

(首都大都市教養¹、都立大院理²、都立大理³、産総研⁴)

鈴木信三¹、牧田靖規²、朝井信行²、一関健太郎³、片浦弘道⁴、阿知波洋次¹

【序】我々はこちら数年間にわたり、単層カーボンナノチューブ(SWNT)の成長機構を詳しく調べることによって、効率の良いSWNTの大量作製法や成長制御の方法を探索している。今回の発表では、二重レーザー蒸発法を用いて、金属微粒子と炭素源を別々に生成した後に、高温不活性ガス雰囲気下で混合してSWNTを作製した結果について、高速ビデオカメラを用いた画像観察の結果と合わせて議論する。またアーク放電法において、放電部の温度制御を積極的に行うことにより、得られるチューブの直径分布をある程度制御できる、と考えられる実験結果を得たので、その点についても報告する。

【実験方法】実験方法の概要については参考文献を参照されたい[1-5]。

【結果と考察】(1)二重レーザー蒸発法：二重レーザー蒸発法とは、単層カーボンナノチューブ(SWNT)を生成するのに必要な金属微粒子と炭素源を、別々のレーザーで蒸発して生成し、高温不活性ガス雰囲気下で混合してSWNTを作製する方法である。この方法では、2つのレーザーの時間差を変化させることにより、SWNTの作製に関して金属微粒子がどのようなタイミングで寄与しているのかを調べることが可能になる。予備的な実験結果については既に論文で報告しているが[1]、本研究では他の生成法(アーク放電法やCVD法、通常の高圧雰囲気下におけるレーザー蒸発法など)との詳細な比較を行うために、金属源として通常良く用いられるNi/Coの合金ロッド、炭素源としてグラファイトロッドを用いた。電気炉によって設定された雰囲気温度は800と1000の2種類、雰囲気ガスとしてAr 600torrの条件を用いた。2つのレーザーの時間差(t)を(グラファイト試料の蒸発から合金試料の蒸発までの時間差として)0 msec ~ 50 msecまで変化させた。なお、それぞれの蒸

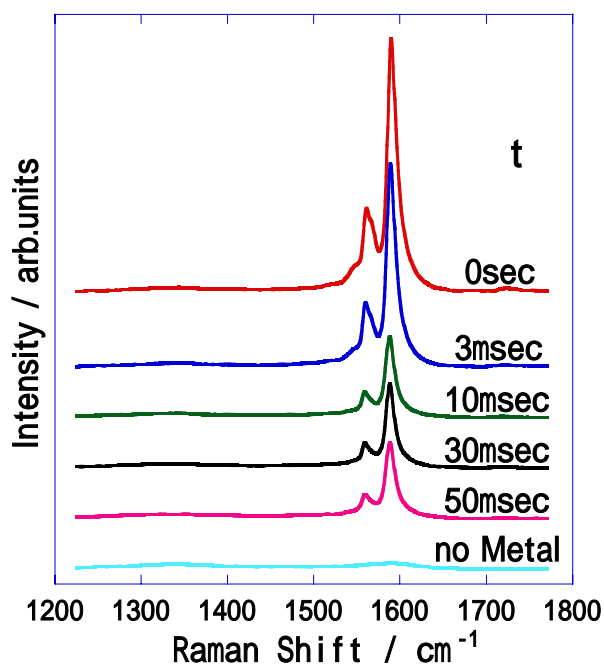


図1 .

