

CNT 生成プロセスにおける真空環境分析を用いた CNT 成長高さの再現性向上

Improving reproducibility of CNT growth height using vacuum environmental analysis in CNT formation process

1255047 沢田 侑斗 (先進エネルギーナノ材料研究室)
(指導教員 古田 寛 教授)

研究背景・目的

化学気相蒸着法(Cheical Vapor Deposition : CVD)で合成する CNT (Carbon Nanotubes) には、触媒に炭素源ガスを供給して成長する自己組織的な成長機構に特徴があり、先行研究では微量の水蒸気を用いた CVD 合成により CNT の 1mm 以上への長尺化に成功した報告がある[1]。我々の研究室では CNT 構造体を応用し、ナノスケールの神経模倣回路の実現を目指しており、CNT 構造には多くの合成パラメータが影響するため、CNT 構造をナノスケールで再現よく制御して合成することは未だ課題としている。本研究室では 5.0×10^{-4} Pa 以下とする CVD 真空排気条件で合成する CNT 成長高さ再現性に課題があり(図 1)、再現性に及ばず残留大気の影響は明らかになっていない。そこで本研究では CNT 成長高さの再現性向上を目指し、CVD 炉内の残留水蒸気・酸素の影響と触媒堆積時に酸素を供給したスパッタプロセス条件について、CNT 成長高さ再現性の高い、スパッタ及び CVD の真空排気条件を明らかにすることを研究の目的とする。

実験方法

使用した触媒は、熱酸化 Si 基板上に RF マグネトロンスパッタリング法により Al_2O_3 (t30 nm)/Fe(t1 nm) の積層薄膜を堆積し用意した。CNT 合成はアセチレンを原料とする熱 CVD 法で合成した。真空排気中の CVD 炉内を残留ガス分析計(ULVAC BGM-101)で測定し、残留ガス(水蒸気・酸素)が CNT 構造に与えた影響を評価した。さらに触媒堆積時に酸素供給し、触媒酸化状態による CNT 成長高さを評価した。

実験結果・考察

排気時間を調整して CVD 炉内残留ガスを調整した結果、水蒸気(H_2O)分圧と酸素(O_2)分圧によって CNT 成長高さが大きく変化した(図 2)。 H_2O 分圧が 1.0×10^{-4} Pa 以上において CNT 膜厚が減少し、 1.0×10^{-4} Pa 以下で CNT 膜厚が高くなった。全圧 5.0×10^{-4} Pa での H_2O 分圧は 1.0×10^{-4} Pa 程度で、CVD 合成で成長高さにばらつきが生じた。触媒の酸化状態が及ぼす効果を検証するため、酸素を供給して堆積した触媒を用いて、CVD 炉内残留ガス H_2O 分圧を 1×10^{-4} Pa で統一し CVD 合成をしたところ CNT 膜厚が減少した(図 3)。スパッタベース真空度 4.0×10^{-5} Pa 以下、CVD 炉内酸素分圧が $0.6 \sim 1.0 \times 10^{-4}$ Pa の範囲で再現性良く長尺 CNT を合成した。酸化の及ぼす微粒子形成と CVD 反応への残留ガス ($\text{H}_2\text{O} \cdot \text{O}_2$) が CNT 成長再現性を低下する要因であると考察した。

まとめ

質量分析により CVD 炉内残留ガス分析を行い、真空排気時の CVD 炉内残留水蒸気 (H_2O) 及び残留酸素 (O_2) とスパ

ッタ前ベース真空度が与える CNT 成長高さを評価した。スパッタ前ベース真空度 4.0×10^{-5} Pa 以下で作製した触媒で CVD 炉内の水蒸気(H_2O)分圧が 1.0×10^{-4} Pa 以下かつ酸素(O_2)分圧が $0.6 \sim 1.0 \times 10^{-4}$ Pa の範囲の真空条件で CVD 合成を行うことで CNT 成長高さの再現性が向上することを明らかにした。

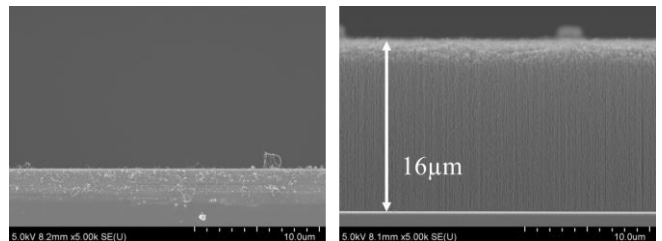


図 1. CVD 炉内排気を全圧 5.0×10^{-4} Pa に統一し、同条件で合成した成長高さ再現性に課題のある CNT フォレスト

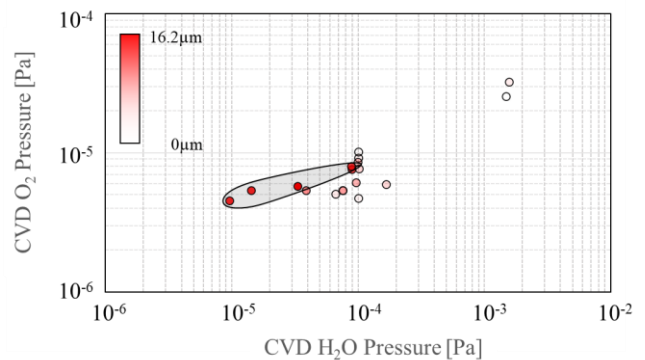


図 2. 排気時間を調整することで CVD 炉内残留ガス(H_2O 及び O_2)分圧を変えて合成した CNT の成長高さ分布

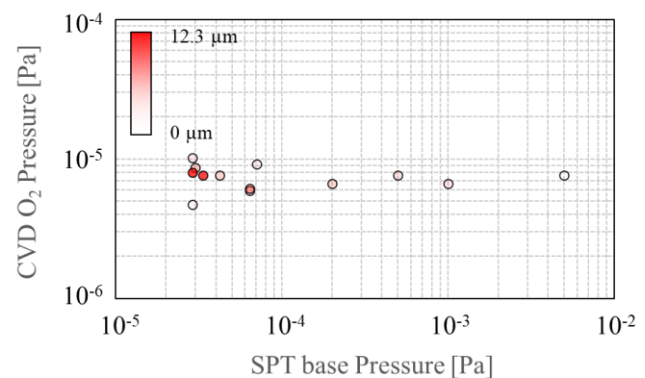


図 3. CVD 炉内残留 H_2O 分圧 1×10^{-4} Pa における CNT 成長高さの触媒スパッタ堆積前ベース真空度と CVD 炉内残留 O_2 分圧依存性。

引用文献

[1] K. Hata et al., Science, vol.306, 1362-1364 (2004).

謝辞 本研究は科研費基盤 C (20K05093 代表 古田寛)の支援を受けた