

審査の結果の要旨

氏名 陳 嘯

本論文は” Growth of high-quality graphene by alcohol CVD method (アルコール CVD 法による高品質グラフェンの合成)”と題し、ナノテクノロジーを代表する新規材料として、様々な工学応用が期待されているグラフェンの新規 CVD 合成法を提案したものである。炭素原子が 2 次元のハニカム構造に配列したグラフェンは、その幾何学構造に起因する特異な物性が着目され、様々な工学応用が期待されている。グラフェンの合成法として、機械的な剥離法、SiC 単結晶の高温真空分解、化学的剥離法に加えて CVD 法が注目されている。特に、CVD 法は最近 5 年間で急速に進化し、高品質かつグレインサイズの大きなグラフェンの合成が可能となっている。本論文においては、一般に多用されているメタンガスと大量の水素を用いる CVD 法とは一線を画して、エタノールを炭素源とする CVD 法を開発し、センチメートルサイズの単層グラフェン膜の合成および 5 ミリメートル程度の単結晶グラフェンの合成に成功している。論文は全 5 章よりなっている。

第 1 章は、"Introduction (序論)"であり、グラフェンの幾何学構造、電子物性、マラン分光などの光学評価およびその合成技術の最近の研究動向について議論し、論文全体の流れを述べている。

第 2 章は、" Synthesis and characterization method (合成と評価法) "である。シリコン基板に Ni 薄膜を蒸着した基板を用いて、エタノールを用いた CVD による最初の高品質単層グラフェンの合成に成功している。ACCVD 法による単層グラフェン合成の温度や圧力条件を示すとともに、ラマン分光や吸収分光によってグラフェン層数分布などの計測法についてまとめている。従来は Ni 薄膜に固溶した炭素が冷却時に析出することでグラフェンが形成すると考えられていたが、同位体エタノールを用いた実験によって、高温化において Ni 表面にグラフェンが形成していることを明らかとしている。

第 3 章は、"ACCVD synthesis of graphene on Cu (ACCVD 法による銅表面へのグラフェン合成) "である。高温における炭素の溶解度が低く、表面での炭素原子

の拡散が早い銅を基板とした ACCVD 法によって、センチメートルサイズの高品質の単層グラフェンの合成を実現している。とくに、酸素リッチな雰囲気下での成長とエッチングとの共存関係から合成メカニズムを議論している。

第 4 章は、"Synthesis of large single-crystal graphene (大面積単結晶グラフェンの合成)" である。サイズの大きな単結晶グラフェンの合成は、主に、銅薄膜を畳んだポケットといわれる構造で実現している。本論文では、CVD 前に銅薄膜を低温で適度に酸化させておくことでグラフェンの核生成密度を極端に低下させて、世界最大となる 5 mm 程度の単結晶グラフェンの合成に成功している。また、大面積の単結晶グラフェンを用いた、グラフェン/n 型シリコン太陽電池を作成し従来の多結晶グラフェンの場合をはるかに超える優れた光電変換特性が実現することを示している。

第 5 章は結論であり、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、グラフェンの CVD 合成メカニズムを検討し、ミリメートルサイズの高品質グラフェン単結晶の CVD 合成法と評価法を提案したものである。本論文はグラフェンの合成及に関する新たな知見を与えており、ナノ材料工学及び分子熱工学の発展に寄与するものだと考えられる。

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。