

## 審査の結果の要旨

氏名 松本道生

グラファイトから純粋な単層グラフェンを定量的に剥離する手法が開拓されれば、電子デバイスを含む幅広い材料科学の分野に革新的なイノベーションが起こる。しかしながら、現在の技術ではグラファイトを複層のグラフェンまで剥がすことにとどまっており、またその収率も著しく低い。これまで、合成が簡便な酸化グラフェンの還元体をグラフェンの代替として用いることで、一定の研究成果を収めてきたが、その一方でその本質的な再現性の低さが課題であった。本論文では、グラフェンと強く相互作用する特別な溶媒を用いることで、マイクロ波照射下、グラファイトの剥離が破格に高い効率で進行し、結果として高純度の単層グラフェンを短時間で高選択的に得ることが可能になったと述べている。液相として用いた特別な化合物は、イミダゾリウム基を同一分子内に複数個有することを特徴とし、グラファイトの剥離に重要な固液界面での相互作用をいかに制御するかという基礎課題に重要な知見を提供した。

第一章では、まずグラフェンに代表される二次元高分子の研究について過去に報告された合成法や性質を概念的に大別し、詳述している。また、層状化合物の剥離現象を物理化学的な観点から解説している。後半ではグラファイト・カーボンナノチューブなどの炭素材料に焦点を当て、液相中でそれらの剥離・分散を可能にするための具体的な戦略や剥離生成物の用途展開について、具体的な例をもとに述べている。

第二章では、まずイミダゾリウム基を同一分子内に複数個有するオリゴマーイオン液体の設計指針について述べられている。次に、それらのオリゴマーイオン液体とグラファイトからなる懸濁液へのマイクロ波照射実験に関して述べられている。マイクロ波を懸濁液に照射すると、グラファイトの剥離が進行し、グラフェンが生成するが、ここでは特に、透過型電子顕微鏡、原子間力顕微鏡を用いた測定によって、単層グラフェンが極めて高選択的かつ高収率に生成することが記載されている。加えて、得られた単層グラフェンが構造的な欠陥を

ほとんど含まないグラフェンであることがラマン分光法、X線光電子分光法を用いた測定から明らかにされている。本研究が達成した「高純度のグラフェンを単層選択的かつ高収率に短時間で生成する」という成果が、本研究以前のグラファイトの液相剥離に関する研究とは本質的に異なるレベルにあることが明記され、オリゴマーイオン液体とグラフェンの多価相互作用の重要性が述べられている。

第三章では、グラファイトの液相剥離で用いたオリゴマーイオン液体が分散できるグラフェンの上限を調査する実験が行われている。結果として、これまでの最高値の 5.3 mg/mL をはるかに超える 100 mg/mL が達成されたことが記載されている。この濃厚分散液はグラフェンの分散濃度と温度に依存して、高温領域からゾル状態、ゲル状態、固体状態の三態をとることが動的粘弾性測定の結果から示されている。また、この高濃度分散液を強磁場下におき、高温から除冷することでグラフェンが配向した異方性ゲルが生成することが述べられている。絡み合いをおこしにくく、かつ、電荷を持たないグラフェンなどの二次元高分子が液相中で分散し、物理ゲルを形成するという例は未だない。

第四章では、本研究の過程で偶然見出されたオリゴマーイオン液体の特別な機能、具体的には電気二重層トランジスタの高効率化について報告している。オリゴマーイオン液体は基板-イオン液体間で発生する強い相互作用の効果により、高効率な電気二重層キャパシタを形成することが述べられている。このオリゴマーイオン液体を電気二重層トランジスタのゲート材料として用いると、ゲート電圧の印加に応じ、破格に高いドレイン電流を誘起することが示されている。強相関電子系を発現するための中核技術である電気二重層トランジスタはその高効率化が大変有意義であり、さらに、イオン液体中で発生する電気二重層が分子構造に大きく依存するという興味深い現象も併せて本章で報告されている。

以上、本論文では「高純度のグラフェンを単層選択的かつ高収率にて短時間で生成する」グラファイト剥離法の開拓と、得られたグラフェンと液相との相互作用を用いた数々の興味深い現象を報告している。本研究によって達成されたこれらの成果は、炭素材料科学やナノテクノロジーに関わる横断的な研究分野の発展に大きく貢献するものと期待される。

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。