

## 無対流高温ガス球まわりでのナノチューブ形成過程の測定（ミー散乱）

静岡大学・理学部 三重野 哲\*、譚 国棟

産業技術総合研究所、高密度エネルギーチーム 薄葉 州

九州大学・システム情報科学院・電子デバイス工学部門 古閑 一憲、白谷 正治

## Measurement of Diffusion and Fusion Process of Carbon Clusters by Mie Scattering

Tetsu Mieno\*, Kokuto Tan Dept. Physics, Shizuoka University

Shu Usuba High Energy Dept., National Inst. Advanced Industrial Sci. &amp; Technol. (AIST)

Kazunori Koga, Masaharu Shiratani Graduate School, Info. Sci. &amp; Electrical Eng., Kyushu University

\*E-mail: piero@sannet.ne.jp

In order to make clear diffusion and fusion process of carbon clusters produced by the arc-discharge method under micro-gravity, *in-situ* measurement of these clusters by the active Mie-scattering method is carried out using a green laser. We could measure strong scattered signals to two scattered angles. Time evolution, pressure, discharge-current and gravity dependences of the scattering are measured. The fusion process is also measured by the Raman scattering method.

Space Utiliz Res, 24 (2008)

© ISAS/JAXA 2008

## 1. はじめに

単層炭素ナノチューブ、炭素カプセル、フラーレンなどの炭素クラスターはアーク放電法で合成される。しかし、これまで、高品質のクラスターの高效率合成は不十分であり製造コストが高い。通常重力下ではヘリウム ( $p \sim 50$  kPa) の大きな熱対流が昇華した炭素原子をプラズマ領域から上部低温領域に輸送してしまい、高温ガス反応時間が短い。図 1 にそのモデル図が書かれている。もし無重力状態でこの熱対流が抑えられれば、昇華炭素は多衝突系の等方熱拡散となり、長時間の合成反応が可能となる。ここに触媒粒子が入っても同様な効果が期待される。[1-4]

我々は無対流状態での高效率合成をめざし、炭素クラスターの拡散、冷却、融合過程のその場観察を試みており、ここではグリーンレーザーを用いた能動的ミー散乱実験 [5, 6] の結果を報告する。微弱信号検出の為、2重パルス変調法とロックイン検出法を用いる。実験から炭素クラスターサイズと密度の時空間分布を得ることを目標としている。今回、ジェット機の無重力実験と地上の通常重力実験結果を比較した。

## 2. 実験装置と方法

図 2 にミー散乱用アーク放電装置の概略が示されている。直径 6.5 inch、高さ 270 mm (容積約 1.8 L) のステンレス鋼製容器を用いる。直径 6 mm  $\phi$  の炭素陽極と直径 8 mm  $\phi$

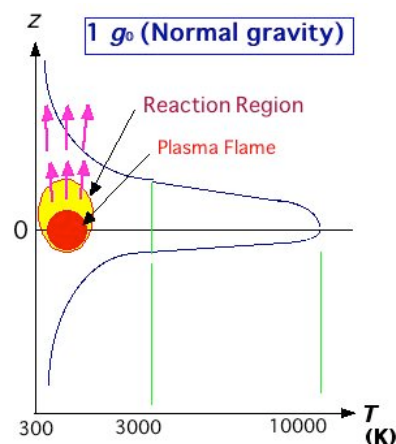


Fig. 1 A model figure of diffusion and cooling process of carbon clusters under normal-gravity conditions.

