

# 論文審査の結果の要旨

氏名 平良 隆信

本論文は5章からなる。

第1章は、イントロダクションであり、本論文の研究背景について述べられている。グラフェンの構造と性質について説明し、その工業応用のためには大面積の単結晶グラフェンを効率的に合成する必要があることが述べられている。化学気相成長(CVD)法はそのための最有力手法であり、約 1000 °C の Cu 箔基板表面へメタンをアルゴン、水素とともに供給するのが標準的な成長条件であることが説明されている。大面積の単結晶グラフェンを合成するにはグラフェンの核密度を低く抑える必要があり、そのためには CVD の基板やガスに関する多数のパラメータの効果を解明し、それらを最適化する必要があることが説明されている。これらの解明のためには、熱放射光学顕微法(Rad-OM 法)による核発生と成長速度のその場(in-situ)観察評価が効果的であることが述べられている。グラフェン成長 CVD プロセスの中で、ホットフィラメントによる原料ガスの事前分解の効果と、CVD ガスとしてメタンとともに供給される水素の効果は未解明であり、主として Rad-OM 法によってこれらの効果を解明することを本研究の目的としたことが述べられている。

第2章では、本研究で用いた Rad-OM 法、X 線光電子分光法(XPS)、ラマン分光法の原理、装置、測定手順、およびグラフェン CVD 成長の実験装置と手順について述べられている。さらに、本研究で開発された Rad-OM 法と in-situ の放射光 XPS(SR-XPS)を組み合わせた装置の詳細について記述されている。

第3章では、グラフェン CVD 成長におけるホットフィラメントの効果を Rad-OM 法によって研究した結果と考察について記述されている。ホットフィラメントはグラフェンの核発生と成長加速を起こす効果があり、これらの効果はフィラメント温度を上げることによって増大すること、さらにフィラメント温度 1270 °C 付近では新規の核発生は起こらずに成長加速のみが起こることが明らかになった。これらの結果について、フィラメント温度の上昇とともにメタンの熱分解で生じるアセチレンの量が増加し、Cu 基板上の C<sub>2</sub>種の量を増加させ、その

量が少ないときには主に成長加速、多くなると核発生にも寄与するようになることを結論した。以上から、最適化された温度に設定したホットフィラメントは、大面積の単結晶グラフェンの短時間での合成に応用可能であることが示されている。

第4章では、グラフェン CVD 成長における水素の効果を、Rad-OM 法および、Rad-OM 法と in-situ の SR-XPS を組み合わせた測定によって研究した結果と考察について述べられている。Rad-OM 法による観察から、グラフェンドメインを水素有りおよび水素無しの条件で高温アニールすると前者の方がドメインの縮小速度が高くなること、水素有りの条件で CVD 成長中に水素の供給を停止すると核発生が急増することなどが明らかになった。さらに Rad-OM 法と SR-XPS を組み合わせた測定から、Cu 箔基板表面の炭素量は水素無し CVD 後の方が水素有り CVD 後よりも多く、水素有り条件で高温アニール後は、炭素量が減少することが明らかになった。これらの結果から、グラフェン CVD 成長における水素の本質的効果はグラフェンのエッチングであることを結論した。つまり、この効果により CVD 成長中にグラフェンの核発生が抑制されることが示された。また水素有り CVD では六角形ドメインが形成されやすい傾向が観測されたことについて、Rad-OM法と SR-XPS の測定結果にもとづき、水素のエッチング効果によって、Cu 基板表面の炭素量、グラフェンの核密度、成長速度が減少し、拡散律速成長が起こりにくくなったことによると考察した。以上から、グラフェン CVD 成長における水素の導入は、大面積かつ六角形の単結晶グラフェン成長に有利な条件であることが示されている。

第5章では、第3，4章の主要な結果を要約し、本研究をまとめている。

なお、本論文第3章は、篠原拓也、小幡誠司、斉木幸一郎との共同研究、第4章は、崔永賢、土原悠、向井孝三、田中駿介、吉信淳との共同研究であるが、論文提出者が主体となって分析および検証を行ったもので、論文提出者の寄与が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。