



高密度 CNT 成長用触媒の化学状態の 加熱時間および下地金属依存性

Chemical state dependence of high-density CNT growth catalyst on heating time and support material

JASRI¹, 連携研究体グリーンナノエレクトロニクスセンター/産総研²

○高嶋 明人¹, 泉 雄大¹, 池永 英司¹, 室 隆桂之¹, 川端 章夫², 村上 智², 二瓶 瑞久², 横山 直樹²,

JASRI¹, Collaborative Research Team Green Nanoelectronics Center (GNC)/AIST²,

○Akito Takashima¹, Yudai Izumi¹, Eiji Ikenaga¹, Takayuki Muro¹, Akio Kawabata², Tomo Murakami²,

Mizuhisa Nihei², Naoki Yokoyama²,

E-mail: takashima.a.aa@spring8.or.jp

カーボンナノチューブ(CNT)は高い熱伝導率を持っているが、これを半導体素子の放熱材料として応用するには[1]、従来以上の高密度成長が必要である。我々は最近、熱 CVD 法で CNT を高密度化する手法を開発した (STEP 成長法) [2]。STEP 成長法では、触媒を 800℃まで昇温する過程において、450℃という比較的低温から原料ガスを導入する。この手法により、800℃で初めて原料ガスを導入した場合と比較して 15 倍の CNT 密度を達成した。Fe を触媒とする熱 CVD 法では、初期に酸化されている触媒金属が還元されることによって触媒が活性化するという報告がある[3]。STEP 成長法においても 450℃で既に触媒金属が還元され、さらにこの触媒の還元は、下地金属が触媒の酸素を吸収することによって促進されていることを前回の応用物理学会で報告した[4]。前回の結果では、下地金属の還元作用は Ti と Al を比較した場合、Ti の方が高い事が分かったが、450℃での反応の速さの違いについては明らかではなかった。下地金属による還元の速さは、熱 CVD 法で CNT を成長させる際、どのタイミングで原料ガスを導入するのが最も適切なのかを判断する手がかりとなると期待される。

そこで、本研究では SPring-8 の BL47XU の硬 X 線光電子分光 (HAXPES) を用いて、STEP 成長法で用いている Fe (2 nm) /Ti (1 nm) /Si (以下 Fe/Ti) と、Fe (2 nm) /Al (1 nm) /Si (以下 Fe/Al) のそれぞれの触媒金属と下地金属の加熱時における化学状態の時間依存性を調べた。SPring-8 の高輝度光源を用いることで、例えば Fig. 1 の様に Fe の光電子分光スペクトルを 2.4 min 毎に測定することが可能となる。

Fig. 1 は、真空中で Fe/Al 試料を室温から 275℃、450℃と加熱した時の温度依存のスペクトル変化と 450℃に到達後にその温度を保持し続けた状態での時間依存を示している。450℃に達した段階では Fe は FeO の成分が支配的なのに対し、加熱時間が増大するとともに Fe の還元が進行し、約 2 時間後には Fe metal の成分が支配的になることが分かる。本公演では、Fe/Al に加え Fe/Ti の加熱時間の依存性も交え、より詳しく議論する。

本研究は、日本学術振興会 (JSPS) の最先端研究開発支援プログラム (FIRST) により助成を受けたものである。

[1] M. Nihei *et al.*, IEDM Tech. Dig., 2012, p. 797.

[2] A. Kawabata *et al.*, MAM2013.

[3] S. Hofmann *et al.*, *J. Phys. Chem. C* **113**, 1648 (2009).

[4] 高嶋 明人 他, : 第60回応用物理学会春季学術講演会 講演予稿集, 2013, 28a-G12-2

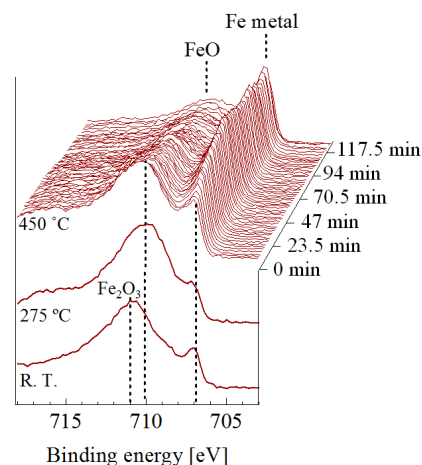


Fig. 1 Fe/Al における Fe 2p_{3/2} の室温、275℃の光電子分光スペクトルと、450℃での時間依存分解光電子分光スペクトル。1 スペクトル当たりおよそ 2.4 min で測定。