

令和 5 年 6 月 2 日現在

機関番号：33919

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19H02563

研究課題名（和文）オペランドEXAFS測定によるカーボンナノチューブ生成メカニズムの解明

研究課題名（英文）Operando EXAFS study on growth mechanism of carbon nanotube

研究代表者

丸山 隆浩（MARUYAMA, TAKAHIRO）

名城大学・理工学部・教授

研究者番号：30282338

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、通常の作製条件下での単層カーボンナノチューブ（SWCNT）の生成過程を明らかにするため、アルコールCVD法を用いたSWCNTの生成中の金属触媒粒子に対してオペランドEXAFS測定を行い、触媒粒子の化学状態を明らかにした。触媒として鉄族元素（Fe, Co, Ni）に加え、白金族元素（Ir, Pt）を用いて実験を行ったところ、鉄族元素の場合には炭化が生じるのに対し、白金族元素の場合は金属状態を保っていることがわかった。また、鉄族元素の間でもFe, Co, Niの順に炭化が進んでいた。さらに、ナノ粒子である触媒の炭化状態がバルク状態の金属とは異なる振る舞いを示すことが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ナノ材料として注目されている単層カーボンナノチューブ（SWCNT）の生成中の触媒粒子の化学状態を、X線吸収分光（XAFS）法を用いて明らかにすることに成功した。SWCNTの作製手法は確立しているが、その生成過程に関しては、未だ不明な点が多く、本研究の成果はSWCNTの実用化に向けて大きな意義があるといえる。また、本研究の結果は高温かつ原料ガス雰囲気下の金属ナノ粒子の化学結合状態がバルク状態とは異なることを示しており、ナノサイズの物質の物性研究において学術的にも重要な成果が得られている。今後のナノ材料の研究の発展に寄与することが期待される。

研究成果の概要（英文）：We performed operando extended X-ray absorption fine structure (EXAFS) analysis for metal catalysts during single-walled carbon nanotube (SWCNT) growth by alcohol catalytic chemical vapor deposition (ACCVD). We used iron-group elements (Fe, Co, Ni) and platinum-group elements (Ir, Pt) as catalysts for operando EXAFS analysis. Our result showed that iron-group elements were carbonized, while platinum-group elements were kept metallic during SWCNT growth. In addition, carbonization progressed in order of Fe, Co and Ni. Our results showed that behavior of metal nanoparticles in carbonization is different from their bulk state.

研究分野：ナノ材料

キーワード：カーボンナノチューブ XAFS EXAFS 触媒 CVD

1. 研究開始当初の背景

単層カーボンナノチューブ (SWCNT) は、グラフェンシートを円筒状に丸めた直径 1 nm 程度のナノサイズの物質である。半導体にも金属にもなる上、高い電子移動度を有することから、トランジスタやその配線への応用などエレクトロニクス材料として期待されている。SWCNT の電子状態は、その直径やカイラリティ (グラフェンシートの巻き方) に依存し、特にカイラリティにより半導体になるか金属になるかが決定される。しかし、単一カイラリティを有する SWCNT を作製することは現在の技術では困難であり、その実現には SWCNT の生成メカニズムを理解することが重要である。

現在、SWCNT の作製は粒径数 nm の金属触媒粒子と炭素源ガスを高温で反応させる化学気相成長 (CVD) 法が主流である。そのため、生成メカニズムの理解には SWCNT 生成中の SWCNT の構造や触媒粒子の形状・サイズや化学状態を知ることが必要であり、特に、触媒粒子の化学状態が触媒粒径と SWCNT 直径の関係に影響を与えることが報告されている [1]。しかし、SWCNT の直径や触媒粒子の粒径は数 nm と微細であり分析が容易でない。その上、ナノサイズの物質の場合、バルクサイズの物質とは異なる物性を示すことが知られており、SWCNT 生成前後の試料の分析を行うだけでは、SWCNT の生成過程を明らかにすることは不可能である。以上の理由により、SWCNT 生成メカニズムの解明には SWCNT の生成過程を直接分析する“その場”測定、いわゆる“オペランド測定”が必須となる。

