

カーボンナノチューブ燃焼合成法への DC 電場適用

- 微小重力燃焼による材料気相合成検討 WG の研究例紹介 -

北海道大学 伊東弘行, 藤田 修, 宇宙航空研究開発機構 菊池政雄, 山形大学 奥山正明
東北大学 小林秀昭, 岐阜大学 神原信志

Applying the DC electric field on the carbon nanotube flame synthesis method

-An Activity of Gas Phase Material Synthesis WG-

Hiroyuki Ito¹, Osamu Fujita¹, Masao Kikuchi², Masaaki Okuyama³, Hideaki Kobayashi⁴, Shinji Kambara⁵

1:Hokkaido University, 2:JAXA, 3:Yamagata University, 4:Tohoku University, 5:Gifu University

E-Mail: itohiro@eng.hokudai.ac.jp

Abstract: Flame synthesis method of carbon nanotube(CNT) has been investigated in normal gravity environment with DC electric field. The amount of obtained single-walled CNT(SWNT) was drastically increased by applying the negative DC bias and the captured materials were analyzed by using FESEM, HRTEM, and Raman spectroscopic analysis. It was confirmed that the graphitization of SWNT has been improved by applying the DC bias in the flame method of SWNT.

Key words; Microgravity, Carbon Nanotube, Flame, Synthesis, Electric Field

1. まえがき

燃焼場は高温と燃料の燃焼過程で生じる種々の熱分解成分や活性化学種を併せ持ち、これらを利用した新たな材料合成の可能性を有している。通常重力場における燃焼現象は火炎周りに生じる自然対流が支配的であり、物質の空間への保持や火炎周りの流れの制御が困難であることから、材料合成を緻密なコントロールの下で実施するのは難しい。一方、微小重力場では自然対流を排除できることから、環境条件を制御した新たな材料合成の場として活用できる可能性がある。本研究ではカーボンナノチューブ(CNT)の燃焼合成を取り上げた。微小重力場では通常重力場に比べCNT生成領域が拡大されることが示唆されており[1]、DC 電場印加により CNT 生成量の増加と特徴的な形態のCNTが生成される[2] (図1)ことが明らかとなっている。CNT 生成への DC 電場印加の効果を確認するために行った地上実験の結果を報告するとともに、宇宙実験へ向けた今後の展望および材料気相合成検討 WG の活動予定を報告する。

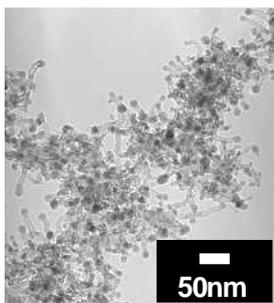


図1 DC 電場印加時に生成した CNT(微小重力場)

2. CNT 燃焼合成への DC 電場印加の効果

微小重力場の拡散火炎に DC 電場を印加することにより CNT 収量が増大する傾向が見られた。本研究では、

CNT 合成への電場印加の効果を確認するため、地上実験を行った。本研究で用いた実験装置の概略を図2に示す。

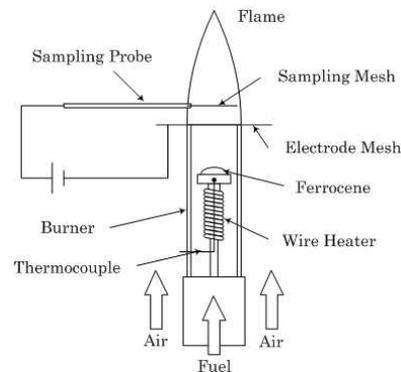


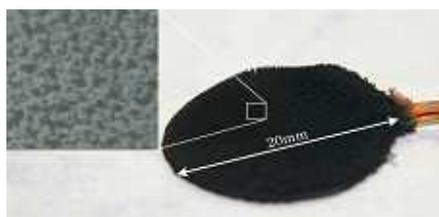
図2 . CNT 燃焼合成装置概略

燃料(15% C_2H_4 +15% H_2 +70% N_2 ; 20mm/sec)を内径 30mm のパイレックスガラス製円管バーナへ供給し、周囲に空気(14mm/s)を供給して火炎を形成した。鉄触媒微粒子を形成する $Fe(C_3H_5)_2$ を火炎上流で昇華して燃料とともに火炎へ供給した。バーナ出口に設置した金網をGNDとし、直径 20mm のステンレス製捕集網に 0~-1.2kV の電圧を印加した。電圧印加および捕集時間は 5min とした。電場を印加しない場合、捕集網上にはほとんど SWNT は観察されなかった。

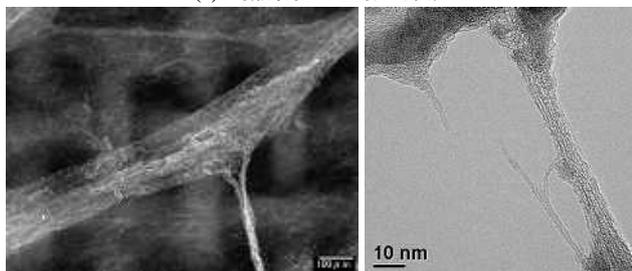
図3に、DC 電場印加により捕集された SWNT の直接写真、FESEM 写真、HRTEM 写真を示す。アモルファスカーボンなど不純物も多く含まれるが、束状に絡み合う大量の SWNT が合成されているのが確認される。

