



単層カーボンナノチューブ成長中の Co 触媒のその場 XAFS 測定

丸山隆浩, 横川小葉子, 山本大貴, 才田隆広
名城大学理工学部

キーワード：単層カーボンナノチューブ, EXAFS, XANES, 化学気相成長 (CVD) 法, 触媒

1. 背景と研究目的

単層カーボンナノチューブ(SWCNT)は、半導体にも金属にもなり得る上、高い電子移動度を有することから、次世代エレクトロニクス材料として期待されている。SWCNT の電子状態はそのカイラリティや直径などの構造に依存するが、SWCNT の完全な構造制御は未だ実現しておらず、エレクトロニクス応用の実現を阻んできた。SWCNT の構造制御の実現には、その成長メカニズムを理解することが重要であり、SWCNT 成長中の触媒粒子の状態を明らかにするため、これまで透過電子顕微鏡(TEM)観察や X 線光電子分光法(XPS)による“その場”測定が行われてきたが、ごく一部の触媒粒子のみしか分析できないことや、測定には高真空にする必要があるなどの欠点があった。^{[1][2]} そこで、我々のグループでは、SWCNT の成長中の触媒粒子の化学結合状態を明らかにするため、その場 X 線吸収微細構造(XAFS)測定を行ってきた。以前、蛍光法を用いて XANES 測定を行い、550°C で SWCNT が成長中の Co 触媒が一部炭化物の状態になっていることを報告した。^[3] 本研究では、より詳細な Co の状態を知るため、透過法による、その場 XAFS 測定を試みた。

2. 実験内容

球状の BN に酢酸コバルト四水和物を混合、焼成した粉末をペレット成型した。この試料を用いて単層カーボンナノチューブ成長中のその場 XAFS 測定を行った。作製したペレットをその場 XAFS 測定用セル内に設置し、セル内を真空排気した後、成長温度まで加熱し、エタノールガスを導入し 30 分間成長を行いながら、触媒粒子の Co K 吸収端の XAFS 測定を行った。成長条件は 600°C、700°C の時エタノール流量が 50 sccm、800°C の時 100 sccm である。測定は、BL5S1 にて透過法を用いて行った。

3. 結果および考察

600°C、700°C、800°C で SWCNT 成長中の EXAFS 振動から得られた動径分布関数を Fig.1 に示す。それぞれ 2 Å 付近に Co-Co 結合ピークが見られたが、成長時間および成長温度のちがいによるスペクトルの変化は見られなかった。そこで Co-Co 結合ピークのフィッティングを行い、Co-Co 結合間距離を調べたところ、SWCNT 成長後の室温での試料の結合間距離、2.49 Å と比較すると、成長中の Co-Co 結合距離はこれよりも短く、さらに、成長温度が高いほど平均的な結合間距離は短かった。温度が高くなるにつれて Co の結晶構造に歪が入った可能性がある。

4. 参考文献

1. H. Yoshida et al. Nano Lett. 8 (2008) 2082.
2. S. Hofmann et al. Nano Lett. 7 (2007) 602.
3. 丸山隆浩, あいち SR 成果報告書 201704001 (2017).

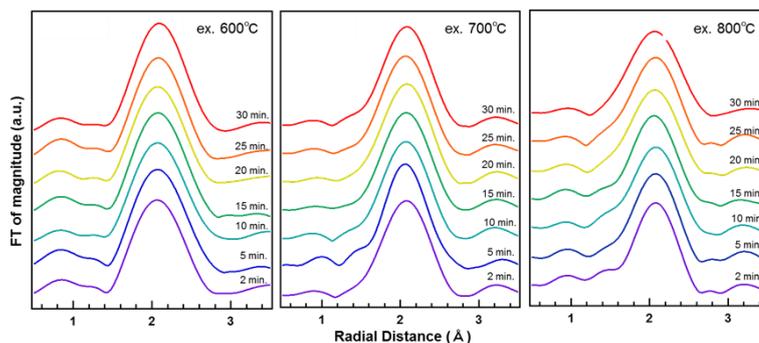


Fig.1 SWCNT 成長中の動径分布関数