の炭素陰極を用いて直流アーク放電を行う。ここに、放電電流  $I_a = 20\text{--}70$  A、放電電圧  $V_a = 15\text{--}30$  V、ヘリウム圧力  $p = 10\text{--}80$  kPa、ギャップ長  $d_0 = 5\text{--}10$  mmである。グリーンレーザー ( $\lambda = 532$  nm, パワー 0-200 mW) は 1 kHz と 2 Hz で 2重パルス100%変調されている。直径約 3 mm のレーザー光線は底部からアーク中心を通過して上方に入射される。z 方向指定場所からの散乱光 (90 度散乱と15度散乱) は石英光ファイバーで受光され (集光レンズと狭帯域フィルター付き)、光電子像倍管にて電流信号に変換され

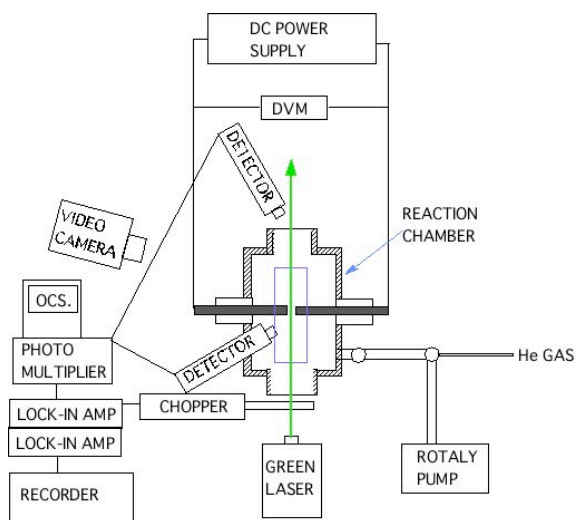


Fig. 2 Schematic of experimental setup

る。アーク光を除去する為に ロックインアンプが用いられる

### 3. 実験結果

図3はパラボリック飛行 [1, 2] の無重力時に得られた2つの散乱信号 (90度と15度) の時間チャートである。

( $p=25\text{ kPa}$ ,  $I_d=40\text{ A}$ , 散乱点,  $z=2\text{ cm}$  (アーク中心を基準), 放電時間  $T_d=10\text{ s}$ )。0  $g_0$  から1.5  $g_0$  に変わる時の信号変化が捉えられている。アフターグロウ時には、ほぼ毎回強くてゆっくり時間変化する信号が得られる。この時間では微粒子がゆっくりランダム運動し、壁への付着確率が小さい為この強い信号が生じると思われる。一方、アーク放電時は、大きな温度差の中の粒子拡散現象が実験条件に左右され、特徴的な散乱信号が得られる。

図4は無重力、 $z=2\text{ cm}$ における散乱強度の放電電流依存性である。15度散乱強度が電流と共に上昇している。図5は無重力、 $z=2\text{ cm}$ における散乱強度の圧力依存性である。散乱強度比の緩やかな圧力依存性が見られる。現在、古典電磁波散乱理論を元に理論的ミー散乱強度の角度依存性を計算しつつあり、この実験結果と比較する予定である。そして、測定点での粒子直径と粒子密度を求めたい。

アーク電極横 ( $y$ 方向  $1\text{ cm}$ )の位置に微粒子コレクター (内径  $8\text{ mm}$  の銅管) 列を置き、アーク放電により触媒入り炭素を昇華させ、 $z$  方向の各位置で微粒子を堆積させ、その試料のラマン散乱分析を行った。図5は無重力条件の3カ所で得られたサンプルのラマンスペクトルである。左のナノチューブ呼吸モード信号より、すでに  $y=1\text{ cm}$ の位置で2種類のナノチューブが合成さ

れていることがわかる ( $\sim 165$  &  $185\text{ 1/cm}$ ) (直径約  $1.5\text{ nm}$ )。右側のGモード ( $\sim 1600\text{ 1/cm}$ ) と Dモード ( $\sim 1340\text{ 1/cm}$ ) のスペクトルより不定形の炭素量が全体的に少ないことが分かる。一方、図6は対照実験を地上重力下で行った結果である。この場合、左の図

