

カーボンナノ材料の創製のためのプラズマプロセッシング

— ナノ構造の合成およびそのプロセス制御のためのモデリング手法 —

上級会員 須田 善行* 上級会員 滝川 浩史* 正員 田上 英人*

Plasma Processing for Carbon Nanomaterials

— Syntheses of Nanostructures and their Process Control by Numerical Simulation of Plasma —

Yoshiyuki Suda*, Senior Member, Hirofumi Takikawa*, Senior Member, Hideto Tanoue*, Member

(2011年8月12日受付, 2012年2月10日再受付)

Plasma is a useful tool to synthesize carbon nano-materials including diamond, fullerene, nanotube and graphene. This review introduces the overview of these carbon nano-materials produced by thermal or non-thermal plasmas and also the authors' work related to plasma-enhanced chemical vapor deposition of carbon nanotubes and its correlation with numerical simulation of CH₄/H₂ feedstock gas plasmas. The amount of carbon atoms in the CNTs grown and that calculated from simulation showed good agreement.

キーワード: プラズマ支援化学気相堆積 (PECVD), カーボンナノチューブ (CNT), 触媒, 数値シミュレーション, 化学活性種 (ラジカル種), フラックス

Keywords: plasma-enhanced chemical vapor deposition (PECVD), carbon nanotube (CNT), catalysts, numerical simulation, chemically active species (radical species), flux

1. カーボンナノ材料

〈1・1〉 カーボンナノ材料の分類 炭素原子は4個の対電子を持ち, sp¹, sp², sp³の3種類の混成軌道を取る⁽¹⁾ため, これまでに多くの同素体が発見されてきた。sp¹結合したカルビン, sp²結合した黒鉛 (グラファイト), sp³結合したダイヤモンドは天然に産出される物質であり, 古くから知られている⁽²⁾。これに対して, 電子顕微鏡の発展に伴って, ナノメートルサイズの新しい炭素同素体が1980年代以降に次々に発見された。そのサイズに由来して, これらをカーボンナノ材料と総称する。本論文ではこれらのいくつかを取り上げ, プラズマプロセスでカーボンナノ材料を合成した場合の特徴について述べる。また, 筆者らが研究を行ってきたプラズマ化学気相堆積によるカーボンナノチューブの合成において, 新たに開発したプラズマモデリングを用いた成長予測方法について概要を説明する。

〈1・2〉 ダイヤモンド ダイヤモンドは, 地球上に存在する物質の中で, 最大の硬さとヤング率, 最高の熱伝導

率, 高い光透過性等を有する。これらの特性を活かした種々の応用が期待され, 工業用材料として利用する目的で人工合成手法が長年研究されてきた。1981年にSpitsynら⁽³⁾, 1982年に松本ら⁽⁴⁾が非ダイヤモンド基板上にダイヤモンドを気相合成することに成功した。詳しくは書籍⁽²⁾を参照願いたい, ダイヤモンドの気相合成においてプラズマは炭化水素化学活性種 (ラジカル) や原子状水素の発生に大きく貢献している。

〈1・3〉 フラーレン フラーレンとは数十個の炭素原子が球殻構造を成したもので, sp²結合した炭素原子の六員環といくつかの五員環とから構成される。1985年にKrotoらによって, レーザアブレーションで合成した炭素原子60個からなる構造 (C₆₀) が発見された⁽⁵⁾。レーザアブレーションとは, グラファイト等の固体ターゲットへパルスレーザー光を高密度に集光して照射することでターゲット表面付近の原子分子を爆発的に蒸発させてプラズマ化 (ブルーム) する現象である⁽⁶⁾。雰囲気ガスとの衝突過程を経てブルームは冷却し, フラーレンや後述のカーボンナノチューブ等が合成される。

〈1・4〉 カーボンナノチューブ (CNT) レーザアブレーション実験で発見されたフルラーレンは, その後にアーク放電でも合成できることが見出された。1991年に飯島は,

* 豊橋技術科学大学 電気・電子情報工学系
〒441-8580 愛知県豊橋市天伯町雲雀ヶ丘1-1
Department of Electrical and Electronic Information Engineering,
Toyohashi University of Technology
1-1, Hibiigaoka, Tempaku, Toyohashi, Aichi 441-8580, Japan