

断面 SEM 画像解析によるカーボンナノチューブフォレスト構造評価

1210129 西森 秀人 (先進エネルギーナノ材料研究室)

(指導教員 古田 寛 教授)

1. 背景・目的

我々の研究室ではこれまで、カーボンナノチューブ(以下 CNT)フォレストの成長機構解明をめざして、触媒微粒子の形状解析[1]や、CNT フォレストの成長形態[2]ラマン分光や結晶構造との比較などの研究を行ってきた。CNT フォレストは基板に垂直かつ高密度に成長した構造を持っており、基板と平行方向には CNT 同士の接触により電気的コンタクトが形成されていると考えられるが、CNT フォレストの成長形態と横方向電気伝導機構の関係について詳しい報告はこれまでにされていない。

本研究では CNT フォレスト断面 SEM 像及び触媒微粒子 AFM 画像を python または MATLAB を用いて画像解析・分析を行い、CNT フォレスト構造を明らかにすることを研究の目的とする。

2. 実験方法

CNT フォレスト断面 SEM 画像を高速フーリエ変換し、115~180 の階調強度で BPF (Band Pass Filter) 及びフィルタ領域の逆フーリエ変換を行い、一枚の SEM 画像から周期の異なる CNT の抽出を行った。逆フーリエ変換画像の配向性・密度評価には MATLAB のアドオンである GTFiber2 を使用した。

GTFiber2 で得られる形状値のパラメータ依存性から、パラメータを変化させたときのファイバー密度の極値を選択し、CNT フォレスト断面 SEM 画像の解析のための最適値と思われる点を探した。パラメータ変化に対しファイバー密度の変化が安定な点を極値とした。初期パラメータの場合と最適化後での測定結果の違いを比較した。また、求めた最適パラメータを用いて、触媒膜厚条件の異なる試料について形状値を比較した。

Fe 触媒厚さ 0.8 nm、1.0 nm、1.2 nm の AFM 画像を画像解析し膜厚条件が異なるときの触媒微粒子の粒径と円形度を比較した。また、膜厚に対応する CNT フォレスト解析結果と粒径と円形度を比較した。実験に使用した SEM 画像及び AFM 画像は CNT フォレストの成長形態[2]の論文内の画像を使用した。

3. 実験結果

図 1 は上の段が短周期構造の逆フーリエ変換画像、下の段が長周期構造の逆フーリエ変換画像である。空間周波数の周期が長くなると CNT の配向性が高いことが分かった。図 2 は GTFiber2 を用いた CNT フォレスト構造解析結果である。上の段が初期パラメータ、下の段が最適パラメータを用いた CNT フォレスト構造評価結果を示す。最適パラメータを用いた解析結果の方が CNT フォレストの密度と長さをより反映していた。また、触媒膜厚条件の異なる試料を解析すると、既報論文で報告されていた膜厚増加による配向性と密度の低下が確認された。触媒微粒子の粒径が小さいほど CNT フォレストの配向性、密度、平均ファイバー長さが増加しており、平均ファイバー幅が減少していた。触媒微粒子の円形度が大きいほど CNT フォレストの密度、平均ファイバー幅のばらつきが少ないことが分かった。

3. 考察

粒径が大きい触媒微粒子を起点に成長する CNT の成長速度は遅く、粒径が小さい場合では成長速度が速いことが知られており、CNT 成長速度に差が発生していると考えた。先に成長した CNT は触媒微粒子との接触範囲が狭いので六員環以外の五員環七員環の形成により湾曲し、遅れて成長してきた CNT に支えられながら成長しているのではないかと考えた。

触媒膜厚が増加すると微粒子間の結合により粒径が増加し、

粒径が大きいことでアニール処理によるオストワルド熟成の際に、微粒子の肥大化度合いが大きく、粒径が大きい微粒子を起点に成長する CNT フォレストは配向性、密度、ファイバー長さが低くファイバー幅が大きいと考えた。

円形度が大きいと微粒子表面の凹凸が少ないことにより CNT 成長のための炭素の結晶化が円滑に行われ、基盤に対して垂直に成長していると考えた。対して、円形度が小さく微粒子表面の凹凸が多いときは微粒子上での炭素の結晶化速度に差が発生し、CNT が比較的垂直に成長しにくかったと考えた。

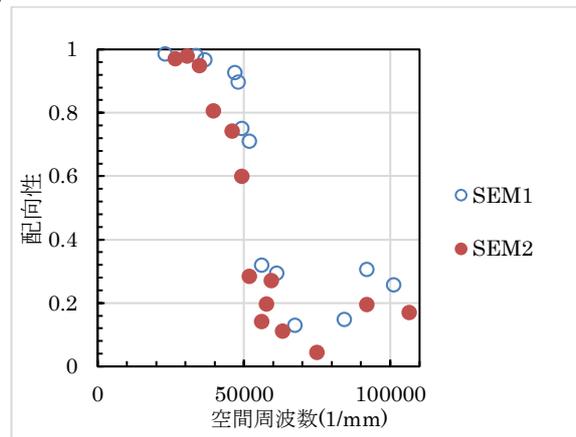


図 1 粗密構造の異なる CNT フォレストの配向性評価

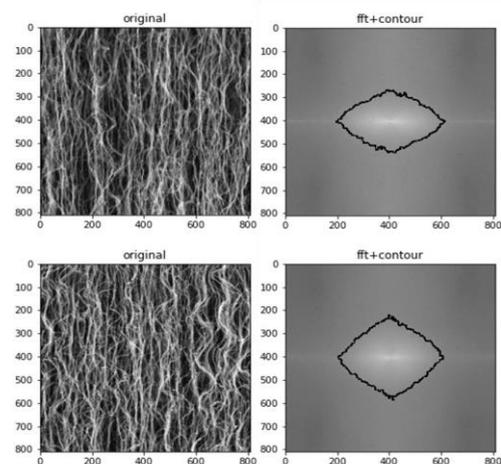


図 2 粗密構造の異なる CNT フォレスト断面 SEM 画像と FFT 画像

参考文献

- [1] F. Nagamine, T. Onishi, S. Hayashi, A. Pander, A. Hatta, and H. Furuta, "Image analysis of catalyst formation process for the high-density growth of CNT forest", 第 28 回日本 MR S 年次大会 (2018.12.19 北九州国際会議場、北九州市)
- [2] A. Pander, T. Onishi, A. Hatta, and H. Furuta, "Study of self-organized structure in carbon nanotube forest by fractal dimension and lacunarity analysis", Materials Characterization, 160 (2020) 110086.