# メソポーラスシリカ/Co担持シリコン基板上での 単層カーボンナノチューブの合成

(東大・工) ○(学)剣持勇一 (正)胡 明輝 村上陽一
(正)小倉 賢 丸山茂夫 (正)大久保達也\*

## <u>1. 緒言</u>

配列した単層カーボンナノチューブ(SWNTs)は、低 印加電圧かつ高電流密度を実現する電界電子放出源と なると期待されている。本研究ではSWNTsを配列させ る方法として、メソポーラスシリカ(MPS)薄膜をガイ ドとして用いることを考えた。前報<sup>10</sup>では、MPSの一種 であるSBA-16の薄膜に触媒を含浸させ、エタノール触 媒CVDを行うことでSWNTsを合成している。しかし、 この方法ではMPS薄膜全体に触媒が分散しており、 MPSの細孔を配列場として用いることができない。そ こで、Co触媒の位置を制御するため、スパッタにより Co薄膜を、その上にMPS薄膜を製膜した。MPS薄膜コ ーティングによる、Co薄膜への影響やSWNTsの純度へ の効果等について考察した。

### <u>2. 実験</u>

シリコン基板の熱酸化膜(15nm)上にCo薄膜をスパッ タにより、さらにその上にMPS薄膜をディップコーテ ィングにより製膜した。Co薄膜の膜厚は1~100nmに変化 させた(表1)。 MPS 作製 溶液のモル比は TEOS:EtOH:F127:H2O:HCI=1:40:0.0072:9.2:0.021 とし た。その後、80℃で一晩乾燥させ、500℃で4時間焼成 した。3%H<sub>2</sub>/Arにより還元した後、750℃で10分間エタ ノールを炭素源として触媒CVDを行った。CNTsの評価 は共鳴ラマン分光(励起488nm)、FE-SEM(日立S-900)によ り行った。

### 3. 結果と考察

Co膜厚を10mmとしたときの生成物の典型的なラマ ンスペクトルを図1に示す。図1(a)において、1593cm<sup>-1</sup>付 近にグラファイト由来のGバンドが観察され、CNTsの 合成が確認された。また、1350 cm<sup>-1</sup>付近にダングリング ボンドをもつ炭素原子由来のDバンドがわずかに観察 され、GバンドとDバンドの強度比が高いことから、良 質なSWNTsが合成されていることが分かる。一方、図 1(b)より、MPS薄膜を製膜しない場合にはCNTsが全く合 成されていないことが分かる。(a)、(b)の表面をFE-SEM で観察したものを図2に示す。図2(a)において、MPSの 細孔およびSWNTsが確認された。一方、図2(b)において はCNTsが見られず、Coが凝集しているのが確認された。

次に、SWNTsの高純度生成に与えるCo膜厚および MPS薄膜の影響を検討した。結果を表1にまとめる。Co 薄膜の膜厚が1nmの時にはMPS薄膜無しでもSWNTsが 高純度に合成された。これは、エタノール触媒CVDに おいて、粒子径が1~2nmのCoが高純度のSWNTs生成に 有効であるとする前報<sup>2</sup>と一致する。しかし、膜厚が 20nm以上になると、G/D比が著しく大きくなり、SWNTs の純度が低下した。これは、Coの量が多く、凝集を抑 えきれなかったためであると考えられる。

以上の結果より、MPS薄膜は、Coの凝集を抑制し、 高純度なSWNT合成に寄与しているものと考察する。 謝辞

シリコン基板の提供およびCoのスパッタをご指導い ただきました、当専攻の小宮山宏教授および辻佳子研 究員に感謝いたします。

表1高純度SWNTs生成へのCo薄膜とMPS薄膜の影響.		
Со	MPS薄膜	
膜厚	有り	無し
1nm	SWNTs	SWNTs
10nm	SWNTs	無し
20nm	CNTs	無し
50nm	CNTs	無し
100nm	CNTs	無し



(a):SBA-16薄膜有り、(b):SBA-16薄膜無し



図2 Co展早10mmの場合の表面SEWI家. (a):SBA-16薄膜有り、(b):SBA-16薄膜無し

#### <u>参考文献</u> Mumbomi Vomolai

1) Murakami, Yamakita, Okubo and Maruyama, *Chem. Phys. Lett.*, **375**, 393 (2003) 2)Hu, Murakami, Ogura, Maruyama and Okubo, submitted \*TEL: 03-5841-7348 FAX: 03-5800-3806 E-mail: okubo@chemsys.t.u-tokyo.ac.jp