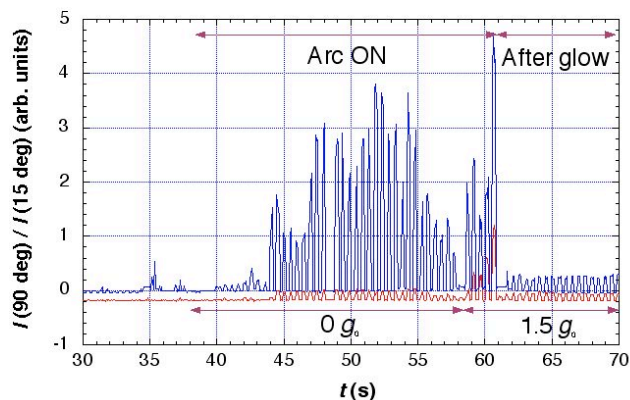


Fig. 3 Typical charts of scattered signals under 0  $g_0$ .  $p=25\text{ kPa}$ ,  $I_d=40\text{ A}$ ,  $z=2\text{ cm}$ .

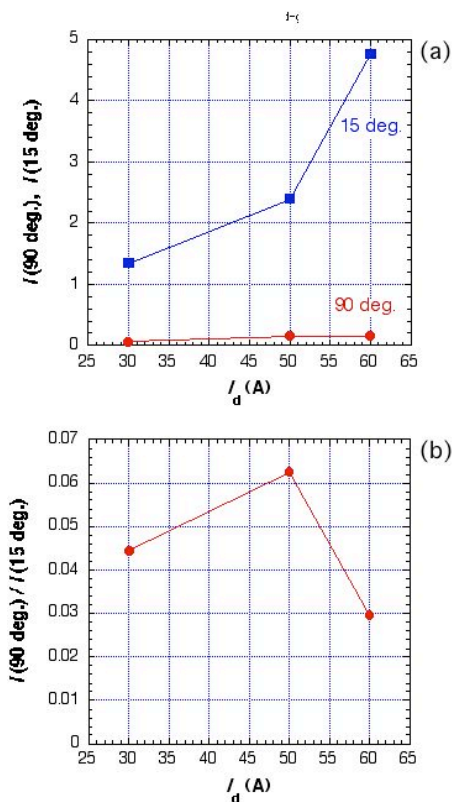


Fig. 4 Discharge current dependence of scattering intensities for 90 deg. and 15 deg. under 0  $g_0$  (a) and their intensity ratio (b).  $p=40\text{ kPa}$ ,  $z=2\text{ cm}$ .

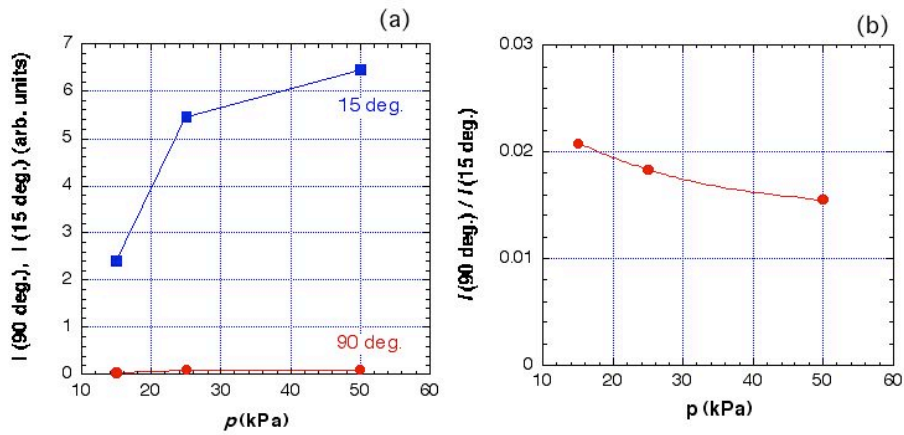


Fig. 5 Pressure dependence of scattering intensities for 90 deg. and 15 deg. under  $0 g_0$  (a) and their intensity ratio (b).  $p_0 = 40 \text{ kPa}$ ,  $z = 2 \text{ cm}$ .