図4に、印加電場強度変化に対するサンプル捕集量の関係を示す。サンプル捕集量は印加電場強度が高くなるほど多くなることがわかる。印加電場が DC-1.2kV になると捕集量が減少するのは、電場印加により火炎が不安定

になる様子が観察されたことから良好なCNT合成条件が形成されなかったことによるものと考えられる。



(a) 捕集物の直接写真



(b) FESEM 写真

(c) HRTEM 写真

図3．DC 電場印加により得られたサンプル

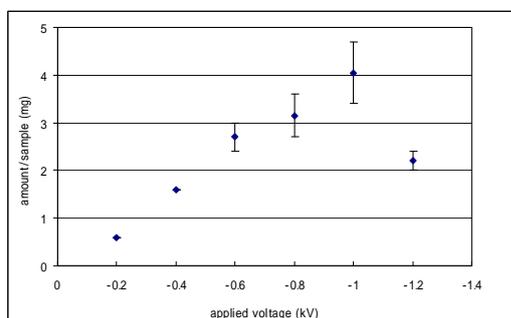


図4．サンプル捕集量への印加電場強度の影響

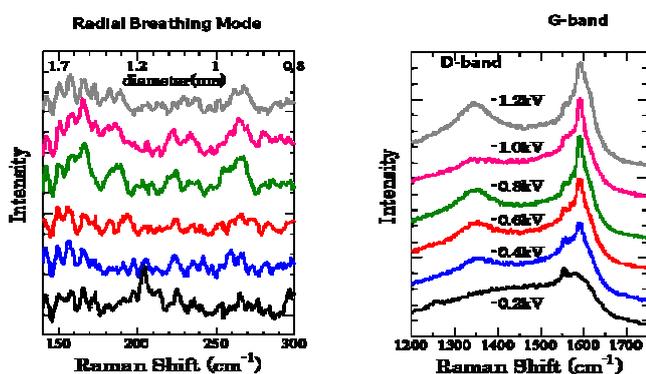


図5．ラマン分光分析結果

図5に、捕集されたサンプルのラマン分光分析結果への印加電場強度の影響を示す。-0.8kV まで電場印加強度が高くなるとグラファイトの結晶度を示すGバンドが高くなり、電場印加により結晶度が改善されていることがわかる。-1.0kV 以上で結晶度が低下に転じるのは上述と同様、火炎の不安定化によるものと考えられる。また-0.8kV 以下で、電場印加強度の増大とともに欠陥由来のピークであるDバンドも増大しているが、これは電場印

加により生じる浮遊粒子の静電誘導による捕集効果が、合成されたSWNTだけでなく煤などの不純物にも作用した結果であると考えられる。本研究におけるCNT合成への電場印加の効果は、上述の捕集効果、成長促進効果[3]、結晶度改善効果[4]などが考えられるが、詳細は明らかにはなっていない。

3．微小重力実験の検討（今後の活動）

SWNT 燃焼合成法に DC 電場を印加することにより収量増大と結晶度改善が実現できるが、そのメカニズム詳細を明らかにする必要がある。DC 電場印加の効果を自然対流という外乱のない環境で実施して調査する。また、さらに進めて微小重力環境の特性を利用した機能性材料の創出を目指す。燃焼法は炉を用いないことから、CNT 生成領域に直接外乱を与えること、すなわちマニピュレートが比較的容易であるという利点を持つ。この特性を活かし、気相で形成される触媒微粒子直径を容易にコントロール出来る、しいてはCNT 直径などを制御できる可能性を有している。一方、地上における燃焼法では火炎周りに生じる強い自然対流により粒子の移動も支配され、粒子径の自在な制御は困難である。従って、浮遊微粒子径などの制御は微小重力環境下でのみ実現できる可能性がある。このように、微小重力環境を利用することによってのみ得られる機能性CNTの可能性を探り、次期「きぼう」船内実験室利用に向けた候補テーマの提案を行っていく。

宇宙実験に先立ち、北海道赤平市に建設された50m級落下施設を利用した予備実験を進める上で必要となる共通支援装置についてWGとして整備を検討する。具体的には、落下カプセル内の映像を地上へ電送するトランスミッタ、落下実験中に指令を電送する機器、搭載する電源および落下カプセル落下前に大電力を供給する電源ケーブル敷設などについて検討を行う。

4．まとめ

SWNT の燃焼合成に DC 電場を印加することにより収量増大と結晶度の改善が見られた。今後、WG として微小重力の特性を利用した材料創出について検討し、予備実験を進める。

謝辞

本研究は平成 20 年度科学研究費基盤研究 C 課題番号 20560176 による支援を受けて行われた。謝意を表す。

参考文献

- 1)伊東，中出，内山，藤田，第43回燃焼シボジ 弘講演論文集(2005)，pp.508-509.
- 2)H.Ito, Y.Nakade, T.Uchiyama, O.Fujita, Japan Society of Microgravity Application, Vol.24, No.3, pp.220-224.
- 3)W.Merchan-Merchan, A.V.Saveliev, L.A.Kennedy, Carbon, 44, 15(2006), pp.3308-3314.
- 4)Q.Bao, C.Pan, Nanotechnology, 17(2006), pp.1016-1021.