SWCNT 生成過程の“その場”分析として、これまで Fe、Co、Ni といった鉄族元素を触媒に用いた SWCNT 成長において、透過電子顕微鏡 (TEM) 観察や X 線光電子分光 (XPS) 測定による報告が複数の研究グループからなされている。それによると、Fe 触媒の場合、原料ガスとの反応により触媒粒子が炭化物となり、炭化物の粒子から SWCNT が成長する様子が観察されている [2]。また、Ni 触媒の場合は、金属状態の Ni 粒子から SWCNT 成長が生じるとされる [3]。一方、Co 触媒では研究グループにより結果が異なるが、触媒粒子が Co_3C や Co_2C などの準安定状態の炭化物に変化するか、もしくは触媒粒子の表面にこれらの炭化物が形成された状態で SWCNT が成長する様子が観察されている [4, 5]。しかし、通常の SWCNT 作製では 700 ~ 1000 の高温状態の触媒粒子を数十 Pa ~ 大気圧の原料ガスと反応させるのに対し、過去に報告されている“その場”分析では、装置の制約から通常の作製条件に比べてかなり低い圧力や温度での反応となっていた。そのため、通常の作製条件下での SWCNT 生成反応の過程、特に、生成中の触媒粒子の化学状態や物理状態に関しては不明であった。一方、Ir もしくは Pt を触媒に用いることで細径の SWCNT が効率的に生成することが報告されている [6, 7]、これまで白金族元素の触媒に対する“その場”分析の報告はない。さらに、過去のその場分析では、アセチレンやエチレンなど炭化水素系ガスを原料に用いた報告がほとんどで、エタノールを原料とする CVD 法による SWCNT 作製が多数のグループにより行われているにもかかわらず、アルコール CVD 法における SWCNT の生成過程に対するその場分析は未だ報告がない。

2. 研究の目的

本研究では、通常の作製条件下 (成長温度: 700 ~ 900 , ガス圧力: 数十 Pa 以上) での SWCNT 生成過程を明らかにするため、X 線吸収分光 (XAFS) 法に注目した。XAFS 測定は高温・高圧下でも分析が可能であるため、通常の SWCNT の作製条件下でオペランド測定を行なうことができる。本研究では、アルコール CVD 法による SWCNT 生成中の触媒粒子の化学状態をオペランド XAFS 測定により決定することを目的とし、金属触媒として一般に用いられる Fe、Co、Ni の鉄族元素に加え、細径 SWCNT 成長に適している Ir と Pt の白金族元素を触媒として用いた実験も行った。また、XAFS 測定では、X 線吸収端近傍構造 (XANES) 領域だけでなく、広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS) 領域のスペクトルも測定し解析を行うことで、結合種による配位数の違いなど、より正確な化学状態の決定を目指した。

3. 研究の方法

放射光施設での XAFS 測定の前に、まず XAFS 測定用の試料の作製法の検討を行った。SWCNT 成長に用いる金属触媒粒子は粒径が 1 ~ 3 nm 程度であり、通常は酸化物の基板や粉末に担持される。その際、担持材として Si 基板の表面を酸化した SiO_2/Si 基板がしばしば用いられるが、 SiO_2/Si 基板表面のみに触媒粒子を担持してしまうと粒子密度が低くなるため、1 回のスペクトル測定に 30 分以上かかり、触媒粒子の化学状態の時間変化を調べることが困難となる。そのため、本実験では、触媒粒子を粉末材に担持した試料を作製することで触媒粒子密度を高め、さらに、透過法を用いて XAFS 測定を行うこととした。透過法で測定を行う場合、X 線透過率の高い材料に触媒粒子を担持する必要があるため、窒化ホウ素 (BN) 粉末に金属触媒粒子を担持し XAFS 測定用試料として用いた。各触媒の金属塩 (硝酸鉄、酢酸コバルト、硝酸ニッケル、酢酸

イリジウム)の水溶液をBNスラリーとBN粉末に混合し、500℃で焼成したのち粉碎し、触媒金属粒子がBNに担持された粉末を作製した。さらに透過法測定のため、これをペレット化しXAFS測定用試料として用いた。なお、Ptに関しては、 $\text{Pt}(\text{NH}_3)_2(\text{NO}_2)_2$ 硝酸溶液を出発物質としてエタノール溶液を作製し、同様にBN上にPtナノ粒子が担持された粉末を作製した。

XAFS測定は放射光施設で行う必要があるため、本研究ではあいちシンクロトロン光センターでオペランドXAFS測定を行なった。放射光施設のビームラインに設置可能な小型CVD装置を科研費にて購入し、放射光施設でのXAFS測定の前に、大学の研究室において上記の方法で作製した試料を用いてSWCNT成長を行い、それぞれの金属元素に対して最適な成長温度、エタノールガス圧力、キャリアガス成分など作製条件の決定を行った。得られた成長条件に基づいて、オペランドXAFS測定を行なった。

