## <sup>13</sup>C 同位体を用いた高速層流中での CNT 成長と炭素移動の観察 Observation of isotope carbon transfer on CNT using a gas laminar flow 筑波大数理<sup>1</sup>, 住友電工<sup>2</sup>, 高度情報科学技術研究機構<sup>3</sup> <sup>0</sup>岸部 義也<sup>1</sup>, 松尾 奏<sup>1</sup>, 渡邊 健太郎<sup>1</sup>, 荒木 稜佑<sup>1</sup>, 藤森 利彦<sup>2</sup>, 山下大之<sup>2</sup>, 日方 威<sup>2</sup>, 赤田 圭史<sup>1</sup>, 手島 正吾<sup>3</sup>, 小野木 伯薫<sup>2</sup>, 藤田 淳一<sup>1</sup> Univ. of Tsukuba<sup>1</sup>, Sumitomo Electric Industries, Ltd.<sup>2</sup>, Research Organization for Information Science & Technology<sup>3</sup> 'Yoshiya Kishibe<sup>1</sup>, Kanade Matsuo<sup>1</sup>,Kentaro Watanabe<sup>1</sup>,Ryosuke Araki<sup>1</sup>, Toshihiko Fujimori<sup>2</sup>, Daiji Yamashita<sup>2</sup>,Takeshi Hikata<sup>2</sup>, Keishi akada<sup>1</sup>,Syogo Tejima<sup>3</sup>, Takamasa Onoki<sup>2</sup>,Jun-ichi Fujita<sup>1</sup> E-mail: s2020262@s.tsukuba.ac.jp

我々は長尺かつ高品位な CNT 線維の連続的な合成手法として、高速キャリアガス層流中へのフェロセ ンミスト噴霧による CVD 合成法を試みている。これまでに長さ数 cm の高品位な CNT が線維状に伸長 した結果を報告しているが、その成長機構の詳細な理解には至っていない。そこで本研究では CNT 成長 の際に炭素同位体(<sup>13</sup>C)を用いた同位体ラベリングによって CNT の成長過程を追跡し、CNT のラマンマ ッピング解析から鉄微粒子触媒を経由した炭素移送を調べ、その成長メカニズムを調べた。

実験ではチオフェンを助触媒としたフェロセンを<sup>12</sup>C エタノールに混ぜ,混合溶液をミスト化して CVD 合成の原料とした。炉管終端部の温度領域が約 960°Cの領域に、Si 酸化膜基板を設置して CNT を捕集し た。キャリアガスとして 1L/min.の Ar ガスを流しながら、最初に、<sup>12</sup>C エタノール・フェロセンミストを 噴射し、<sup>12</sup>C-CNT の成長を成長させた。その後、<sup>13</sup>CH<sub>3</sub><sup>12</sup>CH<sub>2</sub>OH ミストを 40µL 噴射して <sup>13</sup>C-CNT の継続 成長を 3 分間行った。合成後の基板表面のラマンマッピングを Fig. (a)に示す。ここで A が CNT 基部に 存在する触媒粒子で、CNT の成長起点となっている。B 位置の CNT はラマンピーク位置(1590cm<sup>-1</sup>)か ら、最初に投入した <sup>12</sup>C エタノールを起源とした <sup>12</sup>C-CNT であることが分かる。しかし、Fig. (b)に示す ように、A の鉄微粒子に近づくにつれ、青で示す <sup>13</sup>C が 50%混合した CNT の G バンドピーク(1560cm<sup>-1</sup>) 位置にシフトいく(Fig. (c))。この遷移領域の長さが約 30µm なので、この条件での CNT 成長速度が約 10µm/min.であることが分かる。反応炉管の内径は 2cm なので、鉄微粒子の直径を 2nm と仮定した場合、 鉄微粒子に到達した炭素原子数は 8×10<sup>6</sup> 個である。一方で実際確認された遷移幅は約 30µm であり、こ の CNT を構成する炭素数は 5.4×10<sup>6</sup> 個と見積もられ、吸収移動が高効率で起きているように見える。 謝辞:本研究は、防衛装備庁安全保障技術研究推進制度 JPJ004596 の支援を受けて実施した。



Figure (a) Raman map of G-spectrum on <sup>12</sup>C-CNT (red) and <sup>12</sup>C-<sup>13</sup>C mixed CNT (blue). (b) Raman shift at each position from A to B. (c) Raman G-peak spectra at each position.