発用レーザーの繰り返し周波数は、蒸発した金属微粒子や炭素微粒子に、同じ蒸発用レーザー光が再びあたることのないように、0.8 Hz程度まで繰り返し周波数を下げて実験を行っている。

図1に、1000の雰囲気温度で、2つの蒸発用レーザーの時間差を0 msec ~ 50 msecまで変化させて作製したスス中に含まれるSWNTのラマンスペクトルの結果を示す。図から分るように、SWNTの生成量は、0 ~ 3 msecの時間差のところが多く、10 msec以降は減少する。800の場合も同じ傾向を示し、特に10 msec以降ではSWNTの生成はほとんど認められなかった。同じ装置を用いて調べられたフラーレ

ンの生成時間スケールがミリ秒程度であることが、高速ビデオカメラを利用した実験結果から示唆されており[3,5]、今回得られた実感結果との比較を行うことは興味深い。

(2) アーク放電法： 以前に窒素ガス雰囲気下で Ni/Co-炭素混合ロッドをアーク放電するとSWNTの純度が良くなった、という報告を行った[3,4]。その原因として、炭素微粒子や金属微粒子の内部温度が下がっていく様子が、異なる雰囲気ガス中では変わってくる、ということを考えている。アーク放電法では、レーザー蒸発法の場合と異なり、蒸発中心と周辺では温度勾配が大きいいため、その温度勾配を小さくすれば、よりレーザー蒸発法の条件に近づくことが期待される。今回は、窒素ガス雰囲気及びHeガス雰囲気、放電中心の温度勾配を意図的に変化させて、その結果得られるSWNTの純度や直径分布がどう変化するか、について検討を行った。

結果として、窒素ガス雰囲気中では(今回変化させた実験条件の範囲内では)あまり大きな変化が見られなかったのに対し、Heガス雰囲気中では条件によって大きな変化が見られる場合が存在した(図2参照。実線が今回変化させた条件で得られたSWNTによるラマンスペクトル)。このことから、アーク放電法においては、同じ圧力で比較した場合に、窒素ガス雰囲気中よりもHeガス雰囲気中の方がSWNTの生成・伸長する領域が広がっているのではないかと考えている。

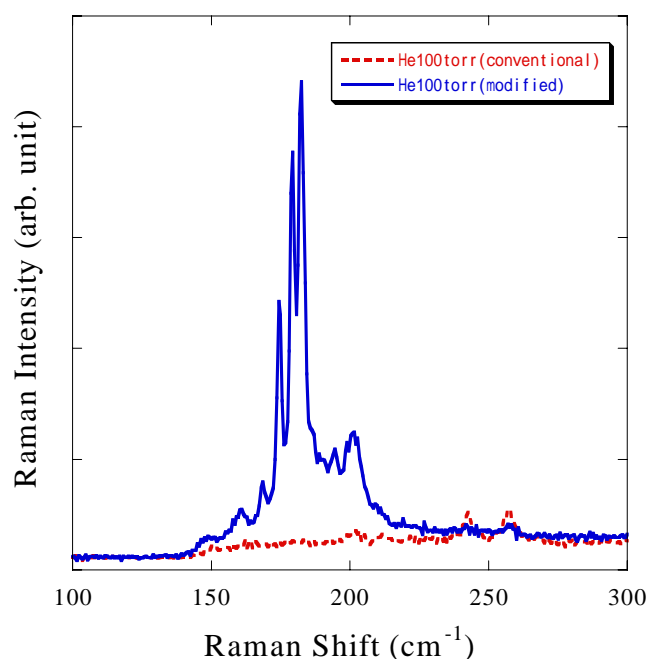


図2 .

【謝辞】 本研究の一部は、産業技術研究助成事業 (N E D O) 及び日本学術振興会科学研究費の補助を受けて行われた。

【参考文献】

- [1] S. Suzuki et al., *Eur. J. Phys. D.*, **24**, 401(2003).
- [2] S. Suzuki et al., *Abstract of the 28th Fullerene-Nanotube General Symposium*, 2P-25(2005).
- [3] 鈴木他、2004 分子構造総合討論会要旨集、2P042 ; 鈴木、ぶんせき、**4**, 193(2004).
- [4] Y. Makita et al., *Eur. Phys. J. D*, in press.
- [5] S. Suzuki et al., *Eur. Phys. J. D*, **16**, 369(2001).
- [6] D. Nishide et al., *Chem. Phys. Lett.*, **372**, 45(2003).