オペランドXAFS測定は、あいちシンクロトロン光センターのビームラインBL11S2に小型CVD装置を設置し、エタノール供給ラインなどの配管や排気用ポンプを取り付けて実験を行なった。小型CVD装置内を1Pa以下までスクロールポンプで排気したのち、キャリアガスを流して成長温度まで昇温した。キャリアガスとしてCo触媒にはArを、他の金属触媒の場合はAr/H₂を用いた。また、鉄族元素(Fe, Co, Ni)に対しては成長温度800℃、白金族元素(Ir, Pt)に対しては900℃とした。成長温度に達したのち、エタノールを10分間供給してSWCNT成長を行った。さらにCo触媒の場合はSWCNT成長中にキャリアガスとともに少量のO₂ガスを供給した。これは、SWCNTの成長量を増加させるためである。XAFS測定は1回のスキャンを約1分間かけて行い、昇温中、SWCNT成長中、および、冷却中の各過程において繰り返して測定を行なった。オペランドXAFS測定はXANES領域とEXAFS領域の両方の測定を行い、EXAFS領域のスペクトルに対して解析ソフトAthenaとArtemisを用いてデータ処理を行った。さらに、オペランドXAFS測定中にSWCNTが成長していることを確認するため、測定終了後にTEM観察、およびラマン分光測定を行なった。

4. 研究成果

1) 鉄族元素触媒

鉄族元素(Fe, Co, Ni)を触媒に用いてアルコールCVD法によるSWCNT成長を行い、成長中の各触媒金属に対し、K吸収端のオペランドXAFS測定を行なった。得られたXAFSスペクトルのXANES領域のスペクトルを図1に示す。図中に示す時間は、成長温度(800℃)に到達後、SWCNT成長のために導入したエタノールの供給時間である。また、比較のため標準試料に用いた金属と化合物のスペクトルも示してある。Fe触媒の場合、エタノール供給開始前からホワイトラインのピーク強度が強く、触媒が酸化状態であることを示すスペクトル形状であった。

エタノール供給開始後もホワイトラインのピーク強度は強く、還元が進んでいない様子が示唆された。これに対し、Ni触媒では、エタノール供給開始後にホワイトラインの強度が減少し、金属のNiのスペクトルとほぼ同じ形状となった。また、Co触媒の場合、成長開始時はホワイトラインピークの強度が強かったが成長時間の経過とともにピーク強度が減少し、スペクトル形状が変化した。

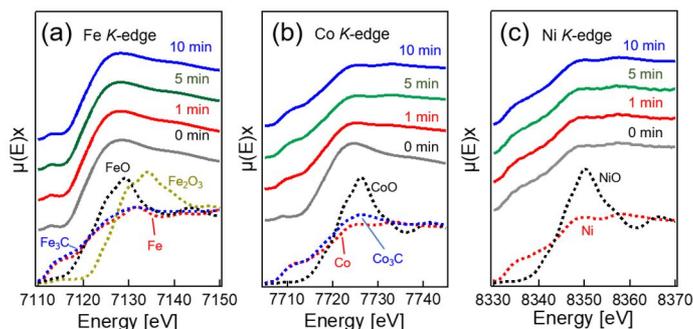


図1 SWCNT成長中の(a) Fe, (b) Co, (c) Ni各触媒のXANESスペクトルのSWCNT成長時間依存性。

次に、SWCNT成長中に測定したXAFSスペクトルのうち、EXAFS領域のスペクトルからバックグラウンドを除去したのちフーリエ変換処理を行い、各触媒金属の動径分布関数(RSF)を算出した。得られたスペクトルを図2(a)~(c)に示す。参考のため、各金属元素の金属状態と酸化物や炭化物の場合の金属原子と第1配位に位置する原子の距離に相当する位置を色付けで図中に記してある。Fe触媒の場合、Fe-CとFe-Oの結合距離に相当する位置にピークが存在したのに対し、Co触媒では成長開始直後は主にCo-Cの結合に相当する距離にピークが存在したが、成長時間(エタノール供給時間)が長くなるにつれCo-Co結合の位置にピークがシフトした。また、Ni触媒の場合は、成長時間にかかわらずNi-Niの結合に相当する位置にピークが存在した。以上から、鉄族元素の場合、金属種によってSWCNT成長中の触媒粒子の炭化状態が異なり、FeやCo触媒の場合は炭化されるのに対し、Ni触媒では金属状態となることが示唆された。また、オペランドXAFS測定後の試料のラマン分光測定を行なったところ、どの触媒金属を用いた場合も、RBMピークとGバンドがスペクトル中に観測され、SWCNTが成長していることが確認できた。さらに、TEM観察からもSWCNTの存在が確認でき、オペランドXAFS測定中にSWCNTが成長していることがわかった。

