

キャリアガスによる SWCNT 成長中の Co 触媒の化学状態への影響: その場 XAFS 測定による分析

Effect of carrier gas on chemical states of Co catalyst during SWCNT growth: *in situ* XAFS analysis

名城大理工¹, 名城大ナノマテ研² °柄澤 周作¹, 山本 大貴¹,
カマル プラサド サラマ², 才田 隆広^{1,2}, 成塚 重弥¹, 丸山 隆浩^{1,2}

Meijo Univ.¹, Meijo Nanomaterial Res. Center², °Shusaku Karasawa¹,

Daiki Yamamoto¹, Kamal P Sharma², Takahiro Saida^{1,2}, Shigeya Naritsuka¹, Takahiro Maruyama^{1,2}

E-mail: takamaru@meijo-u.ac.jp

はじめに

SWCNT の構造制御の実現には成長メカニズムを理解することが重要であるが、触媒粒子からの SWCNT 生成過程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、成長メカニズムの解明を目指して、アルコール CVD 法による SWCNT 成長において、キャリアガスが Co 触媒の化学状態に与える影響について調べた。

実験方法

BN 粉末と酢酸コバルト四水和物を混合、焼成したのちペレット成型し、XAFS 測定用試料とした。本試料を用いて、成長温度 800°C、成長時間 10 分と固定して Ar 1000 sccm とエタノールガス 25 sccm を供給し SWCNT 成長を行い、昇温時と成長中に Co K 吸収端の XAFS 測定を行った。測定はあいち SR にて行った。また、昇温中のキャリアガスを Ar(1000 sccm)、Ar(970 sccm)/H₂(30 sccm)、および Ar(1000 sccm)/O₂(1 sccm)のそれぞれに対して実験を行い比較した。成長後の試料を Raman、TEM、および SEM を用いて評価を行った。

結果と考察

図 1 (a), (b)に Ar 下で SWCNT 成長を行った時の XANES スペクトルと LCF(linear combination fitting)による解析結果を、また、(c), (d)に Ar/O₂ 下で SWCNT 成長を行った時の XANES スペクトルと LCF による解析結果を示す。どちらのキャリアガスを用いた時でも成長時には Co の大部分が炭化している様子が見られた。また、Ar/O₂ を用いた時には成長中に金属 Co の割合が徐々に増えていった。成長開始直前に Ar 下では Co、Ar/O₂ 下では CoCO₃ が支配的であったことから、成長中の化学状態に変化が生じたと考えられる。また、SWCNT 成長量は Ar/O₂ を用いた方が多かった。当日は Ar/H₂ の結果も踏まえ議論を行う。

謝辞

本研究の一部は私立大学研究ブランディング事業

“新規ナノ材料の創製による名城大ブランド構築プログラム”，科研費基盤 (B)，および文科省ナノテクノロジープラットフォーム事業(分子・物質合成)の支援を受けて行なった。

参考文献

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

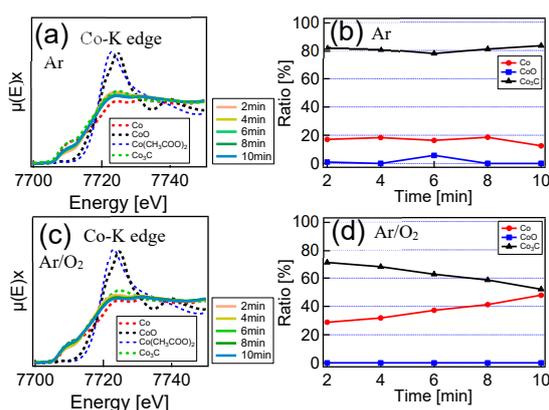


Fig.1 *In situ* XAFS spectra during SWCNT growth under (a) Ar and (c) Ar/O₂ carrier gases, and composition change during SWCNT growth under (b) Ar and (d) Ar/O₂ carrier gases.