

審査の結果の要旨

氏名 大塚 慶吾

本論文は「**Synthesis, Purification and Device Application of Horizontally Aligned Single-Walled Carbon Nanotubes** (水平配向単層カーボンナノチューブの合成・精製・デバイス応用)」と題し、代表的なナノ材料である単層カーボンナノチューブ (**Single-Walled Carbon Nanotube, SWNT**) の電子デバイス応用に向けて、成長プロセスの詳細な分析を通じて合成制御への寄与を目指すとともに、電界効果型トランジスタ(**FET**)デバイス作製プロセスの開発を行ったものである。**SWNT** はカイラリティと呼ばれる原子の配列によって金属と半導体に大別され、半導体 **SWNT** はカイラリティに依存して多様な電子構造を取る。この多様性から **SWNT** の幅広い応用が期待される反面、カイラリティを一種に制御することが難しいために、高性能な電子デバイスや光学デバイスへの実用を難しくしている。大量合成した **SWNT** を液中でカイラリティごとに分離する技術が発展しているが、例えば従来のシリコンに代わって論理回路を構築する場合、その清浄度や配向度の点で合成段階においてカイラリティ制御を行うことが理想的である。合成段階で半導体 **SWNT** を優性成長させる研究が進んでいるが、現状では、**FET** の実用化に求められる純度を得ることは困難であり、合成直後の配向形態を維持したまま、金属 **SWNT** のみを選択的に除去する技術が必要となる。本論文では、半導体 **SWNT** 割合という指標に加え、(1) 大規模化可能か、(2) 短チャンネル化可能か、(3) **SWNT** 同士の間隔を縮小可能か、という3種のスケーリングを基軸に、**SWNT** の成長制御に向けたメカニズム解明、また基板上での選別手法とデバイス作製技術の発展を目指すものであり、全5章から構成される。

第1章は”Introduction”「序論」であり、研究背景および研究目的を述べ、関連する **SWNT** の研究分野において本研究が占める位置づけを明らかにしている。

第2章は、”Synthesis and Analysis of Horizontal **SWNT** Arrays”「水平配向 **SWNT** の合成と分析」であり、**SWNT** 制御合成に向けその成長過程を時間分解して分

析することを目指し、合成時に同位体炭素のラベルをデジタル符号として埋め込む手法を中心に述べている。これにより、個々の SWNT がそれぞれ異なる成長待機時間や成長速度、寿命を有して成長する様子の時間変化を合成後のラマン分光法により追跡することができるようになった。一度の合成サイクルから無数の SWNT の分析が可能という長所を持つことから、単一のカイラリティを持つ SWNT を高密度かつ均一に合成することにつながる知見を数多く見出すことに成功し、高性能なトランジスタ応用に向けた材料合成に貢献している。研究のさらなる発展に向けて、TEM グリッド上に直接 SWNT を配向合成し、上記の情報と触媒の原子レベルの特性を照合することが重要となる。その足掛かりとして、シリコン表面の熱酸化膜上で SWNT を直接配向合成する技術に関する研究とともに、それを TEM グリッドへと直接加工する試みが記述されている。

第 3 章は、”Upscalable on-Chip Sorting of s-SWNT Arrays”「大規模化可能な半導体 SWNT アレイのチップ上選別」であり、合成段階で微量に混ざって合成されてしまった金属 SWNT を選択的に除去する手法に関して、その核となる特異な現象を詳細に分析している。電圧印加による自己発熱を利用することで高い選択性を実現しつつ、ポリマー薄膜と水蒸気の助燃効果を利用して金属 SWNT の長尺燃焼を試みるものである。さらに SWNT の局所酸化によって生じるナノギャップの形成過程と金属 SWNT 全長除去のボトルネックの関連性を見出すことによって、選別手法の技術的課題を解決できることが述べられている。

第 4 章は、”Scalable Fabrication of SWNT Transistors”「スケーリング可能な SWNT トランジスタの作製」である。前章において確立された基板上選別手法を用い、実際に合成した SWNT から金属 SWNT を全長除去することにより、広域に半導体のみからなるアレイ構造を実現している。その有用性を実証するために、得られた半導体 SWNT アレイから多数のトランジスタを作製し、その特性を評価・比較することで、回路の大規模化、短チャネル化、SWNT 間隔の縮小という 3 種のスケーリングが可能であることを実験的に示している。

第 5 章は”Conclusions”「結論」であり、上記の研究結果をまとめたものである。

以上要するに本論文は SWNT の合成及び制御に関する新たな知見を与え、さらに従来の合成法との調和性の高いデバイス作製プロセスを提案するもので、ナノ材料工学及び分子熱工学の発展に寄与するものと考えられる。

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。