

ミスト触媒 CVD 法を用いた CNT 成長における塩素ガス効果

Effects of chlorine gas on the CNT growth by a mist catalyst CVD method

○木下 聖也¹、苅田 基志¹、中野 貴之¹、井上 翼¹、長岡 宏一²、三輪 鉄春²、宮林 孝行²

(1. 静大院工、2. JNC 石油化学)

○T. Kinoshita¹, M. Karita¹, T. Nakano¹, Y. Inoue¹, H. Nagaoka², T. Miwa², and T. Miyabayashi²

(1. Shizuoka Univ., 2. JNC Petrochemical)

E-mail: kinoshita@cnt.eng.shizuoka.ac.jp

【はじめに】CNT 応用において CNT の長尺化は重要な課題である。これまでの研究で、減圧ミスト触媒 CVD 法において、塩素ガスを添加することで CNT が長尺化することが分かってきた。さらなる CNT 長尺化のため、CNT 成長プロセス中の塩素ガス効果の検証を行った。

【実験】本研究では、フェロセンとエタノールを溶解させたものを触媒溶液として使用した。この触媒溶液をミスト発生装置によって霧化し装置内に供給した。高温に保たれた反応部に触媒ミストが達すると、配置した基板上に触媒粒子が形成された。その後、触媒供給を停止し、アセチレン、アセトン、塩素、アルゴンを 20 min 供給することで CNT を成長させた。本方法では、触媒形成と CNT 成長の 2 ステップを装置内で連続的に行うため、試料中の不純物が極めて少なくなる。CNT 成長プロセス中の塩素濃度を変化させて塩素ガス効果を調査した。

【結果】図 1(a)および(b)は、全ガス供給量に対して塩素濃度を 0 および 1500 ppm として合成した MWCNT の SEM 像である。(a)の塩素を供給しなかった時に比べ、(b)の塩素を供給した時の方がアレイ長が増加していることが分かる。また、図 2(a)-(c)に示したように、塩素濃度を増加させることによって CNT の本数密度が減少し、CNT 平均径および G/D 比が増加していることが分かる。

塩素により基板上的鉄原子の熱拡散が促進され、粒子の熱凝集とそれに伴う粒子数の減少が起こり、結果として CNT の数密度の減少と平均径の増加につながったと考えられる。また、CNT の成長レートが増加しているにも関わらず、CNT の結晶性が増加しているのは、塩素に

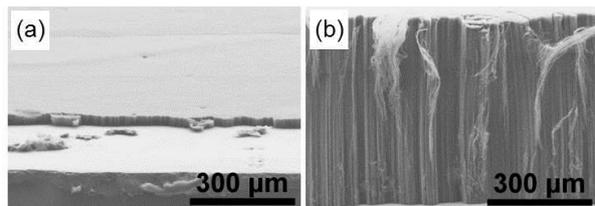


Fig.1 SEM images of MWCNT array grown (a)without chlorine and (b)with chlorine.

よって触媒粒子とそれから析出する CNT のグラフェンレイヤーの格子整合性が緩和されたことが要因であると考えられる。

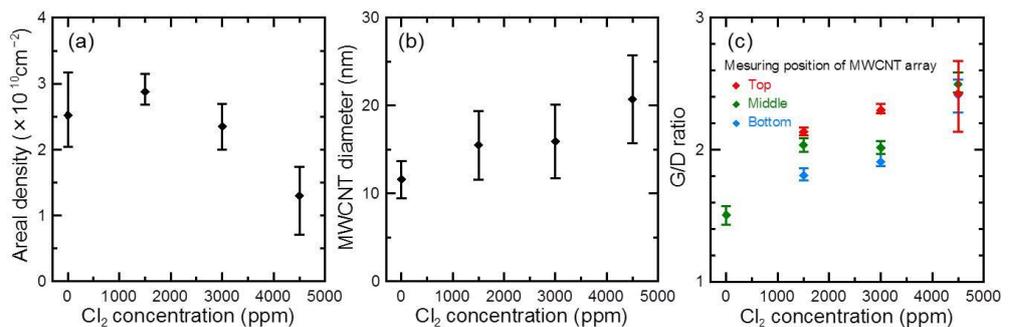


Fig.2 Dependence of chlorine concentration of (a)areal density, (b)mean diameter and (c)G/D ratio of CNTs.