OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Gas-flow-directed synthesis of long carbon nanotubes for network formation and carrier transport analysis
Author(s)	劉, 元嘉
Citation	大阪大学, 2026, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/105434
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　劉　元嘉　）	
論文題名	Gas-flow-directed synthesis of long carbon nanotubes for network formation and carrier transport analysis (長尺カーボンナノチューブのガス流配向合成に基づくネットワーク形成とキャリア輸送特性解析に関する研究)

論文内容の要旨

Carbon nanotubes (CNTs) are one-dimensional nanomaterials with exceptional electrical, thermal, and mechanical properties, making them promising candidates for next-generation electronic devices. Among various synthesis methods, gas-flow-directed growth—a flow-directed approach characterized by tip growth influenced by buoyant gas flow forces—has gained increasing attention. This mechanism enables CNTs to extend into high laminar flow regions, promoting the formation of ultralong, air-suspended structures that are particularly advantageous for electronic applications. This dissertation presents a comprehensive investigation into the gas-flow-directed growth of CNTs, covering catalyst-free synthesis, network morphology control, and device-level transport characterization. The results offer new insights into the fundamental mechanisms of gas-flow-directed growth and demonstrate its potential for scalable fabrication of high-performance CNT-based devices.

In the first study, a catalyst-free gas-flow-directed growth strategy is developed using nanodiamond particles as nonmetallic seeds. CNTs are synthesized using ethanol chemical vapor deposition (CVD), guided by laminar gas flow on SiO_2/Si substrates. The absence of metal catalysts prevents undesired contamination, while enabling the direct integration of CNTs into devices. Structural characterization by scanning electron microscopy (SEM), atomic force microscopy (AFM), and Raman spectroscopy confirms high alignment and crystallinity. The nature of CNT tips is evaluated via secondary electron yield contrast between carbon and metal, and AFM is used to verify nanoparticle presence. This method provides a clean and effective route to aligned CNTs suitable for electronics.

The second part focuses on understanding the complex interaction between gas-flow-directed growth and vibrational bridging mechanisms in pillar-assisted growth of CNT networks. When CNTs are grown in confined geometries such as between micropillars, the synthesis process is influenced not only by gas flow direction but also by thermally induced vibrations. To elucidate this behavior, systematically designed pillar arrays are used to study the crossover between the two mechanisms. It is found that the relative contribution of gas-flow-directed growth and vibrational bridging depends strongly on the pillar spacing, CNT length, and local growth conditions. In previous studies, the bridging behavior was modeled using simplified power-law fitting, which limited predictive accuracy for non-ideal geometries. To overcome this, a complete geometric model is derived to describe CNT vibrations and anchoring under various pillar configurations. The model significantly enhances control over CNT network morphology, and experimental validation confirms its applicability across various pillar layouts.

The third study utilizes long CNTs grown by gas-flow-directed growth to investigate substrate-dependent electronic transport. To isolate substrate effects, devices are fabricated in which a single CNT spans both SiO_2 and hBN regions, enabling direct within-tube comparison. While thermally activated transport behavior and activation energies are similar on both substrates, CNT segments on hexagonal boron nitride (hBN) consistently exhibit higher field-effect mobility. This enhancement is attributed to the cleaner dielectric environment of hBN, including its atomically flat surface and reduced charge-impurity scattering, highlighting substrate engineering as an effective strategy for improving CNT transport performance.

In conclusion, this dissertation provides an integrated investigation of CNT synthesis and device application via the gas-flow-directed growth mechanism. The findings offer: A new catalyst-free approach using nanodiamond seeds for clean, aligned CNT growth; A comprehensive model explaining the crossover between gas-flow-directed growth and vibrational bridging in network formation; A transfer-free device platform for investigating environment-sensitive transport behavior in single CNTs. These results not only enhance the fundamental understanding of gas-flow-directed growth mechanisms but also support its potential in scalable and clean integration of CNTs into future nanoelectronic devices.

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名	（　劉　元嘉　）		
	（職）		氏　名
論文審査担当者	主 査	教授	小林 慶裕
	副 査	教授	吉川 洋史
	副 査	教授	桑原　裕司
	副 査	教授	平原　佳織（千葉大学大学院工学研究院）

論文審査の結果の要旨

本論文は、ガス流を利用して配向させた単層カーボンナノチューブ（carbon nanotube，以下CNT）合成及びその合成法を活用したCNTネットワーク形成やキャリア輸送特性解析への応用展開について一連の研究成果をまとめたものである。論文は序論および結論を含めて６章から構成されている。

