(6,4) 単層カーボナンノチューブの選択成長におけるプラズマ中活性種の効果

Effects of Reactive Gas Species in Plasmas on Preferential Synthesis of (6,4) Single-Walled Carbon Nanotubes

東北大院工¹, JST さきがけ², ^O志摩 拓哉¹, 許 斌¹, 金子 俊郎¹, 加藤 俊顕^{1,2}

Dept. of Electronic Eng., Tohoku Univ.¹, JST PRESTO.²,

^oTakuya Shima¹, Bin Xu¹, Toshiro Kaneko¹, Toshiaki Kato^{1,2}

E-mail: takuya.shima.p6@dc.tohoku.ac.jp

単層カーボンナノチューブ(SWNTs)はその特異な一次元構造に由来する様々な優れた特性を持つことから特に,次世代光電子デバイス用高性能素子への利用が期待されている.しかし,SWNTsの光電気特性はグラフェンシートの螺旋度で定義されるカイラリティにより大きく左右されるため,カイラリティ制御が重要な課題となっている.この課題に向けて我々は,触媒の表面状態とカイラリティの相関に着目し,触媒の表面状態を精密に制御することで,発光効率が最も高い(6,4)SWNTsの高純度合成に世界で初めて成功した [1].そこで本研究では,(6,4)SWNTsの更なる純度向上を目的に,(6,4)SWNTs成長とプラズマCVD条件の相関解明を目指し系統的な実験を行った.

SWNTs の合成には我々の開発した拡散プラズマ CVD 装置を用いた [2].また,触媒の表面状態 制御手法を用いて(6,4)SWNTs の高純度合成を行った.この手法では,SWNTs の合成前に高真空下 で微量の反応性ガスを導入しつつ熱処理を行うことで,触媒の表面酸化度を調整することができる. SWNTs のカイラリティ分布は蛍光-励起マッピング(PLE)により測定した.(6,4)SWNTs 選択成長とプ ラズマ CVD 条件との相関を明らかにするために,CH₄とH₂の混合ガスの比率を変えて実験を行った. その結果,(6,4)SWNTs の純度がプラズマ CVD プロセスにおける CH₄と H₂の混合ガス比に影響を 受けることが明らかとなった(Fig. 1).触媒表面の還元の進展により(6,4)SWNTs の純度が向上するこ とは既に実証しているため,本結果の原因として,プラズマ CVD 中のガス組成の変化により触還元 度が向上した可能性が考えられる.そこで,主に酸化コバルトから構成される触媒前処理を行って

いない触媒を使って同様の実験を行った.その結果,触 媒前処理を行わない場合では,(6,5)に対する(6,4)の PL 強度比に変化が見られなかった (Fig. 1(b)). このことか ら,プラズマ CVD 中ガス組成の変化による(6,4)SWNTs の純度変化は,触媒還元効果以外の作用により発現して いることが明らかになった.詳細は不明であるが,プラ ズマ中の特定の活性種により(6,4)SWNTs のキャップ形 成が促進された可能性等が考えられる.



Fig.1: (a) PLE map of SWNTs grown with H₂ (35%). (b) $I_{(6,4)}/I_{(6,5)}$ as a function of H₂ concentration during plasma CVD. Red and blue curves show catalyst (red) with and (blue) without pretreatment, respectively.

[1] B. Xu, T. Kaneko, Y. Shibuta and T. Kato: Sci. Rep. 7 (2017) 11149

[2] T. Kato and R. Hatakeyama: Nat. Nanotechnol. 7 (2012) 651