

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	スパッタナノカーボン薄膜の電極特性及び表面酸素濃度の制御効果に関する研究
Title(English)	Study on Electrode Properties of Sputtered Nanocarbon Thin Films and the Control Effect of Surface Oxygen Concentration
著者(和文)	竹本光伸
Author(English)	Mitsunobu Takemoto
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11793号, 授与年月日:2022年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:原 正彦,下山 裕介,宍戸 厚,北村 房男,久保 祥一
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11793号, Conferred date:2022/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第		号	学位申請者氏名		竹本 光伸	
論文審査 審査員		氏 名	職 名		氏 名	職 名	
	主査	原 正彦	教授	審査員	久保 祥一	准教授	
	審査員	下山 裕介	教授				
		宍戸 厚	教授				
		北村 房男	准教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「スパッタナノカーボン薄膜の電極特性及び表面酸素濃度の制御効果に関する研究」(Study on Electrode Properties of Sputtered Nanocarbon Thin Films and the Control Effect of Surface Oxygen Concentration)というタイトルで日本語にて記述され、第 1 ～6 章の全 6 章から構成されている。

第 1 章「序論」では、電気化学検出法における様々なセンシングニーズを示し、その中でも重要な位置付けである測定電極におけるカーボン電極の種類と優位性を記した上で、そのカーボン電極種と表面酸素濃度についての多くの先行研究を概説している。表面酸素の導入効果について、電極活性の向上、親水性の向上、電荷貯蔵容量の増加などの効果がある一方で、過剰処理で膜構造の不安定化、キャリア密度の低下による電子移動速度の減少、表面粗さ増大によるノイズの増加などの相反するデメリットが同時に発生してしまうという課題を述べた上で、本論文の目的はスパッタナノカーボンと表面酸素濃度の制御効果を明らかにすることにあるとしている。

第 2 章「アンバランスドマグネトロン(UBM)スパッタ法で作製したナノカーボン薄膜の表面構造と各種特性評価」では、 sp^2 結合と sp^3 結合の混合構造を持つスパッタナノカーボンを UBM スパッタ法にて作製し、その基礎物性をまとめている。作製したナノカーボン電極は、 sp^2 結合と sp^3 結合の割合が 6 対 4 の混合ナノカーボン膜が形成され、グラファイトの縞状のナノ結晶構造を有する混合構造であり、表面酸素濃度は非常に低く、平均粗さも原子オーダーの非常に平坦な膜であった。 sp^2 カーボンと sp^3 カーボンでの摩擦力の違いも見出すことができた。電極としての特性は、広い電位窓を示し、電子移動速度も十分に速い電気伝導性の高い電極であることも示唆された。この平坦性の高いナノカーボン電極は、他のカーボン電極と比較しても総合的に非常に高い電極性能を有している電極であることを示している。

第 3 章「表面酸素濃度の向上とその影響及び生体分子検出検証」では、第 2 章で開発したナノカーボン電極を、電気化学的前処理(electrochemical pretreatment: ECP)で表面酸素濃度を制御し、その影響について検討を試みている。表面酸素濃度の異なるナノカーボン電極であっても、表面粗さの大幅な増大を招くことなく、平坦性を維持した電極が作製可能であった。表面酸素濃度の制御は、ナノカーボン電極のアノード側の電位窓拡大に非常に効果的であり、それにより as-depo のナノカーボン電極では検出が困難であったイノシン三リン酸(ITP)やウリジル酸(UMP)の計測が、表面の酸素濃度を高濃度化したナノカーボン電極では検出可能にすることを明らかにしている。

第 4 章「表面の低酸素濃度付与手法検討及び重金属検出検証」ではナノカーボン表面の酸素濃度を制御することによる Zn^{2+} のアノードックストリップングボルタメトリ(ASV)測定の感度検証を試みている。ECP 処理、UV/オゾン処理などの手法で、ナノカーボン表面の酸素濃度を制御することが可能となり、 Zn^{2+} の ASV 測定においては、第 3 章の結果とは逆にナノカーボン電極の表面酸素濃度を抑制することで、測定感度向上が可能となる事を見出した。Ar ミリングを用いることで増加した表面の酸素濃度を再度低下させることに成功し、それに伴い電極感度も回復させることができたことで、ナノカーボンフィルム電極の表面酸素濃度を制御することで測定可能な分析対象を拡張できることを明らかにしている。

第 5 章「ナノカーボン表面酸素を活用したオキサゾリンによる機能化検討」では、表面酸素に含まれる特定の酸素官能基を活用した高分子被膜、及び機能化検討を行っている。ポリ(2-ビニル-2-オキサゾリン)(Pvozo)のポリマー鎖に含まれるオキサゾリン基の一部はダイヤモンド粒子表面のカルボキシル基と反応し、他のオキサゾリン基は未反応のままであったことから、未反応のオキサゾリン基による外部部位との更なる反応に利用できることを多層カーボンナノチューブ(MWCNT)マーカ法から明らかにしている。また、同様の結果がスパッタナノカーボン薄膜表面にも確認され、カルボキシル基を持つ他のカーボン電極や材料にも応用できる可能性を明らかにした。平坦性の高いナノカーボン電極上に、Pvozo の単分子膜での被覆が、電極感度を保ちつつ、未反応のオキサゾリン基を活用した更なる機能化の可能性を示している。

第 6 章「総括」では、本研究で得られた結果と議論を総括するとともに、将来の展望としてこの平坦性の高い優れた電気化学特性を持ったナノカーボン電極を社会実装していく道筋を記している。

以上を要するに、本論文は、表面酸素制御手法の確立、測定可能な分析対象種の拡張、検出要因の特定、単分子膜による機能化など、基礎から応用に至る工学や産業に貢献することが期待される。よって本論文は博士(工学)の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意:「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。