

論文審査の結果の要旨

氏名 田中 弘成

本論文は 6 章から成る。

第 1 章は序論であり、グラフェンの大量生産に向けての課題が述べられている。初めにグラフェンの性質について述べた後、グラフェンの様々な作製方法についての研究例を紹介し、酸化グラフェン (GO) を用いたグラフェン作製法の優位性について説明している。そして GO の構造、合成方法、還元方法についての研究例のレビューを行い、解決すべき問題点、それを踏まえての本研究の目的について述べている。

第 2 章は本研究で用いられた実験装置についての詳細が記されている。また、本研究でグラフェンを評価するために多用されているラマンスペクトルについての解釈について説明されている。

第 3 章では金属表面を利用した GO からのグラフェン作製法について述べられている。まず Ni 上に成膜した GO を真空中 800 °C で加熱することにより GO の欠陥が修復され、グラフェンが生成することを見出している。次に SiO₂ 基板上に成膜した GO 上に Ni を蒸着して真空中で加熱し、その後、酸により Ni を除去することにより転写を必要としない SiO₂ 基板上へのグラフェンの成長を実証している。GO の欠陥を修復する従来の方法では、水素などの可燃性ガスと 1000 °C 以上の高温が必要とされてきたが、この方法ではガスを一切用いず 800 °C という比較的低温で SiO₂ 基板上にグラフェンが直接作製できることを示している。また、生成するグラフェンの形状が作製条件によって異なることを見出し、様々な作製条件下でのグラフェンの形状を明らかにしてその生成機構に対する考察を行っている。その結果、生成するグラフェンの形状は金属中に固溶する炭素の量によって支配されていることを解明しており、Ni の厚さが 40 nm 以下の場合には成膜した GO が元の形状を保って還元されることを示し、この方法における GO の欠陥修復メカニズムを明らかにしている。

第 4 章では溶液プロセスでのラジカル処理による GO の還元法について述べられている。炭素数の異なる 4 種類のアシルラジカルまたはベンジルラジカルを用い、GO が還元されることを示している。また、これらのラジカルによって還元された GO のラマンスペクトルを解析することによって、ラジカルの炭素数が少ないほど GO の還元の効果が高いということを示している。炭素数の少ないラジカルを用いた場合は GO の還元剤として一般的に用いられているヒドラジンよりも還元の効果が高く、安全性が高いことから、本研究の成果である溶液プロセスでのラジカル処理による GO の還元法は、グラフェンの大量合成につながることを期待される。

第 5 章では GO の還元と硫化を溶液プロセスで行う手法について述べられている。GO の還元剤として多硫化アンモニウムを用いることによって室温での還元已成功しており、その還元の効果は一般的に用いられているヒドラジンよりも高いことをラマンスペクトルの解析によって明らかにしている。GO の既存の還元方法では加熱を必要とするものがほとんどであり、本成果は簡便かつ安価に GO を還元することができる点で優位だといえる。

第 6 章では第 3-5 章の総括を行い、主要な結果を要約している。

以上のように、本論文では金属表面の触媒作用の利用、溶液プロセスでのラジカル反応、硫化物処理といった従来にない GO の効果的な還元方法を開発しており、それぞれの還元機構について実験データに基づいた解析が行われている。これらの成果は今後更なる応用が期待されるグラフェンの大量合成に大きく貢献することが期待される。また、その新規な還元機構の探索は学術的価値に富むものである。

なお、本論文は小幡誠司氏（第 3-5 章）、斉木幸一朗氏（第 3-5 章）との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験、解析、考察を行ったものであり、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）の学位を授けるのに十分な資格を有すると認める。