

報告番号	甲 第 12759 号
------	-------------

## 主 論 文 の 要 旨

論文題目 **Synthesis and Properties of Cationic Nitrogen-Doped Carbon Materials via Solution Plasma**  
(ソリューションプラズマによるカチオニック窒素ドーピンググラフェンの合成と特性)

氏 名 **CHAE Sangwoo**

### 論 文 内 容 の 要 旨

ソリューションプラズマ (SP) は、名古屋大学で開発に成功した新たな反応場である。SP は液体中でのグロー放電により提供される。液体由来の大気圧ガス下で生成される非平衡プラズマであり、従来の液中アーク放電と異なりプラズマ温度が低い。ソリューションプラズマプロセス (SPP) を用いることで、CH アクティベーション反応を経由し、ナノカーボンやヘテロナノカーボン材料の新たな合成プロセスが実現する。例えば、窒素含有有機溶媒中で生成された SP により窒素ドーピングカーボンを容易に得ることができる。

SP により、カチオニック窒素ドーピンググラフェンの合成が実現すれば、平面性が維持でき、ヘテログラフェンの結晶性の向上が期待できる。また、カチオニック窒素ドーピンググラフェンは、ホールを有するため、p 型半導体となる。

しかし、現在までに、カチオニック窒素ドーピンググラフェンの合成は報告されていない。本論文では、SP を用いカチオニック窒素ドーピンググラフェンを合成し、高い電気的特性を有する高性能炭素材料を開発をめざした。

第 1 章では、ヘテログラフェンとソリューションプラズマの現状について整理した。

第 2 章では、カチオニック窒素含有官能基による修飾した少数層グラフェン (f-FLG) を、SP を用いて、黒鉛とイオン性液体から合成した。現在、グラフェンの合成は、迅速かつ簡単な合成であることが求められる。SP を用いた本研究の手法により、グラファイトからの剥離と官能基導入を同時に実現した。得られた物質を、XRD、Raman、TEM、FE-SEM、FTIR および XPS により解析したところ、窒素含有量は 7.7 at% であり、その結晶性は高いもので

あった。

第3章では、イオン性液体と有機溶液の混合溶液を原料として、カチオニック窒素ドーピンググラフェンの合成を試みた。TEM、電子線回折、XRD、Raman 分光から、3層からなるカチオニック窒素ドーピンググラフェンであることがわかった。この物質は、13.4 at%の窒素を含み、エッジではなく、面内にドーピングされている。ホール効果測定より、p型のキャリアを有することが明らかとなった。

第4章では、SWCNTにカチオニック窒素ドーピンググラフェンをコーティングした。コーティングした材料は、 $120 \text{ S cm}^{-1}$ の高い電気伝導度を有し、これは  $4.6 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ の高いキャリア濃度を有するp型半導体挙動を示した。

第5章では、本博士論文の総括を行った。SPを用いて、カチオニック窒素ドーピンググラフェンを新たに合成することに成功した。この物質では、電気抵抗が大幅に激減した。この特性の変化は、平面性及び結晶性が維持されることに起因したものである。基底平面上のカチオン性窒素ドーピンググラフェンは、コンデンサ、太陽電池、リチウムベースの電池をはじめとする高い電気伝導度が必要な電極への利用が期待される。