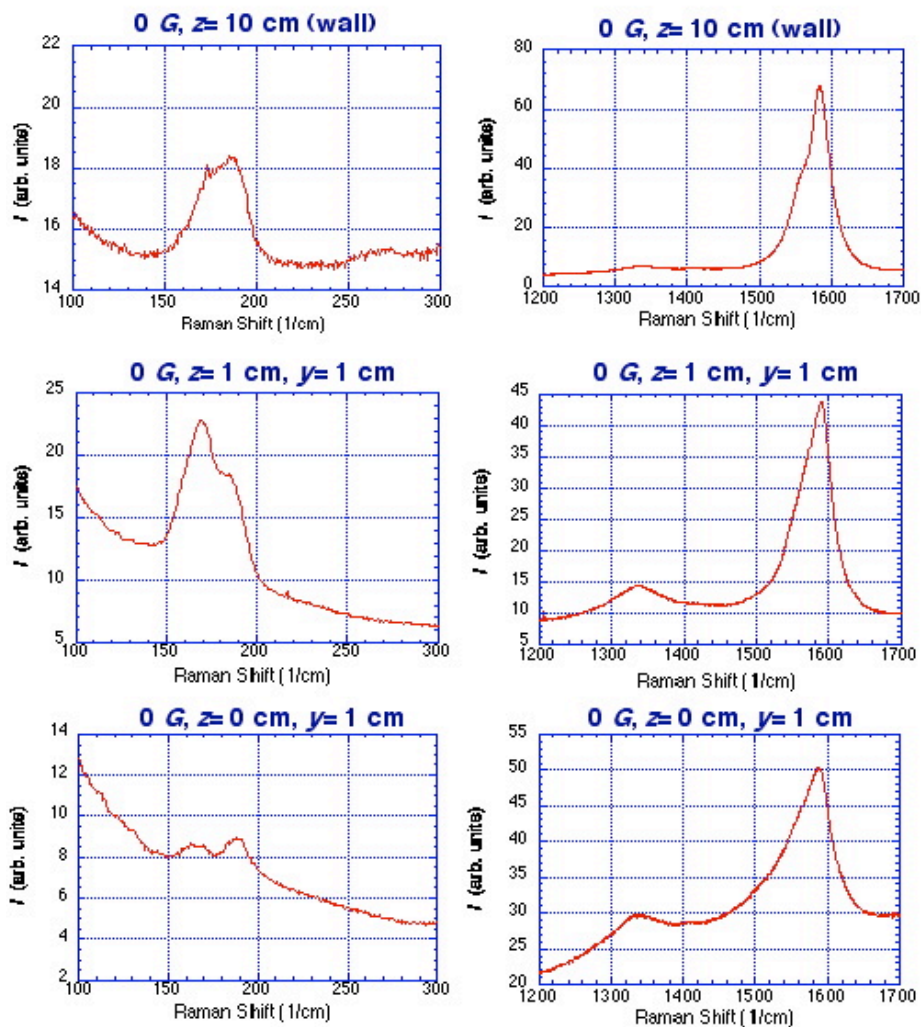


Fig. 6 Raman scattering signals of the 3 samples collected at three  $z$  positions under  $0 g_0$ . Left side: Radial breathing modes. Right side: G-band & D-band.