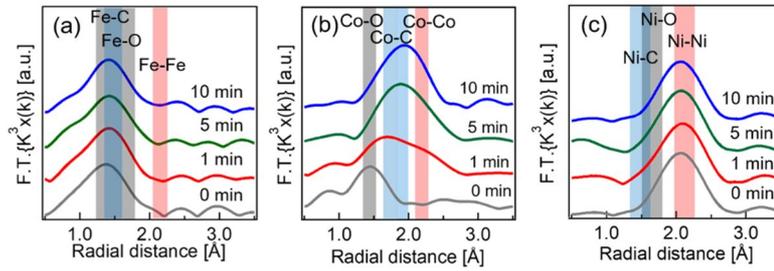


図2 SWCNT 成長中の(a) Fe, (b) Co, (c) Ni 各触媒の RSF の成長時間依存性 .

2) 白金族元素触媒

次に白金族元素 (Ir, Pt) を触媒に用いてアルコール CVD 法により SWCNT 成長を行い, 成長中のオペランド XAFS 測定を行った。図 3 (a), (b) に, Ir と Pt 触媒に対する測定から得られた L_{III} 吸収端の XANES 領域のスペクトルを示す。比較のため標準試料に用いた Ir と Pt とその酸化物のスペクトルも図中に示してある。図 3 に示すように Ir, Pt とエタノール供給開始後はどちらも金属状態のスペクトルに近い形状であった。さらに, EXAFS 領域のスペクトルを解析して得られた RSF を図 4 (a), (b) に示す。鉄触媒の場合と同様, 金属と酸化物, 炭化物の場合の第 1 配位の原子までの距離に相当する位置を色付けで示してある。図 4 から, 両触媒ともエタノール供給開始後は Ir-Ir および Pt-Pt の結合に相当する距離にのみピークが存在しており, SWCNT 成長中は Ir, Pt とともに金属状態である可能性が高いことがわかった。

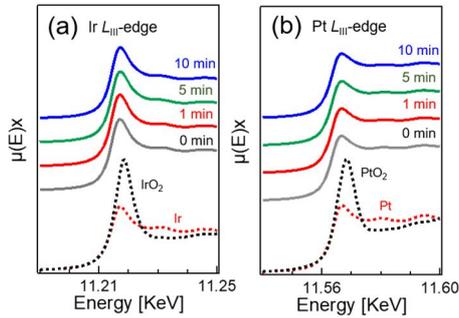


図3 SWCNT 成長中の(a) Ir, (b) Pt 各触媒の XANES スペクトルの SWCNT 成長時間依存性 .

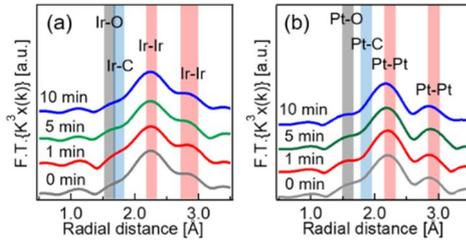


図4 SWCNT 成長中の(a) Ir, (b) Pt 各触媒の RSF の成長時間依存性 .

3) 考察

より詳細な解析を行うため, 各触媒金属の RSF に対して単体の金属と化合物のパラメータを用いてフィッティングを行い, 第 1 配位に位置する元素とその配位数を成長時間ごとに決定した。パラメータに用いた結晶構造には Materials Project のものを参照した。得られた配位元素と配位数に対し, その割合を成長時間に対してプロットしたものを図 5 (a) ~ (e) に示す。Fe 触媒の場合, SWCNT 成長開始前は触媒粒子が酸化していたが, エタノール供給の開始とともに炭化が進み, SWCNT 成長時間が長くなるにつれ炭化している部分の割合が増加した。また, 金属状態の Fe は存在しなかった。これに対し, Co 触媒の場合はエタノール供給前は同様に大部分が酸化していたが, SWCNT の成長が進むにつれて金属状態と炭化した部分の割合がともに増加し, 10 分間エタノールを供給したあとは約 60% が金属状態で約 30% が炭化物であった。Ni 触媒の場合, エタノール供給前からほぼ金属状態であり, SWCNT 成長開始直後はわずかに炭化された様