序論となる第１章では、本研究の背景、目的および論文の構成を示している。まず、本研究で対象とする材料であるCNTの構造・特性や典型的な成長方法である化学気相成長（CVD）法について説明している。特に、金属・非金属ナノ粒子を成長核とした場合の成長様式の相違や、成長条件により様々な形態のCNTが得られることについて述べている。さらに、配列制御した形態のCNT形成がデバイス高性能化の基盤技術であることを指摘したうえで、電場や基板結晶格子を利用した配向成長手法に加え、ガス流配向成長法について詳細に説明している。配向成長法の従来報告を踏まえ、CNTのナノエレクトロニクス応用に向けた課題、すなわち金属不純物の影響、CNT接続構造の制御、キャリア輸送に対する基板効果を検討するため、本研究ではガス流配向成長法によるアプローチをとることを提示している。

第２章では、本研究において用いているCNT合成法であるCVD法、リソグラフィー法によるデバイス作製プロセスと電気特性測定方法、および成長CNTの構造解析手法であるラマン分光法、原子間力顕微鏡（AFM）法、走査電子顕微鏡（SEM）法について概要をまとめている。

第３章では、金属不純物を含まない配向CNT成長を目的として、非金属成長核としてナノダイヤモンド（ND）を用いたガス流配向成長法について検証している。遷移金属ナノ粒子を触媒とした成長法と比較して、反応促進効果を持たないND成長核ではCNT成長条件の範囲が著しく狭くなることが課題となる。本研究では、成長核表面の活性化処理や、ガス流配向成長でのCNT浮遊に影響する成長温度・ガス流速度が配向性に及ぼす影響について系統的に検証し、配向成長に最適な条件を得ている。SEM像における二次電子収量分布やAFM像における断面形状解析の結果から、本プロセスで合成された長尺配向CNTは、わずかに存在する金属不純物によるのではなく、非金属NDを核とした先端成長モードで成長していることを明らかにしている。非金属成長核からのガス流配向CNT成長はこれまでに報告例がなく、高い新規性を持った成果と認められる。

第４章では、ガス流配向成長法の知見を基にして、配列した微細な柱状構造間を架橋CNTで結合し、予めデザインされた配列パターンによりCNTネットワーク構造を制御する可能性について検討している。サブミクロン～ミクロンスケールの微細な柱状構造間での架橋CNT成長機構として、ガス流でCNTが浮遊することによるガス流配向成長モデルに加えて、成長中のCNTが大きく振動することに基づく振動成長モデルがこれまでに提案されている。本研究では、柱状構造の配列パターンが架橋成長に及ぼす効果を解析するため、従来の報告よりも振動成長モデルの取り扱いをさらに厳密化するだけでなく、ガス流配向成長に影響する柱状構造近傍での局所的なガス流速の挙動について流体力学に基づくシミュレーションを行っている。得られた計算による成長挙動を踏まえ、実際に観測された架橋成長効率とデザインされた配列パターン・成長条件との関係を統計的に詳細に解析している。その結果、振動成長とガス流配向成長の2つの成長メカニズムの支配的要因を明らかにし、両者は成長条件によって相互に切り替わり得ることを見出している。以上の結果は、柱状構造の配列パターンとCNT成長条件によって架橋接続構造を制御できることを示しており、CNTネットワークの自己組織形成を用いたスケーラブルな配線応用に結びつく成果である。

第５章では、第３・４章で確立したガス流配向成長法で合成した長尺CNTを用いて、キャリア輸送特性に対する基板材料の効果を検証している。作製した試料では、配向した１本の長尺CNTが熱酸化Si（SiO_2）表面と六方晶窒化ホウ素（hBN）の両方に接するように配置され、同一のCNTにおけるキャリア輸送特性の直接的な比較を可能としている。チャネル間電流のゲート電圧依存性から得られる電界効果移動度について、SiO_2上よりもhBN上に配置されたCNTの方が高くなる現象を観測している。観測された移動度の向上の要因を探るため、輸送特性の温度依存性を詳細に解析した結果、移動度の基板材料依存性は電極/CNT界面のバンド構造変化に由来するものではなく、チャネルであるCNT自身が基板の影響をうけたものであることを明らかにしている。これらの結果は、従来の報告とは異なり、同一CNTを用いて基板材料が輸送特性に及ぼす効果を明確にしており、今後のCNTデバイス高性能化に向けた指針を与える成果といえる。

第６章は全体の総括であり、本論文の内容をまとめるとともに、本論文の成果の将来展望について述べている。

以上のように、本論文は応用物理学、特にナノ材料科学の発展に寄与するところが大きい。CNTのデバイス応用に向けた要素技術となりえる長尺配向CNTの成長、構造制御技術を確立した上で、輸送特性向上に影響する要因を明らかにしており、学術界・産業界での今後の発展に大きく寄与するものである。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。