と併せ、界面での反応による気体成分発生により凹凸構造が生成したと結論してい

る。また、ラマン分光測定 of 解析から見積もられる sp^2 ドメインサイズが類似の加熱実験のものとは比べて小さいことから、グラファイト結晶化が界面での酸化反応により抑制されたと推論している。

第4章では、グラフェン薄膜の気相酸化について述べられている。前半部分では、銅多結晶箔上へのメタンの化学的気相蒸着 (CVD) 法によりグラフェン薄膜を合成し、ラマン分光および走査型トンネル電子顕微鏡観察により単層グラフェンを得たことを確認している。試料非加熱 (室温) でのグラフェンシートへの酸素導入については反応性の高い酸素原子が有効であるとし、熱フィラメントおよびマイクロ波プラズマにより解離した原子状酸素を用いている (熱解離法およびマイクロ波解離法)。これら 2 種類の解離法での解離率およびプロセス圧力の違いについて述べた上で、それぞれの手法を実験により比較検討している。XPS およびラマン分光により、炭素-酸素間の結合、グラフェンシートの結晶性についてそれぞれ評価を行なっている。XPS C 1s スペクトルのピーク分離と C 1s/O 1s スペクトル強度比から、熱解離法では酸素が導入されない一方で、マイクロ波プラズマ酸化法により酸素原子が導入されることを明らかにしている。他方、両者のラマンスペクトルではいずれも欠陥由来の強いピークが確認され、グラフェンシートに欠陥が導入されていると推論している。ピーク分離した XPS C 1s スペクトルとフーリエ変換赤外分光スペクトルから、C-O-C (エーテルおよびエポキシ基) ならびに C=O (カルボニル基) が同量程度生成されたと結論している。この結果は、5d 金属上のグラフェンの酸化とは異なっているが、その原因は、下地基板原子種の違いによるグラフェン-基板相互作用の大きさの違いによるものと説明している。

第5章は本論文で示された結論と総括である。

以上のように、本研究は、気相および固相酸素原子との反応によりグラファイト状カーボン薄膜に酸素導入を試みた上で、複数の分光法および表面分析法を用いて、酸化後の薄膜構造を明らかにしたものである。これらの研究は理学の発展に大きく寄与する成果であり、博士 (理学) に値する。なお本論文は複数の研究者との共同研究であるが、論文提出者が主体となって行ったものであり、論文提出者の寄与は十分であると判断する。

したがって、博士 (理学) の学位を授与できると認める。