

分子・物質合成プラットフォームにおける利用成果

カーボンナノチューブ生成初期過程のその場XAFS測定に成功

^a名城大学, ^bKEK PF丸山隆浩^a, 雨宮健太^b

【目的】

SiC(000-1)単結晶を真空中で高温に加熱することにより、SiC表面に高密度に垂直配向した多層カーボンナノチューブ(MWCNT)が生成することが知られている(“SiC表面分解法”)。本手法はzigzag型のCNTのみが生成するので、カイラリティのそろったCNTを作製するために有用であるが、CNTの層数や直径の精密な制御は未だ実現していない。CNTの直径や層数は、SiC表面の分解の最初期に形成されるCNTの先端(カーボンナノキャップ)構造により決定されることから、本研究では、“その場”X線吸収微細構造解析(XAFS)法を用いてカーボンナノキャップの生成過程をリアルタイムで測定し、生成メカニズムの解明を行った。

【成果】

図1に本手法を用いて作製したCNTの透過電子顕微鏡(TEM)像を示す。直径3~5 nm, 2~3層のCNTが高密度に垂直配向していることがわかる。CNTは先端の閉じた構造(カーボンナノキャップ)が最初に形成され、Siの脱離につれて伸びていくことが知られている。そこで、カーボンナノキャップの形成過程を直接的に明らかにするため、高エネルギー加速器研究機構放射光実験施設(KEK PF)においてその場XAFS測定を行った。図2はSiC(000-1)単結晶を、 $\sim 10^{-5}$ Pa程度の真空下で1000°C以上で加熱しながら測定を行ったXAFSスペクトルである。一般に、加熱温度1100~1300°Cでカーボンナノキャップが形成されることが知られているが、1300°C以上でグラファイト類似のスペクトル形状となり、 sp^2 結合から成る結晶構造が形成されていることがわかる。また、 π ピークの相対強度の入射光角度(θ)依存性から、SiC表面の分解初期にはC-C結合がSiC表面平行方向に向いているのに対し、分解が進むにつれ次第に垂直方向に配向を変化させ、キャップ構造が形成されていることが明らかとなった。さらに、最初期には、SiC表面平行方向を向いた微細なグラフェンフレークが形成されていることが示唆された。以上より、最初期に形成されるグラフェンフレークのサイズを変化させることにより、CNT直径の制御が可能であると考えられる。

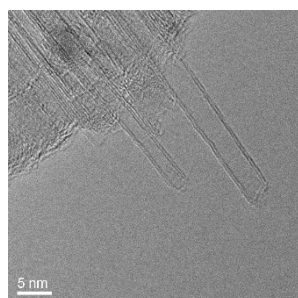


図1 SiC表面分解法により生成したカーボンナノチューブのTEM像

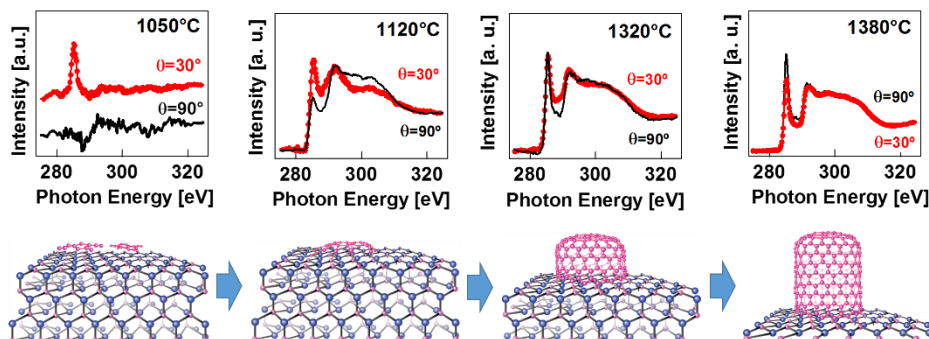


図2 真空中で加熱を行ったSiC(000-1)単結晶表面の“その場”XAFSスペクトルとカーボンナノチューブ生成モデル(図はJ. Phys. Chem. C 119, 26698 (2015)より転載)