

同心ヘテロ構造のための外層カーボンナノチューブの高結晶性合成

Highly Crystalline Growth of Outer-Wall CNTs for Coaxial Heterostructure

阪大工, °井ノ上 泰輝, 清水 一理, 小林 慶裕

Osaka Univ., °Taiki Inoue, Makoto Shimizu, Yoshihiro Kobayashi

E-mail: inoue.taiki@ap.eng.osaka-u.ac.jp

ナノチューブ (NT) 物質として知られるカーボン NT (CNT) や窒化ホウ素 NT (BNNT) は、通常、微粒子を起点とした化学気相成長 (CVD) により合成される。一方、NT の表面をテンプレートとした CVD により原子層を被覆成長することで、外層に追加の NT を形成することも可能である[1-3]。このテンプレート合成では異種の NT 物質を複合化したヘテロ NT 構造を形成可能であり、微細同心構造デバイス[3,4]の発展が期待される。しかし、微粒子から合成した CNT と比べ、テンプレート合成による外層 CNT の結晶性は低い[2,5,6]という課題がある。外層 CNT を金属的な電極や半導体的なチャンネルに応用するためには、高結晶性の外層 CNT の実現が望まれる。本研究では、外層 CNT を活用したヘテロ NT のデバイス応用に向けて、合成・構造分析に適したテンプレート基板の構築を確立するとともに、外層 CNT の結晶性に対する合成温度の影響を調べた。

外層 CNT 合成のテンプレートとして、架橋配向単層 CNT と BNNT 薄膜の 2 種を用意した。架橋配向単層 CNT は、高温合成と透過型電子顕微鏡 (TEM) 直接観察に適合するように、カーボン材料の微細加工、水晶上に配向合成した単層 CNT の転写、および臨界点乾燥により特殊基板上に形成した。BNNT 薄膜[6]は、市販の BNNT 粉末を用いて減圧濾過により形成した。これらのテンプレートを用い、光加熱型 CVD 装置により合成温度 1000–1800°C でメタンを炭素源として外層 CNT を合成した。得られたサンプルの構造を TEM やラマン分光法などにより分析した。

架橋配向単層 CNT をテンプレートに用いて 1700°C で外層 CNT 合成を行ったサンプルの TEM 像を Fig. 1 (a)に示す。多層 CNT 構造が観察され、単層 CNT 周囲に外層 CNT が形成されたことが分かった。本テンプレート構造が高温合成と直接 TEM 観察に適合することが確認された。今回のテンプレートは CNT であるためホモ構造の多層 CNT を得たが、同手法はヘテロ構造合成にも適用可能である。次に、BNNT 薄膜をテンプレートに用いて異なる合成温度で得られたサンプルのラマンスペクトルを Fig. 1 (b)に示す。G バンドと D バンドの強度比 I_G/I_D は、高い合成温度ほど増加し、1800°C において 10 に達した。先行研究の 1000°C 程度で合成された外層 CNT の I_G/I_D が 1.0 程度[5,6]であることとも比較し、高結晶性の外層 CNT 形成における高温合成の有効性が示された。

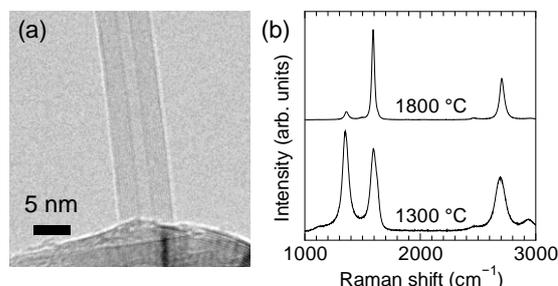


Fig. 1 (a) TEM image of outer-wall CNTs grown on a single-walled CNT template. (b) Raman spectra of the samples of outer-wall CNT growth at 1300°C and 1800°C on a BNNT film template.

- [1] W.K. Hsu et al., *Appl. Phys. Lett.* **77**, 4130 (2000).
 [2] K. Li et al., *Sci. Rep.* **3**, 2353 (2013). [3] R. Xiang et al., *Science* **367**, 537 (2020). [4] Y. Feng et al., *ACS Nano* **15**, 5600 (2021). [5] S. Furusawa et al., *ACS Nano* **16**, 16636 (2022). [6] M. Kato et al., to be submitted.