

Alignment and Assembly of Graphene Nanoribbons Obtained by Unzipping of Single-Walled Carbon Nanotubes by Dielectrophoresis Method

著者	Wahyu Waskito Aji
発行年	2020-12-28
その他のタイトル	単層カーボンナノチューブアンジップにより得られたグラフェンナノリボンの誘電泳動法による配列と集積
学位授与番号	17104甲生工第387号
URL	http://hdl.handle.net/10228/00008029

氏名・(本籍)	WAHYU WASKITO AJI (インドネシア)		
学位の種類	博 士 (工学)		
学位記番号	生工博甲第387号		
学位授与の日付	令和2年12月28日		
学位授与の条件	学位規則第4条第1項該当		
学位論文題目	Alignment and Assembly of Graphene Nanoribbons Obtained by Unzipping of Single-Walled Carbon Nanotubes by Dielectrophoresis Method (単層カーボンナノチューブアンジップにより得られたグラフェンナノリボンの誘電泳動法による配列と集積)		
論文審査委員会	委員長	教授	宮崎敏樹
		〃	内藤正路
		〃	田中啓文
		准教授	パンディ シャム スディル

学 位 論 文 内 容 の 要 旨

ナノスケールの電気デバイス開発は、相補的金属酸化物半導体 (CMOS) における微細加工技術の限界により、ムーアの法則を超えるための最大の課題の一つとなっている。グラフェンは、高いキャリア移動度と導電性を有する材料の一つであり、CMOS 技術に代わる有力な候補の一つである。グラフェンは優れた電気的特性を持っているにもかかわらず、バンドギャップがゼロの半金属物質である、つまり有限温度では金属的な振る舞いをする材料である。グラフェンデバイスへの半導体応用には、半導体性グラフェンを形成するためにバンドギャップを開く必要がある。この有限バンドギャップを実現するために、グラフェンナノリボン (GNR) と呼ばれる 10 nm 以下の幅のグラフェンを作製することが提案されている。また、単層カーボンナノチューブ (SWNT) の側壁を長手方向に開いたり、切断したり、縦方向にアンジップすることで、幅 10 nm 以下の半導体性 GNR (sGNR) が得られると報告されている。しかし、SWNT をアンジップした sGNR は、SWNT 残渣から分離することが困難であることや、デバイス作製のための組立工程の確立が必要であることから、その応用はまだ限定的である。SWNT と sGNR が混合した溶液から sGNR のみを選択するための一つの可能なアプローチに、コンタミネーションを回避するためのナノ材料整列法の一つである誘電泳動 (DEP) 法を転用することが挙げられる。DEP 法は、金属から絶縁体へのナノワイヤーの整列や、金属性もしくは半導電性 SWNT のような電気的特性の異なる材料の分離に適用が可能である。この分離能力は、利用される材料の導電率と誘電率から発生する異なる DEP

力の微妙なコントロールにより達成され得るものである。これらの利点は、DEP 力に対する個々の材料の異なる応答性を利用して、sGNR と SWNT の分離問題と電極間への架橋問題の両方を解決できる可能性があることを示唆している。

本論文では、周波数と印加電圧を変化させた周波数可変 DEP 法を用いて、過剰な SWNT との混合状態から sGNR のみを電極間にトラップすることで、分離に成功したことを報告している。ラマンスペクトルにおいて、SWNT のラジアルブリージングモード (RBM) からのピークが 13MHz 以上の周波数から得られた試料からは確認されなかった。RBM のピークは片浦プロットを考慮すると、SWNT の円筒構造と関連しており、SWNT のアンジッピングにより一枚の sGNR が得られることから、DEP 処理後に sGNR のみがトラップされていることが示唆された。また、AFM 画像や RBM ラマンピークからも、DEP 条件を調整することで sGNR が 1 本のみ架橋されていることが確認された。この結果は、sGNR を DEP 法で整列・分離が可能なことから、ナノカーボンデバイス作製法への応用が期待できる。

本論文の内容は以下の通りである。

第 1 章では、序論と歴史的背景について述べている。関連する理論と文献、研究の動機、目的、研究範囲について記述している。文献調査では、GNR の紹介、GNRs の作製、DEP 法などについて取り上げている。

第 2 章では、材料、使用した化学物質、実験手順について述べている。ここでは、実験のデザイン、縦方向のアンジッピングによる GNR の合成プロセス、DEP の実験セットアップについて述べている。また、DEP の技術的なメカニズムと動作原理について述べている。

第 3 章では、DEP 法の印加電圧、周波数、電極のギャップサイズの影響を考慮した SWNT/GNR の配向とデバイス作製手法について述べている。AFM 画像とラマンスペクトル中の炭素原子の六方格子に由来する G バンドとその六方格子の欠陥に由来する D バンドピークの存在により、SWNT と混合状態の sGNR が DEP 法によって正常に電極間に架橋されたことを確認した。印加電圧の増加は、トラップされた SWNT/GNR の数を増加させた。周波数依存性 DEP では逆の効果が観察されたが、これは印加交流電圧の周波数の増加によりトラップされる SWNT/GNR の数が減少することを意味していることなどを述べている。

第 4 章では、周波数 DEP による sGNR と mSWNT の分離について述べている。13 MHz 以上の周波数から得られた試料では、ラジアルブリージングモード (RBM) からのピークが欠落していた。片浦プロットを考慮すると、RBM のピークは SWNT の円筒構造由来のものであり、GNR からは発生しない。1 本の SWNT のアンジッピングによって 1 本の sGNR が得られるため、DEP 処理後に sGNR のみが残ったことを示唆している。このような条件では、sGNR に対する DEP 引力は SWNT のそれよりも強くなる。この知見は、架橋した SWNT/sGNR の構造評価と DEP プロセスの理論計算に

よって裏付けられた。

第5章では、単層 sGNR の架橋条件について述べている。AFM 画像と RBM ピークにより、1Vpp、15MHz、ギャップサイズ 2 μm の条件を用いると、原液の 50 倍の希釈 SWNT/GNR 混合溶液から DEP によりトラップされた 1 本の sGNR の存在を確認した。

第6章では、DEP 法を用い、その条件を適切に選択することにより、SWNT との混合状態から sGNR のみが選択的に電極間に架橋されること、また架橋本数も制御可能であることを結論づけ、本論文をまとめている。

学位論文審査の結果の要旨

本論文に関し、SWNT のアンジップによる sGNR の作製法、DEP による sGNR の分離法、DEP 力の理論計算について多くの質問があり、いずれも著者から満足な回答が得られた。また、公聴会においても、多数の出席者があり、種々の質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

以上により、論文審査及び最終試験の結果に基づき、審査委員会において慎重に審査した結果、本論文が博士（工学）の学位に十分値するものであると判断した。