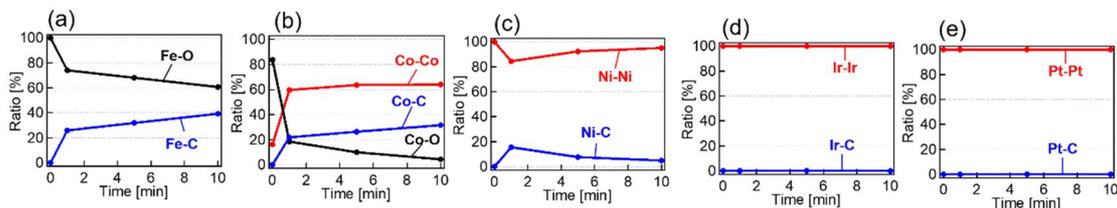


図5 SWCNT 成長中の(a) Fe, (b) Co, (c) Ni, (d) Ir, (e) Pt 各触媒の RSF のフィッティングにより得られた各結合の配位数の比の変化 .

子がみられたが、成長時間が進むにつれて金属状態に近づいた。一方、白金族元素の Ir と Pt 触媒の場合は、SWCNT 成長中、ほぼ 100% 金属状態を保っていた。

各触媒金属の違いを比較するため、成長時間 10 分後のオペランド XAFS 測定により得られた各触媒における酸化物、炭化物と金属の結合の比をまとめたものを図 6 に示す。図から鉄族元素の場合、どの触媒においても炭化した部分が存在したが、Fe、Co、Ni の順に炭化物の割合が少なくなっていることがわかる。特に、Ni 触媒では約 5% しか炭化されていなかった。一方、白金族元素の Ir と Pt の場合は、SWCNT 成長中ほとんど金属状態を保っていた。以上から、鉄族元素の場合は SWCNT が成長している触媒の一部もしくは全部が炭化状態となるのに対し、白金族元素では、金属状態の触媒粒子から SWCNT が成長していることが明らかとなった。鉄族元素のうち、Fe のみ SWCNT 成長中も酸化物の状態が約 60% 存在したが、成長時間が長くなるほど酸化物の割合が減り炭化物の割合が増加したことから、他のグループの報告も踏まえると、炭化した触媒粒子から SWCNT 成長が生じている可能性が高い。Co と Ni 触媒の場合は炭化物と金属状態が共存していたが、Amara らのシミュレーション結果から触媒粒子の内部が金属状態であり、表面のみが炭化され、その炭化部分から SWCNT が成長しているものと思われる[8]。

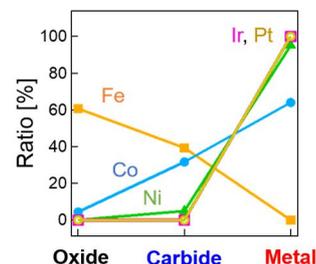


図 6 SWCNT 成長中の Fe, Co, Ni, Ir, Pt 各触媒に対し、RSF の解析から得られた酸化物と炭化物、金属の配位数の比。

以上の結果から、SWCNT 成長中の触媒の化学状態は金属元素により大きく異なることがわかった。今回得られた炭化物の割合を各金属のバルク状態での炭素固溶度と比較すると、バルク状態で炭化物が安定な Fe 触媒の場合に最も炭化が進行しており、また、Co と Ni ではバルク状態での炭素固溶度の高い Co のほうが炭化した割合が高かった。一方、Ir と Pt はバルク状態での炭素固溶度はほとんど 0 であるが、今回の結果も SWCNT 成長中は炭化せず、ほぼ金属状態であった。すなわち、バルク状態での炭素固溶度が大きい物質ほど触媒粒子が炭化しやすい結果となった。また、過去のその場分析結果と比較すると、Yoshida らによるエチレンを原料ガスに用いた TEM 観察では 600 °C での SWCNT 成長において Fe 触媒が炭化物となっていることを報告しているが[2]、今回の結果でも、SWCNT 成長が Fe の炭化した部分から生じている様子が示唆されており、同様の結果が得られたと考えられる。また、Co 触媒では、メタンを原料に用いた場合に 600 °C で Co₃C が形成し SWCNT 成長が生じることや、あるいは Co 触媒の表面のみが炭化され、炭化された部分から SWCNT が成長している様子が、その場 TEM 観察により報告されているが[4]、今回の結果では炭化物と金属の両方の状態が観測されており、過去の結果と矛盾しない。一方、Ni 触媒の場合、エチレンを原料に用いた 650 °C でのその場 TEM 観察では金属状態となっていることが報告されているが[3]、本研究により Ni 触媒がわずかに炭化されていることが明らかとなった。

