

L-68

ジュール熱によるアルコール熱分解法を用いた Fe 内包 CNT の生成 Synthesis of Fe filled Carbon Nanotube by Joule heat Alcohol Pyrolysis method

○武内祐二¹ 相良拓也² 胡桃聡³ 鈴木薫³*Yuji Takeuchi¹, Takuya Sagara², Satoshi Kurumi³ and Kaoru Suzuki³

Fe endohedral Carbon Nanotube(CNT) synthesized by Joule heat Alcohol pyrolysis method. The figuration of CNT is 239.7 nm length, and 23.1 nm in diameter of tip. The diameter of intermediate part is about 69.4 nm, CNT of acicular was produced by graphene layers. The heterogeneity Fe was included at hollow portion which length is about 120.7 nm, about 10.7 nm in diameter of tip, the diameter of intermediate part is about 69.4 nm. In this study, we report Fe endohedral CNT structure and crystalline measured by transmission electron microscope.

1. はじめに

カーボンナノチューブ(Carbon Nanotube: CNT)とは、炭素元素からなるグラファイトを円筒状に巻いた空洞の構造をしており、長さが数 μm 以上で、直径は数 nm~数 10 nm 程度である。CNT は中空部分に金属を内包する。さらに金属を炭素でコーティングする事で、酸化を防ぎ磁性の劣化も防ぎ強磁性を保つことが可能であり、金属のナノ微粒子化の手助けをしている。過去に Ni を内包させた CNT を得ており^[1]、高いアスペクト比を有していることから、磁気力顕微鏡(Magnetic Force Microscope: MFM)の探針に利用することを考えた。MFM とは、ナノメートルオーダーで加工された先端を持つ磁気的な探針を用いて、試料から漏れる微弱な磁場を検知することにより、主に強磁性体ナノ構造の磁気的特性を可視化する装置である。

本研究ではジュール熱により、アルコールを熱分解する事で、CNT を生成し Fe を内包している。そこで Ni より強い磁化を持たせる事で、より多くの種類のナノ構造磁性体を測定可能とすることを目的としている。今回は生成された Fe 内包 CNT の透過電子顕微鏡による構造観察結果について報告する。

2. 実験方法

Fig. 1 は実験装置である。直流電源を接続した Si 基板上($10 \times 40 \times 0.525 \text{ mm}$)に Fe 箔を針状の電極ではさみ込むように固定し、エタノールを入れた容器に入れ、電極に電流を流し試料を加熱し、その際に発生するジュール熱によりエタノールを熱分解し金属内包 CNT の生成を行う。

今回利用した Fe 箔は扇形に加工してから、加熱を行った。実験条件は過去の実験を参考にし、直流電流 4.5 A、通電時間は 1 分間とした^[2]。生成された CNT を透過型顕微鏡(Transmission Electron Microscope: TEM)により観測を行った。

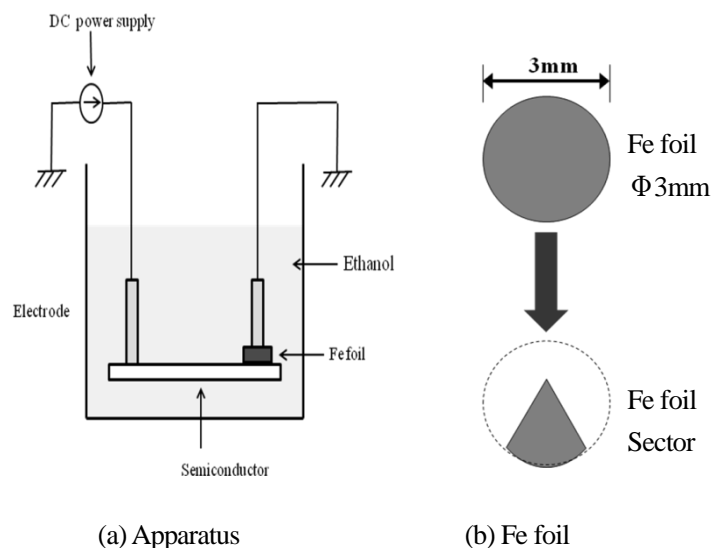


Fig. 1 Experimental apparatus

3. 結果および考察

Fig.2(a)に Fe 内包 CNT の低倍率 TEM 像を示す。(a) は生成物の全体図で先端部分から中間にあたり不均質ではあるが、針状の Fe 内包 CNT が生成された。CNT の先端の直径は約 23.1 nm 中間部の直径は約 69.4 nm となっていて、長さは約 239.7 nm であった。また内包された Fe は先端の直径が約 10.7 nm で中間部は約 16.5 nm となっていて、Fe の長さは約 120.7 nm である事が確認出来た。

Fig.2(b), (c)は(a)の拡大図を示す. (b), (c)を見ると, Fe の周りにグラフェン層が確認され, 層間距離は根元部分が約 3.88 Å、先端部分が約 4.40 Å の CNT が生成されている事がわかった. また, (b) は Fe 内包 CNT の根元部分の高倍率 TEM 像であり, 内包された Fe の格子間距離が 1.88 Å であることから, α -Fe の(110)面または Fe_3C (022)面に一致していると考えられる. (c)は Fe 内包 CNT の先端部分の高倍率 TEM 像であり, 内包された Fe の格子間距離が約 2.23 Å なので Fe_3C の(002)面に等しい. 図中にはフーリエ変換した図の輝点を示し, (b)にはそれぞれグラファイト(0002)面と α -Fe(110)面と Fe_3C (022)面である. (c)には Fe_3C (002)面の輝点である. よって先端と根元で結晶構造に違いがあることがわかる. 今回内包された Fe_3C は CNT の壁を構築する役割を持っており, Fe_3C から C が CNT として析出するという報告がある^[3]. 最後に Fe_3C は常温において強磁性体なので MFM プローブとして応用できると考えられる.

