

## 3D04

### カーボンナノチューブの選択的成長シナリオ

(首都大院・理工<sup>1</sup>、産総研<sup>2</sup>) 阿知波洋次<sup>1</sup>、井上亮人<sup>1</sup>、児玉拓也<sup>1</sup>、児玉健<sup>1</sup>、橋本健朗<sup>1</sup>、城丸春夫<sup>1</sup>、岡崎俊也<sup>2</sup>

### Chirality Selective Growth Process of Carbon Nanotubes

(Tokyo Metropolitan University<sup>1</sup>, AIST<sup>2</sup>) Yohji Achiba<sup>1</sup>, Akihito Inoue<sup>1</sup>, Takuya Kodama<sup>1</sup>, Takeshi, Kodama<sup>1</sup>, Kenro Hashimoto<sup>1</sup>, Haruo Shiromaru<sup>1</sup>, Toshiya Okazaki<sup>2</sup>

はじめに

単層カーボンナノチューブ(SWNT)の大きな特徴は、6員環の配列が生み出すカイラリティにある。とりわけ1本ごとのSWNT電子物性は、チューブ構造を構成する壁面の6員環ネットワークが作り出すカイラリティにより、決定される。チューブ構造をこうしたカイラリティの違いにより大別すれば、金属型、半導体型に分別され、半導体型はさらにカイラリティの違いにより、半導体ギャップエネルギーが変化する。したがって、SWNTの一本ごとに異なる電子物性を最もファインに利用するには、カイラリティごとのSWNTの分別が必要不可欠となる。カイラリティごとのSWNTの分別には、1)化学的分離法により単離する、2)特定のカイラリティチューブを選択的に作成する、の2通りの手法がある。このうち、1)の化学的分離手法は、過去数年間で急速に進歩し、多段階のステップを踏めば、単一カイラリティチューブの単離も可能な状態になっている。さらに、化学的に単離された半導体型単一カイラリティチューブを用いた電子デバイスとしての特性も実験的に明らかにされ、優れたトランジスター機能をしめしている。一方、2)の手法におけるアプローチにおいては、特定のカイラリティ(n,m)をもつSWNTの選択的生成機構やその作成法の解明は、未だなされておらず、SWNT分野において、もっとも重要な、解決すべき問題となっている。本講演では、SWNTの成長機構に視点を置きながら、選択的SWNT作成法の可能性を議論する。

実験

SWNTの作成の実験はすべてレーザー蒸発法を用いて行った。レーザー蒸発法では、ナノチューブの材料となる原子状炭素数を一定にして、チューブ成長時の温度、圧力、触媒金属の混合比等、種々の実験パラメーターを変化させることが可能である。本研究では、温度 650-1250°C 25°C刻み、圧力 25-800torr 50torr刻み、金属触媒比 Rh<sub>1</sub>/Pd<sub>x</sub> x=2.0-0 0.1刻み、の各条件下でSWNTの作成を行った。生成したSWNTは一定条件のもと、界面活性剤SDBSを用いて水溶液中に分散させ、その吸収スペクトル、発光スペクトル測定により、SWNT生成量の半定量分析を行い、カイラリティ分布の評価をした。

## 結果と考察

金属触媒として Rh あるいは Rh/Pd、2 元金属触媒を用いて SWNT の作成を行い、反応温度、混合触媒比の効果を検討した。図 1 には電気炉温度 975°C 下で Rh に対する Pd 混合比 ( $\text{Rh}_{1.0}\text{Pd}_x$   $x=0-2.0$ ) を変化させながら SWNT を作成し、カイラリティ分布がどのように変化するか発光スペクトルの解析から得られた結果の一部を示す。

Rh 単体触媒における SWNT の生成においては、975°C の温度下においては、チューブの生成は、(7,6)、(8,6) を中心に分布しているのに対し、Pd の添加量の増加に伴い、同一の温度条件下でも生成するチューブのカイラリティ分布は次第に直径が細く、より near armchair 構造に近い方へシフトしていく様子がわかる。たとえば、(n,m) において  $n+m=12$  ファミリーである (7,5)、(8,4)、(10,2)、(11,1) で比較すると、Pd 増加に伴い、(10,2)、(11,1) 等の near zigzag 構造の生成が急速に減少していく。この傾向は  $n+m=11$  ファミリーでより顕著になり、Pd 添加量が最大の混合比において、ほぼ (6,5) チューブのみの SWNT 生成になる。図 2 には、(6,5) チューブの生成の選択性が最大になるよう調整した温度、圧力、混合比の条件のもとで作成した SWNT の吸収スペクトルを示す。図から明らかなように、生成したチューブの 90% 以上は、(6,5) チューブのみから構成され、きわめて高い選択的チューブ合成条件であることがわかる。

(6,5) チューブ生成における高い選択性はカーボンナノチューブの生成機構の解明と直結したきわめて興味深い事柄であり、発表では (6,5) チューブの成長反応の特異性と触媒金属の役割について議論する。

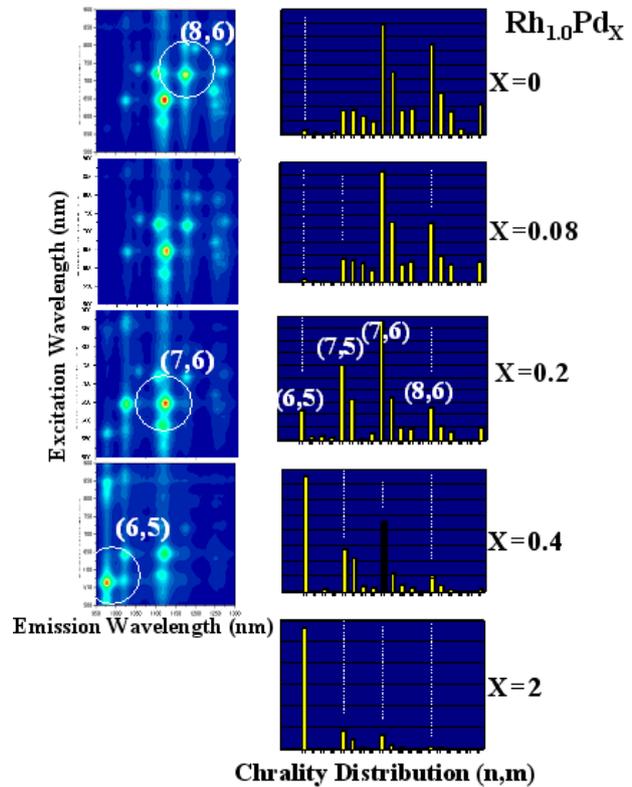


図 1. SWNT のカイラリティ分布に及ぼす Pd 添加効果

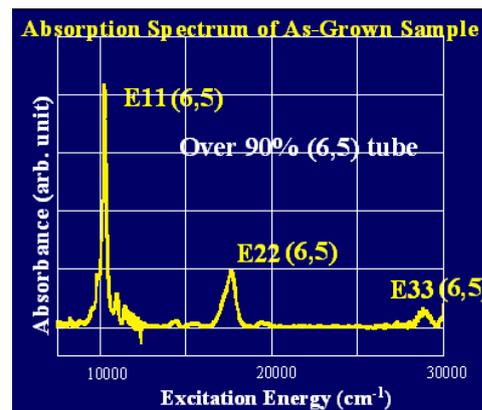


図 2. (6,5) チューブ生成最適条件下で作成した SWNT の吸収スペクトル