以上のように、SWCNT 成長中の炭化度の違いが、各金属のバルク状態での炭素固溶度の傾向に一致することが明らかとなったが、Co と Ni 触媒の炭化度は Co の場合約 30%、Ni の場合でも約 5% とバルク状態での炭素固溶度に比べてかなり大きい値となった。これは、Amara らが報告しているように[8]、ナノ粒子の場合、表面に存在する原子の割合が多いため炭素との結合が進行しやすく、触媒粒子表面に炭化物が形成されやすいことが原因であると考えている。なお、触媒粒子の化学状態が成長モードに与える影響、すなわち、触媒粒径と SWCNT 直径の大きさの関係については現在 TEM 観察により分析中であるが、Ir 触媒の場合、触媒粒径と SWCNT の直径がほぼ等しい Tangential mode で SWCNT 成長が生じている様子が観察されている。今回の結果は金属状態の Ir 触媒から SWCNT が成長していることを示しており、He らのシミュレーションによる予測に一致する結果となっている[1]。

4) まとめ

鉄族元素 (Fe, Co, Ni) および白金族元素 (Ir, Pt) を触媒に用いたアルコール CVD 法による SWCNT 成長中の触媒金属粒子の化学状態をオペランド XAFS 測定により明らかにした。触媒金属により、炭化度が異なること、また、バルク状態の炭素固溶度よりも高い炭化が生じている場合があることが明らかとなった。成長モードに関しては、現在 TEM 観察により分析中であるが、過去のシミュレーションによる予測と矛盾しない結果が、今のところ得られている。

参考文献

- [1] M. He et al. Carbon **113** (2017) 231.
- [2] H. Yoshida et al. Nano Lett. **8** (2008) 2082.
- [3] M. Lin et al. Nano Lett. **6** (2006) 449.
- [4] F. Yang et al. CCS Chem. **3** (2021) 154.
- [5] Y. Kohigashi et al. Appl. Phys. Lett. **105** (2014) 073108.
- [6] T. Maruyama et al. Carbon **96** (2016) 6.
- [7] T. Maruyama et al. Appl. Surf. Sci. **509** (2020) 145340.
- [8] H. Amara et al. Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 056105.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Shusaku Karasawa, Kamal Prasad Sharma, Daiki Yamamoto, Takahiro Saida, Shigeeya Naritsuka, Takahiro Maruyama	4. 巻 804
2. 論文標題 In situ XAFS study of the chemical state of a Co catalyst during single-walled carbon nanotube growth under conventional growth conditions using alcohol catalytic chemical vapor deposition	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chem. Phys. Lett.	6. 最初と最後の頁 139889
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.cplett.2022.139889	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shusaku Karasawa, Kamal Prasad Sharma, Daiki Yamamoto, Takahiro Saida, Shigeeya Naritsuka, Takahiro Maruyama	4. 巻 808
2. 論文標題 In situ XAFS study on chemical states of Co and Ir nanoparticles under conventional growth condition of single-walled carbon nanotube via alcohol catalytic chemical vapor deposition	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chem. Phys. Lett.	6. 最初と最後の頁 140135
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.cplett.2022.140135	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shusaku Karasawa, Takahiro Saida, Kamal Prasad Sharma, Shigeeya Naritsuka and Takahiro Maruyama	4. 巻 62
2. 論文標題 Single-walled carbon nanotube growth from Ni catalyst particles under conventional growth conditions by alcohol catalytic chemical vapor deposition: in situ X-ray absorption fine structure study	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 SG1036
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/acbe05	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Takahiro Maruyama, Daiki Yamamoto, Masaya Kobayashi, Kamal Prasad Sharma, Takahiro Saida, Shigeeya Naritsuka	4. 巻 117
2. 論文標題 Osumium catalyzed growth of vertically aligned and small-diameter single-walled carbon nanotubes by alcohol catalytic chemical vapor deposition	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Diamond Relat. Mater.	6. 最初と最後の頁 108501
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.diamond.2021.108501	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Daiki Yamamoto, Shusaku Karasawa, Kamal Prasad Sharma, Takahiro Saida, Shigeya Naritsuka, Takahiro Maruyama	4. 巻 2022
2. 論文標題 Iridium-Catalyzed Single-Walled Carbon Nanotube Synthesis by Alcohol-Gas-Source Method Under Low Ethanol Pressure: Growth Temperature Dependence	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Cryst. Res. Technol.	6. 最初と最後の頁 2100226
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/crat.202100226	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takahiro Maruyama, Takuya Okada, Kamal Prasad Sharma, Tomoko Suzuki, Takahiro Saida, Shigeya Naritsuka, Yoko Iizumi, Toshiya Okada, Sumio Iijima	4. 巻 509
2. 論文標題 Vertically aligned growth of small-diameter single-walled carbon nanotubes by alcohol catalytic chemical vapor deposition with Ir catalyst	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Appl. Surf. Sci.	6. 最初と最後の頁 145340
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2020.145340	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 A. Misaki, T. Saida, S. Naritsuka, T. Maruyama	4. 巻 60
2. 論文標題 Effect of growth temperature and ethanol flow rate on synthesis of single-walled carbon nanotube by alcohol catalytic chemical vapor deposition using Ir catalyst in hot-wall reactor	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 15003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abd0c5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計26件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 9件)

