



Co 触媒からの単層カーボンナノチューブ成長過程の その場 XAFS 測定

丸山 隆浩, 柄澤 周作, 松井 風香, 才田 隆広
名城大学

キーワード：カーボンナノチューブ, CVD, Co 触媒

1. 背景と研究目的

単層カーボンナノチューブ(SWCNT)は次世代のエレクトロニクス材料として期待されているが、その電子状態は直径やカイラリティと密接に関係しているため、構造制御が課題となっている。構造制御の実現には SWCNT の成長メカニズムの理解が重要であるが、触媒粒子からの SWCNT 生成に関しては未だ不明な点が多い。その場 TEM 観察により SWCNT 生成中の触媒粒子の状態を調べた例はあるが、低圧・低温条件下で行われており、通常 SWCNT を作製する温度・原料ガス圧力下でその場測定を行った報告はほとんどない[1]。本研究では、X 線吸収微細構造(XAFS)測定に注目し、アルコール CVD 法による SWCNT 成長時、および成長前の昇温時の Co 触媒の化学状態の分析を行い、成長メカニズムの検討を行った。

2. 実験内容

酢酸 Co を BN 粉末と混合し、その場 XAFS 測定用ペレットを作製した。このペレットを、その場 XAFS 用 CVD 装置のセル内に設置し、放射光がペレット中心に照射されるよう位置調整を行ったのち、装置内部の真空度が 2 Pa 以下になるまでスクロールポンプで排気した。その後、Ar/H₂ ガスを導入し、セル温度を 800°C まで加熱した。800°C に到達後、エタノールガスを導入し SWCNT 成長を行った。蒸気圧を十分に上げるため、エタノールはシリンダー容器に入れて 80°C に加熱し、気化させたものを用いた。SWCNT 成長を 10 分間行った後、エタノールガス供給を止め、降温した。XAFS 測定は、BL5S1 および 11S2 において Co K 吸収端のスペクトル測定を行った。昇温中・SWCNT 成長中・降温中の全ての過程において行い、Quick モードで約 1 分間かけて測定を行った。

3. 結果および考察

図 1 (a) に Ar/H₂ 下で昇温中に測定した XANES スペクトルを、また、成長後のラマンスペクトルを図 1 (b) に示す。昇温中、吸収端ピークの強度が減少し、Co 触媒が還元されていることがわかる。また、吸収端のピーク形状を詳しく分析すると、成長開始前の 800°C に昇温後には、金属状態の Co に加え、酸化 Co が存在し、さらにカルボキシ基が配位した状態に近い Co 粒子が存在している様子が示唆された。また、成長後の試料のラマンスペクトルから SWCNT が成長していることが確認された。

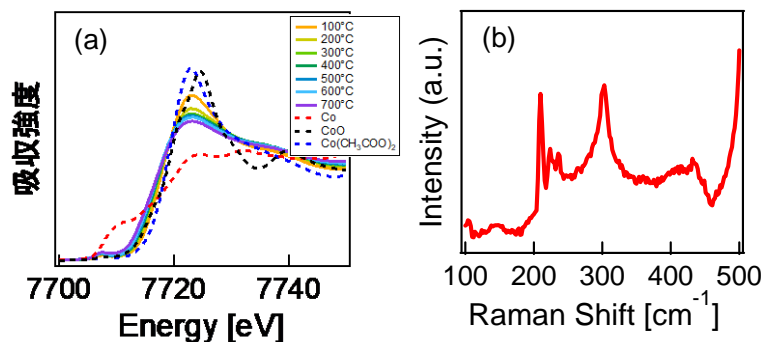


図 1 (a) Ar/H₂ をキャリアガスに用いて昇温中のその場 XANES スペクトルと (b) 成長後のラマンスペクトル。

4. 参考文献

1. H. Yoshida et al. Nano Lett. 8 (2008) 2082.