

## 単層カーボンナノチューブ生成における アブレーションレーザーの強度効果

(近畿大理工) ○手柴雅臣, 若林知成

[序論] レーザーアブレーション法では、加熱炉の温度やバッファガスの流速など様々な実験パラメーターが単層カーボンナノチューブ (SWNT) の成長に影響を与えることが知られている[1]。本研究ではさらなる直径制御の可能性や、より高純度な SWNT 試料を得るための条件を探索するために、レーザーアブレーション法によって生成される SWNT 試料に対して、レーザー強度が与える影響について調べた。その結果、比較的純度の高い SWNT 試料が得られる条件がわかったので報告する。

[実験] グラファイトパウダーに NiO, Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> をそれぞれ 0.6 at% ずつ加え、米国アレムコ社製 GRAPHIBOND<sup>®</sup> で粘土状にして成形し、乾燥器 (200°C) で約 24 時間乾燥させた。その後、アルゴン気流中 (70 ml/min) において電気炉 (1100°C) で約 6 時間加熱乾燥させペレットを作製した。作製したペレットを石英管内に設置し、Ar ガスを流しながら (70 kPa, 3.0 mm/s) 電気炉 (1100 °C) を用いて昇温した。ペレットをモーターで回転させながら、その端面にパルスレーザー光 (Nd:YAG 532 nm, 10 Hz, 5 ns) を集光しアブレーションを行った。得られた SWNT 試料に対してラマン分光測定 (励起波長 532 nm)、走査型電子顕微鏡 (SEM)、及び、透過型電子顕微鏡 (TEM) 観察を行った。

[結果と考察] Figure 1 に異なるレーザー強度で作製した SWNTs のラマンスペクトルを示す。300 mJ/pulse で作製した SWNTs のラマンスペクトル(c)では G-peak (1590 cm<sup>-1</sup>) および RBM (Radial Breathing Mode 190 cm<sup>-1</sup>) がともに他の SWNTs のスペクトルより強く観測された。RBM のピーク振動数から、直径が約 1.3 nm の SWNTs が特異的に生成しやすい条件であったことを示している。一方、それ以外のレーザー強度 (a), (b), (d), (e) では、SWNTs の生成が認められるが、いずれも G-peak の低振動数側に金属ナノチューブに由来する幅広いバンド (BWF : Breit-Wigner-Fano shape) がみられる。このことは、RBM 領域に 220 cm<sup>-1</sup> の振動数をもつより細かい金属ナノチューブの信号が確認できることと矛盾しない。レーザー強度の違いによる RBM パターンを比較すると、振動数 190 cm<sup>-1</sup> の半導体ナノチューブの他に、レーザー強度の高い (a) では細かい金属ナノチューブ (220 cm<sup>-1</sup>) が認められるが、レーザー強度の低い (e) では振動数 168 cm<sup>-1</sup> をもつより太い半導体ナノチューブの生成が顕著になってくることがわかる。すなわち、レーザー強度の減少とともに、生成する SWNTs の直径分布が、より細いものから太いものへと系統的に変化することが示唆される。

300 mJ/pulse では、直径分布の平均値が RBM 振動数  $190\text{ cm}^{-1}$  の半導体ナノチューブに一致したために比較的多く生成し、ラマン強度が例外的に強く現れたものと考えられる。

ラマン分光測定では SWNTs 中のアモルファスカーボンの存在量を知ることはできない。そこで、SEM 及び TEM を用いて SWNTs のアモルファスカーボンの存在量を観察したところ、300 mJ/pulse で作製した SWNTs が比較的純度が高いことがわかった。

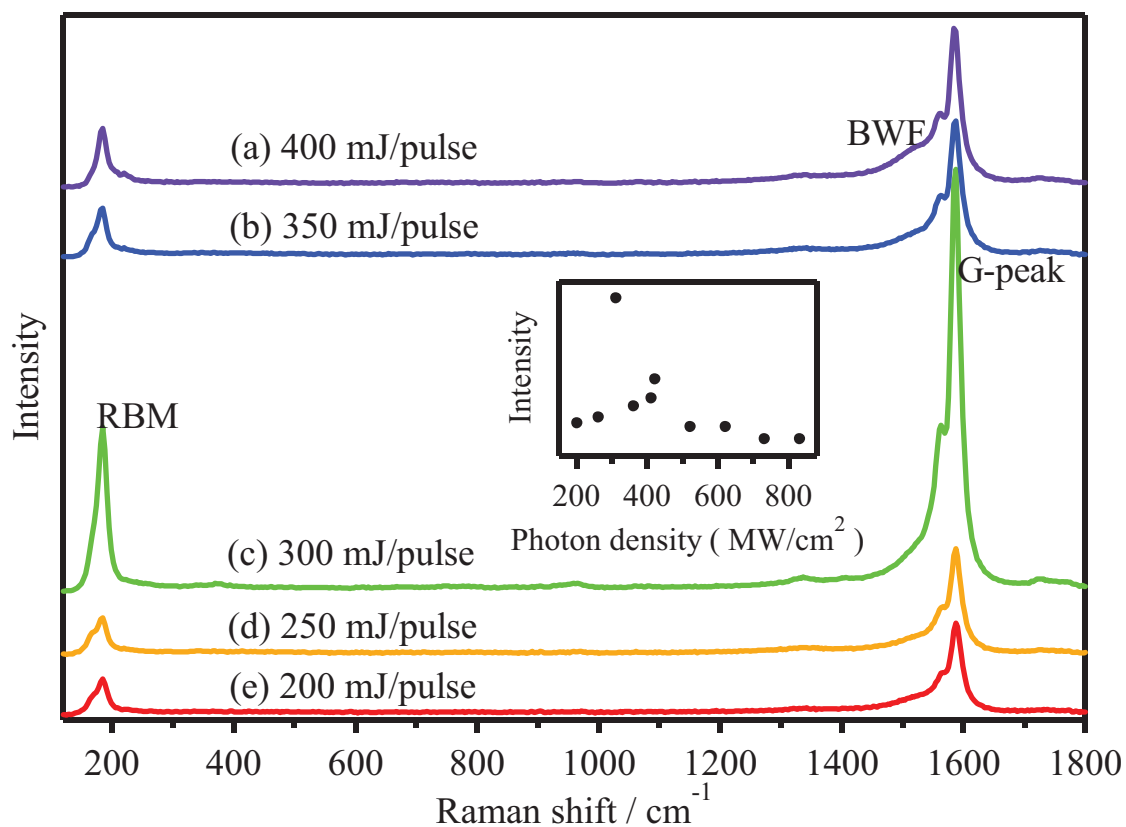


Figure 1. 異なるレーザー強度で作製した SWNTs のラマンスペクトル. 挿入図は光子エネルギー密度に対して G-beak の強度をプロットしたもの. 図中(c) の試料が挿入図の  $310\text{ MW/cm}^2$  の点に対応する.

[1] H. Kataura, Y. Kumazawa, Y. Maniwa, Y. Ohtsuka, R. Sen, S. Suzuki, Y. Achiba, Carbon 2000;38:1691.