1. 発表者名 S. Karasawa, K. P. Sharma, D. Yamamoto, T. Saida, S. Naritsuka and T. Maruyama
2. 発表標題 In situ XAFS analysis of growth process of single-walled carbon nanotubes from Co and Fe catalysts
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science-Toward Sustainable Development~ (ISSS-9) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Maruyama, K. P. Sharma, D. Yamamoto, T. Okada, M. Kobayashi, T. Saida and S. Naritsuka
2. 発表標題 Growth of vertically-aligned and small-diameter single-walled carbon nanotubes by CVD using Ir and Os catalysts
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Surface Science-Toward Sustainable Development~ (ISSS-9) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takahiro Maruyama, Kamal Prasad Sharma, Takuya Okada, Daiki Yamamoto, Takahiro Saida, Shigeya Naritsuka
2. 発表標題 Synthesis of small-diameter SWCNTs by ACCVD using the period 6 platinum-group elements catalysts
3. 学会等名 International Conference on the Science and Application of Nanotubes and Low-Dimensional Materials (NT21) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柄澤 周作, 山本 大貴, サラマ カマル, 才田 隆広, 成塚 重弥, 丸山 隆浩
2. 発表標題 その場XAFS測定による単層カーボンナノチューブ成長メカニズムの解明: Co触媒とFe触媒の比較
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸山 隆浩, 柄澤 周作, 山本 大貴, カマル プラサド サラマ, 才田 隆広, 成塚 重弥
2. 発表標題 Co触媒からの単層カーボンナノチューブ生成における キャリアガスの影響: その場XAFS測定による分析
3. 学会等名 2021年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shusaku Karasawa, Daiki Yamamoto, Kamal Sharma, Takahiro Saida, Shigeya Naritsuka, Takahiro Maruyama
2. 発表標題 Effect of carrier gas on chemical states of Co catalyst during SWCNT growth: in situ XAFS analysis
3. 学会等名 第62回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柄澤 周作, 山本 大貴, サラマ カマル, 才田 隆広, 成塚 重弥, 丸山 隆浩
2. 発表標題 その場XAFS測定による単層カーボンナノチューブ成長メカニズムの解明: Co触媒とIr触媒の比較
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柄澤 周作, 山本 大貴, サラマ カマル, 才田 隆広, 成塚 重弥, 丸山 隆浩
2. 発表標題 キャリアガスによるSWCNT成長中のCo触媒の化学状態への影響: その場XAFS測定による分析
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本 大貴, サラマ カマル プラマド, 才田 隆広, 成塚 重弥, 丸山 隆浩
2. 発表標題 Ir触媒を用いたアルコールCVD法による単層カーボンナノチューブ成長のエタノール圧力依存性
3. 学会等名 第81回 応用物理学会 秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 丸山隆浩, 岡田拓也, サラマ・カマル, 才田隆広, 成塚重弥
2. 発表標題 白金族元素を触媒に用いた細径単層カーボンナノチューブの作製
3. 学会等名 2020年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takahiro Maruyama
2. 発表標題 Synthesis of carbon nanotubes via vapor-liquid-solid mechanism
3. 学会等名 Nanomaterial Formation at Fluid-Fluid Interfaces (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Shunsaku Karasawa
2. 発表標題 In situ XAFS Study on Growth Process of Single-walled Carbon Nanotubes
3. 学会等名 International Symposium on Materials Science and Innovation for Sustainable Society (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Daiki Yamamoto, Shu Kondo, Kamal Sharma, Takahiro Saida, Shigeya Narituka, Takahiro Maruyama
2. 発表標題 Growth of single-walled carbon nanotubes on SiO ₂ /Si substrate and alumina buffer layer by alcohol catalytic CVD method using Ir catalyst
3. 学会等名 FNTG60 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本大貴, サラマ カマル, 才田隆広, 成塚重弥, 丸山隆浩