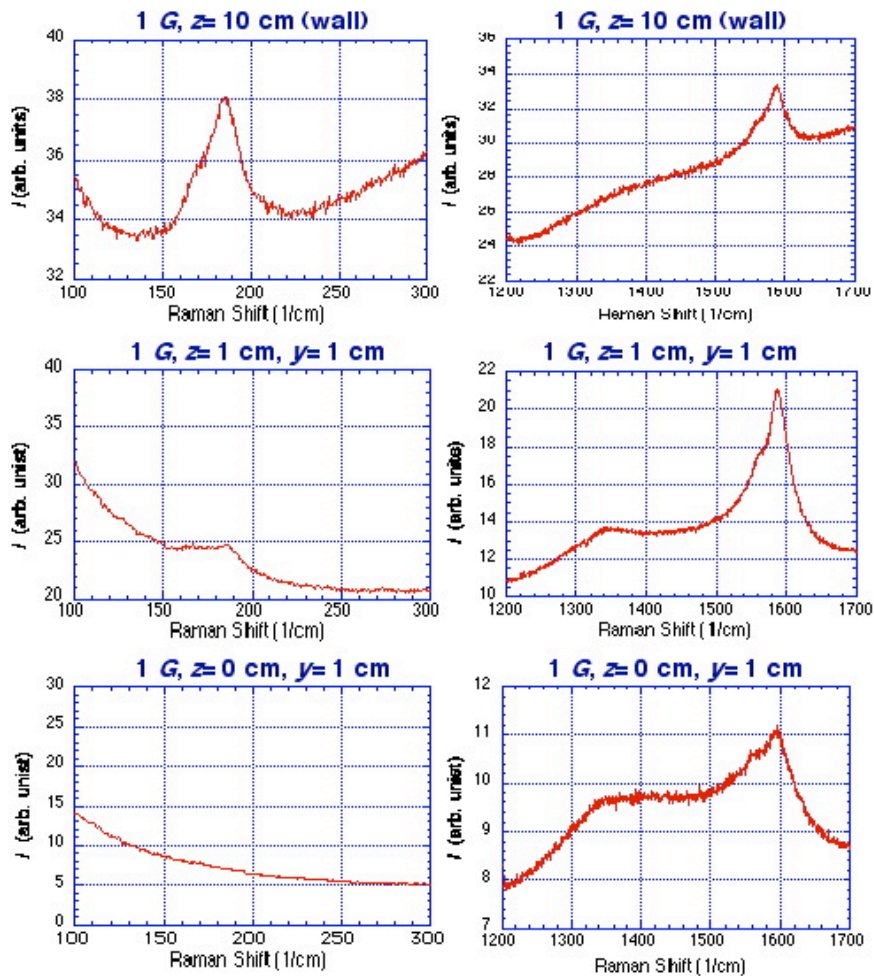


Fig. 7 Raman scattering signals of the 3 samples collected at three z positions under  $0 g_0$ . Left side: Radial breathing modes. Right side: G-band & D-band.

より、 $z=0$  cm 部分ではナノチューブの信号は得られていない。より上方でナノチューブの合成が行われている。一方、右側のG&Dバンドより、不定形炭素が全体的に多いことが分かる。すす発生量は、無重力時約 66 mg、地上重力時約 22 mgであり、無重力条件で3倍の発生量が得られている。

#### 4. まとめ

アーク放電によりナノチューブを合成する時、能動的ミー散乱法を用いて発生クラスターからの散乱光信号を記録することができた。2散乱方向の信号は時間、実験条件で変化している。現在その理論計算を行っている。

微粒子コレクター列を用いて合成微粒子の場所依存性を調べた。無重力が合成効率を高めている様子を確認できた。

#### 謝辞

この研究は日本宇宙フォーラムによる第9回宇宙環境利用に関する公募地上研究費の援助により行われた。また、ダイヤモンドエアサービス社によるパラボリック飛行実験支援に感謝します。

#### 参考文献

- [1] T. Mieno & M. Takeguchi, J. Appl. Phys. **99** (2006) 104301.
- [2] T. Mieno, New Diamond & Frontier Carbon Technol. **16** (2006) 139.
- [3] T. Mieno, Jpn. J. Appl. Phys. **42** (2003) L960.
- [4] T. Mieno, Plasma Phys. Control. Fusion **46** (2004) 211.
- [5] Y. Watanabe, M. Shiratani & M. Yamada, Appl. Phys. Lett. **61** (1992) 1510.
- [6] 白谷正治、渡辺征夫、プラズマ・核融合学会誌、73巻11号 (1997) 1240.