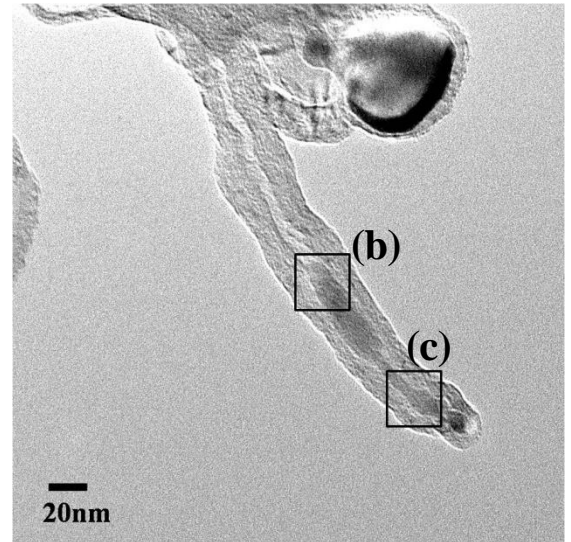
4. まとめ

4.5 A の電流で実験・観察を行った結果, Fe 箔でも金属内包 CNT が生成でき, 針状の長さ約 239.7 nm, 先端の直径は約 23.1 nm, 中間部の直径は約 69.4 nm の CNT が生成され, 長さ約 120.7 nm, 先端の直径は約 10.7 nm, 中間部の直径は約 16.5 nm の Fe が内包された.

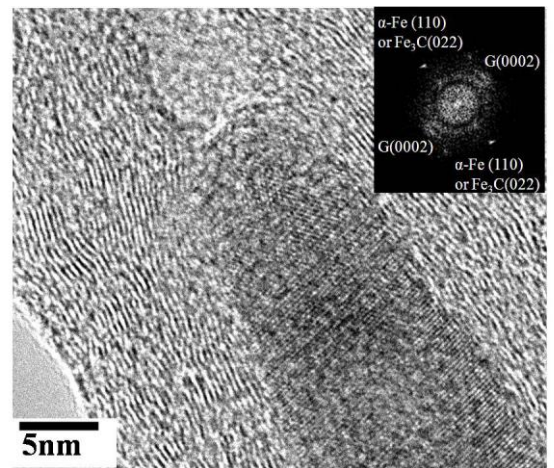
グラフェン層により CNT は形成されていて, 内包した Fe の根元部は α -Fe の(110)面または Fe_3C (022)面の結晶性があり, 先端部は Fe_3C の(002)面の結晶性があることを確認した. 常温において強磁性体であることから, MFM プローブに応用できる事が考えられる.

5. 参考文献

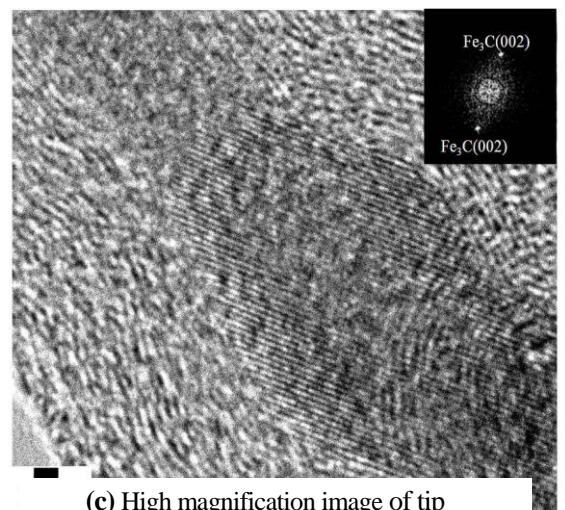
- [1] 久保聡, 相良拓也, 胡桃聡, 鈴木薫 : アルコール気相触媒熱分解法による金属内包生成物の生成, 第 54 回日本大学理工学部学術講演会論文集, L-48, 1015-1016, 2010 年 11 月
- [2] 相良拓也, 胡桃聡, 鈴木薫 : 強磁性金属充填カーボンナノチューブの生成, 第 58 回応用物理学関係連合講演会, 24p-KV8
- [3] Andreas K.Schaper, Haoqing Hou, Andreas Greiner, and Fritz Phillipp : The role of iron carbide in multiwalled carbon nanotube growth, Journal of Catalysis 222 (2004) 250-254



(a) Low magnification



(b) High magnification image of base



(c) High magnification image of tip

Fig. 2 Fe endohedral Carbon Nanotube