2. 発表標題 Ir触媒を用いたアルコールCVD法によるSiO ₂ /Si基板上単層カーボンナノチューブ成長の成長温度依存性
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 横川 小葉子, 山本 大貴, 才田 隆広, 丸山 隆浩
2. 発表標題 その場XAFS測定によるCVD法におけるCo触媒からの単層カーボンナノチューブの成長過程の解明
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takahiro Maruyama, Shusaku Karasawa, Kamal Prasad Shrama, Shigeya Naritsuka, Takahiro Saida
2. 発表標題 In situ XAFS analysis of chemical state of catalyst particles during single-walled carbon nanotube growth by chemical vapor deposition
3. 学会等名 35th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shusaku Karasawa, Kamal Prasad Sharma, Takahiro Saida, Shigeya Naritsuka, Takahiro Maruyama
2. 発表標題 In situ XAFS analysis of chemical state of Co catalysts prepared by solution method during single-walled carbon nanotube growth
3. 学会等名 The 22nd International Vacuum Congress (IVC-22), Mon-E1-4, Sapporo Convention Center (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shusaku Karasawa, Daiki Yamamoto, Kamal Sharma, Takahiro Saida, Shigeya Naritsuka, Takahiro Maruyama
2. 発表標題 Effect of carrier gas on chemical states of Co catalyst during SWCNT growth: in situ XAFS analysis
3. 学会等名 FNTG62
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 柄澤 周作, 山本 大貴, サラマ カマル, 才田 隆広, 成塚 重弥, 丸山 隆浩
2. 発表標題 その場XAFS測定による単層カーボンナノチューブ成長メカニズムの解明: Co触媒とIr触媒の比較
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 柄澤 周作, 山本 大貴, サラマ カマル, 才田 隆広, 成塚 重弥, 丸山 隆浩
2. 発表標題 キャリアガスによるSWCNT成長中のCo触媒の化学状態への影響: その場XAFS測定による分析
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 柄澤 周作, サラマ カマル, 才田 隆広, 成塚 重弥, 丸山 隆浩
2. 発表標題 その場 XAFS 測定による単層カーボンナノチューブ 成長メカニズムの解明: Fe 触媒と Ni 触媒の比較
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 柄澤 周作, サラマ カマル, 才田 隆広, 成塚 重弥, 丸山 隆浩
2. 発表標題 その場 XAFS 測定による単層カーボンナノチューブ成長中の Co 触媒と Ir 触媒の化学状態の比較
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 丸山 隆浩, 柄澤 周作, サラマ カマル, 才田 隆広, 成塚 重弥
2. 発表標題 X線吸収分光法によるカーボンナノチューブ生成過程における触媒粒子の化学状態の解明
3. 学会等名 第49回炭素材料学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shusaku Karasawa, Kamal Sharma, Takahiro Saida, Shigeya Naritsuka, Takahiro Maruyama
2. 発表標題 Elucidation of growth mechanism of single-walled carbon nanotubes from platinum catalyst by in situ XAFS analysis
3. 学会等名 FNTG64 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 柄澤 周作, サラマ カマル, 才田 隆広, 成塚 重弥, 丸山 隆浩
2. 発表標題 その場 XAFS 測定による単層カーボンナノチューブ 成長メカニズムの解明: Ir 触媒と Pt 触媒の比較
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 柄澤 周作, サラマ カマル, 才田 隆広, 成塚 重弥, 丸山 隆浩
2. 発表標題 その場 XAFS 測定による単層カーボンナノチューブ成長中の 鉄族金属触媒の化学状態の解明
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 Takahiro Maruyama	4. 発行年 2022年
2. 出版社 Elsevier	5. 総ページ数 21
3. 書名 Handbook of Carbon-Based Nanomaterials; Chap.6	

1. 著者名 Takahiro Maruyama	4. 発行年 2022年
2. 出版社 Springer Cham	5. 総ページ数 31
3. 書名 Handbook of Carbon Nanotubes; Chap. Carbon Nanotube Growth Mechanism	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	成塚 重弥 (Naritsuka Shigeya) (80282680)	名城大学・理工学部・教授 (33919)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	才田 隆広 (Saida Takahiro) (90710905)	名城大学・理工学部・准教授 (33919)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関